



HAL
open science

**INTERACTION ATOME-SURFACE : INTERACTION
DE VAN DER WAALS ENTRE UN ATOME EXCITÉ
ET UNE SURFACE DIÉLECTRIQUE
THERMIQUEMENT ÉMISSIVE: OSCILLATIONS DE
BLOCH POUR UN ATOME ADSORBÉ**

Thierry Passerat de Silans

► **To cite this version:**

Thierry Passerat de Silans. INTERACTION ATOME-SURFACE : INTERACTION DE VAN DER WAALS ENTRE UN ATOME EXCITÉ ET UNE SURFACE DIÉLECTRIQUE THERMIQUEMENT ÉMISSIVE: OSCILLATIONS DE BLOCH POUR UN ATOME ADSORBÉ. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université Paris-Nord - Paris XIII, 2009. Français. NNT : . tel-00583140

HAL Id: tel-00583140

<https://theses.hal.science/tel-00583140>

Submitted on 4 Apr 2011

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

UNIVERSITE PARIS 13

INSTITUT GALILÉE-LABORATOIRE DE PHYSIQUE DES LASERS

N° attribué par la bibliothèque

THESE

pour obtenir le grade de

DOCTEUR EN SCIENCE DE L'UNIVERSITÉ PARIS 13
DOUTOR PELA UNIVERSIDADE FEDERAL DA PARAÍBA

par

Thierry PASSERAT DE SILANS

le 26 Juin 2009

Titre :

INTERACTION ATOME-SURFACE : INTERACTION DE VAN DER WAALS ENTRE
UN ATOME EXCITÉ ET UNE SURFACE DIÉLECTRIQUE THERMIQUEMENT
ÉMISSIVE ; OSCILLATIONS DE BLOCH POUR UN ATOME ADSORBÉ.

Directeurs de thèse

Daniel BLOCH et Martine CHEVROLLIER

JURY

| | |
|--------------------------|---------------------|
| M. Vincent LORENT | Président |
| M. John WEINER | Rapporteur |
| M. José RIOS LEITE | Rapporteur |
| M. Daniel BLOCH | Directeur de thèse |
| Mme. Martine CHEVROLLIER | Directrice de thèse |
| M. Paulo NUSSENZVEIG | |
| M. Arnaud LANDRAGIN | |

Remerciements

Je voudrais remercier mon épouse qui m'a soutenu tout au long de cette thèse, acceptant de quitter son pays pour venir en France. Je tiens aussi à remercier ma famille pour ses encouragements.

Je remercie Daniel Bloch pour avoir dirigé la plus grande partie de cette thèse, apportant des éléments importants pour ma formation dans la recherche et pour avoir partagé ses connaissances scientifiques.

Je remercie également Martine Chevrollier pour avoir dirigé la partie brésilienne de cette thèse et pour les conseils apportés même pendant la période où j'étais en France. Je remercie également Marcos Oriá pour avoir participé activement à ma formation au Brésil.

Je remercie Isabelle Maurin et Marie Pascal Gorza pour les bons moments, scientifiques et non-scientifiques, passés ensemble, ainsi que les différents membres/visiteurs de l'équipe OCR avec qui j'ai eu l'occasion de travailler : Martial Ducloy, Athanasios Laliotis, Philippe Ballin, Petko Todorov, Olga Koslova, Marco Romanelli.

Je remercie Pedro Chaves de Souza Segundo, qui a participé activement à ma première année de thèse en France, contribuant à ma formation sur les techniques utilisées par l'équipe OCR. J'ai une pensée toute particulière pour Salomon Saltiel avec qui j'ai eu le plaisir d'avoir de nombreuses discussions et dont la gentillesse restera dans nos mémoires.

Je remercie le directeur du LPL, Charles Desfrancois pour m'avoir accueilli au sein du laboratoire ainsi que les différents membres de l'équipe administrative et les ateliers techniques. Je remercie l'amitié des différents membres du laboratoire, spécialement Katarzyna Zarychta pour sa bonne humeur quotidienne.

Je remercie les membres du « Departamento de Física » de l'UFPB pour la bonne ambiance pendant l'année brésilienne de cette thèse. Je remercie particulièrement les membres du « Laboratório de Física Atomica e Lasers » : Dayanne Ferreira, Vladir Yuri, Orlando di Lorenzo, Luimar Cavalcanti, Manoel Brasileiro, Taciano Amaral, Marcelo, José Jadson, Bertulio Bernardo et Eduardo.

Je remercie John Weiner et José Rios Leite pour avoir accepté de faire un rapport sur cette thèse et Vincent Lorent, Paulo Nussenzeig et Arnaud Landragin pour faire partie du jury de celle-ci.

Finalement, je remercie également le Ministère de l'Enseignement Supérieur et de la Recherche pour avoir financé les trois premières années de cette thèse ainsi que l'Institut Galilée pour le poste de demi-ATER qui a permis le financement de la dernière année.

Resumo

Nesta tese estudamos diversos aspectos da interação entre um átomo e uma superfície dielétrica. Usamos a técnica de reflexão seletiva para sondar a interação de longo alcance de van der Waals para o Cs(8P). Para tal nível, é previsto um acoplamento virtual ressonante entre uma absorção atômica no infra-vermelho e a emissão térmica de uma superfície de CaF₂, de forma que seja possível modificar a interação com a temperatura da janela. Até agora, os resultados experimentais estão em contradição com as estimativas teóricas. Nós aprimoramos as previsões teóricas da dependência em temperatura da interação de van der Waals levando em conta a evolução da constante dielétrica com a temperatura, a partir de novas medidas de reflectância de superfície de safira, CaF₂ e BaF₂. Observamos, em uma experiência tipo absorção saturada, linhas inéditas em torno da transição $6S_{1/2} \rightarrow 8P$, para temperaturas do vapor próximas à ambiente, que atribuímos a dímeros previamente formados pelos feixes lasers. Em um regime da interação atomo-superfície a distâncias menores, estudamos teoricamente o comportamento de átomos de hélio adsorvidos em uma superfície de LiF e submetidos a uma força externa. Analisamos a possibilidade de utilizar tal sistema para a observação de oscilações de Bloch.

Table des matières

| | |
|--|-----------|
| Introduction générale | 8 |
| 1 Interaction de van der Waals entre un atome neutre et une surface diélectrique dispersive à température non nulle | 21 |
| 1.1 Interaction de van der Waals entre un atome neutre et une surface parfaitement réfléchissante. | 22 |
| 1.2 Interaction de van der Waals avec une paroi diélectrique dispersive à température nulle | 24 |
| 1.3 Interaction avec une surface dispersive à température non nulle | 27 |
| 1.4 Comparaison avec les expériences du groupe de E.A. Cornell | 30 |
| 1.5 Changement de la durée de vie des niveaux atomiques dû à la présence de la surface | 32 |
| 1.6 Choix du niveau atomique étudié. | 33 |
| 1.7 Les modes de surface | 35 |
| 1.8 Choix des surfaces et calculs préliminaires de la dépendance en température de C_3 | 38 |
| 1.8.1 Saphir (Al_2O_3) | 38 |
| 1.8.2 Fluorure de Calcium (CaF_2) | 40 |
| 1.8.3 Fluorure de Barium (BaF_2) | 42 |
| 1.9 Conclusion | 45 |
| 2 Dépendance en température des propriétés optiques de surface et nouvelle évaluation du coefficient de l'interaction van der Waals | 49 |
| 2.1 Mesures de réflectance dans le domaine infrarouge | 51 |
| 2.1.1 Spectromètre en réflexion par transformée de Fourier | 51 |
| 2.1.2 Saphir (Al_2O_3) | 53 |

| | | |
|----------|---|-----------|
| 2.1.3 | CaF ₂ | 54 |
| 2.1.4 | BaF ₂ | 55 |
| 2.2 | Différentes méthodes d'extrapolation de $\epsilon(\omega)$ à partir de mesures expérimentales de réflectance. | 56 |
| 2.2.1 | Méthodes utilisant les relations de Kramers-Kronig | 56 |
| 2.2.2 | Modèles classiques pour la constante diélectrique | 58 |
| 2.2.3 | Modèles semi quantiques pour la constante diélectrique | 61 |
| 2.3 | Ajustement des courbes de réflectance en utilisant les modèles théoriques | 62 |
| 2.3.1 | Ajustement avec le modèle 3P | 63 |
| 2.3.2 | Ajustement des spectres de réflectance avec le modèle SQ | 65 |
| 2.4 | Nouveaux calculs de C_3 en utilisant les valeurs de $S(\omega)$ obtenues expérimentalement. | 82 |
| 2.4.1 | Extrapolation des données disponibles dans la littérature | 83 |
| 2.4.2 | Calculs pour le CaF ₂ , utilisant les valeurs de $\epsilon(\omega)$ déduites de nos mesures de réflectance | 84 |
| 2.4.3 | Calculs pour le BaF ₂ , utilisant les valeurs de $\epsilon(\omega)$ déduites de nos mesures de réflectance | 86 |
| 2.4.4 | Calculs pour le Saphir, utilisant les valeurs de $\epsilon(\omega)$ déduites de nos mesures de réflectance | 88 |
| 2.4.5 | Calculs de C_3 pour un atome de césium au niveau 8P _{1/2} | 89 |
| 2.5 | Conclusion | 91 |
| 3 | Spectroscopie de réflexion sélective et potentiel d'interaction atome-surface. | 95 |
| 3.1 | Techniques expérimentales utilisées pour mesurer l'interaction de van der Waals. | 96 |
| 3.2 | Bref historique sur la technique de réflexion sélective. | 97 |
| 3.3 | Formalisme de la réflexion sélective | 98 |
| 3.3.1 | Calcul de la polarisabilité de la vapeur induite par le champ | 100 |
| 3.3.2 | Calcul du signal de réflexion sélective | 102 |
| 3.3.3 | Réflexion sélective en absence d'interaction de surface de longue portée. | 104 |
| 3.3.4 | Réflexion sélective avec modulation de fréquence | 106 |
| 3.4 | Réflexion sélective FM avec une interaction de van der Waals | 107 |
| 3.5 | Courbes de réflexion sélective FM en présence d'un potentiel de surface $-C_2/z^2$ | 111 |
| 3.6 | Conclusion | 113 |

| | | |
|----------|--|------------|
| 4 | Expériences de réflexion sélective sur les niveaux $8P_{3/2}$ et $8P_{1/2}$ du césium | 117 |
| 4.1 | Résultats expérimentaux antérieurs à cette thèse : interaction de vdW entre un atome de Cs($8P_{3/2}$) et une surface de saphir et processus collisionnels pour ce niveau. | 118 |
| 4.2 | Le montage expérimental | 119 |
| 4.2.1 | Les sources lasers | 119 |
| 4.2.2 | Le Fabry Perot | 127 |
| 4.2.3 | La vapeur de césium et l'absorption saturée | 128 |
| 4.2.4 | Système d'acquisition | 133 |
| 4.3 | La cellule | 134 |
| 4.3.1 | Description générale de la cellule | 135 |
| 4.3.2 | Le système de chauffage | 137 |
| 4.3.3 | Problèmes d'interférences sur le faisceau réfléchi à l'interface CaF_2 /vapeur | 142 |
| 4.3.4 | Première cellule : Prototype | 143 |
| 4.3.5 | Deuxième cellule | 144 |
| 4.4 | Généralités sur les spectres expérimentaux | 149 |
| 4.4.1 | Spectres de réflexion sélective pour la transition $6S_{1/2} \rightarrow 8P_{3/2}$ | 150 |
| 4.4.2 | Spectres de réflexion sélective pour la transition $6S_{1/2} \rightarrow 8P_{1/2}$ | 153 |
| 4.5 | Procédure d'ajustement des courbes expérimentales. | 154 |
| 4.5.1 | Comparaison des échelles théoriques et expérimentales. | 154 |
| 4.5.2 | Construction de nouvelles courbes théoriques tenant compte de la structure hyperfine | 157 |
| 4.5.3 | Procédure d'ajustement | 157 |
| 4.5.4 | Ajustement simultané des spectres aux deux interfaces | 160 |
| 4.6 | Résultats de réflexion sélective pour la transition $6S_{1/2} \rightarrow 8P_{3/2}$ | 161 |
| 4.6.1 | Première cellule : résultats préliminaires | 161 |
| 4.6.2 | Deuxième cellule | 162 |
| 4.7 | Réflexion sélective pour la transition $6S_{1/2} \rightarrow 8P_{1/2}$ du césium | 172 |
| 4.7.1 | Quelques difficultés expérimentales | 173 |
| 4.7.2 | Ajustement des spectres de réflexion sélective | 174 |
| 4.8 | Ajustement des courbes expérimentales en utilisant un potentiel $-C_2/z^2$ | 176 |
| 4.8.1 | Comparaison d'ajustements des potentiels $-C_2/z^2$ et $-C_3/z^3$ | 176 |
| 4.8.2 | Comportement avec la densité de Césium | 178 |

| | | |
|----------|--|------------|
| 4.8.3 | CaF ₂ | 180 |
| 4.9 | Discussion sur les résultats | 182 |
| 4.10 | Conclusion et perspectives | 184 |
| 5 | Résonances supplémentaires autour des raies 8P du césium | 191 |
| 5.1 | Introduction | 191 |
| 5.2 | Effets non linéaires | 192 |
| 5.3 | Présence de dimères dans la vapeur de césium | 193 |
| 5.4 | Expériences avec deux faisceaux contrepropageants de même fréquence | 195 |
| 5.4.1 | Positions des résonances supplémentaires | 197 |
| 5.4.2 | Dépendance de l'amplitude des résonances supplémentaires avec l'intensité du sonde. | 199 |
| 5.4.3 | Comportement en densité atomique des résonances supplémentaires | 199 |
| 5.4.4 | Changement du signal avec la vitesse de la modulation | 203 |
| 5.4.5 | Informations supplémentaires obtenues à partir de l'expérience à deux faisceaux contrepropageant de même fréquence | 204 |
| 5.4.6 | Observations des résonances supplémentaires pour le niveau 8P _{1/2} du césium | 208 |
| 5.4.7 | Discussions sur l'origine des résonances supplémentaires | 209 |
| 5.5 | Expériences avec deux faisceaux de fréquences différentes. | 211 |
| 5.5.1 | Déplacement des structures pour une fréquence du faisceau pompe fixe différente de la transition atomique | 211 |
| 5.5.2 | Deux faisceaux co-propageants | 214 |
| 5.5.3 | Expérience avec les fréquences des faisceaux accordés autour de transitions hyperfines différentes. | 215 |
| 5.6 | Expériences utilisant trois faisceaux. | 217 |
| 5.7 | Conclusion | 218 |
| 6 | Oscillations de Bloch pour des atomes adsorbés sur une surface diélectrique | 222 |
| 6.1 | Introduction | 222 |
| 6.2 | Potentiel d'interaction atome-surface pour des petites distances | 223 |
| 6.2.1 | Potentiel attractif de longue portée | 224 |
| 6.2.2 | Potentiel répulsif de courte portée | 224 |

| | | |
|-------|--|-----|
| 6.2.3 | Diffraction atomique sur des surfaces : informations expérimentales sur le potentiel | 225 |
| 6.2.4 | Potentiel d'interaction entre un atome d'Hélium et une surface de LiF | 225 |
| 6.3 | Adsorption assistée par une technique type photoassociation | 227 |
| 6.4 | Fonctions de Bloch et bandes d'énergie | 230 |
| 6.4.1 | Fonctions de Bloch | 230 |
| 6.4.2 | Solution de l'équation de Schrödinger en présence d'une force | 234 |
| 6.4.3 | Évolution tenant compte du couplage entre niveaux vibrationnels | 236 |
| 6.4.4 | Interaction avec les phonons du solide | 237 |
| 6.4.5 | Trajectoires semi classiques | 239 |
| 6.5 | Super-réseau | 240 |
| 6.6 | Conclusion | 243 |

Conclusion générale **248**

Introduction générale

Cette thèse a été réalisée en cotutelle, une partie étant faite dans l'équipe LFAL (Laboratório de Física Atomica e Lasers) de l'Universidade Federal da Paraiba au Brésil, sous la direction de Martine Chevrollier, et une autre partie dans l'équipe OCR (Optique Cohérente à Résonance) au LPL à l'Université Paris 13 en France, sous la direction de Daniel Bloch.

A proximité d'une surface, un atome voit sa structure modifiée par l'interaction avec celle-ci. Cette interaction peut être décrite comme étant la superposition d'une interaction répulsive de courte portée (pour des distances de quelques dixièmes de nanomètres) et d'une interaction (généralement) attractive de longue portée [Hoi80].

L'interaction de longue portée entre un atome neutre et une surface non dispersive donne lieu à une interaction attractive, qui a été largement étudiée théoriquement depuis les articles de F. London [Lon30] et de Lennard-Jones [Len32] (voir par exemple [McL63]). Cette interaction peut être décrite comme étant l'interaction entre le dipôle fluctuant de l'atome et son image instantanée induite sur la surface. Cette interaction est connue sous le nom d'interaction de London-van der Waals (ou simplement interaction de van der Waals (vdW)). Cette interaction, intrinsèquement attractive peut être décrite par un potentiel proportionnel à $-\frac{D^2+D_z^2}{16z^3}$, où z est la distance entre l'atome et la surface, et D est l'opérateur du moment dipolaire électrique, D_z étant sa projection selon la direction perpendiculaire à la surface. Cette interaction a une contribution scalaire (terme en D^2) et une contribution non-scalaire (terme en D_z^2) qui peut donner lieu à des transitions entre états électroniques de même parité [Bou01]. En négligeant les contributions anisotropes [Pap94],[Che92] on a $D_z^2 = \frac{1}{3}D^2$ et on peut récrire l'interaction sous la forme $V_{vdW} = -C_3/z^3$, où C_3 est le coefficient de vdW. Pour un atome dans un niveau électronique $|i\rangle$, le coefficient de vdW

peut s'écrire :

$$C_3 = \frac{1}{16} \sum_j r(\omega_{ij}, T) |\langle i|D|j \rangle|^2 \quad (1)$$

où la somme sur j se fait sur toutes les transitions atomiques virtuelles permises de fréquence ω_{ij} . Le facteur $r(\omega_{ij}, T)$ est un coefficient de réflexion qui dépend des propriétés optiques de la surface et de la température de l'environnement [Gor06]. Pour une distance atome-surface $z > \lambda_{ij}/2\pi$, où λ_{ij} est la longueur d'onde optique de la transition ω_{ij} qui contribue de façon dominante au terme C_3 , les effets de propagation du rayonnement atomique doivent être pris en compte.

En 1948, H.B.G. Casimir et D. Polder [Cas48] ont étudié les effets de retard de l'interaction atome-surface de longue portée et ont montré que celle-ci peut être décrite par un potentiel du type $-f(z)/z^3$. Pour $z \rightarrow 0$ l'interaction peut être décrite par le potentiel de vdW en $-C_3/z^3$. Pour $z \rightarrow \infty$ le potentiel tend pour des atomes à l'état fondamental vers une forme en $-\alpha/z^4$, où α est la polarisabilité atomique. Parallèlement en 1948, H.B.G. Casimir [Cas48-2] a étudié l'interaction entre deux réflecteurs parfaits, plans, parallèles, dans un vide à température nulle et séparés par une petite distance, et a montré que ceux-ci s'attiraient mutuellement. Ce phénomène est un effet d'électrodynamique quantique en cavité, où une différence de pression des modes électromagnétiques à l'intérieur de la cavité par rapport à ceux de l'extérieur est responsable de l'interaction. Notons pour mieux comprendre le lien entre l'apparence « classique » de l'interaction de vdW et la nature d'électrodynamique quantique en cavité de l'effet Casimir que l'interaction de vdW peut aussi être expliquée comme une modification du déplacement de *Lamb* des niveaux atomiques due à un changement de la densité modale du champ électromagnétique du vide à proximité de la surface [Blo05].

A cause du comportement asymptotique en $1/z^4$ et du fait que ce régime n'est atteint que pour des distances atome-surface relativement grandes, l'influence, relativement faible, de l'interaction asymptotique de Casimir-Polder sur le mouvement d'atomes au voisinage de surfaces n'a été mis en évidence qu'assez récemment par E.A. Hinds et collaborateurs [Suk93]. Depuis, un nombre relativement petit d'expériences ont été effectuées. citons, par exemple : F. Shimizu [Shi01] a mesuré l'interaction de Casimir-Polder en analysant la réflexion quantique d'un jet atomique incident sur une surface à angle rasant ; E.A. Cornell

et collaborateurs [Har05] ont mesuré l'interaction de Casimir-Polder en observant la perturbation sur la fréquence d'oscillation du centre de masse d'un condensat de Bose-Einstein à proximité de la surface.

Différentes tentatives pour mesurer l'interaction de Casimir entre deux corps macroscopiques ont été faites (voir par exemple l'article [Lam03] pour une révision des mesures expérimentales) depuis 1948. Depuis 1997, (date des mesures fait par S. Lamoreaux [Lam97]), la possibilité de mesures précises de l'interaction de Casimir a suscité un intérêt notable dans plusieurs domaines de la physique à la fois du point de vue fondamental (par exemple des tests de gravité non-Newtonienne [Bor01]) que du point de vue technologique (influence sur le fonctionnement de systèmes microélectromécaniques (MEMs) [Lam03]). Pour obtenir une bonne concordance entre théorie et expérience, des corrections par rapport au calcul original [Cas48-2] doivent être prises en compte, notamment : la rugosité de la surface ; le fait que la surface est réelle et non un miroir parfait ; des corrections dues à l'émission thermique des surfaces.

L'émission thermique de surfaces peut aussi modifier les propriétés atomiques : ainsi un déplacement en énergie des niveaux de Rydberg a été observé en présence d'un rayonnement de corps noir [Hol84] ; la durée de vie apparente peut également être modifiée par absorption de photons thermiques, comme observé par K.S. Lai et E.A. Hinds [Lai98] pour des atomes de Rydberg dans une cavité. Le nombre d'expériences sondant ces effets reste cependant très limité. Pendant la préparation de cette thèse, l'équipe de E.A. Cornell a mesuré des modifications avec la température de l'interaction Casimir-Polder [Obr07] sur un condensat à des distances relativement importantes, allant de $7 \mu\text{m}$ à $11 \mu\text{m}$. On sait aussi qu'en régime de champ proche, l'émission thermique a des caractéristiques très différentes de celles du corps noir. Récemment Greffet et collaborateurs [Gref02] ont étudié le rayonnement thermique en champ proche d'une surface et montré que ce rayonnement est étroit du point de vue spectral et que l'émission a une cohérence spatiale.

Dans cette thèse nous nous intéressons à un régime de distance atome-surface ($z < 100 \text{ nm}$) qui est bien plus petite que la longueur d'onde de la transition dominante de l'expression 1 et aussi bien plus petite que la « longueur thermique » caractéristique donnée par $\lambda_T = \hbar c/k_B T$ (par exemple, $\lambda_T \approx 7.6 \mu\text{m}$ à température ambiante). Nous nous intéressons

donc à une interaction du type vdW en $-C_3/z^3$ en régime thermique de champ proche.

L'interaction de van der Waals entre un atome neutre et une surface dispersive peut être exaltée de façon résonnante lorsqu'il existe des couplages résonnants (modifiant $r(\omega_{ij}, T)$) entre une transition atomique virtuelle et un mode de polariton de surface [Fic95],[Fai03]. De tels couplages peuvent modifier l'interaction en une attraction géante, ou même en une interaction de vdW répulsive. Pour une surface non excitée ($T=0$), le seul couplage résonnant possible correspond à une émission atomique virtuelle et une absorption d'un mode de polariton [Fic95]. Un couplage résonnant donnant lieu à une interaction vdW répulsive a été mesuré par l'équipe OCR pour un atome Cs($6D_{3/2}$) en interaction avec une surface en saphir [Fai99], [Fai03] (couplage entre l'émission virtuelle atomique $6D_{3/2} \rightarrow 7P_{1/2}$ et une absorption de polariton de surface pour une longueur d'onde de $12.15\mu m$). Une modification du taux d'émission spontanée due à cette interaction résonnante avait aussi été mesurée [Fai02].

Pour une surface thermiquement excitée ($T \neq 0$), le phénomène inverse de celui observé dans [Fai99] peut à priori être observé [Dut04],[Gor06], c'est-à-dire un couplage résonnant entre une émission thermique en champ proche des modes de surface et une absorption virtuelle de l'atome. Ce couplage ne peut être efficace que si le mode d'émission virtuelle est suffisamment peuplé thermiquement ($k_B T \geq \hbar\omega_{ij}$). La théorie pour l'interaction de vdW entre un atome neutre situé dans un champ électromagnétique du vide en équilibre thermique avec une surface diélectrique dispersive à température non nulle a été développée dans l'équipe OCR par M.P. Gorza et M. Ducloy [Gor06]. Le travail principal de cette thèse pour la partie réalisée en France a consisté à chercher à mesurer expérimentalement un tel couplage entre l'émission thermique de la surface et l'absorption atomique virtuelle. Pour cela, nous avons étudié l'interaction entre un atome excité Cs(8P) qui présente des absorptions virtuelles importantes pour l'interaction de vdW à $39\mu m$ et $36\mu m$ ($8P_{3/2}$) et $29.5\mu m$ ($8P_{1/2}$), et une fenêtre de CaF₂ qui présente une résonance de surface autour de $24\mu m$. Pour ces longueurs d'onde on a $k_B T \approx \hbar\omega_{ij}$ pour des températures autour de 400-500K et nous nous attendons à ce que la valeur de C_3 diminue de moitié autour de 500K et devienne négative (interaction répulsive) autour de 700K pour le niveau $8P_{3/2}$ (respectivement 350K et 600K pour le niveau $8P_{1/2}$).

De nombreuses techniques expérimentales ont été utilisées pour mesurer l'interaction

de vdW entre un atome neutre et une surface en particulier : la déviation de jets d'atomes par des plaques métalliques [Ras69],[And88]; la modification de la figure de diffraction d'atomes [Gri99]; la réflexion d'atomes froids sur des « miroirs » à atomes formés par une onde évanescente répulsive (désaccordée vers le bleu) [Lan96] ou sur des films magnétiques [Moh06]. Ces techniques faisant appel à un effet mécanique ne sont adéquates que pour des états atomiques de longue durée de vie (état fondamental ou état de Rydberg pour [And88]). Depuis le début des années 90, l'équipe OCR a utilisé une technique spectroscopique, dite de réflexion sélective (RS), pour mesurer l'interaction de vdW entre atome excité et surface diélectrique [Ori91],[Che92]. Cette technique a l'avantage de pouvoir être utilisée pour des états excités de courte durée de vie et permet de sonder une épaisseur de la vapeur de $\approx \lambda_{opt}/2\pi$ au voisinage de l'interface surface-vapeur, où λ_{opt} est la longueur d'onde optique de la transition pour laquelle on sonde l'état excité. Une technique optique voisine utilisant une cellule ultra-mince [Fic07] a aussi permis de vérifier la loi de distance en $-C_3/z^3$ de l'interaction de vdW (épaisseur de cellule variable de 40nm-130nm donc distance atome-surface maximale de 20-65 nm).

Pour mesurer l'interaction de vdW, nous avons utilisé la technique de réflexion sélective [Duc91], en ajustant le spectre expérimental avec des courbes théoriques bien connues [Duc91]. L'expérience est faite en utilisant une cellule à vapeur scellée avec une fenêtre en CaF_2 , de construction spéciale. Les résultats que nous avons obtenus pour C_3 à l'interface avec le CaF_2 sont en désaccord avec la prédiction théorique. Nous avons cependant montré que les ajustements des spectres de RS obtenus sont compatibles avec un potentiel en $-C_3/z^3$ typique de l'interaction de vdW, mais ne le sont pas avec un éventuel potentiel d'interaction $-C_2/z^2$, pouvant être induit par une distribution de charges sur la surface [McG04], indiquant que l'on observe vraisemblablement des modifications des formes de raies induites par l'interaction de vdW.

Compte tenu du large désaccord entre expérience et prédictions théoriques pour le C_3 à l'interface avec le CaF_2 et de la quasi-absence de données sur la variation de la constante diélectrique ($\epsilon(\omega, T)$) avec la température pour le CaF_2 , nous avons voulu mettre à l'épreuve la solidité des prédictions théoriques. Pour cela, nous avons réalisé des expériences permettant d'obtenir ces informations permettant de raffiner les prédictions théoriques pour la variation de C_3 avec la température. Des mesures de réflectance en température, dans la

région spectrale de l'infrarouge lointain, de surfaces de saphir, BaF_2 et CaF_2 (effectuées en collaboration avec l'équipe « Grandeurs radiatives et thermiques des matériaux » du CEMHTI d'Orléans), nous ont permis d'obtenir la constante diélectrique, $\epsilon(\omega, T)$, pour ces matériaux dans la gamme de température effectivement utilisée. Il nous a fallu, pour cela, à partir des données expérimentales, ajuster les courbes de réflectance en utilisant un modèle semi-quantique pour la constante diélectrique [Sou04]. La prise en compte des changements de la constante diélectrique avec la température (élargissement et déplacement de la résonance de surface) a surtout modifié les prédictions pour l'interaction entre un atome $\text{Cs}(8P_{3/2})$ avec une surface de BaF_2 , car la résonance de surface de ce matériau est voisine des transitions atomiques mais plutôt confirmé les prédictions pour le CaF_2 .

Pour mesurer l'interaction exercée sur les atomes par la surface, il est nécessaire de monter une expérience auxiliaire d'absorption saturée fournissant une référence spectroscopique en phase « vapeur » (c'est-à-dire pour des atomes libres, ou seulement perturbés par l'interaction de collisions atome-atome). En réalisant cette expérience sur une vapeur de césium, avec des faisceaux intenses, nous avons observé des résonances étroites inédites dans la largeur Doppler des transitions $6S_{1/2} \rightarrow 8P_{3/2}$ et $6S_{1/2} \rightarrow 8P_{1/2}$. Nous avons réalisé différentes expériences pour analyser la nature de ces structures. Des faisceaux intenses à des fréquences proches de la résonance atomique peuvent induire des effets non linéaires tels que l'autofocalisation ou l'émission de faisceau conique [Abr90], qui peuvent se traduire par des structures étroites sur la transmission des faisceaux. D'un autre côté, des résonances de dimères existent autour des niveaux 8P du césium [Ban01], qui pourraient être à l'origine de ces structures étroites observées. Les expériences menées nous permettent de suspecter qu'une formation de dimères de Cs, induites par les faisceaux lasers, est à l'origine de ces résonances supplémentaires.

Dans la partie de cette thèse faite au Brésil nous nous intéressons de façon théorique à l'interaction atome-surface à des distances atome-surface très faibles. Quand l'atome s'approche à quelques dixièmes de nm de la surface, une interaction répulsive a lieu à cause de la superposition des nuages électroniques de l'atome et de la surface. La combinaison de ce potentiel répulsif, et du potentiel attractif de vdW, induit un puits de potentiel dans la direction normale à la surface, pour l'interaction atome-surface, dénommé potentiel d'adsorption [Hoi80]. Le potentiel d'adsorption peut avoir des états liés qui sont des niveaux

vibrationnels dans la direction perpendiculaire à la surface, connus comme niveaux d'adsorption. Ces niveaux d'adsorption ont déjà été signalés dans des expériences de diffraction atomique sur des surfaces (par exemple [Der78] et [Ril07]). Nous avons auparavant proposé une technique radiative pour transférer des atomes froids, incidents sur la surface, vers un niveau d'adsorption du potentiel d'interaction pour un atome à l'état fondamental [Pas06]. Les atomes piégés dans un niveau vibrationnel du potentiel d'adsorption sont libres de se propager dans le plan parallèle à la surface et peuvent subir des effets de la corrugation de la surface qui induisent, dans le cas d'une surface cristalline, un potentiel répulsif périodique dans le plan parallèle à la surface [Hoi80].

Le problème d'une particule dans un potentiel périodique est bien connu [Ash76], et conduit pour la particule à des bandes d'énergies possibles ou interdites. Quand, en plus du potentiel périodique, la particule est soumise à une force statique, elle présente un mouvement oscillatoire, connu comme oscillations de Bloch [Har04]. Le phénomène d'oscillations de Bloch n'a pas été observé pour le système proposé originalement (électrons dans un réseau cristallin soumis à un champ électrique), mais, dans les 20 dernières années, il a été observé dans de nombreux systèmes tels que : électrons dans des super-réseaux [Was93]; atomes froids dans un réseau optique [Ben96]; et photons dans une structure périodique d'indices [Sap03]. Nous proposons ici un nouveau système pour l'observation d'oscillations de Bloch : un atome neutre adsorbé sur une surface diélectrique cristalline et soumis à une force externe. Nous réalisons des calculs pour un atome d'Hélium neutre en interaction avec une surface de LiF (dont les niveaux vibrationnels ont été obtenus par [Der78] et [Ril07]) pour analyser la faisabilité de ce système.

Le plan de cette thèse est le suivant :

- Dans le chapitre I nous présentons théoriquement l'interaction de van der Waals entre un atome neutre et une surface dispersive à température non nulle. Nous discutons aussi le choix du système (atome+surface) étudié pour les expériences de réflexion sélective et présentons des calculs de prédictions préliminaires pour la constante de van der Waals.
- Dans le chapitre II nous présentons les mesures de réflectance en fonction de la température obtenues pour des surfaces de saphir, de CaF₂ et de BaF₂. Nous discutons des ajustements qui permettent d'extraire des constantes diélectriques pour

des températures dans la gamme 22°C à 500°C. Nous finissons ce chapitre par un raffinement des prédictions théoriques pour la constante de van der Waals.

- Dans le chapitre III nous décrivons la technique de réflexion sélective, du principe aux formes de raies prévues en présence d’une interaction du type vdW entre atome et surface. Nous décrivons aussi les formes de raies prévues dans le cas d’une interaction de surface du type $-C_2/z^2$ qui peut être induite par des charges distribuées sur la surface.
- Dans le chapitre IV nous présentons les expériences de réflexion sélective sur les transitions $6S_{1/2} \rightarrow 8P_{3/2}$ et $6S_{1/2} \rightarrow 8P_{1/2}$ du césium à l’interface de surfaces de saphir et CaF₂. Nous décrivons le montage expérimental, la cellule et la méthode d’ajustement des courbes expérimentales utilisée, permettant d’obtenir des valeurs de la constante de vdW. Nous discutons les résultats obtenus.
- Dans le chapitre V nous présentons l’observation de résonances supplémentaires autour des transitions $6S_{1/2} \rightarrow 8P_{3/2}$ et $6S_{1/2} \rightarrow 8P_{1/2}$ et décrivons différentes expériences réalisées pour caractériser celles-ci.
- Dans le chapitre VI nous discutons une proposition théorique pour l’observation d’oscillations de Bloch pour des atomes d’He adsorbés sur une surface de LiF et soumis à une force externe.

Bibliographie

- [Abr90] N.B. Abraham et W.J. Firth « Overview of transverse effects in nonlinear-optical systems », *J. Opt. Soc. Am. B* **7**, 951 (1990)
- [And88] A. Anderson, S. Haroche, E.A. Hinds, W. Jhe et D. Meschede « Measuring van der Waals forces between a Rydberg atom and a metallic surface », *Phys. Rev. A* **37**, 3594 (1988)
- [Ash76] N.W. Ashcroft et N. D. Mermin *Solid state physics*, Saunders College Publishing, 1976 pp 131-173
- [Ban01] T. Ban, H. Skenderović, S. Ter-Avetisyan, G. Pichler « Absorption measurements in dense cesium vapor using a UV-violet light-emitting diode », *Applied Phys. B* **72**, 327 (2001)
- [Ben96] M. Ben Dahan, E. Peik, J. Reichel, Y. Castin et C. Salomon « Bloch oscillations of atoms in an optical potential », *Phys. Rev. Lett* **76**, 4508 (1996)
- [Blo05] D. Bloch et M. Ducloy, « Atom-Wall Interaction » dans « *Advances in Atomic, Molecular and Optical Physics*, vol.50 », B. Bederson and H. Walther, Elsevier Academic Press, San Diego, 2005 pp. 91- 156
- [Bor01] M. Bordag, U. Mohideen et V.M. Mostepanenko « New developments in the Casimir effect », *Phys. Reports* **353**, 1 (2001)
- [Bou01] M. Boustimi, B. Viaris de Lesegno, J. Baudon, J. Robert et M. Ducloy « Atom symmetry break and metastable level coupling in rare gas atom-surface van der Waals interaction », *Phys. Rev. Lett.* **86**, 2766 (2001)
- [Cas48] H. B. G. Casimir et D. Polder, « The influence of retardation on London-van der Waals forces », *Phys. Rev.* **73**, 360 (1948)
- [Cas48-2] H.B.G. Casimir « On the attraction between two perfectly conducting plates », *Proc. Kon. Ned. Akad. Wetenshap* **60**, 793 (1948)

- [Cha07] P. Chaves de Souza Segundo, I. Hamdi, M. Fichet, D. Bloch et M. Ducloy « Selective reflectio spectroscopy on the Uv-third resonance line of Cs : Simultaneous probing of a van der Waals Atom-Surface interaction sensitive to far IR couplings and interatomic collisions », *Laser Physics* **17**, 983 (2007)
- [Che92] M. Chevrollier, M. Fichet, M. Oria, G. Rahmat, D. Bloch et M. Ducloy « High resolution selective reflection spectroscopy as a probe of long-range surface interaction : measurement of the surface van der Waals attraction exerted on excited Cs atoms », *J. Phys II France* **2**, 631 (1992)
- [Der78] G. Derry, D. Wesner, S.V. Krishnaswamy and D.R. Frankl « Selective adsorption of ^3He and ^4He on clean surfaces of NaF and LiF », *Surf. Sc.* **74**, 245 (1978) ;
- [Duc91] M. Ducloy et M. Fichet « General theory of frequency modulated selective reflection. Influence of atom surface interactions. », *J. Phys. II France* **1**, 1429 (1991)
- [Dut04] G. Dutier, I. Hamdi, P.C.S. Segundo, A. Yarovitski, S. Saltiel, M.-P. Gorza, M. Fichet, D. Bloch et M. Ducloy « Coupling of atoms, surfaces and fields in dielectric nanocavities », *Laser Spectroscopy : Proceedings of the XVI International Conference*, p277-284 (2004)
- [Fai99] H. Failache, S. Saltiel, M. Fichet, D. Bloch et M. Ducloy, « Resonant van der Waals repulsion between excited Cs atoms and sapphire surface », *Phys. Rev. Lett.* **83**, 5469 (1999)
- [Fai02] H. Failache, S. Saltiel, A. Fischer, D. Bloch et M. Ducloy, « Resonant quenching of gas-phase Cs atoms induced by surface polaritons », *Phys. Rev. Lett* **88**, 243603 (2002).
- [Fai03] H. Failache, S. Saltiel, M. Fichet, D. Bloch et M. Ducloy « Resonant coupling en the van der Waals interaction between an excited alkali atom and a dielectric surface : an experimental study via stepwise selective reflection spectroscopy », *Eur. Phys. J. D* **23**, 237 (2003)
- [Fic95] M. Fichet, F. Schuller, D. Bloch et M. Ducloy « van der Waals interactions between excited-state atoms and dispersive dielectric surfaces », *Phys. Rev. A* **51**, 1553 (1995)
- [Fic07] M. Fichet, G. Dutier, A. Yarovitsky, P. Todorov, I. Hamdi, I. Maurin, S. Saltiel, D. Sarkisyan, M.-P. Gorza, D. Bloch et M. Ducloy « Exploring the van der Waals atom-surface attraction in the nanometric range », *Europhys. Lett.* **77**, 54001 (2007)
- [Gor06] M.-P. Gorza et M. Ducloy, « van der Waals interactions between atoms and dispersive surfaces at finite temperature », *Eur. Phys. J. D* **40**, 343 (2006)

- [Gre02] J. J. Greffet, R. Carminati, K. Joulain, J.-P. Mulet, S. Mainguy et Y. Chen, « Coherent emission of light by thermal sources », *Nature* **416**, 61 (2002); J. J. Greffet, « Rayonnement thermique cohérent », *Image de la Physique 2006(CNRS)*, pg 67.
- [Gri99] R.E. Grisenti, W. Schöllkopf, J.T. Toennies, G.C. Hegerfeldt et T. Köhler « Determination of atom-surface potentials from transmission-grating diffraction intensities », *Phys. Rev. Lett.* **83**, 1755 (1999)
- [Har04] T. Hartmann, F. Keck, H. J. Korsch et S. Mossmann « Dynamics of Bloch oscillations », *New J. Phys.* **6**, 1 (2004)
- [Har05] D.M. Harber, J.M. Obrecht, J.M. McGuirk et E.A. Cornell « Measurement of the Casimir-Polder force through center-of-mass oscillations of a Bose-Einstein condensate », *Phys. Rev. A* **72**, 033610 (2005)
- [Hoi80] H. Hoinkes « The physical interaction potential of gas atom with single-crystal surfaces, determined from gas-surface diffraction experiments », *Rev. Mod. Phys.* **52**, 933 (1980)
- [Hol84] L. Hollberg et J.L. Hall « Measurements of the shift of Rydberg energy levels induced by blackbody radiation », *Phys. Rev. Lett.* **53**, 230 (1984)
- [Lal08] A. Laliotis, I. Maurin, M. Fichet, D. Bloch, M. Ducloy, N. Balasayan, A. Sarkisyan et D. Sarkisyan « Selective reflection spectroscopy at the interface between a Calcium Fluoride window and Cs vapour », *Appl. Phys. B : Lasers and Optics* **90**, 415 (2008)
- [Lam97] S.K. Lamoreaux « Demonstration of the Casimir force in the 0.6 to 6 μm range », *Phys. Rev. Lett.* **78**, 5 (1997)
- [Lam03] A. Lambrecht et S. Reynaud « Recent experiments on the Casimir effect : description and analysis », dans « Vacuum energy and Renormalization », eds. B. Duplantier et V. Rivasseau, 109 (2003)
- [Lan96] A. Landragin, J.-Y. Courtois, G. Labeyrie, N. Vansteenkiste, C.I. Westbrook et A. Aspect « Measurement of the van der Waals force in an atomic mirror », *Phys. Rev. Lett.* **77**, 1464 (1996)
- [Lai98] K.S. Lai et E.A. Hinds « Blackbody excitation of an atom controlled by a tunable cavity », *Phys. Rev. Lett.* **81**, 2671 (1998)
- [Len32] J.E. Lennard-Jones « Processes of adsorption and diffusion on solid surfaces », *Trans. Faraday Soc.* **28**, 333 (1932)

- [Lon30] F. London, *Z. Phys.* **63**, 245 (1930)
- [McG04] J.M. McGuirk, D.M. Harber, J.M. Obrecht et E.A. Cornell « Alkali-metal adsorbate polarization on conducting and insulating surfaces probed with Bose-Einstein condensates », *Phys. Rev. A* **69**, 062905 (2004)
- [McL63] A. D. McLachlan, « Retarded dispersion forces in dielectrics at finite temperatures », *Proc. Royal Soc.* **274**, 80 (1963)
- [Moh06] A.K. Mohapatra et C.S. Unnikrishnan « Measurement of the van der Waals force using reflection of cold atoms from magnetic thin-film atom mirrors », *EuroPhys. Lett.* **73**, 839 (2006)
- [Obr07] J. M. Obrecht, R. J. Wild, M. Antezza, L. P. Pitaevskii, S. Stringari et E. A. Cornell, « Measurement of the temperature dependence of the Casimir-Polder force », *Phys. Rev. Lett.* **98**, 063201 (2007)
- [Ori91] M. Oriá, M. Chevrollier, D. Bloch, M. Fichet et M. Ducloy « Spectral observation of surface induced van der Waals on atomic vapour. », *Europhys. Lett.* **14**, 527 (1991)
- [Pap94] Nicolas Papageorgiou, Thèse de Doctorat, Laboratoire de Physique des Lasers, Université Paris 13 (1994)
- [Pas06] T. Passerat de Silans, B. Farias, M. Ória et M. Chevrollier « Laser-induced quantum adsorption of neutral atoms in dielectric surfaces », *Appl. Phys. B* **82**, 367, (2006)
- [Ril07] D. J. Riley, A. P. Jardine, S. Dworski, G. Alexandrowicz, P. Fouquet, J. Ellis, et W. Allison « A refined He-LiF(001) potential from selective adsorption resonances measured with high-resolution helium spin-echo spectroscopy », *J. Chem. Phys.* **126**, 104702 (2007)
- [Ras69] D. Raskin et P. Kusch « Interaction between a neutral atomic or molecular beam and a conducting surface », *Phys. Rev.* **179**, 712 (1969)
- [Sap03] R. Sapienza, P. Constantino, D. Wiersma, M. Ghulinyan, C. J. Oton et L. Pavesi « Optical analog of electronic Bloch oscillations », *Phys. Rev. Lett.* **91**, 263902 (2003)
- [Shi01] F. Shimizu « Specular reflection of very slow metastable Neon atoms from a solid surface », *Phys. Rev. Lett.* **86**, 987 (2001)
- [Sou04] D. De Sousa Meneses, J. -F. Brun, P. Echegut, and P. Simon, « Contribution of Semi-Quantum Dielectric Function Models to the Analysis of Infrared Spectra », *Appl. Spectrosc.* **58**, 969-974 (2004).

- [Suk93] C.I. Sukenic, M.G. Boshier, D. Cho, V. Sandoghdar et E.A. Hinds « Measurement of the Casimir-Polder force », *Phys. Rev. Lett.* **70**, 560 (1993)
- [Was93] C. Waschke, H.G. Roskos, R. Schwedler, K. Leo, H. Kurz et K. Köhler « Coherent submillimeter-wave emission from Bloch-oscillations in a semiconductor superlattice », *Phys. Rev. Lett.* **70**, 3319 (1993)

Chapitre 1

Interaction de van der Waals entre un atome neutre et une surface diélectrique dispersive à température non nulle

Deux corps électriquement neutres très proches l'un de l'autre peuvent être influencés par des interactions électromagnétiques dues aux forces de Coulomb existant entre les différents moments électriques du développement multipolaire de leur distribution de charges. Le cas particulier où l'interaction se fait entre deux dipôles électriques s'appelle généralement interaction de van der Waals (vdW). Cette interaction de vdW peut avoir lieu entre des dipôles permanents (par exemple l'interaction entre molécules polaires), entre un dipôle permanent et un dipôle induit (appelé aussi force de Debye) et entre un dipôle instantané et un dipôle induit (Force de London [Lon30]), qui sera le cas qui nous intéressera dans cette thèse.

Un atome neutre proche d'une surface interagit avec celle-ci. A très courte portée (à des distances comparables au rayon atomique) cette interaction est répulsive en raison de la superposition des nuages électroniques de l'atome et de la surface. A plus longue portée le dipôle électrique de l'atome interagit avec le dipôle image induit sur la surface. Dans cette interaction longue portée on peut considérer deux régimes différents :

- i) Celui où l'atome est placé à moins d'une longueur d'onde réduite ($z \ll \lambda_{ij}/2\pi$), où λ_{ij} est la longueur d'onde de la transition atomique virtuelle dominante pour

l'interaction de vdW. Dans ce cas nous pouvons négliger les effets de propagation non instantanée de la lumière et le potentiel d'interaction se comporte comme $-C_3/z^3$.

- ii) Pour $z > \lambda_{ij}/2\pi$, les effets de retard doivent être pris en compte en modifiant la forme fonctionnelle du potentiel, qui tend asymptotiquement vers $-C_4/z^4$ [Cas48].

Nous nous intéresserons dans ce chapitre au régime non-retardé de l'interaction atome-surface longue portée (vdW), car notre technique expérimentale permet de sonder les atomes à moins de 100 nm de la surface, alors que la longueur d'onde du champ rayonné par les fluctuations du dipôle atomique est plutôt de quelques dizaines de micromètres pour les états atomiques spécifiques que nous considérerons.

1.1 Interaction de van der Waals entre un atome neutre et une surface parfaitement réfléchissante.

Nous allons dans cette section traiter le problème de l'interaction longue portée entre un atome neutre et une surface parfaitement réfléchissante ($\epsilon = -\infty$, où ϵ est la constante diélectrique) en utilisant le formalisme de l'image diélectrique. Nous analyserons le cas d'une interaction non retardée.

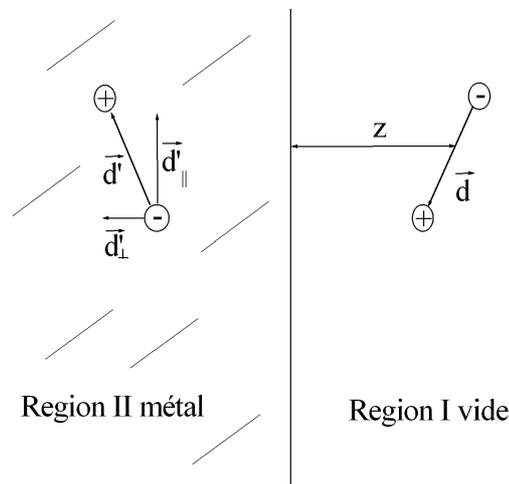


Figure 1.1 – Illustration du dipôle atomique et de son image diélectrique dans la surface.

Soit l'espace divisé en deux régions semi infinies I et II (voir figure (1.1)), la région I correspondant au vide et la région II à un réflecteur parfait ($\epsilon = -\infty$) semi infini. Considérons un atome neutre situé dans la région I, comme un dipôle électrique fluctuant, désigné par le vecteur \vec{d} , situé à une distance z de la surface. Ce dipôle produit sur la surface un dipôle image

\vec{d}' (voir figure (1.1)), qui a une composante dans la direction perpendiculaire à l'interface égale à la composante d_z atomique ($d'_z = d_z$) et une composante parallèle à l'interface opposée à celle du dipôle atomique ($d'_{\parallel} = -d_{\parallel}$). Le champ électrique produit par le dipôle \vec{d}' à la position du dipôle \vec{d} est (dans le système gaussien d'unités) :

$$\vec{E} = -\frac{1}{2} \frac{1}{(2z)^3} [\vec{d}' - 3(\vec{d}' \cdot \vec{u}_z) \vec{u}_z] \quad (1.1)$$

où \vec{u}_z est un vecteur unitaire dans la direction perpendiculaire à l'interface. L'énergie de l'interaction entre le dipôle \vec{d} et le champ \vec{E} est $V = -\vec{E} \cdot \vec{d}$. On a donc, en tenant compte de ce que $d'_{\parallel} = -d_{\parallel}$ et $d'_z = d_z$:

$$V = -\frac{1}{16z^3} [d_{\parallel}^2 + 2d_z^2] \quad (1.2)$$

Cette interaction est responsable d'un déplacement du niveau d'énergie de l'état électronique de l'atome. Nous pouvons calculer ce déplacement en considérant cette interaction comme une perturbation du système « atome isolé + surface isolée ». En faisant appel au principe de correspondance, le hamiltonien d'interaction s'écrit :

$$H_{int} = -\frac{1}{16z^3} [D_{\parallel}^2 + 2D_z^2] = -\frac{1}{16z^3} [\vec{D}^2 + D_z^2] \quad (1.3)$$

où D_{\parallel} et D_z sont, respectivement, les composantes de l'opérateur moment dipolaire électrique (\vec{D}) parallèle et perpendiculaire à la surface. En utilisant la théorie des perturbations de la mécanique quantique on peut calculer le déplacement d'énergie d'un niveau atomique $|i\rangle$ induit par le hamiltonien d'interaction :

$$\Delta E_i = -\frac{1}{16z^3} (\langle i| D^2 |i\rangle + \langle i| D_z^2 |i\rangle) \quad (1.4)$$

où $|i\rangle$ est un état électronique de l'atome sans perturbation. Si l'on considère que l'état électronique $|i\rangle$ a une symétrie sphérique on a $\langle i| D_z^2 |i\rangle = \frac{1}{3} \langle i| D^2 |i\rangle$ et on peut écrire :

$$\Delta E_i = -\frac{1}{12z^3} \langle i| D^2 |i\rangle \quad (1.5)$$

On remarque que malgré le fait que la valeur moyenne de l'opérateur moment dipolaire électrique est nulle ($\langle i| D |i\rangle = 0$), on a ($\langle i| D^2 |i\rangle \neq 0$). L'interaction de vdW est proportionnelle au carré du moment dipolaire de l'état électronique de l'atome. Or, plus l'atome est dans un état excité, plus le moment dipolaire est, en principe, grand et donc plus l'interaction de vdW avec un réflecteur parfait sera grande (notamment pour des atomes de Rydberg). En

utilisant l'expansion $I = \sum_j |j\rangle\langle j|$ (où I est l'opérateur identité) on peut récrire l'équation (1.5) comme :

$$\Delta E_i = -\frac{C_3^{i(RP)}}{z^3} = -\frac{1}{12z^3} \sum_j |\langle i|D|j\rangle|^2 \quad (1.6)$$

La somme en j dans l'équation précédente indique que pour calculer l'interaction de vdW il faut faire la somme des moments dipolaires électriques sur toutes les transitions atomiques possibles. Dans l'expression 1.6 on a introduit le coefficient de van der Waals C_3 avec :

$$C_3^{i(RP)} = \frac{1}{12} \sum_j |\langle i|D|j\rangle|^2 \quad (1.7)$$

où l'exposant (RP) dénote « Réflecteur Parfait ».

1.2 Interaction de van der Waals avec une paroi diélectrique dispersive à température nulle

Pour une surface diélectrique dispersive, le dipôle image induit dans la surface dépend de la constante diélectrique du matériau, modifiant l'interaction de vdW par rapport à 1.6. La constante diélectrique peut être complexe ($\epsilon(\omega) = \epsilon_1(\omega) + i\epsilon_2(\omega)$) signifiant qu'une partie de l'énergie électromagnétique peut être absorbée en volume.

Le déplacement de l'énergie d'un niveau atomique induit par l'interaction de vdW peut toujours être calculé par une approche perturbative en utilisant la théorie de la réponse linéaire [McL63] (qui décrit la réponse linéaire d'un système à une excitation via la définition d'une fonction temporelle appelée susceptibilité). La correction au second ordre de la théorie de perturbation s'écrit [Wyl85] :

$$\Delta E_{i,I} = -\frac{1}{\hbar} P \sum_{j,J} \frac{|\langle i \otimes I|D \cdot E|j \otimes J\rangle|^2}{(\omega_j - \omega_i) + (\omega_J - \omega_I)} \quad (1.8)$$

où les états dénotés par des lettres majuscules sont les états propres du « reste du système physique » (surface + champ du vide) , ω dénote l'énergie de chaque état divisé par la constante de Planck, et P dénote la partie principale.

Si l'on considère l'atome dans l'état fondamental d'un tel système à température nulle (c'est-à-dire que l'état I est l'état fondamental du « reste du système ») on a $(\omega_j - \omega_i) > 0$

et $(\omega_J - \omega_I) > 0$ donc l'expression (1.8) n'a pas de pôles et la partie principale est l'expression elle-même. Dans ce cas on peut réécrire (1.8) en utilisant les susceptibilités tensorielles pour le moment dipolaire atomique pour le niveau $|i\rangle$ ($\chi_{a,b}^{(i)}(iu)$) et pour le champ électromagnétique ($\Psi_{a,b}(iu)$), calculées pour des fréquences imaginaires [McL63] (a,b sont les coordonnées cartésiennes (a,b=x,y,z)) :

$$\Delta E_i = -\frac{\hbar}{2\pi} \int_0^\infty du \chi_{a,b}^{(i)}(iu) \Psi_{a,b}(iu) \quad (1.9)$$

Les susceptibilités décrivent la réponse linéaire d'un système, ultérieurement à une excitation externe (principe de causalité) : elles doivent donc être analytiques du point de vue mathématique [Lan67]. Nous pouvons donc utiliser leur extension analytique pour calculer les susceptibilités à des fréquences imaginaires de sorte que $\chi_{a,b}^{(i)}(iu)$ soit réelle. En écrivant une relation linéaire entre le dipôle fluctuant atomique et le champ réfléchi sur la surface ($E_a = \sum_b \Psi_{a,b} d_b$) et à partir de l'expression (1.1) on peut écrire la susceptibilité du champ électrique comme étant :

$$\left\{ \begin{array}{l} \Psi_{xx} = \Psi_{yy} = \frac{1}{8z^3} \frac{\epsilon(\omega)-1}{\epsilon(\omega)+1} \\ \Psi_{zz} = \frac{1}{4z^3} \frac{\epsilon(\omega)-1}{\epsilon(\omega)+1} \\ \Psi_{a,b \neq a} = 0 \end{array} \right.$$

La susceptibilité du dipôle atomique s'écrit [Wyl85] :

$$\chi_{ab}^{(i)}(\omega) = \frac{2}{\hbar} \sum_j \frac{\omega_{ij} \langle i | D_a | j \rangle \langle j | D_b | i \rangle}{\omega_{ij}^2 - \omega^2} \quad (1.10)$$

où $\omega_{ij} = (E_j - E_i)/\hbar$. En remplaçant les expressions des susceptibilités dans (1.9) on obtient un déplacement d'énergie du type $-C_3/z^3$ avec :

$$C_3^{(i)} = \frac{1}{12} \sum_j r(\omega_{ij}) |\langle i | D | j \rangle|^2 \quad (1.11)$$

où nous avons introduit le coefficient de réflexion diélectrique qui vaut pour un atome dans l'état fondamental et une surface non excitée (T=0) :

$$r(\omega_{ij}) = \frac{2}{\pi} \int_0^\infty \frac{\epsilon(iu) - 1}{\epsilon(iu) + 1} \frac{\omega_{ij}}{\omega_{ij}^2 + u^2} du \quad (1.12)$$

où $\epsilon(iu)$ est l'extension analytique dans le plan complexe de la constante diélectrique dépendante de la fréquence.

Reconsidérons maintenant le problème (expression (1.8)) pour un atome excité pour une surface à température nulle. Dans ce cas, $(\omega_j - \omega_i)$ peut être négatif et l'expression (1.8) peut avoir des pôles. En utilisant l'identité mathématique $P\left(\frac{1}{x}\right) = \frac{1}{x+in} + i\pi\delta(x)$, $n \rightarrow 0^+$ on obtient [Wyl85],[Fai99] :

$$\Delta E_i = -\frac{\hbar}{2\pi} \int_0^\infty du \chi_{a,b}^{(i)}(iu) \Psi_{a,b}(iu) + \left[\sum_{a,b,j} \langle i|D_a|j\rangle \langle i|D_b|j\rangle \text{Re}(\Psi_{ab}(\omega_{ij})) \right] \theta(-\omega_{ij}) \quad (1.13)$$

où $\text{Re}(f)$ dénote la partie réelle de f et où $\theta(\omega)$ est la fonction de Heavyside ($\theta(\omega) = 0$ pour $\omega < 0$ et $=1$ pour $\omega \geq 0$). Dans ce cas nous pouvons toujours écrire le coefficient C_3 sous la forme (1.11) avec le coefficient de réflexion écrit :

$$r(\omega_{ij}) = \underbrace{\frac{2}{\pi} \int_0^\infty \frac{\epsilon(iu) - 1}{\epsilon(iu) + 1} \frac{\omega_{ij}}{\omega_{ij}^2 + u^2} du}_I + \underbrace{2 \text{Re} \left(\frac{\epsilon(|\omega_{ij}|) - 1}{\epsilon(|\omega_{ij}|) + 1} \right)}_{II} \theta(-\omega_{ij}) \quad (1.14)$$

Le premier terme de l'équation (1.14) est une contribution non résonnante de l'interaction de vdW. Ce terme dépend de la fréquence de transition atomique (ω_{ij}) mais aussi des propriétés optiques du matériau sur tout le spectre de fréquence. Pour des raisons de causalité (propriétés mathématiques liées à l'analyticit  des susceptibilit s [Lan67]), le terme I de l' quation (1.14) d cro t de fa on monotone avec $|\omega_{ij}|$, ce qui implique qu'il soit born  par $[0 < I < 1]$.

Le terme II de l' quation (1.14) n'existe que pour $\omega_{ij} < 0$ ($E_i > E_j$) c'est- -dire pour des transitions virtuelles atomiques en  mission, et n'existe donc pas pour un  tat atomique fondamental. Le signe du terme II n'est pas d termin  et ce terme n'est pas limit . En effet nous voyons que la fonction $\frac{\epsilon(|\omega_{ij}|) - 1}{\epsilon(|\omega_{ij}|) + 1}$ peut avoir des p les ($\epsilon(|\omega_{ij}|) + 1 = 0$) pour lequel le terme II est divergeant. Ce terme peut donc contribuer   des valeurs du coefficient de r flexion ($r(\omega_{ij})$) « anormalement » grandes, ce qui peut donner lieu   une attraction de vdW g ante ou   une contribution n gative au coefficient de r flexion. Si la transition atomique pour laquelle $r(\omega_{ij}) < 0$ contribue de fa on importante   C_3 (somme de l' quation (1.11)), nous pouvons obtenir une valeur de C_3 n gative. Dans ce cas nous rencontrons un cas compl tement non usuel o  l'interaction de vdW est r pulsive au lieu de l'interaction « universellement » attractive normalement rencontr e pour une interaction « instantan e » dip le-dip le image. Physiquement ce terme est d    une contribution r sonnante entre une  mission virtuelle atomique et une absorption par un mode de polariton de surface (la r sonance de surface  tant donn e par les p les du terme II de l' quation (1.14)). Le

terme II de l'équation(1.14) représente la contribution des modes de polariton de surface à la fréquence des transitions atomiques. Pour comprendre l'interaction de vdW dans le cadre de la théorie de l'image diélectrique, nous pouvons expliquer le cas d'une interaction répulsive de la façon suivante : le dipôle instantané de l'atome interagit avec le dipôle image dans la surface, mais ce dernier n'est pas instantané. En effet, comme la fréquence de vibration du dipôle atomique est proche de la résonance de surface, le dipôle image met un certain temps pour se construire, ce qui implique que celui-ci n'est plus en phase avec le dipôle atomique. Il se peut qu'on retrouve une situation où les deux dipôles sont en opposition de phase. Dans ce cas l'interaction entre eux est répulsive.

Une telle interaction de vdW répulsive a été détectée dans l'équipe OCR du LPL il y a déjà plusieurs années [Fai99-2]. Dans cette expérience l'interaction de vdW entre un atome de Cs($6D_{3/2}$) et une surface de saphir avait été mesurée. Pour ce système, la principale contribution à la somme de équation (1.11) vient de la transition virtuelle en émission entre le niveau $6D_{3/2}$ et le niveau $7P_{1/2}$ qui a pour longueur d'onde $\lambda = 12.15 \mu\text{m}$. La surface de Saphir possède précisément une résonance de polariton en quasi-coïncidence avec cette longueur d'onde. Ce couplage résonnant donne lieu à une interaction de vdW répulsive.

1.3 Interaction avec une surface dispersive à température non nulle

Dans la section antérieure nous avons vu que l'interaction résonnante entre l'atome et la surface (à $T=0$) n'avait lieu que quand l'atome avait une transition *en émission* proche de la résonance de surface. Un couplage résonnant avec une absorption atomique n'est pas possible car il faudrait avoir un couplage avec une surface émissive ce qui n'est pas le cas à $T=0$: les modes de polariton résonnant avec la transition atomique ne sont en effet pas peuplés. Mathématiquement nous avons traduit cela en considérant que dans l'expression (1.8) on a toujours $(\omega_J - \omega_I) > 0$, ce qui veut dire que l'expression (1.8) n'a des pôles que pour une transition atomique en émission $(\omega_j - \omega_i) < 0$. Si nous considérons maintenant la situation où $T \neq 0$, et où T est suffisamment grand pour avoir une surface émissive dans des modes correspondant à une transition atomique en absorption, un couplage résonnant entre émission de surface et absorption atomique peut avoir lieu. En revenant sur l'expression (1.8)

cela veut dire qu'à $T \neq 0$, on peut avoir une situation où $(\omega_J - \omega_I) < 0$ (système « surface+champ du vide » dans un état excité I) et il est donc possible d'avoir des pôles pour $(\omega_j - \omega_i) > 0$. En revanche, tant que les transitions atomiques importantes pour l'interaction de vdW sont telles que $\hbar\omega_{ij} \gg k_B T$, où k_B est la constante de Boltzman, nous pouvons considérer que $T = 0$ car les modes de polariton de fréquence ω_{ij} ne seront pas peuplés.

En 2006 M.-P. Gorza et M. Ducloy [Gor06] ont développé une théorie qui prend en compte la contribution résonnante entre les émissions de surface et une transition atomique en absorption, prévoyant un changement de la valeur du coefficient de vdW C_3 avec la température de la surface (l'idée était déjà discuté par l'équipe auparavant [Dut04]).

Dans [Gor06] on considère une situation où un atome est placé, au voisinage d'une surface, dans un rayonnement en équilibre thermique avec la surface. Dans le cas où la température de la surface n'est pas nulle, l'expression (1.8) doit être modifiée en introduisant la probabilité de retrouver le champ du vide dans l'état I $\left(p(I) = \frac{e^{-E_I/k_B T}}{\sum_I e^{-E_I/k_B T}}\right)$, et nous obtenons donc [Gor06] :

$$\Delta E_{i,I} = -\frac{1}{\hbar} P \sum_{I,j,J} p(I) \frac{|\langle i \otimes I | D \cdot E | j \otimes J \rangle|^2}{(\omega_j - \omega_i) + (\omega_J - \omega_I)} \quad (1.15)$$

A partir de cette expression il est possible d'écrire le déplacement d'énergie, toujours selon la forme de l'équation (1.11), avec le coefficient de réflexion donné par :

$$r(\omega_{ij}) = r_1(\omega_{ij}) + r_2(\omega_{ij})\theta(-\omega_{ij}) + r_3(\omega_{ij})\theta(\omega_{ij}) \quad (1.16)$$

où $r_1(\omega_{ij})$ est le terme non résonnant de l'interaction donné par une somme de Matsubara :

$$r_1(\omega_{ij}) = \frac{2k_B T}{\hbar} \sum_{k=0}^{\infty} \frac{\epsilon(i\xi_k) - 1}{\epsilon(i\xi_k) + 1} \frac{2\omega_{ij}}{\omega_{ij}^2 + \xi_k^2} \quad (1.17)$$

avec $\xi_k = k(2\pi k_B T/\hbar)$ et le symbole \sum' indique que le terme avec $k=0$ doit être multiplié par $1/2$. Ce terme se réduit à l'équation 1.12 pour une température nulle.

Le terme résonnant $r_2(\omega_{ij})\Theta(-\omega_{ij})$, n'existe que pour $\omega_{ij} < 0$, c'est à dire pour une transition atomique en émission.

$$r_2(\omega_{ij}) = 2Re \left[\frac{\epsilon(|\omega_{ij}|) - 1}{\epsilon(|\omega_{ij}|) + 1} \right] \frac{1}{1 - e^{-\frac{\hbar|\omega_{ij}|}{k_B T}}} \quad (1.18)$$

Ce terme est égal au produit du terme II de l'équation (1.14) par un terme qui dépend du nombre de photons dans le mode de surface à fréquence ω_{ij} . Pour $T = 0$ on a $\left(1 - e^{-\frac{\hbar\omega_{ij}}{k_B T}}\right)^{-1} = 1$ et on retrouve le terme II de l'équation (1.11).

Le terme résonnant $r_3(\omega_{ij})\Theta(\omega_{ij})$ n'existe que pour $\omega_{ij} > 0$, c'est-à-dire pour une transition atomique en absorption. On a :

$$r_3(\omega_{ij}) = -2Re \left[\frac{\epsilon(\omega_{ij}) - 1}{\epsilon(\omega_{ij}) + 1} \right] \frac{e^{-\frac{\hbar\omega_{ij}}{k_B T}}}{1 - e^{-\frac{\hbar\omega_{ij}}{k_B T}}} \quad (1.19)$$

Ce terme a un signe opposé par rapport au signe de $r_2(\omega_{ij})$ et $\frac{e^{-\frac{\hbar\omega_{ij}}{k_B T}}}{1 - e^{-\frac{\hbar\omega_{ij}}{k_B T}}}$ donne la nombre de photons dans le modes de polariton de fréquence ω_{ij} . Naturellement le nombre de photons dans le mode s'annule pour $T = 0$, et $r_3(\omega_{ij}) = 0$ à $T = 0$. Ce terme ne donne une contribution significative que pour des températures telles que $k_B T \geq \hbar\omega_{ij}$.

