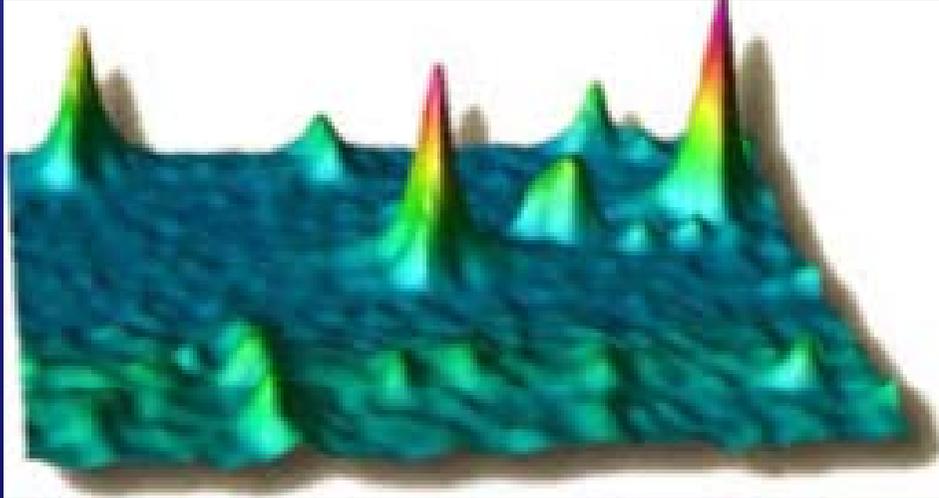


# Optique en milieu cryogénique et super résolution

*J.-B. Trebbia*  
Groupe Nanophotonique

Laboratoire Photonique, Numérique et Nanosciences - LP2N  
Université Bordeaux - IOGS - CNRS : UMR 5298  
France

## Détection de molécules uniques

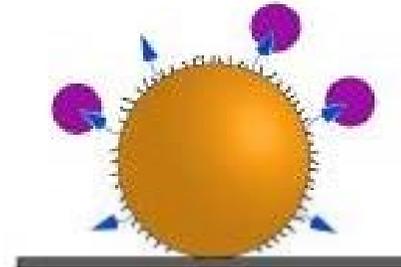
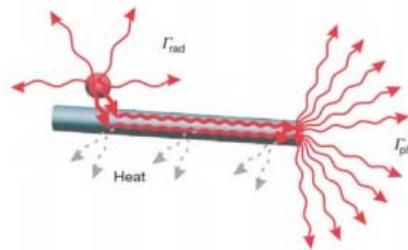


Moerner, W.E. & Kador, L. *Phys. Rev. Lett.* **62**, 2535 (1989).

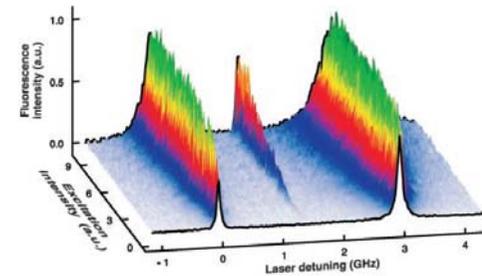
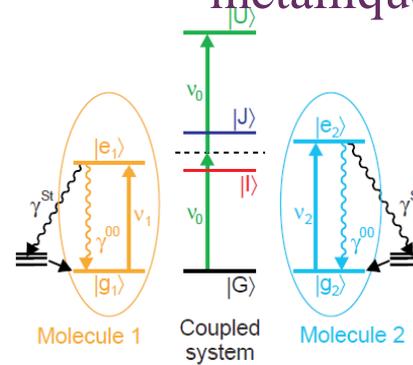
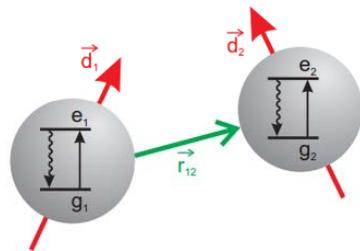
Orrit, M. & Bernard, J. *Phys. Rev. Lett.* **65**, 2716–2719 (1990).

- Spectroscopie de molécules uniques pour sonder l'environnement local
- Images en fluorescence
  - Super-resolution
- Optique quantique
  - Sources de photons uniques
  - Émetteurs intriquées

# Motivations :



Interactions entre émetteurs quantiques et nanostructures métalliques



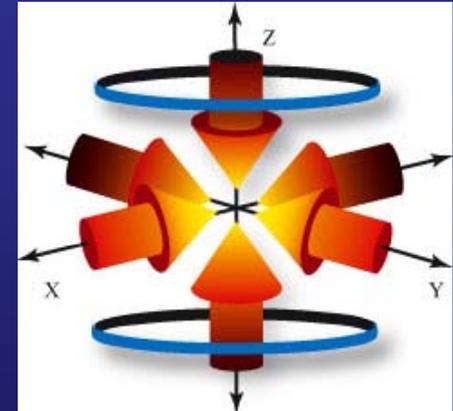
12 nm !!

Interaction dipole-dipole entre émetteurs quantiques.

# Intérêts des molécules uniques à basse température

## Atomes :

- Simplicité : molécules piégées et refroidies par la matrice cristalline hôte
- efficacité de collection élevée ( $N.A. > 1$ )



## Boîtes quantiques / Centres NV dans le diamant :

- Photostabilité
- Pas de déphasage due aux phonons.
- Cohérence optique donnée par la durée de vie de l'état excité.

# Intérêts des molécules uniques à basse température

- ✓ Rendement de fluorescence  $\sim 100\%$
- ✓ Raie sans phonon fine et intense
- ✓ Cohérence limitée par la durée de vie de l'état excité  $\Rightarrow$  photons indiscernables

## Spectre d'émission DBT/Ac (2K)

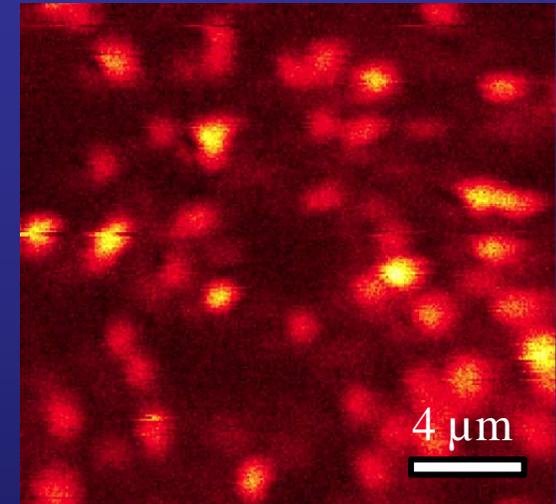
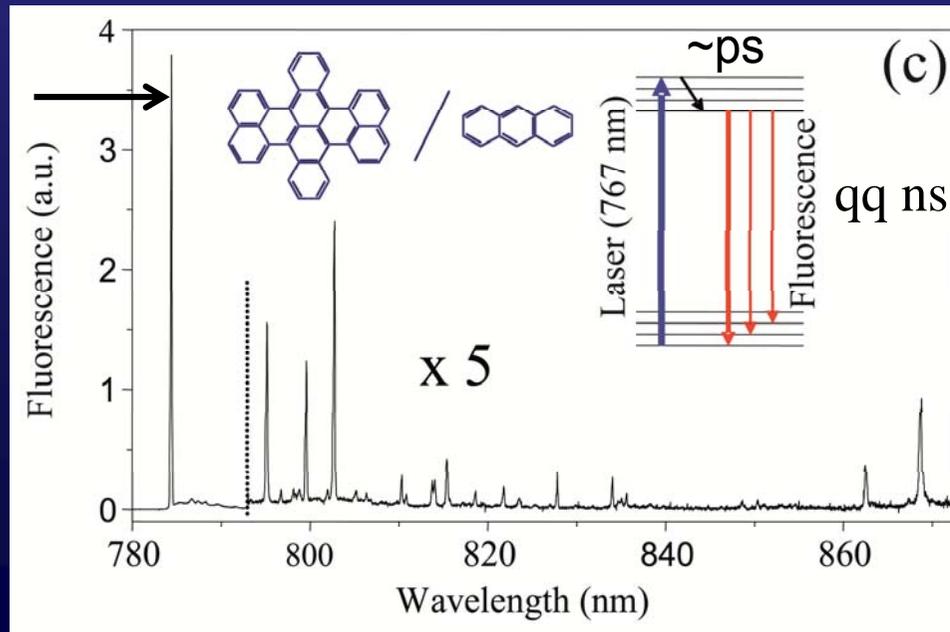


Image confocale

Émission  
Raie sans phonon



## Pourquoi un environnement extrême?

Car nécessite :

- Un adressage de molécules individuelles (spatialement et fréquentiellement).
- Un système d'imagerie fonctionnant à température cryogénique et permettant de détecter efficacement des faibles signaux.
- de minimiser les vibrations mécaniques (quelques nm).
- D'un point de vue plus fondamentalement de conserver la cohérence quantique

# L'adressage de molécules individuelles

# Détection optique de molécules uniques :

1- Seule une molécule doit être excitée par le laser

$$N \sim (N_{\text{avog.}} C V) \gamma_{\text{hom}}/\gamma_{\text{inhom}} \ll 1$$

Faibles  
concentrations  
 $T_{\text{amb}} : < 10^{-9} \text{ M}$   
Basse T :  $< 10^{-6} \text{ M}$