Le changement de l'interaction de vdW dû au terme $r_3(\omega_{ij})$ est le phénomène physique symétrique par rapport à celui observé par Failache et collaborateurs [Fai99-2]. Dans [Fai99-2] le changement de vdW était dû à un couplage résonnant entre les émissions virtuelles atomiques et des absorptions de modes de surface (terme $r_2(\omega)$). Le terme $r_3(\omega_{ij})$ est dû au contraire à un couplage résonnant entre des émissions thermiques de la surface et des absorptions virtuelles de l'atome. On note aussi que, tandis que le phénomène observé par Failache et al [Fai99-2] n'existe que pour des niveaux atomique excités, l'influence de $r_3(\omega_{ij})$ sur l'interaction de vdW existe aussi pour un niveau fondamental, même si en pratique, pour la plupart des systèmes atomiques ce terme est négligeable pour de tel niveaux car on a dans des conditions expérimentales normales $k_B T \ll \hbar\omega_{0j}$ (où $|0\rangle$ représente le niveau fondamental). D'après l'équation (1.18), le terme résonnant avec une émission atomique dépend lui aussi de la température. Cette dépendance n'a pas été recherchée dans [Fai99-2]. En effet le couplage résonnant pour l'émission entre les niveaux $6D_{3/2}$ et $7P_{1/2}$ de l'atome de Cs correspond à une longueur d'onde d'environ $12\mu m$. Pour avoir $\frac{\hbar\omega}{k_B T} = 1$ pour cette transition nous devrions avoir une température de surface de 1200K. Or les expériences furent plutôt faites pour des températures de surface entre 373K et 523K. Pour 523K on a $\left(1 - e^{-\frac{\hbar\omega_{ij}}{k_B T}}\right)^{-1} = 1.11$ soit un changement de 10% par rapport à la valeur à $T=0$, ce qui est dans les barres d'erreurs expérimentales obtenues.

Nous nous sommes proposé dans cette thèse de voir un changement de l'interaction de van der Waals dû à un changement du terme $r_3(\omega_{ij})$ avec la température (expériences décrites dans le chapitre IV). Pour cela nous devons choisir un niveau atomique qui possède des transitions en absorption donnant une importante contribution à l'interaction de van der Waals pour lequel il est possible d'avoir $k_B T \geq \hbar\omega_{ij}$ pour des températures raisonnables du point de vue expérimental, de façon à ce que le terme $\frac{e^{-\frac{\hbar\omega_{ij}}{k_B T}}}{1 - e^{-\frac{\hbar\omega_{ij}}{k_B T}}}$ soit important (au moins ≈ 1). Ceci revient à chercher des transitions dans le domaine de l'infrarouge thermique ($\lambda > 10 \mu\text{m}$). Il nous faut aussi une surface qui ait une résonance de mode de polariton autour de ces longueurs d'ondes. Nous discuterons le choix de l'atome et de la surface étudiée dans les sections 1.6 et 1.7.

Comportement du coefficient de réflexion à haute température

Considérons la limite $k_B T \gg \hbar\omega_{ij}$ ($T \rightarrow \infty$). Pour le coefficient en température de r_2 (1.18) on a :

$$\text{Lim}_{T \rightarrow \infty} \frac{1}{1 - e^{-\frac{\hbar|\omega_{ij}|}{k_B T}}} = \frac{k_B T}{\hbar|\omega_{ij}|} \quad (1.20)$$

de même pour le coefficient en température du terme r_3 (1.19) on a :

$$\text{Lim}_{T \rightarrow \infty} \frac{e^{-\frac{\hbar\omega_{ij}}{k_B T}}}{1 - e^{-\frac{\hbar\omega_{ij}}{k_B T}}} = \frac{k_B T}{\hbar\omega_{ij}} \quad (1.21)$$

ainsi les termes $r_2(\omega_{ij})$ et $r_3(\omega_{ij})$ sont linéaires en T dans la limite $k_B T \gg \hbar\omega_{ij}$ (voir figure (1.2)). Pour le terme $r_1(\omega_{ij})$, à la limite $T \rightarrow \infty$, les valeurs de ξ_k pour $k \geq 1$ sont suffisamment grandes pour avoir $\frac{2\omega_{ij}^2}{\omega_{ij}^2 + \xi_k^2} \rightarrow 0$. Donc dans la somme de Matsubara seul le premier terme $k=0$ doit être pris en compte, et on obtient $r_1(\omega_{ij}) = \frac{2k_B T}{\hbar\omega_{ij}} \frac{\epsilon(0)-1}{\epsilon(0)+1}$: le comportement de $r_1(\omega_{ij})$ est lui aussi linéaire avec T dans la limite $k_B T \gg \hbar\omega_{ij}$.

1.4 Comparaison avec les expériences du groupe de E.A. Cornell

Récemment le groupe de Cornell [Obr07] a mesuré une dépendance en température de l'interaction de Casimir-Polder entre un condensat de Bose-Einstein de rubidium et une surface diélectrique. Dans cette expérience la surface diélectrique (silice fondue) est chauffée

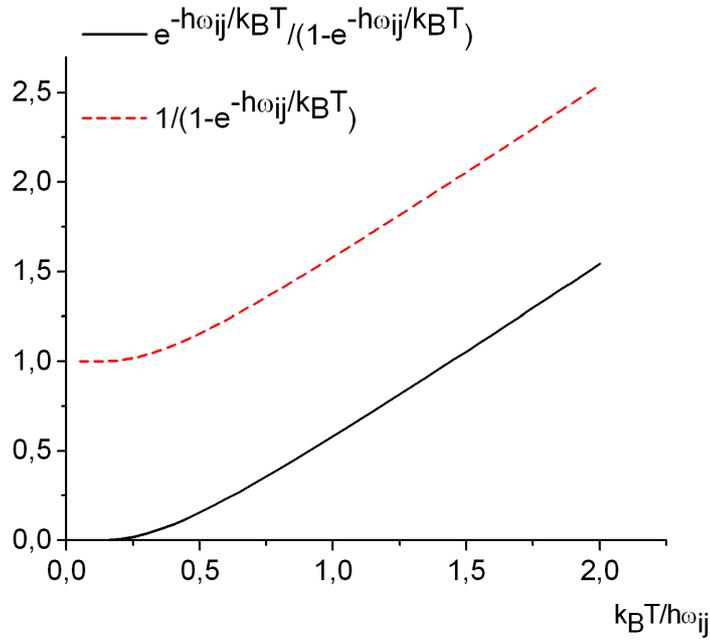


Figure 1.2 – Valeurs des termes de densité de mode de polariton, $1 / \left(1 - e^{-\frac{\hbar|\omega_{ij}|}{k_B T}} \right)$ et $e^{-\frac{\hbar\omega_{ij}}{k_B T}} / \left(1 - e^{-\frac{\hbar\omega_{ij}}{k_B T}} \right)$, en fonction de $k_B T / \hbar\omega_{ij}$. On note un comportement linéaire avec T pour des hautes températures

par rayonnement laser à des températures entre 310 K et 605K, l'environnement (parois de la cellule) étant maintenu à température ambiante. Le changement sur la force d'attraction Casimir Polder a été observé en mesurant la fréquence d'oscillation collective d'un condensat placé entre $7\mu\text{m}$ et $11\mu\text{m}$ de la surface. Notre proposition d'expérience présente des différences fondamentales par rapport à celle du groupe de E. Cornell [Obr07]

1. Nous cherchons à regarder un changement d'interaction dans une situation d'équilibre thermique. C'est-à-dire que le changement est dû à une modification de la densité modale du spectre électromagnétique du vide en équilibre avec la surface et l'environnement, alors que le groupe de E.A. Cornell sonde une différence de spectre entre le champ émis par la surface et le champ émis par l'environnement, ce qui donne lieu à une force proportionnelle à $\frac{T_S^2 - T_E^2}{z^3}$ où T_S et T_E sont respectivement les températures de la surface et de l'environnement [Ant06].
2. L'expérience du groupe de E.A. Cornell sonde les atomes situés en champ lointain par rapport à la « longueur thermique » $\lambda_T = \hbar c / k_B T$ soit $\approx 7.6 \mu\text{m}$, à température ambiante. Dans notre expérience nous nous intéresserons à des effets thermiques en champ proche.

3. Le groupe de E.A. Cornell s'intéresse à des atomes dans le niveau fondamental pour lesquels aucun processus résonnant avec le champ thermique n'est possible, tandis que nous nous intéressons justement à un couplage résonnant entre le champ thermique et les transitions atomiques. Le fait d'avoir cette résonance permet en principe d'amplifier l'interaction entre le champ thermique et l'atome de façon à ce que cette interaction, à priori faible dans les conditions d'équilibre thermique qui nous intéressent, devienne mesurable.

1.5 Changement de la durée de vie des niveaux atomiques dû à la présence de la surface

Il est bien connu que le couplage entre les niveaux atomiques et le champ du vide est responsable de l'émission spontanée. Ainsi la présence de surfaces qui modifient la distribution modale du champ de vide peut modifier la durée de vie des niveaux excités atomiques [Kle81]. Un exemple remarquable d'une telle modification sur les propriétés émissives d'un atome est l'inhibition de l'émission spontanée due à des cavités ne possédant pas de mode où l'atome peut se désexciter [Lai98].

Pour un atome proche de la surface le couplage entre une transition atomique et un mode de polariton de surface peut donner lieu à des modifications dans le taux de cette transition atomique. Ainsi dans notre équipe une augmentation du taux d'émission entre les niveaux $6D_{3/2}$ et $7D_{1/2}$ de l'atome de césium due à un couplage avec des mode de polariton d'une surface de saphir avait été observée [Fai02]

A température non nulle le taux de désexcitation d'un niveau atomique plus énergétique $|i\rangle$ vers un niveau moins énergétique $|j\rangle$ est [Wyl85] :

$$\gamma_{ij}(z) = \gamma_{ij}^{\infty} \left(1 + \frac{1}{4} \frac{c^3}{\omega_{ij}^3 z^3} \text{Im} \left(\frac{\epsilon(|\omega_{ij}|) - 1}{\epsilon(|\omega_{ij}|) + 1} \right) \frac{1}{1 - e^{-\frac{\hbar|\omega_{ij}|}{k_B T}}} \right) \quad (1.22)$$

où γ_{ij}^{∞} est le taux de désexcitation loin de la surface. Si le niveau $|i\rangle$ est d'énergie plus faible que le niveau $|j\rangle$, on a un taux de transition dû à l'absorption du champ thermique de la surface qui est donné par :

$$\gamma_{ij}(z) = \gamma_{ij}^{\infty} \frac{1}{4} \frac{c^3}{\omega_{ij}^3 z^3} \text{Im} \left(\frac{\epsilon(\omega_{ij}) - 1}{\epsilon(\omega_{ij}) + 1} \right) \frac{e^{-\frac{\hbar\omega_{ij}}{k_B T}}}{1 - e^{-\frac{\hbar\omega_{ij}}{k_B T}}} \quad (1.23)$$

Si une transition atomique en absorption se situe proche d'une résonance de surface, tel que $Im\left(\frac{\epsilon(\omega_{ij})-1}{\epsilon(\omega_{ij})-1}\right) \approx 1$, une absorption réelle du photon thermique est possible.

1.6 Choix du niveau atomique étudié.

Notre équipe a une longue expérience de travail avec des vapeurs de césium confinées dans des cellules hermétiques, notamment pour étudier l'interaction de van der Waals. Un des gros avantages de l'utilisation de vapeur de césium est la relativement grande pression de vapeur à température ambiante (1.488×10^{-6} torr à 25°C [Ste09]) qui permet d'avoir une densité importante de vapeur de Cs à des températures pas trop élevées, et l'existence d'un unique isotope stable, le ^{133}Cs , qui a un spin nucléaire de $I = 7/2$. Il est donc tout à fait naturel de chercher à travailler sur cet atome. En plus le niveau $8P_{3/2}$ est couplé par des transitions en absorption vers les niveaux $7D_{3/2}$ et $7D_{5/2}$ à des longueurs d'onde de $39 \mu\text{m}$ et $36 \mu\text{m}$ respectivement, dans le domaine de l'infrarouge thermique. En effet, on a pour la transition $8P_{3/2} \rightarrow 7D_{3/2} : T = \hbar\omega/k_B = 370\text{K}$, et pour la transition $8P_{3/2} \rightarrow 7D_{5/2} : T = \hbar\omega/k_B = 400\text{K}$. En plus, nous verrons par la suite que ces deux transitions sont responsables de plus de 50% de la valeur du coefficient de vdW C_3 pour l'interaction entre ce niveau atomique et un réflecteur parfait.

La figure (1.3) montre les différents niveaux du césium et les longueurs d'onde de transitions permises connectées aux niveaux $8P_{3/2}$ et $8P_{1/2}$. Les transitions de résonance $6S_{1/2}$ -8P du césium, sont à des longueurs d'onde respectivement de 387.6nm et 388.8nm pour $8P_{3/2}$ et $8P_{1/2}$. Ces transitions sont permises en approximation dipolaire, mais ont une faible probabilité de transition (les coefficients d'Einstein sont : $A = 1.574 \times 10^6 \text{ s}^{-1}$ pour la transition $6S_{1/2} \rightarrow 8P_{3/2}$, et $A = 0.443 \times 10^6 \text{ s}^{-1}$ pour la transition $6S_{1/2} \rightarrow 8P_{1/2}$). La force d'oscillateur pour la transition $6S_{1/2} \rightarrow 8P_{1/2}$ est environ 3 ordres de grandeur plus petite que pour la raie D1 du césium (894nm) [Liu00],[Cat96]. Récemment des expériences métrologiques avec des montages d'absorption saturée ont été faites pour chercher à bien déterminer les fréquences de ces niveaux ainsi que leur structures hyperfines [Liu00]. Pour surmonter le problème de la faible force d'oscillateur et améliorer le rapport signal sur bruit, les stratégies utilisées furent d'une part l'utilisation d'une forte intensité pour le faisceau pompe [Cat96] (puissance du faisceau pompe de 10mW), au prix d'un grand élargissement par puissance des raies observées (31 MHz), et d'autre part l'utilisation d'une cellule plus

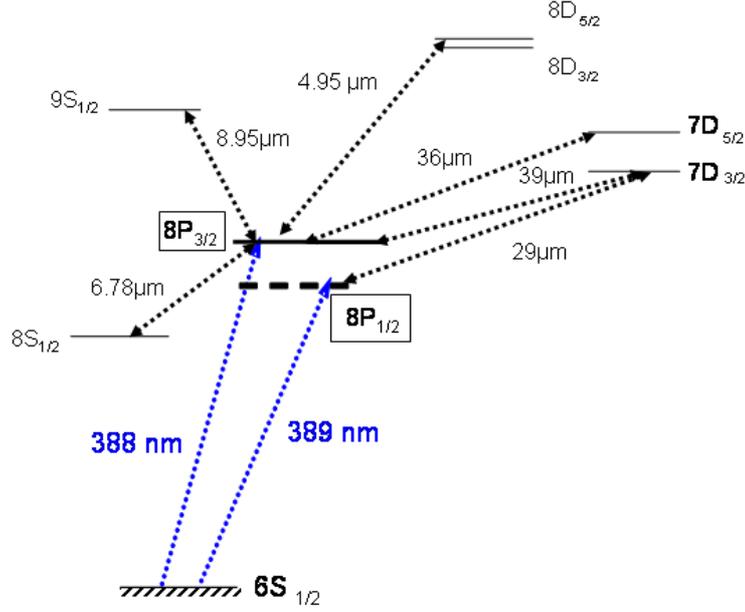


Figure 1.3 – Transitions permises à partir des niveaux $Cs(8P)$, ainsi que les longueurs d’onde correspondantes.

longue [Liu00] (cellule de 1m) avec les difficultés expérimentales inhérentes à ce genre de cellule. La densité de césium a de plus été augmentée en jouant sur la température du réservoir de césium (environ $100^{\circ}C$). Les auteurs de l’article [Liu00] comparent la largeur obtenue avec celle de la largeur naturelle de la transition $6S_{1/2} \rightarrow 8P_{1/2}$, qu’ils estiment théoriquement à ≈ 71 kHz. Cette valeur théorique ne considère en fait que la désexcitation directe vers le niveau fondamental mais ne prend pas en compte les différents canaux de désexcitation en cascade pour le niveau 8P. Les auteurs de [Liu00] considèrent aussi que le déplacement collisionnel des transitions est négligeable. Des mesures de l’élargissement et du déplacement de la transition $6S_{1/2} \rightarrow 8P_{3/2}$ en fonction de la densité atomique, non connus précédemment, ont été récemment entreprises dans l’équipe OCR [Cha07].

Comme nous l’avons vu, l’interaction de vdW entre un niveau atomique $|i\rangle$ donné et un réflecteur parfait (RP) est donnée par (équation 1.7) :

$$C_3^{i(RP)} = \frac{1}{12} \sum_j |\langle i | D | j \rangle|^2 \quad (1.24)$$

Pour calculer le coefficient de van der Waals il nous faut donc calculer le moment dipolaire électrique pour chaque transition et les sommer. Si on dénote les niveaux atomiques par

les nombres quantiques : n_i, J_i et M_i , où n_i est le nombre quantique principal, J le nombre quantique du moment angulaire total (L+S) et M sa projection, on peut écrire $\langle i | D | j \rangle = \langle n_i, J_i, M_i | D | n_j, J_j, M_j \rangle$ qui est donné par [Che92] :

$$|\langle i | D | j \rangle|^2 = |\langle n_i, J_i, M_i | D | n_j, J_j, M_j \rangle|^2 = \frac{3}{4} \hbar A_{ij} \left(\frac{\lambda_{ij}}{2\pi} \right)^3 \frac{2J_{>} + 1}{2J_i + 1} \quad (1.25)$$

où λ_{ij} est la longueur d'onde de la transition, $J_{>}$ est la valeur de J pour le niveau le plus énergétique et A_{ij} est la probabilité de transition entre les niveaux i et j (que l'on peut trouver dans des tables de physique atomique [Web87]). La dépendance en λ_{ij}^3 de l'équation 1.25 implique que les contributions dominantes pour l'interaction de vdW correspondent à des transitions entre des niveaux voisins. Pour un atome assez excité comme le Cs(8P) les transitions dominantes se situent donc dans l'infrarouge lointain.

Nous avons considéré pour écrire l'équation 1.7 que $|\langle i | D_z | j \rangle|^2 = \frac{1}{3} |\langle i | D | j \rangle|^2$, en admettant une symétrie sphérique du niveau atomique. En réalité l'interaction de vdW peut être écrite comme une contribution scalaire (donnée par l'équation 1.7) plus une contribution quadrupolaire qui dépend de la projection du moment orbital total \vec{J} selon un axe de quantification [Pap94]. Le niveau 8P n'est pas en soi un niveau à symétrie sphérique, mais en l'absence de champ magnétique, le moyennage de la contribution quadrupolaire sur toutes les directions de l'espace, c'est-à-dire sur tous les sous-niveaux Zeeman dégénérés, donne une contribution nulle qui justifie que nous ne considérons que la contribution scalaire pour le calcul de C_3 [Pap94].

Dans le tableau (1.1) nous reportons les valeurs de λ_{ij} , de A_{ij} et du facteur $\frac{2J_{>}+1}{2J_i+1}$ des transitions donnant les contributions les plus fortes pour le coefficient de vdW de Cs(8P_{3/2}) de l'atome de césium face à un réflecteur parfait. On donne aussi la contribution de chaque transition à C_3 .

1.7 Les modes de surface

Dans un milieu matériel, une onde électromagnétique interagit avec les électrons du milieu en modifiant la propagation de l'onde à l'intérieur. Parmi les différentes formes d'in-

| Niveaux | $\lambda(\mu m)$ | A (10^4) s^{-1} | $\frac{2J_{>+1}}{2J+1}$ | $C_3^{i(Rp)}$ |
|-------------|------------------|-----------------------|-------------------------|---------------|
| $6D_{3/2}$ | -3.12 | 61.8 | 1 | 0.08 |
| $6D_{5/2}$ | -3.16 | 61.8 | 1 | 0.71 |
| $7D_{3/2}$ | 39.05 | 1.34 | 1 | 5.32 |
| $7D_{5/2}$ | 36.09 | 1.34 | 3/2 | 37.78 |
| $8D_{3/2}$ | 4.95 | 51.6 | 1 | 0.42 |
| $8D_{5/2}$ | 4.92 | 51.6 | 3/2 | 3.70 |
| $9D_{3/2}$ | 3.29 | 37.4 | 1 | 0.09 |
| $9D_{5/2}$ | 3.28 | 37.4 | 3/2 | 0.80 |
| $10D_{5/2}$ | 2.72 | 25.9 | 3/2 | 0.31 |
| $11D_{5/2}$ | 4.43 | 18.2 | 3/2 | 0.16 |
| $8S_{1/2}$ | -6.78 | 96.5 | 1 | 12.07 |
| $9S_{1/2}$ | 8.94 | 122 | 1/2 | 11.63 |
| $10S_{1/2}$ | 3.99 | 45.1 | 1/2 | 0.38 |
| TOTAL | | | | 73.79 |

Table 1.1 – Tableau (reproduit de [Cha05]) avec les valeurs de λ_{ij} , A_{ij} , $\frac{2J_{>+1}}{2J+1}$ et la contribution de chaque transition atomique $C_3^{i(Rp)}$ pour la valeur du coefficient de vdW de l'interaction entre le niveau $8P_{3/2}$ du césium et une surface parfaitement réfléchissante. Les valeurs de λ_{ij} et les valeurs de A_{ij} proviennent de [Web87]

teraction, on peut avoir un couplage entre les modes de vibrations des noyaux atomiques du matériau (phonon) et les onde électromagnétiques. On appelle ce type d'excitation un polariton (onde de polarisation + photon). A une interface entre deux milieux, l'interaction champ électromagnétique/onde de polarisation peut donner lieu à des modes de polaritons de surface qui consistent en une excitation qui se propage le long de la surface et qui se comporte comme une onde évanescente dans la direction perpendiculaire à l'interface. Ce couplage phonon-photon a lieu dans le domaine de fréquence infra-rouge, où la longueur d'onde du phonon est comparable à celle du photon.

Soit une interface entre un milieu, caractérisé par la constante diélectrique ϵ (milieu 1, pour $z < 0$, où z est la direction perpendiculaire à l'interface), et le vide (milieu 2, pour $z > 0$). On peut décrire les ondes électromagnétiques se propageant le long de la surface dans chaque milieu comme étant :

$$\vec{E}_1(\omega, t) = \vec{E}_1 e^{-i(\vec{k}_1 \cdot \vec{r} - \omega t)} \quad (1.26)$$

$$\vec{E}_2(\omega, t) = \vec{E}_2 e^{-i(\vec{k}_2 \cdot \vec{r} - \omega t)} \quad (1.27)$$

où on considère que les vecteurs d'onde sont donnés par $\vec{k}_{1,2} = (k_{x,1,2}, 0, k_{z,1,2})$, et où on considère que la composante du vecteur d'onde parallèle à la surface est la même pour les deux milieux car les deux ondes se propagent ensemble. Les composantes du vecteur d'onde

dans la direction perpendiculaire à la surface (direction z) sont imaginaires pures pour que l'expression (1.27) corresponde à une amplitude qui s'atténue de façon exponentielle avec la distance à l'interface. En écrivant l'équation d'onde de Maxwell pour les champs électriques on obtient :

$$k_x^2 + k_{z,1}^2 = \epsilon \frac{\omega^2}{c^2} \quad (1.28)$$

$$k_x^2 + k_{z,2}^2 = \frac{\omega^2}{c^2} \quad (1.29)$$

En appliquant la continuité des champs à l'interface on trouve : $E_{x,1} = E_{x,2}$ et $\epsilon E_{z,1} = E_{z,2}$. Si on remplace ces relations dans les équations $\nabla \cdot \vec{E} = 0$, pour chaque milieu on obtient une relation entre les composantes perpendiculaires à l'interface des vecteurs d'ondes : $k_{z,1} = \epsilon k_{z,2}$. En remplaçant cette relation dans les équations (1.29) on obtient :

$$k_x^2 = \frac{\omega^2}{c^2} \frac{\epsilon}{\epsilon + 1} \quad (1.30)$$

$$k_{z,1}^2 = \frac{\omega^2}{c^2} \frac{\epsilon^2}{\epsilon + 1} \quad (1.31)$$

$$k_{z,2}^2 = \frac{\omega^2}{c^2} \frac{1}{\epsilon + 1} \quad (1.32)$$

Pour que les composantes $k_{z,1,2}$ soient imaginaires pures il faut que $\epsilon + 1 \leq 0$. On reconnaît dans les équations de dispersion (1.32) les pôles du type $(\epsilon + 1)^{-1}$ que l'on retrouve sur les expressions de l'interaction de vdW.

Si nous considérons maintenant le cas d'une interaction non retardée on peut considérer les équations (1.29) dans la limite $\frac{\omega}{c} \rightarrow 0$, et on retrouve :

$$k_{z,1} = \pm \sqrt{-k_x^2} \quad (1.33)$$

$$k_{z,2} = \pm \sqrt{-k_x^2} \quad (1.34)$$

Comme nous voulons que l'onde soit atténuée en s'éloignant de l'interface dans le milieu, il nous faut prendre la solution $k_{z,1} = -\sqrt{-k_x^2}$ (de façon à avoir un terme $e^{k_x z}$ plus petit que 1 car $z < 1$). De même, on impose pour le vide $k_{z,2} = \sqrt{-k_x^2}$. On retrouve donc que $k_{z,1} = -k_{z,2}$. En comparant cette relation avec la relation $k_{z,1} = \epsilon k_{z,2}$, obtenue auparavant, on obtient que, dans la limite statique la fréquence du mode de polariton de surface est telle que $\epsilon(\omega) = -1$, c'est-à-dire, qu'il s'agit d'un pôle de la fonction $S(\omega) = \frac{\epsilon(\omega)-1}{\epsilon(\omega)+1}$.

Comme nous l'avons vu pour le calcul de coefficient de réflexion diélectrique, nous devons prendre en compte des termes du type $\frac{\epsilon(\omega)-1}{\epsilon(\omega)+1}$. Ces termes donnent lieu à des résonances de mode de polariton (nous avons un mode de polariton pour $\epsilon(\omega) = -1$). Pour que le couplage de l'interaction atome-surface soit résonnant, il faut que les photons virtuels émis par une transition atomique aient une fréquence (ω_{ij}) proche de la fréquence de polariton (ω_S) pour avoir $\epsilon(\omega_{ij}) \approx -1$.

1.8 Choix des surfaces et calculs préliminaires de la dépendance en température de C_3

Dans la section 1.6, nous avons vu que pour l'atome Cs($8P_{3/2}$), deux transitions virtuelles avec des longueurs d'onde de 36 μm et 39 μm donnent des contributions à l'interaction de vdW susceptibles d'être modifiées par un effet de température. Généralement les fluorides ont des résonances de polariton de surface dans cette région, notamment le CaF₂ et le BaF₂, qui nous intéresseront dans cette thèse. Les surfaces de fluorides ont l'avantage d'être transparentes dans une grande gamme de longueur d'onde (de l'UV à l'infrarouge assez profond) ce qui est très important pour une expérience de spectroscopie.

Nous présenterons, en préliminaire, la description des propriétés optiques (la constante diélectrique en fonction de la fréquence) disponibles dans la littérature au début de cette thèse, ainsi que les calculs préliminaires indiquant le changement de l'interaction de vdW attendu avec la température. Dans le chapitre suivant, nous décrirons des mesures spécifiques de propriétés optiques faites en collaboration avec l'équipe « Grandeurs radiatives et thermiques des matériaux » du CRMHT d'Orléans pour augmenter la précision dans l'estimation de C_3 . En plus des matériaux cités ci-dessus, nous étudions aussi les propriétés d'une surface de saphir pour laquelle des expériences de réflexion sélective ont déjà été faites sur la transition $6S_{1/2} \rightarrow 8P_{3/2}$ du Cs, et pour laquelle le changement prévu de l'interaction avec la température est très faible [Cha07]. Cette surface nous servira de référence pour l'interprétation de nos expériences.

1.8.1 Saphir (Al_2O_3)

L'oxyde d'aluminium (Al_2O_3) sous la forme cristallisée est connu sous la dénomination de saphir (ou corindon). C'est un matériau intéressant du point de vue optique car transparent dans la gamme de fréquence allant du visible à $6\ \mu\text{m}$. Du point de vue structural, le saphir s'organise en une structure rhomboédrique et uniaxiale présentant une biréfringence [Ger91]. Nous ne considérons, dans cette thèse, que le cas où la surface est perpendiculaire à l'axe optique de sorte que la symétrie cylindrique permet de considérer la fenêtre comme non-biréfringente, en tenant compte d'une constante diélectrique $\sqrt{\epsilon_0\epsilon_e}$, où ϵ_0 est la constante diélectrique ordinaire et ϵ_e la constante diélectrique extraordinaire. Le cas de l'interaction de surface avec une surface de saphir taillée selon un axe différent, et pour laquelle il faut prendre en compte la biréfringence du saphir, a été traité dans cette même équipe [Gor01].

Le saphir est usuellement utilisé pour la construction de cellules scellées, remplies de vapeur alcaline pour travailler à des températures élevées ($> 150^\circ\text{C}$) car c'est un matériau qui résiste bien à l'attaque par ces vapeurs.

Les résonances de surface du saphir ont été mesurées, entre autres, par A.S. Baker [Bak63] à travers des mesures de réflectivité à température ambiante. A partir des données disponibles dans [Bak63] nous pouvons construire la réponse de surface $S(\omega) = \frac{\epsilon(\omega)-1}{\epsilon(\omega)+1}$ qui est montrée à la figure (1.4).

Nous voyons que pour le mode de polariton principal on a $\omega_S \approx 832\ \text{cm}^{-1}$ (la résonance de polariton ω_S se situe à un endroit où $\text{Im}(S(\omega))$ est maximal et où $\text{Re}(S(\omega)) = 0$, en effet, ces situations correspondent à $\epsilon(\omega_S) = -1$). En terme de longueur d'onde on a $\lambda_S = 12\ \mu\text{m}$. C'est le couplage avec ce mode de polariton qui est responsable de l'effet résonnant observé par [Fai99-2]. Pour l'interaction vdW entre $\text{Cs}(8\text{P}_{3/2})$ et le saphir, nous ne nous attendons à aucun effet dépendant de la température, d'une part parce que la transition atomique importante est loin de la résonance de surface, et d'autre part parce que la résonance de surface correspond, en terme d'énergie, à des températures trop élevées ($T = \frac{\hbar\omega}{k_B} \approx 1200\text{K}$). Sur la figure (1.5) nous montrons la très faible évolution prédite avec la température du coefficient de vdW C_3 ([Cha05]).

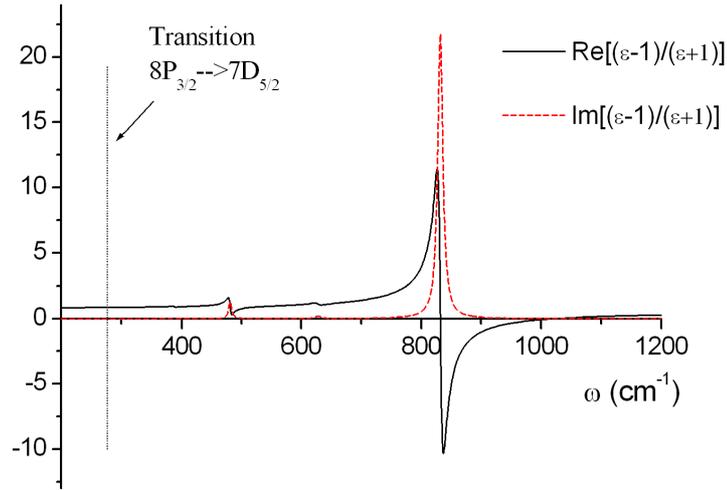


Figure 1.4 – Partie réelle et partie imaginaire de la résonance de surface du Saphir, obtenue à partir de données extraites de [Bak63]. La position de la transition $8P_{3/2} \rightarrow 7D_{5/2}$, dominante pour l'interaction de vdW, est repérée en pointillé.

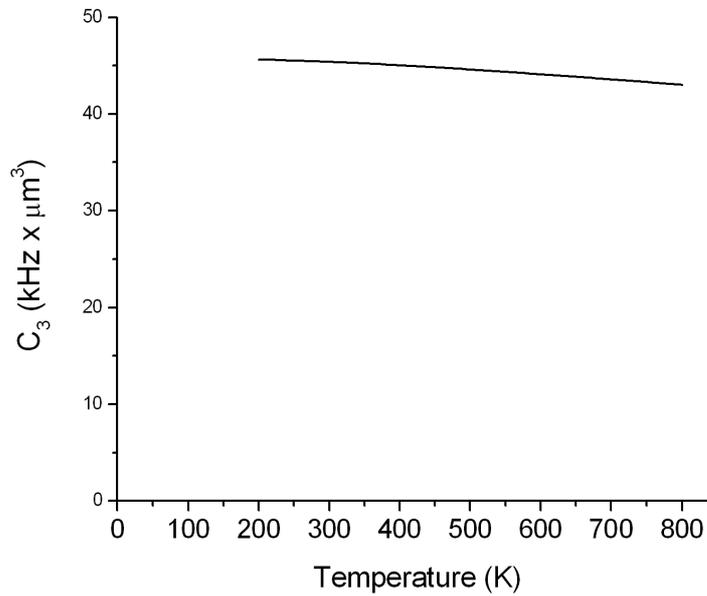


Figure 1.5 – Évolution avec la température de la valeur prédite du coefficient C_3 pour l'interaction entre le césium $8P_{3/2}$ et une surface de saphir.

1.8.2 Fluorure de Calcium (CaF_2)

Le fluorure de calcium (CaF_2 ou fluorine) est un cristal ionique qui présente une structure cubique avec les cations Ca^{2+} rangés sur une maille cubique de face centrée et les ions

F^- en une maille cubique [Bez91]. Le fluorure de calcium a pour propriété optique d'être transparent de l'ultraviolet à l'infrarouge lointain ($0.2-9 \mu\text{m}$). Cette large gamme de transparence donne lieu à de nombreuses applications de ce matériau, qui vont de la construction de fenêtres optiques à la réalisation de prismes ayant un bon pouvoir dispersif dans la gamme de longueur d'onde de 2.5 à $7 \mu\text{m}$ [Gor47].

D'un point de vue mécanique, le CaF_2 est fragile et supporte mal les chocs. C'est aussi un matériau qui est sensible aux chocs ou aux gradients thermiques. Le CaF_2 a un point de fusion à 1402°C et un coefficient de dilatation environ trois fois supérieur à celui du saphir (18.85×10^{-6}).

Un nombre relativement faible de mesures des propriétés optiques ont été faites dans la région de l'infrarouge thermique ($20-40 \mu\text{m}$) qui nous intéresse ici. Nous utiliserons les résultats obtenus dans [Kai62] pour lesquelles nous pouvons construire la fonction de surface $S(\omega) = \frac{\epsilon(\omega)-1}{\epsilon(\omega)+1}$ présentée à la figure (1.6).

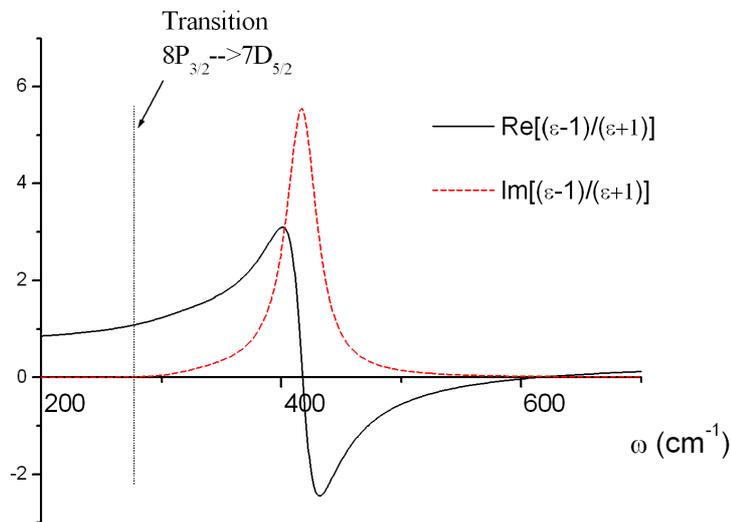


Figure 1.6 – Parties imaginaire et réelle de la fonction de surface $S(\omega) = \frac{\epsilon(\omega)-1}{\epsilon(\omega)+1}$ pour le CaF_2 obtenues à partir des données de [Kai62]. La position de la transition $8P_{3/2} \rightarrow 7D_{5/2}$, dominante pour l'interaction de vdW , est repérée en pointillé.

Notons que la résonance de surface (maximum de $\text{Im}(S)$) se situe aux alentours de $\lambda_S =$

$24 \mu\text{m}$, valeur relativement proche des transition importantes pour l'interaction de vdW du niveau $8P_{3/2}$ du Cs. Pour $\lambda = 36.09 \mu\text{m}$ (transition $8P_{3/2} \rightarrow 7D_{5/2}$) nous avons $Re(S) = 1.09$ ce qui indique que nous devons avoir un changement important de l'interaction de vdW avec la température. En outre nous avons, pour cette longueur d'onde, $Im(S) = 0.015$ indiquant que les transitions réelles $8P_{3/2} \rightarrow 7D_{5/2}$, induites par le champ thermique de la surface, peuvent être négligées. La variation du coefficient de vdW, C_3 , calculée en utilisant les données pour la constante diélectrique de [Kai62] est montrée à la figure (1.7).

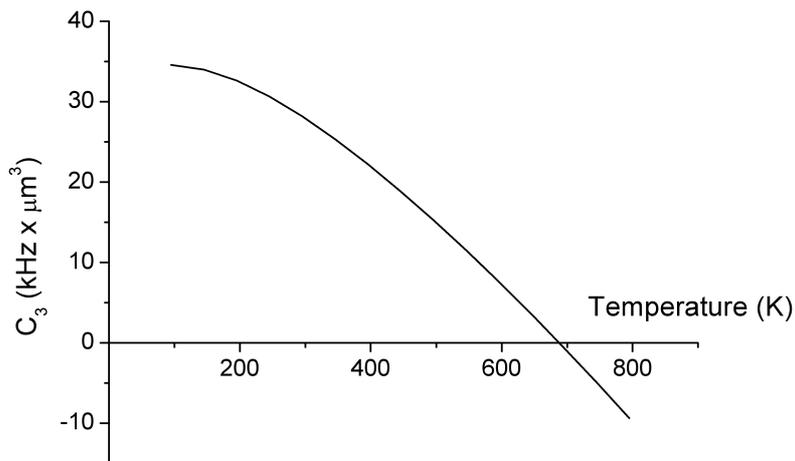


Figure 1.7 – Variation de C_3 pour l'interaction entre Cs($8P_{3/2}$) et une surface de CaF_2 avec la température.

Nous prédisons donc un net changement de la valeur de C_3 . Aux alentours de 750K la valeur de C_3 est zéro ce qui signifie que pour cette température la contribution non résonnante annule la contribution résonnante et l'interaction de van der Waals est en principe quasi-nulle : un atome voisin de la surface à cette température ne sera donc pas attiré par celle-ci. Pour des températures plus élevées on a $C_3 < 0$, signifiant que l'interaction entre atome et surface est répulsive. Le changement de signe de C_3 est prévu à une température accessible du point de vue expérimental, et peut ainsi être exploré.

1.8.3 Fluorure de Barium (BaF_2)

Le fluorure de Barium (BaF_2) est un cristal ionique présentant une structure cubique [Tho98]. Comme pour le CaF_2 , c'est un matériau intéressant optiquement, en raison de sa très grande gamme de transparence, allant de $0.15 \mu\text{m}$ à $12 \mu\text{m}$. Sa transparence, alliée à sa faible dispersion dans la gamme visible-infrarouge proche, permet des procédures d'alignement dans le visible pour des expériences devant se décaler à des longueurs d'onde dans l'infrarouge sans changement d'alignement.

Le BaF_2 a aussi l'intéressante caractéristique de présenter une variation négative de l'indice de réfraction avec la température (autour de 300K), ce qui entraîne une quasi-invariance de la longueur optique par une « annulation » de la dilatation thermique :

$$\frac{d(n(T)L(T))}{dT} \approx 0 \quad (1.35)$$

Le BaF_2 est aussi beaucoup utilisé pour la détection de rayonnements ionisants (rayons X ou rayons gamma par exemple) à cause de son très rapide pouvoir de scintillation (luminescence suite à une excitation de haute énergie) [Vlad01].

Le BaF_2 est très fragile aux chocs et ne supporte pas les chocs thermiques (il est encore plus fragile que le CaF_2). Le BaF_2 est aussi moins résistant à l'attaque par de l'eau que le CaF_2 .

Pour la région de l'infrarouge thermique la constante diélectrique a été obtenue à partir de mesures de réflectivité par W. Kaiser et collaborateurs [Kai62]. La figure (1.8) montre les modes de surface (fonction $S(\omega)$) de BaF_2 calculés en utilisant ces données.

Notons que pour les longueurs d'onde correspondant aux transitions importantes de $\text{Cs}(8P_{3/2})$, c'est-à-dire $36.09 \mu\text{m}$ et $39.05 \mu\text{m}$, nous avons des valeurs de $Re(S(\omega))$ de 4.07 et 2.24 respectivement. Ces résultats indiquent qu'un important changement de C_3 avec la température doit être attendu. Pour $Im(S(\omega))$ on a 2.49 et 0.27 respectivement. Nous nous attendons donc à avoir un taux de transition $8P_{3/2} \rightarrow 7D_{5/2}$ non négligeable, qui augmente considérablement avec la température.

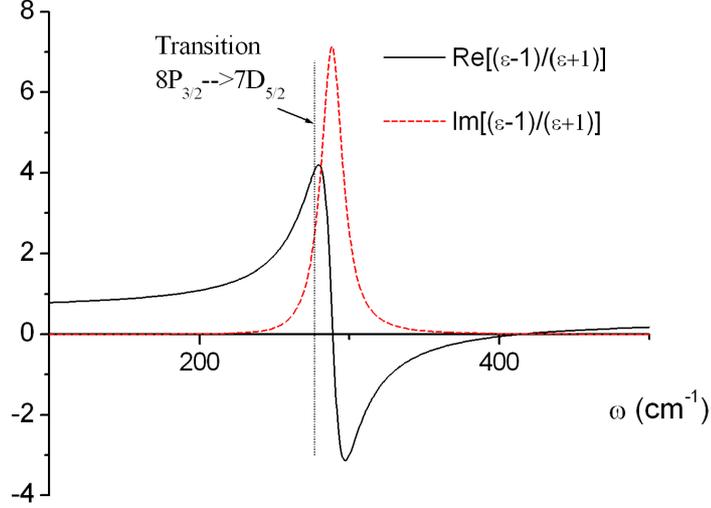


Figure 1.8 – Parties imaginaire et réelle de la fonction de surface $S(\omega) = \frac{\epsilon(\omega)-1}{\epsilon(\omega)+1}$ pour le BaF_2 obtenues à partir des données de [Kai62]. La position de la transition $8P_{3/2} \rightarrow 7D_{5/2}$, dominante pour l’interaction de vdW est aussi repérée en pointillé.

La figure (1.9) montre l’évolution de C_3 , en considérant la somme des contributions de toutes les transitions, avec la température pour le BaF_2 . Comme $Re(S(\omega))$ est grand et positif pour la transition $8P_{3/2} \rightarrow 7D_{5/2}$ (contribution dominante pour l’interaction de vdW, voir tableau 1.1), la contribution r_3 au coefficient de réflexion de cette transition est négative et assez grande, ce qui induit un C_3 négatif et assez grand.

On aboutit donc pour BaF_2 à la prédiction spectaculaire que les contributions des niveaux $7D_{3/2}$ et $7D_{5/2}$ doivent rendre l’interaction de vdW répulsive à température ambiante, alors que l’on prévoirait naturellement une attraction si l’effet en température est négligé.

1.9 Conclusion

Nous avons vu qu’un atome proche d’une surface subit une interaction longue portée qui dans la limite non retardée se comporte comme $-C_3/z^3$, z étant la distance atome-surface. Dans le cas d’une surface dispersive à température nulle et un atome excité, un couplage résonnant entre une émission atomique et une absorption de mode de polariton peut donner lieu à une attraction géante ou une force répulsive.

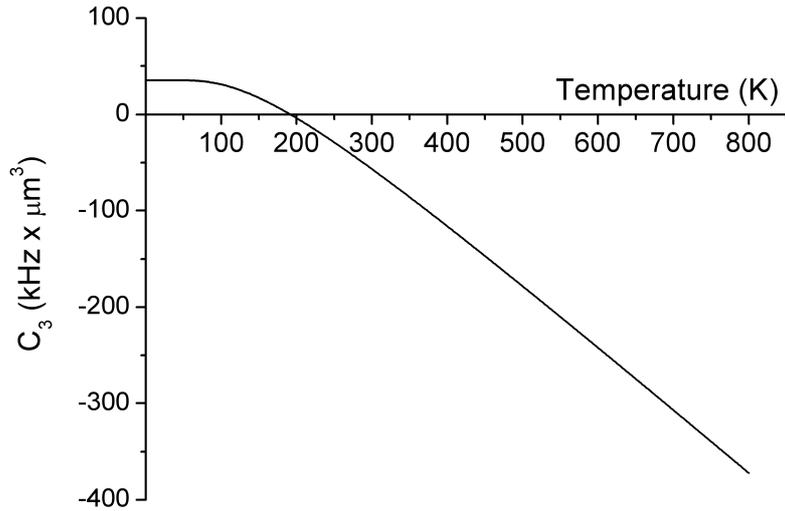


Figure 1.9 – Variation de C_3 pour l'interaction entre $Cs(8P_{3/2})$ et une surface de BaF_2 avec la température.

Si la surface est à une température différente de zéro, le processus symétrique peut avoir lieu, c'est-à-dire un couplage entre une émission thermique de la surface et une absorption atomique. Dans ce cas, un choix correct du niveau atomique et de la surface étudiée peut donner lieu à une interaction de van der Waals qui change considérablement avec la température de la surface, pouvant devenir répulsive pour certains matériaux.

Une étude expérimentale de la dépendance en température de l'interaction de vdW permet de tester le rayonnement thermique dans une région très proche de la surface. Elle peut aussi permettre de sonder les modes de polariton de surface avec une précision qui doit être supérieure aux mesures utilisant de la spectroscopie infra-rouge pour sonder les modes du volume, ou utilisant des microscopes de champ proche [Gref02].

Dans le prochain chapitre nous allons présenter des mesures de réflectivité dépendantes de la température et faites avec l'objectif de connaître la variation des propriétés optiques de différents matériaux, permettant un calcul plus précis de la constante C_3 en fonction de la température.

Bibliographie

- [Ant06] M. Antezza, L. P. Pitaevskii, S. Stringari et V. B. Svetovoy, « Casimir-Lifshitz force out of equilibrium and asymptotic nonadditivity », *Phys. Rev. Lett.* **97**, 223203 (2006)
- [Bak63] A.S. Baker jr., « Infrared lattice vibrations and dielectric dispersion on corundum », *Phys. Rev.* **132**, 1474 (1963)
- [Bez91] D.F. Bezuidenhout, « Calcium Fluoride (CaF_2) » dans « Handbook of Optical Constants of Solids II », E. D. Palik ed., Elsevier Academic Press, 1991. pp 815-835
- [Cas48] H. B. G. Casimir et D. Polder, « The influence of retardation on London-van der Waals forces », *Phys. Rev.* **73**, 360 (1948)
- [Cat96] F.S. Cataliotti, C. Fort, F.S. Pavone et M. Inguscio, « Doppler-free excitation of the weak $6S_{1/2} \rightarrow 8P_{1/2}$ cesium transition at 389 nm », *Z. Phys. D* **38**, 31 (1996)
- [Cha05] P. Chaves de Souza Segundo, Thèse de Doctorat, Laboratorio de Física e Lasers, Universidade Federal da Paraíba (2005)
- [Cha07] P. Chaves de Souza Segundo, I. Handi, M. Fichet, D. Bloch et M. Ducloy « Selective reflection spectroscopy on the UV-third resonance line of Cs : Simultaneous probing of a van der Waals Atom-Surface interaction sensitive to far IR couplings and interatomic collisions », *Laser Physics* **17**, 983 (2007)
- [Che92] Martine Chevrollier, Thèse de Doctorat, Laboratoire de Physique des Lasers, Université Paris 13 (1992)
- [Den70] P. Denham, G. R. Field, P. L. R. Morse et G. R. Wilkinson, « Optical and dielectric properties and lattice dynamics of some fluorite structure ionic crystals », *Proceedings of the Royal Society of London, Series A Mathematical and Physical Sciences* **317**, n°1528, p55-77 (1970).
- [Dut04] G. Dutier, I. Handi, P.C.S. Segundo, A. Yarovitski, S. Saltiel, M.-P. Gorza, M. Fichet, D. Bloch et M. Ducloy « Coupling of atoms, surfaces and fields in dielectric

- nanocavities », *Laser Spectroscopy : Proceedings of the XVI International Conference (International Conference on Laser Spectroscopy, p277-284 (2004)*
- [Fai99] H. Failache, Thèse de Doctorat, Laboratoire de Physique des Lasers, Université Paris 13 (1999)
- [Fai99-2] H. Failache, S. Saltiel, M. Fichet, D. Bloch et M. Ducloy, « Resonant van der Waals repulsion between excited Cs atoms and sapphire surface », *Phys. Rev. Lett.* **83**, 5469 (1999)
- [Fai02] H. Failache, S. Saltiel, A. Fischer, D. Bloch et M. Ducloy, « Resonant quenching of gas-phase Cs atoms induced by surface polaritons », *Phys. Rev. Lett* **88**, 243603 (2002).
- [Ger91] F. Gervais, « Aluminum Oxide (Al_2O_3) » dans « Handbook of Optical Constants of Solids II », E. D. Palik ed., Elsevier Academic Press, 1991. pp 761-775
- [Gor47] R.C. Gore, R.S. McDonald et V.Z. Williams, « Comparison of LiF and CaF_2 prisms for infra-red use », *J. Opt. Soc. Am.* **37**, 23 (1947)
- [Gor01] M.-P. Gorza, S. Saltiel, H. Failache et M. Ducloy « Quantum theory of van der Waals interactions between excited atoms and birefringent surfaces », *Eur. Phys. J. D* **15**, 113 (2001)
- [Gor06] M.-P. Gorza et M. Ducloy, « van der Waals interactions between atoms and dispersive surfaces at finite temperature », *Eur. Phys. J. D* **40**, 343 (2006)
- [Gref02] J. J. Greffet, R. Carminati, K. Joulain, J.-P. Mulet, S. Mainguy et Y. Chen, « Coherent emission of light by thermal sources », *Nature* **416**, 61 (2002)
- J. J. Greffet, « Rayonnement thermique cohérent », *Image de la Physique 2006(CNRS)*, pg 67.
- [Hol84] L. Hollberg et J. L. Hall, « Measurement of the shift of Rydberg energy levels induced by blackbody radiation », *Phys. Rev. Lett.* **53**, 230 (1984)
- [Kle81] D. Kleppner, « Inhibited spontaneous emission », *Phys. Rev. Lett.* **47**, 233 (1981)
- [Kai62] W. Kaiser, W.G. Spitzer, R.H. Kaiser et L.E. Howart, « Infrared properties of CaF_2 , SrF_2 and BaF_2 », *Phys. Rev.* **127**, 1950 (1962)
- [Lan67] L. Landau et E. Lifchitz « *Physique statistique* », Éditions MIR, pp 466-473 (1967)
- [Lai98] K.S. Lai et E.A. Hinds « Blackbody excitation of an atom controlled by a tunable cavity », *Phys. Rev. Lett.* **81**, 2671 (1998)

- [Liu00] Y.-W. Liu et P.E.G. Baird, « Measurement of the caesium $6S_{1/2} \rightarrow 8P_{1/2}$ transition frequency », *Appl. Phys B* **71**, 567 (2000)
- [Lon30] F. London, « Theory and systematics of molecular forces », *Z. Phys.* **63**, 245 (1930)
- [McL63] A. D. McLachlan, « Retarded dispersion forces in dielectrics at finite temperatures », *Proc. Royal Soc.* **274**, 80 (1963)
- [Obr07] J. M. Obrecht, R. J. Wild, M. Antezza, L. P. Pitaevskii, S. Stringari et E. A. Cornell, « Measurement of the temperature dependence of the Casimir-Polder force », *Phys. Rev. Lett.* **98**, 063201 (2007)
- [Pap94] Nicolas Papageorgiou, Thèse de Doctorat, Laboratoire de Physique des Lasers, Université Paris 13 (1994)
- [Ste] D. Steck, « Cesium D line data » . <http://steck.us/alkalidata>
- [Tho98] M. Thomas, « Barium Fluoride (BaF₂) » dans « Handbook of Optical constants of solids III » E. D. Palik ed., Elsevier Academic Press, 1998, pp 683-699
- [Vlad01] S. V. Vladimirov, V. S. Kaftanov, A. F. Nilov, Yu. A. Semenov, V. T. Smolyankin, V. I. Ushakov, O. A. Goronkov, E. N. Zvonarev, O. I. Kozlov, V. P. Mashirev, V. V. Shatalov, T. T. Basiev, V. A. Konyushkin, V. V. Osiko, A. G. Papashvili et V. N. Skvortsov3 « Characteristics of BaF₂ Scintillation Crystals », *Atomic Energy* **90**, 55 (2001)
- [Web87] K.H. Weber et C.J. Sansonetti « Accurate energies of nS,nP,nD,nF and nG levels », *Phys. Rev. A* **35**, 4650 (1987)
- [Wyl85] J. M. Wylie et J. E. Snipe, « Quantum electrodynamics near an interface. II », *Phys. Rev. A* **32**, 2030 (1985)

Chapitre 2

Dépendance en température des propriétés optiques de surface et nouvelle évaluation du coefficient de l'interaction van der Waals

Nous avons vu, au chapitre I, que pour calculer l'interaction de vdW entre un atome et une surface il faut connaître la réponse de surface $S(\omega) = \frac{\epsilon(\omega)-1}{\epsilon(\omega)+1}$ sur tout le spectre ; en particulier pour le cas qui nous intéresse d'un couplage résonnant entre une absorption virtuelle atomique et une émission thermique de la surface, il faut connaître $\text{Re}\left(\frac{\epsilon(\omega_{ij})-1}{\epsilon(\omega_{ij})+1}\right)$, où ω_{ij} est la fréquence de transition virtuelle atomique prise en compte. Ce couplage résonnant est important pour des fréquences atomiques proches des résonances de polariton de surface, c'est-à-dire quand $\epsilon(\omega) \approx -1$. L'estimation du coefficient C_3 dépend donc de la bonne évaluation de la fonction $\epsilon(\omega)$. En particulier, dans le cas d'une recherche des effets de la température (chapitre I) de surface, il est naturel de chercher à décrire le mieux possible les variations avec la température de la réponse diélectrique, qui se combinent avec les effets plus spécifiquement quantiques liés à la distribution thermique du nombre de photons par mode.

Les diverses données disponibles dans la littérature pour $\epsilon(\omega)$ présentent souvent des désaccords qui peuvent être dus à :

- l'utilisation de différentes techniques expérimentales : réflectivité à incidence nor-

male, transmittance, ellipsométrie...

- l'utilisation de méthodes indirectes d'obtention de $\epsilon(\omega)$ à partir des résultats expérimentaux (nous reviendrons sur ce sujet dans la section 2.2)
- des différences sur les échantillons utilisés : impuretés, qualité du polissage de la surface, voire traitements chimiques ou oxydation de la surface.

Le plus souvent, les différences entre les données sont sans conséquence pour l'évaluation des résonances de volume (position et amplitude des résonances) et l'étude des propriétés optiques des matériaux. En revanche, pour les résonances atome-surface, le filtrage de la réponse par une fréquence atomique déterminée induit une grande sensibilité aux incertitudes sur la constante diélectrique [Sal06]. Ceci est d'autant plus vrai que nous cherchons à calculer l'interaction de vdW pour une transition atomique très proche de la résonance de polariton de surface (ceci est notamment le cas pour le $Cs(8P_{3/2})$ au voisinage d'une surface de BaF_2).

Dans les calculs de C_3 du chapitre I, nous avons utilisé pour décrire $\epsilon(\omega)$ une modélisation à partir de données obtenues pour des températures de surface de 300K. Or, il est bien connu que les résonances des matériaux en volume, et en conséquence en surface, se déplacent et s'élargissent avec la température [Tho91]. De tels changements sur les propriétés optiques doivent être prises en compte pour le calcul de C_3 en remplaçant dans les équations (1.17,1.18,1.19 du chapitre I) $\epsilon(\omega)$ par $\epsilon(\omega, T)$. La principale raison pour laquelle nous n'avons pas pris en compte la variation de la constante diélectrique avec la température, dans les évaluations préliminaires de la section 1.7 du chapitre I, est la faible quantité de données disponibles dans la littérature. En effet, à notre connaissance, seules des mesures à 100K et 300K ont été faites pour déterminer les propriétés optiques du CaF_2 [Kai62],[Den70]. Pour le BaF_2 , W. Kaiser et collaborateurs [Kai62] ont fait des mesures à 300K et 77K et S. K. Andersson et collaborateurs [And88] ont fait des mesures entre 300K et 773K. Ces différentes mesures présentent des désaccords et, pour [And88], l'accord entre modèle théorique et courbes expérimentales est discutable. Pour le saphir des mesures en fonction de la température ont été faites (par exemple [Ger74]), mais les spectres de réflectance varient, probablement à cause de différences dans les échantillons.

Cette faible quantité de données, ainsi que leurs variations dans la littérature, nous a poussé à entreprendre des mesures de réflectance (pourcentage de la puissance réfléchi

tenant compte les réflexions multiples sur les deux surfaces de l'échantillon) pour les surfaces de CaF_2 , BaF_2 et Saphir, en fonction de la température. Ces mesures ont été effectuées en collaboration avec l'équipe « Grandeurs radiatives et thermiques des matériaux » du CEMHTI d'Orléans, dirigée par P. Echegut. Une autre motivation pour la réalisation de ces mesures était la non-compatibilité avec nos calculs théoriques de nos mesures (discutées au chapitre IV) du coefficient C_3 de l'interaction de vdW entre un atome $\text{Cs}(8P_{3/2})$ et une surface de CaF_2 .

Nous commençons ce chapitre en décrivant la méthode et les spectres expérimentaux obtenus. Nous décrirons ensuite différentes méthodes pouvant être utilisées pour extraire la constante diélectrique des courbes de réflectance. Puis nous utiliserons des modèles théoriques pour la constante diélectrique, afin d'ajuster les courbes de réflectance. Finalement, en utilisant la constante diélectrique obtenue pour différentes températures, nous calculerons de nouvelles valeurs (dépendant de la température) du coefficient de van der Waals.

2.1 Mesures de réflectance dans le domaine infrarouge

Nous avons participé aux mesures de réflectance dans le domaine infrarouge dans des surfaces de saphir, BaF_2 et CaF_2 , pour une gamme de températures allant de la température ambiante à 500°C . Les mesures ont été effectuées dans l'équipe « Grandeurs radiatives et thermiques des matériaux » du CEMHTI d'Orléans, dirigée par P. Echegut, en utilisant un Spectromètre par Transformée de Fourier du type « Bruker 113v ».

2.1.1 Spectromètre en réflexion par transformée de Fourier

Le Spectromètre Bruker 113v consiste en un interféromètre de Michelson, illuminé par une source incandescente infrarouge à la sortie duquel on place l'échantillon (Voir figure (2.1)). Deux rayons lumineux parcourant deux bras différents sont recombinaés à la sortie en interférant. La longueur des bras peut être variée en déplaçant le miroir mobile (3). La méthode de fonctionnement de l'interféromètre par Transformée de Fourier consiste à faire une acquisition temporelle de la lumière sortant de l'interféromètre en faisant varier la position du miroir (3) avec une vitesse constante. En appliquant une transformée de Fourier à la mesure obtenue, on remonte à la distribution spectrale de la source. Si à la sortie de

l'interféromètre, la lumière est envoyée sur l'échantillon et que l'on détecte sa réflexion, la distribution spectrale observée (l'amplitude de chaque composante de fréquence) est modifiée par le spectre de réflectance de l'échantillon. En comparant la distribution spectrale de la lampe (sans échantillon) à celle réfléchi par l'échantillon, on remonte au spectre de réflectance de celui-ci. Ce type d'instrument permet aussi de mesurer le spectre de transmittance si on observe, à la sortie du Spectromètre, la lumière transmise par l'échantillon.

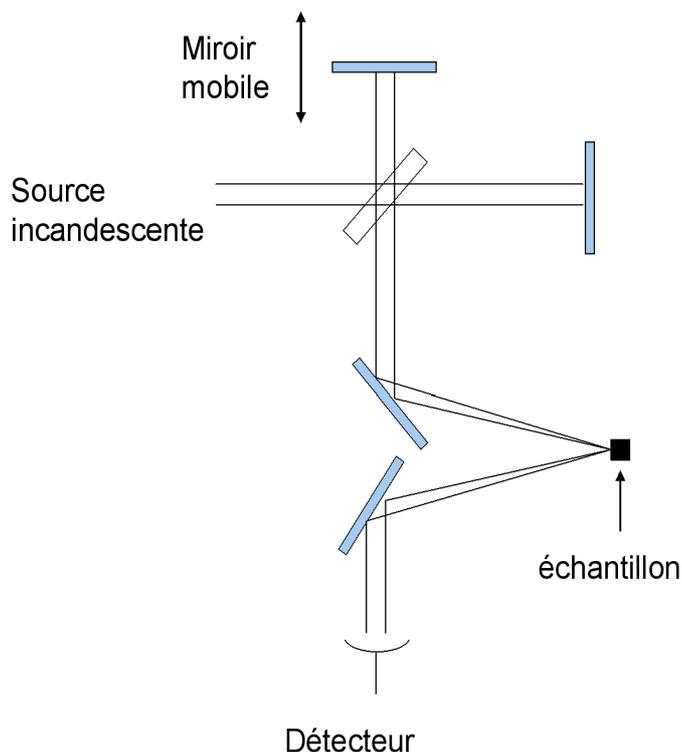


Figure 2.1 – Illustration d'un Spectromètre par transformée de Fourier.

L'instrument que nous utilisons dans ces mesures permet une résolution spectrale de 4cm^{-1} et une précision sur la réflectance mesurée de 2%-3%. Les échantillons utilisés sont des fenêtres de 8mm de diamètre et de 0.8mm d'épaisseur dans le cas de BaF_2 et de CaF_2 et de 1 mm d'épaisseur dans le cas du saphir. Les échantillons de BaF_2 et CaF_2 testés proviennent de la même source que les fenêtres utilisées dans nos cellules (décrites dans le chapitre IV). Tous les échantillons ont été polis optiquement des deux cotés. Nous avons mesuré les spectres de réflectance pour un échantillon de saphir, un de BaF_2 et un de CaF_2 pour des températures de 295K, 373K, 473K, 573K, 673K et 773K. Pour les mesures en température, l'échantillon est placé sur un plaque chauffante, qui émet du rayonnement infrarouge, modifiant le spectre de réflectance dans la région semi-transparente (ailes du spectre

de réflectance). Cette contribution étant difficile à évaluer nous ne considérons que la zone à forte absorption (environ de $200\text{-}600\text{ cm}^{-1}$ pour le CaF_2 et le BaF_2) dans nos analyses. Pour les températures supérieures à la température ambiante nous devons utiliser une taille de faisceau plus petite car la présence d'un thermocouple voisin de la surface limite la superficie de l'échantillon utilisable. Le signal détecté dans ce cas est réduit, ce qui dégrade le rapport signal sur bruit par rapport aux mesures à température ambiante.

Dans cette thèse, nous nous sommes intéressé à des régions spectrales où se situent les résonances de surface car c'est dans cette région que des couplages résonnant dans l'interaction de van der Waals peuvent avoir lieu (voir chapitre I). Cette région spectrale connue comme la bande reststrahlen, de l'allemand « radiation résiduelle », est caractérisée par une forte réflectivité (proche de 100%) et une forte atténuation de l'onde électromagnétique à l'intérieur du matériau.

2.1.2 Saphir (Al_2O_3)

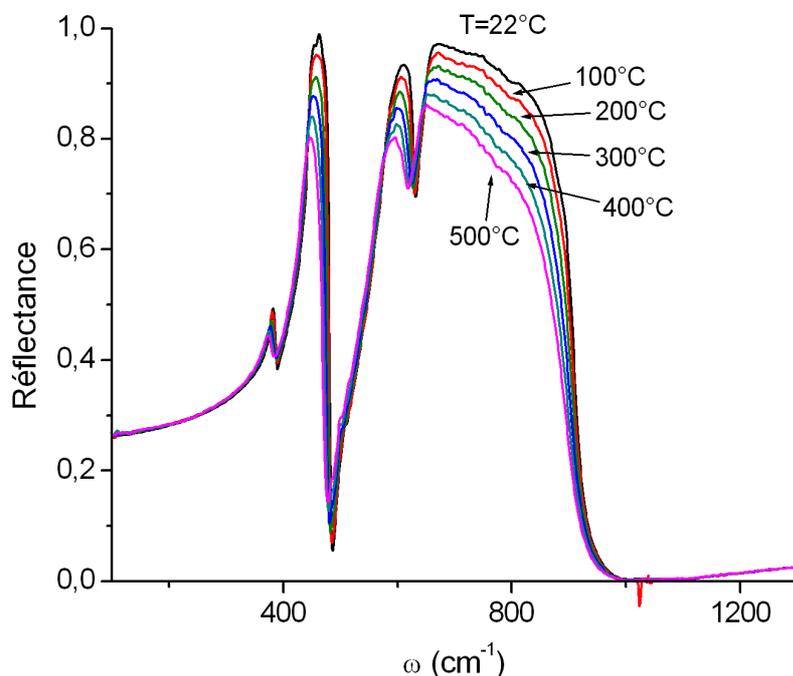


Figure 2.2 – Spectres de réflectance mesurés pour le saphir pour des températures de 295K, 373K, 473K, 573K, 673K et 773K.

Pour le Saphir les spectres de réflectance obtenus sont présentés à la figure (2.2). La

réflectance maximale diminue quand on augmente la température (effet de l'élargissement des modes de phonons), ce qui est un comportement typique. Notons que nos courbes présentent plus de structures que celles obtenues dans l'article [Ger75], et sont similaires à celles obtenues dans l'article [Ger74].

2.1.3 CaF₂

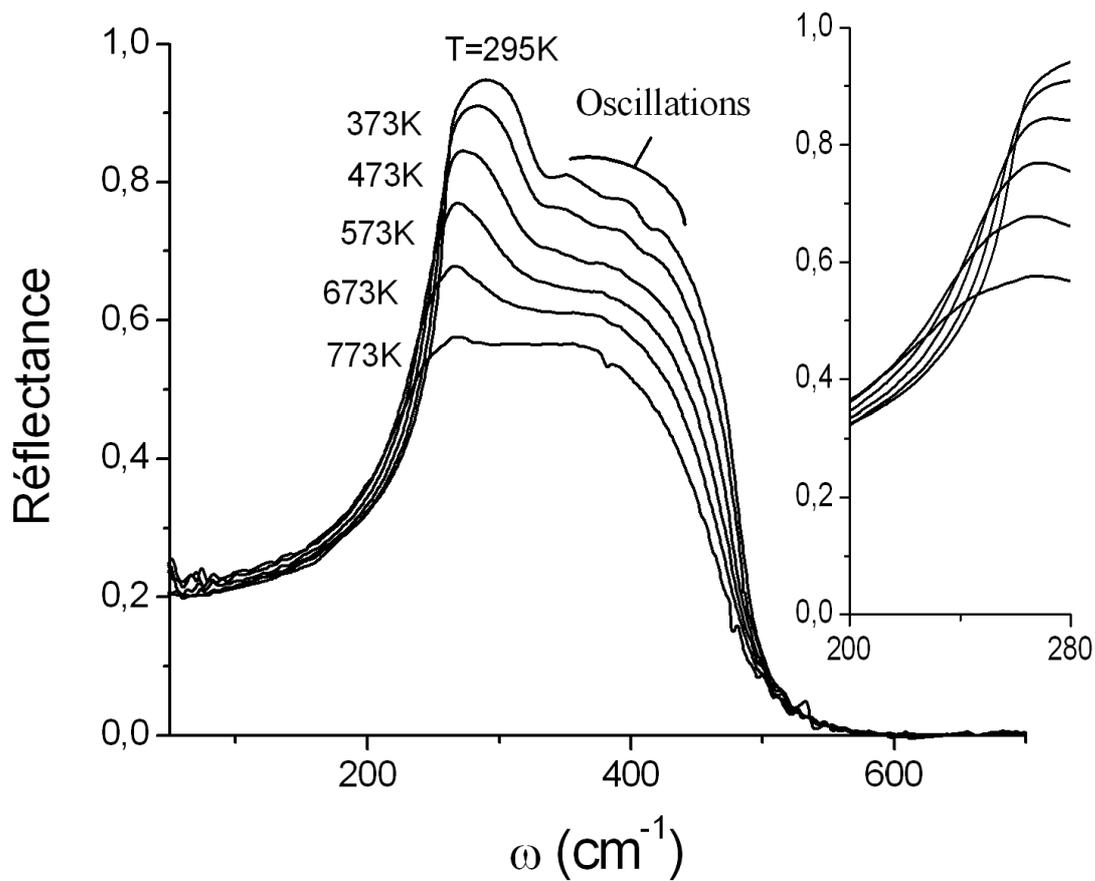


Figure 2.3 – Spectres de réflectance mesurés pour le CaF₂ pour les températures 295K, 373K, 473K, 573K, 673K et 773K. Des oscillations correspondant à des processus de relaxation multiphonon sont montrées sur le spectre à 295K.

Les spectres de réflectance obtenus pour le CaF₂ sont présentés à la figure (2.3). En comparant l'évolution du spectre avec la température nous observons, comme pour le saphir, une diminution de la réflectance avec la température. Pour la température de 295K (22°C), nous observons des oscillations dans la zone de reststrahlen. De telles structures ne

sont pas clairement visibles sur les spectres disponibles dans la littérature [Kai62],[Den70]. Ces structures sont attribuées à des processus de relaxation à deux phonons, impliquant un phonon optique et un phonon acoustique. Dans notre série de spectres nous observons l'évolution des structures multiphonons avec la température et nous voyons que pour de hautes températures ces structures disparaissent à cause d'un élargissement de celles-ci. En revanche les oscillations apparaissant sur les ailes ($R \ll 1$) de la bande de reststrahlen (visibles principalement à 773K) correspondent seulement au bruit de mesure.

2.1.4 BaF₂

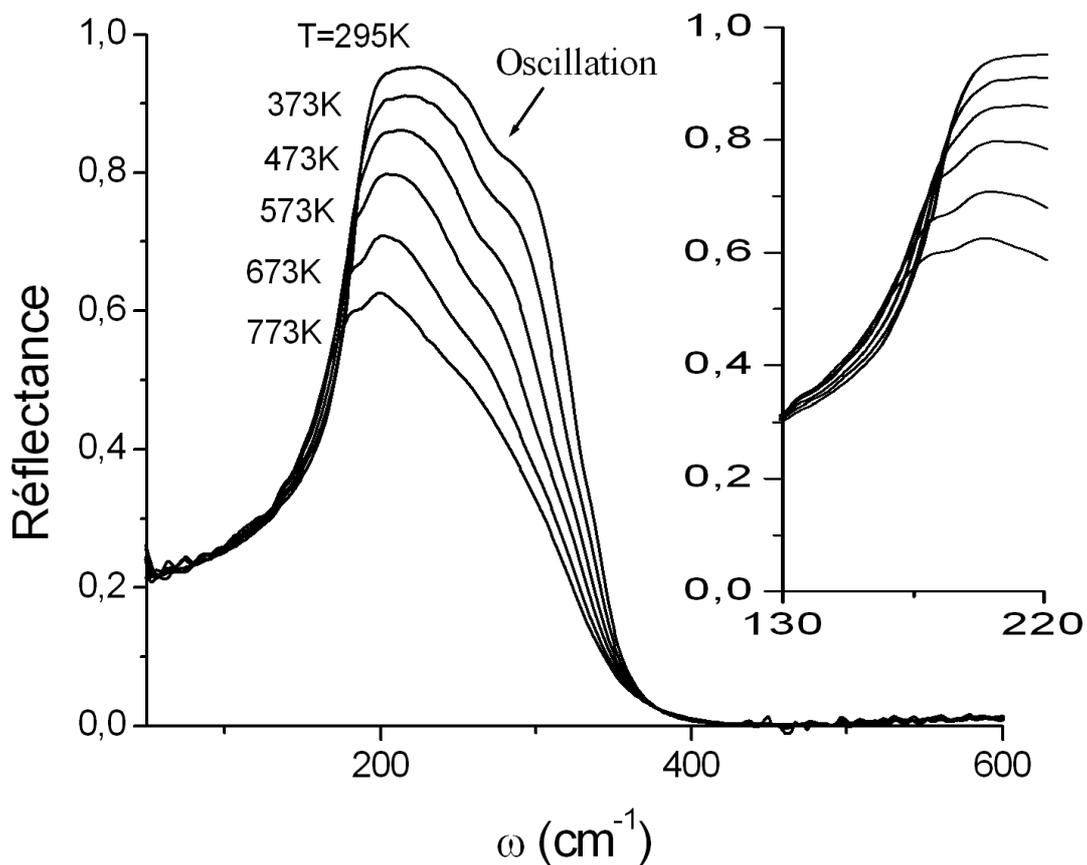


Figure 2.4 – Spectres de réflectance mesurés pour le BaF₂ pour des températures de 295K, 373K, 473K, 573K, 673K et 773K.

La figure (2.4) montre les spectres de réflectance obtenus pour le BaF₂. Comme pour le CaF₂, nous observons des oscillations à basse température en raison de processus multi-

phonons. S.K. Andersson et collaborateurs [And88] ont considéré des processus d'interaction où plus d'un phonon interagissaient avec un seul photon. La contribution de ce processus à l'indice de réfraction induit une correction d'environ 0.1 [And88]. Notons que ce processus analysé par [And88] est différent de celui responsable de l'apparition des oscillations multi-phonons sur la zone de reststrahlen aux figures 2.3 et 2.4 (modification de la relaxation à cause de l'interaction entre un photon et un ou plusieurs phonons à cause de l'existence du réseau cristallin du matériau).

A partir des spectres, différentes méthodes existent pour obtenir la constante diélectrique complexe ($\epsilon(\omega)$). Nous décrivons dans la section suivante quelques unes de ces méthodes.

2.2 Différentes méthodes d'extrapolation de $\epsilon(\omega)$ à partir de mesures expérimentales de réflectance.

Dans cette section nous discuterons, brièvement, des méthodes usuellement utilisées pour déterminer la constante diélectrique complexe des matériaux à partir des spectres de réflectance.

Pour des matériaux semi-transparents il est possible de faire deux mesures différentes : la réflectance et la transmittance. A partir de ces mesures, on peut remonter aux parties réelle et imaginaire de la constante diélectrique pour toutes les fréquences étudiées expérimentalement.

La zone de reststrahlen, qui nous intéresse dans cette thèse, est caractérisée par une forte réflectivité (proche de 100%) et une forte atténuation de l'onde électromagnétique à l'intérieur du matériau. Dans cette région il n'y a donc plus de transmission et la remontée vers la constante diélectrique complexe ne se fait pas directement. Différentes méthodes sont utilisées pour surmonter le fait de ne mesurer expérimentalement qu'une seule grandeur (réflectance), fondées soit sur les relations de Kramers-Kronig, soit sur des méthodes d'ajustement à priori.

2.2.1 Méthodes utilisant les relations de Kramers-Kronig

Une méthode consiste à partir du spectre du coefficient de réflexion pour évaluer la phase à la réflexion pour une relation du type Kramers-Kronig. Le coefficient complexe de réflexion $r(\omega) = \sigma(\omega)e^{i\theta(\omega)}$ (où θ est la phase acquise par l'onde électromagnétique lors de la réflexion) peut s'écrire en fonction de l'indice de réfraction complexe $n = n' + ik$:

$$r(\omega) = \frac{n - 1}{n + 1} = \frac{n' - 1 + ik}{n' + 1 + ik} \quad (2.1)$$

On peut donc écrire n' et k à partir de $\sigma(\omega)$ et $\theta(\omega)$ comme étant :

$$n' = \frac{1 - \sigma^2}{1 + \sigma^2 - 2\sigma\cos(\theta)} \quad (2.2)$$

$$k = \frac{2\sigma\sin(\theta)}{1 + \sigma^2 - 2\sigma\cos(\theta)} \quad (2.3)$$

(NB : pour alléger l'écriture dans 2.2 et 2.3, la dépendance en ω des différentes grandeurs n'a pas été écrite). La grandeur $\sigma(\omega)$ peut être obtenue directement à l'aide de la mesure de la réflectance ($R(\omega)$, ceci est vrai dans la zone de reststrahlen car l'onde électromagnétique est très atténuée dans le matériau de sorte que la réflectance est donnée par la réflectivité de la surface). $\sigma(\omega) = \sqrt{R(\omega)}$. Il reste à déterminer la grandeur $\theta(\omega)$. Pour cela, nous avons besoin d'une seconde équation. On peut alors utiliser les relations de Kramers-Kronig qui établissent une relation entre les parties réelles et les parties imaginaires des grandeurs optiques. Ainsi on a [Sou04] :

$$\theta(\omega) = -\frac{1}{2\pi}P \int_0^\infty \ln \left| \frac{s + \omega}{s - \omega} \right| \frac{d \ln(R(s))}{ds} ds \quad (2.4)$$

où P dénote la partie principale calculée pour le point $s = \omega$ [Sou04]. A partir du spectre de réflectance on est capable, en utilisant la relation de Kramers-Kronig, de remonter aux valeurs de $n(\omega)$ et $k(\omega)$ et, à partir de celles-ci, d'obtenir la constante diélectrique complexe $\epsilon = \epsilon_1 + i\epsilon_2 = n^2$ en utilisant :

$$\epsilon_1 = n'^2 - k^2 \quad (2.5)$$

$$\epsilon_2 = 2n'k \quad (2.6)$$

La limitation de cette technique est que pour calculer $\theta(\omega)$ correctement via l'équation (2.4), il faut disposer de la réflectance sur tout le spectre électromagnétique, ce qui n'est pas le cas. La connaissance de la réflectance sur une partie seulement du spectre, induit des erreurs sur les valeurs calculées de la constante diélectrique complexe. Une autre méthode doit donc être envisagée.

2.2.2 Modèles classiques pour la constante diélectrique

Une autre approche utilisée pour obtenir la constante diélectrique est de l'écrire à partir d'une forme théorique avec des paramètres qui peuvent être ajustés pour reproduire le spectre expérimental de réflectance. Ce genre d'approche a pour avantage de ne nécessiter la connaissance du spectre de réflexion que dans la région d'intérêt et, surtout, de donner des informations sur les processus physiques de l'interaction champ électromagnétique/matière.

Nous sommes intéressés ici par des modifications induites sur la constante diélectrique par la présence de modes de phonons optiques. Pour des matériaux ioniques comme le CaF_2 , le BaF_2 et le saphir, de tels modes ont pour origine la vibration entre deux ions différents de la même cellule unitaire du réseau cristallin (qui forment ainsi un dipôle électrique) induite par des ondes électromagnétiques ayant des vecteurs d'onde beaucoup plus petits que la zone de Brillouin. Ceci revient à dire que la longueur d'onde électromagnétique est beaucoup plus grande que la distance entre les deux ions du dipôle et que l'on peut considérer que le champ est constant sur les deux ions [Mil74]. Dans ce cas, on peut écrire une équation du mouvement pour la variable « distance entre les deux ions », \vec{u} :

$$\ddot{\vec{u}} + \omega_{TO}^2 \vec{u} + i\gamma \dot{\vec{u}} = \frac{e^*}{\mu} \vec{E} \quad (2.7)$$

où ω_{TO} est la fréquence du phonon transverse optique du cristal, γ est une constante d'amortissement de la vibration, e^* est la charge effective des ions dans la cellule unitaire et μ est la masse réduite des ions de la cellule unitaire. La solution de l'équation (2.7) est :

$$\vec{u} = \frac{e^*}{\mu} \frac{1}{\omega_{TO}^2 - \omega^2 + i\gamma\omega} \vec{E} \quad (2.8)$$

Le moment du dipôle électrique par unité de volume induit par le champ est alors :

$$\vec{P} = ne^* \vec{u} = \frac{ne^*}{\mu} \frac{1}{\omega_{TO}^2 - \omega^2 + i\gamma\omega} \vec{E} \quad (2.9)$$

avec n le nombre de cellules unitaires par unité de volume. En considérant que $\vec{D} = \vec{E} + 4\pi\vec{P} = \epsilon(\omega)\vec{E}$ et qu'il y a une contribution à la constante diélectrique due à d'autres sources de polarisation que le mouvement du réseau, on peut écrire [Mil74] :

$$\epsilon(\omega) = \epsilon_\infty + \sum_j \frac{\Omega_j^2 \omega_{TO,j}^2}{\omega_{TO,j}^2 - \omega^2 + i\gamma_j \omega} \quad (2.10)$$

où l'indice j inclut une sommation sur différents modes transverses optiques et $\Omega_j^2 = 4\pi ne^* / \mu$. Sur ce modèle, dit à 3 paramètres (3P, les paramètres sont Ω_j , $\omega_{TO,j}$ et γ_j), il est implicite que

les fréquences des modes transverses optique (ω_{TO}) et longitudinaux optique (ω_{LO}) (pour laquelle $\epsilon(\omega_{LO}) = 0$) obéissent à la relation $\prod_j \frac{\omega_{LO,j}}{\omega_{TO,j}} = \sqrt{\frac{\epsilon_0}{\epsilon_\infty}}$ connue comme relation de Lyddane-Sachs-Teller [Mil74], où ϵ_0 est la constante diélectrique statique. Ce modèle implique aussi que les amortissements des modes optiques transverses et longitudinaux soient identiques ($\gamma_{TO} = \gamma_{LO}$). Un tel modèle a été largement utilisé dans la littérature, à cause de sa simplicité, notamment dans l'article de W. Kaiser et collaborateurs [Kai62] que nous avons utilisé dans le chapitre I. A la figure (2.5), nous montrons une courbe typique de réflectance obtenue en considérant un seul mode phonon. La réflectance est obtenue à partir de la constante diélectrique en utilisant la relation :

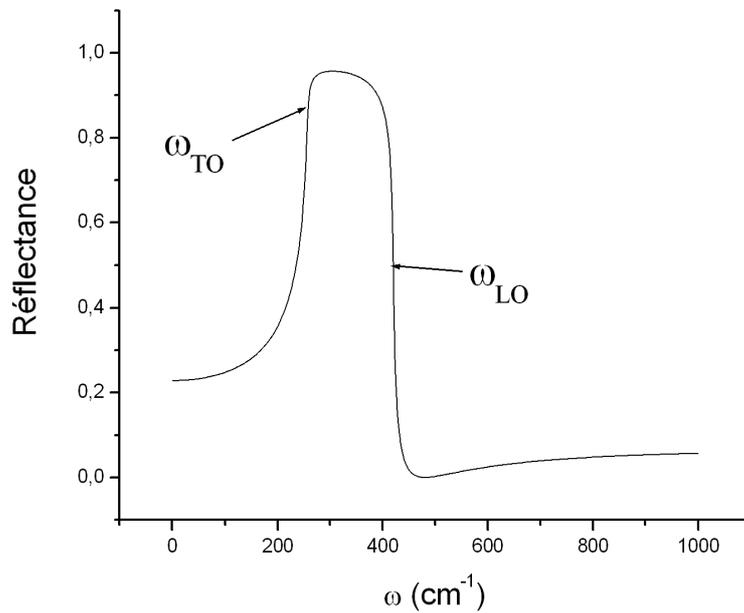


Figure 2.5 – Réflectance obtenue en utilisant le modèle 3P avec $\epsilon_\infty = 3.0$, $\Omega = 3.0$, $\omega_{TO} = 257 \text{ cm}^{-1}$ et $\gamma = 5 \text{ cm}^{-1}$

$$R(\omega) = \rho(\omega) \left[1 + \frac{(1 - \rho(\omega))^2 \tau^2(\omega)}{1 - \rho^2(\omega) \tau^2(\omega)} \right] \quad (2.11)$$

où $\rho(\omega)$ ($= \sigma(\omega)^2$) est la réflectivité de la surface de l'échantillon et $\tau(\omega)$ un facteur de perte de puissance dans le dans l'échantillon. En utilisant la constante diélectrique complexe, on peut écrire :

$$\rho(\omega) = \left| \frac{\sqrt{\epsilon(\omega)} - 1}{\sqrt{\epsilon(\omega)} + 1} \right|^2 \quad (2.12)$$

$$\tau(\omega) = \exp \left[-4\pi \text{Im} \sqrt{\epsilon(\omega)} \omega e \right] \quad (2.13)$$

avec e l'épaisseur de l'échantillon.

Les limites de la bande de reststrahlen (région où la réflectivité est proche de 1) sont données par la résonance du mode transverse optique (limite basse fréquence) et du mode longitudinal optique (limite grande fréquence). Plus exactement les fréquences ω_{TO} et ω_{LO} sont les points où les pentes de la courbe de réflectivité sont maximales. Ces pentes maximales sont imposées par l'amortissement de chaque mode ($\gamma_{T0} = \gamma_{LO}$) [Ger74].

Le modèle classique 3P ne permet d'ajuster que des courbes de réflectance ayant une forme similaire à celle montrée sur la figure (2.5), c'est à dire ayant une largeur limitée (qui dépend de sa position via ω_{TO} et de l'amplitude du mode) et la même pente à petite et à grande fréquence. Si nous voulons ajuster un spectre de réflectance ayant une forme différente, un autre modèle théorique doit être pris en compte. Le modèle à 3 paramètres présente aussi des limitations pour ajuster correctement la zone semi-transparente (non étudiée dans cette thèse).

Dépendance en température des paramètres de phonons

Les propriétés optiques des matériaux changent avec la température. Dans le cas de matériaux isolants, comme les matériaux considérés dans cette thèse, la plus grande contribution à la variation des propriétés optiques est la variation de la densité volumique des phonons et la variation de la polarisabilité avec la température [Tho91]. En tenant compte de cela, nous pouvons réécrire le modèle 3P décrit ci dessus (équation (2.10)), avec des paramètres qui ont une dépendance en température.

$$\epsilon(\omega, T) = \epsilon_{\infty}(T) + \sum_j \frac{\Omega_j(T)\omega_{TO,j}^2(T)}{\omega_{TO,j}^2(T) - \omega^2 + i\gamma_j(T)\omega} \quad (2.14)$$

Des expériences de réflectivité faites par R. Jasperse et collaborateurs [Jas66] sur des surface de LiF et de MgO, ont montré que l'amplitude des modes de phonons (Ω_j) et les fréquences transverses optiques ($\omega_{TO,j}$) de ses modes varient essentiellement de façon linéaire avec la température.

$$\omega_{TO,j}(T) = \omega_{TO,j}(T_0) - a_j(T - T_0) \quad (2.15)$$

$$\Omega_{TO}(T) = \Omega_{TO}(T_0) + b_j(T - T_0) \quad (2.16)$$

où T_0 est une température de référence (usuellement la température ambiante). I.P. Ipatova et collaborateurs [Ipa67] ont poussé plus loin le développement et trouvé, à partir de calculs,

que la largeur des modes de phonons varie de façon quadratique avec la température :

$$\frac{\gamma_j}{\omega_{TO,j}}(T) = \frac{\gamma_j}{\omega_{TO,j}}(T_0) + c_j(T - T_0) + d_j(T - T_0)^2 \quad (2.17)$$

et que la dépendance en température de la constante diélectrique à haute fréquence est considérée comme linéaire :

$$\epsilon_\infty(T) = \epsilon_\infty(T_0) + e_j(T - T_0) \quad (2.18)$$

la connaissance de comment doit évoluer chaque paramètre (amplitude, largeur, fréquence du mode transverse...) nous permet par la suite d'établir des critères pour vérifier la cohérence de nos ajustements et de comparer les valeurs de C_3 obtenues à partir d'une extrapolation de la constante diélectrique, disponible dans la littérature à des températures plus basses, aux valeurs calculées dans ce chapitre utilisant les constantes diélectrique déduites de nos spectres de réflectance.

2.2.3 Modèles semi quantiques pour la constante diélectrique

Le modèle 3P pour la constante diélectrique, dit classique, décrit ci-dessus, considère que pour chaque mode de phonon il y a un taux d'amortissement constant (pas de dépendance en fréquence). Ceci est dû au fait que pour ce modèle, on considère que le dipôle électrique, composé par les deux ions de charges opposées, oscille sous l'effet d'un potentiel harmonique (oscillateur classique). En réalité, l'interaction entre le dipôle et les diverses modes de vibration du réseau rend anharmonique le potentiel auquel le dipôle est soumis. Cette anharmonicité induit un amortissement et un déplacement des résonances dépendants de la fréquence [Sou04]. Nous pouvons modifier le modèle 3P classique pour un modèle qui prend en compte l'anharmonicité du potentiel, dénommé modèle semi-quantique (SQ) :

$$\epsilon(\omega) = \epsilon_\infty + \sum_j \frac{\Omega_j \omega_{TO,j}^2}{\omega_{TO,j}^2 - \omega^2 - 2P_j(\omega)\omega} \quad (2.19)$$

où la fonction $P_j(\omega) = \Delta_j(\omega) + i\Gamma_j(\omega)$ est connue comme la fonction de self énergie, $\Delta_j(\omega)$ représentant le déplacement de la fréquence transverse optique et $\Gamma_j(\omega)$ l'amortissement dépendant de la fréquence. Les avantages de l'utilisation de ce modèle sont :

- La possibilité d'ajuster les courbes de réflectance avec le nombre de modes de phonon prévu théoriquement. Ainsi, la théorie de groupe prévoit l'existence d'un unique mode de phonons [Sch03] pour le CaF_2 . Or, W. Kaiser et collaborateurs [Kai62]

ont dû utiliser deux modes de phonons 3P pour ajuster correctement leurs courbes expérimentales. Nous allons voir dans ce chapitre, qu'en utilisant le modèle SQ, un phonon seul suffit pour l'ajustement, comme prévu théoriquement.

- Les ajustement faits avec les paramètres classiques prévoient correctement les spectres de réflectance et transmittance dans la bande de reststrahlen. Par contre, dans la zone de semi-transparence (zone non-mesurée dans cette thèse), les modèles classiques prévoient des indices d'extinction (partie imaginaire de l'indice de réfraction complexe) bien plus grands que ceux mesurés expérimentalement (la transmittance est plus petite), alors que le modèle SQ prévoit les valeurs correctes [Sou04].
- À travers la fonction de self énergie obtenue de l'ajustement en utilisant le modèle SQ, il est possible d'avoir des informations sur la densité d'états de phonons du matériau [Sou04].

De nombreuses formes fonctionnelles ont été proposées pour décrire la fonction de self énergie (voir par exemple [Ger74]). Dans cette thèse, nous utiliserons l'approche développée dans [Sou04] qui consiste à écrire $P_j(\omega)$ sous la forme générale d'une somme de fonctions « piquées ». On écrit ainsi :

$$P_j(\omega) = \sum_k \tilde{g}_k^{(j)}(\omega) + i g_k^{(j)}(\omega) \quad (2.20)$$

avec $g_k^{(j)}(\omega)$ la somme symétrisée de deux fonctions gaussiennes de façon à avoir une fonction impaire nécessaire pour assurer la causalité, et à ce que la transformée de Fourier de $P_j(\omega)$ soit réelle [Kee01] :

$$g_k^{(j)}(\omega) = A_k^{(j)} \exp\left(-\frac{4 \ln(2)(\omega - \omega_k^{(j)})^2}{\gamma_k^{2,(j)}}\right) - A_k^{(j)} \exp\left(-\frac{4 \ln(2)(\omega + \omega_k^{(j)})^2}{\gamma_k^{2,(j)}}\right) \quad (2.21)$$

et $\tilde{g}_k^{(j)}(\omega)$ est donné par la transformation de Kramers-Kronig de $g_k^{(j)}(\omega)$:

$$\tilde{g}_k^{(j)}(\omega) = \frac{2A_k^{(j)}}{\sqrt{\pi}} \left[D\left(2\sqrt{\ln(2)} \frac{\omega + \omega_k^{(j)}}{\gamma_k^{(j)}}\right) - D\left(2\sqrt{\ln(2)} \frac{\omega - \omega_k^{(j)}}{\gamma_k^{(j)}}\right) \right] \quad (2.22)$$

où $D(x) = \exp(x^2) \int_0^x \exp(-t^2) dt$ est la fonction de Dawson.

2.3 Ajustement des courbes de réflectance en utilisant les modèles théoriques

Pour ajuster nos courbes nous utiliserons les équations (2.11,2.12 et 2.13) pour pouvoir calculer la réflectance théorique à partir de la constante diélectrique complexe. Ces équations

supposent que l'expérience se fait sur une configuration du type vide/échantillon/vide en prenant en compte des réflexions multiples sur les parois. Or nous avons dans l'expérience une configuration vide/échantillon/plaque chauffante. Ceci n'empêche pas d'utiliser les équations (2.11, 2.12 et 2.13) car nous nous intéressons principalement à une région spectrale où $\tau \rightarrow 0$, c'est à dire où il y a une grande absorption, et où la lumière n'arrive pas à l'interface échantillon/plaque chauffante. Dans ce cas l'équation (2.11) peut s'écrire $R(\omega) = \rho(\omega)$.

2.3.1 Ajustement avec le modèle 3P

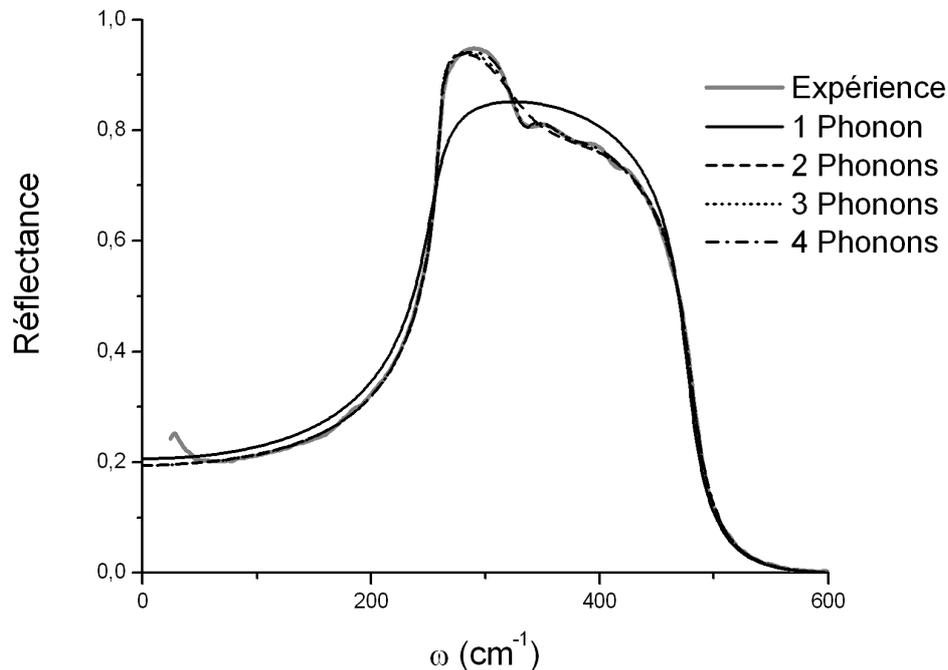


Figure 2.6 – Ajustement de la courbe de réflectance pour le CaF_2 à 295K obtenue avec un modèle 3P en considérant différents nombres de modes de phonons.

Dans un premier temps nous allons montrer quelques résultats d'ajustement en utilisant le modèle 3P (équation (2.10)). Nous avons cherché à ajuster la courbe de réflectance du CaF_2 à 295K car c'est celle qui présente le plus d'oscillations multiphonons. Selon la théorie des groupes, seulement un mode de phonon triplement dégénéré est concerné par l'activité infrarouge [Gan65]. Nous avons donc cherché à ajuster la courbe de réflectance avec un seul phonon. Nous voyons sur la figure (2.6) que l'ajustement avec un seul phonon n'est pas du tout satisfaisant. En augmentant le nombre de phonons, il est possible de mieux ajuster la courbe (voir figure (2.6)), par simple augmentation du nombre de paramètres libres, au

détriment d'une signification physiquement acceptable du nombre de modes de phonons. Il faut noter en particulier qu'en utilisant deux phonons (comme il est fait souvent dans la littérature [Kai62],[Den70]), les oscillations sur la bande reststrahlen ne peuvent pas être reproduites.

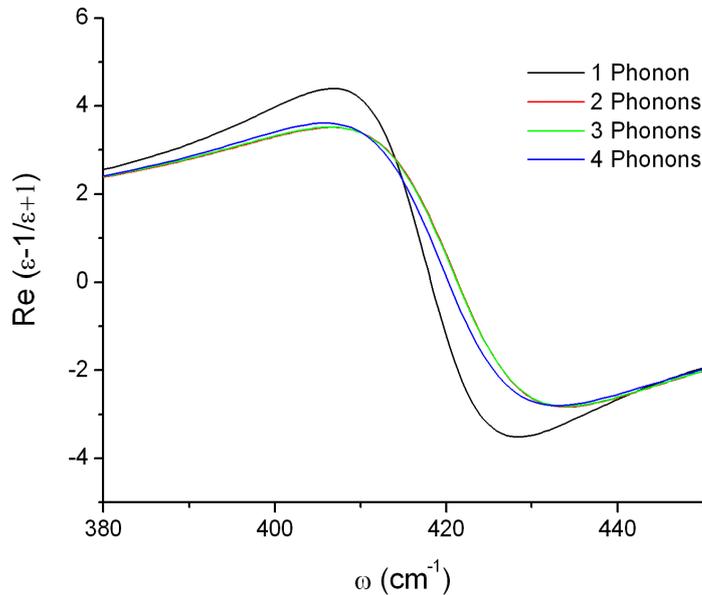


Figure 2.7 – Partie réelle de la fonction de surface ($S(\omega)$) pour le CaF_2 à 295K obtenue avec un modèle 3P en considérant différents nombres de modes de phonon.

A la figure (2.7), nous montrons la partie réelle de la réponse de surface ($S(\omega) = \frac{\epsilon-1}{\epsilon+1}$), en considérant des nombres variables de phonons. Nous observons que, pour les ajustements utilisant deux modes de phonons au moins, la valeur de $Re(S(\omega))$ ne change pas beaucoup. Ceci est dû au fait que quand nous ajustons la courbe avec plus d'un mode de phonon, nous obtenons un mode principal, plus d'autres modes d'amplitudes bien plus petites. Ces autres modes font des corrections sur la courbe de réflectance. Le mode principal est donné par l'endroit où la pente de la réflectance est maximale (fréquence transverse optique), du côté basse fréquence de la bande de reststrahlen (fréquence transverse optique), et varie peu quand on ajoute d'autres modes de phonons.

En utilisant ce modèle nous devons ajouter des modes de phonons non physiques. Nous allons donc préférer utiliser le modèle SQ qui nous permet d'ajuster les spectres avec un seul phonon.

2.3.2 Ajustement des spectres de réflectance avec le modèle SQ

Nous allons dans cette section discuter des ajustements effectués avec le modèle SQ, qui nous permettent d'obtenir les constantes diélectriques des trois matériaux étudiés ici (CaF_2 , BaF_2 et Saphir). Nous pourrions, ensuite, réévaluer la dépendance en température du coefficient de vdW, C_3 . Les procédures d'ajustement doivent tenir compte de quelques facteurs :

- Le nombre de modes de phonons prévu par la théorie. Nous n'utiliserons qu'un seul mode de phonon pour ajuster les courbes de réflectance pour le BaF_2 et pour le CaF_2 et quatre modes de phonons pour les courbes de réflectance Saphir.
- La fonction de self-énergie dans le modèle SQ est une fonction complexe écrite sous la forme d'une somme de fonctions gaussiennes généralisées, le nombre de termes dans la somme n'étant pas fixé a priori. Il est toujours possible de mieux reproduire la courbe expérimentale en augmentant le nombre de termes de la self-énergie grâce à un plus grand nombre de paramètres libres. Des critères doivent être établis pour vérifier que l'expression obtenue pour la self-énergie est acceptable physiquement.
 1. Nous vérifions que les différentes gaussiennes généralisées de la self-énergie correspondante ne prennent pas des valeurs physiquement inacceptables : paramètres (position, largeur ou amplitude) négatifs ; position centrale très éloignée de la bande de reststrahlen ; largeur beaucoup plus grande que la position centrale.
 2. Nous utilisons les spectres de réflectance à 22°C , présentant le plus de structures multiphonons visibles, pour définir le nombre de termes dans la self-énergie en l'ajustant bien. Nous gardons le même nombre de termes pour les spectres à plus hautes températures.
 3. L'évolution de la self-énergie avec l'augmentation de la température doit être douce et dans le sens d'une augmentation et d'un élargissement de Δ et de Γ .
 4. Pour faciliter la bonne convergence par rapport au critère ci-dessus nous utilisons toujours les paramètres obtenus pour une température plus basse comme point de départ de l'ajustement d'une température donnée.
- Nous comparons les valeurs de ϵ_0 obtenues par l'ajustement aux valeurs connues dans la littérature. Nous comparons aussi nos valeurs de coefficient d'absorption

(données par $4\pi\omega Im(\sqrt{\epsilon})$) à des mesures d'absorption (transmission) existantes dans la littérature.

- Nous vérifions l'évolution avec la température de la position et de la largeur de la résonance de la constante diélectrique. Celles-ci doivent suivre le comportement décrit à la section 2.2.2 : linéaire pour la position et quadratique pour la largeur.

Pour la procédure d'ajustement des courbes, nous avons utilisé le logiciel Focus [Foc], programme d'ajustement de courbes, développé par D.S. Meneses au CEMHTI d'Orléans, et disponible gratuitement sur internet pour des fins non commerciales.

2.3.2.1 CaF_2

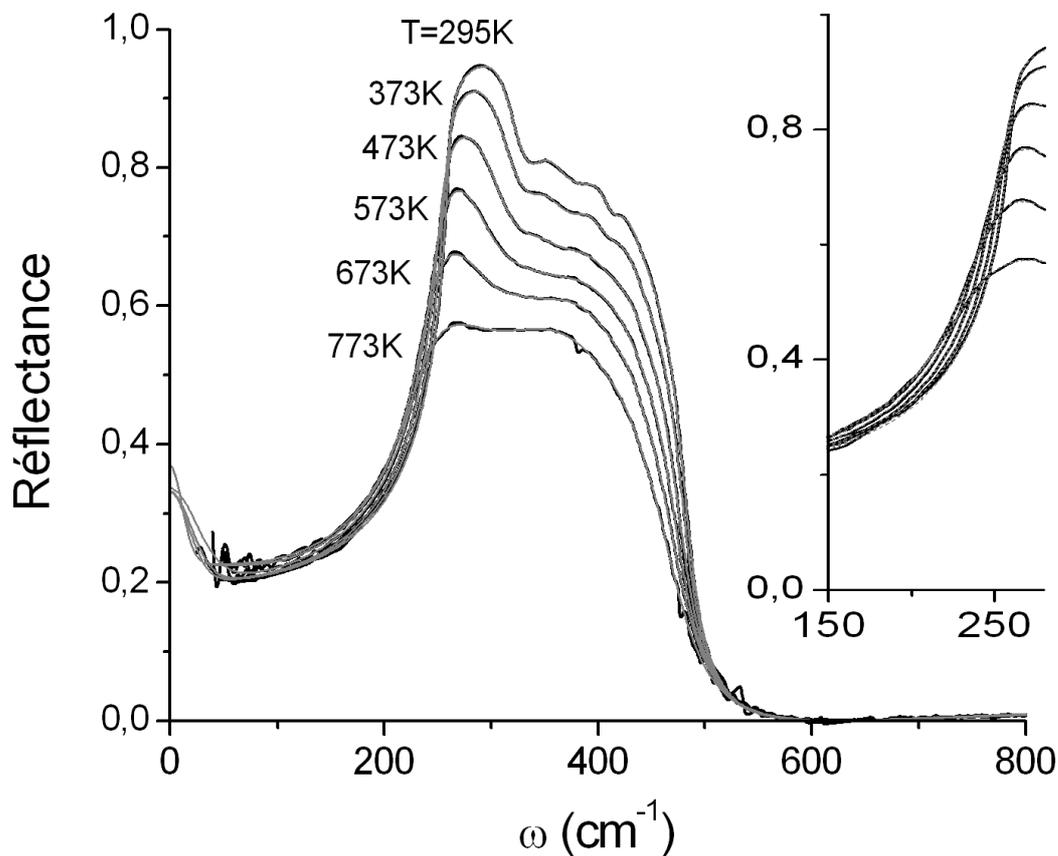


Figure 2.8 – Spectres de réflectance pour le CaF_2 avec les meilleurs ajustements obtenus en utilisant le modèle SQ. Les paramètres utilisés pour les ajustements sont donnés sur le tableau (2.1).

Comme mentionné ci-dessus nous utilisons un seul mode de phonon, en commençant

l'ajustement par la courbe à température ambiante. Les positions des gaussiennes généralisées ainsi que leur amplitudes et largeurs sont données par les creux de la courbe de réflectance. A la figure (2.8) nous montrons les meilleurs ajustements pour le CaF_2 en tenant compte des critères et procédures décrites. Le tableau (2.1) montre les valeurs des paramètres utilisés pour l'ajustement. L'ajustement a été fait en utilisant 7 gaussiennes généralisées dans la self-énergie. Nous allons discuter par la suite des différents critères utilisés pour valider nos ajustements.

| Temperature (K) | 295 | 373 | 473 | 573 | 673 | 773 |
|--------------------------------------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|
| Paramètres pour l'unique mode phonon | | | | | | |
| ϵ_∞ | 2.02 | 2.019 | 2.07 | 2.11 | 2.1 | 2.16 |
| Ω_1 | 4.18 | 4.04 | 3.95 | 3.89 | 3.83 | 3.67 |
| $\omega_{T0,1}(\text{ cm}^{-1})$ | 272.74 | 278.17 | 283.63 | 288.71 | 291.76 | 299.23 |
| Self-énergie | | | | | | |
| $A_1^{(1)}(\text{ cm}^{-1})$ | 8.65 | 10.15 | 4.77 | 7.67 | 10.88 | 9.25 |
| $\omega_1^{(1)}(\text{ cm}^{-1})$ | 54.67 | 54.5 | 54.5 | 54.5 | 54.5 | 54.5 |
| $\gamma_1^{(1)}(\text{ cm}^{-1})$ | 260.19 | 245.23 | 214.99 | 189.55 | 167.09 | 179.98 |
| $A_2^{(1)}(\text{ cm}^{-1})$ | 8.65 | 10.15 | 4.77 | 7.67 | 10.88 | 9.25 |
| $\omega_2^{(1)}(\text{ cm}^{-1})$ | 332.74 | 328.92 | 319.06 | 307.51 | 307.47 | 289.43 |
| $\gamma_2^{(1)}(\text{ cm}^{-1})$ | 31.34 | 38.81 | 39.26 | 51.86 | 67.18 | 87.66 |
| $A_3^{(1)}(\text{ cm}^{-1})$ | 11.14 | 12.60 | 14.44 | 10.27 | 6.66 | 4.07 |
| $\omega_3^{(1)}(\text{ cm}^{-1})$ | 370.78 | 370.35 | 357.47 | 345.84 | 352.88 | 352.24 |
| $\gamma_3^{(1)}(\text{ cm}^{-1})$ | 58.39 | 54.58 | 89.84 | 65.17 | 56.51 | 79.67 |
| $A_4^{(1)}(\text{ cm}^{-1})$ | 8.65 | 10.15 | 4.77 | 7.67 | 10.88 | 9.25 |
| $\omega_4^{(1)}(\text{ cm}^{-1})$ | 332.74 | 328.92 | 319.06 | 307.51 | 307.47 | 289.43 |
| $\gamma_4^{(1)}(\text{ cm}^{-1})$ | 31.34 | 38.81 | 39.26 | 51.86 | 67.18 | 87.66 |
| $A_5^{(1)}(\text{ cm}^{-1})$ | 2.33 | 3.04 | 1.00 | 6.08 | 3.73 | 1.74 |
| $\omega_5^{(1)}(\text{ cm}^{-1})$ | 413.56 | 408.84 | 408.99 | 397.19 | 398.97 | 398.97 |
| $\gamma_5^{(1)}(\text{ cm}^{-1})$ | 18.61 | 25.91 | 27.16 | 77.05 | 60.76 | 55.25 |
| $A_6^{(1)}(\text{ cm}^{-1})$ | 12.95 | 8.22 | 5.81 | 0.97 | 0.31 | 0.13 |
| $\omega_6^{(1)}(\text{ cm}^{-1})$ | 448.59 | 440.50 | 441.07 | 443.51 | 443.78 | 443.78 |
| $\gamma_6^{(1)}(\text{ cm}^{-1})$ | 104.74 | 74.79 | 80.31 | 32.76 | 9.86 | 6.3 |
| $A_7^{(1)}(\text{ cm}^{-1})$ | 9.94 | 23.14 | 29.56 | 38.64 | 46.1 | 51.45 |
| $\omega_7^{(1)}(\text{ cm}^{-1})$ | 640.11 | 619.10 | 625.31 | 618.89 | 620.18 | 621.83 |
| $\gamma_7^{(1)}(\text{ cm}^{-1})$ | 483.71 | 436.71 | 492.69 | 537.70 | 602.62 | 690.66 |

Table 2.1 – Paramètres obtenus pour les meilleurs ajustements des courbes de réflectance pour le CaF_2 .

Évolution des Self-énergies Avoir une évolution linéaire en température de chaque paramètre des gaussiennes généralisées n'est pas possible. Ceci est dû au fait que les oscillations

s'élargissent avec la température en diminuant le nombre d'oscillations de façon à ce que les différents termes de la self énergie se mélangent entre eux. Cependant, ce qui est important est que la fonction totale de self énergie évolue de façon cohérente, avec une augmentation des amplitudes et un élargissement avec la température. Nous observons une évolution raisonnable de la self énergie (figure (2.9)).

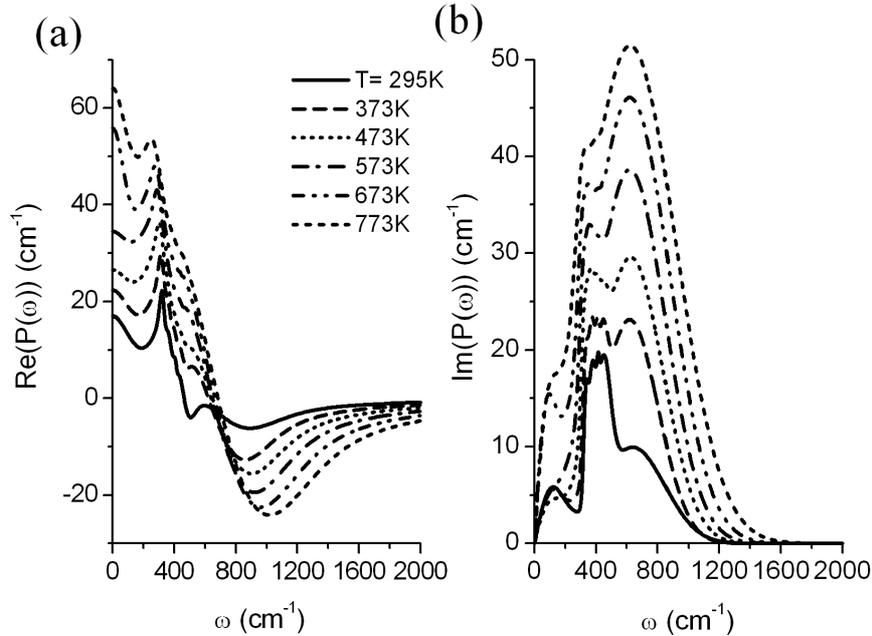


Figure 2.9 – Évolution de la fonction de self-énergie $P(\omega)$ avec la température pour le CaF_2 . (a) évolution du déplacement de la résonance ($\text{Re}(P(\omega))$); (b) évolution de l'amortissement ($\text{Im}(P(\omega))$).

Nous observons que pour la partie réelle de la self énergie (correspondant à un déplacement de la fréquence de résonance) la valeur du pic augmente avec la température et la structure s'élargit. Pour la partie imaginaire de la self énergie (correspondant à l'amortissement de la résonance), nous notons une augmentation de la taille des pics (plus d'amortissement) ainsi qu'un élargissement avec la température. Notons l'existence d'une structure avec plusieurs pics à 295K qui s'élargissent et disparaissent pour des températures plus élevées, correspondant aux oscillations observées en réflectance sur la bande de reststrahlen.

Évolution de la résonance de volume de la constante diélectrique A la figure (2.10), nous montrons l'évolution de la constante diélectrique du CaF_2 avec la température.

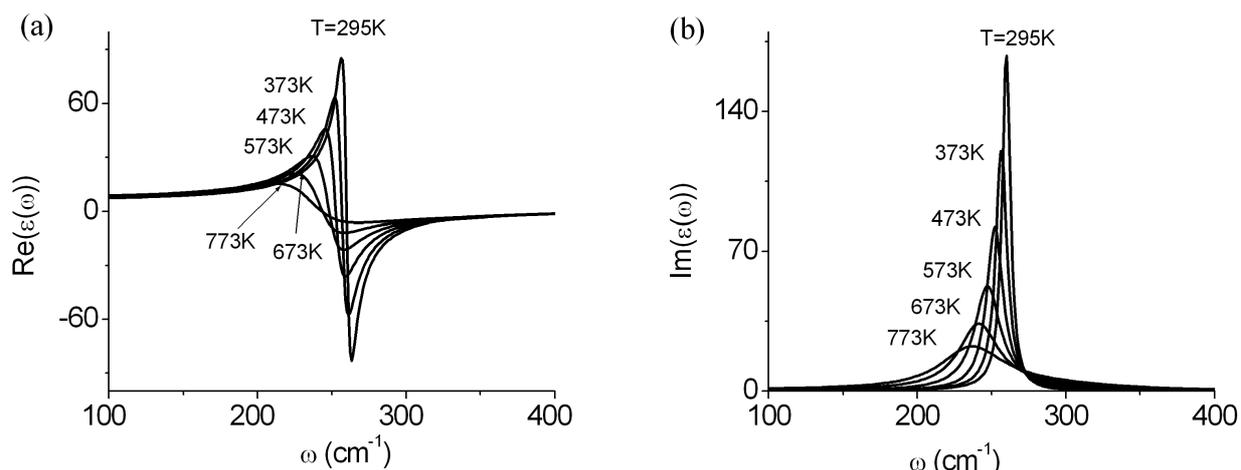


Figure 2.10 – Évolution de la partie réelle (a) et de la partie imaginaire (b) de la constante diélectrique $\epsilon(\omega)$ avec la température, obtenue à partir de l'ajustement des courbes de réflectance pour le CaF_2 .

Nous observons clairement un déplacement du mode de phonon vers les basses fréquences ainsi que son élargissement. Ceci paraît contradictoire avec l'évolution du paramètre $\omega_{TO,1}$ qui augmente avec la température (voir tableau 2.1). L'augmentation de ce paramètre avec

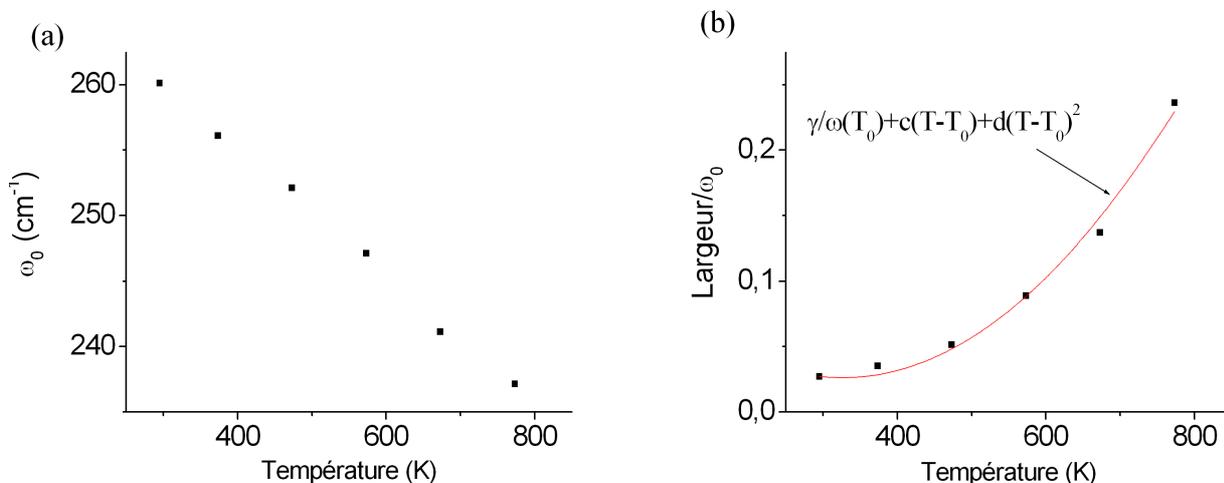


Figure 2.11 – Évolution de la fréquence de résonance (maximum de $\text{Im}(\epsilon)$) (a) et du rapport entre la largeur et position du mode de phonon (écart entre le maximum et minimum de $\text{Re}(\epsilon)$) (b) pour le CaF_2 en fonction de la température.

la température est en fait compensée par l'augmentation de la partie réelle de la self-énergie, de sorte que la position de la résonance évolue vers les basses fréquences. La figure (2.11) montre l'évolution de la fréquence de résonance du mode de phonon (défini par le maximum de $\text{Im}(\epsilon)$) et le rapport entre la largeur du mode (définie par la différence du maximum et

minimum de $Re(\epsilon)$ et la position de la résonance. Nous notons un comportement linéaire de la position de résonance et un changement quadratique du rapport de la largeur par la position de la résonance, conformément à ce qui est attendu théoriquement (voir la sous-section 2.2.2).

Changement de ϵ_0 avec la température La figure (2.12), montre l'évolution de ϵ_0 avec la température, les valeurs varient de 6.83 à température ambiante à 8.6 à 773K. Ces valeurs sont un peu plus hautes que les valeurs connues de $\epsilon_0 = 6.63$ à température ambiante dans la littérature [Bez91].

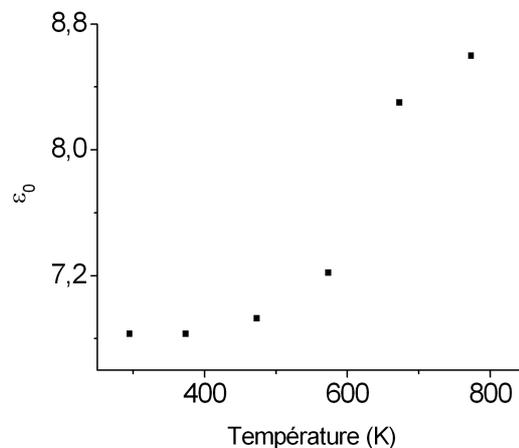


Figure 2.12 – Évolution de la constante diélectrique statique (ϵ_0) avec la température pour le CaF_2 .

Comparaison des coefficients d'absorption avec les données disponibles dans la littérature Nous comparons les valeurs du coefficient d'absorption ($\alpha = 4\pi\sqrt{Im(\epsilon)}\omega$) déduites de notre modélisation dans la région semi transparente avec les valeurs déduites de mesures de transmittance de la littérature ([Tho91]). La figure (2.13), montre les valeurs de α pour des nombres d'onde allant de 1050 cm^{-1} à 1300 cm^{-1} . Nous obtenons le même comportement (loi de puissance) que dans ([Tho91]), mais avec des valeurs un peu différentes. Ceci n'est pas contradictoire car les valeurs de constantes correspondent à un ajustement limité à la bande de reststrahlen, puisque dans la région semi-transparente, nos données expérimentales sont affectées par l'émission thermique de la plaque qui chauffe l'échantillon.

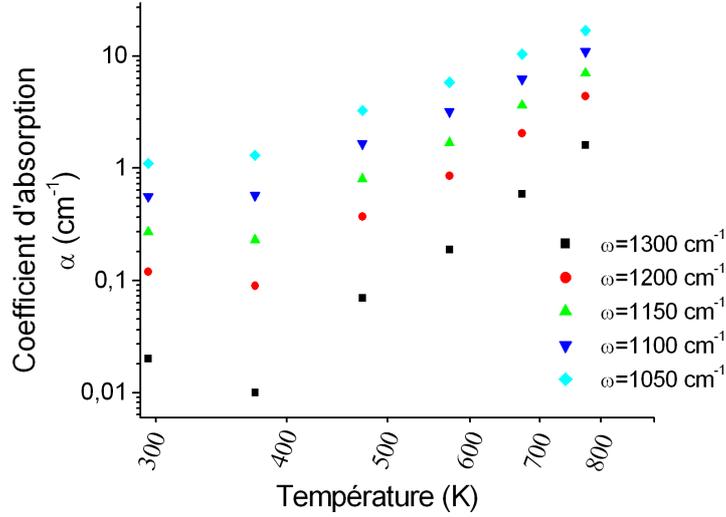


Figure 2.13 – Évolution avec la température du coefficient d'absorption ($\alpha = 4\pi\sqrt{\text{Im}(\epsilon)}\omega$) à différentes fréquences pour le CaF_2 .

Évolution de la réponse de surface, $S(\omega)$ avec la température. A partir des valeurs de la constante diélectrique obtenues, on peut calculer la réponse de surface $S(\omega) = \frac{\epsilon(\omega)-1}{\epsilon(\omega)+1}$, qui est la grandeur importante pour l'évaluation du coefficient de vdW. La figure (2.14), montre l'évolution de $S(\omega)$ avec la température. Comme la résonance atomique se trouve sur les ailes de la résonance de surface, les valeurs de $\text{Re}(S(\omega))$ et $\text{Im}(S(\omega))$ ne varient pratiquement pas avec la température, malgré un élargissement et une diminution de l'amplitude des modes de polariton. Ainsi, les valeurs de C_3 calculées avec ces nouvelles données ne doivent que peu changer par rapport à celles calculées au chapitre I dans le cas du CaF_2 .

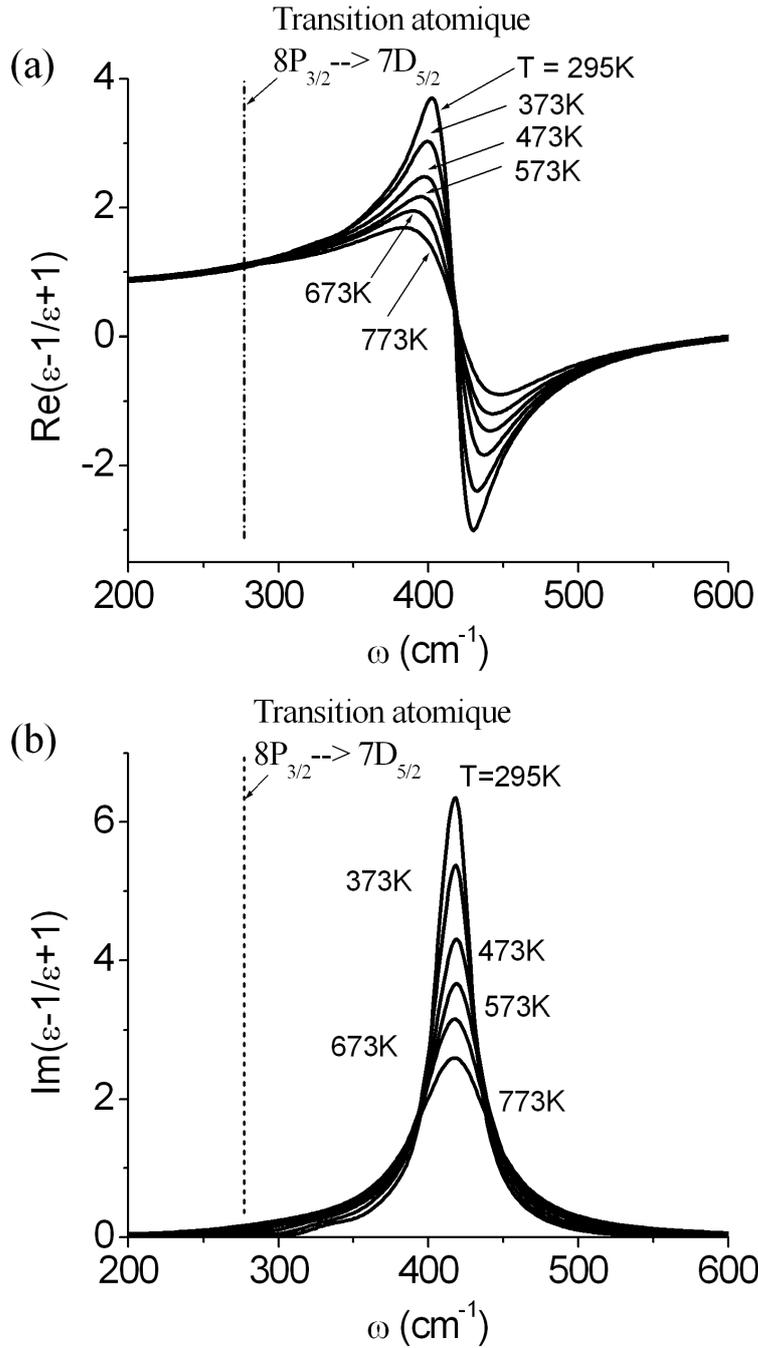


Figure 2.14 – Évolution de la partie réelle (a) et de la partie imaginaire (b) de la fonction de surface $S(\omega)$ avec la température pour le CaF_2 . La position de la transition $8P_{3/2} \rightarrow 7D_{5/2}$, dominante pour l'interaction de vdW pour le $\text{Cs}(8P_{3/2})$, est montrée en pointillé.

2.3.2.2 BaF_2

Nous avons procédé de la même façon pour ajuster les spectres du BaF_2 . A la figure (2.15), nous montrons les courbes de réflectance expérimentales avec le meilleur ajustement pour chaque température. La courbe de réflectance à 295K présentant moins d'oscillations que pour le CaF_2 , il nous est possible de trouver un bon ajustement avec moins de termes

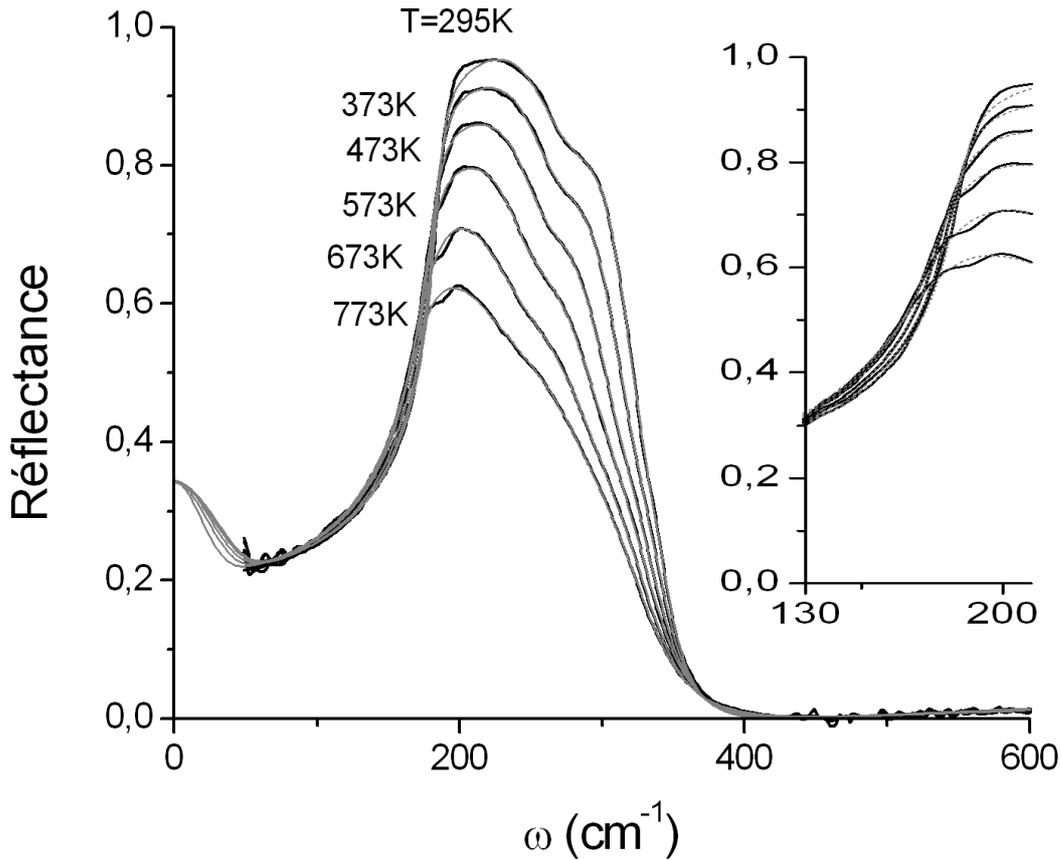


Figure 2.15 – Spectres de réflectance pour le BaF_2 avec les meilleurs ajustements obtenus en utilisant le modèle SQ . Les paramètres utilisés pour les ajustements sont donnés sur le tableau (2.2).

dans la self énergie (quatre gaussiennes généralisées au lieu de sept). Sur le tableau (2.2), nous montrons les valeurs des paramètres utilisés pour ces ajustements.

Évolution de la self-énergie Nous montrons à la figure (2.16), l'évolution de la self-énergie avec la température. Nous voyons clairement, pour la partie réelle comme pour la partie imaginaire, une augmentation de l'amplitude accompagnée d'un élargissement des pics qui entraîne la disparition, à plus haute température, des structures existant sur le spectre de réflectance à 295K.

Évolution de la constante diélectrique A la figure (2.17), nous montrons l'évolution avec la température de la constante diélectrique obtenue à partir des ajustements pour le BaF_2 . La figure (2.18), montre l'évolution de la fréquence de résonance du mode de phonon

| Temperature (K) | 295 | 373 | 473 | 573 | 673 | 773 |
|--------------------------------------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|
| Paramètres pour l'unique mode phonon | | | | | | |
| ϵ_∞ | 2.12 | 2.12 | 2.12 | 2.11 | 2.12 | 2.11 |
| Ω_1 | 4.38 | 4.07 | 3.8 | 3.52 | 3.24 | 2.99 |
| $\omega_{T0,1}$ (cm ⁻¹) | 194.14 | 202.71 | 209.42 | 217.77 | 226.32 | 235.02 |
| Self-énergie | | | | | | |
| $A_1^{(1)}$ (cm ⁻¹) | 5.13 | 3.91 | 2.79 | 2.08 | 1.45 | 0.86 |
| $\omega_1^{(1)}$ (cm ⁻¹) | 132.23 | 131.11 | 124.61 | 133.28 | 128.53 | 123.53 |
| $\gamma_1^{(1)}$ (cm ⁻¹) | 142.04 | 136.54 | 136.08 | 127.26 | 128.34 | 124.56 |
| $A_2^{(1)}$ (cm ⁻¹) | 6.9 | 5.63 | 4.64 | 3.53 | 4.21 | 5.24 |
| $\omega_2^{(1)}$ (cm ⁻¹) | 278.48 | 270.11 | 260.89 | 251.44 | 244.89 | 243.97 |
| $\gamma_2^{(1)}$ (cm ⁻¹) | 48.2 | 40.48 | 35.17 | 33.87 | 46.78 | 72.15 |
| $A_3^{(1)}$ (cm ⁻¹) | 13.84 | 11.23 | 9.91 | 8.09 | 5.42 | 2.67 |
| $\omega_3^{(1)}$ (cm ⁻¹) | 331.79 | 326.13 | 318.63 | 307.50 | 295.39 | 295.89 |
| $\gamma_3^{(1)}$ (cm ⁻¹) | 46.69 | 52.66 | 65.34 | 80.05 | 64.18 | 47.40 |
| $A_4^{(1)}$ (cm ⁻¹) | 14.97 | 28.36 | 37.02 | 48.67 | 57.38 | 64.83 |
| $\omega_4^{(1)}$ (cm ⁻¹) | 520.53 | 501.32 | 494.65 | 491.41 | 480.38 | 481.53 |
| $\gamma_4^{(1)}$ (cm ⁻¹) | 286.4 | 321.43 | 352.42 | 367.86 | 385.52 | 410.35 |

Table 2.2 – Paramètres obtenus pour le meilleur ajustement des courbes de réflectance pour le BaF₂.

($Im(\epsilon) = \text{maximum}$) ainsi que celle de la largeur des modes (différence entre le maximum et le minimum de $Re(\epsilon)$) où nous pouvons observer la variation linéaire de la fréquence de résonance et la variation quadratique avec la largeur comme prévu théoriquement (sous-section 2.2.2).

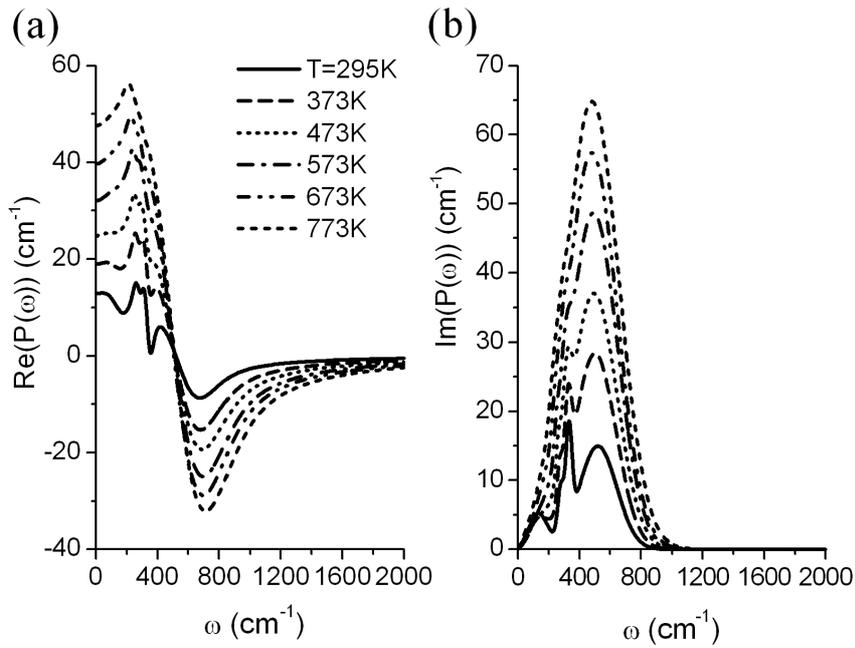


Figure 2.16 – Évolution de la fonction de self-énergie avec la température pour le BaF_2 . (a) évolution du déplacement de la résonance ($Re(P(\omega))$); (b) évolution de l'amortissement ($Im(P(\omega))$).

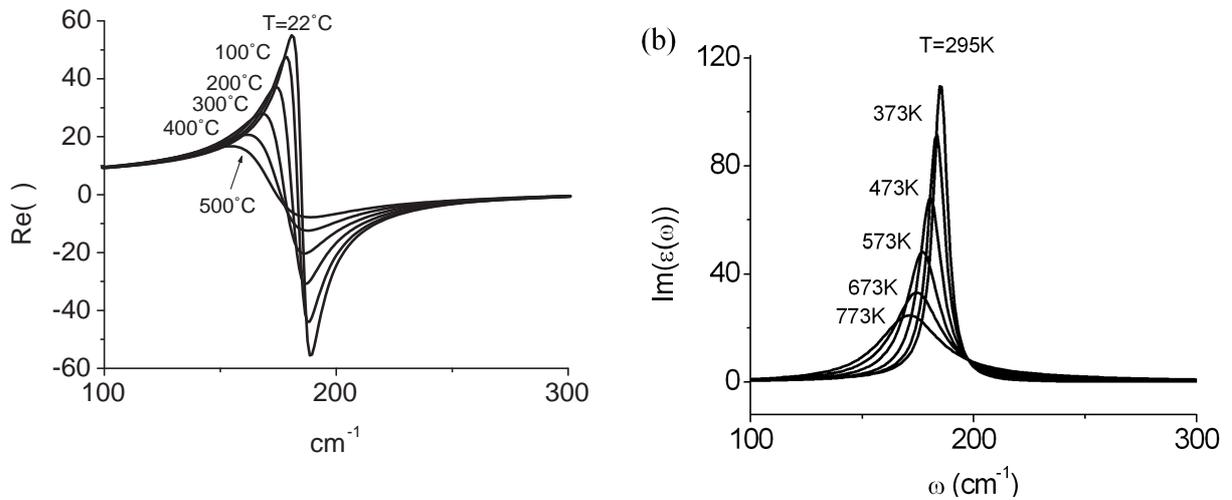


Figure 2.17 – Évolution de la partie réelle (a) et de la partie imaginaire (b) de $\epsilon(\omega)$ avec la température, obtenue à partir de l'ajustement des courbes de réflectance pour le BaF_2 .

Valeurs obtenues pour ϵ_0 Les valeurs pour ϵ_0 obtenues à partir de nos ajustements varient de 7.1 à 7.17, étant en accord avec les valeurs disponibles dans la littérature allant de 6.7 à 7.4 [Tho98].