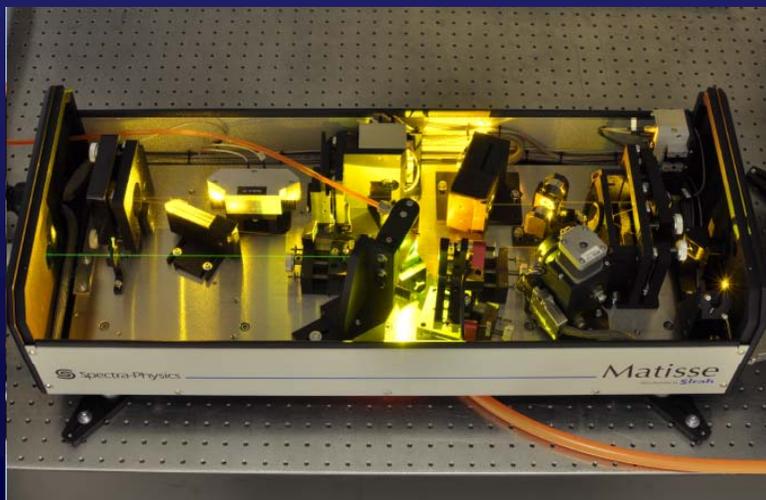
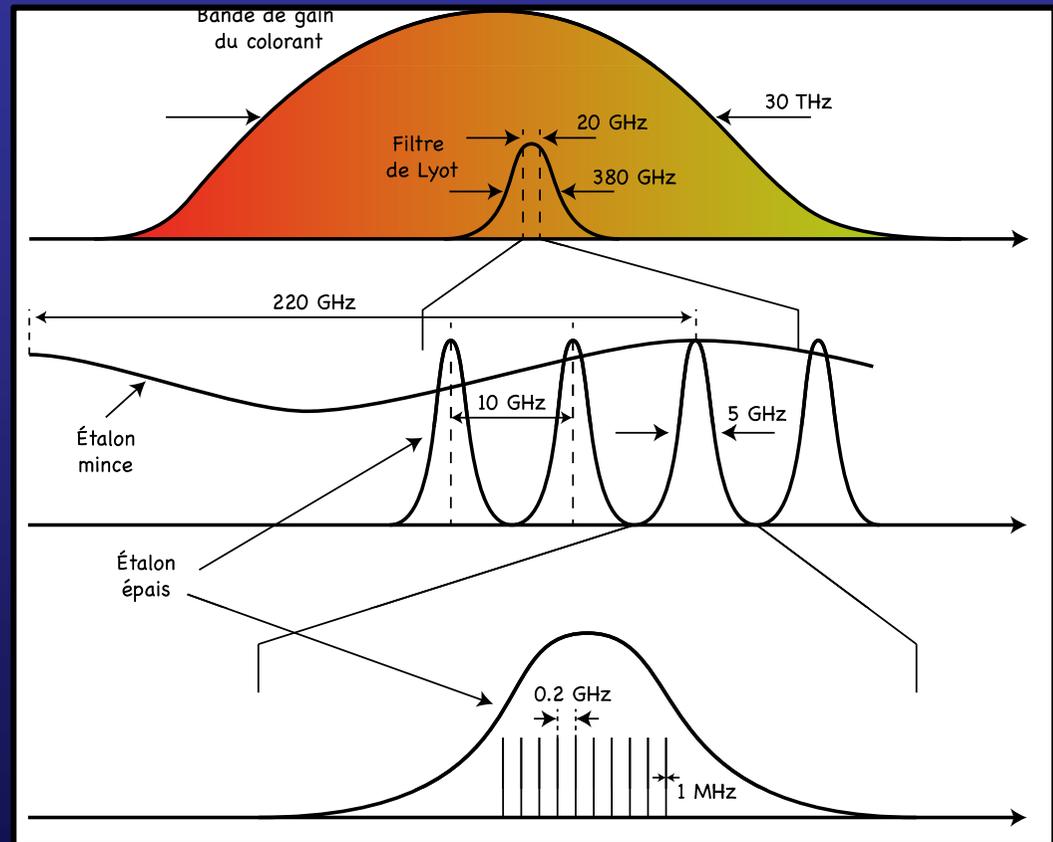
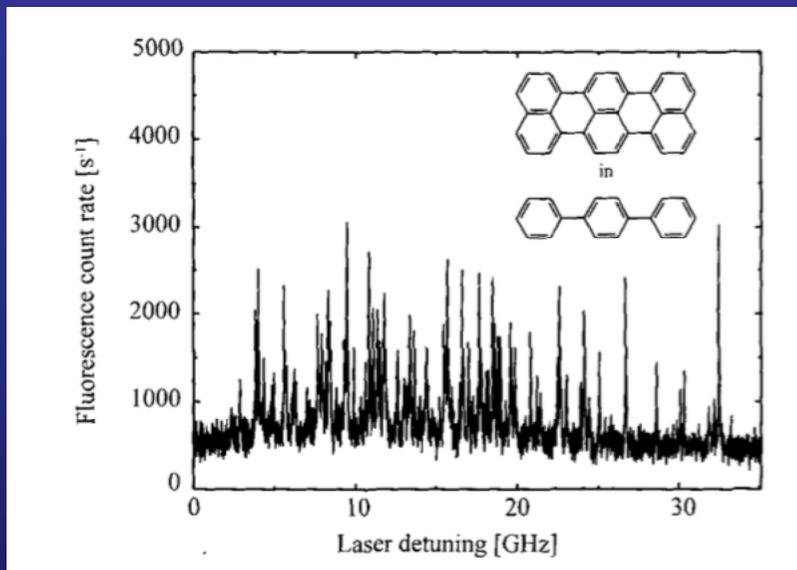
Sélection spatiale  
 $\sim 1 \mu\text{m}^3$

Sélection spectrale  
-  $T_{\text{amb}} : \text{aucune}$   
- Basse T :  $\gamma_{\text{hom}}/\gamma_{\text{inhom}} \sim 10^{-3}$

2- Le signal donné par la molécule doit dominer par rapport à toutes les autres sources de fond.

3- Utilisation de détecteurs adaptés : APD, caméras CCD/CMOS.

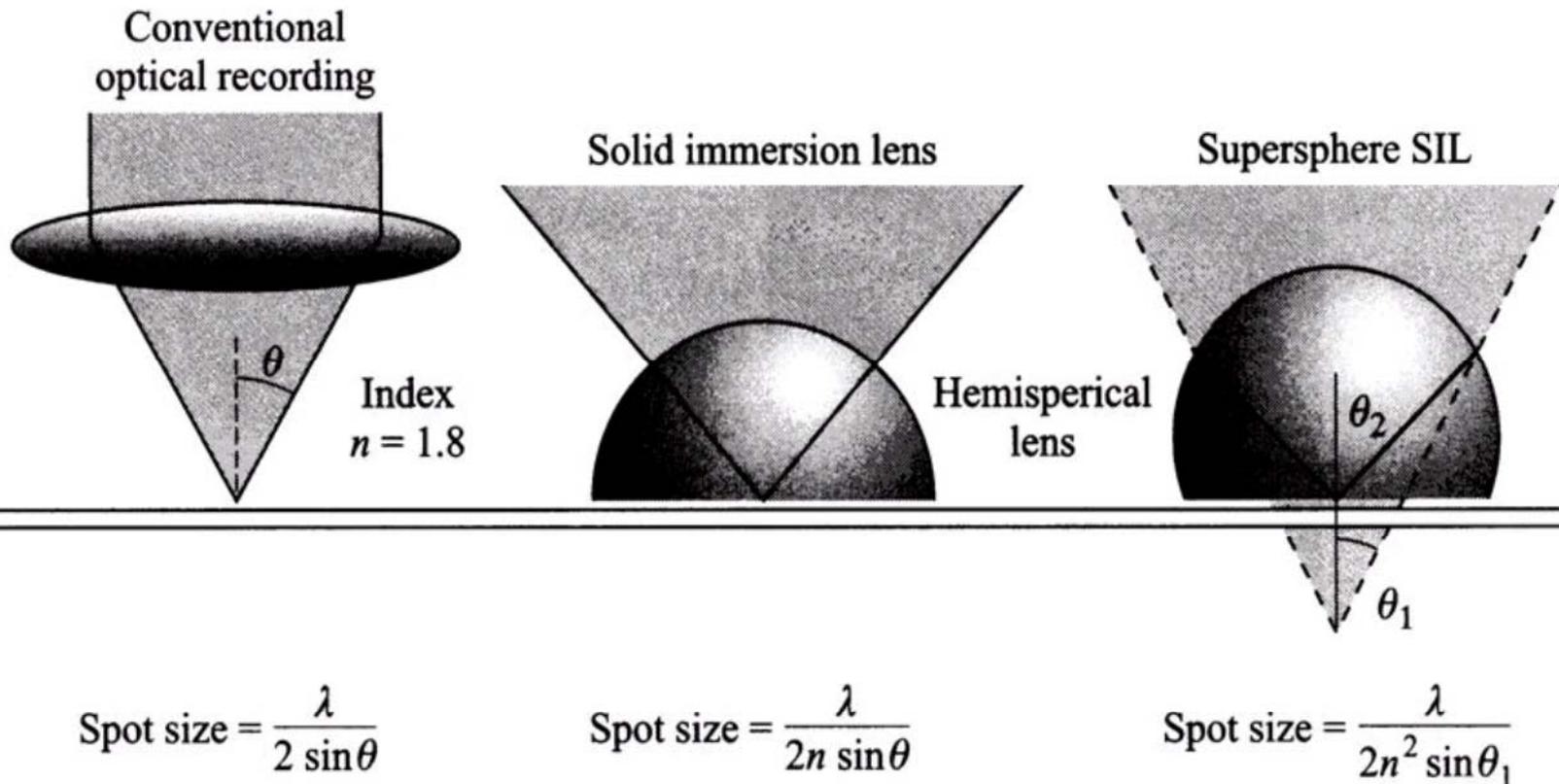
# Laser à colorant : monomode sur 30 GHz avec une grande plage d'accordabilité.



- Stabilisation externe par une cavité Fabry Pérot thermostatée.
- Utilisation de lambdamètres de plus en plus précis (2 MHz ref absolue).

# **Systeme d'imagerie fonctionnant à températures cryogéniques**

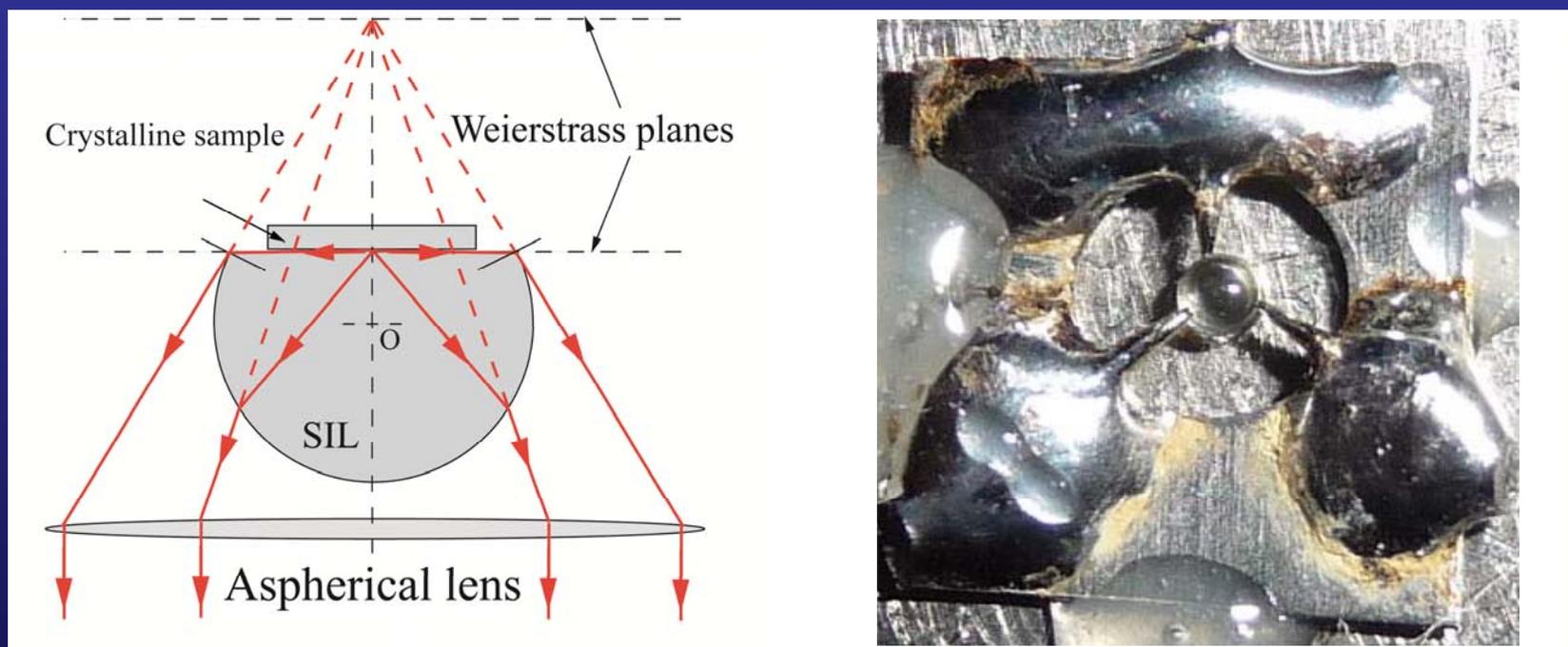
# Objectifs à grande ouverture numérique avec une lentille à immersion solide:



SIL hémisphérique :  
accroit la NA par n

SIL de type Weierstrass :  
accroit la NA by  $n^2$

# Objectifs à grande ouverture numérique avec une lentille à immersion solide:



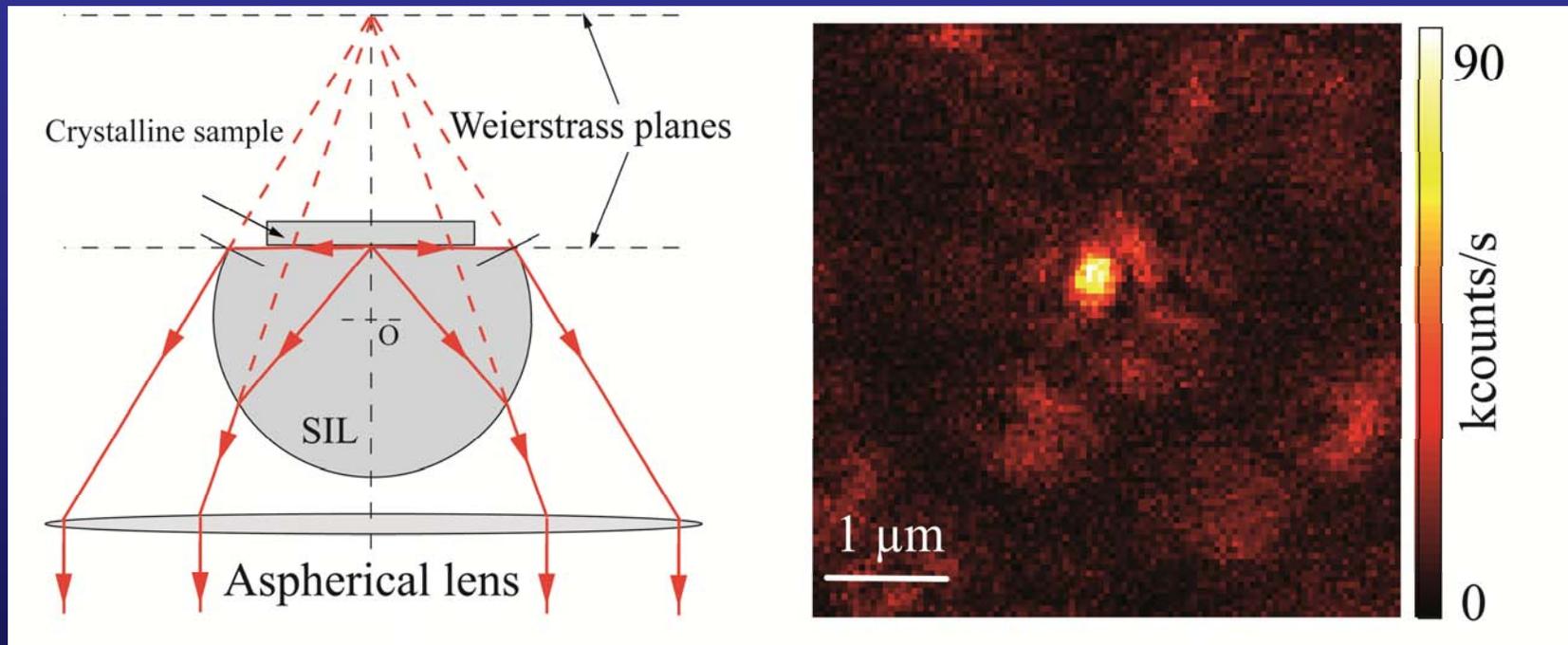
N.A.  $\approx 1.8$

Résolution optique : 300 nm ( $0.4 \lambda$ ).

Grande efficacité de collection (\*4),

Champ :  $35 \times 35 \mu\text{m}^2$

# Objectifs à grande ouverture numérique avec une lentille à immersion solide:



N.A.  $\approx 1.8$

DBT/Ac  
at T=2K

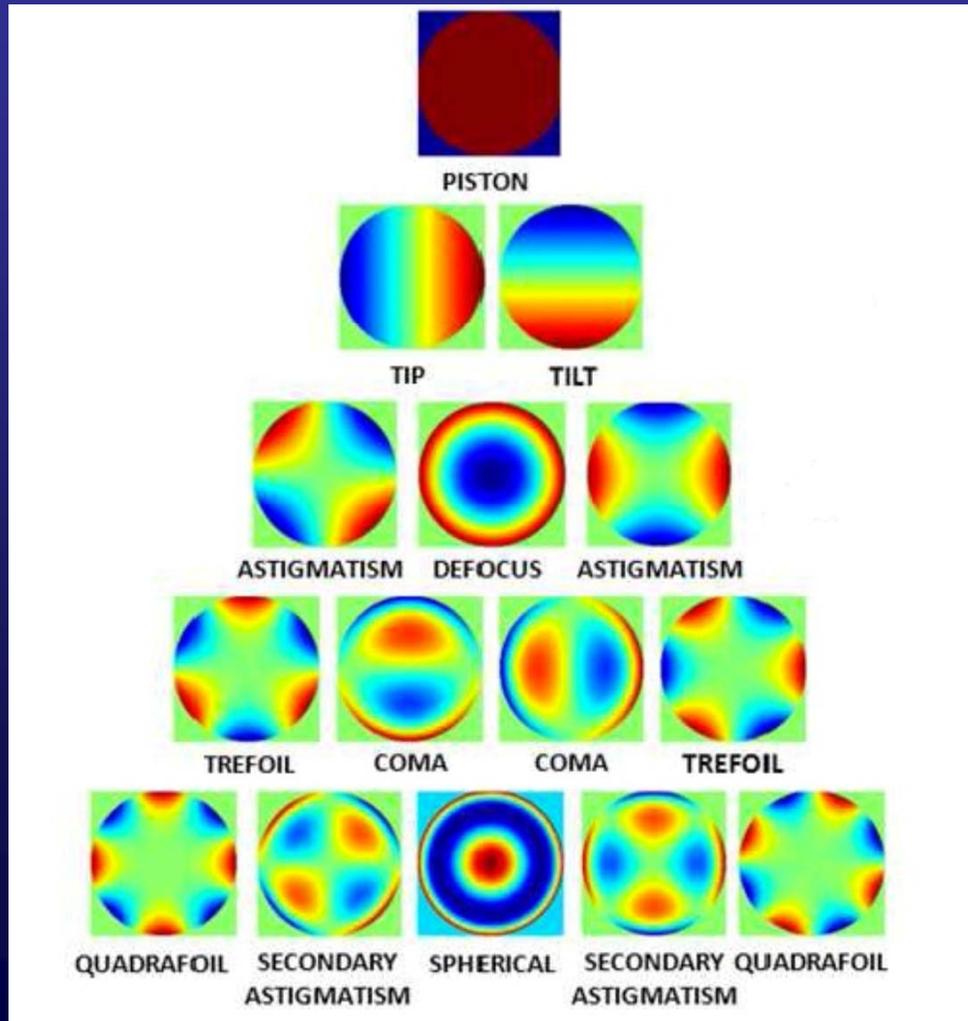
Resolution optique : 300 nm ( $0.4 \lambda$ ).

Grande efficacité de collection (\*4),

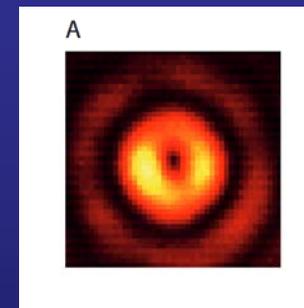
Champ :  $35 \times 35 \mu\text{m}^2$

13

# Correction du front d'onde d'un objectif « standard » :



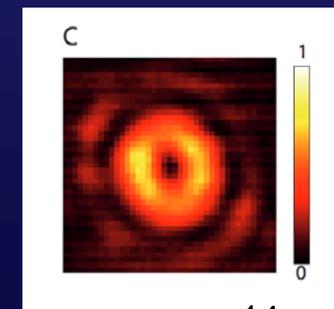
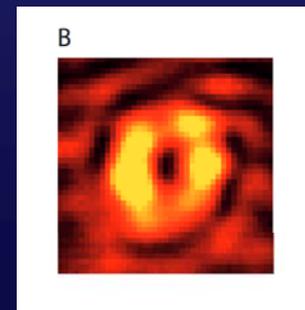
Température ambiante :



Température cryogénique (2K) :

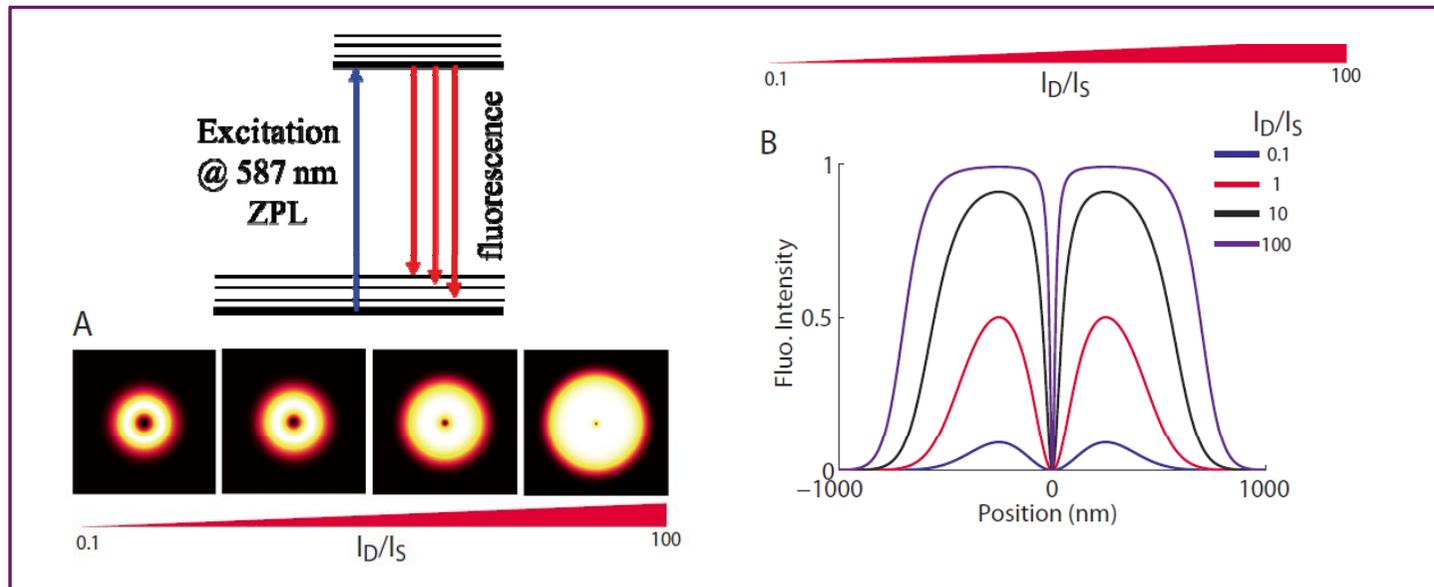
Avant opt.