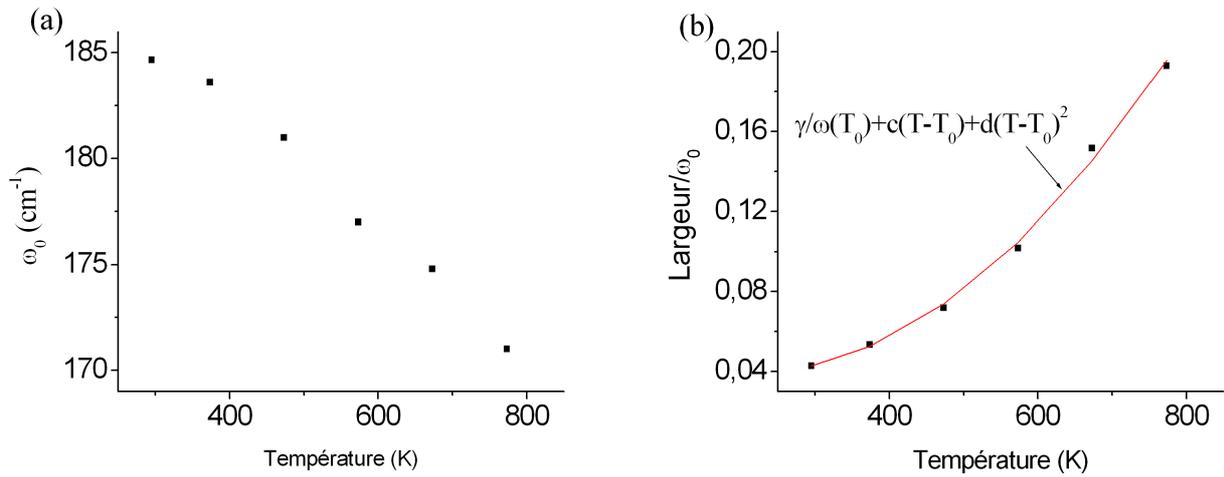


Figure 2.18 – Évolution de la fréquence de résonance (a) et du rapport entre la largeur et position du mode de phonon (b) pour le BaF_2 en fonction de la température.

Comparaison des coefficients d'absorption avec les données de la littérature Les valeurs de coefficient d'absorption ($\alpha = 4\pi\sqrt{\text{Im}(\epsilon)}\omega$) dans la région semi-transparente obtenues ont un comportement en loi de puissance (voir figure (2.19)), avec des valeurs un peu plus petites que celles données dans [Tho91].

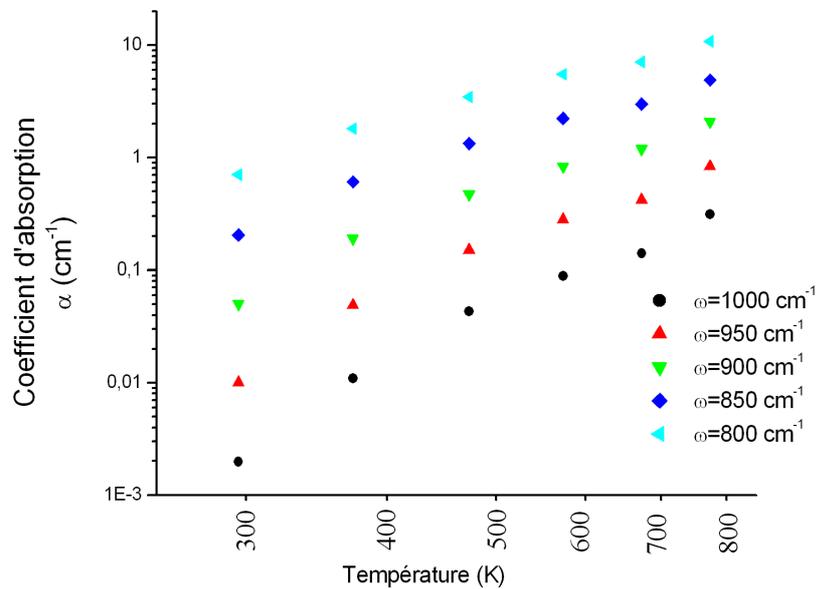


Figure 2.19 – Évolution avec la température du coefficient d'absorption ($\alpha = 4\pi\sqrt{\text{Im}(\epsilon)}\omega$) à différentes fréquences pour le BaF_2 .

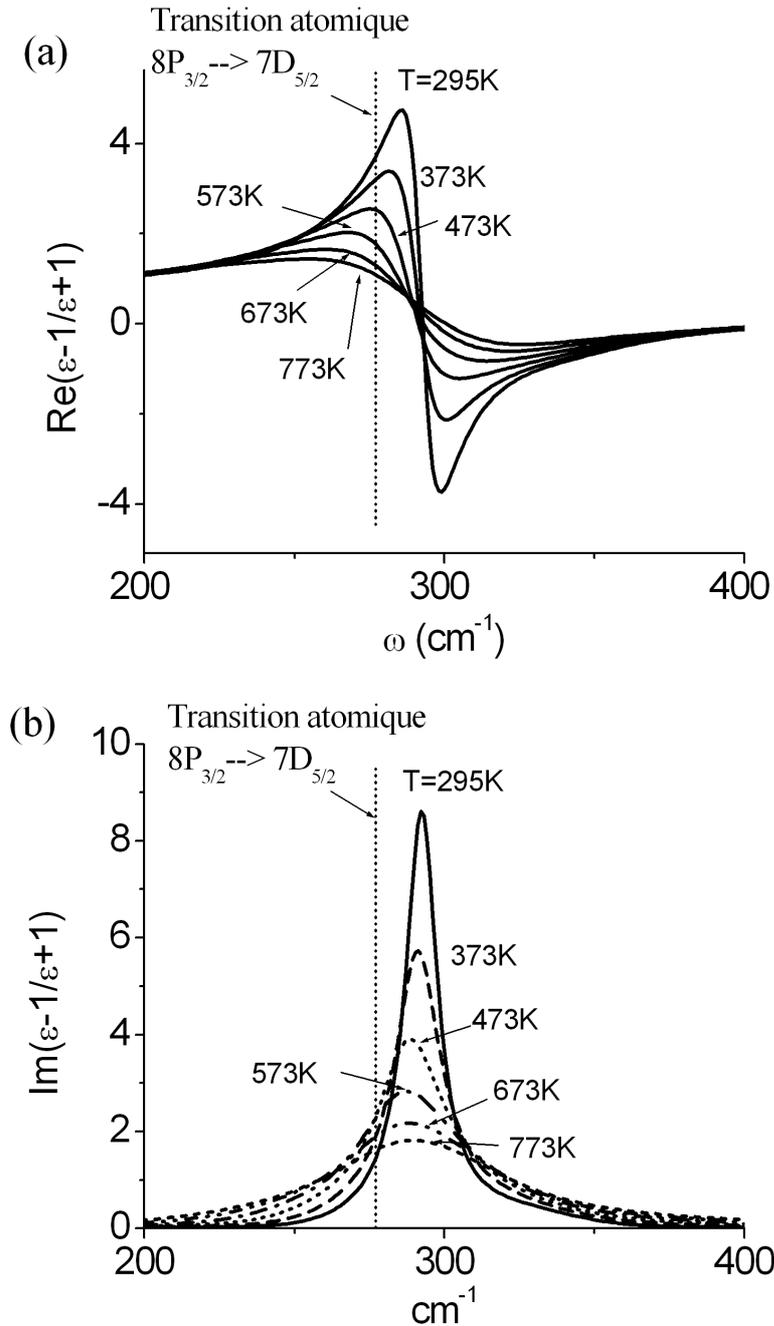


Figure 2.20 – Évolution de la partie réelle (a) et de la partie imaginaire (b) de la fonction de surface $S(\omega)$ avec la température pour le BaF_2 . La position de la transition $8P_{3/2} \rightarrow 7D_{5/2}$, dominante pour l'interaction de vdW pour le $\text{Cs}(8P_{3/2})$, est montrée en pointillé.

Évolution de la réponse de surface, $S(\omega)$ avec la température. La figure (2.20), montre le comportement de la résonance de surface ($S(\omega)$) calculée à partir de la constante diélectrique déduite des ajustements. La figure (2.21), nous montre la position de la résonance de polariton ainsi que sa largeur. La largeur de la résonance de polariton présente une augmentation linéaire mais le déplacement du mode de surface n'est pas monotone, diminuant de

295K à 573K et augmentant après. A cause de l'élargissement, la valeur de $Re(S(\omega))$ pour la fréquence atomique la plus importante pour l'interaction de vdW ($8P_{3/2} \rightarrow 7D_{5/2}$) diminue considérablement avec la température (voir figure (2.22)) diminuant ainsi la contribution du couplage résonnant dans l'interaction de vdW. La valeur de $Im(S(\omega))$ a un comportement à l'opposé de celui de la position de la résonance. La grande variation de $Re(S(\omega))$ calculée pour la fréquence de la transition $8P_{3/2} \rightarrow 7D_{5/2}$ du césium permet de prédire un grand changement pour les valeurs de C_3 calculées à partir de ces déterminations de $S(\omega)$ par rapport à celles trouvées dans le chapitre I.

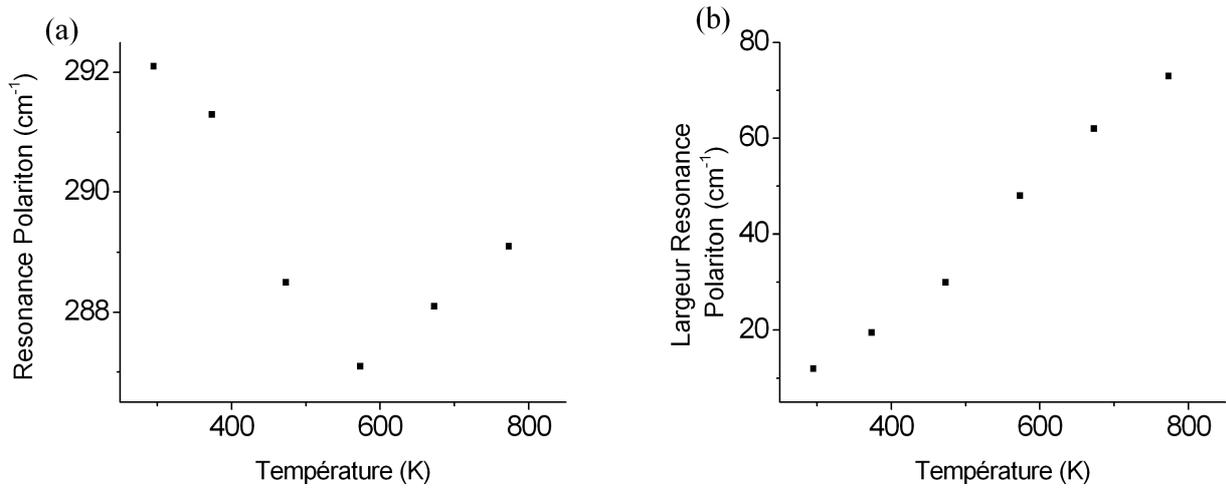


Figure 2.21 – (a) évolution de la fréquence de résonance du polariton de surface; (b) évolution de la largeur de la résonance avec la température pour le BaF₂.

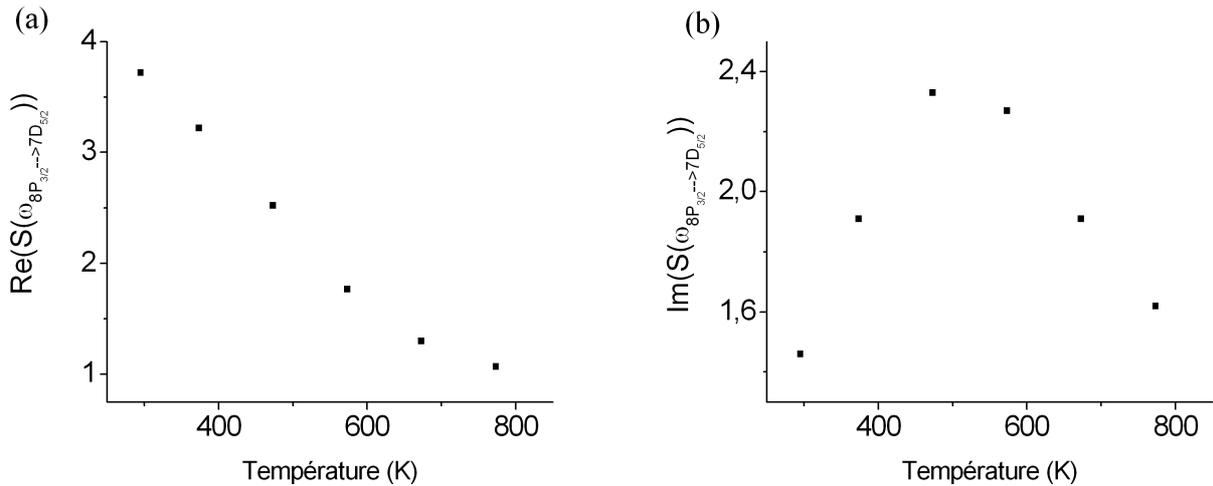


Figure 2.22 – (a) évolution de la valeur de $Re(S(\omega))$; (b) évolution de la valeur de $Im(S(\omega))$ pour une surface en BaF₂, à la fréquence de la transition $8P_{3/2} \rightarrow 7D_{5/2}$ du césium.

2.3.2.3 Saphir

Nous ajustons les spectres de réflectance du saphir en utilisant quatre phonons anharmoniques (nombre de phonons usuellement utilisé dans la littérature [Ger74]), en utilisant, pour trois d'entre eux, une seule gaussienne généralisée dans la self-énergie et pour l'autre mode quatre termes dans la self-énergie. La comparaison entre l'ajustement et les courbes expérimentales est présentée à la figure (2.23). Les valeurs des paramètres utilisés sont données dans le tableau (2.3).

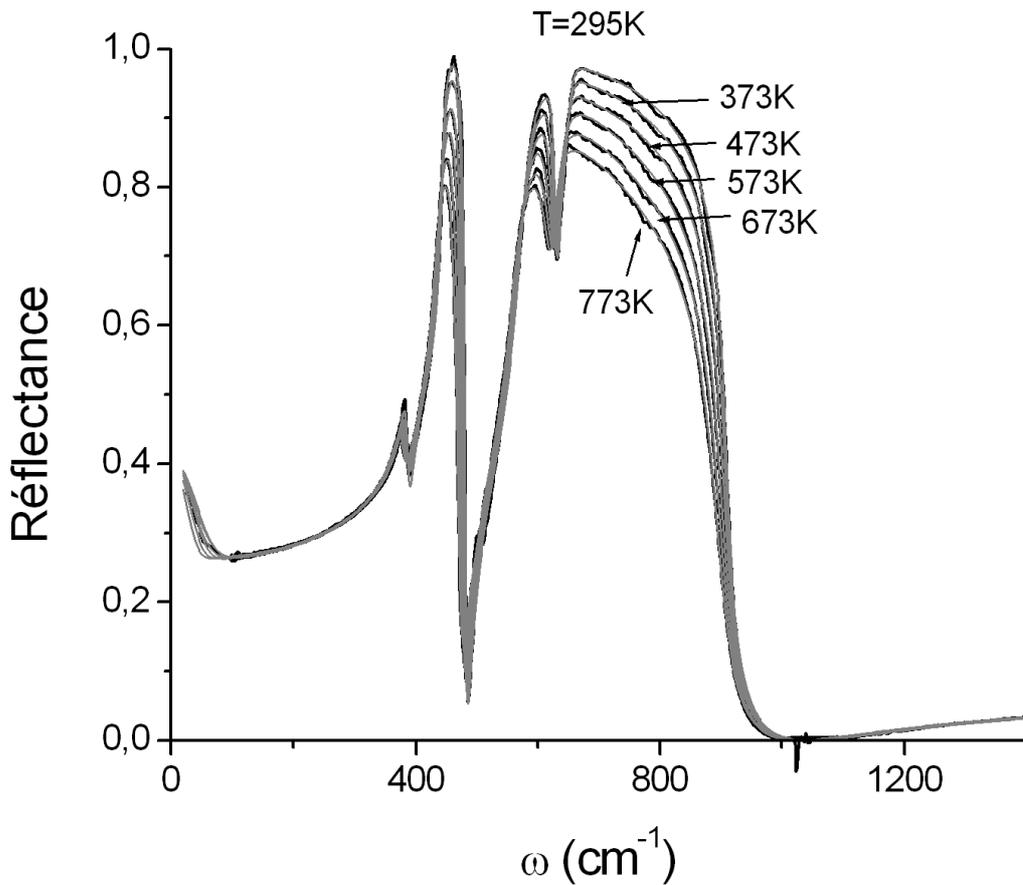


Figure 2.23 – Spectres de réflectance pour le saphir, avec les meilleurs ajustements obtenus en utilisant le modèle SQ. Les paramètres utilisés pour les ajustements sont indiqués dans le tableau (2.3).

La figure (2.24), montre l'évolution avec la température de la self énergie du mode de phonon 3. Notons l'apparition d'un pic autour de 250 cm^{-1} pour de hautes températures au détriment du pic autour de 550 cm^{-1} . Aux figures (2.25 et 2.26), nous montrons les valeurs obtenues pour la constante diélectrique à partir des ajustements. A la figure (2.27),

| Temperature (K) | 295 | 373 | 473 | 573 | 673 | 773 |
|--------------------------------------|--------|---------|--------|---------|---------|---------|
| ϵ_∞ | 3.03 | 3.01 | 3.03 | 2.98 | 3.02 | 3.02 |
| Phonon 1 | | | | | | |
| Ω_1 | 0.42 | 0.47 | 0.41 | 0.49 | 0.47 | 0.44 |
| $\omega_{T0,1}$ (cm ⁻¹) | 373.86 | 371 | 370 | 359.67 | 351.66 | 350.6 |
| $A_1^{(1)}$ (cm ⁻¹) | 24.41 | 28.45 | 26.06 | 47.79 | 67.54 | 62.47 |
| $\omega_1^{(1)}$ (cm ⁻¹) | 199.33 | 204.6 | 219.02 | 219.02 | 208.88 | 215.22 |
| $\gamma_1^{(1)}$ (cm ⁻¹) | 248.99 | 241.5 | 229.88 | 203.74 | 200.32 | 196.77 |
| Phonon 2 | | | | | | |
| Ω_2 | 2.73 | 2.74 | 2.63 | 2.53 | 2.45 | 2.41 |
| ω_2 | 439.71 | 436.34 | 435.06 | 432.09 | 429.92 | 427.39 |
| $A_1^{(2)}$ (cm ⁻¹) | 5.68 | 7.87 | 7.86 | 8.86 | 9.49 | 10.3 |
| $\omega_1^{(2)}$ (cm ⁻¹) | 423.58 | 419.54 | 416 | 413.48 | 409.06 | 403.75 |
| $\gamma_1^{(2)}$ (cm ⁻¹) | 38.51 | 45.62 | 59.5 | 65.28 | 77.7 | 93.32 |
| Phonon 3 | | | | | | |
| Ω_3 | 2.87 | 2.81 | 2.87 | 2.81 | 2.83 | 2.82 |
| ω_3 | 580.42 | 582.2 | 582.98 | 578.97 | 581.61 | 582.95 |
| $A_1^{(3)}$ (cm ⁻¹) | 1.43 | 5 | 11.48 | 23.67 | 28.36 | 29.86 |
| $\omega_1^{(3)}$ (cm ⁻¹) | 371.13 | 371.61 | 307.94 | 354.27 | 362.12 | 347.12 |
| $\gamma_1^{(3)}$ (cm ⁻¹) | 190.22 | 200.24 | 237.29 | 192.02 | 198.47 | 206.02 |
| $A_2^{(3)}$ (cm ⁻¹) | 10.12 | 9.12 | 7.86 | 8.09 | 5.63 | 4.75 |
| $\omega_2^{(3)}$ (cm ⁻¹) | 536.83 | 534.45 | 526.44 | 534.32 | 537.77 | 526.56 |
| $\gamma_2^{(3)}$ (cm ⁻¹) | 117.73 | 108.42 | 118.29 | 93.84 | 79.03 | 79.42 |
| $A_3^{(3)}$ (cm ⁻¹) | 15.56 | 19.17 | 20.42 | 25.5 | 27.59 | 30 |
| $\omega_3^{(3)}$ (cm ⁻¹) | 914.59 | 912.06 | 878.14 | 839.97 | 815.08 | 805.6 |
| $\gamma_3^{(3)}$ (cm ⁻¹) | 333.25 | 414.24 | 418.35 | 369.58 | 366.08 | 362.4 |
| $A_4^{(3)}$ (cm ⁻¹) | 6.13 | 6.29 | 8.99 | 9.36 | 15.55 | 17.81 |
| $\omega_4^{(3)}$ (cm ⁻¹) | 1299.6 | 1353.68 | 1298.6 | 1333.72 | 1301.19 | 1294.23 |
| $\gamma_4^{(3)}$ (cm ⁻¹) | 895.54 | 953.88 | 947.96 | 996.79 | 927.75 | 997.61 |
| Phonon 4 | | | | | | |
| Ω_4 | 0.15 | 0.15 | 0.14 | 0.15 | 0.17 | 0.18 |
| ω_4 | 638.35 | 636.59 | 633.87 | 628.1 | 618.72 | 610.88 |
| $A_1^{(4)}$ (cm ⁻¹) | 6.77 | 6.98 | 7.19 | 8.78 | 15.72 | 22.99 |
| $\omega_1^{(4)}$ (cm ⁻¹) | 640.36 | 638.2 | 634.9 | 619.7 | 565.2 | 506.43 |
| $\gamma_1^{(4)}$ (cm ⁻¹) | 30.03 | 34.07 | 35.79 | 84.38 | 159.51 | 23.39 |

Table 2.3 – Paramètres obtenus pour les meilleurs ajustements des courbes de réflectance pour le saphir.

nous montrons les modes de surface ainsi que la position de la transition atomique la plus importante pour l'interaction de vdW. Les résonances de surface étant loin de la transition atomique $8P_{3/2} \rightarrow 7D_{5/2}$ du césium qui nous intéresse, de très faibles variations de la valeur de C_3 avec la température sont attendues.

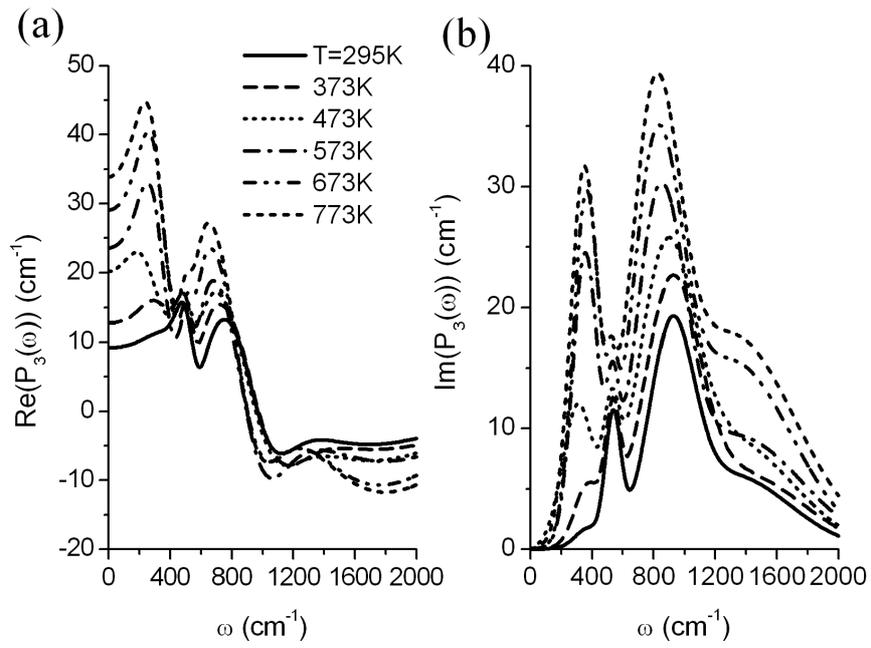


Figure 2.24 – Évolution de la fonction de self-énergie du mode de phonon 3 avec la température pour le saphir. (a) évolution du déplacement de la résonance ($Re(P_3(\omega))$); (b) évolution de l'amortissement ($Im(P_3(\omega))$).

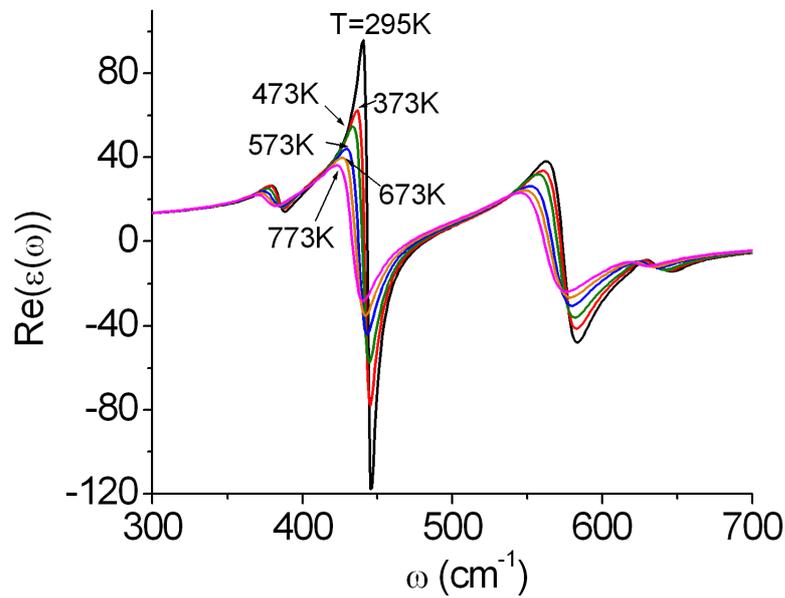


Figure 2.25 – Évolution de $Re(\epsilon(\omega))$ avec la température, obtenue à partir de l'ajustement des courbes de réflectance pour le saphir.

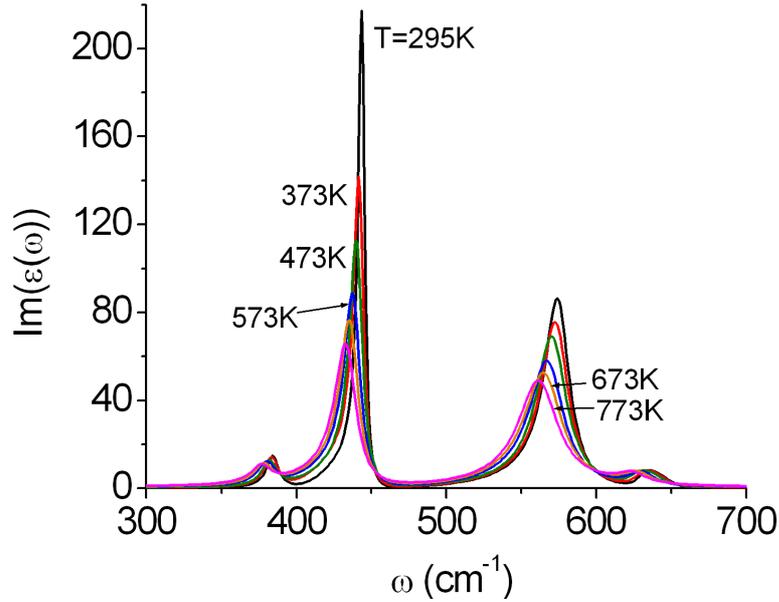


Figure 2.26 – Évolution de $Im(\epsilon(\omega))$ avec la température, obtenue à partir de l'ajustement des courbes de réflectance pour le saphir.

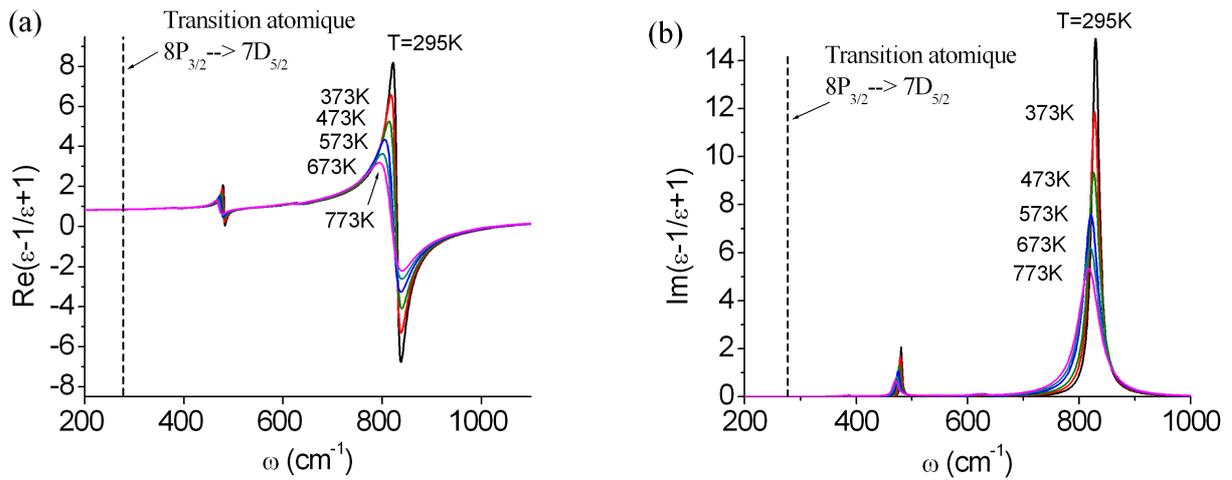


Figure 2.27 – (a) évolution de la fréquence de résonance du polariton de surface; (b) évolution de la largeur de la résonance avec la température pour le saphir.

2.4 Nouveaux calculs de C_3 en utilisant les valeurs de $S(\omega)$ obtenues expérimentalement.

Après avoir obtenu l'évolution en température de la constante diélectrique en utilisant les mesures de réflectance, nous pouvons calculer la dépendance en température du coefficient de vdW, C_3 . Le calcul de C_3 suit ce qui a été décrit dans la section 1.3 du chapitre I, en utili-

sant pour chaque température, la constante diélectrique correspondante. Nous comparons les valeurs de C_3 obtenues aux valeurs prédites au chapitre I et à des valeurs calculées en extrapolant les données de constante diélectrique disponibles dans la littérature, en considérant que les paramètres d'un modèle 3P paramètre évoluent linéairement avec la température.

2.4.1 Extrapolation des données disponibles dans la littérature

En utilisant les données de P. Denham et collaborateurs [Den70], qui ont obtenu les paramètres $(\omega_{TO}, \Omega_j, \gamma_j, \epsilon_\infty)$ pour un modèle de constante diélectrique du type 3 paramètres (équation 2.10) pour deux températures (100K et 300K), nous pouvons calculer les pentes des comportements linéaires des équations (2.15-2.18) et, ainsi, simuler l'évolution de la constante diélectrique avec la température. Le tableau (2.4) montre les valeurs des pentes pour l'évolution des différents paramètres pour le BaF_2 et le CaF_2 , en considérant $T_0 = 300\text{K}$. Nous avons dû considérer que $d_j = 0$ (voir équation 2.17), c'est-à-dire, que l'évolution des largeurs de mode de phonons est aussi linéaire (nous ne pouvons pas déterminer d_j avec seulement deux points en température).

| Coefficients linéaires | CaF_2 | | BaF_2 | |
|------------------------------------|----------------------|----------------------|-----------------------|----------------------|
| | Mode 1 | Mode 2 | Mode 1 | Mode 2 |
| $a_j(\text{cm}^{-1}\text{K}^{-1})$ | 0.03 | 0.03 | 0.02 | 0.035 |
| $b_j(\text{K}^{-1})$ | 6.3×10^{-4} | 1.0×10^{-4} | 4.0×10^{-4} | 1.3×10^{-4} |
| $c_j(\text{K}^{-1})$ | 1.0×10^{-4} | 2.5×10^{-4} | 2.0×10^{-4} | 5.0×10^{-4} |
| $e(\text{K}^{-1})$ | -3×10^{-4} | | -4.5×10^{-4} | |

Table 2.4 – Pentes de l'évolution linéaire pour les paramètres du modèle 3P, calculées pour le CaF_2 et le BaF_2 à partir des données de [Den70], avec $T_0 = 300\text{K}$

Nous utilisons les coefficients linéaires montrés dans le tableau (2.4) pour calculer l'évolution de la constante diélectrique pour le CaF_2 et pour le BaF_2 dans le cadre du modèle 3P. Nous utilisons comme paramètres à température T_0 , les valeurs données dans [Kai62], car les courbes expérimentales semblent plus fiables, étant plus compatibles avec nos courbes expérimentales que celles de [Den70]. Il est raisonnable de supposer que les différences expérimentales entre [Den70] et [Kai62] (échantillons différents, erreurs de mesure...) ne changent que peu l'évolution en température des paramètres. A partir des

constantes diélectriques obtenues, on peut calculer les fonctions de surface $S(\omega) = \frac{\epsilon(\omega)-1}{\epsilon(\omega)+1}$ définies au chapitre I et de là, calculer l'évolution de C_3 avec la température. Ces valeurs calculées seront utilisées par la suite pour comparaison avec les valeurs de C_3 déduites de nos mesures expérimentales.

2.4.2 Calculs pour le CaF_2 , utilisant les valeurs de $\epsilon(\omega)$ déduites de nos mesures de réflectance

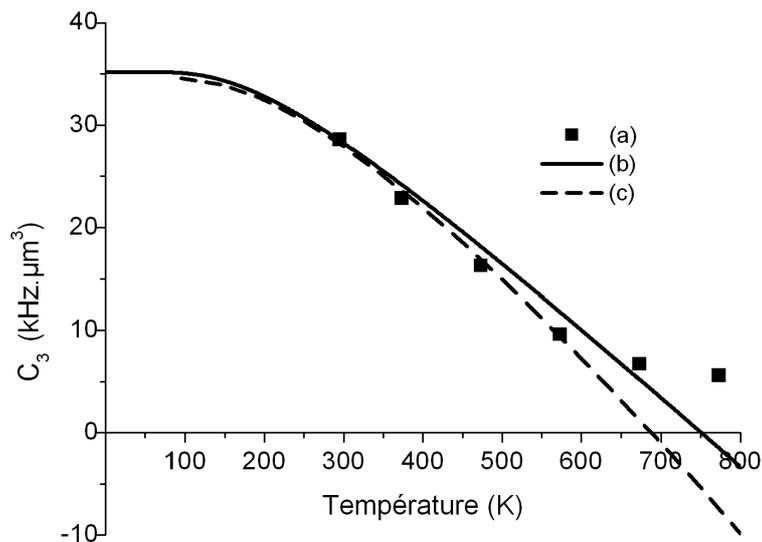


Figure 2.28 – Changement du coefficient de vdW, C_3 , avec la température pour un atome $\text{Cs}(8P_{3/2})$ proche d'une surface de CaF_2 . La courbe (a) montre les résultats utilisant les constantes diélectriques obtenues à partir des mesures de réflectance en température. La courbe (b) montre les résultats des calculs prenant en compte un modèle 3P pour la constante diélectrique avec les paramètres qui évoluent linéairement avec la température. La courbe (c) montre les résultats obtenus au chapitre I en considérant la constante diélectrique à température ambiante donnée dans [Bez91] (calculs du chapitre I).

A la figure 2.28, nous montrons l'évolution du coefficient de vdW, C_3 , avec la température pour un atome $\text{Cs}(8P_{3/2})$ au voisinage d'une surface de CaF_2 . Par comparaison, nous montrons aussi les valeurs de C_3 calculées en tenant compte d'une évolution linéaire en température des paramètres d'un modèle 3P (voir section 2.2.2) à partir d'une modélisation de la constante diélectrique et les valeurs calculées de C_3 si on considère la constante diélectrique à température ambiante [Bez91] (calculées dans le chapitre I). Nous montrons, à la figure (2.29), l'évolution

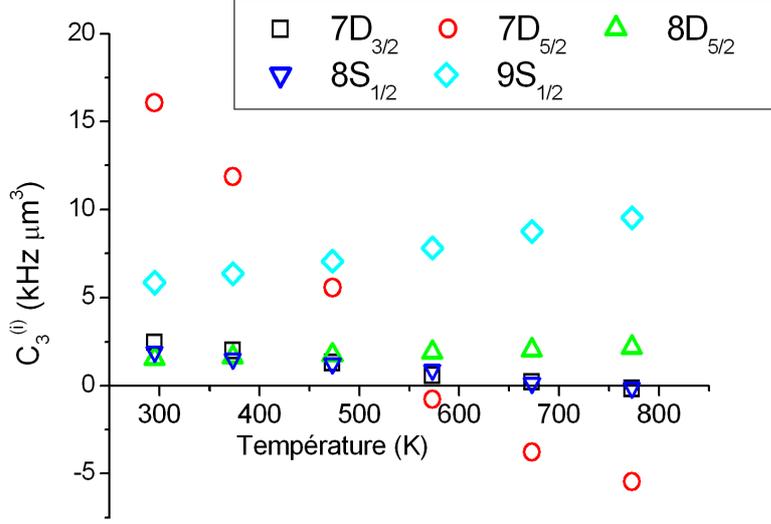


Figure 2.29 – Évolution en température de la contribution des transitions atomiques principales pour l'interaction vdW entre un atome de césium au niveau $8P_{3/2}$ et une surface de CaF_2 ; (b) évolution des coefficients de réflexion r_1 et r_3 pour la transition $8P_{3/2} \rightarrow 7D_{5/2}$

en température de la contribution des principales transitions atomiques pour l'interaction de vdW (tableau 1.1 du chapitre I). Nous voyons que la transition donnant la plus grande contribution à l'interaction de vdW de l'atome face à une surface parfaitement réfléchissante (la transition $8P_{3/2} \rightarrow 7D_{5/2}$), est celle qui explique les changements en température de la valeur totale de C_3 . La variation, pour cette transition, des coefficients de réflexion $r_1(\omega)$ (contribution non résonnante, équation 1.17) et $r_3(\omega)$ (couplage résonnant, équation 1.19) est montrée à la figure (2.30). On reconnaît le comportement linéaire prévu quand $k_B T \gg \hbar \omega_{ij}$ (voir la section 1.3 du chapitre I). On note que le coefficient r_3 , donnant une contribution négative à C_3 , varie plus rapidement que le coefficient r_1 ce qui explique la diminution de la contribution de cette transition pour C_3 avec la température. Pour des températures pas trop élevées ($T \leq 573\text{K}$), les valeurs de C_3 calculées à partir des constantes diélectriques obtenues expérimentalement sont assez proches de celles obtenues avec des extrapolations à partir de la constante diélectrique à température ambiante. Par contre, elles diffèrent aux températures les plus hautes ($T > 573\text{K}$). Cette différence est due à l'augmentation de la valeur de ϵ_0 avec la température obtenue de nos ajustements.

Comme mentionné précédemment, le fait que la principale transition atomique soit sur

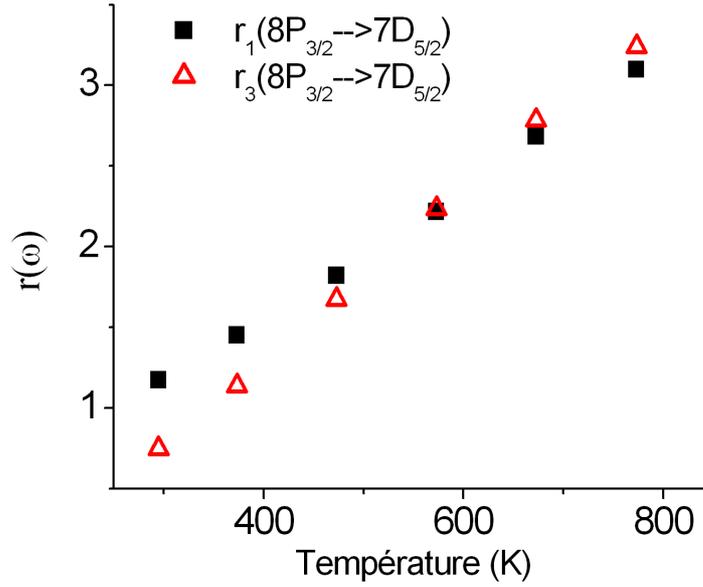


Figure 2.30 – Évolution en température des coefficients de réflexion r_1 et r_3 pour la transition $8P_{3/2} \rightarrow 7D_{5/2}$

les ailes de la résonance de surface fait que les valeurs recalculées de C_3 ne diffèrent que peu par rapport à celles qui ne considèrent pas le changement de $\epsilon(\omega)$ avec la température. Il est intéressant de voir que les déplacements trouvés à plus haute température changent la prédiction sur le signe de C_3 , l'interaction restant soit toujours attractive à 800K.

2.4.3 Calculs pour le BaF_2 , utilisant les valeurs de $\epsilon(\omega)$ déduites de nos mesures de réflectance

La figure (2.31) montre l'évolution en température du coefficient de vdW calculé en utilisant les constantes diélectriques obtenues à partir des mesures de la réflectance pour le BaF_2 . Nous montrons aussi les valeurs de C_3 calculées en extrapolant la dépendance en température à partir de la constante diélectrique à température ambiante (via l'évolution linéaire des paramètres du modèle 3P), et les valeurs calculées en considérant la constante diélectrique à température ambiante. Nous trouvons une remontée à haute température qui est aussi obtenue avec le modèle considérant une évolution linéaire des paramètres du modèle 3P. Malgré un comportement global similaire entre les nouveaux calculs et les valeurs prenant en compte l'évolution linéaire des paramètres, les valeurs de C_3 calculées deviennent assez différentes à haute température (par exemple, voir l'écart entre les deux courbes à 800K).

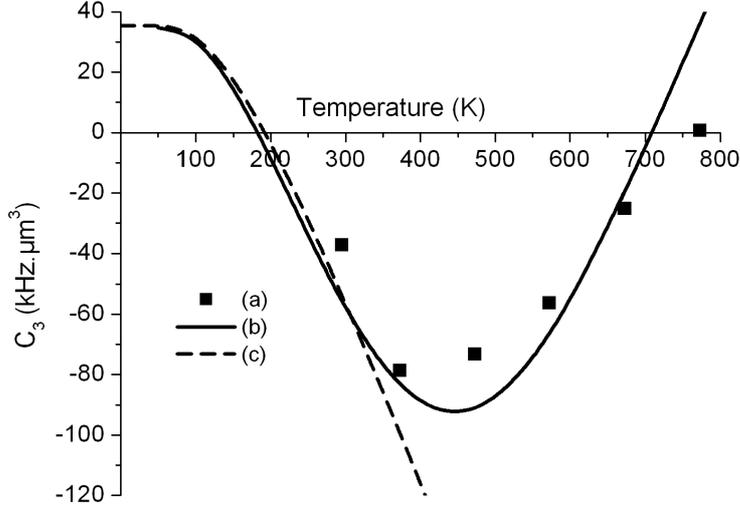


Figure 2.31 – Changement du coefficient de vdW, C_3 , avec la température pour un atome $Cs(8P_{3/2})$ proche d’une surface de BaF_2 . La courbe (a) montre les résultats des calculs en utilisant les constantes diélectriques obtenues à partir des mesures de réflectance en température. La courbe (b) montre les résultats des calculs prenant en compte un modèle 3P pour la constante diélectrique avec les paramètres qui évoluent linéairement avec la température. La courbe (c) montre les résultats obtenus au chapitre I en considérant la constante diélectrique à température ambiante donnée dans [Tho98] (calculs du chapitre I).

A la figure (2.32), nous montrons l’évolution du terme $2Re\left(\frac{\epsilon(\omega_{ij})-1}{\epsilon(\omega_{ij})+1}\right)$ pour les transitions atomiques les plus importantes, où on voit un changement des valeurs de $Re(S(\omega))$ pour les couplages avec les niveaux $7D_{3/2}$ et $7D_{5/2}$ qui sont assez proches de la résonance de surface. Par contre les valeurs de $Re(S(\omega))$ ne changent pratiquement pas pour les autres niveaux car ils sont en dehors des résonances. A la figure (2.33) nous montrons la contribution de chaque transition atomique $C_3^{(i)}$: comme pour le CaF_2 , la plus grande contribution au C_3 total est donnée par la transition $8P_{3/2} \rightarrow 7D_{5/2}$. L’évolution avec la température de cette contribution dominante n’est pas monotone, à cause du déplacement et de l’élargissement de la résonance de surface (voir figure 2.21). Ceci entraîne une « compétition » dans l’évaluation du coefficient de réflexion $r_3(\omega)$ (équation 1.19 du chapitre I), avec le facteur $2Re\left(\frac{\epsilon(\omega_{ij})-1}{\epsilon(\omega_{ij})+1}\right)$ qui diminue avec la température alors que le facteur $\frac{e^{-\hbar\omega_{ij}/k_B T}}{1-e^{-\hbar\omega_{ij}/k_B T}}$ augmente : ceci explique le comportement de C_3 avec la température.

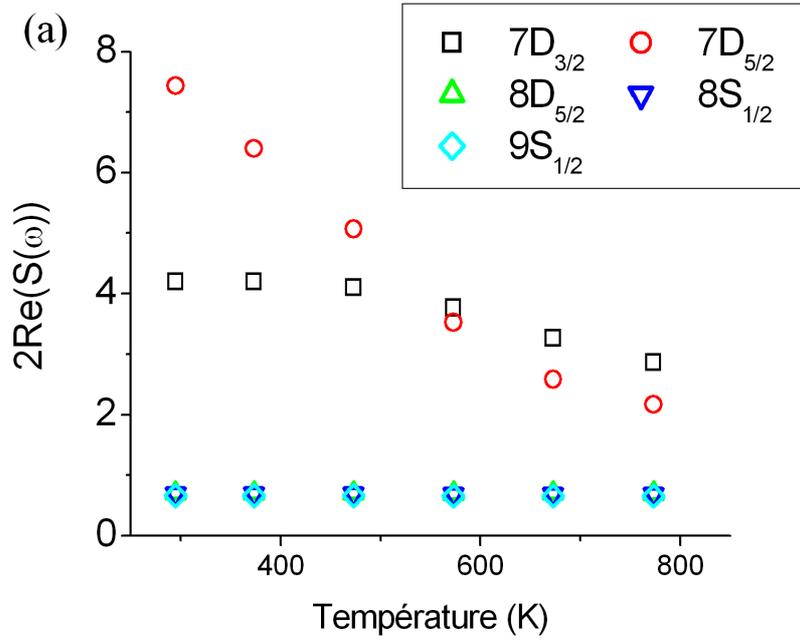


Figure 2.32 – Évolution en température du terme $2\text{Re}(S(\omega_{ij}))$ pour les transitions atomiques principales pour l'interaction de vdW entre un atome $\text{Cs}(8P_{3/2})$ et une surface de BaF_2 .

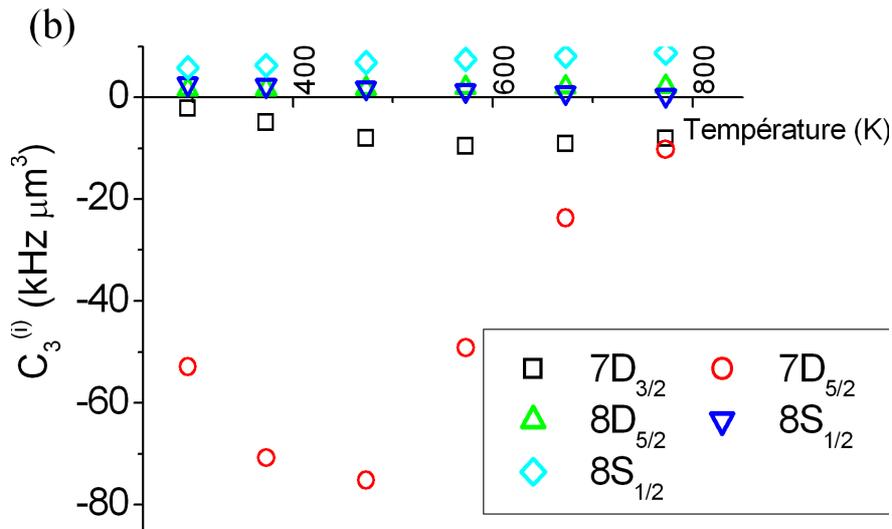


Figure 2.33 – Évolution en température de la contribution $(C_3^{(i)})$ pour les transitions atomiques principales pour l'interaction de vdW entre un atome $\text{Cs}(8P_{3/2})$ et une surface de BaF_2 .

2.4.4 Calculs pour le Saphir, utilisant les valeurs de $\epsilon(\omega)$ déduites de nos mesures de réflectance

Dans le cas du saphir, aucune des transitions atomiques importantes n'est en résonance avec les modes de surface du saphir. La contribution résonnante est donc négligeable et nous

nous attendons à des changements très petits pour la valeur de C_3 avec la température. Sur la figure (2.34), nous montrons les nouvelles valeurs calculées pour C_3 en utilisant les constantes diélectriques obtenues à partir des spectres de réflectance.

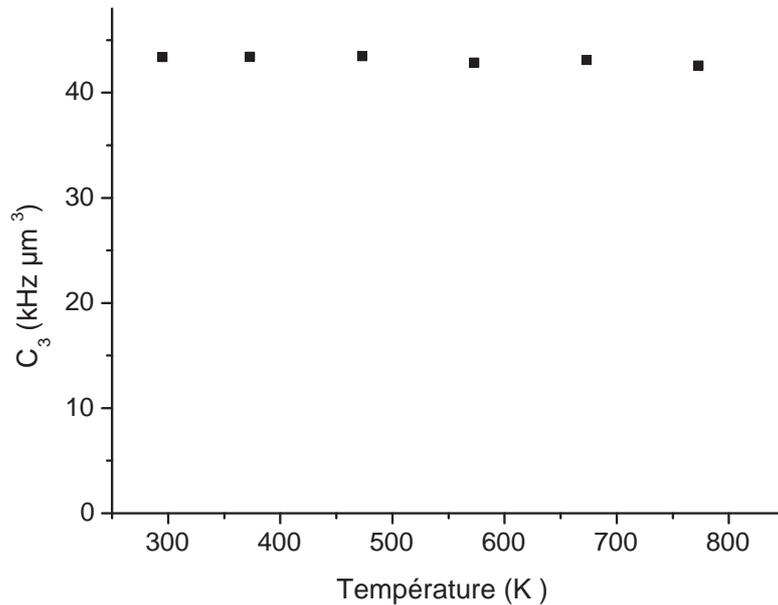


Figure 2.34 – Dépendance en température de C_3 pour l'interaction entre un atome de césium au niveau $8P_{3/2}$ et une surface de saphir.

2.4.5 Calculs de C_3 pour un atome de césium au niveau $8P_{1/2}$

Nous avons aussi cherché dans cette thèse à réaliser des mesures du coefficient de vdW pour un atome Cs($8P_{1/2}$). Le principal intérêt de ce niveau est que son couplage donnant la principale contribution au coefficient de vdW se situe à $29 \mu\text{m}$ et est donc un peu plus proche de la résonance de surface du CaF_2 que dans le cas du niveau $8P_{3/2}$. Au tableau (2.5), nous montrons les principales contributions à l'interaction de vdW entre le Cs($8P_{1/2}$) et une surface parfaitement réfléchissante. On note que les transitions les plus importantes sont les couplages vers le niveau $7D_{3/2}$ et le niveau $8S_{1/2}$ (le couplage vers le niveau $7D_{5/2}$, important dans le cas $8P_{3/2}$, est interdit par les règles de sélection). Le couplage vers $7D_{3/2}$ doit donner une contribution résonnante, mais le couplage vers $8S_{1/2}$ tombe en fait en dehors des résonances de surface (CaF_2 , BaF_2 et saphir) et correspond en énergie à une température trop élevée pour que l'on prévoit des effets de température importants induits par cette transition.

| Niveaux | λ (μm) | ω (cm^{-1}) | C_3^{Rp} ($\text{kHz} \times \mu\text{m}^3$) |
|------------|-----------------------------|-------------------------------|--|
| $7D_{3/2}$ | 29.52 | 338.8 | 23.039 |
| $8D_{3/2}$ | 4.76 | 2100.0 | 3.719 |
| $8S_{1/2}$ | -7.17 | -1394.7 | 14.324 |
| $9S_{1/2}$ | 8.32 | 1201.9 | 9.392 |

Table 2.5 – Principales contributions pour l’interaction de vdW entre un atome $\text{Cs}(8P_{1/2})$ et une surface parfaitement réfléchissante.

La figure (2.35) montre la position de la contribution principale à l’interaction de vdW, par rapport aux résonances de surfaces pour le CaF_2 (a) et pour le BaF_2 (b). On note que la transition est plus proche des modes de polaritons pour le CaF_2 qu’il ne l’était pour le $\text{Cs}(8P_{3/2})$ (voir figure 2.14). Pour le BaF_2 , en revanche, la transition atomique devient plus éloignée de la résonance de surface, et passe de l’autre côté de celle-ci (changement de signe de la contribution) par rapport à ce qu’on avait pour le $8P_{3/2}$ (voir figure 2.20).

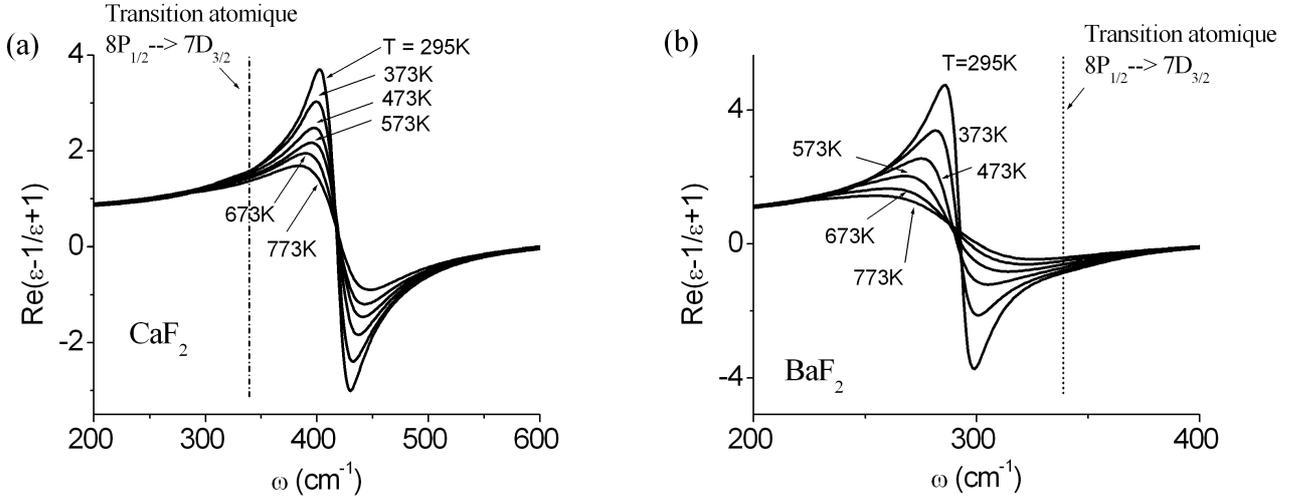


Figure 2.35 – Position de la transition $8P_{1/2} \rightarrow 7D_{3/2}$ (en pointillé) par rapport aux résonances de surface du CaF_2 (a) et du BaF_2 (b).

A la figure (2.36), nous montrons l’évolution de C_3 pour les surfaces de CaF_2 , BaF_2 et saphir. Comme prévu aucun changement de C_3 avec la température n’est visible pour le saphir. On note un changement plus rapide de C_3 avec la température pour le CaF_2 , par rapport à ce qui avait été obtenu pour le niveau $8P_{3/2}$, à cause d’un plus fort couplage

avec la transition importante pour l'interaction de vdW avec la résonance de surface. On obtient d'ailleurs un changement de signe pour C_3 (passage d'une interaction attractive à répulsive) autour d'une température, relativement basse, de $\approx 550K$. Pour le BaF_2 , comme la transition atomique est passée du côté de la résonance de surface où $Re(S(\omega)) < 0$, la contribution résonante à l'interaction de vdW implique une interaction toujours attractive qui augmente avec la température.

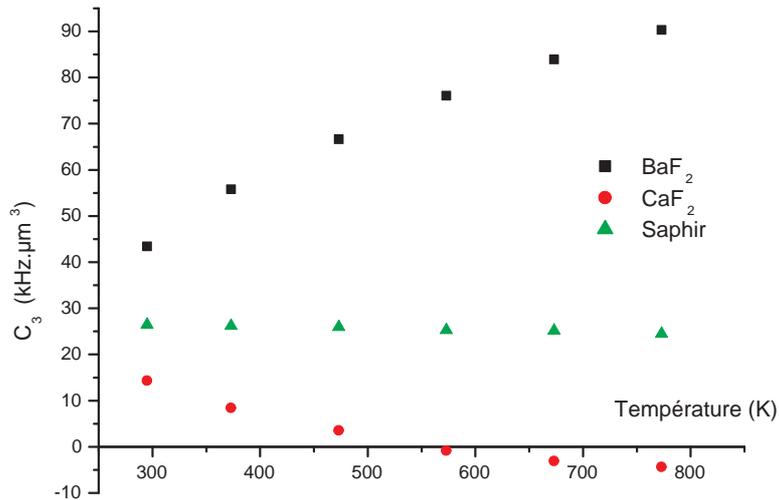


Figure 2.36 – Dépendance en température de C_3 pour l'interaction entre un atome $Cs(8P_{1/2})$ et des surfaces de CaF_2 , BaF_2 et saphir.

2.5 Conclusion

Afin d'améliorer la précision de nos estimations théoriques pour le coefficient de vdW, nous avons procédé à des mesures de réflectance en température sur des surfaces de CaF_2 , BaF_2 et saphir. La principale motivation de ces mesures, outre le désaccord entre les mesures expérimentales du chapitre IV et les prédictions du chapitre I, a été la quasi-absence de données dans la littérature sur l'évolution en température de la constante diélectrique de ces matériaux dans la région infrarouge, et les désaccords entre les différentes mesures publiées, dont les conséquences sont notables sur les résonances de surface.

Nous avons utilisé un modèle semi-quantique de la constante diélectrique, qui prend en compte le couplage entre plusieurs phonons, pour ajuster les courbes de réflectance, et obte-

nir l'évolution de $\epsilon(\omega)$ en température. A partir de ces données, nous avons pu reconstruire la dépendance des fonctions de surface $S(\omega)$ en température et, ainsi, calculer l'évolution de C_3 .

Les nouveaux calculs nous permettent d'avoir plus de précision sur les valeurs de C_3 . Pour le CaF_2 , la différence entre les nouvelles valeurs et celles calculées au chapitre I deviennent importantes à haute température, avec une remontée des valeurs de C_3 par rapport à celles du chapitre I. Le changement le plus spectaculaire est pour le cas du BaF_2 , où nous trouvons une dépendance en température totalement différente de celle prédite au chapitre I, avec un retour à une interaction quasi-nulle, voire attractive aux hautes températures, après un régime répulsif atteint en principe bien avant la température ambiante.

Les différences obtenues entre les diverses méthodes de calculs de C_3 (avec $\epsilon(\omega)$ déduite des spectres de réflectance à différentes température et à partir d'extrapolations des valeurs de $\epsilon(\omega)$ à basse température) indiquent la sensibilité dans la prédiction de l'interaction atome-surface à la qualité des données de constante diélectrique disponible. Cette qualité peut dépendre de facteurs expérimentaux (qualité de l'échantillon, résolution des mesures...) et de facteurs liés à l'ajustement des spectres (modèle pour $\epsilon(\omega)$ utilisé, méthode d'ajustement et de vérification de la cohérence...).

Nous avons aussi calculé la dépendance en température de C_3 pour un atome $\text{Cs}(8\text{P}_{1/2})$. On note que pour ce niveau la valeur de C_3 pour une surface de BaF_2 augmente avec la température. Pour une surface de CaF_2 , le comportement est similaire à celui du $\text{Cs}(8\text{P}_{3/2})$, mais avec une variation plus rapide passant à une interaction de van der Waals répulsive pour des températures plus grandes que 550K.

Bibliographie

- [And98] S.K. Andersson, M. E. Thomas et C. E. Hoffman « Multiphonon contribution to the reststrahlen band of BaF_2 », *Infrared Physics and Technology* **39**, 47 (1998)
- [Bez91] D.F. Bezuidenhout, « Calcium Fluoride (CaF_2) » dans « Handbook of Optical Constants of Solids II », E. D. Palik ed., Elsevier Academic Press, 1991. pp 815-835
- [Den70] P. Denham, G. R. Field, P. L. R. Morse et G. R. Wilkinson, « Optical and dielectric properties and lattice dynamics of some fluorite structure ionic crystals », *Proceedings of the Royal Society of London, Series A Mathematical and Physical Sciences* **317**, n°1528, p55-77 (1970).
- [Foc] Programme « Focus » disponible dans Focus web site : <http://crmht.cnrs-orleans.fr/pot/software/focus.html>
- [Gan65] S.Ganesan, E. Burstein, « Selection rules for second order infrared and Raman processes II. Fluorite structure and the interpretation of second order infrared and Raman spectra of CaF_2 », *J. Phys. (Paris)* **6**, 645-648 (1965)
- [Ger74] F. Gervais, B. Piriou, « Anharmonicity in several-polar-mode crystals : adjusting phonon self-energy of LO and TO modes in Al_2O_3 and TiO_2 to infrared reflectivity », *J. Phys. C : solid state Phys.*, **7**, 2374-2386 (1974).
- [Ger75] F. Gervais, D. Billard et B. Piriou « High temperature phonon self energy : an application to infrared spectra of corundum Al_2O_3 », *Rev. Int. Htes. Temp. et Réfract.* **12**, 58 (1975)
- [Ger91] F. Gervais, « 'Aluminum Oxide (Al_2O_3) » dans « Handbook of Optical Constants of Solids II », E. D. Palik ed., Elsevier Academic Press, 1991. pp 761-775
- [Ipa67] I.P. Ipatova, A.A. Maradudin et R.F. Wallis « Temperature dependence of the width of the fundamental lattice-vibration absorption peak in ionic crystal. II Approximate numerical results », *Phys. Rev.* **155**, 882 (1967)

- [Kai62] W. Kaiser, W.G. Spitzer, R.H. Kaiser et L.E. Howart, « Infrared properties of CaF_2 , SrF_2 and BaF_2 », Phys. Rev. **127**, 1950 (1962)
- [Kee01] C. Dale Keefe « Curvefitting imaginary components of optical properties : Restrictions on the lineshape due to causality », J. Mol. Spec. **205**, 261 (2001)
- [Jas66] J.R. Jasperse, A. Kahan, J.N. Plendl et S.S. Mitra « Temperature dependence of infrared dispersion in Ionic crystals LiF and MgO », Phys Rev **146**, 526 (1966)
- [Mil74] D.L. Mills et E. Burstein « 'Polaritons : the electromagnetic modes of media », Rep. Prog. Phys **37**, 817-926 (1974)
- [Sal06] S. Saltiel, D. Bloch, M. Ducloy, « A tabulation and critical analysis of the wavelength dependent dielectric image coefficient for the interaction exerted by the surface onto a neighbouring excited atom », Opt. Comm., **265**, 220 (2006)
- [Sch03] K.Schmalzl, D.Strauch, et H.Schober « Lattice-dynamical and ground-state properties of CaF_2 studied by inelastic neutron scattering and density-functional methods », Phys. Rev. B **68**, 144301 (2003)
- [Sou04] D. De Sousa Meneses, J. -F. Brun, P. Echegut, and P. Simon, « Contribution of Semi-Quantum Dielectric Function Models to the Analysis of Infrared Spectra », Appl. Spectrosc. **58**, 969-974 (2004).
- [Tho91] M. Thomas « Temperature dependence of the complex index of refraction » dans « Handbook of Optical constants of solids II », E. D. Palik ed., Elsevier Academic Press, 1991 pp. 177-201
- [Tho98] M. Thomas, « Barium Fluoride (BaF_2) » dans « Handbook of Optical constants of solids III », E. D. Palik ed., Elsevier Academic Press, 1998, pp 683-699

Chapitre 3

Spectroscopie de réflexion sélective et potentiel d'interaction atome-surface.

Parmi les diverses techniques expérimentales utilisées pour mesurer l'interaction de van der Waals (vdW) entre un atome neutre et une surface diélectrique, celle dite de réflexion sélective (RS), que nous présentons brièvement ci-dessous, a été largement utilisée dans notre équipe [Duc91],[Ori91]. Cette technique consiste à mesurer, autour de la fréquence d'une transition atomique, le changement de l'intensité réfléchie à l'interface surface/vapeur induit par un changement résonnant de l'indice de la vapeur, donnant accès ainsi à des informations sur la transition atomique. Dans une technique de réflexion, l'épaisseur sondée est typiquement de l'ordre de $\lambda/2\pi$, où λ est la longueur d'onde du champ électromagnétique. Cette technique sonde donc les atomes dans une région très proche de la surface, où l'interaction de van der Waals est importante.

Nous commençons ce chapitre par énumérer brièvement différentes expériences réalisées pour mesurer l'interaction de vdW. Puis nous faisons un bref historique de la technique de réflexion sélective et ensuite nous traitons le formalisme de la RS. Pour finir nous discutons les formes de raies obtenues en RS pour une interaction atome-surface du type vdW et pour une interaction en $-C_2/z^2$, éventuellement induite par des charges distribuées sur la surface.

3.1 Techniques expérimentales utilisées pour mesurer l'interaction de van der Waals.

Plusieurs techniques différentes ont été utilisées pour mesurer l'interaction de van der Waals entre un atome neutre et une surface.

La première mesure de l'interaction de van der Waals fut faite par D. Raskin et P. Kusch en 1969 [Ras69]. Ils ont observé la déviation d'un jet atomique au voisinage d'un cylindre métallique induit par l'interaction vdW. Ces mesures n'ont donné des informations que qualitatives sur l'interaction de vdW à cause de la grande variation des distances atome-surface existantes dans l'expérience. Un perfectionnement de cette technique fut fait par A. Anderson et collaborateurs [And88] en envoyant des atomes de Rydberg (fortement sensibles à l'interaction de vdW) dans une zone de canalisation constituée par deux parois métalliques parallèles, espacées entre elles d'une distance variable, de l'ordre de quelques micromètres. Les atomes de Rydberg étaient déviés par l'interaction de van der Waals avec les parois métalliques de sorte qu'une partie des atomes étaient attirés par les parois, ne sortant pas du canal. Une mesure du nombre d'atomes sortants en fonction de la distance entre les parois et du nombre quantique principal des atomes a permis aux auteurs de mesurer l'interaction de vdW. En utilisant le même montage mais cette fois en mesurant le déplacement spectroscopique d'une transition vers un niveau de Rydberg dû à l'interaction de van der Waals, V. Sandoghdar et collaborateurs [San92] ont démontré expérimentalement la dépendance en z^{-3} et la dépendance au carré du moment dipolaire atomique, de l'interaction vdW.

Dans une approche différente, R.E. Grisenti et collaborateurs [Gri99] ont mesuré l'interaction de van der Waals via l'observation de modifications sur le profil de diffraction d'un jet atomique par un nano-réseau. A. Landragin et collaborateurs [Lan96] ont mesuré l'interaction de vdW exercée sur des atomes froids en observant une réflexion atomique sur un potentiel composé de l'attraction de vdW et d'une interaction répulsive induite par une onde évanescente désaccordée vers le bleu. Dans une approche similaire, en remplaçant l'interaction répulsive optique par un miroir magnétique, A.K. Mohapatra et C.S. Unnikrishnan [Moh06] ont mesuré l'interaction de van der Waals entre un atome de rubidium et une surface métallique. En utilisant une technologie de couches minces magnétiques, les auteurs ont construit des barrières de potentiel assez proches de la surface permettant de mesurer

l'interaction de vdW dans la gamme de distance atome-surface de 20-50 nm.

Toutes les mesures de l'interaction de vdW mentionnées ci-dessus font appel à des techniques mécaniques qui sont limitées aux états de longue durée de vie. La technique de spectroscopie de réflexion sélective est une technique de spectroscopie optique : elle ne permet d'étudier que l'interaction avec des surfaces transparentes (diélectriques), mais a l'avantage de pouvoir être appliquée à des états de courte durée de vie, notamment aux niveaux excités pour lesquels on s'attend à des couplages résonnants avec les modes de surface. En tant que technique spectroscopique, elle fournit à priori des informations sur la différence des interactions exercées sur l'état final et sur l'état initial. Ainsi, au début des années 90, cette technique a été introduite pour mesurer l'interaction de vdW pour la première et la deuxième raie de résonance du césium [Ori91],[Che92].

Signalons aussi que l'équipe OCR a utilisé une technologie de nanocellules développées en Arménie, pour observer en transmission et en réflexion le déplacement et la déformation des formes de raies induites par l'interaction de vdW. La technologie de nanocellules permet de sonder les atomes avec une résolution spatiale (distance atome-surface) liée à l'épaisseur de la cellule. En variant l'épaisseur de celle-ci il a été possible de vérifier la dépendance de l'interaction en $-C_3/z^3$ dans une gamme d'épaisseur de cellule de 40 nm à 130 nm (distance atome-surface maximale de 20-65 nm) [Fic07].

3.2 Bref historique sur la technique de réflexion sélective.

Les premières mesures de réflexion sélective furent faites par R.W. Wood [Woo09] en 1909 en mesurant un changement de la réflectivité à l'interface verre-vapeur, autour de la résonance de cette dernière. A l'époque ce phénomène fut interprété comme un changement résonnant, classique et local, de l'indice de réfraction de la vapeur. Ce modèle prédisait une variation de la réflectivité donnée par la dispersion élargie par l'effet Doppler.

En 1954 J.L Cojan ([Coj54]) a observé une structure sub-Doppler sur des mesures de réflexion sélective à l'interface verre-vapeur de mercure et a interprété ce phénomène comme étant dû aux collisions spéculaires des atomes sur la paroi de verre induisant une discontinuité de la polarisabilité atomique. Cependant ces études furent limitées par le dispositif

technique disponible à l'époque (utilisation de lampes comme source de lumière). En 1975 Woerdman et Schuurmans ([Woe75]) ont mis en évidence l'aspect sub-Doppler de la réflexion sélective (avec un laser accordable en fréquence de résolution bien meilleure que la largeur Doppler) et ont interprété l'origine de ce phénomène comme étant dû à une interruption de la polarisation quand les atomes arrivent sur la paroi. Comme nous le verrons plus tard, ce phénomène donne lieu à un comportement non local où l'histoire de l'atome doit être prise en compte. La réalisation de RS associée à une modulation de la fréquence laser a permis de s'affranchir d'un fond induit par la contribution des atomes avec des composantes de vitesse, perpendiculairement à la paroi, non nulles, résultant en un spectre subDoppler [Aku82].

En 1991 et 1992 l'équipe OCR a développé l'utilisation de cette technique pour mesurer l'interaction de van der Waals [Duc91] pour les transitions ($6S_{1/2} \rightarrow 6P_{3/2}$ [Ori91] et $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$ [Che92]), puis raffiné et automatisé les méthodes pour mesurer l'interaction vdW, notamment en utilisant cette technique pour mesurer l'élargissement et le déplacement collisionnel de raies atomiques [Pap94].

3.3 Formalisme de la réflexion sélective

La théorie décrite dans cette section reprend les éléments développés dans [Duc91].

Soit une interface plane entre une vapeur atomique et un milieu diélectrique d'indice n , chacun occupant un demi-espace. Une onde plane, E_0 de fréquence ω et vecteur d'onde k se propage dans le milieu diélectrique, en incidence normale sur l'interface. A l'interface une onde E_R est réfléchiée et une onde E_T est transmise.

$$\vec{E}_0 = \hat{e}_{\Sigma_0} e^{i(nkz - \omega t)} + c.c \quad (3.1)$$

$$\vec{E}_R = \hat{e}_{\Sigma_R} e^{-i(nkz + \omega t)} + c.c \quad (3.2)$$

$$\vec{E}_T = \hat{e}_{\Sigma_T}(z) e^{i(kz - \omega t)} + c.c \quad (3.3)$$

Dans (3.1-3.3), z est la direction perpendiculaire à l'interface, \hat{e} est la polarisation du champ et c.c dénote le complexe conjugué. Le champ transmis dans la vapeur polarise celle-ci, introduisant une réémission qui modifie le champ. A priori, cette polarisation n'est pas spatialement homogène, mais par symétrie dans le plan xy (parallèle à l'interface) on peut écrire que le champ transmis ne dépend que de la variable z . Les conditions de continuité

des composantes électriques et magnétiques à l'interface nous donnent :

$$\Sigma_0 + \Sigma_R = \Sigma_T(z=0) \quad (3.4)$$

$$ink(\Sigma_0 - \Sigma_R) = ik\Sigma_T(z=0) + \frac{d\Sigma_T}{dz}(z=0) \quad (3.5)$$

d'où on peut obtenir que l'amplitude du champ réfléchi est donnée par :

$$\Sigma_R = \frac{n-1}{n+1}\Sigma_0 - \frac{1}{ik(n+1)}\frac{d\Sigma_T}{dz}(z=0) \quad (3.6)$$

Dans (3.6), le premier terme est simplement le coefficient de réflexion de Fresnel pour l'interface diélectrique/vide. Le deuxième terme est la contribution résonnante due à la polarisation de la vapeur atomique. On peut écrire la polarisation macroscopique de la vapeur induite par le champ incident comme étant :

$$\vec{P}(z,t) = \hat{e}p(z)e^{i(kz-\omega t)} + c.c \quad (3.7)$$

où, pour les mêmes raisons que pour le champ E_T , on a écrit que la polarisation ne dépend spatialement que de la variable z . Le champ électrique transmis et la polarisation sont reliés entre eux par l'équation d'onde de Maxwell :

$$\nabla^2 \vec{E}_T - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{E}_T}{\partial t^2} = \frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{P}}{\partial t^2} \quad (3.8)$$

Pour un champ électrique de la forme (3.3) et une polarisation de la forme (3.7) on trouve :

$$\frac{d^2 \Sigma_T}{dz^2} + 2ik \frac{d\Sigma_T}{dz} = -\frac{4\pi\omega^2}{c^2} p(z) \quad (3.9)$$

où on a utilisé $kc = \omega$. En multipliant les deux côtés de l'équation par e^{2ikz} et en prenant $X = e^{2ikz} \frac{d\Sigma_T}{dz}$ on obtient l'équation :

$$\frac{dX}{dz} = -\frac{4\pi\omega^2}{c^2} e^{2ikz} p(z) \quad (3.10)$$

qui peut être facilement résolue, donnant comme solution pour $\frac{d\Sigma_T}{dz}$:

$$\frac{d\Sigma_T}{dz}(z) = e^{2ik(z_0-z)} \frac{d\Sigma_T}{dz}(z_0) - \frac{4\pi\omega^2}{c^2} e^{-2ikz} \int_{z_0}^z p(z') e^{2ikz'} dz' \quad (3.11)$$

Pour $z_0 \rightarrow \infty$, le champ ne subit plus de variation importante (absorption et diffusion dans la vapeur, notamment sur une échelle d'une longueur d'onde), ainsi $\frac{d\Sigma_T}{dz}(z_0 \rightarrow \infty) = 0$ et l'équation (3.11) s'écrit :

$$\frac{d\Sigma_T}{dz}(z) = \frac{4\pi\omega^2}{c^2} e^{-2ikz} \int_z^\infty p(z') e^{2ikz'} dz' \quad (3.12)$$

En remplaçant ce résultat dans (3.6), on obtient :

$$\Sigma_R = \frac{n-1}{n+1}\Sigma_0 + \frac{i4k\pi}{(n+1)} \int_0^\infty p(z)e^{2ikz} dz \quad (3.13)$$

L'intégrale (3.12) exprime la somme, à l'interface, de toutes les contribution complexes des dipôles induits par le champ transmis dans la vapeur. Le terme e^{2ikz} de l'intégrale représente un déphasage qui correspond à un déphasage de e^{ikz} entre le champ transmis à $z = 0$ et le champ sur la position z de l'atome, augmenté d'un déphasage e^{ikz} , correspondant à la propagation jusqu'à la position $z = 0$, du champ rayonné par l'atome à la position z . Une conséquence intéressante du terme de déphasage e^{2ikz} est que toute variation spatiale de $p(z)$ lente par rapport à $\lambda/2\pi$ sera moyennée à zéro par le terme e^{2ikz} . En revanche, la polarisation change de manière significative près de la surface à cause de la dépolarisation atomique lors d'une collision à la paroi, ce qui veut dire que cette technique permet de sonder la polarisation d'une vapeur atomique d'épaisseur d'environ $\lambda/2\pi$ au voisinage de la surface. Notons que ce voisinage de la paroi est justement la région où l'interaction de van der Waals entre l'atome et la surface est importante. Cette technique est donc particulièrement favorable pour sonder l'interaction de vdW.

Un autre terme de déphasage est donné par le fait que $p(z)$ est complexe. Ce déphasage est dû au fait que sur la position z , l'atome peut être polarisé en déphasage avec le champ exciteur.

3.3.1 Calcul de la polarisabilité de la vapeur induite par le champ

Nous étudions la polarisation de la vapeur induite par le champ transmis. Nous supposons que la fréquence du champ est proche de celle de la transition atomique de façon à considérer la vapeur comme un ensemble d'atome à deux niveaux ($|e\rangle$ dénote le niveau excité et $|g\rangle$ le niveau fondamental). La vapeur atomique peut être décrite par une matrice densité locale $\sigma(z, \vec{v}, t)$ (z et \vec{v} , désignent la position et vitesse de l'atome à l'instant t). La polarisation macroscopique sera donc donnée par :

$$p(z) = N\mu \int_{-\infty}^{\infty} W(\vec{v})\sigma_{eg}(z, \vec{v})d\vec{v} \quad (3.14)$$

où μ est le moment dipolaire de la transition atomique, N est la densité atomique de la vapeur et $W(\vec{v})$ est la distribution de vitesse des atomes. Les équations de Bloch dans

l'approximation des ondes tournantes donnent :

$$\frac{d\sigma_{ee}}{dt} = -\frac{d\sigma_{gg}}{dt} = i\Omega(\sigma_{ge} - \sigma_{eg}) - \gamma\sigma_{ee} \quad (3.15)$$

$$\frac{d\sigma_{eg}}{dt} = -\left[\frac{\gamma}{2} - i(\omega - \omega_0 - kv_z)\right]\sigma_{eg} + i\Omega(\sigma_{gg} - \sigma_{ee}) \quad (3.16)$$

où ω_0 est la fréquence de la transition atomique, Ω est la fréquence de Rabi ($\Omega = 2\mu\Sigma_T/\hbar$) et γ est la largeur homogène du système (taux de relaxation du niveau excité). Pour écrire l'expression de la fréquence de Rabi nous avons supposé que l'amplitude du champ Σ_T n'est pas atténuée dans la vapeur atomique, c'est-à-dire, que l'absorption est petite dans la région $z < \lambda/2\pi$. La dérivée totale doit s'exprimer selon la dérivée hydrodynamique

$$\frac{d}{dt} = \frac{\partial}{\partial t} + \vec{v} \cdot \nabla \quad (3.17)$$

Par symétrie, la matrice densité ne dépend que de la variable z . On considère un régime stationnaire ($\frac{\partial\sigma}{\partial t} = 0$ car le champ exciteur est stationnaire), on a donc :

$$v_z \frac{\partial\sigma_{eg}}{\partial z} = -\left[\frac{\gamma}{2} - i(\omega - \omega_0 - kv_z)\right]\sigma_{eg} + i\frac{\Omega}{2} \quad (3.18)$$

où on a aussi fait l'approximation $\sigma_{gg} = 1$, $\sigma_{ee} = 0$ car on considère le champ incident d'intensité suffisamment faible pour ne pas changer significativement les populations des états excité et fondamental. Nous ne considérons ici, donc, qu'un régime linéaire de la spectroscopie de réflexion sélective.

Pour résoudre l'équation (3.18) on définit les fonctions $L(z)$ et $L_0(z)$:

$$L(z) = \int_{z_0}^z \frac{\gamma(z')}{2} - i(\omega - \omega_0(z') - kv_z) dz' = L_0(z) + izkv_z \quad (3.19)$$

d'où :

$$\sigma_{eg}(z) = \sigma_{eg}(z_0, v_z) e^{-\frac{L(z)}{v_z}} + \frac{i\Omega}{2v_z} \int_{z_0}^z e^{\frac{L(z')-L(z)}{v_z}} dz' \quad (3.20)$$

Dans l'expression ci-dessus en haut on a écrit explicitement que la fréquence atomique et le taux de relaxation peuvent dépendre de la position. Nous pouvons introduire l'interaction de surface à travers cette dépendance. Nous pouvons choisir de prendre dans (3.20) une valeur pour la distance atome-surface pour laquelle le terme diagonal de la matrice densité s'annule ($\sigma_{eg}(z_0, v_z) = 0$). Cette valeur de z_0 est fixée par les conditions aux limites selon que l'on considère le cas $v_z < 0$, ou $v_z > 0$

Cas $v_z > 0$ (les atomes s'éloignent de la surface) Pour le cas où $v_z > 0$, les atomes s'éloignent de la surface. Dans ce cas on peut dire que les atomes partent de la surface avec une cohérence optique nulle, et nous prenons donc $z_0 = 0$ de façon à avoir $\sigma_{eg}(z_0 = 0, v_z) = 0$.

$$\sigma_{eg}(z, v_z > 0) = \frac{i\Omega}{2v_z} \int_0^z e^{\frac{L(z')-L(z)}{v_z}} dz' \quad (3.21)$$

Cas $v_z < 0$ (les atomes s'approchent de la surface) Les atomes avec $v_z < 0$ s'approchent de la surface à partir d'une région éloignée de celle-ci. On peut supposer que loin de la surface ($z_0 = \infty$) la cohérence optique est nulle car le champ excitateur s'annule à cause de l'absorption de la vapeur (petite pour l'épaisseur de $\lambda/2\pi$, mais grande sur la taille macroscopique de la cellule utilisée). On a donc $\sigma_{eg}(z_0 = \infty, v_z < 0) = 0$ et :

$$\sigma_{eg}(z, v_z < 0) = \frac{i\Omega}{2v_z} \int_{+\infty}^z e^{\frac{L(z')-L(z)}{v_z}} dz' \quad (3.22)$$

Les différentes expressions pour les cas $v_z < 0$ et $v_z > 0$ illustrent bien l'aspect non local de la théorie, en indiquant que la cohérence optique de l'atome à la position z dépend de l'histoire de l'atome, et de ses positions $z'(t')$.

3.3.1.1 Calcul de la polarisation du milieu induite par le champ transmis

En remplaçant les expressions (3.21) et (3.22) dans l'expression (3.14) on peut calculer la polarisation du milieu induite par le champ transmis.

Pour $v_z > 0$ on obtient :

$$p(z)_+ = \frac{i\Omega N \mu}{2} \int_0^{+\infty} \frac{W(v_z)}{v_z} dv_z \int_0^z e^{\frac{L(z')-L(z)}{v_z}} dz' \quad (3.23)$$

et pour $v_z < 0$ on obtient :

$$p(z)_- = \frac{i\Omega N \mu}{2} \int_{-\infty}^0 \frac{W(v_z)}{v_z} dv_z \int_{+\infty}^z e^{\frac{L(z')-L(z)}{v_z}} dz' \quad (3.24)$$

3.3.2 Calcul du signal de réflexion sélective

Une fois obtenue la polarisation de la vapeur on peut calculer la contribution de la vapeur sur le champ réfléchi à l'interface en utilisant l'équation (3.13). Avant de faire ce calcul nous allons prendre en compte que ce qu'on mesure est l'intensité du champ réfléchi $I_R = |\Sigma_R|^2 = \left| \Sigma_R^{Fr} + \Delta \Sigma_R(\omega) \right|^2$, où Σ_R^{Fr} est la contribution non résonnante du champ total réfléchi donnée par le coefficient de Fresnel (premier terme de l'équation (3.13)) et $\Delta \Sigma_R(\omega)$ est la partie résonnante du champ réfléchi donné par le second terme de l'équation (3.13).

Ce qu'on va appeler par la suite « Signal de Réflexion Sélective » (S_{RS}) est la contribution du terme résonnant à l'intensité réfléchie :

$$S_{RS}(\omega) = \left| \Sigma_R^{Fr} + \Delta \Sigma_R(\omega) \right|^2 - \left| \Sigma_R^{Fr} \right|^2 \quad (3.25)$$

En prenant $|\Delta \Sigma_R(\omega)| \ll \Sigma_R^{Fr}$ (vapeur diluée) on peut négliger le terme $|\Delta \Sigma_R(\omega)|^2$ et obtenir :

$$S_{RS}(\omega) = 2 \Sigma_R^{Fr} \text{Re} (\Delta \Sigma_R(\omega)) \quad (3.26)$$

Comme nous avons séparé pour la polarisation la réponse due aux atome qui s'éloignent de la surface ($v_z > 0$) de la réponse des atome qui s'approchent de la surface ($v_z < 0$), on peut écrire le signal de réflexion sélective comme étant la somme de ces deux contributions $S_{RS}(\omega) = S_{RS(+)}(\omega) + S_{RS(-)}(\omega)$, avec chaque contribution obtenue en remplaçant les expressions (3.23,3.24) dans (3.13)

$$S_{RS(+)}(\omega) = -\frac{4\pi k N \Omega \mu \Sigma_R^{Fr}}{(n+1)} \text{Re} \left(\int_0^{+\infty} \frac{W(v_z)}{v_z} dv_z \int_0^{+\infty} dz \int_0^z e^{ik(z+z')} e^{\frac{L_0(z')-L_0(z)}{v_z}} dz' \right) \quad (3.27)$$

$$S_{RS(-)}(\omega) = -\frac{4\pi k N \Omega \mu \Sigma_R^{Fr}}{(n+1)} \text{Re} \left(\int_{-\infty}^0 \frac{W(v_z)}{v_z} dv_z \int_0^{+\infty} dz \int_{+\infty}^z e^{ik(z+z')} e^{\frac{L_0(z')-L_0(z)}{v_z}} dz' \right) \quad (3.28)$$

où la dépendance en ω du signal de réflexion sélective est implicite dans l'expression de $L_0(z)$ (voir équation (3.19)). Dans l'expression (3.28), on permute les intégrales en z et en z' en utilisant la relation :

$$\int_0^{+\infty} dz \int_z^{+\infty} dz' = \int_0^{+\infty} dz' \int_0^{z'} dz \quad (3.29)$$

Cette relation est facilement vérifiable si nous dessinons sur un plan le domaine d'intégration (figure(3.1)). En utilisant la relation précédente on peut écrire :

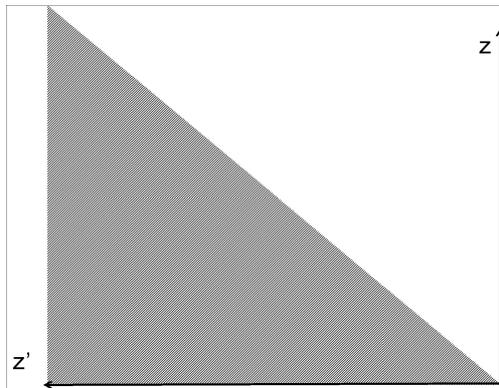


Figure 3.1 – Domaine d'intégration dans le plan zz' . Le plan peut être défini soit par $z' \in (z, +\infty)$ et $z \in (0, +\infty)$, soit par $z \in (0, z')$ et $z' \in (0, +\infty)$, ce qui justifie la relation (3.29).

$$S_{RS(-)}(\omega) = \frac{4\pi k N \Omega \mu \Sigma_R^{Fr}}{(n+1)} \text{Re} \left(\int_{-\infty}^0 \frac{W(v_z)}{v_z} dv_z \int_0^{+\infty} dz' \int_0^{z'} e^{ik(z+z')} e^{\frac{L_0(z')-L_0(z)}{v_z}} dz \right) \quad (3.30)$$

En effectuant un changement de variable $v_z \rightarrow -v'_z$ on trouve :

$$S_{RS(-)}(\omega) = -\frac{4\pi k N \Omega \mu \Sigma_R^{Fr}}{(n+1)} \text{Re} \left(\int_0^{+\infty} \frac{W(v'_z)}{v'_z} dv'_z \int_0^{+\infty} dz' \int_0^{z'} e^{ik(z+z')} e^{\frac{L_0(z')-L_0(z)}{v'_z}} dz \right) \quad (3.31)$$

On trouve que si la distribution de vitesses des atomes est symétrique ($W(v_z > 0) = W(v_z < 0)$) la contribution des atomes qui s'éloignent de la surface ($v_z > 0$) est exactement la même que la contribution des atomes qui arrivent sur la surface ($v_z < 0$). On peut donc écrire :

$$S_{RS}(\omega) = 2S_{RS(+)}(\omega) = -\frac{4\pi k N \Omega \mu \Sigma_R^{Fr}}{(n+1)} \text{Re} \left(\int_0^{+\infty} \frac{W(v_z)}{v_z} dv_z \int_0^{+\infty} dz \int_0^z e^{ik(z+z')} e^{\frac{L_0(z')-L_0(z)}{v_z}} dz' \right) \quad (3.32)$$

3.3.3 Réflexion sélective en absence d'interaction de surface de longue portée.

Si l'on néglige l'interaction van der Waals (ou toute autre interaction de surface longue portée) on a $\omega_0(z) = \omega_0$ et $\gamma(z) = \gamma$, donc $L_0(z) = (\gamma/2 - i(\omega - \omega_0))z$. En introduisant l'expression de $L_0(z)$ dans (3.32), on peut effectuer les intégrales en z et z' (en utilisant $k \rightarrow k + i\kappa$ avec $\kappa \rightarrow 0^+$, ce qui revient à dire que la vapeur est légèrement absorbante, pour assurer la convergence d'un terme en e^{2ikz}) pour obtenir :

$$S_{Rs}(\omega) = -\frac{4\pi N \Omega \mu \Sigma_R^{Fr}}{2((n+1))} \int_0^{+\infty} W(v_z) \frac{(\omega - \omega_0 + kv_z)}{(\gamma/2)^2 + (\omega - \omega_0 + kv_z)^2} dv_z \quad (3.33)$$

En définissant les variables réduites $\Delta = \frac{\omega - \omega_0}{ku}$, $\Lambda = \frac{kv_z}{ku}$ et $\Gamma = \frac{\gamma}{2ku}$, où u est la vitesse la plus probable de la distribution $W(v_z)$ on a :

$$S_{RS}(\Delta) = C \int_0^{+\infty} W(\Lambda) \frac{\Delta + \Lambda}{\Gamma^2 + (\Delta + \Lambda)^2} d\Lambda \quad (3.34)$$

avec $C = -\frac{4\pi N \Omega \mu \Sigma_R^{Fr}}{2((n+1))}$. Dans l'équation (3.34) on a le produit de la distribution de vitesses $W(\Lambda)$, que l'on va considérer comme une gaussienne (distribution Maxwellienne dans une direction), par une Lorentzienne dispersive de largeur Γ (Voir figure (3.2)). Dans le cas où la largeur homogène de la vapeur atomique (γ) est beaucoup plus petite que la largeur Doppler (donc $\Gamma \ll 1$, expérimentalement une valeur typique est $\Gamma \approx 10^{-2}$) on peut dire que, pour les vitesses où la lorentzienne prend des valeurs non négligeables, la gaussienne

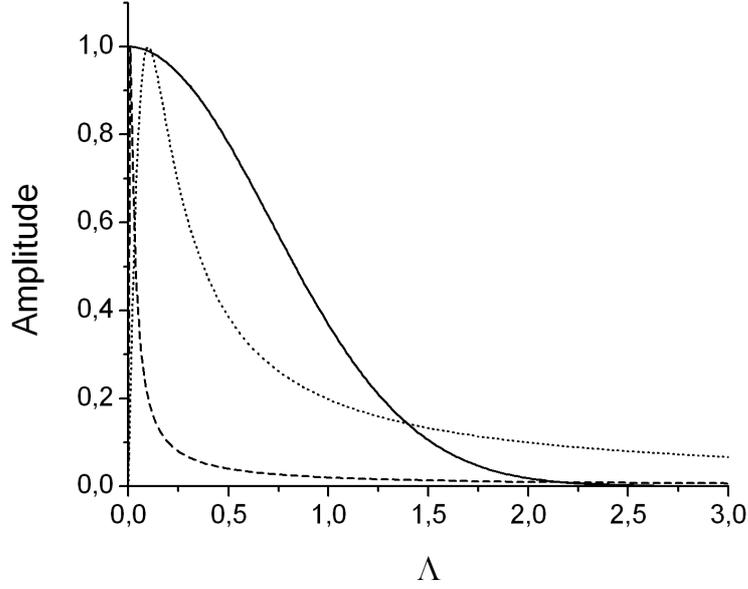


Figure 3.2 – Distribution de vitesse gaussienne (en traits plein) et Lorentzienne de dispersion avec $\Delta = 0$ et $\Gamma = 1/100$ (en tiret) et $\Gamma = 1/10$ (en pointillé). Les courbes ont été normalisées de façon à avoir le maximum égal à 1. On note que dans la région où les Lorentziennes de dispersion sont grandes, la valeur de $W(\Lambda)$ ne change pas beaucoup.

prend des valeurs approximativement constantes (voir figure (3.2)). On peut donc utiliser l'approximation (autour de $\Delta \rightarrow 0$) :

$$S_{RS}(\Delta) = W(0) \left(Cte - \frac{1}{2} \text{Ln}(\Gamma^2 + \Delta^2) \right), \text{ pour } \Delta \rightarrow 0 \quad (3.35)$$

Pour $\Delta = 0$ on a une divergence logarithmique, $S_{RS} \propto W(0) \text{Ln}\Gamma$. D'après l'expression (3.34) toutes les vitesses contribuent à la Lorentzienne dispersive avec un poids $1/\Lambda$ pour les vitesses plus grandes, le signal de réflexion sélective est donc une contribution de toutes les classes de vitesses, mais avec une contribution plus grande pour les atomes avec $v_z \approx 0$. La figure 3.3, montre des courbes de RS pour différentes valeurs de Γ . On note que les spectres présentent des ailes relativement larges (contribution des grandes vitesses) avec, au centre, un pic relativement étroit due à la contribution des vitesses plus lentes, qui divergerait logarithmiquement à la limite $\Gamma \rightarrow 0$.

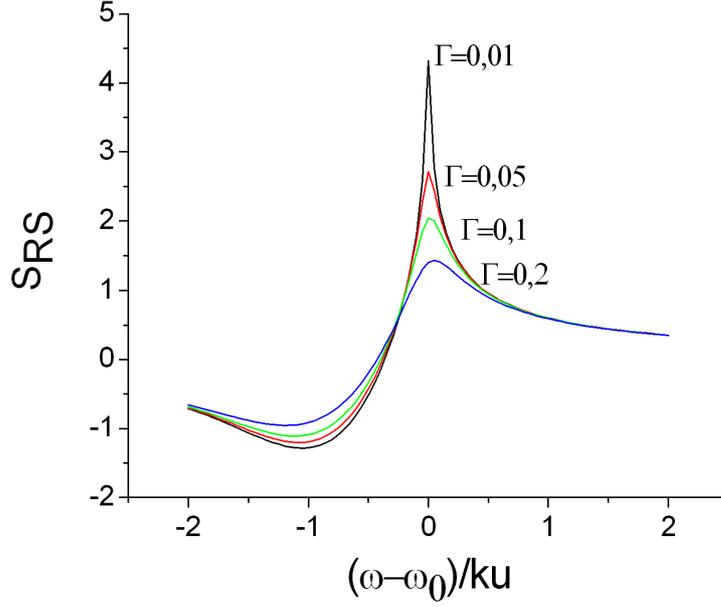


Figure 3.3 – Spectres de réflexion sélective, sans interaction de surface, pour différentes valeurs de $\Gamma = \gamma/2ku$.

3.3.4 Réflexion sélective avec modulation de fréquence

Une technique régulièrement utilisée en spectroscopie laser est la technique de modulation de fréquence (FM) [Aku82]. Cette technique consiste à moduler la fréquence du champ exciteur avec une fréquence connue et à détecter la composante du signal en phase avec cette modulation (détection synchrone). La modulation de fréquence consiste en un changement périodique de la fréquence du champ, on peut écrire la fréquence du champ comme étant : $\omega(t) = \omega_0 + M\cos(\omega_M t)$. Pour un indice M de modulation suffisamment faible, le signal de réflexion sélective peut être développé au premier ordre :

$$R_{RS}(\omega(t)) = R_{RS}(\omega_0) + M\cos(\omega_M t) \frac{\partial S_{RS}}{\partial \omega}(\omega_0) \quad (3.36)$$

On obtient ainsi que le signal détecté par une technique de détection synchrone est la dérivée du signal RS, multipliée par l'amplitude de la modulation M. Ce résultat n'est valable que si l'amplitude de modulation M est très petite par rapport à la largeur typique des variations du signal $S_{RS}(\omega_0)$, le cas contraire induisant une déformation du signal. Ainsi le signal RS détecté en modulation de fréquence (RSFM), en l'absence d'interaction atome/surface de longue portée est proportionnel à la dérivée de l'expression (3.34) :

$$S_{RSFM} \propto - \int_0^{+\infty} W(\Lambda) \frac{\Gamma^2 - (\Delta + \Lambda)^2}{(\Gamma^2 + (\Delta + \Lambda)^2)^2} \quad (3.37)$$

En faisant à nouveau l'approximation $\Gamma \ll 1$ on trouve :

$$S_{RSFM}(\Delta) \propto W(0) \frac{\Delta}{\Gamma^2 + \Delta^2} \quad (3.38)$$

Le signal de réflexion sélective en modulation de fréquence est alors une Lorentzienne dispersive de largeur Γ dont l'amplitude ne dépend que de $W(0)$. La technique de FM permet donc « d'éliminer » la contribution des atomes plus rapides pour obtenir un signal sub-Doppler qui correspond à la contribution des atomes dont la vitesse vectorielle est parallèle à la surface ($v_z \approx 0$).

3.4 Réflexion sélective FM avec une interaction de van der Waals

Nous allons calculer le signal de réflexion sélective FM pour une vapeur atomique soumise à l'interaction de van der Waals. Dans ce cas la fréquence de transition atomique ainsi que la largeur atomique dépendent de la distance atome-surface.

$$\omega_0(z) = \omega_0 - C_3/z^3 \quad (3.39)$$

$$\gamma(z) = \gamma(1 + B/z^3) \quad (3.40)$$

Dans la suite de cette section nous ne considérons pas la dépendance en z de la largeur atomique ($\gamma(z) = \gamma$). En effet la constante B de la dépendance en z de γ , qui apparaît pour des couplages avec des diélectriques résonnants, est proportionnelle à la partie imaginaire de $\frac{\epsilon(\omega_{ij})-1}{\epsilon(\omega_{ij})+1}$, où ω_{ij} est le couplage résonnant considéré (voir section 1.5 au chapitre I). Dans les situations considérées dans cette thèse (interaction du césium $8P_{3/2}$ avec des surfaces de saphir et de CaF_2) ce terme est en fait négligeable car les termes de déplacement en $\text{Re}\left(\frac{\epsilon(\omega_{ij})-1}{\epsilon(\omega_{ij})+1}\right)$ dominant le terme en $\text{Im}\left(\frac{\epsilon(\omega_{ij})-1}{\epsilon(\omega_{ij})+1}\right)$ (voir sous-sections 1.8.1 et 1.8.2 au chapitre I). Notons que nous avons introduit l'interaction de surface via la fréquence de la transition atomique, $\omega_0(z) = \omega_0 - \frac{C_3}{z^3}$. Cela signifie que la valeur de C_3 prise en compte est la différence entre les coefficients de vdW de l'état excité et fondamental. Généralement le coefficient de vdW pour le niveau excité est bien supérieur à celui du niveau fondamental, ce qui permet d'obtenir expérimentalement une valeur de C_3 pratiquement égale à la valeur du coefficient de vdW du niveau excité (pour le niveau fondamental $C_3(6S_{1/2}) = 2.42 \text{ kHz} \times \mu\text{m}^3$) [Che92]). Ceci est d'autant plus vrai que l'on considère une transition de Cs depuis le fondamental

jusqu'au niveau 8P qui est fortement excité. En introduisant $\omega(z)$ dans $L_0(z)$ (voir équation (3.19)) on a :

$$L_0(z) = \frac{\gamma}{2}z - i \left((\omega - \omega_0)z - \frac{C_3}{2z^2} \right) \quad (3.41)$$

Pour calculer le signal de réflexion sélective FM il nous faut donc calculer la dérivée par rapport à ω de l'équation (3.32). En tenant compte que $\frac{\partial L_0(z)}{\partial \omega} = -iz$ et en considérant que (sous la condition $\Gamma \ll 1$) la distribution de vitesses est constante pour des petites vitesses où l'intégrand prend les valeurs importantes qui déterminent la valeur du signal, on a :

$$S_{RSFM}(\omega) = CkW(0)Re \left(\int_0^\infty dz \int_0^z i(z' - z)e^{ik(z'+z)} dz' \int_0^\infty \frac{1}{v_z^2} e^{\frac{L_0(z') - L_0(z)}{v_z}} dv_z \right) \quad (3.42)$$

En faisant le changement de variable $\xi = 1/v_z$ on obtient :

$$S_{RSFM}(\omega) = CkW(0) \left(\int_0^{+\infty} dz \int_0^z \frac{i(z' - z)e^{ik(z'+z)}}{L_0(z') - L_0(z)} dz' \right) \quad (3.43)$$

La symétrie $z \Leftrightarrow z'$ de l'intégrand permet de changer la limite d'intégration supérieure en z' de $z \rightarrow \infty$. En remplaçant l'expression de $L_0(z)$ (3.41) dans l'équation (3.43) et en utilisant les variables sans dimension $\zeta = kz$, $\zeta' = kz'$, $\delta = \frac{\omega - \omega_0}{\gamma/2}$ et $A = \frac{C_3 k^3}{\gamma/2}$ on obtient :

$$S_{RSFM}(\delta) = -\frac{CW(0)}{k\gamma} Im \left(\int_0^{+\infty} d\zeta \int_0^{+\infty} \frac{(\zeta' - \zeta)e^{i(\zeta'+\zeta)}}{(1 - i\gamma)(\zeta' - \zeta) + i\frac{A}{2} \left(\frac{1}{\zeta'^2} - \frac{1}{\zeta^2} \right)} d\zeta' \right) \quad (3.44)$$

Les spectres de réflexion sélective FM sont caractérisés par la constante sans dimension A : en effet pour chaque valeur de A , la double intégration de (3.44) conduit à une forme de raie différente. Physiquement le paramètre $A = \frac{C_3 k^3}{\gamma/2}$ est le déplacement d'énergie du niveau atomique en unité $\gamma/2$ à une distance de la surface $z = k^{-1} = \lambda/2\pi$.

L'intégrale (3.44) n'est pas convergente. Pour qu'elle devienne convergente, on peut considérer (comme on l'a fait pour l'équation 3.33) que la vapeur atomique est faiblement absorbante en faisant le changement $k \rightarrow k + i\kappa$ avec κ positif et petit. L'intégrale double (3.44) peut alors être calculée numériquement (pour cela on peut utiliser une réduction analytique à une intégrale simple [Duc91]). Les figures (3.4-3.5) présentent des spectres de réflexion sélective FM pour différentes valeurs du paramètre A .

Nous voyons à la figure (3.4) que pour des petites valeurs de A , on a une évolution des formes de raie où le maximum positif de gauche (c'est-à-dire $\omega < \omega_0$) devient plus petit quand A augmente, tandis que le minimum négatif à droite devient plus grand (en valeur absolue) de telle sorte que la courbe devient asymétrique. On note aussi un déplacement

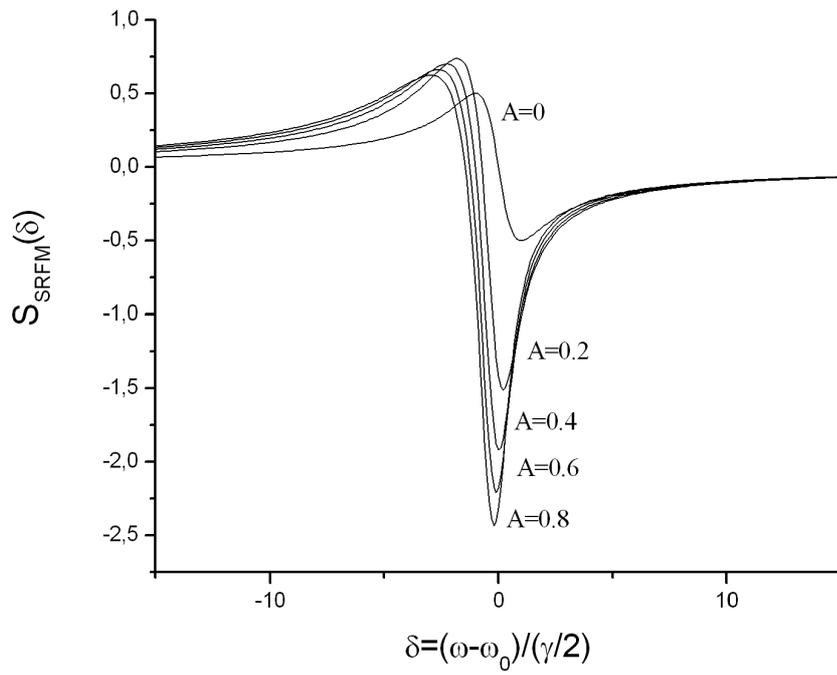


Figure 3.4 – Spectres de RFSM pour différentes valeurs de A .

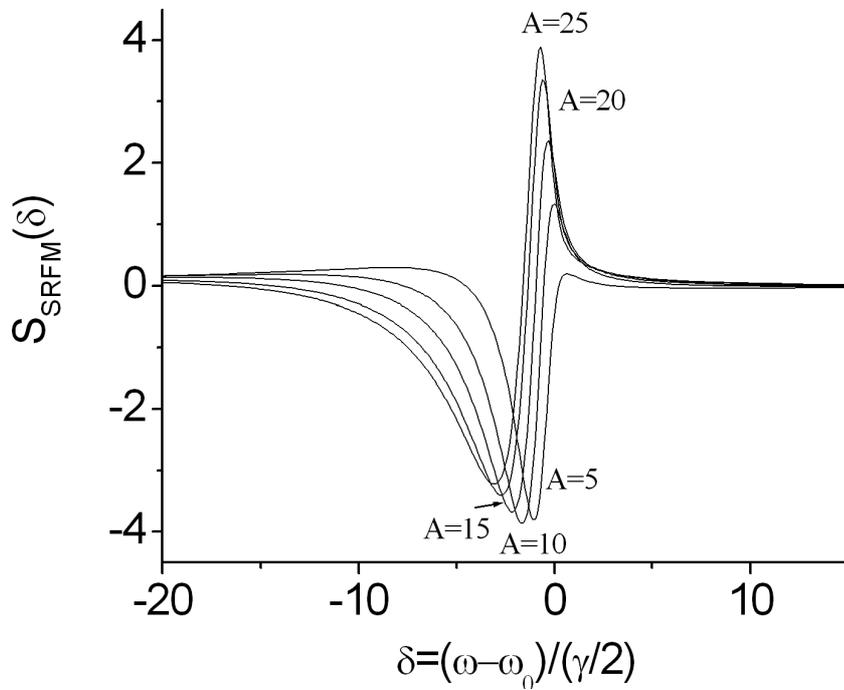


Figure 3.5 – Spectres de RFSM pour des valeurs de A entre 5 et 30.

de la courbe vers le rouge (fréquences plus petites) et une augmentation de l'amplitude des courbes. A mesure que l'on prend des valeurs de A plus grandes (figure 3.5) la forme de la courbe change complètement, avec une forme plus absorptive. Puis pour des valeurs de A encore plus grandes (figure (3.5)) un nouveau pic positif apparaît à droite, et l'on retrouve une forme plus ou moins dispersive (les largeurs des pics positif et négatif sont différentes) pour $A=25$, mais avec le signe opposé et déplacé vers le rouge par rapport à $A=0$.

La distorsion et le déplacement des formes de raies sont induits par le mélange complexe des réponses dispersive ($Re(p(z'))$) et absorptive ($Im(p(z'))$) de la vapeur, qui est intégré spatialement sur la position de l'atome (second terme de l'équation 3.13) [Che92].

Des figures théoriques précédentes obtenues pour des paramètres sans dimensions, on voit donc qu'il est a priori possible, à partir des formes de raie des spectres expérimentaux (déplacement et largeur inclus), de remonter, par comparaison avec les courbes théoriques, à une valeur de A et donc à une valeur de C_3 . La procédure utilisée est décrite avec plus de précisions dans le chapitre IV.

Quelques commentaires sur les approximations faites

Dans le traitement ci dessus du signal de réflexion sélective, quelques approximations ont été faites. Nous discutons dans la suite quelques une de ces approximations.

- **Largeur Doppler finie** : Le traitement précédent considère une largeur Doppler infinie, de sorte qu'à partir de l'équation (3.37), l'effet de la distribution de vitesses est donné par la densité d'atomes à vitesse nulle. Pour le cas réel d'une largeur Doppler finie, une correction doit être faite en tenant compte d'une contribution des atomes ayant des vitesses différentes de zéro. Cette correction modifie légèrement les ailes des spectres de réflexion sélective.
- **Trajectoires rectilignes** : Nous avons considéré que les atomes ne changent pas leur vitesse pendant l'interaction avec le champ électromagnétique. Or la présence même du potentiel d'interaction avec la surface implique une courbure des trajectoires, principalement pour les atomes ayant des vitesses parallèles à la surface, qui donnent la principale contribution au signal de RSFM. Pour des atomes relativement lourds,

comme le césium, ayant des largeurs naturelles pas trop étroites, cet effet n'est pas important [Blo05]. Pour une densité atomique plus grande, les trajectoires balistiques sont interrompues par des collisions entre atomes. Pour les densités que nous allons utiliser le libre parcours moyen est de quelques dizaines de micromètres, assez grand par rapport aux distances sondées, ce qui justifie l'utilisation de l'approche balistique.

- **Incidence oblique :** Pour une expérience de réflexion sélective avec une incidence non normale, on prévoit un élargissement des spectres [Duc91]. L'élargissement des formes de raies est de l'ordre de $ku\theta$ et est négligeable pour des angles d'incidence, $\theta \leq \gamma/ku$.

3.5 Courbes de réflexion sélective FM en présence d'un potentiel de surface $-C_2/z^2$

Dans une manipulation réelle, les surfaces peuvent être contaminées par des charges ou par des atomes adsorbés (adatomes) à la surface. Une partie de la charge de valence de ces adatomes peut être partagée avec la surface, donnant lieu à des dipôles électriques [McG04]. L'interaction des champs produits par ces dipôles sur des condensats de Bose-Einstein a été étudiée et observée par [McG04]. Ces effets, relativement importants pour des surfaces conductrices, sont beaucoup moins importants pour la surface d'un isolant. Pour un dipôle isolé, le potentiel d'interaction en $V = -\vec{\mu} \cdot \vec{E}$, où $\vec{\mu}$ est le moment dipolaire de l'atome et \vec{E} est le champ électrique produit par le dipôle à la surface, a une dépendance spatiale en $1/z^3$. Cependant, s'il y a une distribution linéaire de dipôles sur la surface, ce même potentiel d'interaction doit avoir une dépendance spatiale en $1/z^2$. Dans [McG04] une dépendance entre $1/z^3$ et $1/z^2$ a été trouvée. Une distribution d'adatomes sur la surface peut aussi induire une charge surfacique distribuée qui peut interagir avec l'atome de la vapeur produisant un potentiel du type $-C_2/z^2$.

Le formalisme décrit auparavant (jusqu'à l'équation 3.32) est général et peut être appliqué à toute interaction de surface. Nous nous sommes donc intéressés au calcul du spectre de réflexion sélective FM dans le cas où l'interaction de surface est du type $-C_2/z^2$. Similairement au traitement fait pour l'interaction vdW, les courbes de RSBM peuvent être décrites à partir d'un seul paramètre sans dimension $A_2 = \frac{C_2 k^2}{\gamma/2}$. Les figures (3.6-3.7),

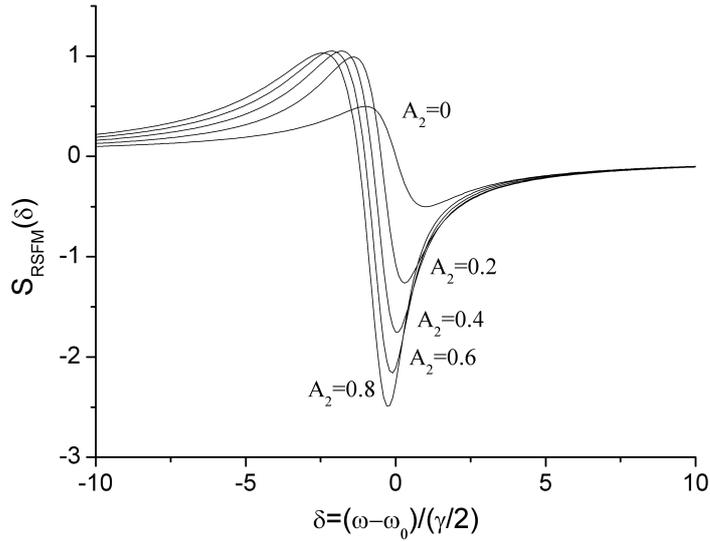


Figure 3.6 – Spectres de RFSM en présence d'un potentiel de surface du type $-C_2/z^2$, pour de valeurs de $A_2 = 0$ à $A_2 = 0.8$.

montrent l'évolution des courbes de réflexion sélective FM pour les différentes valeurs de A_2 . On observe une évolution qualitativement similaire à celle observée pour l'interaction de vdW (courbes (3.4-3.5)). Si nous comparons avec plus de détails les courbes pour les deux

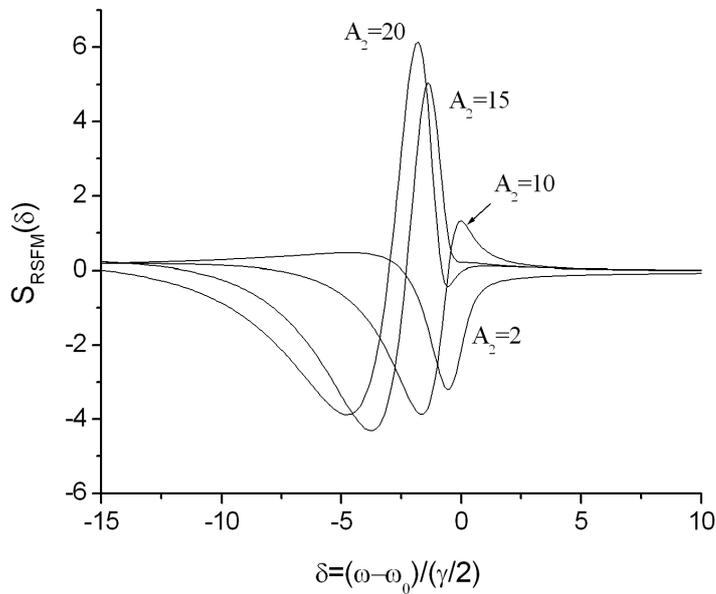


Figure 3.7 – Spectres de RFSM en présence d'un potentiel de surface du type $-C_2/z^2$, pour des valeurs de $A_2 = 2$ à $A_2 = 20$.

potentiels différents, on note tout de même quelques petites différences entre les courbes (figure 3.8) : les courbes A_2 sont légèrement décalées vers le rouge par rapport aux courbes A . Par exemple, sur la figure (3.8) on note que la courbe avec $A_2 = 15$ est décalée d'environ 0.3γ vers le rouge par rapport à la courbe avec $A=26$. On note aussi une différence sur la pente de

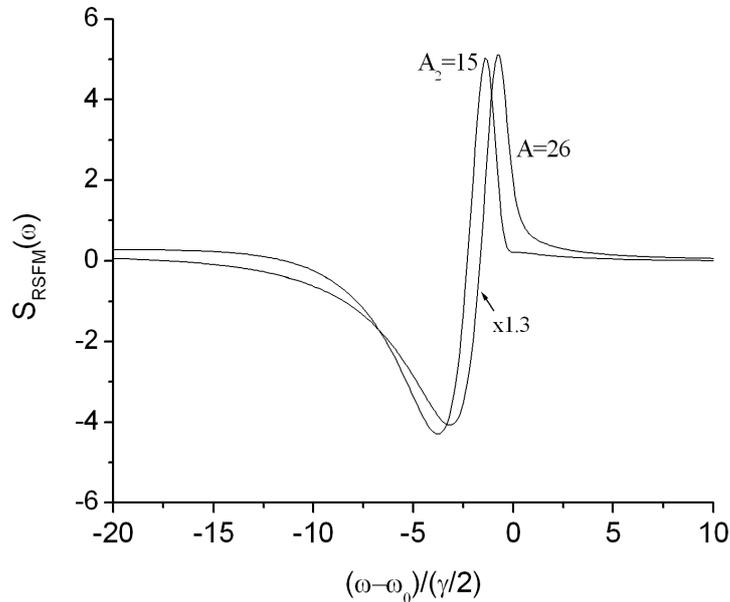


Figure 3.8 – Comparaison entre les courbes $A_2 = 15$ pour une interaction de surface du type $-C_2/z^2$ et avec $A = 26$ pour une interaction de surface du type $-C_3/z^3$. La courbe $A = 26$ a été multipliée par 1.3 pour que les deux courbes aient les mêmes amplitudes.

l'aile basse fréquence et une courbe qui va à zéro plus rapidement sur l'aile haute fréquence pour la courbe $A_2 = 15$. Ces résultats, qui seront utiles dans le chapitre IV, peuvent permettre de vérifier si l'interaction de surface, observée via les spectres de RS, est en $-C_3/z^3$ ou en $-C_2/z^2$. Dans [Che92] une comparaison préliminaire des formes de raies théoriques de RS pour les potentiels en $1/z^2$ et $1/z^3$ a été faite (ainsi que pour du $1/z^4$), mais aucune étude systématique comparant les courbes théoriques aux spectres expérimentaux n'a été réalisée.

3.6 Conclusion

Nous avons, dans ce chapitre, étudié le formalisme de la technique de réflexion sélective. Nous avons vu que cette technique est sensible aux variations de la réponse atomique, sur une épaisseur de vapeur d'environ $\lambda/2\pi$, où λ est la longueur d'onde de la lumière utilisée. Cette technique peut être utilisée pour sonder l'interaction de vdW entre un atome excité

et une surface transparente.

L'utilisation de cette technique avec une modulation de fréquence permet d'obtenir des spectres sub-Doppler, où la contribution dominante vient des atomes ayant des vitesses quasi parallèles à la surface. Ces spectres sont caractérisés par un unique paramètre sans dimension $A = \frac{C_3 k^3}{\gamma/2}$, ce qui permet, par comparaison entre courbes expérimentales et théoriques, de remonter à la valeur de C_3 .

Nous avons aussi calculé des formes de raie de réflexion sélective pour un potentiel atome-surface du type $-C_2/z^2$ (défini par un paramètre sans dimension $A_2 = \frac{C_2 k^2}{\gamma/2}$), qui peut être induit par un ensemble d'atomes adsorbées sur la surface. Les formes de raie de réflexion sélective pour ce potentiel sont analogues à celles du potentiel vdW mais avec un déplacement vers le rouge plus grand. Nous verrons au chapitre IV que cette différence peut être utilisée pour distinguer, pour une série de spectres, entre une interaction $-C_2/z^2$ et $-C_3/z^3$.

Dans le chapitre suivant nous allons décrire l'expérience de réflexion sélective effectuée pour mesurer le coefficient de vdW pour Cs(8P) et nous détaillerons comment, à partir des courbes théoriques on peut extraire des spectres expérimentaux les informations qui nous intéressent.

Bibliographie

- [Aku82] A.M. Akul'shin, V.L. Velichanskii, A.S. Zibrov, V.V. Nitikin, V.A. Sautenkov, E.K. Yurkin et N.V. Senkov « Collisional broadening of intra-Doppler resonances of selective reflection on the D₂ line of cesium », *JEPT Lett.* **36**, 303 (1982)
- [And88] A. Anderson, S. Haroche, E.A. Hinds, W. Jhe et D. Meschede « Measuring van der Waals forces between a Rydberg atom and a metallic surface », *Phys. Rev. A* **37**, 3594 (1988)
- [Blo05] D. Bloch et M. Ducloy, « Atom-Wall Interaction » dans « *Advances in Atomic, Molecular and Optical Physics*, vol.50 », B. Bederson and H. Walther, Elsevier Academic Press, San Diego, 2005 pp. 91- 156
- [Che92] M. Chevrollier, M. Fichet, M. Oria, G. Rahmat, D. Bloch et M. Ducloy « High resolution selective reflection spectroscopy as a probe of long-range surface interaction : measurement of the surface van der Waals attraction exerted on excited Cs atoms », *J. Phys II France* **2**, 631 (1992)
- [Coj54] J.L. Cojan « Contribution à l'étude de la réflexion sélective sur les vapeurs de mercure de la radiation de résonance de mercure », *Ann. Phys. (Paris)* **9**, 185 (1954)
- [Duc91] M. Ducloy et M. Fichet « General theory of frequency modulated selective reflection. Influence of atom surface interactions. », *J. Phys. II France* **1**, 1429 (1991)
- [Fic07] M. Fichet, G. Dutier, A. Yarovitsky, P. Todorov, I. Hamdi, I. Maurin, S. Saltiel, D. Sarkisyan, M.-P. Gorza, D. Bloch et M. Ducloy « Exploring the van der Waals atom-surface attraction in the nanometric range », *Europhys. Lett.* **77**, 54001 (2007)
- [Gri99] R.E. Grisenti, W. Schöllkopf, J.T. Toennies, G.C. Hegerfeldt et T. Köhler « Determination of atom-surface potentials from transmission-grating diffraction intensities », *Phys. Rev. Lett.* **83**, 1755 (1999)

- [Lan96] A. Landragin, J.-Y. Courtois, G. Labeyrie, N. Vansteenkiste, C.I. Westbrook et A. Aspect « Measurement of the van der Waals force in an atomic mirror », *Phys. Rev. Lett.* **77**, 1464 (1996)
- [McG04] J.M. McGuirk, D.M. Harber, J.M. Obrecht et E.A. Cornell « Alkali-metal adsorbate polarization on conducting and insulating surfaces probed with Bose-Einstein condensates », *Phys. Rev. A* **69**, 062905 (2004)
- [Moh06] A.K. Mohapatra et C.S. Unnikrishnan « Measurement of the van der Waals force using reflection of cold atoms from magnetic thin-film atom mirrors », *EuroPhys. Lett.* **73**, 839 (2006)
- [Pap94] N. Papageorgiou, M. Fichet, V. Sautenkov, D. Bloch et M. Ducloy « Doppler-free reflection spectroscopy of self-induced and krypton-induced collisional shift and broadening of cesium D₂ line components in optically dense vapor », *Laser Phys.* **4**, 392 (1994)
- [Ori91] M. Oriá, M. Chevrollier, D. Bloch, M. Fichet et M. Ducloy « Spectral observation of surface induced van der Waals on atomic vapour. », *Europhys. Lett.* **14**, 527 (1991)
- [Ras69] D. Raskin et P. Kusch « Interaction between a neutral atomic or molecular beam and a conducting surface », *Phys. Rev.* **179**, 712 (1969)
- [San92] V. Sandoghdar, C.I. Sukenik, E.A. Hinds et S. Haroche « Direct measurement of the van der Waals interaction between an atom and its image in a micron-sized cavity », *Phys. Rev. Lett.* **68**, 3432 (1992)
- [Woe75] J.P. Woerdman, M.H.F. Shuurmans « Spectral narrowing of selective reflection from sodium vapour », *Opt. Comm.* **14**, 248 (1975)
- [Woo09] R.W. Wood « The selective reflection of monochromatic light by mercury vapor », *Phil. Mag.* **18**, 187 (1909)

Chapitre 4

Expériences de réflexion sélective sur les niveaux $8P_{3/2}$ et $8P_{1/2}$ du césium

Dans ce chapitre nous décrivons les expériences de réflexion sélective sur la transition $6S \rightarrow 8P$ du césium à proximité de surfaces de CaF_2 et de saphir.

Comme nous l'avons vu dans le chapitre I, l'interaction de van der Waals entre un atome de césium dans l'état $8P_{3/2}$ ou $8P_{1/2}$, et une surface de CaF_2 , donne lieu à un couplage résonnant entre une émission thermique de la surface et une absorption atomique, de telle sorte que le coefficient de vdW, C_3 , est modifié par un changement de la température de la surface. Une mesure de ce changement permet d'étudier le déplacement de niveau atomique induit par une modification du nombre de photons par mode électromagnétique du vide en équilibre thermique avec la surface [Gor06].

Pour réaliser ces mesures, nous utilisons la technique de réflexion sélective, décrite dans le chapitre précédent, à l'interface entre la vapeur de césium et une surface de CaF_2 . Nous réalisons en même temps une expérience de réflexion sélective à une interface de saphir pour laquelle aucun changement notable de C_3 en température n'est attendu (voir chapitre II), cette dernière expérience nous servant de référence. Un premier défi de la réalisation de cette expérience, compte tenu de la faible force d'oscillateur des transitions utilisées (principalement pour la transition $6S_{1/2} \rightarrow 8P_{1/2}$), est que le bruit soit faible pour avoir un signal sur bruit raisonnable.

Nous commencerons ce chapitre en mentionnant les mesures en réflexion sélective déjà effectuées pour l'atome Cs($8P_{3/2}$) en interaction avec une surface de saphir. Ensuite nous décrirons le montage expérimental utilisé dans cette expérience en détaillant chaque composante de ce montage. La cellule utilisée dans les manipulations sera décrite avec plus de détails car il s'agit d'un point clé du montage expérimental. Nous décrirons ensuite la méthode d'ajustement des courbes théoriques aux courbes expérimentales et comment à partir de celle-ci nous obtenons les informations intéressantes. Nous finirons par discuter les résultats pour des expériences de réflexion sélective sur les transitions $6S_{1/2} \rightarrow 8P_{3/2}$ et $6S_{1/2} \rightarrow 8P_{1/2}$ du césium en interaction avec une surface de saphir et de CaF_2 .

4.1 Résultats expérimentaux antérieurs à cette thèse : interaction de vdW entre un atome de Cs($8P_{3/2}$) et une surface de saphir et processus collisionnels pour ce niveau.

Avant mon arrivée dans l'équipe, des mesures de réflexion sélective sur la transition $6S_{1/2} \rightarrow 8P_{3/2}$ du césium à au voisinage d'une surface de saphir furent réalisées [Cha05]. De telles expériences avaient pour but de vérifier la faisabilité de mesures de réflexion sélective sur la troisième raie de résonance du césium ($6S \rightarrow 8P$), rendues problématiques par la faible force d'oscillateur de cette transition. Nous utiliserons les résultats obtenus [Cha05] et publiés précédemment [Cha07] dans l'analyse de nos propres résultats.

Dans [Cha07], des mesures de réflexion sélective ont été faites sur la transition $6S_{1/2} \rightarrow 8P_{3/2}$ pour les deux niveaux hyperfins fondamentaux ($6S_{1/2}$ F=3 et F=4) en variant la densité de césium de la vapeur (pour s'assurer de la cohérence des mesures d'interaction atome surface). La valeur obtenue pour le coefficient de vdW était $C_3 = 73 \pm 10 \text{ kHz} \times \mu\text{m}^3$. Cette valeur est environ 1.6 fois supérieure à l'estimation ($C_3^T = 44 \text{ kHz} \times \mu\text{m}^3$) et plus proche de la valeur théorique pour l'atome de césium $8P_{3/2}$ face à une l'interface avec réflecteur parfait ($C_3^{(Rp)} = 74 \text{ kHz} \times \mu\text{m}^3$).

En utilisant une cellule de $100\mu\text{m}$ d'épaisseur, des expériences d'absorption saturée

sur le niveau $8P_{3/2}$ du césium ont permis d’avoir des informations sur l’élargissement et le déplacement collisionnel aux densités de vapeur utilisées pour l’expérience de réflexion sélective [Cha07]. A cause de la non-résolution des composantes hyperfines, il n’a pas été possible de différencier les déplacements et élargissements des différents niveaux hyperfins. Un déplacement collisionnel d’environ -60MHz/Torr et un élargissement d’environ 180MHz/Torr ont été obtenus [Cha07].

4.2 Le montage expérimental

Comme indiqué au chapitre précédent, une expérience de réflexion sélective consiste à mesurer un changement de la réflexion, à l’interface entre une vapeur atomique et une surface, quand la fréquence de l’onde électromagnétique est proche de celle de la transition atomique. Les éléments de base pour réaliser l’expérience consistent en : (i) une source de lumière laser suffisamment étroite spectralement pour mesurer la structure sub-Doppler du spectre de réflexion sélective ; (ii) une cellule hermétique avec un bon vide contenant la vapeur de césium et ayant des fenêtres dans le matériau de la surface que l’on veut étudier (dans notre cas du CaF_2 et du Saphir). Le principe de l’expérience consiste à illuminer ces fenêtres avec la lumière résonnante dont on balaye la fréquence autour de la résonance de la vapeur, et à mesurer l’intensité réfléchi. En plus de la réflexion sélective, le montage expérimental inclut une expérience auxiliaire de référence de fréquence par absorption saturée. Le schéma du montage expérimental est montré à la figure (4.1). Par la suite nous détaillons chaque élément du montage, qui inclut en outre un système d’acquisition et de traitement de signal, ainsi qu’une voie optique (Fabry-Perot) de contrôle du balayage de fréquence laser.

4.2.1 Les sources lasers

Les transitions atomiques que nous voulons sonder ont des longueurs d’onde de 387.6 nm , pour la transition $6S_{1/2} \rightarrow 8P_{1/2}$, et 388.8 nm , pour la transition $6S_{1/2} \rightarrow 8P_{3/2}$. Une première difficulté technique rencontrée pour réaliser l’expérience est de trouver une source émettant à cette longueur d’onde. En effet vu le petit nombre de laboratoires utilisant de telles longueurs d’ondes, cette région spectrale n’intéresse pas commercialement les industriels, de telle sorte qu’aujourd’hui, il n’y a pas de diodes lasers émettant dans cette gamme

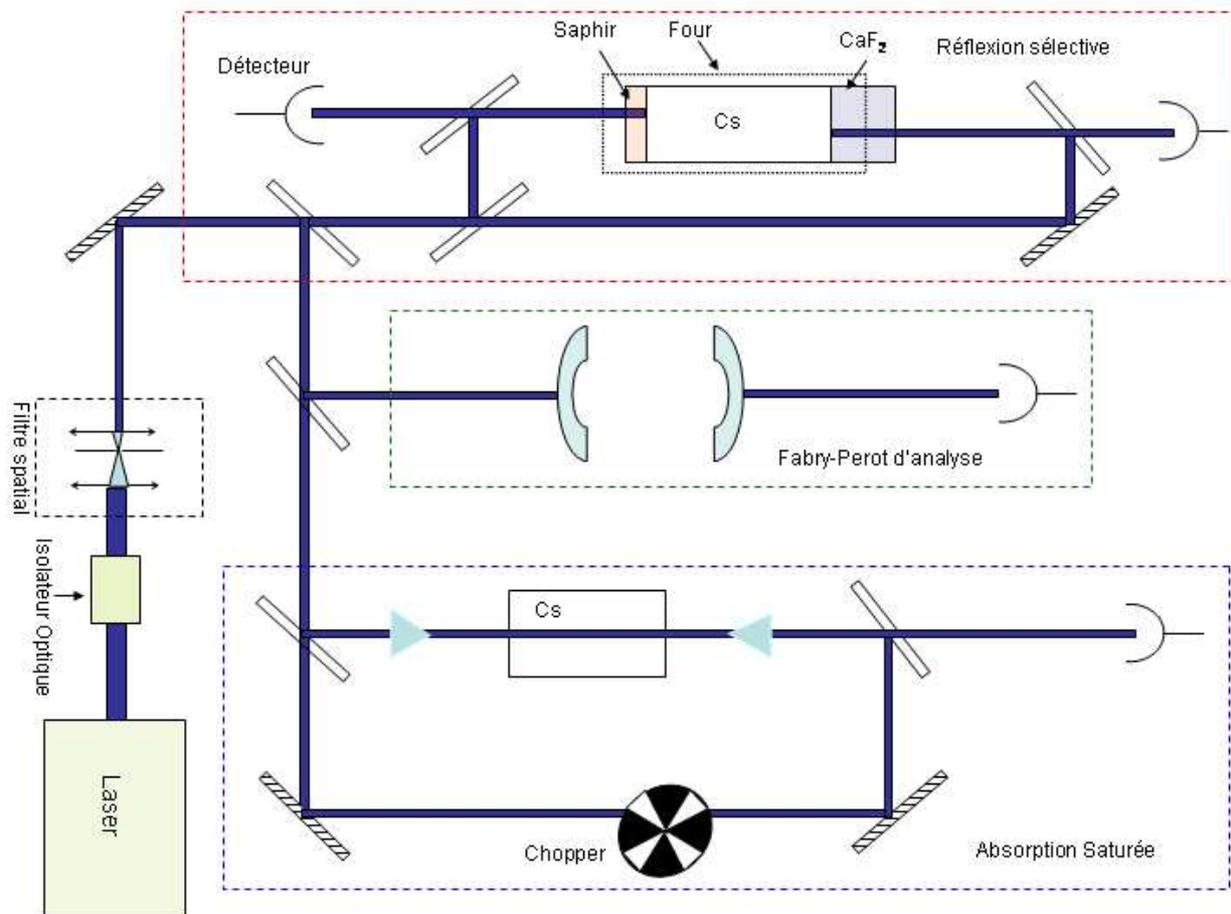


Figure 4.1 – Schéma décrivant le montage réalisé pour l'expérience de réflexion sélective et pour les expériences auxiliaires (Absorption saturée, Fabry-Perot).

qui soient commercialisées. Dans un premier temps (en 2001), l'équipe avait pu tout de même acheter un système à cavité étendue (Toptica DL100) équipé d'une diode laser (fabriquée par Nichia) spécifique pour cette gamme de longueur d'onde. Dans un deuxième temps nous avons acheté un système avec une diode laser infra-rouge amplifiée et cavité de doublage de fréquence pour atteindre la longueur d'onde 387-389 nm. Chacune de ces sources présente des particularités que nous discutons par la suite.

4.2.1.1 Modulation de fréquence

Pour faire l'expérience de réflexion sélective nous avons besoin de balayer la fréquence laser et de faire une modulation de fréquence (FM). L'amplitude du signal de réflexion sélective est proportionnelle à l'amplitude de modulation de fréquence, tant que celle-ci est plus petite que la largeur du signal RS. Nos signaux de RS ont des largeurs typiques entre

15 MHz et 30 MHz dépendant de la densité de césium. Nous utilisons donc des amplitudes de modulation de $\sim 5\text{-}10$ MHz. En générale le bruit sur la mesure, ayant pour origine le laser ou la vibration des optiques, diminue pour des fréquences de modulation plus élevées. Il est donc intéressant de faire la FM aux fréquences les plus élevés possibles. Dans le cas d'une mesure de spectroscopie linéaire (comme la réflexion sélective utilisé ici) la fréquence de modulation est limitée par le taux de relaxation de l'état excité sondé (quelques MHz). Cependant, nous rencontrons souvent des limites plus basses liées à la technologie du laser. Pour chacune de nos sources lasers, nous avons des problèmes spécifiques pour produire la modulation de fréquence.

4.2.1.2 La diode laser

La première source que nous avons utilisée était une source DL 100 de Toptica. Cette source consiste en une diode laser montée en cavité étendue (avec un réseau), le tout stabilisé en température. La diode laser Nichia utilisée avait pour caractéristique une relativement faible puissance émise (≈ 1.5 mW) et un mode spatial peu uniforme, avec notamment différentes régions du faisceau possédant différents seuils d'émission. Un filtrage optique était donc nécessaire pour améliorer le mode spatial : celui-ci a été réalisé en focalisant le faisceau sur un « pin hole » d'environ $50 \mu\text{m}$ de diamètre. Avec le filtrage optique et les optiques présentant des pertes pour notre longueur d'onde, la puissance utile pour l'expérience (RS+Fabry Perot + Absorption saturée) se réduisait à environ $300 \mu\text{W}$. Une des raisons de la faible puissance laser est son fonctionnement très proche du seuil. Nominale, le seuil du laser est de 39mA alors que son point de fonctionnement maximum est de 44mA à 20°C . Le balayage de fréquence et la FM ont été obtenus en déplaçant le réseau de la cavité grâce à une tension (rampe plus modulation) appliquée sur un élément piézoélectrique. Les élément piézo-électrique ont généralement une fréquence de coupure de quelques kHz, de sorte que nous devons nous limiter à des fréquences de modulation en dessous de la fréquence de coupure.

Modulation d'amplitude résiduelle.

Un des problèmes que nous avons rencontré avec ce laser est que quand on appliquait une modulation de fréquence, on obtenait aussi une modulation d'amplitude résiduelle.