Après opt.



# 2D-Excited State Saturation Microscopy (ESSat)

- Pour un système à deux niveaux:  $\sigma = \alpha_{DW} \frac{3\lambda^2}{2\pi}$ 
  - Basse temp. :  $\sigma = 1e^{-10} \text{ cm}^2$
  - Temp ambiante :  $\sigma \sim 1e^{-16} \text{ cm}^2$

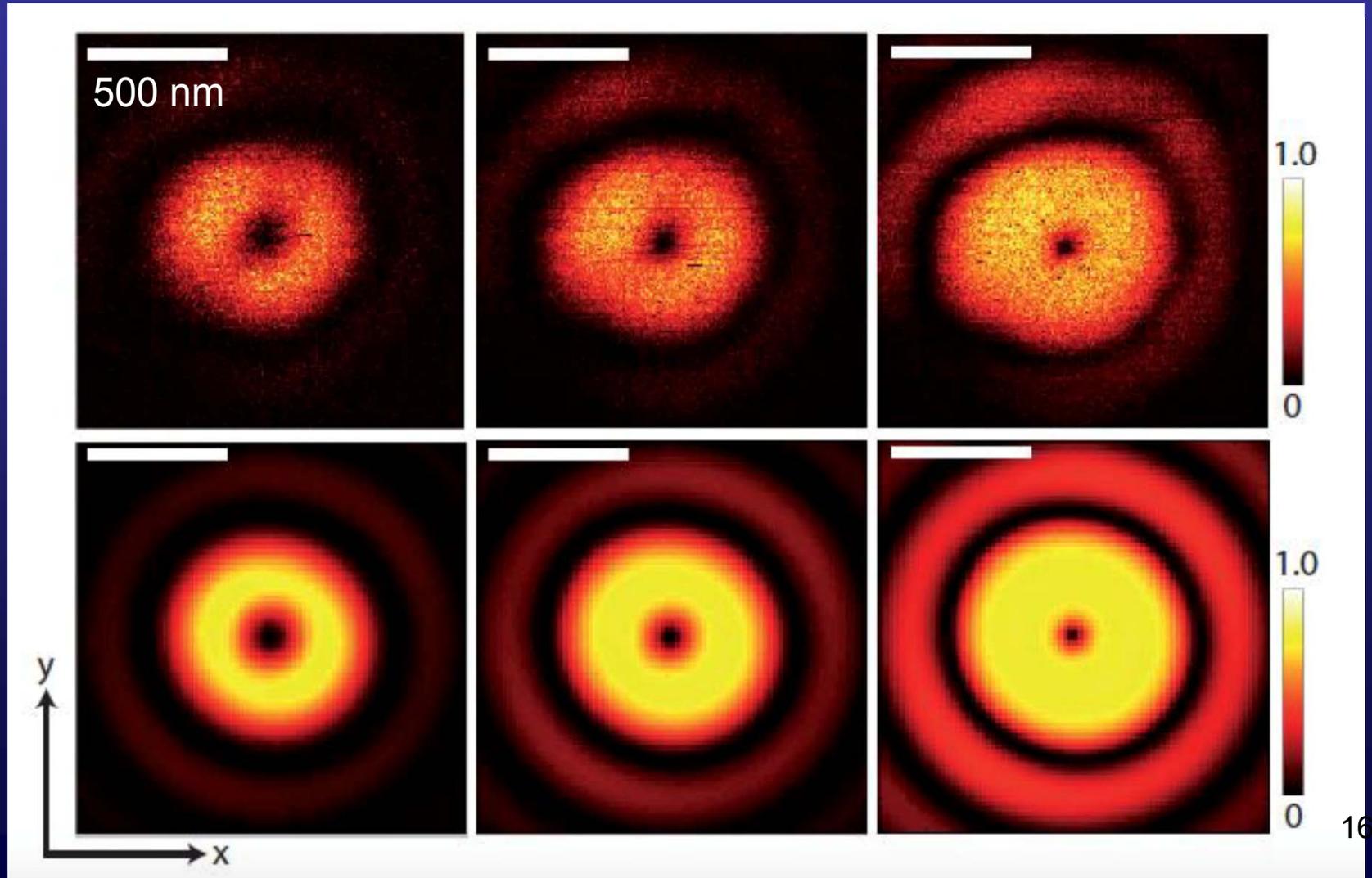


- résolution optique:

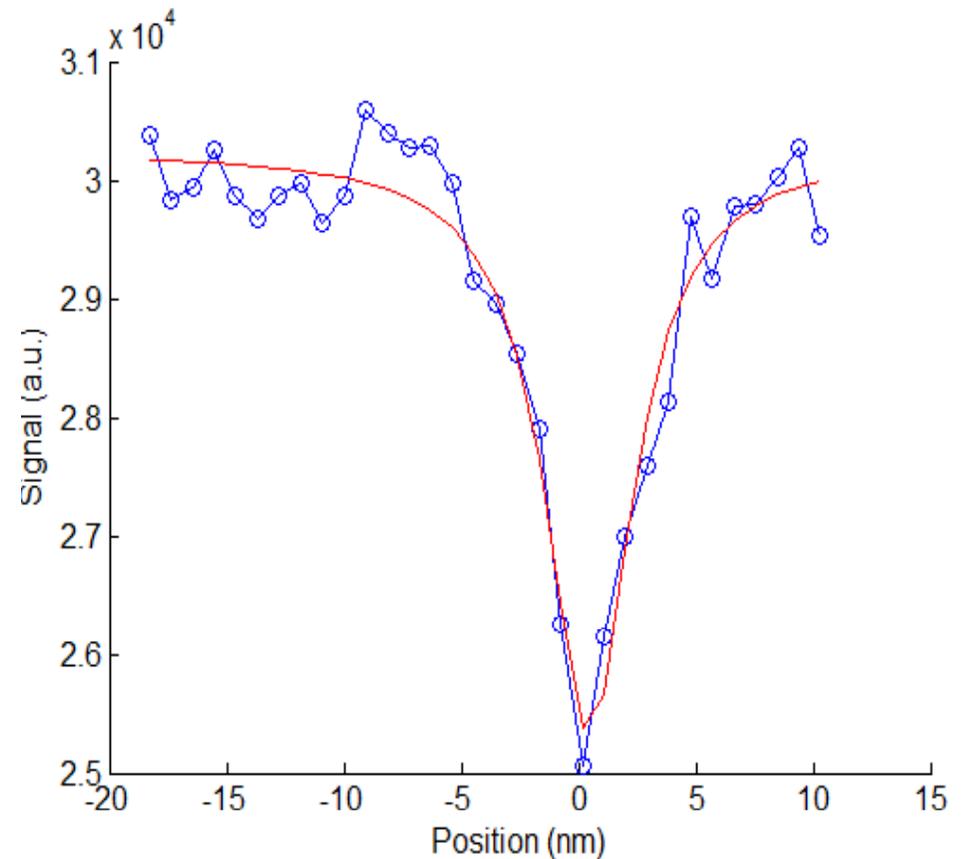
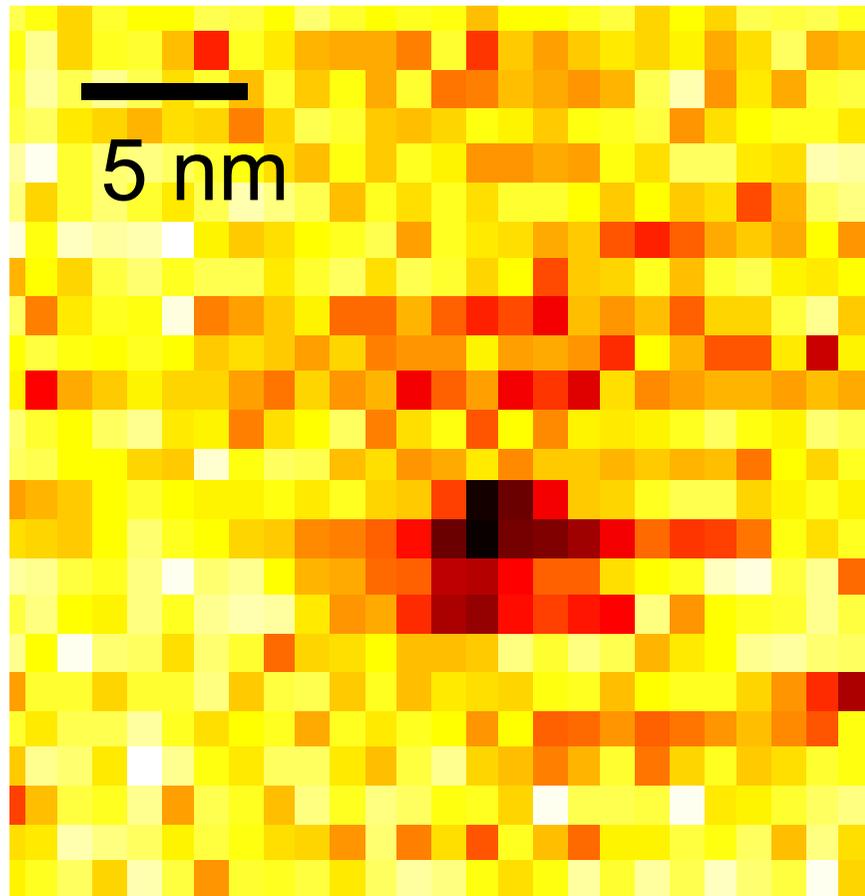
**=> 3 ordres de grandeur comparés à l'imagerie STED!!**