Dans l'expérience, nous détectons de façon synchrone, c'est-à-dire que nous ne détectons que la composante du signal à la fréquence de modulation, à l'aide d'un amplificateur à détection synchrone (« Lock-in »). La modulation d'amplitude résiduelle apparaît après la détection synchrone, comme un décalage (offset). Les variations de la modulation d'amplitude résiduelle lors du balayage laser sont perçues comme des « oscillations » en fréquence laser sur cet offset (voir figure (4.2a)). Nous avons vérifié que la modulation d'amplitude résiduelle est en phase avec la modulation de fréquence, sur tout le balayage laser.

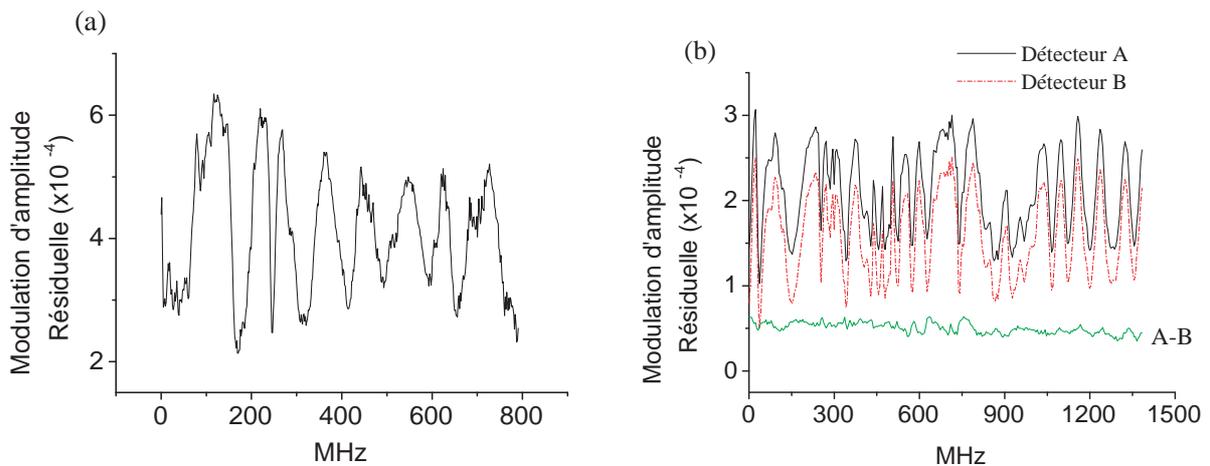


Figure 4.2 – (a) Variation de la modulation d'amplitude résiduelle lors du balayage du laser ; (b) illustration de la méthode de soustraction de la modulation d'amplitude résiduelle par le signal démodulé d'un détecteur de référence.

Nous avons dans un premier temps vérifié que l'origine de la modulation d'amplitude résiduelle ne vient pas d'une composante du système de la cavité étendue (défauts sur le réseau, retour optique par des défauts sur la lentille asphérique de collimation). La modulation d'amplitude résiduelle semble venir de la diode elle-même et peut être une conséquence de la proximité du point de fonctionnement avec le seuil laser. En effet, le déplacement du réseau pour effectuer la modulation FM peut modifier l'accord entre la fréquence libre et la fréquence de la cavité étendue, modifiant légèrement le seuil et l'efficacité du couplage et ainsi la puissance émise (le problème est amplifié par le vieillissement de la diode).

Le fait que la modulation d'amplitude résiduelle a son origine dans la source elle-même nous permet de l'éliminer en faisant une soustraction des oscillations après démodulation

en utilisant pour cela une détection synchrone supplémentaire de référence (figure (4.2b)). Avant de faire la soustraction nous normalisons chaque signal démodulé (contenant les oscillations) par la tension fourni par chaque détecteur avant démodulation. Cette méthode nous a permis de réduire les oscillations par un facteur d'environ 5-10.

Signalons qu'avec ce laser, il nous a été impossible de réaliser l'expérience sur $Cs(8P_{1/2})$. Le signal RS étant faible, à cause de la petite force d'oscillateur de la transition $6S_{1/2} \rightarrow 8P_{1/2}$, il est masqué par les variations de l'amplitude résiduelle. De plus, la faible puissance laser disponible pour l'expérience empêche la réalisation de l'absorption saturée de référence.

4.2.1.3 Source à 388nm par génération de second harmonique

Fin 2007 nous avons disposé d'un nouveau système laser, qui consiste en une diode émettant à 777nm, un amplificateur adapté, et un système de doublage en fréquence. Le laser maître est une diode laser avec cavité étendue (système DL 100 de Toptica). La cavité de doublage est une cavité en anneau à quatre miroirs et est montrée sur la figure 4.3. Le

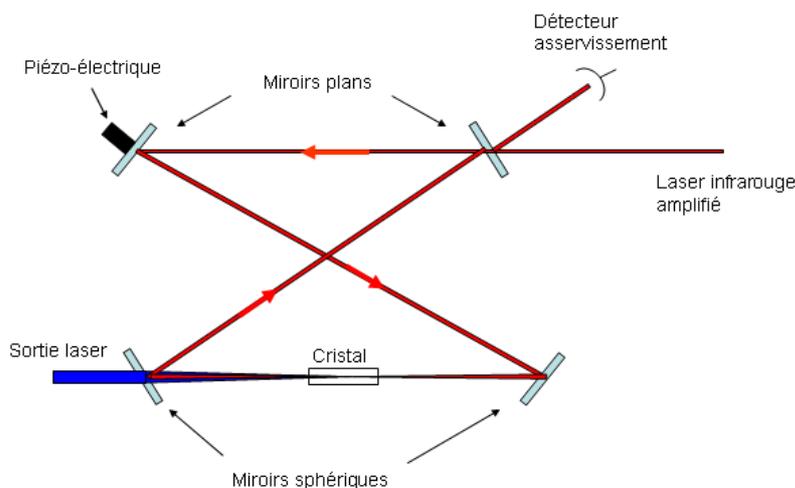


Figure 4.3 – Schéma de principe de la cavité de doublage du laser.

laser maître a une modulation de fréquence avec bandes latérales de 20MHz. La réflexion du faisceau venant du laser infrarouge amplifié sur le miroir d'entrée de la cavité est détectée avec une détection synchrone. Le signal fourni par cette détection est utilisé comme signal d'erreur pour asservir la longueur de la cavité. Quand la longueur de la cavité est un multiple de la longueur d'onde du laser maître, le faisceau est transmis par la cavité et la réflexion

du miroir d'entrée chute à zéro. La cavité est donc asservie en longueur sur le minimum de réflexion du miroir d'entrée en appliquant une tension à un élément piézo-électrique collé sur un des miroirs de la cavité. La cavité de doublage en anneau possède deux miroirs plans (celui d'entrée et celui actionné par le piézo-électrique) et deux miroirs sphériques servant à focaliser le faisceau dans le cristal non linéaire où l'ajustement de phase pour avoir une bonne efficacité de conversion $775.2 \text{ nm} \rightarrow 387.6 \text{ nm}$ est critique en angle. Le faisceau 388 nm est transmis par le miroir sphérique. Ce laser nous permet d'avoir une puissance de sortie de 100 mW (optimum) avec un faisceau légèrement elliptique et astigmaté. Nous utilisons un filtrage spatial comme celui présenté à la figure (4.1) pour que le mode soit le plus proche d'un TEM_{00} .

Méthodes de modulation de fréquence sur le laser doublé

A cause de la cavité de doublage, appliquer une modulation de fréquence au niveau du laser maître (via le réseau) induit une modulation d'amplitude assez grande. Le système d'asservissement essaye de corriger la longueur de la cavité à tout moment pour qu'elle soit résonnante. Un déphasage entre la modulation de fréquence et les corrections sur la cavité fait que la modulation d'amplitude résiduelle est « aléatoire ». Pour éviter ce problème, la réalisation d'une modulation de fréquence extérieure via l'utilisation d'un modulateur acousto-optique est souhaitable (et a été possible après réception d'un modulateur acousto-optiques adaptés à notre longueur d'onde en août 2008). Le faisceau diffracté à l'ordre 1 par un acousto-optique a une fréquence décalée de la fréquence acoustique par rapport à la fréquence du faisceau entrant. Une modulation de la fréquence acoustique induit donc une modulation de fréquence sur le faisceau diffracté à l'ordre 1. Comme l'angle de diffraction dépend aussi de la fréquence acoustique, la modulation induit aussi une variation de cet angle, rendant impossible un bon alignement du faisceau. Ce problème est résolu par un montage en double passage où le faisceau diffracté à l'ordre 1 est renvoyé sur lui-même dans l'acousto-optique (voir figure 4.4). Le double passage décale la fréquence du faisceau du double de la fréquence acoustique et corrige la déviation angulaire. Il est apparu que la modulation de fréquence faite via la fréquence acoustique induit une modulation d'amplitude résiduelle, qui possède des composantes sur plusieurs harmoniques de la fréquence de modulation. L'origine de l'apparition des différentes harmoniques semblerait être l'existence d'une « structure » sur le spectre d'efficacité de l'acousto-optique : bien qu'un bon modulateur acousto-optique

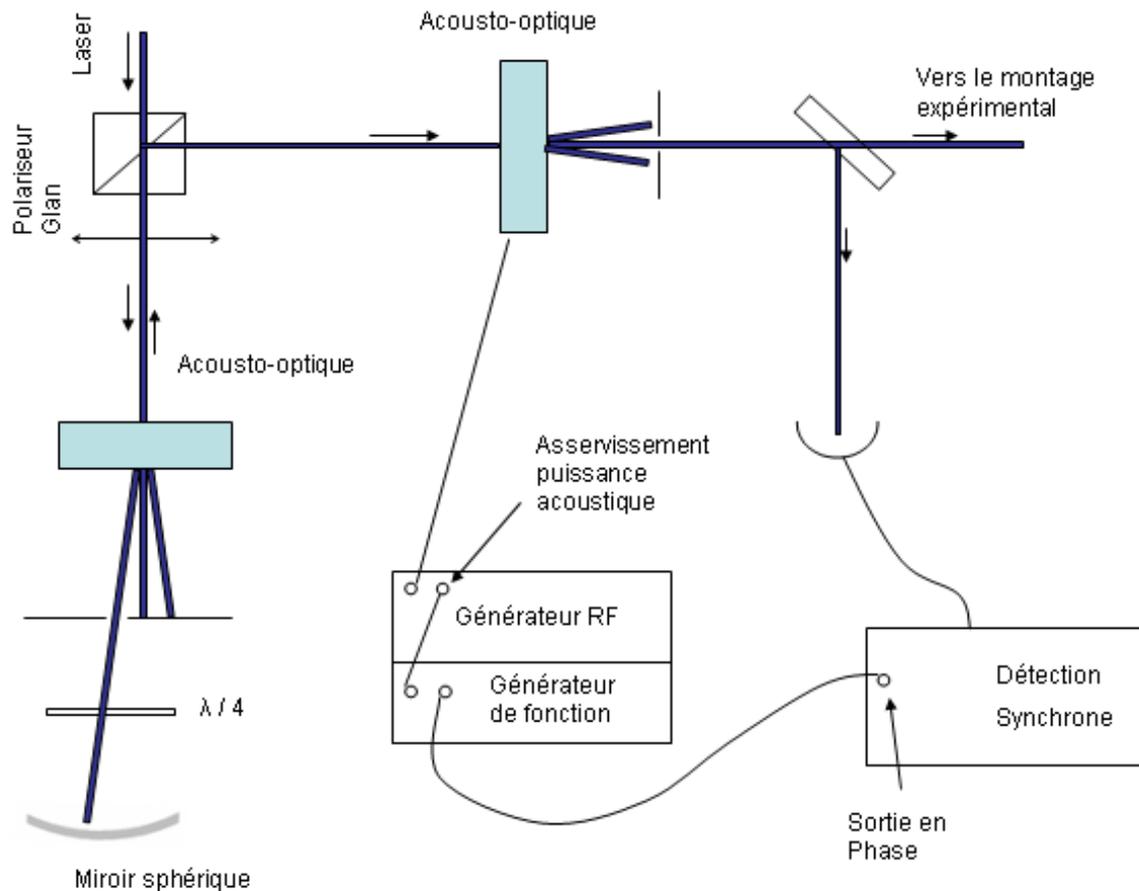


Figure 4.4 – Schéma illustrant le montage utilisé pour réaliser la modulation de fréquence externe au laser et pour corriger la modulation d'amplitude résiduelle.

soit censé avoir une efficacité assez plate avec la fréquence de l'onde acoustique (dans le domaine de résonance du transducteur), nous avons observé des oscillations dans l'efficacité de diffraction avec une période d'environ 300 kHz (figure 4.5). De telles oscillations sont vraisemblablement dues à une réflexion parasite de l'onde acoustique sur la surface du cristal produisant une onde stationnaire (non uniforme) à l'intérieur de celui-ci comme nous l'a confirmé le constructeur des modulateurs acousto-optiques.

Tentatives d'élimination de la modulation d'amplitude résiduelle

Dans un premier temps, nous avons cherché à utiliser un stabilisateur de puissance commercial pour éliminer la modulation d'amplitude résultante. Le bruit rapide (variation rapide de la modulation d'amplitude) était relativement bien éliminé par le stabilisateur,

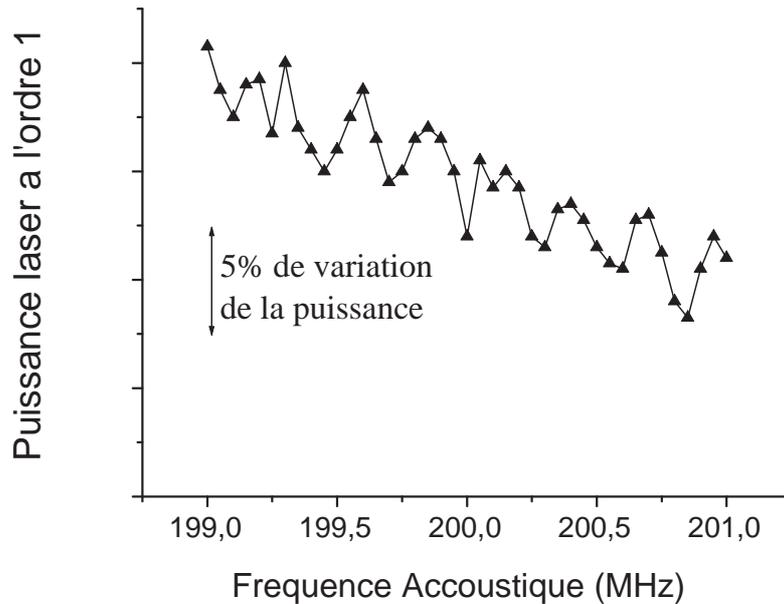


Figure 4.5 — *Oscillations sur la puissance du faisceau diffracté par l'acousto-optique à l'ordre 1 en fonction de la fréquence acoustique.*

par contre, les fluctuations lentes (sur des dizaines de secondes) n'étaient pas suffisamment atténuées. L'optique du stabilisateur n'étant pas tout à fait adaptée à notre longueur d'onde, le faisceau de sortie était accompagné de réflexions multiples qui peuvent interférer, de telle sorte que la technique de soustraction de deux signaux après démodulation perd en efficacité (le faisceau n'est pas spatialement uniforme, et le signal obtenu après démodulation dépend de la géométrie de la fraction détectée).

Après réception des acousto-optiques, nous avons cherché pour éliminer la modulation d'amplitude résiduelle, à utiliser un second acousto-optique, qui travaille à l'ordre zéro (voir schéma figure 4.4) avec une onde acoustique de faible puissance. Nous modulons la puissance acoustique à la même fréquence que celle de la modulation de fréquence, et avec une phase ajustée de façon à produire une modulation d'amplitude sur l'ordre zéro qui tend à compenser la modulation d'amplitude résiduelle du premier acousto-optique. Même avec un système d'asservissement, la présence de plusieurs harmoniques sur la modulation d'amplitude résiduelle, les variations au cours de la journée (probablement par un effet de température) du spectre d'efficacité (présenté sur la figure (4.5)), rendent cette méthode inadaptée quand la modulation de fréquence est faite extérieurement via un modulateur

acousto-optique. Nous avons donc fait une modulation de fréquence sur le laser maître, en utilisant un modulateur acousto-optique pour éliminer la modulation résiduelle. Ce montage nous a permis d'avoir un bruit sur les signaux démodulés d'environ 5×10^{-6} en valeur relative (pour des temps d'intégration de 300 ms), ce que l'on a considéré comme satisfaisant. Notons que nous sommes bien au dessus du niveau du bruit quantique estimé à 10^{-7} . Un des points négatifs de ce schéma est que notre modulation de fréquence doit alors être faite assez lentement (130 Hz), dans un domaine de fréquence qui est assez sensible au bruit acoustique et mécanique, à cause d'une limitation de la bande passante d'asservissement pour la cavité de doublage.

4.2.2 Le Fabry Perot

Pour l'un ou l'autre de nos systèmes lasers, le balayage en fréquence est obtenu par une rampe de tension appliquée sur l'élément piézo-électrique qui tourne le réseau. Il nous faut convertir, dans l'analyse de nos résultats, cette rampe de tension en rampe de fréquence laser, la linéarité de la conversion fréquence/tension n'étant pas évidente. Pour cela nous utilisons

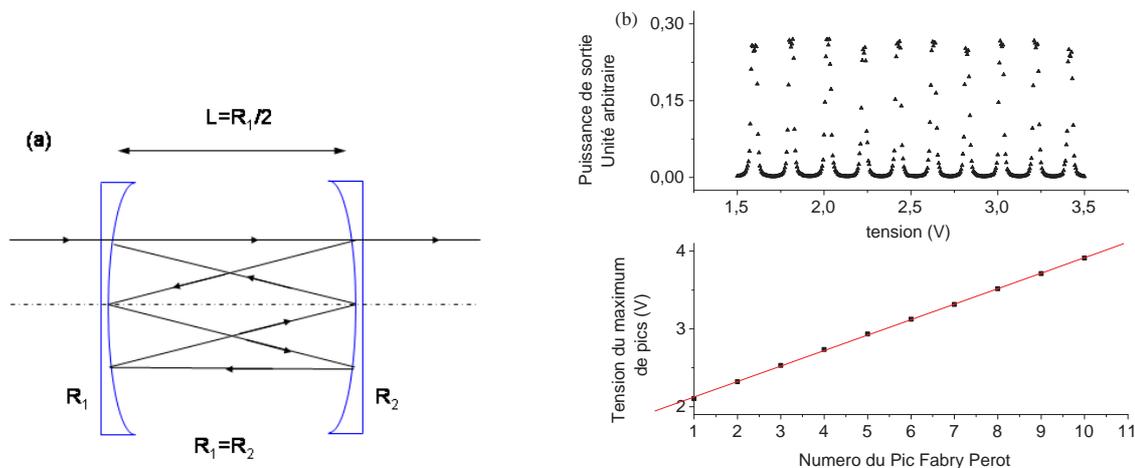


Figure 4.6 – (a) Schéma illustrant le chemin optique du rayon lumineux à l'intérieur du Fabry Perot utilisé. Le rayon interfère avec lui-même après avoir traversé la cavité six fois (trois aller-retour). (b) Exemple de pics du Fabry Perot obtenus avec le balayage de la tension de l'élément piézo-électrique collé au réseau, et vérification de la linéarité du balayage.

une cavité Fabry Perot qui nous sert de marqueur de fréquence. Comme nous faisons des balayages relativement petits autour de la résonance atomique (≈ 1 GHz), un Fabry-Perot avec un intervalle spectral libre petit par rapport à 1 GHz, est nécessaire. Notre Fabry Perot

est une cavité afocale avec deux miroirs sphériques de rayon de courbure $R = 2L$, où L est la distance entre les deux miroirs (voir figure 4.6a) : la distance optique parcourue par le rayon dans une boucle d'interférence est en général (sauf dégénérescence) égale à six fois la distance entre les miroirs. Nous disposons d'un marqueur Fabry Perot construit dans un matériau très stable (ULE), avec $L=60$ cm, ce qui nous donne une longueur spectrale libre de $\frac{c}{6L} = 83$ MHz. Sur de longs balayages, la variation de fréquence avec la tension appliquée au piézoélectrique est plutôt quadratique, mais sur des balayages plus petits, comme ceux faits dans nos expériences, une approximation linéaire pour la conversion tension/fréquence est satisfaisante voir figure 4.6b.

Le corps de la cavité Fabry-Perot que nous utilisons est rempli d'air. La stabilité du corps de Fabry-Perot est telle que ce sont les changements de pression/température ambiante, (de la salle) qui modifient l'indice de réfraction de l'air, qui sont responsables de déplacements des pics de résonance de la cavité. Des dérives des pics du Fabry Perot d'environ 20 MHz/h ont été détectées. Sur les temps d'acquisition typiques que nous utilisons (≈ 10 minutes) cette dérive est faible, et ne gêne pas l'utilisation du Fabry Pérot comme marqueur de fréquence.

4.2.3 La vapeur de césium et l'absorption saturée

En plus de savoir convertir le balayage de tension en balayage de fréquence, il nous est nécessaire d'avoir une référence de la résonance atomique en volume pour connaître l'écart entre celle-ci et le spectre de réflexion sélective. En parallèle au montage principal de réflexion sélective, nous réalisons une expérience auxiliaire d'absorption saturée (AS) qui permet d'avoir un signal sub-Doppler avec résolution des différents niveaux hyperfins. Les écarts d'énergie entre les différents niveaux hyperfins pour les états $8P_{3/2}$ et $8P_{1/2}$ sont montrés à la figure 4.7. Nous ne ferons pas de mesures systématiques, à partir des courbes d'absorption saturée, les variations de largeur et les déplacements collisionnels ont déjà été estimés auparavant [Cha07].



Figure 4.7 – Distances entre les différents niveaux hyperfins des états $8P_{3/2}$ et $8P_{1/2}$ du césium.

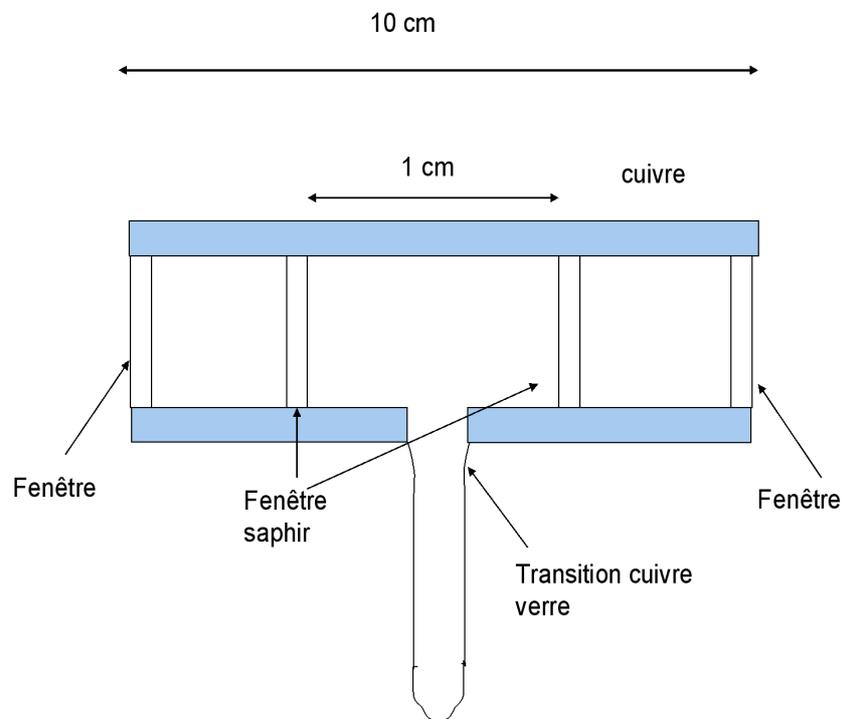


Figure 4.8 – Schéma de la cellule utilisée pour l'expérience de l'absorption saturée.

4.2.3.1 Cellule utilisée pour l'absorption saturée et densité de la vapeur de césium

Pour réaliser l'expérience d'AS nous utilisons une cellule ayant un corps en cuivre, un réservoir de césium en verre et des fenêtres de saphir (figure 4.8). La jonction entre le corps et le réservoir est réalisée par une transition verre-métal. Deux fils chauffants entourés d'un matériau isolant permettent de chauffer séparément la partie supérieure de la cellule et le réservoir de césium. La pression de vapeur saturante du césium dépend de la température de

la surface supérieure du césium liquide qui est dans le réservoir. Nous pouvons donc contrôler la densité atomique du césium en contrôlant la température du réservoir. La pression de vapeur saturante en fonction de la température est donnée par [Ste09] :

$$\log_{10}P = 2.881 + 4.165 - \frac{3830}{T} \quad (4.1)$$

où la pression est donnée en Torr et la température en Kelvin. La densité atomique (N) est calculée en considérant que la vapeur est un gaz parfait $N = \frac{P}{k_B T}$. La figure 4.9 indique la densité de césium en fonction de la température du réservoir.

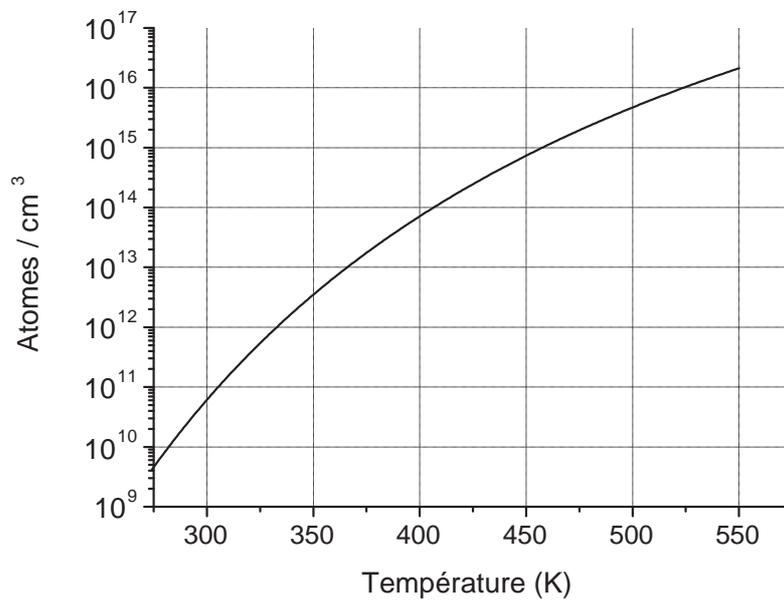


Figure 4.9 – Densité atomique du césium en fonction de la température du réservoir, calculée en utilisant l'équation 4.9 et l'équation pour du gaz parfait.

Pour avoir une plus grande densité de césium on chauffe le réservoir de césium à des températures entre 60°C et 100°C, ce qui correspond à des pressions de vapeur entre 0.03 mTorr et 0.6 mTorr (entre 10¹² et 1.5 × 10¹³ atomes/cm⁻³). La température de la partie supérieure de la cellule est maintenue au moins 10°C au dessus de la température du réservoir de césium pour éviter la condensation de césium sur les fenêtres.

4.2.3.2 Les spectres d'absorption saturée

A cause de la faible force d'oscillateur de la transition étudiée, le signal d'absorption saturée attendu est relativement faible et nous devons chercher à augmenter le signal de l'AS avec un faisceau pompe intense et une relativement grande densité de la vapeur de césium. Pour augmenter l'intensité du faisceau pompe nous le focalisons au centre de la cellule avec un diamètre d'environ $50\mu\text{m}$: pour des puissances entre 10-100 μW , nous avons des intensités dans la gamme $\sim 5\text{-}50\text{ mW/mm}^2$. Nous focalisons aussi le faisceau sonde pour optimiser le recouvrement entre celui-ci et le faisceau pompe. Le signal d'absorption saturée, reste petit (de l'ordre de 10^{-3} en valeur relative pour les niveaux $8P_{3/2}$ et $8P_{1/2}$). Pour mieux le faire apparaître nous faisons une détection soit en modulation de fréquence soit en modulation d'amplitude (avec, en générale, l'utilisation d'une roue dentée).

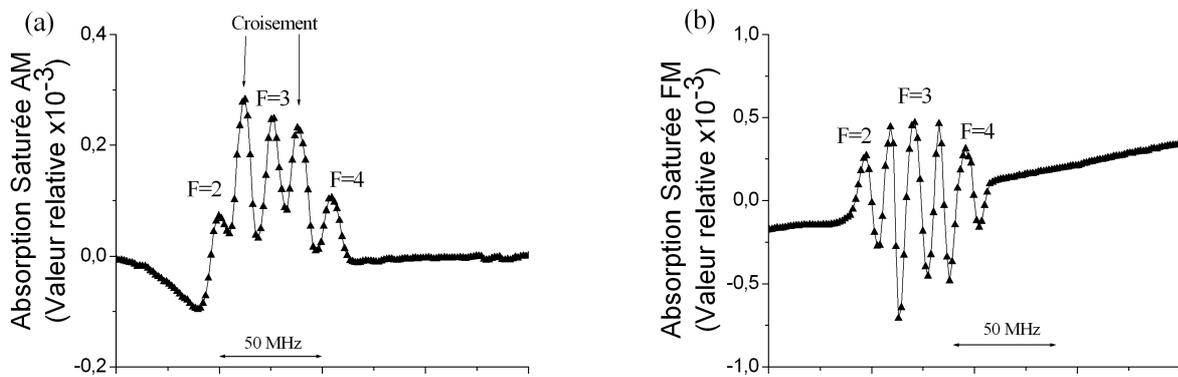


Figure 4.10 – Absorption Saturée en modulation d'amplitude (a) et en modulation de fréquence (b) pour la transition $6S_{1/2}(F=3) \rightarrow 8P_{3/2}$.

Aux figures (4.10 et 4.11) nous présentons des spectres d'absorption saturée pour le niveau $8P_{3/2}$, l'un en modulation d'amplitude et l'autre en modulation de fréquence. On note que la structure hyperfine de ce niveau n'est pas toujours totalement résolue (élargissement possible à cause d'un alignement imparfait, d'une saturation liée à une trop grande puissance pompe, ou de collisions dues à une densité trop grande). Sur les spectres, on repère cinq pics correspondant aux trois transitions hyperfines pour lesquelles la transition est permise ($\Delta F = 0, \pm 1$) et à deux résonances de croisement (celles-ci correspondent au pompage optique d'atomes avec une composante de vitesse dans la direction des faisceaux non nulle, de sorte que chaque faisceau est résonnant sur une transition hyperfine différente). La

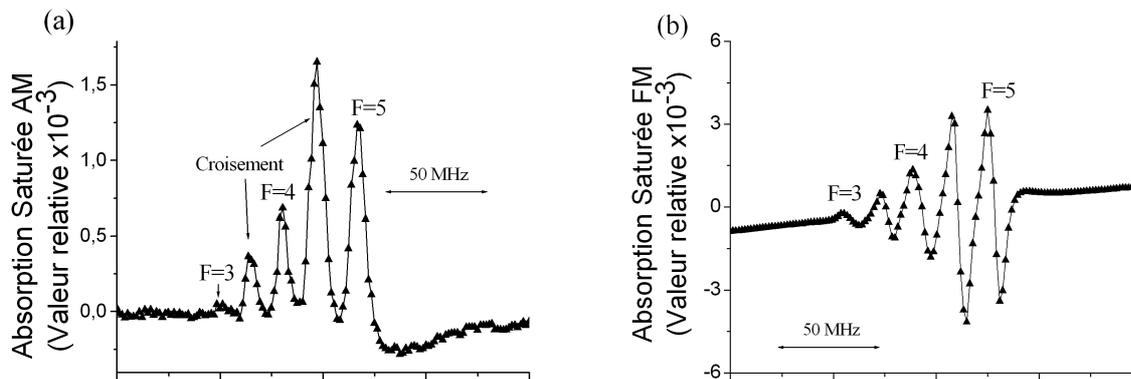


Figure 4.11 – Absorption Saturée en modulation d’amplitude (a) et en modulation de fréquence (b) pour la transition $6S_{1/2}(F = 4) \rightarrow 8P_{3/2}$.

résonance de croisement entre les deux niveaux hyperfins extrêmes est pratiquement à la même fréquence que la transition hyperfine centrale et n’est pas facile à distinguer.

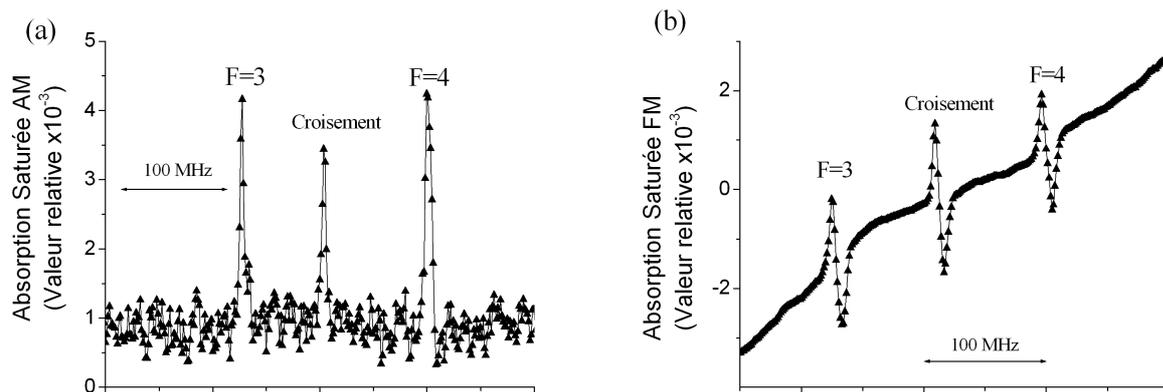


Figure 4.12 – Absorption Saturée en modulation d’amplitude (a) et en modulation de fréquence (b) pour la transition $6S_{1/2}(F = 4) \rightarrow 8P_{1/2}$.

Les figures 4.12 et 4.13 présentent des spectres d’absorption saturée pour les transitions vers le niveau $8P_{1/2}$. Les niveaux hyperfins sur cette raie sont mieux séparés (voir figure 4.7) ce qui permet de les résoudre plus facilement dans des conditions de grande densité ou grande puissance pompe. La force d’oscillateur de cette transition étant plus petite, et la saturation plus délicate à obtenir, l’alignement entre faisceaux focalisés pompe et sonde est plus critique. Nous travaillons aussi à des températures plus élevées (100-120°C).

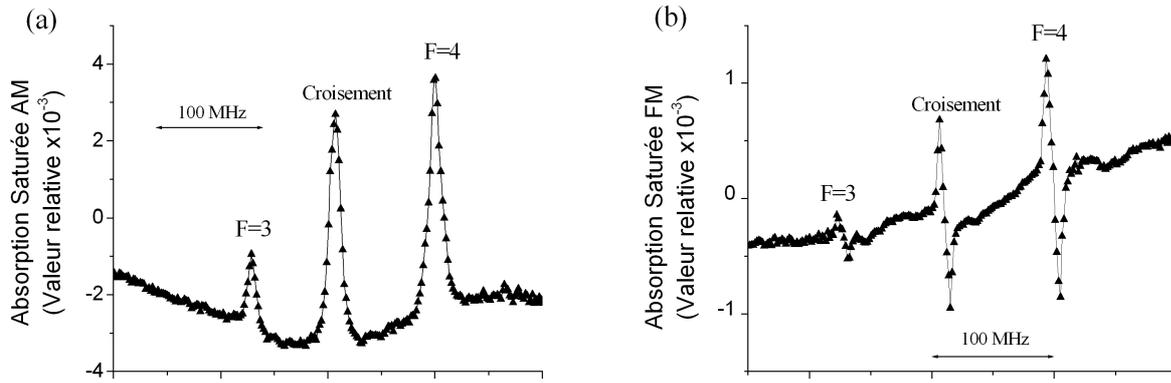


Figure 4.13 – Absorption Saturée en modulation d’amplitude (a) et en modulation de fréquence (b) pour la transition $6S_{1/2}(F = 3) \rightarrow 8P_{1/2}$. Le spectre (a) a été fait avec un faisceau sonde assez puissant, ce qui induit le fond Doppler (voir chapitre VI).

4.2.4 Système d’acquisition

Le système d’acquisition utilisé contient des photo-détecteurs, des systèmes de détection synchrone (amplificateurs « Lock-in »), un convertisseur analogique/digital et un ordinateur.

Les photo-détecteurs utilisés sont des photodiodes (silicium) avec amplificateurs intégrés (New Focus 2001) ayant une bande passante jusqu’à 100 kHz, avec un filtrage électronique passif. Les sorties des détecteurs sont connectées à l’entrée des détections synchrones pour des acquisitions en modulation de fréquence ou d’amplitude. Les sorties analogiques en phase et en quadrature des détections synchrones, ainsi que la sortie continue du détecteur, sont envoyées via le convertisseur analogique/digital sur l’ordinateur. Nous avons fait attention à ce que l’ordinateur soit bien mis à la masse pour éviter que la fluctuation de celle-ci n’induisse des bruits sur la digitalisation.

L’ordinateur envoie via la détection synchrone une commande de variation discrète de la tension de balayage, variant ainsi la fréquence laser de façon discrète. Pour chaque point en fréquence laser, 100 mesures, de 1ms chaque, sont digitalisées par le convertisseur et envoyées à l’ordinateur, qui prend la moyenne de ces 100 mesures. Le temps de communication entre ordinateur et détection synchrone entre deux points de fréquence successifs est d’environ 250 ms, ce qui permet à la fréquence laser de se stabiliser avant le début de chaque série de 100 mesures. On obtient que le temps total passé pour l’acquisition de chaque point

en fréquence est d'environ 350ms. Si on considère que l'on veut typiquement 1MHz entre deux points successifs de fréquence et un balayage de 1 GHz, une acquisition dure environ 6 minutes. L'écart de 1 MHz entre deux points est un compromis entre une acquisition avec une meilleure résolution (écart plus petit) et une acquisition totale suffisamment rapide pour négliger les possibles dérives du laser et du Fabry-Perot.

4.3 La cellule

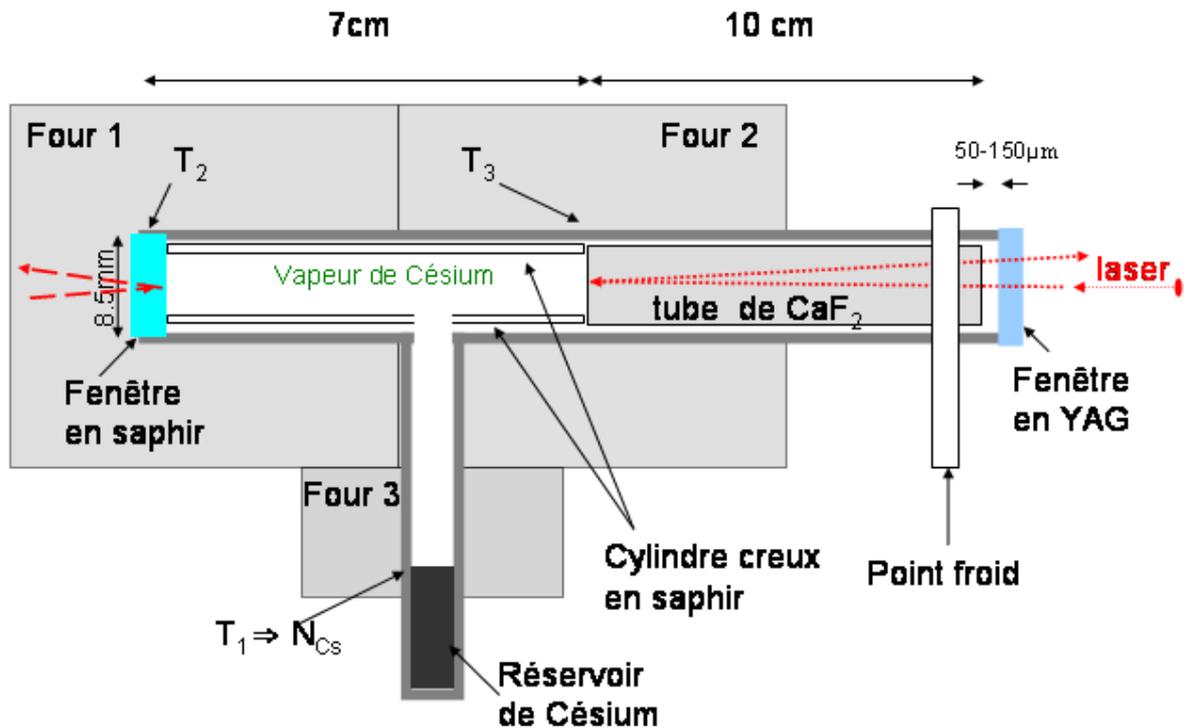


Figure 4.14 – Schéma de la cellule utilisée pour l'expérience de réflexion sélective.

Comme nous l'avons mentionné en introduction, l'expérience est faite en utilisant une cellule scellée, préalablement évacuée puis remplie de vapeur de césium, avec une fenêtre en CaF_2 et une fenêtre en saphir. Autour de la cellule un système de four permet de la chauffer de façon contrôlée. Le schéma de cette cellule, fabriquée par l'équipe de D. Sarkisyan en Arménie, est montré à la figure (4.14) et une photo de celle-ci hors du four est montrée à la figure 4.15. La cellule, en forme de « T », est construite avec un corps en saphir, qui est un matériau connu pour avoir une bonne résistance à des vapeurs alcalines à haute température. La fenêtre saphir est collée en utilisant une colle minérale spéciale. Le point critique de la construction de cette cellule est que la fenêtre de CaF_2 ne peut pas être collée sur la cellule

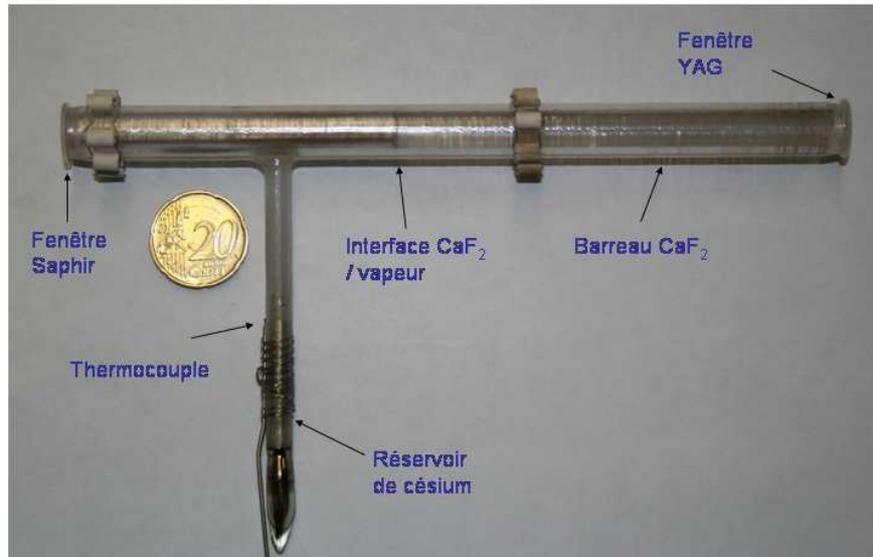


Figure 4.15 – Photo de la cellule (deuxième cellule) contenant un long barreau de CaF_2 à l'intérieur utilisé pour l'expérience de réflexion sélective.

de saphir, car elle a un coefficient de dilatation thermique environ trois fois plus grand que le coefficient de dilatation thermique du saphir. Pour cette raison, la fenêtre de CaF_2 est laissée quasi-libre à l'intérieur de la cellule saphir. Une fenêtre en YAG est collée du côté où se situe la fenêtre CaF_2 pour fermer la cellule saphir. Pour éviter une densité de vapeur de Cs capable d'induire un signal d'absorption dans l'interstice entre la fenêtre YAG et la fenêtre CaF_2 , suffisamment grand pour masquer le signal de RS, celui-ci est maintenu à température ambiante, hors du four. Nous utilisons comme fenêtre CaF_2 un long barreau (10 cm de longueur et 8.4 mm de diamètre) pour diminuer le gradient de température entre l'interstice à température ambiante et l'interface CaF_2 /vapeur à environ 300°C dans nos expériences. Une description générale avec plus de détails sur la construction de la cellule est donnée par la suite.

4.3.1 Description générale de la cellule

Nous avons travaillé avec deux cellules fabriquées successivement selon le même schéma, et de dimensions peu différentes. La cellule a un corps en saphir de 17 cm de long et 8.5 mm de diamètre interne (deuxième cellule qui est un peu plus grande que la première). La cellule est construite en utilisant une colle minérale spéciale connectant le tube et une fenêtre en saphir. La cellule est scellée après avoir été vidée, et après introduction du césium. La cellule

a une forme en « T » pour permettre un contrôle indépendant de la température des fenêtres et du réservoir de césium. La partie inférieure du réservoir de césium est en verre, pour que la cellule puisse être soudée après introduction du césium. Une transition verre-saphir est donc nécessaire pour coupler le corps de la cellule et le réservoir.

Pour aider à maintenir le barreau CaF_2 au voisinage de la fenêtre YAG, un cylindre creux en saphir est mis aussi à l'intérieur de la cellule (voir figure 4.14) empêchant la fenêtre CaF_2 de glisser du côté de la fenêtre saphir. En outre, la cellule est légèrement inclinée pour que la gravité aide à maintenir la fenêtre CaF_2 au voisinage de la fenêtre YAG. Comme la fenêtre CaF_2 n'est pas fixée et a un diamètre plus petit (environ 0,1 mm) que la cellule de saphir, la vapeur atomique peut pénétrer l'interstice entre le CaF_2 et le saphir, pouvant aller jusqu'à la région où se situe la fenêtre de YAG. Or l'espace entre la fenêtre CaF_2 et la fenêtre YAG forme une région d'environ $100 \mu\text{m}$ d'épaisseur (épaisseur estimée à partir d'une absorption linéaire sur la raie D1 à température ambiante). Si la vapeur atomique pénètre dans cette région, le signal de réflexion sélective à l'interface CaF_2 /vapeur de césium est masqué par le signal d'absorption sur la cellule mince, qui correspond à une longueur sondée beaucoup plus grande que celle sondée par la technique de RS ($\leq 100 \mu\text{m}$). Pour éviter la présence de vapeur dans cet interstice, cette région est placée hors du four (voir figure 4.14) pour être à une température ambiante.

La fenêtre de YAG ne peut cependant pas être le point de plus basse température de la cellule, sinon la vapeur de césium arrivant dans cette région se condenserait dans l'interstice YAG/ CaF_2 . C'est pourquoi nous créons un point froid à environ 1 cm de la fenêtre YAG pour que toute la vapeur de césium soit piégée avant d'arriver dans l'interstice YAG/ CaF_2 . Le point froid est obtenu par une pièce d'aluminium (de faible capacité thermique) placée autour du tube saphir, dont une extrémité est plongée dans un bain d'alcool qui est refroidi à 0°C à l'aide d'un élément Peltier (voir figure 4.16). Cette pièce est de plus structurée en radiateur pour mieux évacuer la chaleur venant de la proximité avec le four.

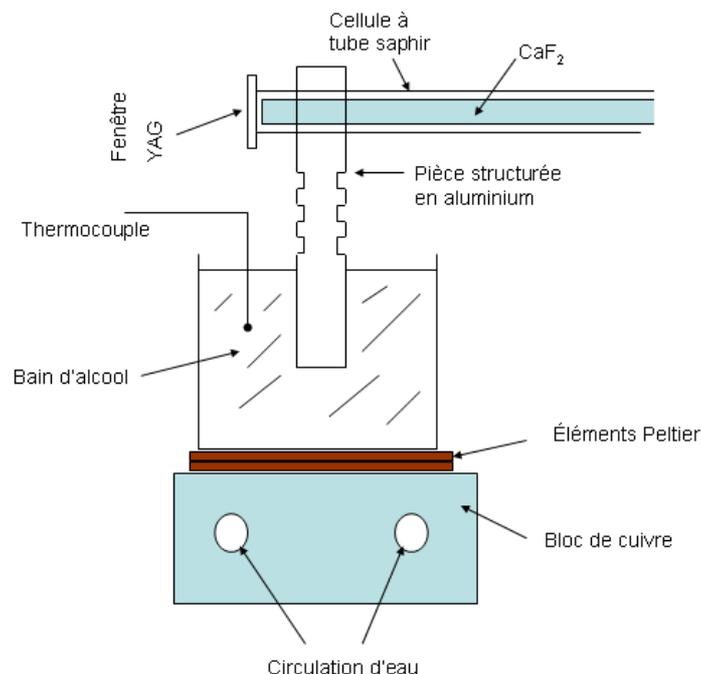


Figure 4.16 – Schéma du système de refroidissement du point froid de la cellule.

4.3.2 Le système de chauffage

Le système de chauffage consiste en trois fours indépendants (figures 4.17 et 4.18). Nous appellerons four 1, four 2 et four 3 les fours utilisés pour chauffer la fenêtre de saphir, la fenêtre de CaF_2 et le réservoir de césium, respectivement.

Chaque four consiste en des fils chauffants, structurés en double coeur pour minimiser les champs magnétiques résultants, entourés de matériau isolant pour mieux garder la chaleur. La fenêtre saphir se situe au milieu du four 1. Nous mesurons la température de la fenêtre saphir à l'aide d'un thermocouple situé lui aussi au milieu du four à moins d'un millimètre de la fenêtre (figure 4.18). L'interface CaF_2 /vapeur que nous souhaitons tester, se situe au milieu du four 2. Une fraction (environ 6 cm) du barreau CaF_2 (et de la cellule saphir) se situe à l'extérieur de ce four, en contact avec l'air à température ambiante. Le thermocouple servant à mesurer la température de l'interface CaF_2 /vapeur est fixé au niveau de l'interface. Le troisième four sert à chauffer le réservoir de césium. Nous mesurons la température de celui-ci au niveau de la surface libre supérieure du césium métallique. La densité de la vapeur de césium dans la cellule est en principe contrôlée par la température de cette surface libre. Comme la partie inférieure du réservoir de césium est en verre, elle est

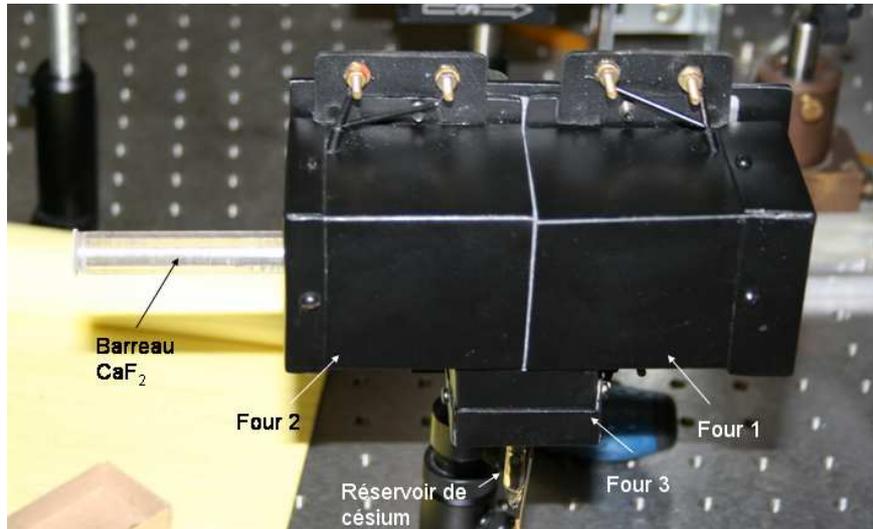


Figure 4.17 – Photo montrant les trois fours indépendants utilisés pour le chauffage de la cellule. On note qu'une grande partie de la région contenant le barreau CaF_2 est en dehors des fours.

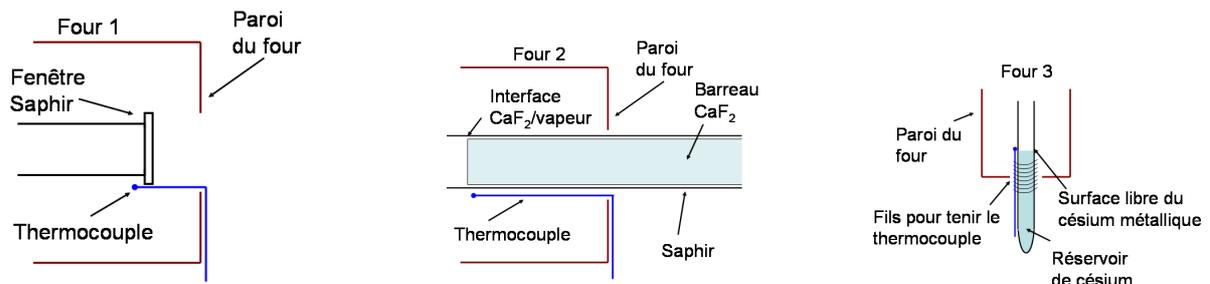


Figure 4.18 – Schéma montrant la position des fenêtres et des thermocouples dans les différents fours.

maintenue hors du four pour que sa température ne soit pas trop élevée ($T < 200^\circ\text{C}$). Nous devons donc utiliser une longue colonne de césium métallique ($\approx 4\text{ cm}$) (voir figures 4.17 et 4.18).

4.3.2.1 Système de contrôle du chauffage

Pour chauffer chacun des fours, des courants sont appliqués aux extrémités des fils chauffants. Ces courants sont fournis par des sources pilotées par ordinateur. Nous avons élaboré un programme de contrôle du chauffage qui a pour objectifs :

- i) Atteindre, pour chaque point de mesure de thermocouple, la température consignée assez rapidement tout en se stabilisant dès qu'une valeur proche de la consigne est atteinte

(éviter des comportements oscillatoires quand la température est atteinte);

ii) Maintenir une différence de température supérieure à une valeur minimale (ΔT_{min}) entre les fenêtres est le réservoir de césium. Ceci vise à éviter la condensation de césium sur les fenêtres.

Pour contrôler les températures, nous utilisons un programme d'asservissement type proportionnel-intégral (P-I) qui calcule la tension envoyée à chaque four en tenant compte des données d'entrée et des spécificités mentionnées ci dessus. Les paramètres d'entrée du programme sont : les trois températures consignées (T_1^C, T_2^C, T_3^C , respectivement pour le saphir, le CaF_2 et le réservoir); les trois températures mesurées (T_1^M, T_2^M, T_3^M). Le calcul de la tension envoyée au four est le suivant : pour chaque four, le programme calcule la différence entre la température consignée et mesurée ($\delta T = T_i^C - T_i^M$), puis calcule la tension (W_i) :

$$W_i(t) = P\delta T(t) + I \int_0^t \delta T(t') dt' \quad (4.2)$$

où P et I sont des facteurs choisis à l'avance. Les mesures de températures et les calculs de tensions sont actualisés à chaque intervalle de temps $\delta t = 5s$. Cet intervalle permet de faire un contrôle assez fin, sans être trop court (compte tenu de l'intégration) par rapport aux temps des réponses thermiques du système. Comme les calculs se font à des intervalles de temps discrets, on remplace l'intégration par une somme $\int_0^t \delta T(t') dt' \rightarrow \sum_{n=0}^{t/\delta t} \delta T(n\delta t) \delta t$.

On introduit aussi dans le programme de contrôle différentes mesures de sécurité : i) Contrôler les montées et descentes de température pour avoir une variation ne dépassant pas 5°C par minute. Cette condition vise à éviter des contraintes thermiques qui puissent casser le barreau de CaF_2 ; ii) Maintenir les températures de fenêtres à une valeur $\Delta T > \Delta T_{min}$, où $\Delta T = T_j^M - T_3^M$ avec $j = 1, 2$ pour le saphir et CaF_2 respectivement, au dessus de la température du réservoir pour éviter la condensation de vapeur de césium sur les fenêtres; iii) Réagir en cas de problème de déconnexion des thermocouples pour éviter que $\Delta T < \Delta T_{min}$.

i) Contrôle de la vitesse de montée et de descente en température Afin de contrôler la montée et descente en température des fenêtres pour des coefficients fixés du système proportionnel-intégral, nous avons mesuré la tension fournie par l'ordinateur pour que la température se stabilise à une valeur consignée. Nous avons vérifié une dépendance linéaire

entre les deux variables. Nous avons, à partir de ces mesures, construit une fonction linéaire donnant une tension estimée fournie par l'ordinateur ($W_{est}(T_j^M)$) pour maintenir le four à une température T_j^M . Nous avons imposé, comme limite supérieure pour la tension réellement fournie par l'ordinateur pour chaque température mesurée T_j^M , la valeur de la fonction linéaire calculée pour une température ΔT_0 au dessus ($W_{MAX}(T_j^M) = W_{est}(T_j^M + \Delta T_0)$). De même nous avons pris pour la tension minimale fournie $W_{MIN}(T_j^M) = W_{est}(T_j^M - \Delta T_0)$. En choisissant correctement la valeur de ΔT_0 ($\Delta T_0 = 45^\circ C$), nous avons réussi à contrôler les vitesses de montée et descente de température à environ $5^\circ C$ /minute. Comme les températures des fenêtres et du réservoir ne sont pas totalement indépendantes (conduction thermique entre les différents points de la cellule), nous avons introduit sur la valeur estimée de tension $W_{est}(T_j^M)$, une correction $-aT_3$, où T_3 est la température du réservoir du césium. Cette correction évite qu'une montée de température du réservoir n'induisse une montée trop rapide de la température des fenêtres (cela arrive surtout pour la longue fenêtre CaF_2 plus proche du réservoir).

ii) $\Delta T < \Delta T_{min}$ Le programme de contrôle vérifie à chaque mesure de température que les différences entre températures des fenêtres et du réservoir (ΔT) soient supérieures à la valeur minimale permise. Dans le cas contraire, on surchauffe la fenêtre et on diminue le chauffage du réservoir. Ceci est fait en imposant pour la fenêtre $W_{T_j^M} \rightarrow W_{MAX}(T_j^M)$ et pour le réservoir $W_{T_3^M} \rightarrow W_{MIN}(T_j^M)$. De cette façon on augmente rapidement l'écart en température entre la fenêtre et le réservoir.

iii) **Problème de déconnexion des thermocouples** Un problème de déconnexion du thermocouple est détecté s'il fournit une valeur non acceptable, ou si une variation brutale de la température est détectée (par exemple $|T(t) - T(t - \delta t)| > 50^\circ C$). Il convient d'éviter, dans ces cas, de se retrouver avec une situation où $\Delta T < \Delta T_{min}$. La procédure de sécurité doit être différente ici de celle évoquée au point précédent, car ici on ne connaît pas la température donnée par le thermocouple défectueux. Dans ce cas le programme fournit, pour les fours des fenêtres, la même puissance que celle qui était fournie avant ($W(t) = W(t - \delta t)$) de façon à ce que la température des fenêtres suive la même évolution que celle d'avant le problème (soit maintenir la température de la fenêtre stable, soit maintenir l'augmentation de celle-ci au même rythme). En même temps on diminue la tension fournie au four du réservoir par la règle $W(t) = W(t - \delta t) * 0.9$ pour augmenter l'écart entre températures des fenêtres et

du réservoir (pour avoir $\Delta T > \Delta T_{min}$). La valeur de 0.9 est une valeur choisie de façon empirique.

4.3.2.2 Le point froid sur le corps de cellule hors four

Le système de température du point froid est un système indépendant du reste de la cellule et n'est pas contrôlé par l'ordinateur. Ce système consiste en deux éléments Peltier, en série, qui refroidissent un bain d'alcool (voir figure 4.16). Les éléments Peltier évacuent la chaleur sur une masse en cuivre dans laquelle nous faisons une circulation d'eau pour mieux dissiper la chaleur. Les Peltier sont alimentés par une source de tension et on contrôle la température du bain d'alcool en utilisant un thermocouple. Le bain d'alcool est mis à une température entre -2°C et $+5^{\circ}\text{C}$ sans que ce contrôle ne soit très fin.

4.3.2.3 Gradient de température sur le CaF_2 et température à l'interface CaF_2 vapeur.

Comme nous l'avons déjà mentionné auparavant, le fait d'avoir d'un côté du barreau du CaF_2 un point froid et de l'autre une température d'environ 300°C induit un grand gradient de température sur le barreau. Comme nous n'avons pas accès directement aux températures du barreau CaF_2 , nous avons étudié expérimentalement le gradient de température sur la partie extérieure de la cellule saphir. On peut cependant supposer que la température du CaF_2 est plus uniforme que ce qui est mesuré pour le saphir car la conductivité thermique du CaF_2 est environ trois fois plus grande que celle du saphir. Le gradient sur le corps saphir a été étudié pour une température de l'interface CaF_2 /vapeur à 135°C (bien en dessous des températures auxquelles nous faisons l'expérience), une température du réservoir de césium à 95°C et le bain d'alcool à 0°C . Nous avons mesuré des températures qui varient de façon approximativement linéaire entre un point voisin de la paroi extérieure du four (60°C) et le point froid (18°C). La distance entre les deux points de mesures est de 45 mm.

A cause du déséquilibre thermique auquel est soumise la cellule (à ne pas confondre avec la situation attendue d'équilibre thermique dans la région de la vapeur atomique, ce qui doit permettre d'utiliser la théorie décrite en [Gor06]), il nous est difficile d'estimer précisément la température réelle de l'interface CaF_2 /vapeur. En pratique, nous nous sommes aperçu

que quand la température mesurée T_{CaF_2} , sur le programme de contrôle de température, ne dépassait pas la température du réservoir (telle que mesurée par le thermocouple, voir figure 4.18) par au moins 40°C , il y avait condensation de césium. Ceci indique vraisemblablement que la température réelle du CaF_2 est plus basse que celle mesurée par le thermocouple, mais cette différence n'excède pas $30\text{-}40^\circ\text{C}$. Nous pouvons, en outre, supposer qu'une variation de la valeur mesurée au thermocouple T_{CaF_2} de ΔT correspond bien à une variation de la température réelle de ΔT .

4.3.3 Problèmes d'interférences sur le faisceau réfléchi à l'interface CaF_2 /vapeur

Quand on envoie un faisceau laser du côté CaF_2 sous incidence quasi-normale, on observe six faisceaux réfléchis, correspondants aux deux interfaces de la fenêtre YAG, aux deux interfaces du barreau CaF_2 et aux deux interfaces de la fenêtre saphir. Ces six faisceaux réfléchis sont assez proches les uns des autres. Dans les conditions d'acquisition des spectres RS, la vapeur a une densité élevée et le laser est en résonance de telle sorte que les faisceaux réfléchis par le saphir disparaissent : le faisceau est pratiquement entièrement absorbé avant d'arriver à la fenêtre saphir, et il reste quatre faisceaux réfléchis par la cellule. En plus de ces faisceaux réfléchis, on observe une réflexion diffuse, qui vient du barreau de CaF_2 . La partie de cette réflexion diffuse qui se propage dans la même direction que le faisceau réfléchi par l'interface CaF_2 /vapeur interfère avec celui-ci.

La périodicité de ces interférences correspond à environ deux fois la longueur optique du barreau CaF_2 , indiquant que cette réflexion diffuse aurait lieu sur la face d'entrée du barreau CaF_2 ou sur la fenêtre YAG. Lorsque l'on chauffe (ou refroidit) le barreau CaF_2 , on voit clairement que la phase de ces interférences change. Quand le barreau est chaud, il est difficile de reconnaître la périodicité des interférences car une petite fluctuation de température est suffisante pour changer considérablement la phase de celle-ci. Une estimation rapide indique qu'un changement de 1°C de la température du barreau équivaut à un changement de la longueur optique de $\Delta L_{opt} \approx 10\lambda$ ($\lambda = 388 \text{ nm}$). On a en effet, pour un aller retour $\Delta L_{opt} = 2L\delta n + 2n\delta L$, avec L la longueur du barreau, δL le changement de la taille du barreau avec la température ($\delta L = \alpha L$, où $\alpha = 18.85 \times 10^{-6}/^\circ\text{C}$ est le coefficient de dilatation thermique) et δn le changement de l'indice de réfraction avec la température

($\delta n = -10.12 \times 10^{-6}$ [Mal63]). Comme la température du barreau n'est pas spatialement uniforme (et les fluctuations de température n'ont pas non plus de raison de l'être), on peut considérer que la variation réelle de la longueur optique est une fraction de celle calculée. Pour une température consignée $T_{CaF_2} = 300$ °C on a une fluctuation de la température mesurée par le thermocouple entre 0.5°C et 1°C. Nous avons d'abord essayé de moyennner les interférences en faisant une modulation d'angle sur le miroir d'entrée du côté CaF₂, ce qui semble avoir un bon effet. Nous avons fini par préférer éliminer les interférences simplement en augmentant l'angle d'incidence du côté CaF₂ ($\theta \approx 20$ mrad), la modulation angulaire s'avérant peu compatible avec l'élimination de la modulation d'amplitude résiduelle du laser, obtenue par une soustraction à un signal de référence.

Nous avons aussi essayé d'éliminer les interférences avec la réflexion diffuse, en plaçant le détecteur le plus loin possible. Il semble que la taille relative des interférences ne varie pas en fonction de la distance au détecteur. Ceci peut être dû au fait que le faisceau est légèrement focalisé sur l'interface CaF₂/vapeur (avec une lentille de focale de 1 m). Nous avons essayé de changer la focalisation du faisceau, par exemple en plaçant la lentille de telle sorte que le point focal soit proche du détecteur, mais aucun changement significatif ne fut observé.

4.3.4 Première cellule : Prototype

La première cellule a un barreau de 7 cm de longueur et 0,6 cm de diamètre. Cette cellule avait été testée avec la raie D1, avant mon arrivée [Lal08]. Malgré une procédure de dégazage de la cellule pendant 10 heures à 350°C, la cellule a été contaminée à la fabrication par des impuretés. Ces impuretés sont responsables d'un élargissement important des raies d'absorption saturée sur la raie D1 du césium [Lal08]. L'observation de l'absorption saturée sur la raie D1 a montré aussi un déplacement des raies ~ 5.2 MHz, dû aux impuretés. Il a été noté que, sur une détection de l'absorption saturée avec une modulation plus rapide, le signal obtenu ne subit plus cet élargissement collisionnel. Ce comportement est typique de collisions de vitesse car les changements de vitesse des atomes prennent un certain temps pour avoir lieu. Pour des mesures spectroscopiques linéaires rapides, notamment comme la réflexion sélective, cet effet d'élargissement devient négligeable.

Malgré ces effets collisionnels, les mesures de réflexion sélective faites avec la raie D1 ont donné des résultats en accord avec les valeurs attendues théoriquement tant pour les valeurs de C_3 , que pour le rapport en amplitude entre les signaux coté saphir et coté CaF_2 [Lal08]. En outre, ces mesures ont servi à tester la conception de la cellule grâce à laquelle on peut réaliser des mesures de RS sur les surfaces de CaF_2 et de saphir de façon simultanée, garantissant en principe que les conditions de vapeur atomique (densité, déplacement et élargissement collisionnel) et d'excitation laser (balayage de fréquence) soient identiques pour les deux expériences. Ceci permet de réduire le nombre de paramètres libres utilisés pour les ajustements entre courbes théoriques et expérimentales (nous détaillerons la procédure plus tard), donnant, en principe, plus de fiabilité aux mesures dérivées des spectres.

4.3.5 Deuxième cellule

Une deuxième cellule a été construite en Arménie. La cellule, dégazée pendant 10 heures à 420°C , présente bien moins d'impuretés que la première cellule. En effectuant des mesures d'absorption saturée tant sur la raie D1 que sur la raie $8P_{3/2}$, nous n'avons pas observé de déplacement de raies, ni d'élargissement collisionnel.

4.3.5.1 Cassure dans le barreau CaF_2

Après un certain temps d'utilisation, une cassure a été détectée dans le barreau CaF_2 . En ajustant la focale d'une caméra de visualisation pour voir la cassure avec une bonne netteté, nous avons estimé que la cassure s'est faite au niveau du point froid. Cette cellule ayant des dimensions plus grandes que la cellule précédente (barreau de 10 cm de long et 8.5 mm de diamètre, voir figure 4.14), on a noté que la partie extérieure au four présentait des températures plus élevées que celles de la première cellule. Cependant la nécessité de créer un point froid avant la fenêtre YAG persiste, ce qui fait que le gradient de température autour du point froid est plus élevé pour la deuxième cellule que dans la première. Comme le CaF_2 est un matériau connu pour ne pas bien supporter les gradients de température, nous suspectons que ce gradient plus fort est à l'origine de la cassure. Nous avons essayé de réduire le gradient de température existant autour du point froid en plaçant un radiateur

dans la région non chauffée la plus proche du four (pour augmenter le gradient près du four et diminuer celui près du point froid). Même avec deux radiateurs nous n'avons pas noté de différence significative des températures extérieures de la cellule saphir. La cassure se situe cependant sur les bords du barreau CaF_2 , de telle sorte que le faisceau continue à pouvoir passer au centre du barreau sans difficulté. Cette première cassure n'a donc pas posé de problème pour la réalisation de l'expérience. D'autres cassures sont cependant apparues ultérieurement (voir section 4.3.5.3).