$$\Delta r = \frac{2d}{\pi \sqrt{I_{\text{donut}}/I_{\text{sat}}}}$$

# Correction du front d'onde : images en fluorescence

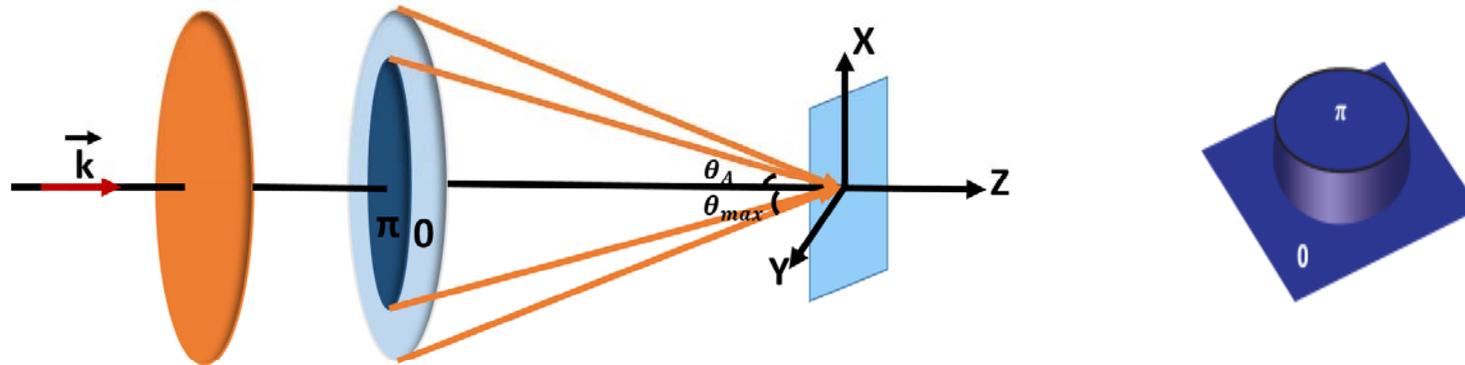


## 2D-Excited State Saturation Microscopy (ESSat) :

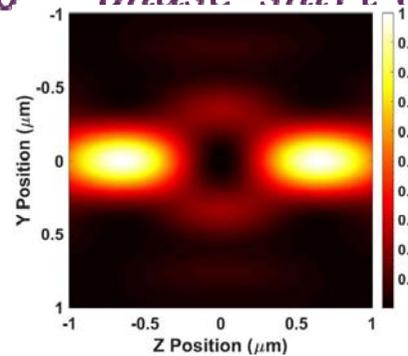
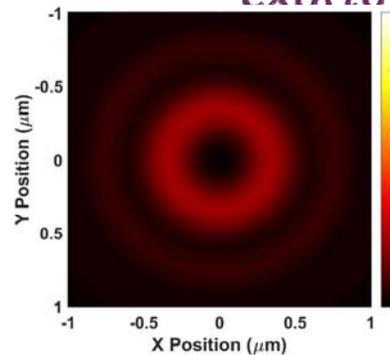


- Resolution laterale : 5 nm for  $P_{\text{ESSAT}} = 100 \mu\text{W}!!$
- limité par les vibrations mécaniques

# 3D-ESSat : 0- $\pi$ Phase Plate

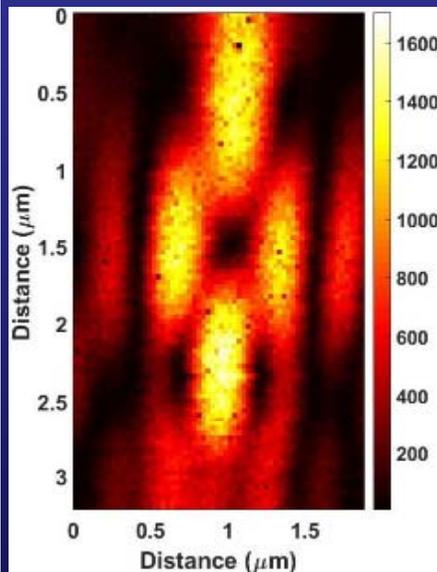


$$A(\theta, \varphi) = \begin{cases} \exp(i\pi) : \pi - \text{phase shift } (\theta < \theta_A) \\ \exp(i0) : 0 - \text{phase shift } (\theta_A \leq \theta < \theta_{max}) \end{cases}$$

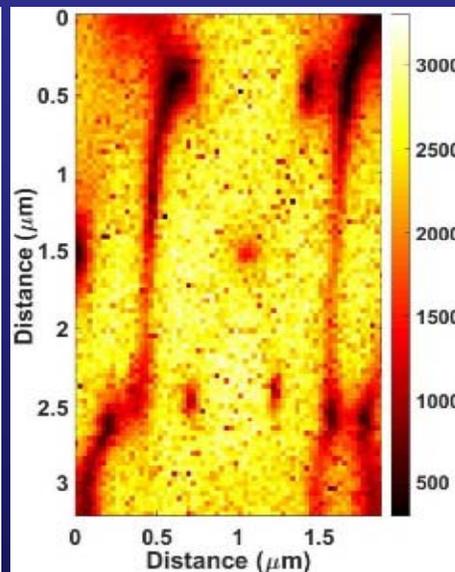


# Résolution axiale :

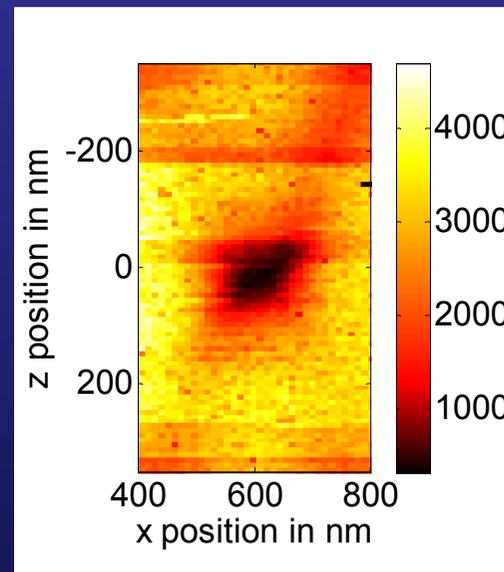
P= 20 nW



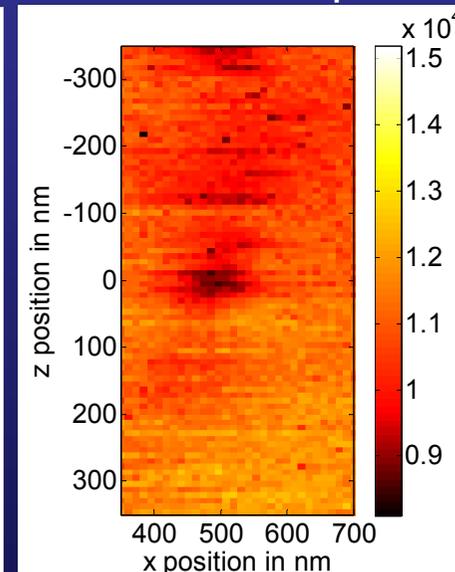
P= 1  $\mu\text{W}$



P= 100 nW



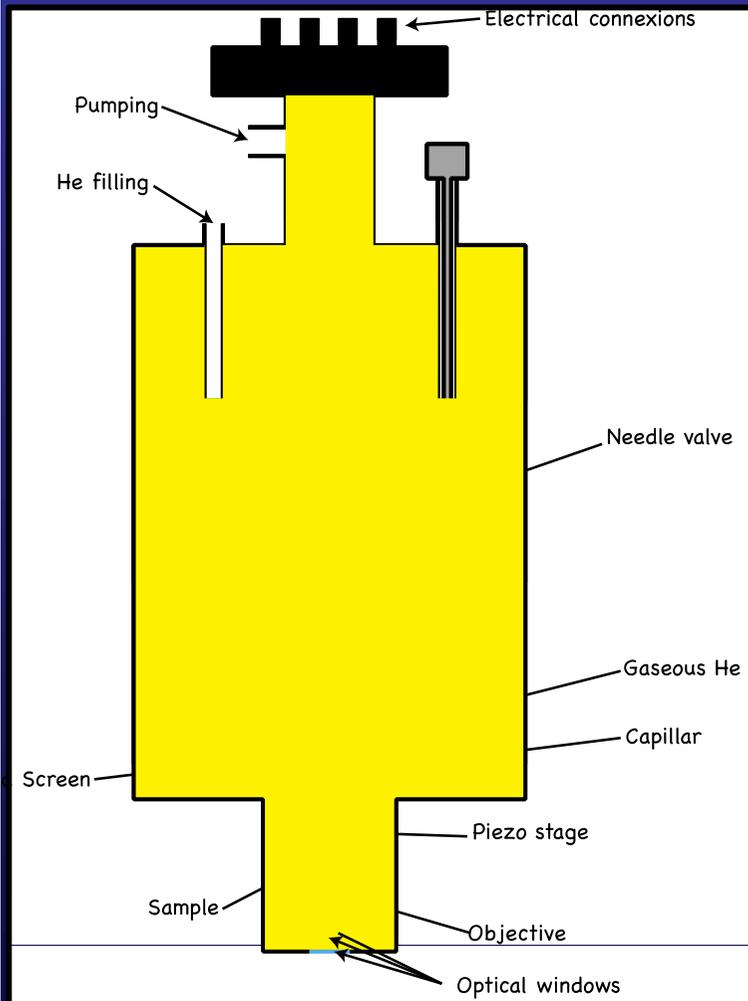
P= 10  $\mu\text{W}$



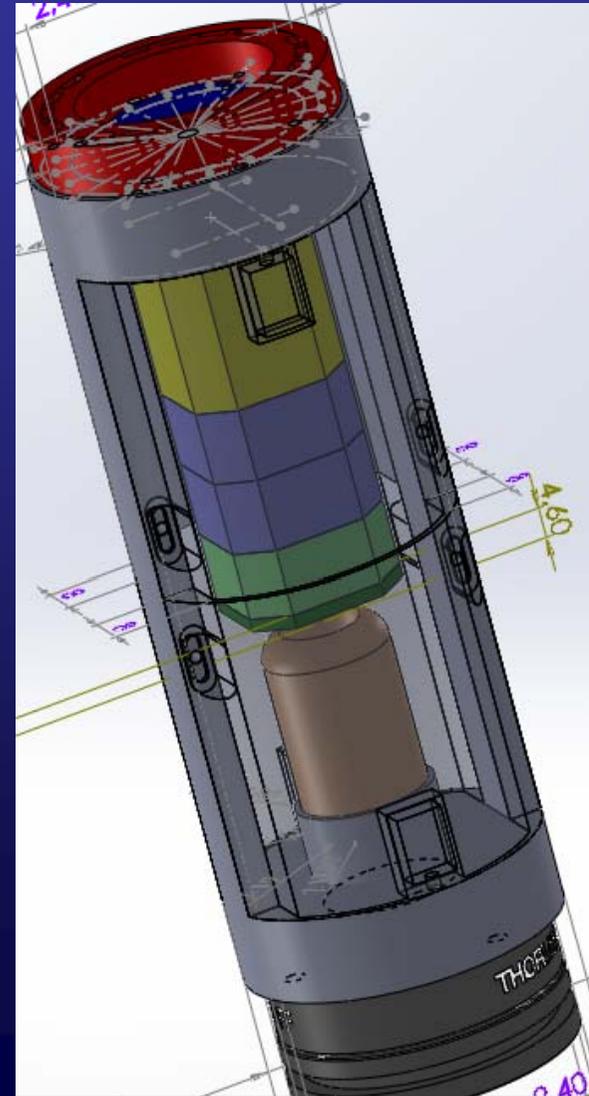
résolution axiale ultime de 20 nm (FWHM)

# Minimiser les vibrations mécaniques

# Cryostat à bain d'hélium :



5 cm



2.5 cm

21

## Nouveaux types de cryostat :

### Cryofree (Montana)



Température base : 3.2K,  
Stabilité 10 mK,  
Vibrations 5 nm pic à pic.

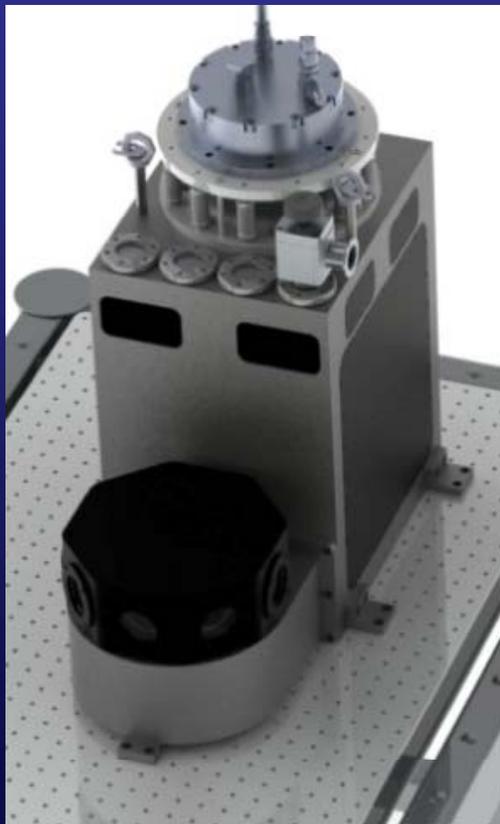
### Cryofree (Attocube)



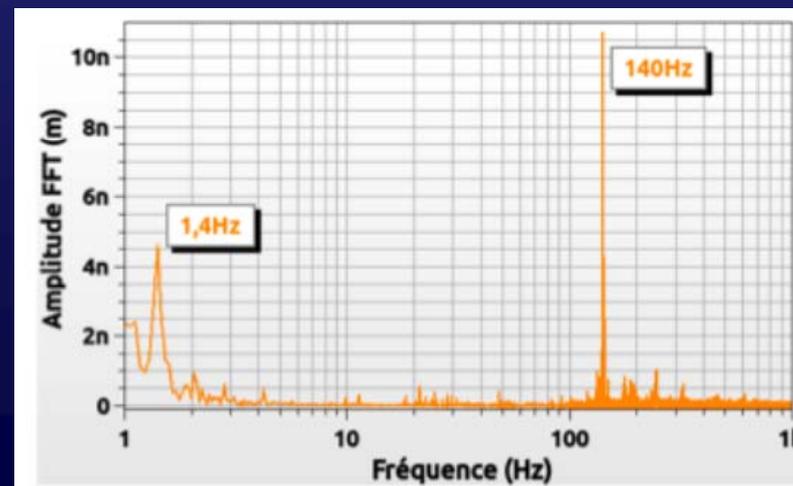
Cryofree intégré à une table optique  
faibles vibrations < 10 nm pic à pic  
Température variable 3.8 .. 320 K

# Nouveaux types de cryostat :

## Mycryofirm (optidry)



OPTIDRY 150/250	OPTIDRY 150-TESLA	OPTIDRY 250-UHV
<i>Version Standard avec 5 accès Optiques 2"</i> <i>Diamètre 150 ou 250mm</i>	<i>Version Standard avec 5 accès Optiques 2"</i> <i>Bobine supra intégrée jusqu'à 7T</i>	<i>Version Standard avec 3 accès Optiques 1"</i> <i>Bride UHV / Volume 5dm3</i>
<b>Applications :</b> Photoluminescence Spectroscopie Transport	<b>Applications :</b> Spectroscopie sous champ magnétique	<b>Applications :</b> Métrologie Oscillateur cryogénique
OPTIDRY 200-IVC	OPTIDRY 150-NEAR	OPTIDRY 150-1K
<i>Version Standard avec 3 accès Optiques 1"</i> <i>Chambre IVC</i>	<i>Version Standard avec 5 accès Optiques 2"</i> <i>Faible distance échantillon et extérieur</i>	<i>Version Standard avec 5 accès Optiques 2"</i> <i>Température échantillon 1K (one shoot)</i>
<b>Applications :</b> Métrologie Oscillateur cryogénique	<b>Applications :</b> Photoluminescence Spectroscopie Microscopie	<b>Applications :</b> Photoluminescence Spectroscopie

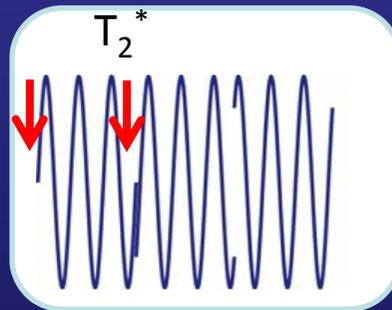
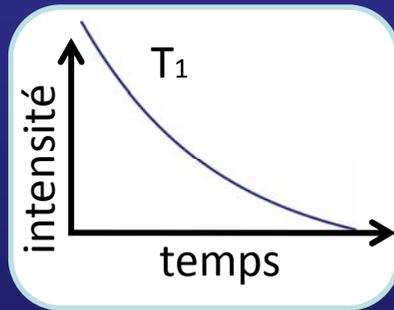


**D'un point de vue de la cohérence quantique**

# Photons indiscernables et interférences quantiques

Indiscernabilité :

➤ Même mode spectral

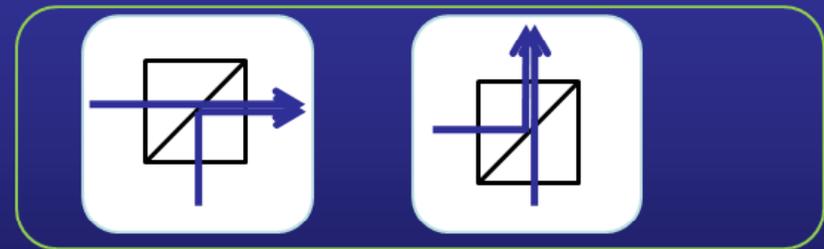


$$\frac{1}{T_2} = \frac{1}{T_2^*} + \frac{1}{2T_1}$$

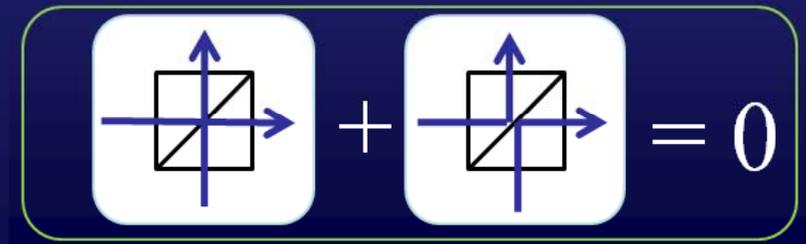
➤ Même polarisation

➤ Même mode spatial

Evènements discernables :

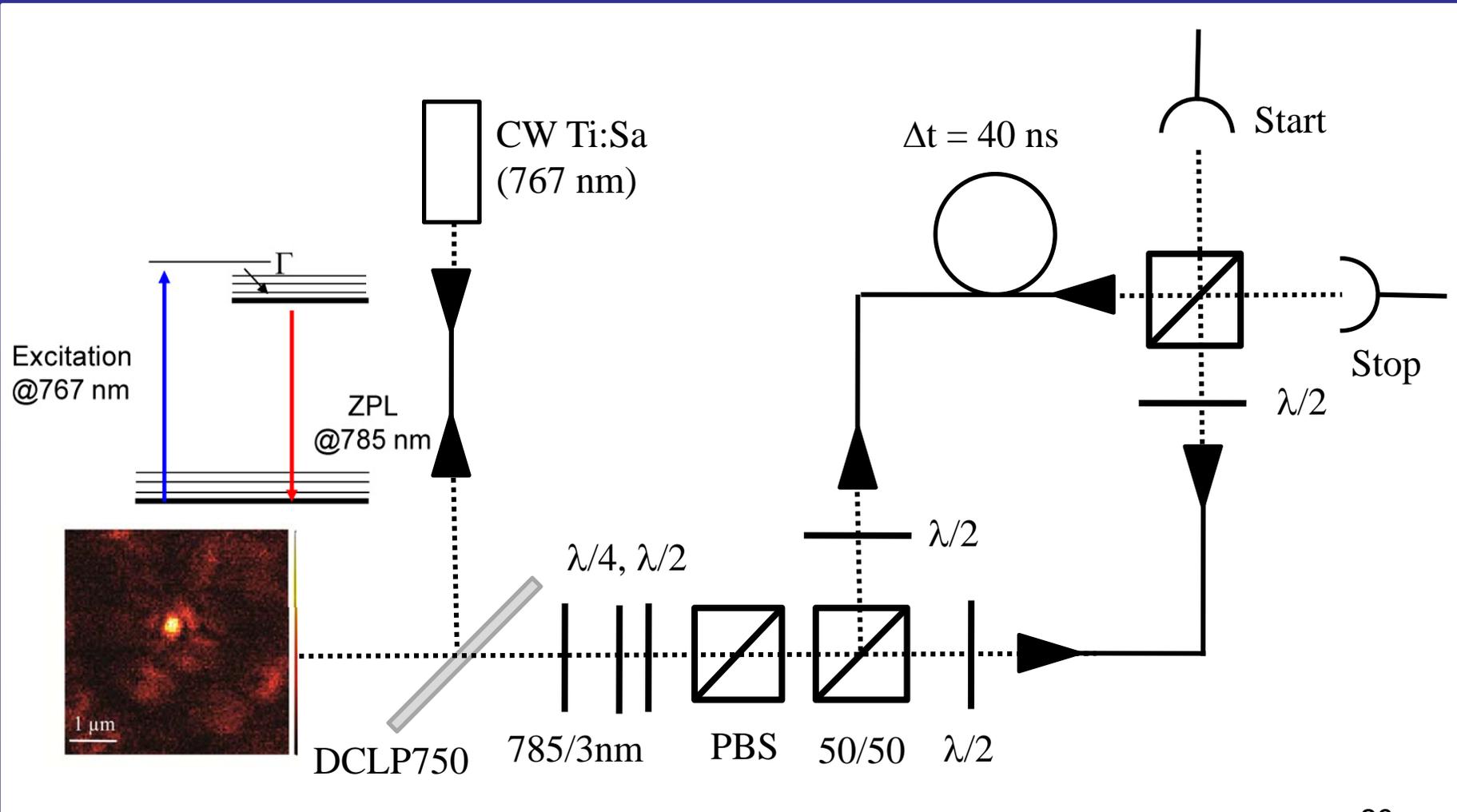


Evènement indiscernables :