4.3.5.2 Condensation de césium autour du barreau CaF_2 : Formation d'un second réservoir

Quand on a commencé à utiliser cette cellule, l'espace entre le barreau CaF_2 et le corps de cellule, qui était initialement vide, s'est rempli de césium métallique. Après environ deux mois d'utilisation nous nous sommes aperçu que la hauteur de la colonne de césium dans le réservoir avait baissé d'environ 0.5 mm (ce qui correspond à un volume d'environ 8 mm^3). Nous avons alors réajusté le positionnement du thermocouple pour qu'il soit toujours à la hauteur de la surface libre du césium. Nous n'avons plus détecté par la suite de baisse significative du niveau de césium. Cette condensation de césium dans l'interstice constitue comme un second réservoir de césium, ce qui fait que la densité de césium n'est plus totalement contrôlée à partir de la température du four 3. Pour établir cela, nous avons mesuré la transmission (sur la raie D1) dans la cellule en fonction des températures de la fenêtre CaF_2 et du réservoir de césium, en faisant varier la température de la fenêtre CaF_2 de la température ambiante à 60°C . La figure (4.19) montre le pourcentage de transmission en fonction de ce que serait la densité atomique, calculée en utilisant la relation entre température et pression de vapeur disponible en [Ste09]. On voit que la transmission n'a le comportement exponentiel avec la densité, prévu par la loi de Beer-Lambert, que si on calcule la densité à partir de la température de la fenêtre CaF_2 , indiquant que pour cette gamme de température la densité de césium est gouvernée par la température à l'interstice plutôt que par celle du réservoir de césium. Notons que dans le régime de température considéré (densité suffisamment faible pour observer une transmission sur 7 cm), on n'arrive pas à contrôler les températures CaF_2 et du réservoir indépendamment, et on varie en fait les deux températures à la fois.

La position dans l'interstice où le césium se condense peut varier. En principe, cette

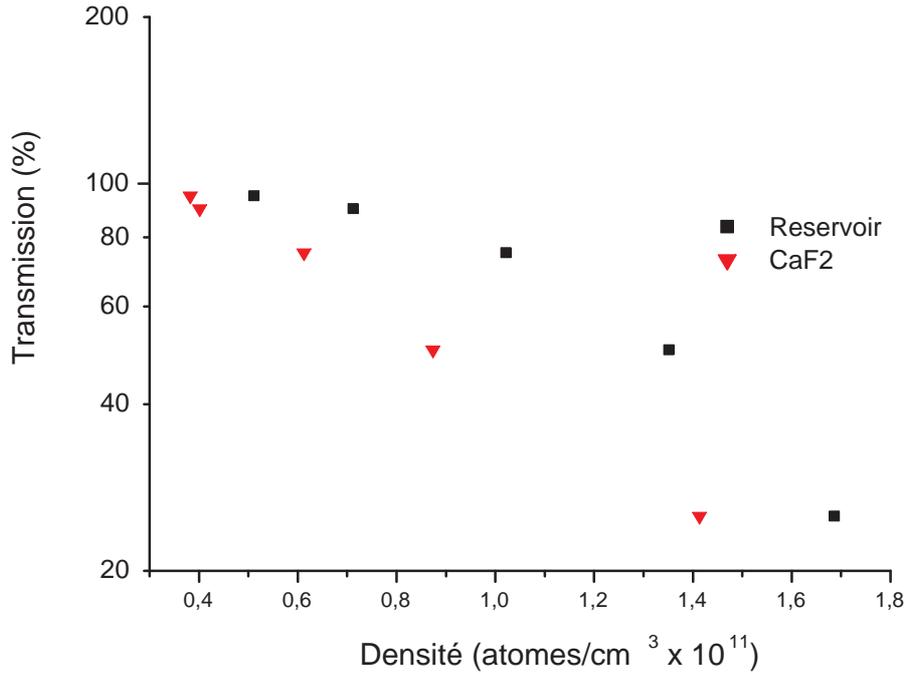


Figure 4.19 – Transmission sur la raie D1 en fonction de la pression de césium. La pression est calculée à partir des températures mesurées par thermocouple, en utilisant la dépendance de la pression de vapeur saturante en fonction de la température (voir [Ste09]).

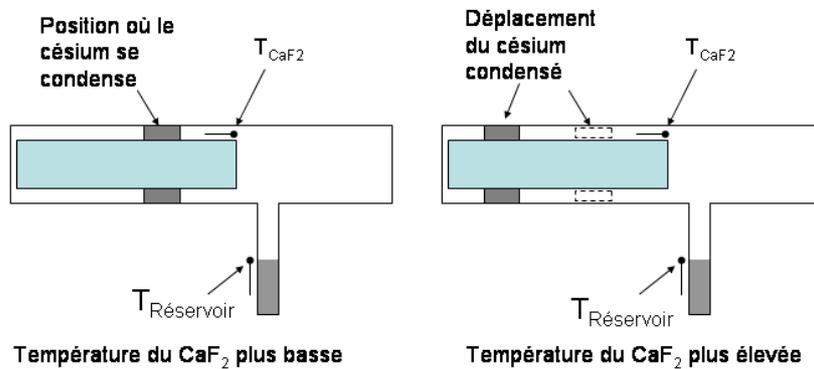


Figure 4.20 – Illustration du déplacement de la position de condensation de césium avec la température de CaF₂. On considère que la température du réservoir est la même pour sur les deux dessins et que la température du CaF₂ est plus élevée sur le dessin de droite.

position devrait correspondre au point pour lequel la température du barreau est égale à celle du réservoir de césium (thermocouple 3). Par ce raisonnement, plus la différence entre la température du CaF₂ et celle du réservoir est grande (et de façon générale plus la température du CaF₂ est grande), plus la position où le césium se condense dans l’interstice

sera éloignée de l'interface CaF_2 /vapeur (voir la figure 4.20). On peut donc supposer que plus on a des températures élevées, plus la densité de césium dans la cellule sera contrôlée par la température du réservoir.

L'existence du césium métallique condensé entre le barreau CaF_2 et le corps saphir aide la conduction thermique entre les deux. Cela nous donne plus confiance pour dire que la température réelle de l'interface CaF_2 /vapeur ne doit pas être très différente de la température de consigne pour la fenêtre CaF_2 . Cependant, à cause de l'existence du second réservoir nous ne pouvons pas connaître avec précision la densité de césium dans la cellule, ni être sûr que la densité atomique est la même côté saphir et côté CaF_2 .

4.3.5.3 Chute soudaine de la température de la fenêtre CaF_2

À des températures supérieures à 300°C , il arrive parfois que l'on observe une chute soudaine de la température détectée à la fenêtre CaF_2 (thermocouple 2) (voir figure 4.21a). Cette

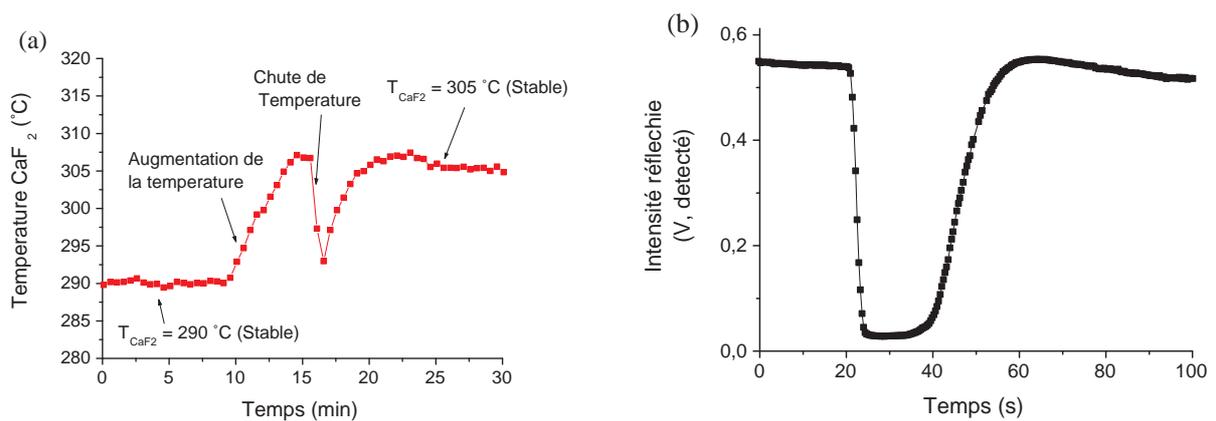


Figure 4.21 — (a) Chute soudaine de la température mesurée par le thermocouple à hauteur de l'interface CaF_2 /vapeur, suite à une augmentation de la valeur de consigne de la température ; (b) Variation de l'intensité réfléchie par le barreau CaF_2 (mesurée après le diaphragme) au moment de la chute de température. La brusque diminution du signal indique un mouvement du barreau CaF_2 , qui entraîne un désalignement du faisceau sur le détecteur.

chute assez rapide ($\sim 10-20^\circ\text{C}$ en une minute) est suivie par une remontée de température contrôlée par l'asservissement P-I qui vise à réatteindre la température de consigne. Cette chute de température s'accompagne en fait d'un mouvement du barreau CaF_2 , ainsi que le montre un déplacement observable du faisceau réfléchi à l'interface CaF_2 /vapeur : le

détecteur se situe en effet après un diaphragme de 1mm de diamètre placé à environ 40 cm de l'interface, et ce faisceau se désaligne complètement à cause d'un mouvement du barreau (le signal détecté va à zéro, voir figure 4.21b), ce qui signifie que le barreau bouge de plus de 25 mrad. Ces chutes de température semblent avoir lieu pendant, ou juste après, une augmentation de température et, apparaissent pour T_{CaF_2} entre 300°C et 340°C. Pour des températures plus élevées, nous ne les avons pas observées. En comparant des spectres de réflexion sélective juste avant et après la chute de température, on s'aperçoit que cette chute de température est accompagnée d'une augmentation soudaine de la densité de césium dans la cellule. Nous notons un changement similaire de la densité pour les spectres de RS du côté CaF_2 et du côté saphir, ce qui paraît indiquer un changement de la densité atomique sur toute la cellule. Nous notons aussi que, après la chute de température, la densité revient petit à petit à une situation normale, atteignant la densité d'avant la chute, après une quinzaine de minutes.

Notre interprétation de ce phénomène est la suivante : Quand on chauffe la cellule on déplace le point de condensation du césium vers un point plus éloigné de l'interface CaF_2 /vapeur. Ce déplacement fait qu'une partie du césium liquide se retrouve à une température plus élevée que la température du réservoir et se vaporise, en enlevant de l'énergie au barreau de CaF_2 , qui chute en température. Cette vaporisation peut se faire d'une façon plus ou moins violente, jusqu'à une sorte d'explosion d'une goutte de césium. Cette explosion a pour effet de déplacer le barreau et d'injecter une grande quantité d'atomes dans la cellule qui se retrouve dans une situation où il n'y a pas d'équilibre entre la pression de la vapeur et la pression de la surface libre du réservoir. Pour des températures supérieures à 340°C, il est probable que le point de l'interstice où la température est égale à la température du réservoir (point où il y a condensation du césium) est trop éloigné pour qu'il y ait une quantité considérable de césium. En faisant attention à élever très progressivement la température du CaF_2 entre 300°C et 340°C, on arrive à éviter ce phénomène.

En plus de l'aspect gênant de devoir interrompre l'expérience durant une demie-heure pour être sûr que la densité soit rétablie, le déplacement soudain du barreau par une explosion de césium peut causer des dégâts au barreau lui-même. Ainsi, après une explosion de goutte de césium, nous avons noté une nouvelle cassure sur la partie inférieure de l'interface CaF_2 /vapeur, ce qui a eu pour conséquence que seule une petite moitié de l'interface est de-

venue utilisable pour l'expérience. Nous avons cependant vérifié que les spectres de réflexion sélective donnaient les mêmes types de résultats avant et après cet événement.

4.3.5.4 Détection de vapeur de césium dans le barreau CaF_2

Dans les derniers mois de mon travail expérimental, les chutes en température se font beaucoup plus fréquentes et apparaissent même à des températures plus basses qu'avant (280°C). De plus nous avons observé une absorption résonnante de vapeur de césium qui provient de l'intérieur du barreau CaF_2 . Nous suspectons que celui-ci est devenu poreux et que de la vapeur de césium est entrée dans les pores. En mesurant la largeur de l'absorption linéaire sur la raie D1 du faisceau réfléchi à l'interface CaF_2 /vapeur (et donc passant deux fois dans le barreau), et en la comparant avec la largeur sur une cellule de référence à température ambiante, nous avons pu estimer la température de la vapeur atomique dans le barreau CaF_2 , à partir de l'évolution de la largeur Doppler en \sqrt{T} . L'expérience est faite en chauffant le barreau CaF_2 et en maintenant le plus grand écart possible entre T_{CaF_2} et la température du réservoir de césium ($\Delta T \approx 100^\circ\text{C}$). Pour une température de consigne du CaF_2 de 200°C on a estimé que la température de la vapeur emprisonnée dans le barreau est de $\approx 180^\circ\text{C}$; et pour $T_{\text{CaF}_2} \approx 150^\circ\text{C}$, on trouve la température de la vapeur de $\approx 125^\circ\text{C}$. La température de la vapeur dans le barreau CaF_2 est donc proche de la température de l'interface CaF_2 /vapeur, ce qui indique que la vapeur de césium dans le barreau doit se situer près de l'interface CaF_2 /vapeur.

4.4 Généralités sur les spectres expérimentaux

Nous présentons d'abord, de façon générale, quelques spectres de réflexion sélective pour les transitions $6S_{1/2} \rightarrow 8P_{3/2}$ et $6S_{1/2} \rightarrow 8P_{1/2}$ de l'atome de césium aux interfaces avec des fenêtres de saphir et CaF_2 . Nous faisons initialement quelques commentaires d'ordre général, nous discuterons plus en détail les résultats par la suite après avoir expliqué les procédures d'ajustement.

4.4.1 Spectres de réflexion sélective pour la transition $6S_{1/2} \rightarrow 8P_{3/2}$

Nous commencerons par décrire les spectres de RS pour la transition $6S_{1/2} \rightarrow 8P_{3/2}$.

4.4.1.1 Variation de la forme de raie avec la densité de césium

La figure 4.22 montre l'évolution des spectres de RS aux interfaces saphir et CaF_2 quand on augmente la densité de la vapeur. On note un élargissement des spectres accompagné d'une modification de la forme de raie, notamment avec un changement du rapport entre les pic positif et négatif. Notons aussi que les spectres aux interfaces CaF_2 et saphir ont des formes de raies assez proches l'une de l'autre indiquant que les coefficients de vdW doivent être similaires, en contradiction avec les prédictions théoriques (section 2.4 du chapitre II).

4.4.1.2 Différences entre les spectres partant des différents niveaux hyperfins fondamentaux

La figure (4.23) montre les spectres de réflexion sélective aux interfaces avec les fenêtres de saphir et de CaF_2 . Pour la transition partant du niveau fondamental $F=4$, (figure 4.23a) les forces de transition entre le niveau fondamental $F=4$ et les différents niveaux hyperfins $8P_{3/2}$ sont dans le rapport : $F_{45} = 44$, $F_{44} = 21$, $F_{43} = 7$ [Ste09]. Ceci conduit à une courbe dispersive asymétrique avec des oscillations sur l'aile rouge. Pour la transition partant du niveau fondamental $F=3$ (figure 4.23b), les forces de transition depuis le niveau fondamental $F=3$ pour les différents niveaux hyperfins $8P_{3/2}$ sont dans des rapports : $F_{34} = 15$, $F_{33} = 21$, $F_{32} = 20$ [Ste09] et les trois composantes hyperfines ont des amplitudes comparables, d'où une forme de raie avec des « pics » d'amplitude similaire. La courbe CaF_2 présente un élargissement plus grand que celle du saphir de telle sorte que les contributions des différents niveaux hyperfins sont moins bien résolues.

4.4.1.3 Amplitudes des spectres de réflexion sélective

Sur les courbes de réflexion sélective présentées aux figures 4.22-4.23, le changement relatif de réflectivité à l'interface est assez faible, de l'ordre de 10^{-4} . L'amplitude des plus grands pics pour les spectres depuis les sous-niveaux du fondamental $F = 4$ et $F = 3$ varie dans un rapport d'environ 2 (produit entre le nombre de sous-niveau m_F et la force

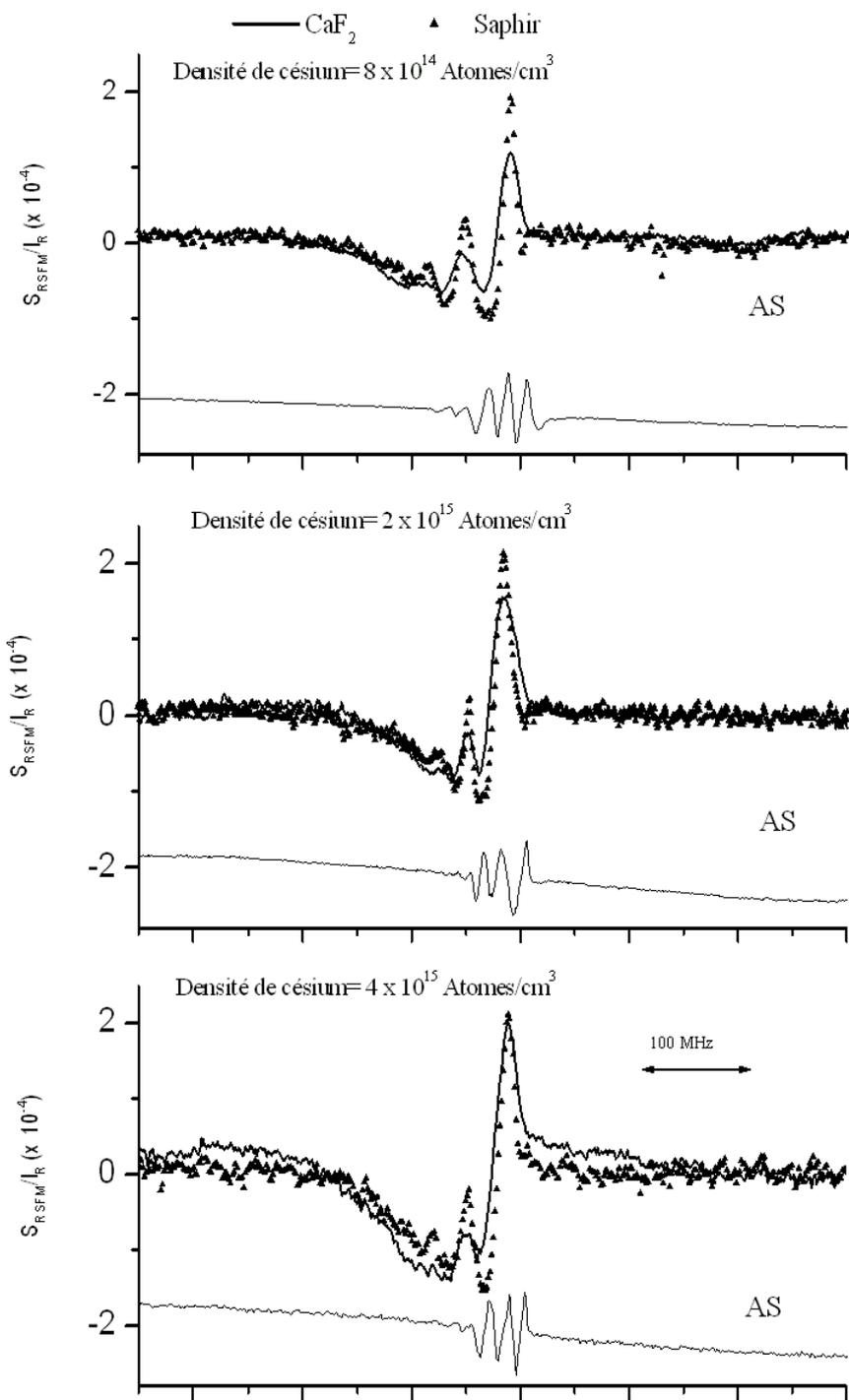


Figure 4.22 – Évolution, avec la densité de la vapeur de césium, de la forme de raie de la réflexion sélective pour la transition $6S_{1/2}(F = 4) \rightarrow 8P_{3/2}$ du césium, aux interfaces saphir et CaF₂ à 320°C. Les spectres d'absorption saturée (AS) sont également présentés.

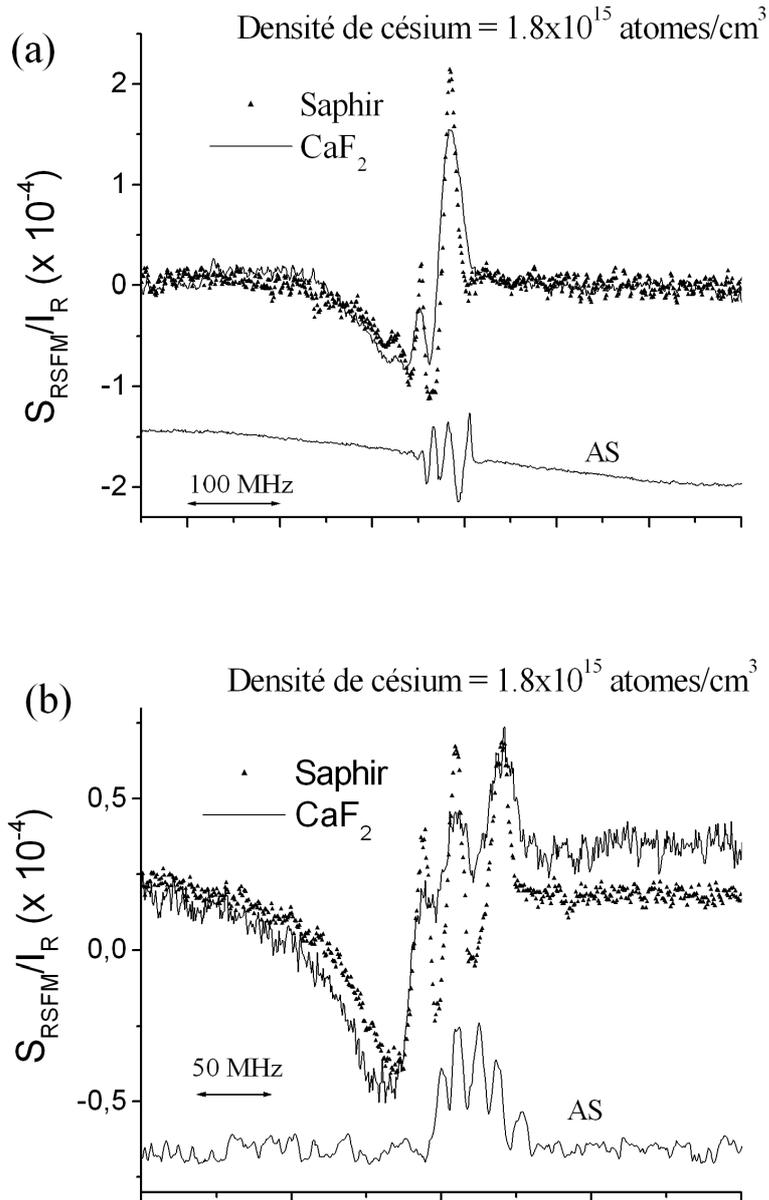


Figure 4.23 – Spectres de réflexion sélective aux interfaces saphir et CaF_2 : (a) pour la transition $6S_{1/2}(F = 4) \rightarrow 8P_{3/2}$ avec les fenêtres à 320°C ; (b) pour la transition $6S_{1/2}(F = 3) \rightarrow 8P_{3/2}$ avec les fenêtres à 345°C . Nous montrons aussi les spectres d'absorption saturée obtenus dans une cellule de référence.

relative de chaque transition hyperfine). L'amplitude du signal dépend de la densité de césium, de l'interface sondée et de l'amplitude de modulation de fréquence. L'augmentation de l'amplitude du signal avec la densité de césium est limitée par la perte d'information due à l'élargissement et au recouvrement des composantes hyperfines. De même nous ne pouvons

pas augmenter indéfiniment l'amplitude de modulation sous peine de déformer le signal de RSFM (voir chapitre III).

4.4.2 Spectres de réflexion sélective pour la transition $6S_{1/2} \rightarrow 8P_{1/2}$

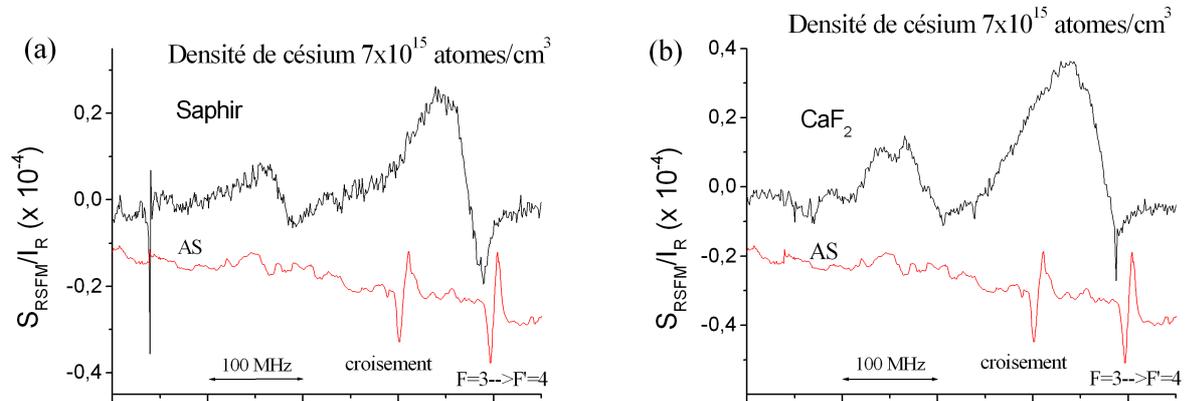


Figure 4.24 – Spectres de réflexion sélective pour la transition $6S_{1/2}(F = 3) \rightarrow 8P_{1/2}$: (a) pour le saphir ; (b) pour le CaF_2 . Les spectres ont été faits pour une densité de vapeur de 7×10^{15} atomes/cm³ et des fenêtres à 320°C.

A la figure (4.24) nous montrons un exemple de spectres RS, pour les surfaces de saphir (gauche) et de CaF_2 (droite), pour la transition $6S_{1/2}(F = 3) \rightarrow 8P_{1/2}$, et nous montrons des spectres partant du niveau fondamental $F=4$ à la figure (4.25). L'écart entre les deux niveaux hyperfins excités (172 MHz, voir section 4.2.3), fait que le spectre RS correspond à deux courbes bien séparées. Pour la transition depuis le fondamental $F=3$, la courbe correspondant à la transition $F = 3 \rightarrow F' = 4$ est trois fois plus grande que celle de la transition $F = 3 \rightarrow F' = 3$, alors que depuis le niveau fondamental $F=4$, les courbes ont des amplitudes assez proches, avec des amplitudes de transitions ayant des rapports $F_{44} = 5$, $F_{43} = 7$, [Ste09]). On note un déplacement vers le rouge assez grand des spectres de RS par rapport à l'absorption saturée, à cause des densités élevées utilisées (≈ 30 MHz). Le rapport signal sur bruit, surtout à l'interface avec CaF_2 , est plus petit que sur les courbes $8P_{3/2}$, parce que la force d'oscillateur de cette transition est plus petite, ce qui réduit l'amplitude du signal à un changement de réflectivité de l'ordre de 5×10^{-5} . Les courbes présentées aux figures 4.24-4.25 sont en fait un moyennage sur quelques courbes (environ 4).

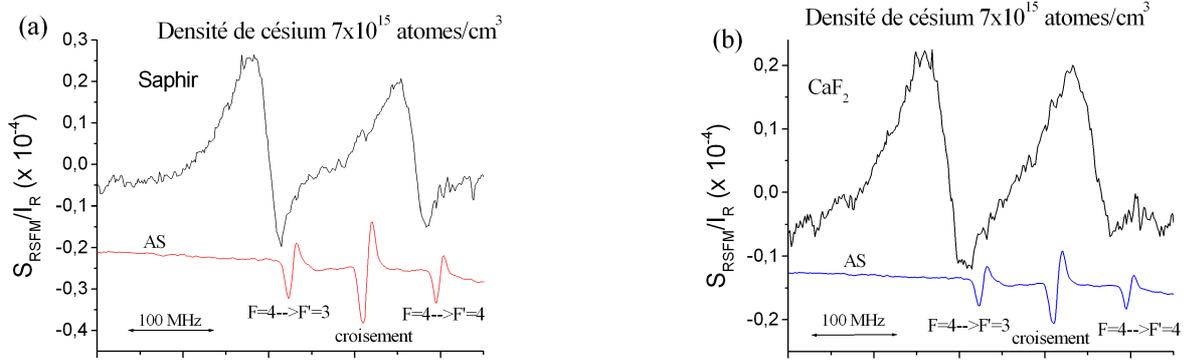


Figure 4.25 – Spectres de réflexion sélective pour la transition $6S_{1/2}(F = 4) \rightarrow 8P_{1/2}$: (a) pour le saphir; (b) pour le CaF_2 . Les spectres ont été faits pour une densité de vapeur de 7×10^{15} atomes/ cm^3 et des fenêtres à 310°C .

Le spectre à l'interface CaF_2 est plus bruyant qu'à l'interface saphir à cause de la présence d'interférences (dues à des réflexions diffuses du barreau CaF_2 , voir section 4.3.3), qui sont cependant partiellement éliminées par le moyennage; de plus la relativement faible vitesse de balayage du laser équivaut à un moyennage supplémentaire des fluctuations de température à l'intérieur du barreau.

4.5 Procédure d'ajustement des courbes expérimentales.

Pour extraire des valeurs de C_3 des courbes expérimentales il nous faut les comparer aux courbes théoriques décrites au chapitre III. Pour chaque courbe théorique, donnée par le paramètre A , on peut chercher le meilleur ajustement possible en largeur et amplitude (par une technique des moindres carrés) obtenant ainsi la valeur du coefficient de vdW ($C_3 = \frac{A^2\gamma}{k^3}$). L'utilisation de différentes courbes théoriques (en A) aboutit à différentes valeurs de C_3 et il nous faut donc trouver les critères qui déterminent la plage des valeurs de C_3 acceptables.

4.5.1 Comparaison des échelles théoriques et expérimentales.

Les courbes théoriques telles que définies à la section 3.4 du chapitre III ont une échelle des abscisses qui est sans dimension ($\frac{\omega - \omega_0}{\gamma/2}$), et l'échelle des ordonnées peut être déterminée

à partir de la densité d'atomes, de la force d'oscillateur de la transition atomique, de l'indice de réfraction et de l'amplitude de la modulation FM. Pour ajuster les courbes théoriques aux courbes expérimentales il nous faut donc comparer les échelles

- **a) L'échelle des ordonnées :** L'échelle expérimentale des ordonnées dépend des mêmes paramètres que ceux de la réponse théorique, ainsi que des propriétés du système de détection utilisé (pertes optiques avant détecteur, gain et efficacité quantique du détecteur...). A cause des incertitudes expérimentales comme par exemple, l'incertitude de la détermination de la densité de césium, les échelles théorique et expérimentale ne peuvent pas être rigoureusement comparées. La densité de césium peut, à priori, être déterminée par la température du réservoir mais nous avons une incertitude de mesure sur celle-ci (on mesure la température de la paroi extérieure du réservoir), d'où une incertitude sur la densité. L'incertitude est augmentée pour la fenêtre CaF_2 par la présence d'un deuxième réservoir de césium à une température inconnue, ce qui ne permet pas de connaître avec précision la densité atomique. Pour comparer les courbes expérimentales et théoriques, on se permet donc de dilater l'échelle théorique en ordonnée par un paramètre $C1$.

Sur les courbes expérimentales un décalage sur l'axe vertical peut également exister. Ce décalage peut être dû à une modulation d'amplitude résiduelle ayant une phase constante par rapport à la modulation de fréquence, ou, pour la fenêtre CaF_2 , à des effets d'interférences, de phase variable (dans ce cas on n'a à priori pas un décalage constant mais plutôt un fond qui change doucement dans la région autour du spectre de RS). On tient compte de ce décalage possible par un paramètre $C4$.

Ainsi pour comparer les courbes théoriques et expérimentales on adapte l'échelle des ordonnées de la courbe théorique en ajustant deux paramètres libres : $C1$ et $C4$.

- **b) L'échelle des abscisses :** L'échelle expérimentale des abscisses est, à priori, bien connue. En effet, à l'aide de la référence de fréquence absolue donnée par l'absorption saturée, et du marqueur de fréquence constitué par le Fabry-Perot, on peut reconstruire l'échelle des abscisses en unités de fréquences (MHz). Pour adapter l'échelle théorique (en $\frac{\omega - \omega_0}{\gamma/2}$) à l'échelle expérimentale, il suffit de la multiplier par $\gamma/2$ et de la déplacer pour que son zéro soit ω_0 . En principe la connaissance expérimentale de la densité atomique est suffisante pour évaluer γ , au moins pour la raie $8P_{3/2}$,

pour laquelle on peut utiliser les résultats de [Cha07] (l'analyse préliminaire correspondante pour la raie $8P_{1/2}$ reste à faire). Or, pour les mêmes raisons que celles évoquées pour l'échelle des ordonnées, la connaissance de cette grandeur n'est pas précise. Nous considérons la largeur γ (et donc la dilatation de l'échelle théorique) comme un paramètre libre dans la procédure d'ajustement. Nous ajustons le zéro de l'échelle théorique de façon à ce qu'il soit égal à ω_0 , la fréquence absolue de la transition.

Expérimentalement, ω_0 est déterminé par l'expérience d'absorption saturée effectuée dans une cellule différente de celle où est faite la RS et à des densités de césium beaucoup plus basses. Sur l'axe des fréquences, on doit également tenir compte d'un décalage induit par le déplacement collisionnel. Ce déplacement, qui dépend de la densité de césium est soumis aux incertitudes déjà discutées. On ajoute à l'échelle théorique un décalage correspondant à ce déplacement, δ . L'adaptation de l'échelle théorique à l'échelle expérimentale se fait en utilisant deux paramètres ajustables : γ et δ .

Écriture de la courbe théorique à partir des adaptations des échelles Nos courbes théoriques sont initialement construites de sorte à ce que entre deux points j successifs de l'axe des abscisses, on ait une distance en fréquence de $\gamma/20$. Dans le programme utilisé pour l'ajustement, l'axe des abscisses expérimental est considéré comme une succession de points entiers $i = 1..N$, où N est le nombre de points de l'acquisition. Pour adapter les échelles théoriques aux échelles expérimentales, nous considérons la transformation suivante sur les courbes théoriques :

$$YT(i) = C1 \times f_A \left(\underbrace{\frac{\gamma}{20\delta i} j}_I + \underbrace{\left(\frac{\delta}{20\delta i} + i_0 - \frac{\gamma}{20\delta i} j_0 \right)}_{II} \right) + C4 \quad (4.3)$$

où $f_A(j)$ est la courbe théorique pour un paramètre A donné (décrits au chapitre III) dans l'échelle théorique, j_0 est le point théorique correspondant à la transition atomique, i_0 est le point expérimental correspondant à la transition atomique et δi est l'écart en fréquence entre deux points expérimentaux. Le terme I de l'expression 4.3 tient compte de la dilatation de l'échelle des abscisses théorique, et le terme II du décalage en fréquence.

4.5.2 Construction de nouvelles courbes théoriques tenant compte de la structure hyperfine

Les spectres expérimentaux sont composés de trois courbes superposées, correspondant aux trois niveaux hyperfins de l'état excité de l'atome, alors que les courbes théoriques ont été construites pour une seule transition. Il nous faut construire des nouvelles courbes théoriques comme étant la somme de trois courbes calculées auparavant. On considérera que tous les niveaux hyperfins ont les mêmes interactions de van der Waals (voir section 2.6 du chapitre I, [Pap94]), les mêmes déplacements et élargissements collisionnels (voir section 4.1 et [Cha07]), et que leurs amplitudes relatives sont données par les forces d'oscillateur relatives de chaque transition. Dans le cas du niveau fondamental $F=4$ de l'état $8P_{3/2}$, par exemple, la nouvelle courbe théorique peut être écrite comme :

$$Y(i) = F_{43} \times YT(i + \delta_{35}/\delta i) + F_{44} \times YT(i + \delta_{45}/\delta i) + F_{45} \times YT(i) \quad (4.4)$$

où $Y(i)$ est la nouvelle courbe théorique calculée, $YT(i)$ est la courbe théorique (donnée dans l'équation 4.3) pour une transition et pour une valeur du paramètre A donné, F_{ij} correspond à la valeur relative de l'amplitude de la transition entre les niveaux hyperfins fondamental $F=i$ et excité $F'=j$ ($F_{45} = 44/72$, $F_{44} = 21/72$, $F_{43} = 7/72$), δ_{35} et δ_{45} correspondent aux écarts entre les niveaux hyperfins données dans la figure (4.7). Dans l'écriture de l'équation (4.4) on a choisi i_0 comme étant référencé par rapport à la transition $F = 4 \rightarrow F' = 5$. Il se peut pour certaines courbes qu'une dérive du laser fasse que l'écart apparent entre les niveaux hyperfins soit modifié. En ajustant les spectres de RS à l'interface avec la fenêtre saphir, spectres pour lesquels la structure est bien résolue, on s'autorise à modifier légèrement les valeurs de δ_{35} et δ_{45} . Nous utilisons ensuite ces valeurs modifiées pour l'ajustement du spectre à l'interface CaF_2 , enregistré simultanément (même dérive du laser) au spectre saphir.

4.5.3 Procédure d'ajustement

Pour ajuster la courbe théorique (4.4) à la courbe expérimentale nous disposons de 5 paramètres libres. Les quatre paramètres mentionnés ci-dessus, c'est à dire $C1$, $C4$, γ et δ , plus le paramètre A qui donnera la forme de raie de la courbe théorique choisie. Pour ajuster les courbes on cherche à minimiser le carré de la distance (comptée verticalement) entre les points théoriques et expérimentaux correspondant, c'est-à-dire à minimiser :

$$\chi = \frac{1}{N^{1/2}} \sum_i \sqrt{(YE(i) - Y(i))^2} \quad (4.5)$$

où la somme sur i est une somme sur tous les points de l'acquisition et où $YE(i)$ correspond aux valeurs en ordonnées de la courbe expérimentale. Cette méthode est connue comme méthode des moindres carrés. Dans le processus de minimisation de χ , on doit calculer les dérivées de χ par rapport aux paramètres libres. Or pour chaque valeur de A le signal de réflexion sélective FM est calculé numériquement par un long processus, et une dérivation par rapport au paramètre A est extrêmement compliquée. C'est pourquoi nous ne considérerons pas le paramètre A comme un paramètre à ajuster, mais comme un paramètre choisi (imposé) ce qui évite notamment d'avoir à calculer $\frac{\partial \chi}{\partial A}$. Nous ajustons alors les valeurs des paramètres $C1$, $C4$, γ et δ pour minimiser χ . Notons que la valeur minimale de χ est toujours supérieure à zéro à cause des imperfections de la courbe expérimentale (bruit, interférence coté CaF_2, \dots).

Pour chaque valeur de A la minimisation de χ nous permet d'obtenir une valeur de C_3 (proportionnelle à $A\gamma$). En considérant différentes valeurs de A , on obtient un ensemble de valeurs différentes de C_3 , et il nous faut établir des critères pour déterminer la gamme des valeurs obtenues acceptable.

4.5.3.1 Critères de vérification des ajustements

Critère visuel Le premier critère utilisé pour vérifier l'ajustement des courbes est un critère visuel : il faut que les courbes théorique et expérimentale se superposent le mieux possible. Il se peut que des ensembles assez différents de paramètres donnent des valeurs de χ semblables. Dans ce genre de cas, il est généralement très facile d'éliminer quelques courbes théoriques par simple inspection visuelle.

Signe du paramètre C1 En plus du critère visuel, nous observons si les paramètres obtenus sont raisonnables du point de vue physique. Ainsi, $C1$ est par nature positif, mais il est possible de trouver des courbes avec différentes valeurs de A qui soient pratiquement l'opposée (dans le sens changement de signe) l'une de l'autre mais avec des valeurs de déplacement différents. Pour bien utiliser ce critère il nous faut vérifier qu'on utilise une détection synchrone qui soit bien en phase avec la modulation de fréquence, et non pas en opposition de phase. On fait cette vérification en observant soit le signal FM d'une absorption linéaire (ou saturée) soit le signal FM d'un Fabry Perot.

Utilisation de la valeur numérique de l'erreur χ Utiliser à priori un critère quantitatif sur χ pour déterminer l'acceptabilité d'un ajustement n'est pas pratique. L'erreur dépend de plusieurs facteurs qui ne sont pas directement liés à la forme de raie de la courbe théorique choisie (valeur de A) tels que : le bruit sur le signal ; d'éventuelles dérives du laser introduisant des erreurs sur l'échelle des fréquences ; des variations d'amplitudes sur les ailes de la courbe dues à la modulation d'amplitude résiduelle ou aux interférences du barreau CaF_2 . A cause de cela, nous pouvons trouver des ajustements ayant des valeurs d'erreurs similaires mais qualitativement différents. Ceci justifie l'importance donnée au critère visuel au détriment d'un critère quantitatif.

Cohérence des résultats relativement à des variations de la densité atomique

Pour mieux vérifier la cohérence des résultats obtenus, nous procédons à des mesures systématiques de réflexion sélective (pour les mêmes températures de surface) en variant la densité de césium. En effet on s'attend à ne pas avoir de changement de la valeur de C_3 avec la densité de césium, même en changeant considérablement les formes de raie (voir figure 4.22). Ceci permet de distinguer entre les effets de surface cherchés et d'éventuels effets de collisions atomiques ou liés à des adatoms (voir section 3.5 chapitre III). Cette analyse permet aussi d'établir des barres d'erreurs sur les valeurs de C_3 obtenues.

Nous utilisons la dépendance avec la densité, telle qu'attendue pour les différents paramètres de l'ajustement pour vérifier la cohérence de ceux-ci. En effet, le déplacement ($|\delta|$) et l'élargissement (γ) collisionnel doivent avoir une dépendance linéaire avec la densité de césium. L'amplitude du signal de RS est donnée par le paramètre $C1$, or cette amplitude est proportionnelle à $\frac{N}{\gamma}$ où N est la densité de césium (voir l'équation 3.44 du chapitre III) : $\gamma C1$ doit donc avoir un comportement linéaire croissant avec la densité de césium.

Une fois établi le comportement linéaire de ces différents paramètres, nous pouvons aussi extrapoler les courbes à une densité nulle. Nous devons avoir une valeur de δ et de $C1\delta$ qui tendent vers zéro (s'il n'y a pas d'atome il n'y a pas de signal et le déplacement est nul) et une valeur de γ qui tend vers la largeur naturelle. On veut donc, à partir de courbes assez différentes (différentes valeurs de A), retrouver une cohérence assez stricte sur les paramètres.

4.5.4 Ajustement simultané des spectres aux deux interfaces

Nous voulons ajuster deux courbes de réflexion sélective (CaF_2 et Saphir) enregistrées simultanément et dans la même cellule. Nous devons donc ajuster 8 (4+4) paramètres libres. En considérant que la vapeur est en équilibre de pression sur tout le corps de la cellule, on peut supposer avoir les mêmes déplacements et élargissements collisionnels des deux cotés. Cela nous permet de réduire le nombre de paramètres libres (6 paramètres libres) en ajustant les deux courbes en même temps et en imposant des valeurs de γ et δ identiques pour ce que seraient les deux ajustements indépendants. En pratique, on traite les courbes expérimentale et théorique de l'équation (4.5) en composant une unique courbe double :

$$YE(i) = \begin{cases} YE_{Saphir}(i), & \text{pour } i \in [1, \Delta] \\ YE_{Saphir}(i - \Delta), & \text{pour } i \in [\Delta + 1, 2\Delta] \end{cases} \quad (4.6)$$

où Δ est un déplacement numérique (Δ est le nombre de points d'un spectre individuel). La courbe double théorique est construite de façon similaire. On laisse à chaque courbe théorique son propre paramètre d'amplitude et décalage vertical. On fait donc un ajustement de courbe en utilisant six paramètres : $C1_{\text{CaF}_2}$, $C1_{\text{Saphir}}$, $C4_{\text{CaF}_2}$, $C4_{\text{Saphir}}$, γ et δ .

Comme les courbes expérimentales correspondent au changement d'intensité de réflexion relative ($\tilde{S}_{RSFM} = \frac{S_{RSFM}}{\sum_R r^2}$), on prévoit que l'amplitude du signal est proportionnelle à $\frac{n(n-1)}{n^2+1}$, où n est l'indice de réfraction de la fenêtre. Le rapport, $\frac{C1_{\text{Saphir}}}{C1_{\text{CaF}_2}}$, prévu entre les amplitudes du signal côtés saphir, et CaF_2 : est de 0.68. Nous avons là un autre critère pour vérifier la cohérence des ajustements [Lal08]. L'utilisation d'un tel critère a été validée pour des spectres de réflexion sélective sur la raie D1 du césium dans la première cellule utilisée [Lal08]. L'utilisation de la technique ajustant les courbes saphir et CaF_2 avec la même largeur et élargissement avait permis d'obtenir les valeurs prévues du rapport $\frac{C1_{\text{Saphir}}}{C1_{\text{CaF}_2}}$, indiquant que la vapeur était identique des deux côtés. Les expériences menant à ces résultats ont été faites à des densités plus basses (autour de 10^{14} atomes/cm³) que celles utilisées pour les transitions vers les niveaux 8P du césium et dans la première cellule disponible. L'existence d'un second réservoir de césium dans la deuxième cellule peut différencier la vapeur des deux côtés de la cellule et peut rendre incertaine l'utilisation de ce critère.

4.6 Résultats de réflexion sélective pour la transition

$$6S_{1/2} \rightarrow 8P_{3/2}$$

Dans cette section nous discuterons les résultats obtenus à partir des ajustements des courbes de réflexion sélective pour la transition $6S_{1/2} \rightarrow 8P_{3/2}$.

4.6.1 Première cellule : résultats préliminaires

A la figure (4.26) nous montrons un exemple de spectre de RS, pour le saphir et pour le CaF_2 , obtenu avec la première cellule, pour des températures de 250°C pour le réservoir et 300°C pour les fenêtres saphir et CaF_2 (niveau fondamental $F=3$). Nous montrons aussi

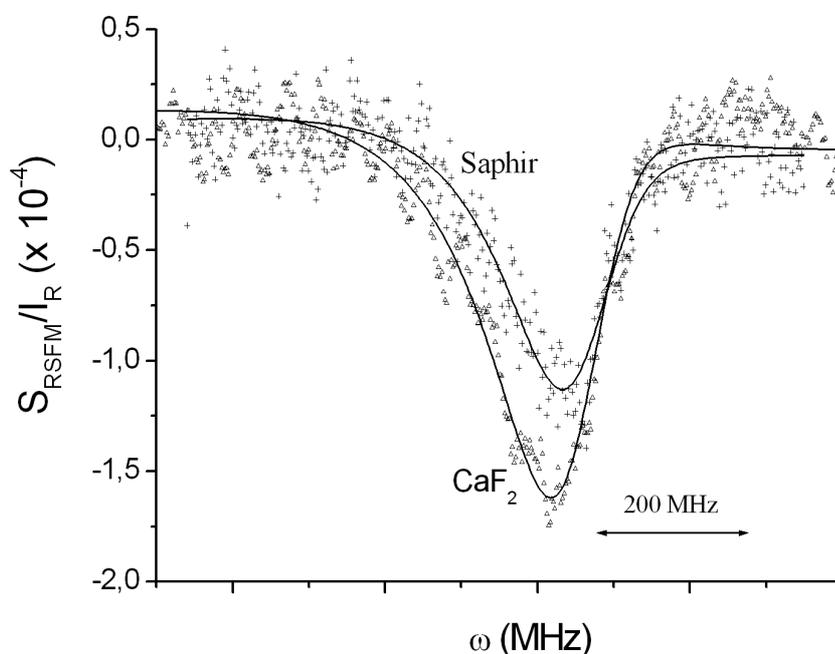


Figure 4.26 – Spectres de réflexion sélective obtenus pour la première cellule pour la transition $6S_{1/2}(F=3) \rightarrow 8P_{3/2}$ au voisinage de surface de saphir, et de CaF_2 . Les spectres ont été enregistrés pour une densité de césium de 10^{16} atomes/ cm^3 et des fenêtres à 300°C . Les ajustements sont faits avec $A=4$ (CaF_2) et $A=3$ (saphir) et $\gamma = 170$ MHz.

sur la figure des courbes théoriques bien ajustées aux courbes expérimentales. A cause des problèmes d'impuretés de cette cellule, nous n'avons pas réussi à avoir de beaux signaux avec celle-ci. La petite taille du signal nous a imposé d'utiliser de grandes amplitudes de modulation qui peuvent élargir nos spectres, masquant toute structure hyperfine. Notons

aussi qu'à cause du faible rapport signal sur bruit, les barres d'erreurs sur les paramètres obtenus par l'ajustement sont assez grandes. Nous ne pouvons donc pas utiliser ces spectres pour déduire une valeur du coefficient de vdW (C_3) et nous ne nous attardons donc pas à discuter avec plus de détails d'éventuelles tentatives d'ajustement. Cependant, ces courbes expérimentales nous donnent des informations intéressantes : i) le rapport des amplitudes des courbes est assez proche de la valeur théorique de 0.68 : on obtient à partir des ajustements 0.69. ii) nous avons ajusté les courbes indépendamment et obtenu les mêmes valeurs de γ et de δ , ce qui justifie bien l'idée que la vapeur est la même des deux côtés de la cellule. iii) la courbe de RS pour le CaF_2 semble un peu plus déplacée vers le rouge que la courbe saphir, ce qui indique une valeur de C_3 plus grande (ou à tout le moins comparable) pour le CaF_2 que pour le saphir. En effet pour les ajustements présentés à la figure (4.26), nous trouvons $C_3^{\text{CaF}_2} \approx 80 \text{ kHz} \times \mu\text{m}^3$ et $C_3^{\text{Saphir}} \approx 60 \text{ kHz} \times \mu\text{m}^3$. Ces valeurs ne doivent pas être considérées comme des valeurs mesurées de C_3 , vu la qualité de nos courbes et le manque de précision sur les ajustements, mais ceci indique que nous trouvons une valeur de C_3 aussi grande pour le CaF_2 que pour le saphir. Ce résultat est en totale contradiction avec les prédictions théoriques : pour cette température de fenêtre $C_3^{\text{CaF}_2} (\approx 10 \text{ kHz} \times \mu\text{m}^3)$ est très inférieur à $C_3^{\text{Saphir}} (\approx 43 \text{ kHz} \times \mu\text{m}^3)$.

4.6.2 Deuxième cellule

Dans cette section nous discuterons les résultats obtenus à partir d'ajustements pour les spectres obtenus avec la deuxième cellule. Ces spectres et leurs ajustements constituent les résultats principaux pour l'investigation de l'interaction de vdW résonnante dépendante en température.

4.6.2.1 Différences par rapport aux spectres de la première cellule et exemples d'ajustements

Nous montrons à la figure 4.27 un exemple de spectre de RS à l'interface avec la fenêtre CaF_2 obtenu avec la deuxième cellule (voir figure 4.26). Pour la deuxième cellule nous arrivons à résoudre les différents niveaux hyperfins de sorte que l'on puisse obtenir des informations bien plus précises à partir des ajustements. La figure (4.27a) montre des exemples de courbes théoriques que l'on considère comme bien ajustées à la courbe expérimentale. Cette dernière

est un spectre de réflexion sélective obtenu à l'interface CaF_2 /vapeur pour une température de fenêtre de 320°C et une température de réservoir de 205°C , depuis le sous-niveau hyperfin $F=3$. On note que les trois courbes théoriques (avec $A = 21$, $A = 23$ et $A = 25$) reproduisent

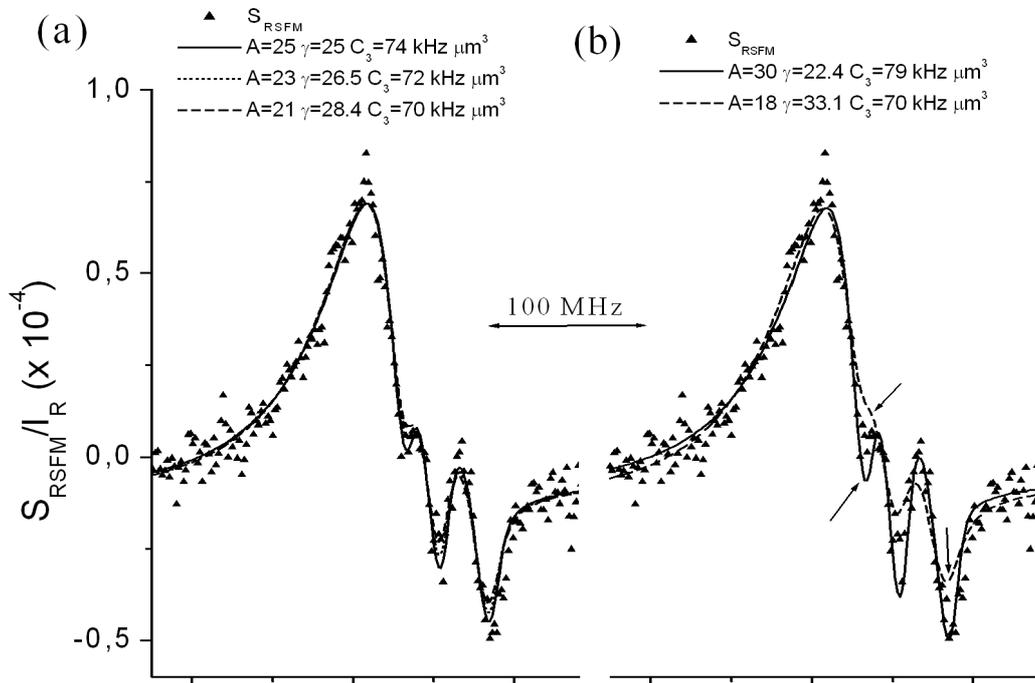


Figure 4.27 – Spectre de réflexion sélective pour la transition $6S_{1/2}(F = 3) \rightarrow 8P_{3/2}$ à l'interface CaF_2 /vapeur pour une température de fenêtre de 320°C et une densité atomique de 2×10^{15} atomes/ cm^3 , montré avec différentes courbes théoriques ajustées. (a) Les courbes théoriques ajustent assez bien le spectre expérimental; (b) les courbes théoriques n'ajustent pas bien le spectre expérimental. Quelques défauts d'ajustements sont montrés par des flèches.

correctement la courbe expérimentale. Ces courbes ont été obtenues pour différentes valeurs du paramètre sans dimension A . Plus A est grand, plus la valeur de la largeur obtenue à partir de l'ajustement est petite : le produit $A\gamma$ est donc plus ou moins constant. Les déplacements collisionnels obtenus pour ces courbes varient de -5.4MHz pour $A = 25$ à $\delta = -6.6\text{MHz}$ pour $A = 21$ (cette variation est petite). Notons que ces différents ajustements donnent des valeurs de C_3 assez proches, allant de $C_3 = 74\text{kHz} \times \mu\text{m}^3$ pour $A = 25$ à $C_3 = 70\text{kHz} \times \mu\text{m}^3$ pour $A = 21$.

A la figure (4.27b) nous montrons des courbes théoriques ($A = 30$ et $A = 18$) dont nous

considérons qu'elles n'ajustent pas correctement la courbe expérimentale. On note que les valeurs obtenues pour C_3 , par le produit $A\gamma$ ($C_3 = 79\text{kHz} \times \mu\text{m}^3$ et $C_3 = 70\text{kHz} \times \mu\text{m}^3$ pour $A = 30$ et $A = 18$, respectivement) restent proches des valeurs obtenues pour les courbes acceptables.

A la figure (4.28) nous montrons des résultats similaires à ceux présentés à la figure (4.27), mais cette fois pour la transition depuis le niveau fondamental $F=4$. Ils sont obtenus avec une température du réservoir de 205°C et une température de surface de 320°C . La figure

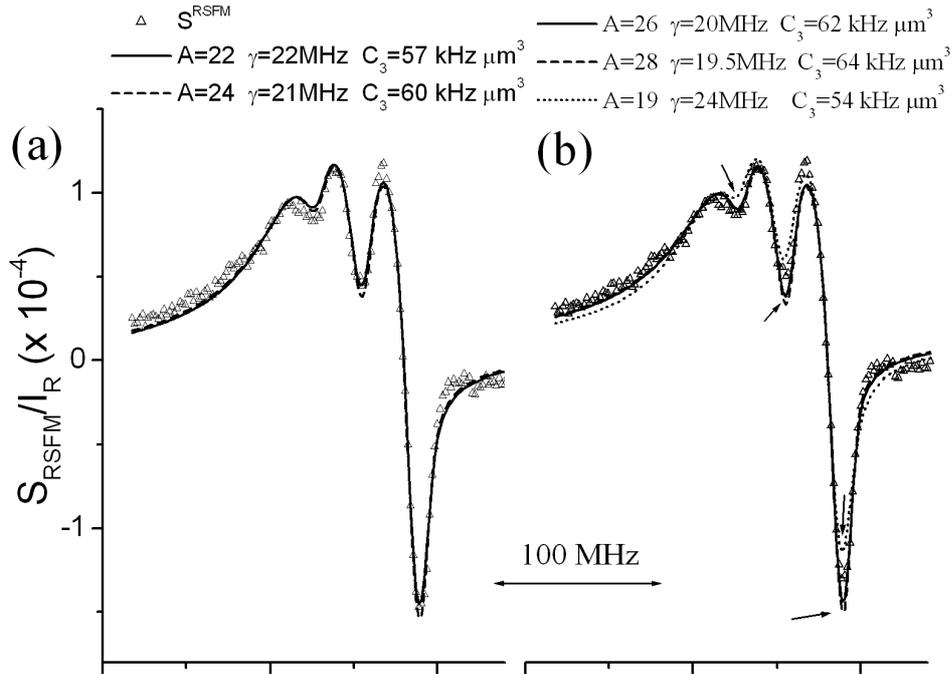


Figure 4.28 – Spectre de réflexion sélective pour la transition $6S_{1/2}(F = 4) \rightarrow 8P_{3/2}$ à l'interface $\text{CaF}_2/\text{vapeur}$ pour une température de fenêtre de 320°C et une densité atomique de 2×10^{15} atomes/ cm^3 , et comparaison avec différentes courbes théoriques ajustées. (a) Les courbes théoriques ajustent assez bien le spectre expérimental; (b) les courbes théoriques n'ajustent pas bien le spectre expérimental. Quelques défauts d'ajustements sont montrés par des flèches.

(4.28a) montre des ajustements acceptables, correspondant à $A = 22$ et $A = 24$. Les valeurs des paramètres obtenus sont respectivement $\gamma = 22.2$ MHz et $\delta = -3.1$ MHz ($A = 22$), et $\gamma = 21.1$ MHz et $\delta = -2.6$ MHz ($A = 24$), d'où respectivement $C_3 = 57.5$ $\text{kHz} \times \mu\text{m}^3$ et $C_3 = 59.6$ $\text{kHz} \times \mu\text{m}^3$ respectivement. La figure (4.28b) montre des ajustements ($A = 28$, $A = 26$ et $A = 19$) que nous considérons comme inacceptables, et les valeurs de C_3 obtenues sont 64 $\text{kHz} \times \mu\text{m}^3$, 62 $\text{kHz} \times \mu\text{m}^3$ et 54 $\text{kHz} \times \mu\text{m}^3$, respectivement.

Notons certaines imperfections des ajustements, concernant notamment la taille des pics correspondant aux différents niveaux hyperfins. On aperçoit bien ces imperfections sur le pic principal (fenêtre saphir) et sur la structure centrale (fenêtre CaF_2). Quelques problèmes expérimentaux peuvent justifier ces différences :

- i) Ces spectres ont été faits en utilisant le laser avec système de doublage de fréquence, avec une modulation de fréquence sur le laser maître. Nous essayons d'éliminer la modulation d'amplitude résiduelle en faisant une soustraction avec un signal de référence (voir section 4.2.1.5 de ce chapitre). Des petites différences entre les différents faisceaux (si on ne détecte pas tout le faisceau) peuvent justifier des petites variations d'amplitude du signal de RS (les variations dues à la modulation d'amplitude résiduelle avant soustraction sont d'environ la moitié de la taille du signal).
- ii) côté CaF_2 une figure d'interférence subsiste malgré l'angle d'incidence. Comme nous l'avons dit auparavant, la phase de cette interférence change au cours de l'acquisition, et peut modifier le spectre obtenu.

Les résultats d'ajustements montrés sur les figures (4.27,4.28) ont été faits pour les mêmes températures de fenêtres, mais pour des niveaux hyperfins fondamentaux différents. Comme l'interaction de vdW est en principe la même pour les différents niveaux hyperfins, on devrait avoir les mêmes résultats pour C_3 : on note que la valeur de C_3 obtenue pour le niveau $F=4$ est inférieure à la valeur obtenue pour $F=3$. Ceci indique des problèmes d'incertitude sur la détermination de la valeur de C_3

4.6.2.2 Différences entre la vapeur des deux côtés de la cellule.

Comme discuté auparavant, nous voulons effectuer deux expériences simultanées de RS sur la même cellule pour diminuer le nombre de paramètres libres de notre ajustement. Ainsi, nous pouvons imposer que l'élargissement et le déplacement collisionnel soient les mêmes du côté CaF_2 et du côté saphir. La figure (4.29) montre des ajustements obtenus en utilisant le même élargissement et déplacement collisionnels des deux côtés. Ces spectres ont été obtenus pour le niveau hyperfin $F=4$, avec des températures de 205°C pour le réservoir et 350°C pour les fenêtres. Le faisceau du côté CaF_2 fait un angle d'environ 12 mrad avec la normale à la surface pour diminuer les interférences. Cet angle ne modifie pas les formes de raie (un angle

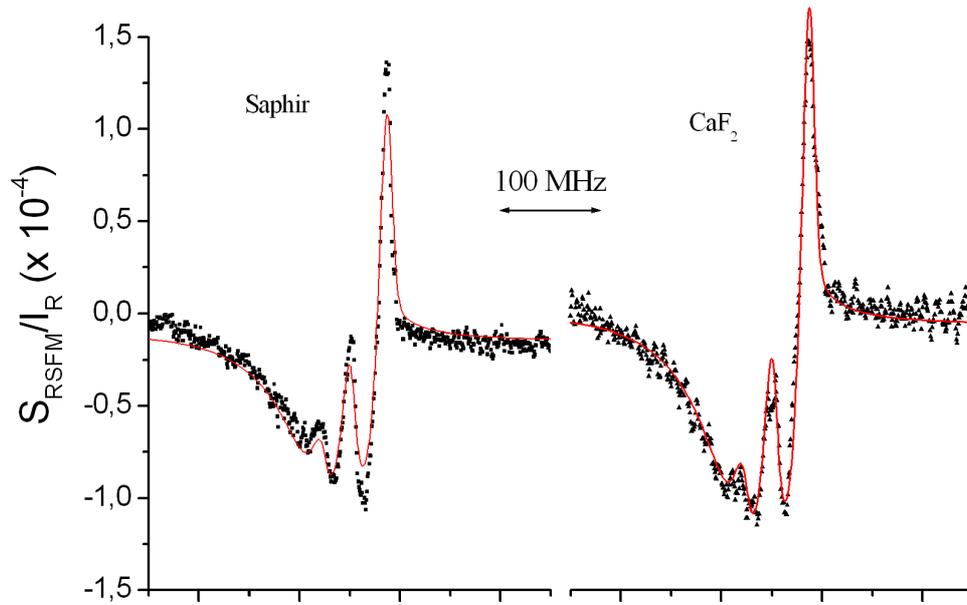


Figure 4.29 – Ajustements de spectres de réflexion sélective (fenêtres saphir et CaF_2), en imposant les mêmes largeurs et déplacements collisionnels pour les deux courbes. Les spectres ont été faits pour une température de fenêtre de 320°C et une densité atomique de 2×10^{15} atomes/ cm^3

plus grand pourrait élargir et déformer les courbes [Duc91]). La valeur optimale du paramètre A est de $A = 31$, tant pour le CaF_2 que pour le saphir. L'ajustement donne $\gamma = 20.7$ MHz et $\delta = -3.0$ MHz. Les valeurs de C_3 obtenues sont donc de $C_3^{\text{Saphir}} = C_3^{\text{CaF}_2} \approx 75 \text{ kHz} \times \mu\text{m}^3$. On retrouve le résultat préliminaire, obtenu avec la première cellule, que le C_3 estimé pour le CaF_2 est similaire à la valeur pour le saphir, en contradiction avec la prédiction théorique. Cependant, nous n'arrivons pas à ajuster correctement les courbes en utilisant les mêmes γ et δ . Ceci est dû, comme nous verrons par la suite, à une différence entre les largeurs de deux courbes.

Différences sur la largeur et le déplacement entre les deux côtés de la cellule

A la figure (4.30) nous montrons les mêmes courbes expérimentales, mais cette fois ci ajustées indépendamment, c'est-à-dire, en autorisant des largeurs et déplacements collisionnels différents des deux côtés. Bien que les ajustements ne soient pas parfaits, avec

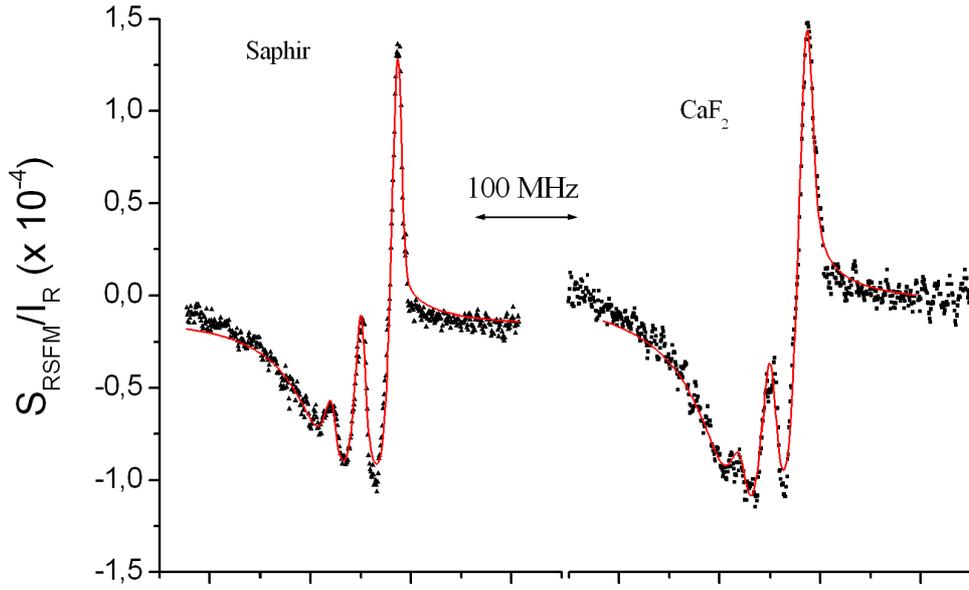


Figure 4.30 – Ajustement de spectres de réflexion sélective (fenêtres saphir et CaF_2) utilisant des largeurs et déplacements collisionnels différentes pour les deux courbes. Les spectres expérimentaux sont les mêmes que ceux montrés à la figure 4.29.

des difficultés pour reproduire correctement les maximums des courbes, nous notons qu'en utilisant des paramètres indépendants, nous arrivons à ajuster considérablement mieux les spectres expérimentaux. Les courbes théoriques ont été obtenues pour des paramètres $A_{\text{saphir}} = 32$ et $A_{\text{CaF}_2} = 24$ en utilisant les valeurs $\gamma_{\text{saphir}} = 15.6$ MHz, $\gamma_{\text{CaF}_2} = 23.5$ MHz, $\delta_{\text{saphir}} = -6.33$ MHz et $\delta_{\text{CaF}_2} = -5.4$ MHz. A partir des ces paramètres on trouve $C_3^{\text{saphir}} \approx 59 \text{ kHz} \times \mu\text{m}^3$ et $C_3^{\text{CaF}_2} \approx 66 \text{ kHz} \times \mu\text{m}^3$. Ces résultats indiquent que la vapeur proche de l'interface CaF_2 /vapeur ne présente pas les mêmes caractéristiques que la vapeur proche de l'interface saphir/vapeur. Nous abandonnons donc la méthode d'ajustement où les mêmes déplacement et élargissement sont imposés aux deux interfaces, préférant ajuster ces paramètres indépendamment. Nous suspectons l'existence d'un deuxième réservoir de césium (le césium piégé entre le barreau CaF_2 et la cellule de saphir) d'être responsable de ces différences.