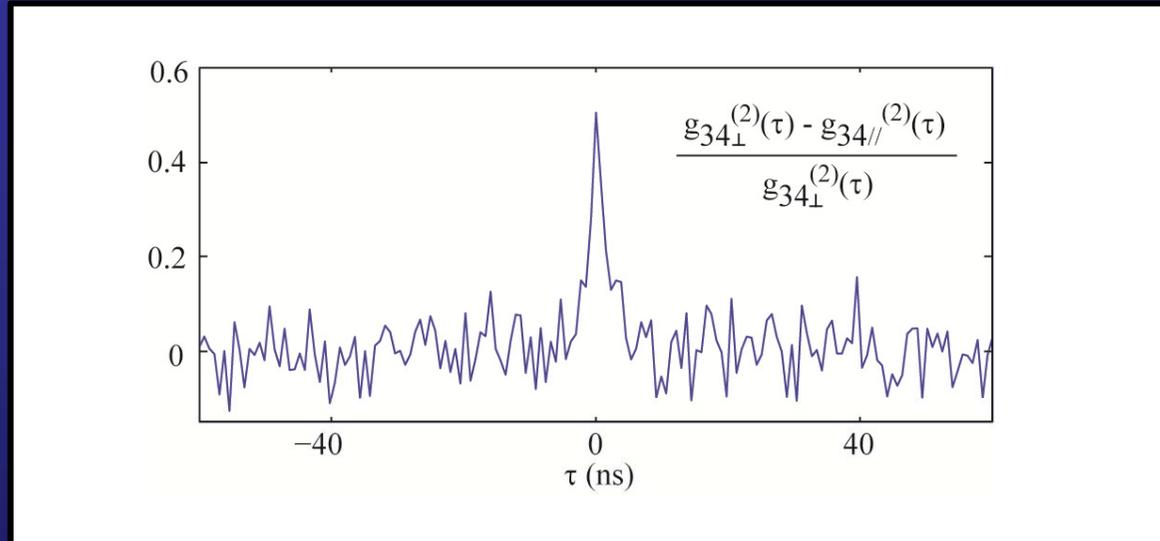


➤ Les deux photons sortent par le même port de la lame séparatrice.<sup>25</sup>

# Dispositif expérimental :



## Expérience de Hong Ou Mandel (T=2K):



Efficacité de coalescence : 50% des photons sont indiscernables

**Contraste réduit à cause du :**

- recouvrement spatial des modes ( $\lambda/2$  sur 22 mm)  $\Rightarrow \sim 30\%$ ,
- du rapport signal à fond ( $\sim 20$ )  $\Rightarrow \sim 10\%$ ,
- résolution temporel  $\Rightarrow \sim 10\%$ .

# Couplage d'une molécule unique avec un nanofil d'Argent

## Sur la molécule:

Image en champ noir

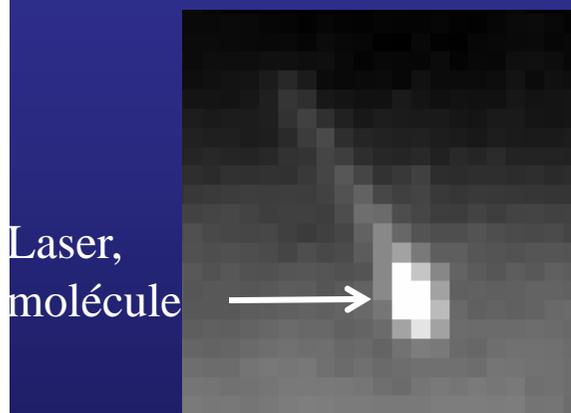
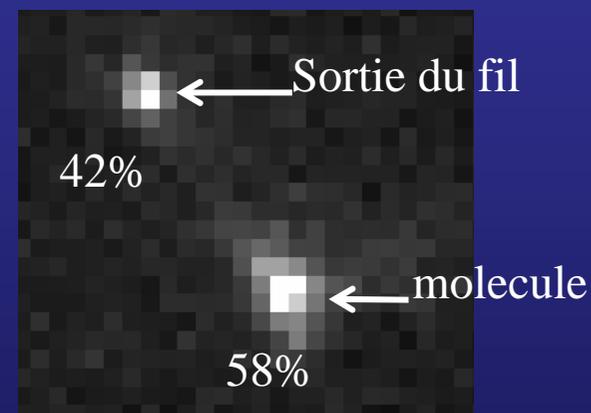
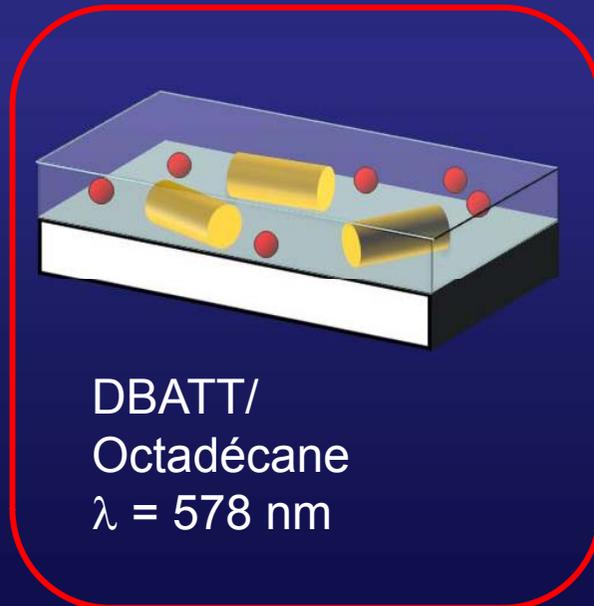
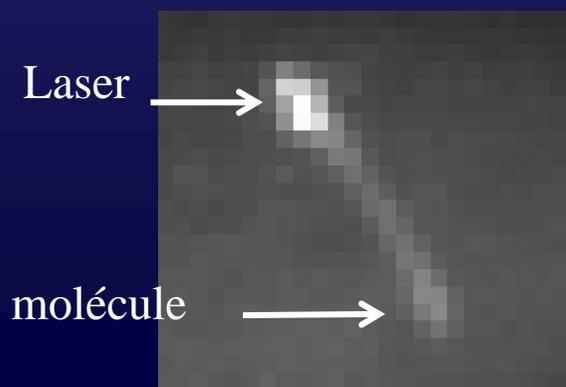


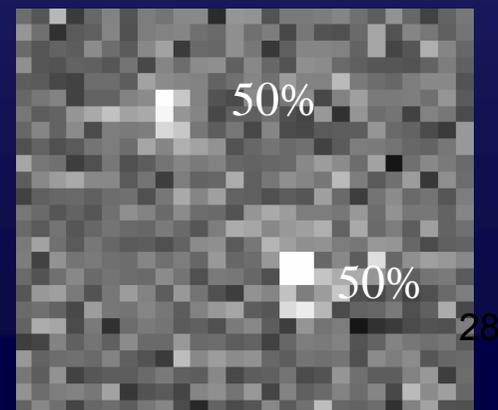
Image en fluorescence



## À la sorite du fil:

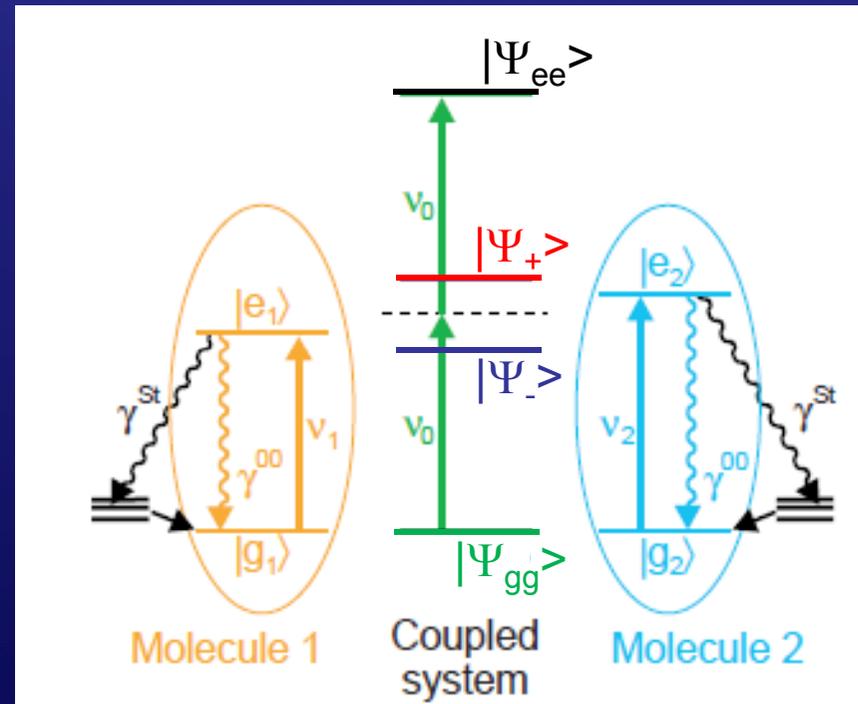
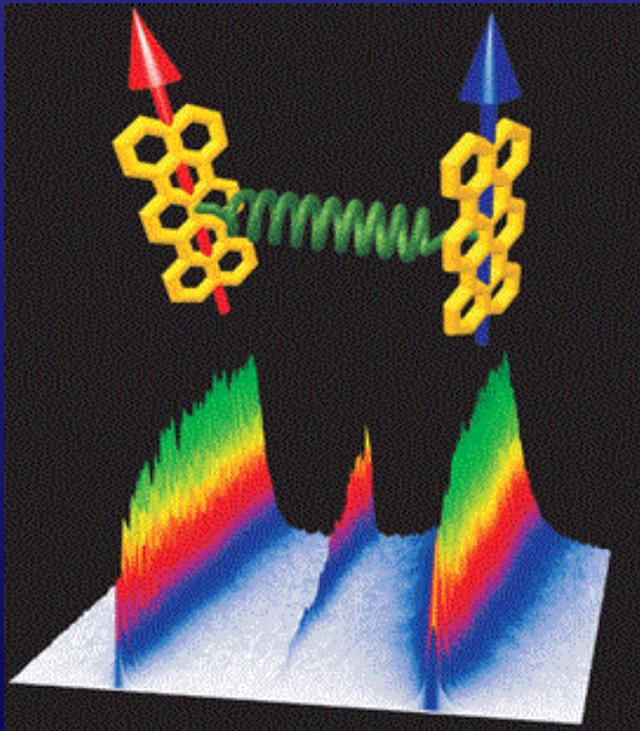


Taille du pixel:  
260 nm



# Strong coherent dipole-dipole coupling

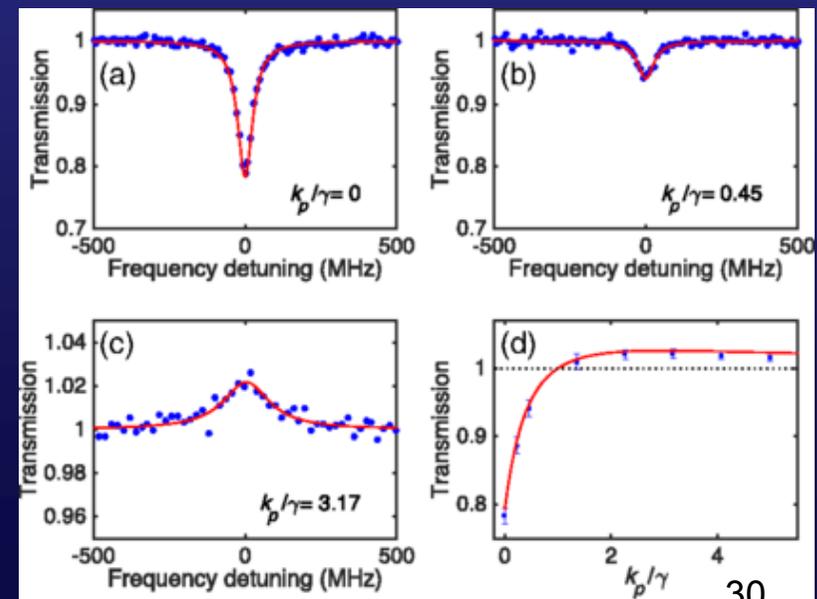
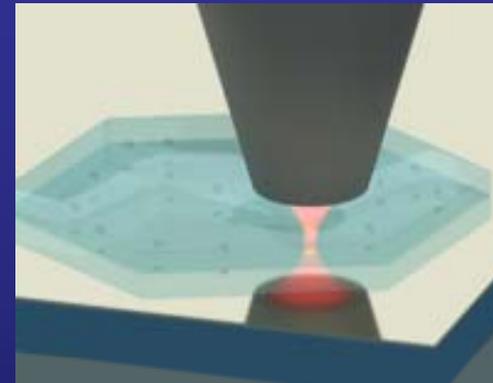
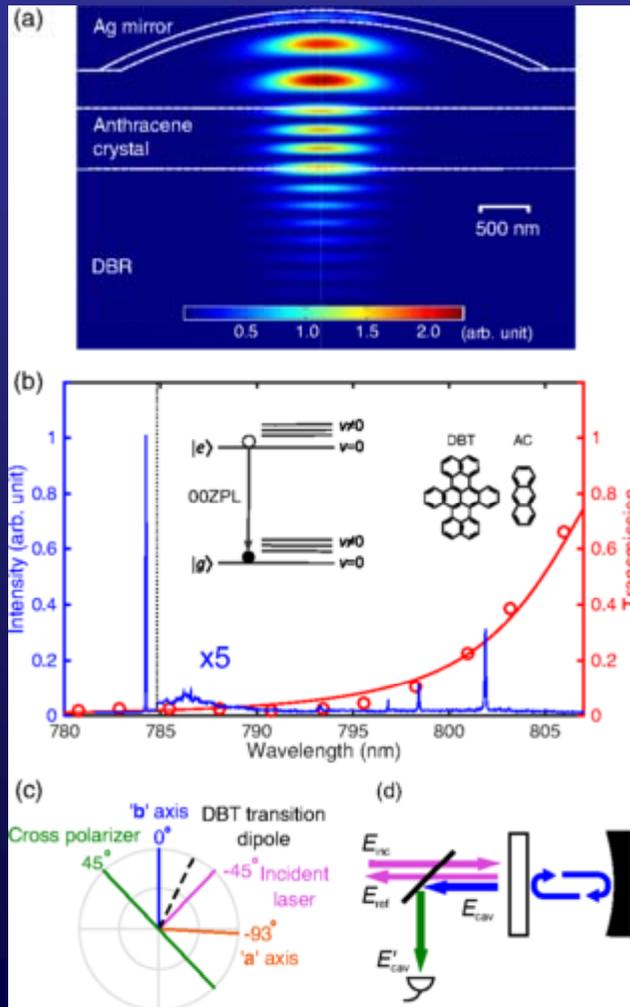
Hettich, C. et al. *Science* 298, 385–389 (2002)



The coupling strength depends on the distance as  $1/d^3$

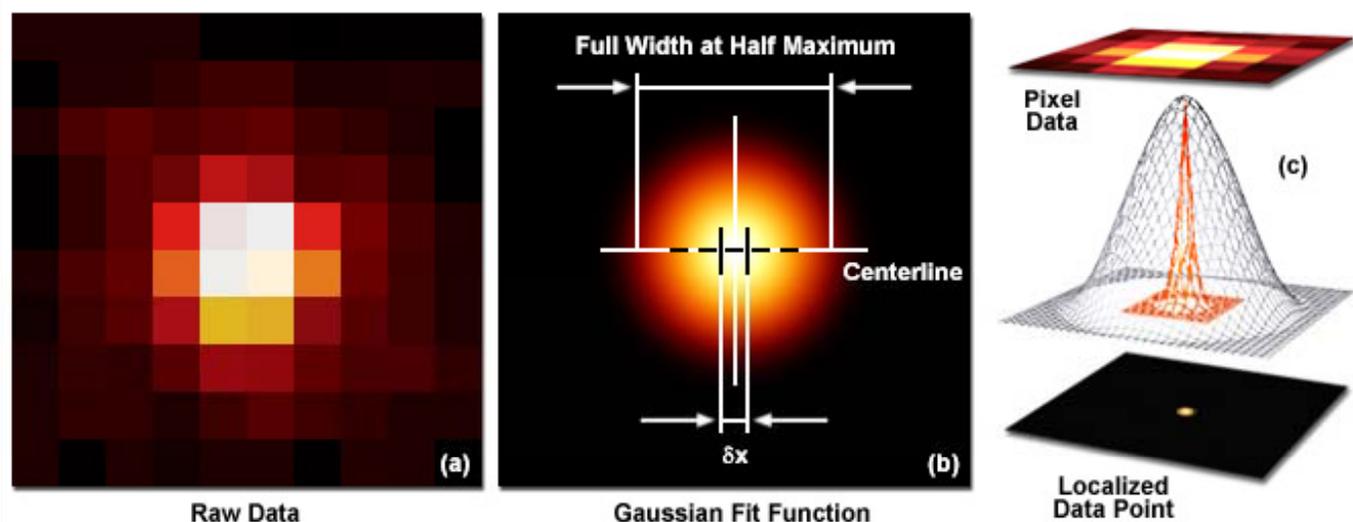
**=> Well below the diffraction limit**

# Couplage cohérent d'une molécule unique et une micro-cavité Fabry Perot

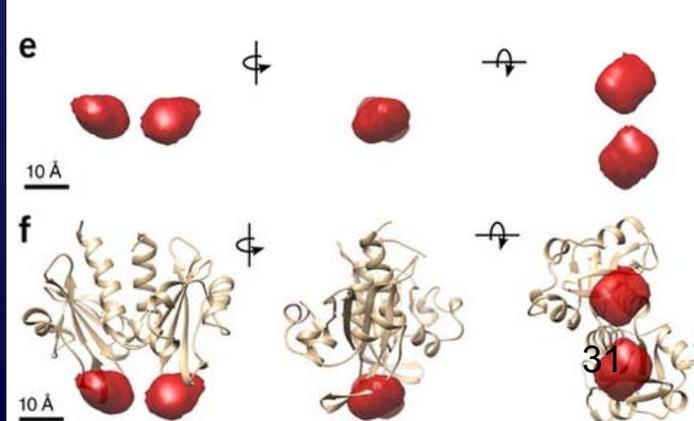
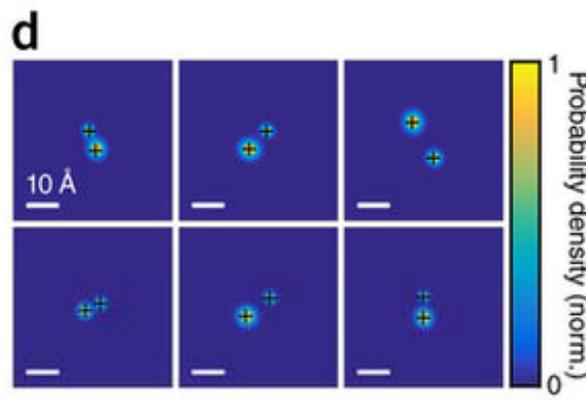
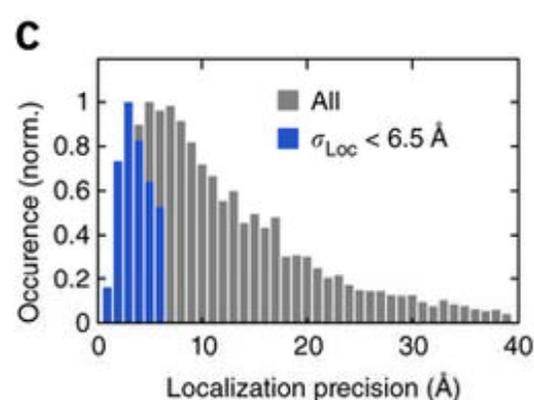


# Cryogenic optical localization provides 3D protein structure data with Angstrom resolution

Fitting Single-Molecule Pixel Data to a Gaussian Function

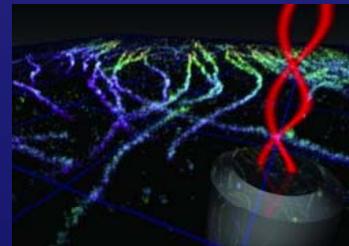
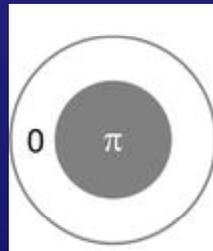


*Nature Methods* 14, 141–144 (2017)



## Perspectives :

- 3D Nano-localization close to nanostructures or dielectric surfaces using specific diffractive elements :  $\pi$ -phase plate, double-helix PSF, etc.



- Study molecule interactions via dipole/dipole coupling.



- Improve the stability of the optical setup to reveal molecular details at the nanometric scale (1.5 nm).

# Acknowledgement

B. Lounis



Ph. Tamarat



J.-B. Trebbia



B. Yang



R. Baby



*Colleagues:*

Michael Maestre  
Frédéric Przybilla

*Collaborators:*

Gregory Giannone, Uni. Bordeaux 2  
Olivier Rossier, Uni. Bordeaux 2

Nanophotonics Group



Merci pour votre attention