Une largeur plus grande du côté CaF_2 que du côté saphir est obtenue sur toutes nos acquisitions. Curieusement plus la température des fenêtres est élevée, plus la différence entre les deux largeurs est faible. En fait, c'est la largeur coté CaF_2 , atteignant des valeurs de

l'ordre de 30MHz pour des températures de fenêtre autour de 250°C, qui diminue quand on chauffe le barreau.

Rapport des amplitudes des spectres Le rapport entre les amplitudes des signaux $\frac{C1\gamma_{Saphir}}{C1\gamma_{CaF_2}}$ est plus petit que la valeur attendue théoriquement (valeur expérimentale 0.54 contre 0.68 attendue théoriquement), ce qui indique une plus grande densité de vapeur à l'interface avec le CaF₂ que près de la fenêtre saphir.

La densité atomique dans la cellule est contrôlée par la température du réservoir de césium, et n'est, à priori, pas modifiée, quand on change les températures de fenêtres. Cependant, l'amplitude du signal côté CaF₂ augmente beaucoup avec la température de la fenêtre avec le rapport $\frac{C1_{saphir}}{C1_{CaF_2}} \sim 1.4$ pour une température de fenêtre de 250°C et ~ 0.55 pour une fenêtre à 350°C. Notons que ce comportement est indépendant du choix d'imposer ou non les mêmes largeurs et déplacements aux interfaces saphir et CaF₂. Le critère de comparer le rapport $\frac{C1_{saphir}}{C1_{CaF_2}}$ avec la prédiction théorique est donc abandonné. On pourrait expliquer l'augmentation de l'amplitude quand on augmente la température de la surface par une augmentation de la densité du césium proche de l'interface ; cette explication paraît cependant être en contradiction avec la diminution de la largeur de raie.

4.6.2.3 Variation de C_3 avec la température de la surface

Nous avons procédé à des séries d'acquisition en réalisant des mesures de RS pour différentes températures de fenêtres et en maintenant une température constante pour le réservoir de césium. Ces séries ont été réalisées en enregistrant un certain nombre de spectres (usuellement 4 ou 5) pour une température, puis en changeant la température des fenêtres, et en réalisant des nouvelles mesures pour la nouvelle température et ainsi de suite. Une fois les températures de consignes atteintes, nous attendons environ une demie-heure avant de prendre de nouveaux spectres pour donner le temps au système de se stabiliser. Pour chaque valeur de la température de la fenêtre, nous essayons de déterminer, visuellement, un ensemble de paramètres acceptable afin de construire des barres d'erreurs sur les paramètres obtenus.

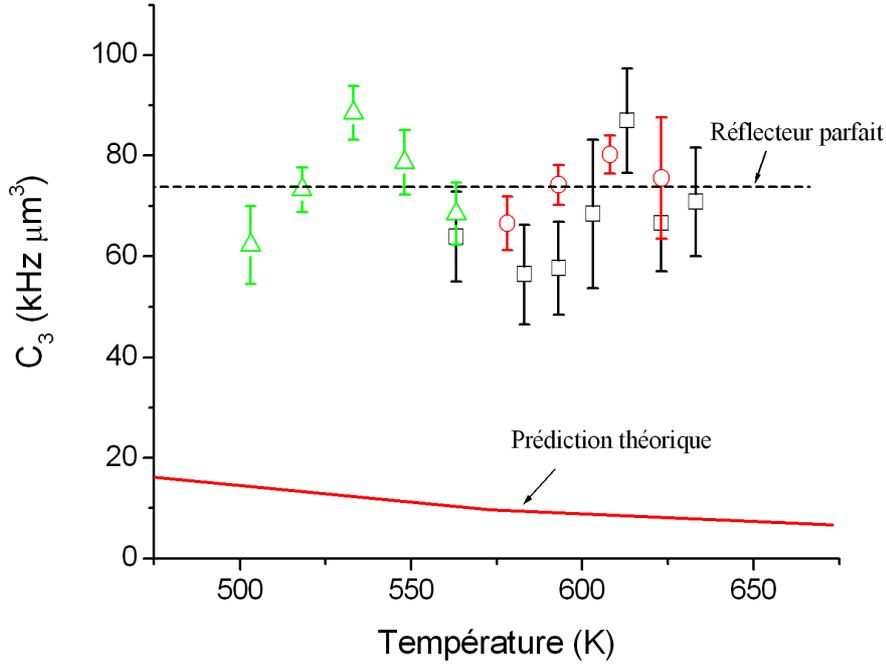


Figure 4.31 – Variation avec la température de la fenêtre, du coefficient de vdW C_3 pour l'interaction avec la surface de CaF_2 . Les différents symboles correspondent à différentes séries d'acquisitions : avec le laser doublé en fréquence depuis les niveaux fondamentaux $F=4$ (carré) et $F=3$ (cercle) et depuis le niveau fondamental $F=4$ avec la diode laser (triangle). Les barres d'erreurs sur les points expérimentaux ont été construites en considérant, pour chaque spectre, les plus grandes et plus petites valeurs de C_3 avec les ajustements acceptables. Une extrapolation des valeurs théoriques prédites dans le chapitre II est montrée en traits pleins, et la valeur calculée pour l'interaction avec un réflecteur parfait est montrée en traits tiretés.

La figure (4.31) montre les résultats obtenus pour la valeur de C_3 en fonction de la température de la fenêtre CaF_2 , à partir de trois séries de spectres expérimentaux : avec le laser doublé en fréquence depuis les niveaux fondamentaux $F=4$ (carré) et $F=3$ (cercle), et sur le niveau fondamental $F=4$ avec la diode laser (triangle). Nous montrons aussi les valeurs de C_3 calculées en utilisant les mesures de propriétés optiques faites à Orléans (trait plein) et la valeur de C_3 pour l'interaction avec un réflecteur parfait (pointillé). Nous ne détectons pas de changement significatif de C_3 avec la température, compte tenu de nos barres d'erreurs. Le résultat le plus flagrant est une non-concordance entre les valeurs obtenues expérimentalement et les valeurs théoriques. En effet on obtient expérimentalement des valeurs de $C_3 \approx 70 \text{ kHz} \times \mu\text{m}^3$, alors que théoriquement on devrait avoir des valeurs en-

viron 7 fois plus petites, $C_3^{Th} \approx 10 \text{ kHz} \times \mu\text{m}^3$. Nos valeurs expérimentales sont plus proches des valeurs de C_3 pour Cs($8P_{3/2}$) face à un réflecteur parfait ($C_3^{Rp} = 73.8 \text{ kHz} \times \mu\text{m}^3$) (voir chapitre I). Nous ne voyons à priori aucune raison pour cela.

La figure (4.32) montre les résultats obtenus pour le saphir (avec les mêmes légendes). Les

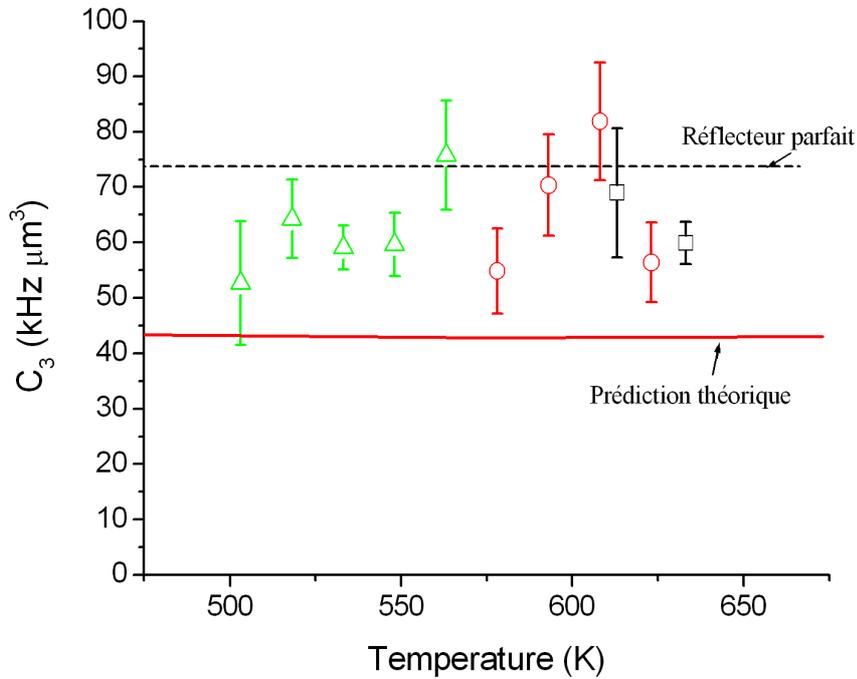


Figure 4.32 – Coefficient de vdW C_3 pour l’interaction avec la surface de saphir, en fonction de la température de la fenêtre. Les différents symboles correspondent à différentes séries d’acquisitions : avec le laser doublé en fréquence depuis les niveaux fondamentaux $F=4$ (carré) et $F=3$ (cercle) et sur le niveau fondamental $F=4$ avec la diode laser (triangle). Une extrapolations des valeurs théoriques prédites dans le chapitre II est montré en trait plein et la valeur calculé pour l’interaction avec un réflecteur parfait est montée en traits tiretés.

valeurs obtenues pour C_3 sont autour de $65 \text{ kHz} \times \mu\text{m}^3$, environ 1.5 fois plus grandes que les valeurs théoriques calculées, légèrement en dessous des valeurs pour un réflecteur parfait et en accord avec les valeurs obtenues dans [Cha07] ($73 \text{ kHz} \times \mu\text{m}^3$).

4.6.2.4 Variation de C_3 avec la température du réservoir

Afin de bien vérifier la cohérence de nos résultats, nous avons effectué une série de mesures en maintenant les températures des fenêtres fixes et en changeant la température

du réservoir de césium. Ainsi, nous changeons les caractéristiques de la vapeur (γ et δ) sans changer l'interaction de vdW. Malheureusement, la succession de problèmes que nous avons rencontrés ne nous a pas permis d'avoir un grand nombre de mesures en changeant la température du réservoir.

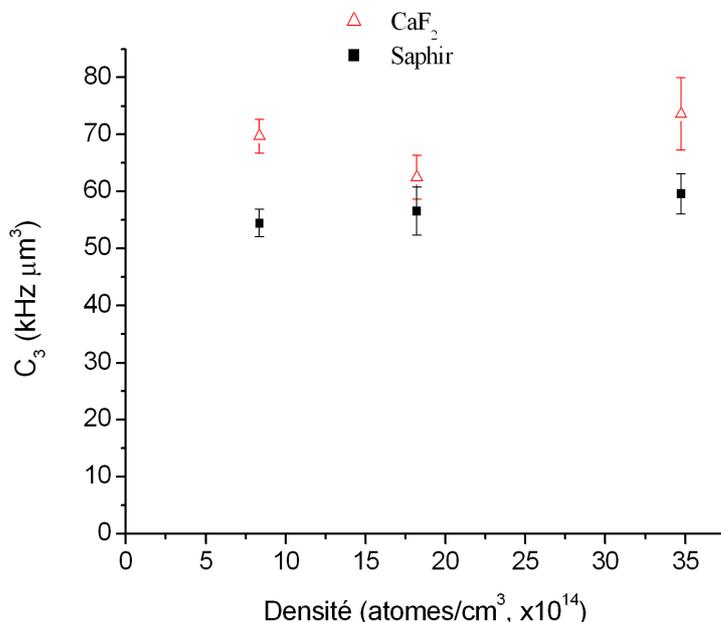


Figure 4.33 – Variation de la valeur extrapolée de C_3 pour l'interaction du niveau $8P_{3/2}$ du césium avec des surfaces de saphir et CaF_2 , en fonction de la densité de la vapeur de césium (déterminée d'après la température du four du réservoir).

La figure (4.33) montre l'évolution de C_3 avec la température du réservoir à l'interface avec le saphir (carré) et la fenêtre CaF_2 (triangle). Nous notons que le coefficient de vdW ne varie pas quand on change la densité de césium. Pour bien vérifier que les ajustements sont cohérents nous regardons l'évolution des largeurs et déplacements collisionnels obtenus. La figure (4.34a) montre l'évolution de δ avec la densité de césium. Nous montrons aussi l'estimation de la dépendance linéaire de δ (-60 MHz/Torr) donnée dans [Cha07]. Pour chaque densité de césium, les barres d'erreurs ont été construites à partir des valeurs de δ déduites des ajustements acceptables pour un spectre donnée (spectre pouvant être soumis à des problèmes expérimentaux tels qu'une dérive du laser pendant l'acquisition). Notons aussi que les déplacements et barres d'erreurs sont relativement petits par rapport aux largeurs des spectres (voir figure 4.34b). Il est donc probable que l'apparente non-linéarité du déplacement en fonction de la densité de la vapeur montrée à la figure (4.34a) soit due à une

sous-estimation des barres d'erreurs. Nous notons tout de même que les valeurs obtenues sont compatibles avec l'estimation (-60 MHz/Torr) et qu'une extrapolation à densité nulle nous donne un déplacement zéro. A la figure (4.34b), nous montrons l'évolution de la largeur avec la densité de césium : encore une fois, on note un comportement acceptable (linéaire).

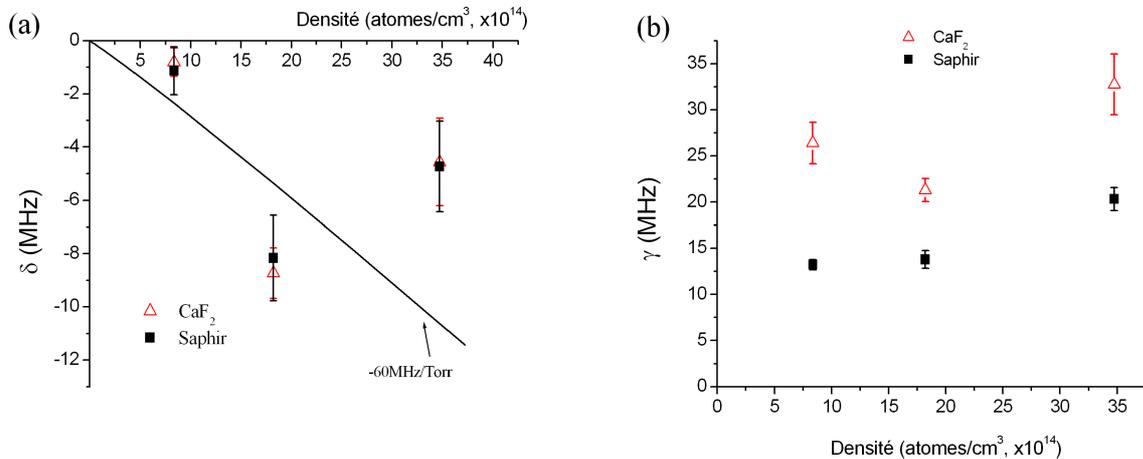


Figure 4.34 – Variation de la valeur de δ (a) et γ (b) avec la densité de la vapeur, obtenue à partir de l'ajustement des spectres pour la transition $6S_{1/2} \rightarrow 8P_{3/2}$ (déterminée d'après la température du four du réservoir). Dans (a), nous montrons aussi l'estimation du déplacement collisionnel de -60 MHz/Torr obtenu dans [Cha07].

Ces résultats donnent confiance dans la capacité de la technique de RS, à sonder un potentiel du type $-C_3/z^3$, et à observer l'interaction de vdW.

4.7 Réflexion sélective pour la transition $6S_{1/2} \rightarrow 8P_{1/2}$ du césium

Pour essayer de mieux comprendre la différence entre les valeurs obtenues expérimentalement et les valeurs théoriques de C_3 pour le CaF₂, nous avons souhaité obtenir aussi des données sur la transition $6S_{1/2} \rightarrow 8P_{1/2}$. Les couplages vers d'autres niveaux à partir du niveau $8P_{1/2}$ sont pratiquement les mêmes que ceux rencontrés pour le niveau $8P_{3/2}$, mais les transitions les plus importantes ($8P_{1/2} \rightarrow 7D_{3/2}$ à 29.5 μm) sont plus proches de la résonance de surface (25 μm). Ainsi, on s'attend, pour le niveau $8P_{1/2}$, à avoir le même comportement pour l'interaction de vdW que celui du niveau $8P_{3/2}$, avec une variation de C_3 un peu plus rapide (voir section 2.4.5 du chapitre II). Faire des mesures de réflexion sélective sur une

transition atteignant le niveau $8P_{1/2}$ permet de réaliser une expérience similaire à celle déjà faite dans des conditions expérimentales similaires.

4.7.1 Quelques difficultés expérimentales

Obtenir des spectres de RS pour le niveau $8P_{1/2}$ représente un défi expérimental à cause de la faible force d'oscillateur de la transition $6S_{1/2} \rightarrow 8P_{1/2}$ et donc de la petite amplitude du signal. Nous avons ainsi dû optimiser le système utilisant un acousto-optique pour éliminer la modulation d'amplitude résiduelle induite par la modulation de fréquence (comme décrit dans la section 4.2.1.5), jusqu'à atteindre un bruit relatif maximum de 10^{-5} .

Avant de commencer ces nouvelles mesures, une dégradation du barreau CaF_2 est survenue, qui fait que l'on n'arrivait plus à éliminer les interférences, même avec un angle d'incidence non nul. Pour les éliminer nous avons dû faire des balayages plus lents (pour que les interférences se moyennent grâce aux fluctuations de température) et aussi moyenner plusieurs acquisitions. Il nous faut, en plus, éliminer le signal FM de l'absorption linéaire qui s'est mise à apparaître dans le barreau CaF_2 (cf. la section 4.3.5.4). Pour cela, nous ajustons la courbe d'absorption linéaire par une dérivée de gaussienne, et nous la soustrayons de nos courbes expérimentales pour obtenir un spectre de RS (considérer une dérivée de gaussienne, ou une somme de deux dérivées avec des poids correspondants à la structure hyperfine, ne fait que peu de différence dans la région centrale qui nous intéresse).

Parallèlement à l'apparition de cette absorption linéaire, le problème de chute soudaine de température a lieu de plus en plus fréquemment, accompagné d'une condensation de césium sur l'interface CaF_2 /vapeur, rendant difficile un travail avec la cellule à haute température durant plus de quelques heures sans que ce phénomène n'ait lieu. A chaque fois que cela se produit, nous devons arrêter l'expérience et nettoyer l'interface en maintenant la fenêtre chaude et en baissant au maximum la température du réservoir de césium. Il n'est donc plus possible de reprendre les mesures dans la même journée. Le fait de devoir faire un grand nombre d'acquisitions pour chaque température (une dizaine) et de devoir faire des acquisitions plus lentes (chaque acquisition dure environ 10 minutes) nous a empêché de faire des séries d'acquisitions en variant un paramètre (Température du réservoir ou de la

fenêtre) dans une même journée.

4.7.2 Ajustement des spectres de réflexion sélective

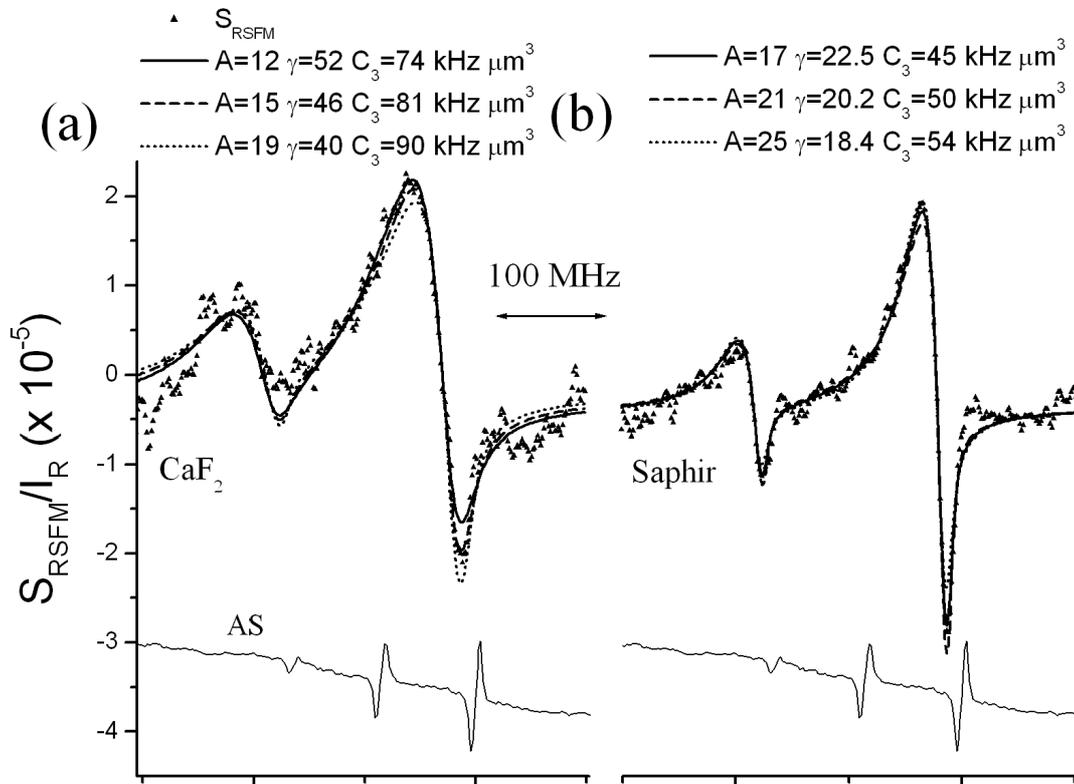


Figure 4.35 – Spectres de réflexion sélective à une interface de CaF_2 (a) et de saphir (b) sur la transition $6S_{1/2}(F = 3) \rightarrow 8P_{1/2}$ avec ajustements de bonne qualité par des courbes théoriques. Les mesures ont été faites pour des températures de fenêtre de 290°C et une densité de césium de 4×10^{15} atomes/ cm^3 .

La transition vers le niveau $8P_{1/2}$ présente un grand avantage par rapport à la transition vers le $8P_{3/2}$ du point de vue des ajustements car les niveaux hyperfins sont suffisamment résolus pour que les différentes courbes de réflexion sélective ne se superposent pas. Le manque d'informations sur le déplacement et sur l'élargissement de la transition $6S_{1/2} \rightarrow 8P_{1/2}$ avec la densité atomique, et le peu de spectres enregistrés, nous empêche de réaliser une analyse plus critique des ajustements. Plus bas nous montrons quelques spectres obtenus pour le niveau $8P_{1/2}$, ainsi que leurs ajustements. Il s'agit des premières mesures de RS atteignant ce niveau atomique. A la figure (4.35a) nous montrons un spectre

expérimental avec des courbes théoriques ajustées pour le niveau fondamental $F=3$ pour l'interface de CaF_2 . Cette courbe a été faite pour des températures de fenêtre de 290°C (Saphir et CaF_2) et une température de réservoir de 220°C , plus élevées que celles utilisées pour la transition vers le césium $8P_{3/2}$. A la figure (4.35b) nous montrons la courbe équivalente du côté saphir. Depuis le Césium $6S_{1/2}(F=3)$, la transition hyperfine $F = 3 \rightarrow F' = 4$ est trois fois plus forte que la transition $F = 3 \rightarrow F' = 3$, ce qui fait que l'ajustement se fait principalement pour la courbe la plus grande. Pour le CaF_2 la courbe dispersive plus petite (F_{33}) a une taille de l'ordre des effets d'interférence résiduelles après moyennage, ce qui explique les imperfections sur l'ajustement. Nous obtenons les valeurs de C_3 entre $74 \text{ kHz} \times \mu\text{m}^3$ et $90 \text{ kHz} \times \mu\text{m}^3$ pour le CaF_2 , et entre $45 \text{ kHz} \times \mu\text{m}^3$ et $54 \text{ kHz} \times \mu\text{m}^3$ pour le saphir. Les prédictions théoriques pour ces températures de fenêtre (voir section 2.4.5 chapitre II) sont $C_3^{\text{CaF}_2} \approx 0$ et $C_3^{\text{Saphir}} \approx 25 \text{ kHz} \times \mu\text{m}^3$, bien en dessous des résultats expérimentaux.

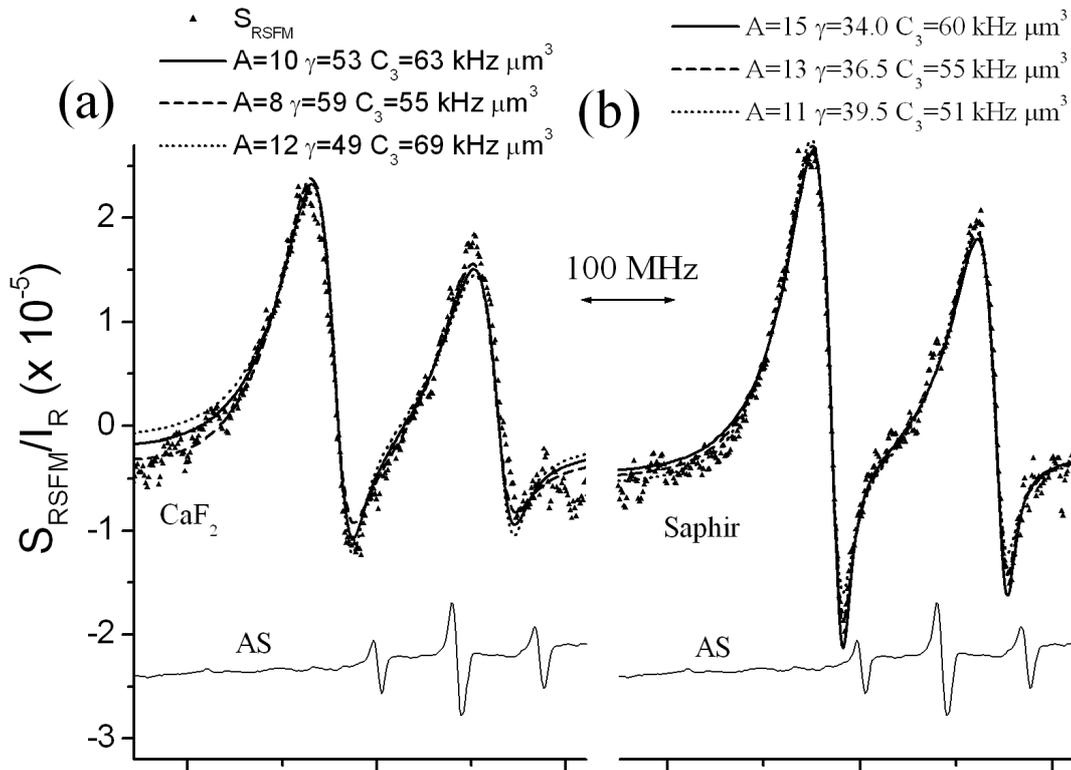


Figure 4.36 – Spectres de réflexion sélective à une interface de CaF_2 (a) et de saphir (b) sur la transition $6S_{1/2}(F = 3) \rightarrow 8P_{1/2}$ avec ajustements de bonne qualité par des courbes théoriques. Les mesures ont été faites pour des températures de fenêtre de 310°C et une densité de césium de $7 \times 10^{15} \text{ atomes/cm}^3$.

A la figure (4.36a) nous montrons les ajustements pour des spectres de RS depuis le césium $6S_{1/2}(F=4)$. Les deux niveaux hyperfins de l'état excité donnent à peu près la même contribution, de telle sorte que l'on doit ajuster les deux courbes en même temps. La courbe équivalente pour le saphir est présentée à la figure (4.36b). Notons que pour ces températures de réservoir de césium nous avons un élargissement et un déplacement collisionnel pour le CaF_2 assez grand par rapport aux valeurs trouvées pour la transition vers le $8P_{3/2}(\gamma^{\text{CaF}_2} \approx 55 \text{ MHz}$ et $\delta^{\text{CaF}_2} \approx -20 \text{ MHz})$. Nous obtenons des valeurs de C_3 entre $55 \text{ kHz} \times \mu\text{m}^3$ et $69 \text{ kHz} \times \mu\text{m}^3$ pour le CaF_2 . Pour le saphir nous obtenons des valeurs entre $51 \text{ kHz} \times \mu\text{m}^3$ et $60 \text{ kHz} \times \mu\text{m}^3$.

Les valeurs de C_3 obtenues pour le niveau $8P_{1/2}$ sont sensiblement similaires à celles obtenues pour le niveau $8P_{3/2}$ tant pour le saphir que pour le CaF_2 . Théoriquement, la valeur prédite pour C_3 pour le CaF_2 devrait être autour de zéro, en désaccord donc avec les résultats expérimentaux.

4.8 Ajustement des courbes expérimentales en utilisant un potentiel $-C_2/z^2$

Par rapport à des atomes libres, des atomes adsorbés sur une surface ont des orbitales électroniques modifiées, ce qui peut induire un dipôle électrique, en transférant une partie de la charge électrique vers la surface [McG04]. Pour un ensemble d'adatoms la redistribution de charges peut former une charge surfacique de sorte que l'atome de la vapeur subisse une interaction du type dipôle-charge avec un potentiel du type $-C_2/z^2$. Cette interaction, relativement importante pour une surface métallique est, à priori, faible pour une surface diélectrique [McG04]. Nous allons, dans cette section, essayer d'ajuster des courbes expérimentales de RS avec les courbes théoriques décrites dans la section 3.5 du chapitre III pour un potentiel $-C_2/z^2$. Les mêmes critères qui furent utilisés pour vérifier la consistance des ajustements avec un potentiel vdW vont être utilisés ici.

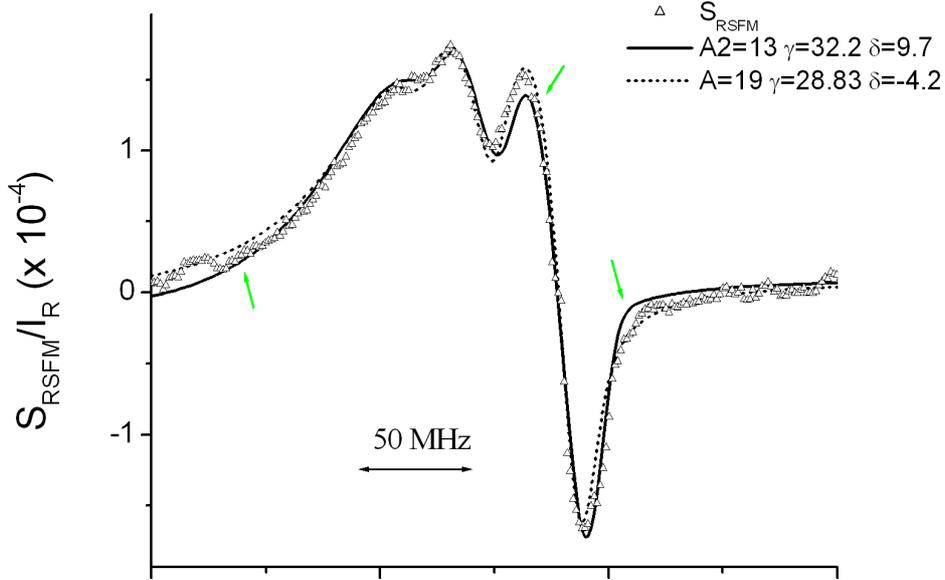


Figure 4.37 – Comparaison entre des ajustements de spectre de réflexion sélective faits avec un potentiel $-C_2/z^2$ et $-C_3/z^3$. Les spectres expérimentaux ont été obtenus à une interface de saphir pour une température de fenêtre de 340°C , et une densité de césium de (a) 10^{15} atomes/ cm^3 et (b) 4×10^{15} atomes/ cm^3 . Les flèches indiquent des régions où on note une différence qualitative entre les deux ajustements.

4.8.1 Comparaison d’ajustements des potentiels $-C_2/z^2$ et $-C_3/z^3$

A la figure (4.37) nous comparons des ajustements faits avec les courbes théoriques utilisant un potentiel $-C_2/z^2$ et $-C_3/z^3$. Notons que les deux courbes théoriques sont assez proches l’une de l’autre, toutes les deux ajustant correctement la courbe expérimentale. On note tout de même que les courbes $-C_3/z^3$ ajustent un peu mieux le spectre expérimental sur quelques régions (flèches), mais ces différences peuvent facilement être plus petites que les erreurs expérimentales (interférences, soustraction de la modulation d’amplitude sur un signal de référence...). Ceci est d’autant plus vrai pour les spectres du côté CaF_2 . Les valeurs de largeur obtenues à partir de l’ajustement sont assez proches pour les deux modèles de potentiel. Par contre nous notons une grande différence sur les valeurs de déplacement collisionnel obtenu. Pour le potentiel $-C_2/z^2$, un déplacement positif est obtenu, en contradiction avec les mesures de déplacement faites sur une absorption saturée [Cha07]. Ceci est cohérent avec la comparaison des courbes théoriques faites dans le chapitre III, où nous avons vu que

les courbes $-C_2/z^2$ sont décalées vers le rouge par rapport aux courbes $-C_3/z^3$. Il nous faut donc mettre un déplacement positif (décalage sur l'échelle des fréquences) sur l'ajustement utilisant les courbes $-C_2/z^2$ pour compenser cela. L'ajustement des courbes pour le niveau $8P_{1/2}$ en utilisant un potentiel $-C_2/z^2$ donne des résultats similaires à ceux discutés pour le niveau $8P_{3/2}$.

4.8.2 Comportement avec la densité de Césium

Pour mieux analyser la possibilité ou non d'ajuster les spectres expérimentaux en utilisant un potentiel en $-C_2/z^2$, nous avons ajusté des séries de mesures obtenues en variant la densité de césium de la vapeur. Nous avons commencé par ajuster une série en température effectuée à l'interface vapeur/saphir.

4.8.2.1 Saphir

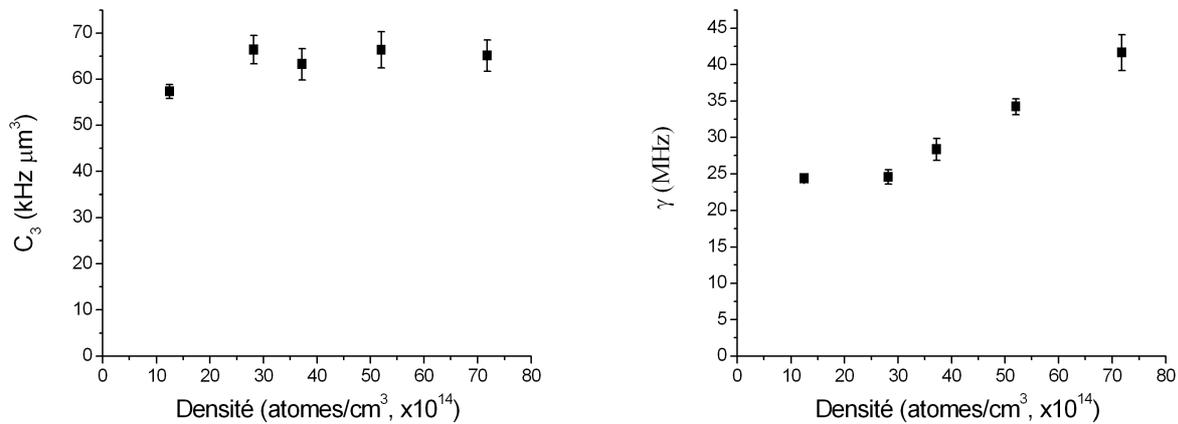


Figure 4.38 – Évolution de C_3 et γ avec la densité de la vapeur de césium obtenue à partir d'ajustement de spectres de réflexion sélective à une interface de saphir pour la transition $6S_{1/2}(F=4) \rightarrow 8P_{3/2}$ du césium en utilisant un potentiel $-C_3/z^3$.

Potentiel $-C_3/z^3$ Nous montrons sur les figures (4.38-4.39) les résultats obtenus en ajustant un potentiel $-C_3/z^3$. On trouve comme prévu des valeurs de C_3 qui ne varient pas avec la densité, et des comportements linéaires pour γ , δ et $C1\gamma$. On note aussi qu'une extrapolation à pression zéro, amène bien $C1\gamma$ et δ à zéro et amène γ à environ 15 MHz (un peu plus que la largeur naturelle à cause d'une modulation de fréquence relativement large). Ces

résultats sont en accord avec ceux trouvés dans [Cha07].

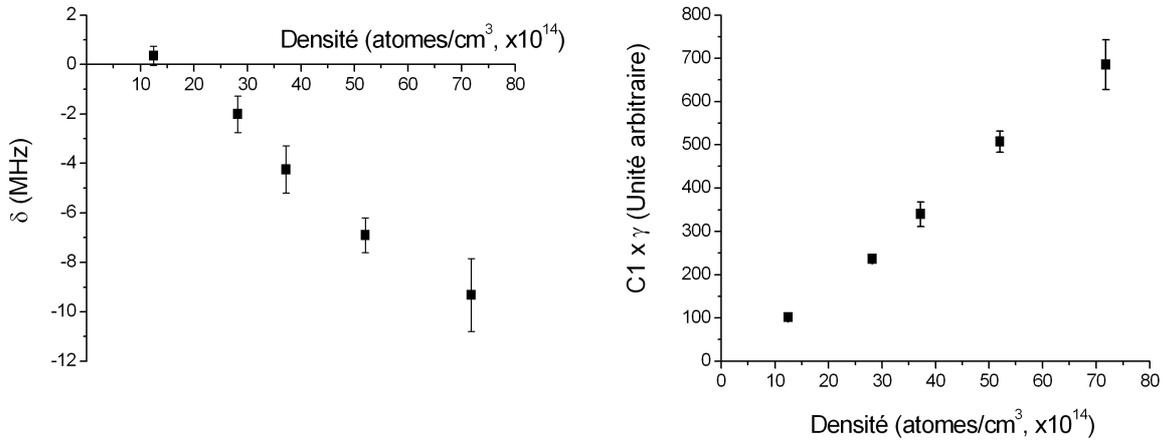


Figure 4.39 – Évolution de δ et $C1\gamma$ avec la densité de la vapeur de césium obtenue à partir d’ajustement de spectres de réflexion sélective à une interface de saphir pour la transition $6S_{1/2}(F = 4) \rightarrow 8P_{3/2}$ du césium en utilisant un potentiel $-C_3/z^3$.

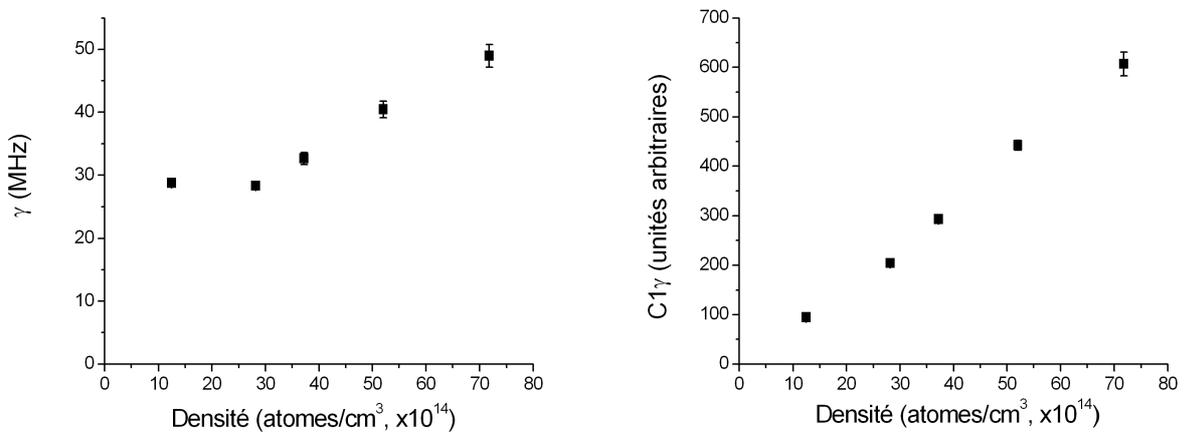


Figure 4.40 – Évolution de γ et $C1\gamma$ avec la densité de la vapeur de césium obtenue à partir d’ajustement de spectres de réflexion sélective à une interface de saphir pour la transition $6S_{1/2}(F = 4) \rightarrow 8P_{3/2}$ du césium en utilisant un potentiel $-C_2/z^2$. Les ajustements ont été faits pour la même série de spectres que celle utilisée pour les figures (4.38-4.39).

Potentiel $-C_2/z^2$ Sur les figures (4.40-4.41) nous montrons les résultats des ajustements en utilisant les courbes théoriques construites avec un potentiel en $-C_2/z^2$. Nous obtenons des évolutions pour γ et $C1\gamma$ similaires à celles obtenues pour des courbes $-C_3/z^3$. Nous

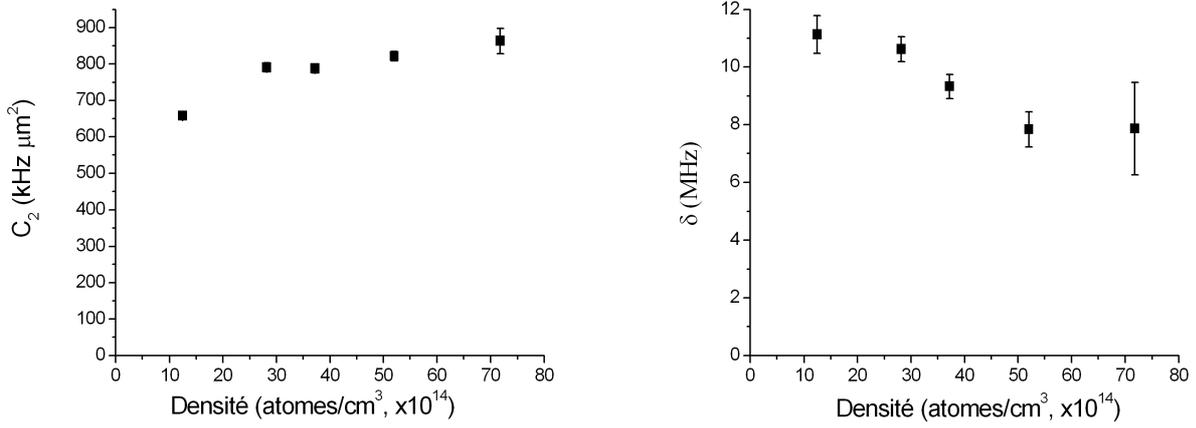


Figure 4.41 – Évolution de C_2 et δ avec la densité de la vapeur de césium obtenue à partir d’ajustement de spectres de réflexion sélective à une interface de saphir pour la transition $6S_{1/2}(F = 4) \rightarrow 8P_{3/2}$ du césium en utilisant un potentiel $-C_2/z^2$. Les ajustements ont été faits pour la même série de spectres que celle utilisée pour les figures (4.38-4.39).

observons aussi une augmentation avec la pression de la valeur de $C_2 = \frac{A_2\gamma}{2k^2}$. Si le potentiel $-C_2/z^2$ est dû à des atomes adsorbés sur la surface il est vraisemblable que la valeur de C_2 change avec la densité atomique car cela modifierait l’équilibre entre le nombre d’atomes sortant et arrivant à la surface. Le résultat le plus important à retenir de ces courbes est le changement du déplacement collisionnel avec la densité de césium. En effet nous trouvons des valeurs de déplacement positives, qui diminuent quand on augmente la densité de la vapeur. Ceci signifie qu’à pression nulle, on aurait une valeur de $\delta \approx 12\text{MHz}$, ce qui n’est pas acceptable du point de vue physique : si la vapeur est très diluée nous ne devons plus avoir de collisions atomiques. Ceci confirme (section 4.8.1) la nature problématique d’un ajustement fait avec le potentiel $-C_2/z^2$.

4.8.3 CaF₂

Nous allons utiliser la même méthode pour une série de spectres CaF₂ où on a changé la densité de césium. Les résultats pour l’ajustement utilisant les courbes $-C_3/z^3$ sont montrés aux figures (4.31-4.34) et ont déjà été discutés plus haut (section 4.6.2.4). Les figures (4.42-4.43) montrent les résultats pour l’ajustement avec un potentiel $-C_2/z^2$. Les résultats obtenus pour des mesures faites en même temps à l’interface avec le saphir sont aussi montrés pour comparaison. On retrouve les mêmes comportements pour γ et $C_1\gamma$ que ceux obtenus

auparavant. On n’observe pas de changement significatif avec la température de C_2 pour le CaF_2 . On vérifie bien que le déplacement collisionnel a le comportement non physique d’être positif non nul pour une extrapolation à pression zéro, ces valeurs positives étant elles mêmes en contradiction avec les mesures de déplacement collisionnels sur une absorption saturée faites dans [Cha07].

On peut, à partir de ces résultats, conclure que le potentiel subi par les atomes de la vapeur n’est pas du type $-C_2/z^2$. Bien qu’il ne soit pas évident de différencier les courbes vdW et $-C_2/z^2$ en regardant l’ajustement visuel, la comparaison entre les déplacements collisionnels nous donne confiance pour affirmer que nous mesurons bien des distortions de la forme de raie de la réflexion sélective due au potentiel de vdW.

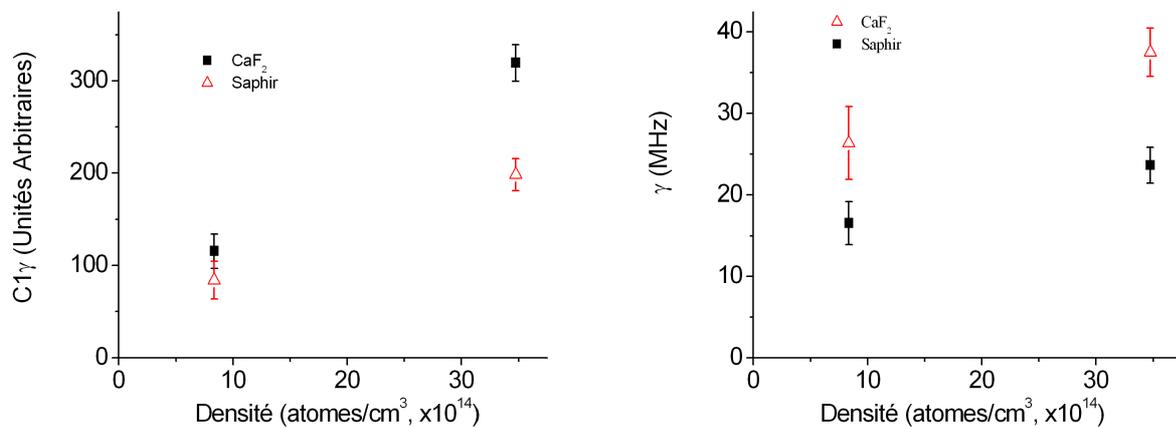


Figure 4.42 – Évolution de $C1\gamma$ et γ avec la densité de la vapeur de césium obtenue à partir d’ajustement de spectres de réflexion sélective à une interface de saphir et de CaF_2 pour la transition $6S_{1/2}(F=4) \rightarrow 8P_{3/2}$ du césium en utilisant un potentiel $-C_2/z^2$.

4.9 Discussion sur les résultats

Nous cherchons dans cette section à résumer les résultats obtenus et à proposer des hypothèses pour expliquer ce qu’on ne comprend pas des résultats obtenus.

Taille et largeur du signal à l’interface CaF_2 Comme nous l’avons vu auparavant, l’évolution de la taille et de la largeur du signal de RS à l’interface avec le CaF_2 , quand on change la température de la fenêtre, paraissent contradictoires. L’augmentation de $C1\gamma$, qui

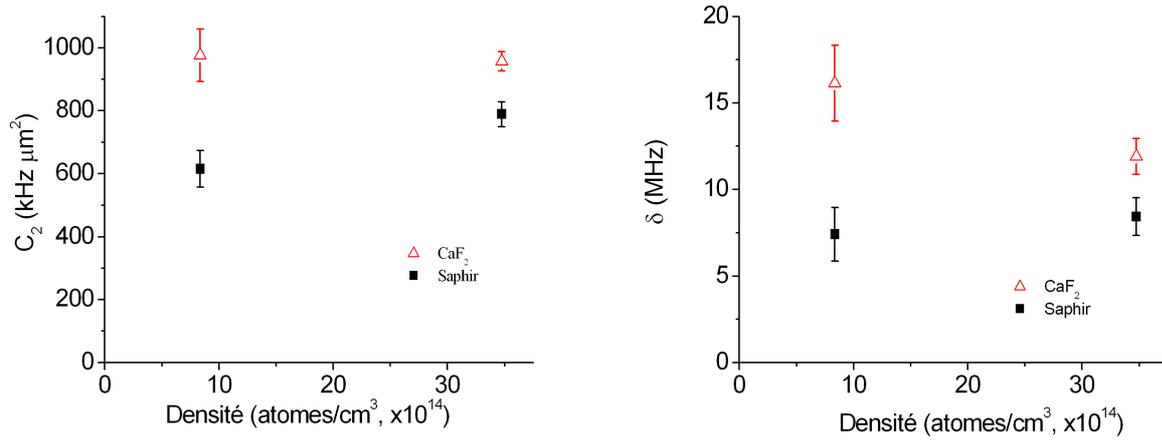


Figure 4.43 – Évolution de C_2 et δ avec la densité de la vapeur de césium obtenue à partir d’ajustement de spectres de réflexion sélective à une interface de saphir et de CaF_2 pour la transition $6S_{1/2}(F=4) \rightarrow 8P_{3/2}$ du césium en utilisant un potentiel $-C_2/z^2$.

est proportionnelle à la densité de la vapeur atomique, indique une augmentation de celle-ci quand on augmente la température de la fenêtre CaF_2 . À l’opposé, la diminution de la largeur devrait indiquer une diminution des collisions, normalement associée à une diminution de la densité de la vapeur avec l’augmentation de la température de la fenêtre CaF_2 . L’origine de ces variations n’est pas encore claire.

Une explication éventuelle est de supposer l’existence, dans la vapeur, d’autres espèces que le $\text{Cs}(6S)$ et $\text{Cs}(8P)$, qui diminueraient les effets collisionnels avec l’augmentation de température. On peut aussi remarquer que les densités de césium utilisées dans l’expérience sont suffisantes pour former des dimères de césium (voir chapitre V), qui diminueraient le nombre d’atomes de Cs (et donc le signal de RS). Si la formation de dimères diminue avec l’augmentation de la température de la surface CaF_2 on pourrait trouver une diminution de la largeur collisionnelle avec une augmentation du nombre d’atomes de Cs. Comme discuté au chapitre suivant, l’équilibre de formation de dimères est fortement perturbé sous l’irradiation 388 nm et la température relativement basse de nos expériences n’est pas forcément un obstacle à cette explication.

En tout état de cause, la différence entre la vapeur à l’interface avec le CaF_2 , et avec le saphir, fait que l’utilisation de la technique où les deux spectres sont ajustés avec des élargissements et déplacements identiques ne donnent pas des résultats satisfaisants.

Forme fonctionnelle du potentiel d'interaction atome-surface. Nous avons principalement analysé les spectres de réflexion sélective en postulant un potentiel d'interaction atome-surface du type $-C_3/z^3$, dû à l'interaction vdW. Nous avons également cherché à analyser les résultats expérimentaux en postulant un potentiel type $-C_2/z^2$, résultant de l'interaction de l'atome avec des adatoms à la surface.

En analysant l'évolution de γ , δ et $C_1\gamma$ avec la densité de vapeur atomique (contrôlée par la température du réservoir de césium) nous avons pu vérifier que nos résultats sont compatibles avec le potentiel $-C_3/z^3$, et non avec le potentiel $-C_2/z^2$. Cependant un potentiel mixte du type $\alpha C_3/z^3 + \beta C_2/z^2$, somme des deux formes fonctionnelles, ne peut être éliminé. En effet il se pourrait que l'atome subisse une superposition de l'interaction de vdW avec l'interaction due à des charges distribuées sur la surface. Il est difficile de faire un diagnostic pour essayer d'évaluer les valeurs de α et β ou de chercher à ajuster des paramètres supplémentaires, même si dans notre cas nous devons manifestement avoir $\alpha > \beta$. Il peut cependant être envisagé qu'une contribution de $-C_2/z^2$ induise une modification quantitative des résultats estimés pour le potentiel $-C_3/z^3$ et soit responsable des relatives imperfections auxquelles aboutissent les ajustements.

Désaccord entre valeur expérimentale et prédiction théorique. Bien que les résultats expérimentaux paraissent montrer de façon prédominante que le potentiel est du type vdW, on obtient des valeurs de C_3 très différentes de celles attendues théoriquement. Ceci incite à penser que nous ne sondons pas comme prévu une surface de CaF_2 . En effet l'existence d'une cassure au voisinage de l'interface CaF_2 /vapeur, et d'éventuels possibles pores à l'intérieur du barreau, pourraient modifier la structure cristalline du CaF_2 (domaines multiples avec interstices). Ces modifications pourraient changer les modes de vibrations du réseau de CaF_2 en modifiant les modes de résonance des polaritons. L'existence de défauts sur le réseau pourrait en particulier interrompre la propagation des modes de surface. Ainsi il se pourrait que nous observions en fait l'interaction vdW de l'atome de césium avec une surface diélectrique sans couplage résonnant avec les modes de surface (en principe excités thermiquement).

La modification de la structure de la surface peut être due à des contraintes thermiques existantes dans le barreau. En effet, le CaF_2 étant un matériau fragile, il n'est pas impossible

que des dilatations différentes dans différents secteurs du barreau induisent des modifications de la structure et éventuellement des micro-cassures, d'où des pores à l'intérieur du barreau. Une autre explication possible pour ces modifications sont les chocs mécaniques subis par le barreau lors des explosions de gouttes de césium dans l'interstice entre le barreau CaF_2 et la cellule saphir. Une de ces explosions paraît être d'ailleurs la cause directe d'une cassure sur une partie périphérique de la surface CaF_2 à l'interface avec la vapeur. Lors de la fabrication d'une cellule avec un barreau BaF_2 , l'équipe arménienne avec laquelle nous collaborons a rapporté que le barreau BaF_2 devenait gris après chauffage au dessus de 400°C (température utilisée pour le dégazage initial de la cellule). L'hypothèse est que, à haute température, le fluor se dissocie de BaF_2 , et que le barium s'oxyde, formant une poudre grise sur les surfaces. Même si des observations faites au laboratoire ne corroborent pas ces affirmations, la possibilité d'un tel phénomène pour le CaF_2 ne peut être négligée. Il existe aussi très peu d'informations dans la littérature sur la résistance du CaF_2 chaud en présence d'un métal alcalin. Même si ces différentes hypothèses supposent des modifications notables de l'état de la surface, les résultats de la RS pour nos différentes séries de spectres restent similaires, malgré des évolutions notables du barreau (cassure d'origine mécanique, l'absorption de césium dans le barreau...).

Même en considérant le coefficient C_3 comme correspondant à une surface diélectrique non résonnante, on trouve des valeurs du coefficient de vdW supérieures à celles attendues simplement en multipliant la valeur de C_3^{Rp} pour l'interaction avec une surface parfaitement réfléchissante par un facteur $\frac{\epsilon-1}{\epsilon+1}$, puisque la valeur de C_3 est assez proche de la valeur calculée pour l'interaction avec un réflecteur parfait. La possibilité d'une formation d'une couche métallique de césium transformant la surface en un réflecteur parfait peut être à priori éliminée car nous n'observons pas de changement de réflectivité sur le faisceau incident. La formation d'une petite couche métallique (même en couche mince permettant une transmission vers la vapeur) modifierait les formes de raie de la réflexion sélective, et mélangerait les composantes dispersives et absorbatives de la susceptibilité de la vapeur [Che01]. L'ajustement assez bon obtenu pour nos spectres expérimentaux indique que nous n'avons pas de modifications de la forme de raie par la formation d'une couche métallique. De plus, si cela était le cas, nous devrions sans doute voir un changement significatif des formes de raie avec la température de la surface CaF_2 , car nous pouvons supposer que l'épaisseur de la couche doit dépendre fortement de la température de surface.

4.10 Conclusion et perspectives

Dans ce chapitre nous avons décrit des expériences de réflexion sélective faites pour des transitions vers des états de la troisième raie de résonance du césium ($8P_{3/2}$ et $8P_{1/2}$) à l'interface avec une surface de CaF_2 . Des expériences de réflexion sélective à l'interface avec une fenêtre de saphir ont été réalisées en même temps comme référence.

Pour la réalisation de ces expériences, une cellule construite selon un schéma original a été utilisée. Un système de contrôle de température piloté par ordinateur a été optimisé et de nombreuses difficultés expérimentales liées au long barreau de CaF_2 ont dû être surmontées.

Les expériences de RS réalisées ont été les premières à l'interface avec du CaF_2 pour des transitions vers des niveaux aussi excités, et les premières pour une transition vers le niveau $8P_{1/2}$. La faible force d'oscillateur de la transition $6S_{1/2} \rightarrow 8P_{1/2}$ a imposé des conditions de vapeur inhabituelles, avec des densités élevées pour lesquelles se posent des questions sur l'équilibre de la vapeur, et sur la possibilité d'un régime non balistique des atomes (avec les trajectoires modifiées par collisions).

Les densités inhabituelles utilisées, et l'existence d'un second réservoir de césium dans l'interstice entre le barreau et la cellule saphir, remettent en cause, pour cette cellule, la technique d'ajustement imposant les mêmes largeurs et déplacements des deux côtés de la cellule. En effet, nous trouvons pour nos ajustements des largeurs et amplitudes de signal (liés à la densité de césium) différentes aux interfaces CaF_2 et saphir. Ces changements de largeur et amplitude du signal RS à l'interface avec la fenêtre CaF_2 quand on varie la température de celle-ci, ne sont pas compris et ne peuvent pas être simplement expliqués par un changement de densité de la vapeur. Un changement de pression partielle d'équilibre entre le césium atomique et une espèce moléculaire contenant du césium paraît être une hypothèse envisageable pour expliquer ces observations. Des modifications des pressions partielles induites par un faisceau à 388 nm seront étudiées au chapitre V.

La valeur de C_3 obtenue expérimentalement à l'interface avec le saphir ($C_3 = 65 \pm 15 \text{ kHz} \times \mu\text{m}^3$) est environ 1.5 fois supérieure à la valeur prédite théoriquement, et en accord avec les résultats trouvés auparavant dans [Cha07].

Nous n'avons pas pu observer l'effet en température du couplage résonnant pour l'interaction de vdW avec l'interface de CaF_2 . Les valeurs de C_3 obtenues pour le niveau $8P_{3/2}$ se situent autour de $70 \pm 20 \text{ kHz} \times \mu\text{m}^3$, en désaccord avec les prédictions théoriques. Des résultats similaires sont obtenus pour le niveau $8P_{1/2}$.

Les analyses faites sur la cohérence de nos ajustements semblent indiquer que les spectres obtenus à l'interface avec le CaF_2 sont compatibles avec un potentiel du type $-C_3/z^3$ (interaction de vdW). Le même type d'analyse montre que ces spectres ne sont pas compatibles avec un potentiel $-C_2/z^2$ (interaction du dipôle atomique avec une charge distribuée sur la surface). Cependant un mélange des deux potentiels (avec prédominance du potentiel vdW) ne peut être négligé.

Perspectives : Nous sommes actuellement en train de chercher des options d'expérience permettant d'observer les effets de la température de surface sur l'interaction de van der Waals et de comprendre les résultats obtenus pour l'interaction du césium $8P$ avec une surface de CaF_2 .

i) Cellule BaF_2 : une cellule avec une surface en BaF_2 permettrait certainement de voir l'effet du couplage résonant pour le niveau $8P_{3/2}$. En effet, à température ambiante, nos prédictions indiquent que l'interaction doit être répulsive (voir chapitre II) contrairement à ce qu'elle serait sans le couplage avec l'émission thermique de la surface. L'observation de la remontée de C_3 pour des températures plus élevées serait aussi intéressante, ainsi que l'observation de comportements qualitativement différents de l'interaction pour les niveaux $8P_{3/2}$ et $8P_{1/2}$.

Une cellule de même design que celle présentée dans ce chapitre est actuellement en construction par nos collaborateurs arméniens. Cependant des problèmes de résistance thermique du barreau BaF_2 (plus fragile que le barreau CaF_2) et des problèmes de qualité des barreaux utilisés font que la faisabilité de cette construction n'est pas certaine.

ii) Différents schémas de la cellule : la progression technologique des colles nous permet d'envisager une technique de fabrication de cellule différente. Nous sommes actuellement en

train de tester la possibilité de coller une fenêtre BaF_2 sur une cellule en verre. Pour nous être utile ce collage doit être capable de supporter des températures élevées (idéalement jusqu'à 400°C pour faire un dégazage), compatible avec du vide (la colle ne doit pas dégazer) et les contraintes liées à l'expansion thermique doivent être suffisamment faibles pour ne pas casser la fenêtre.

L'utilisation d'un collage de la fenêtre directement sur le corps de la cellule, permettrait d'éviter le long barreau. Ceci faciliterait l'expérience (pas d'interférence, possibilité de sonder différents points, meilleure mesure de la température...) et d'éviter les contraintes et gradients thermiques qui peuvent être à l'origine des éventuelles modifications de la surface de notre barreau CaF_2 .

iii) Réflexion sélective $7D_{5/2}$: des modifications de l'interaction de vdW par des couplages résonnants entre émission atomique et absorption de modes de surface ont été détectés auparavant dans l'équipe OCR [Fai99]. Le niveau $7D_{5/2}$ du césium a un couplage en émission vers les niveaux $8P_{3/2}$ et $8P_{1/2}$ qui sont symétriques par rapport aux couplages en absorption étudiés dans ce chapitre. La mesure de l'interaction de vdW pour ce niveau peut nous fournir des informations intéressantes complémentaires par rapport à celles obtenues dans ce chapitre. La variation de C_3 avec la température est montrée sur la figure 4.44.

Le changement en température de C_3 à l'interface avec le saphir est essentiellement dû à

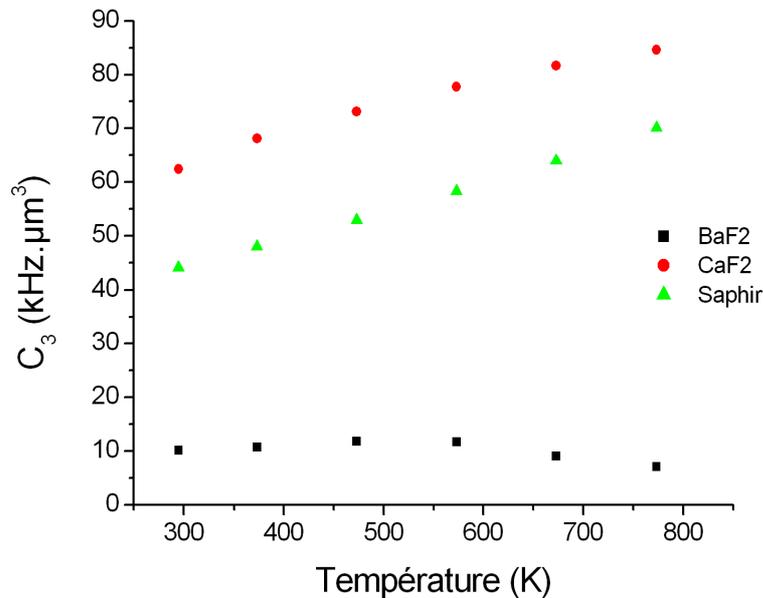


Figure 4.44 – Évolution du coefficient de vdW pour l'interaction du $\text{Cs}(7D_{3/2})$ avec des surfaces de saphir, BaF_2 et CaF_2 .

une variation du terme non-résonnant de l'interaction (terme 1.17 du chapitre I) induite par l'évolution de la constante diélectrique. Il est intéressant aussi de chercher à observer cet effet. En plus, une expérience à l'interface saphir est beaucoup plus simple que sur des surfaces CaF_2 ou BaF_2 , ne nécessitant pas une cellule à géométrie compliquée.

Le niveau $7D_{3/2}$ n'étant pas accessible directement depuis le niveau fondamental, une expérience à deux lasers est nécessaire. Une première étape est de réaliser un pompage $6S_{1/2} \rightarrow 6P_{3/2}$ pour peupler ce dernier niveau. La réflexion sélective est ensuite faite sur la transition $6P_{3/2} \rightarrow 7D_{3/2}$. La possibilité de moduler la population du niveau intermédiaire par une modulation d'amplitude du laser pompe, alliée à une détection synchrone du faisceau RS, doit permettre de s'affranchir de plusieurs sources de bruit (laser, interférences...). Il doit être donc possible d'avoir un bon rapport signal sur bruit et de réduire ainsi nos barres d'erreurs sur la détermination de C_3 ouvrant la possibilité d'observer des changements avec la température.

Bibliographie

- [Bez91] D.F. Bezuidenhout, « Calcium Fluoride (CaF_2) » dans », Handbook of Optical Constants of Solids II », E. D. Palik ed., Elsevier Academic Press, 1991. pp 815-835
- [Cha05] P. Chaves de Souza Segundo, Thèse de Doctorat, Laboratorio de Física e Lasers, Universidade Federal da Paraíba (2005)
- [Cha07] P. Chaves de Souza Segundo, I. Hamdi, M. Fichet, D. Bloch et M. Ducloy « Selective reflection spectroscopy on the Uv-third resonance line of Cs : Simultaneous probing of a van der Waals Atom-Surface interaction sensitive to far IR couplings and interatomic collisions », Laser Physics **17**, 983 (2007)
- [Che01] M. Chevrollier, M. Oriá, J.G. de Souza, D. Bloch, M. Fichet et M. Ducloy « Selective reflection spectroscopy of a resonant vapor at the interface with a metallic layer », Phys. Rev. E **63**, 046610 (2001)
- [Duc91] M. Ducloy et M. Fichet « General theory of frequency modulated selective reflection. Influence of atom surface interactions. », J. Phys. II France **1**, 1429 (1991)
- [Fai99] H. Failache, S. Saltiel, M. Fichet, D. Bloch et M. Ducloy, « Resonant van der Waals repulsion between excited Cs atoms and sapphire surface », Phys. Rev. Lett. **83**, 5469 (1999)
- [Gor06] M.-P. Gorza et M. Ducloy, « van der Waals interactions between atoms and dispersive surfaces at finite temperature », Eur. Phys. J. D **40**, 343 (2006)
- [Lal08] A. Laliotis, I. Maurin, M. Fichet, D. Bloch, M. Ducloy, N. Balasayan, A. Sarkisyan et D. Sarkisyan « Selective reflection spectroscopy at the interface between a Calcium Fluoride window and Cs vapour », Appl. Phys. B : Lasers and Optics **90**, 415 (2008)
- [Mal63] I.H. Malitson « A redetermination of some optical properties of calcium fluoride », J. Opt. Soc. Am. **2**, 1103 (1963)

- [McG04] J.M. McGuirk, D.M. Harber, J.M. Obrecht et E.A. Cornell « Alkali-metal adsorbate polarization on conducting and insulating surfaces probed with Bose-Einstein condensates », *Phys. Rev. A* **69**, 062905 (2004)
- [Pap94] Nicolas Papageorgiou, Thèse de Doctorat, Laboratoire de Physique des Lasers, Université Paris 13 (1994)
- [Ste09] D. Steck, « Cesium D line data ». <http://steck.us/alkalidata> (2009)

Chapitre 5

Résonances supplémentaires autour des raies 8P du césium

5.1 Introduction

Dans des expériences de spectroscopie atomique par laser, il est souhaitable d'avoir une référence absolue en fréquence. Une technique largement utilisée pour avoir une référence absolue en fréquence est l'absorption saturée (A.S.), qui a l'avantage d'être conceptuellement assez simple, permettant d'observer les raies des niveaux hyperfins avec une résolution limitée par la largeur naturelle. Des mesures d'absorption saturée sur les raies $6S_{1/2} \rightarrow 8P_{3/2}$ et $6S_{1/2} \rightarrow 8P_{1/2}$ avaient pu être faites, donnant, avec une précision meilleure que 1MHz, les fréquences des transitions et distances entre les niveaux hyperfins [Cat96],[Liu00].

Pour avoir une information précise sur les déplacements collisionnels présents dans notre expérience de réflexion sélective, nous avons réalisé un montage d'absorption saturée pour les raies de résonance vers $8P_{3/2}$ et $8P_{1/2}$. Étant donnée la faible force d'oscillateur de ces transitions des faisceaux intenses sont utilisés sur notre montage pour obtenir la saturation. Nous avons observé, en plus des raies atomiques identifiées, des structures étroites (sub-Doppler) ayant une position en fréquence indépendante des conditions expérimentales. Ces structures ont pour caractéristique notable de présenter un comportement non linéaire avec l'intensité du faisceau sonde. Ces structures avait déjà été repérées par notre équipe il y a quelques années, mais comme le but premier était de repérer la structure hyperfine atomique (référence), les conditions expérimentales avaient été choisies pour que ces structures

n'apparaissent pas. Le désaccord entre prédictions théoriques et résultats expérimentaux de réflexion sélective sur les transitions $6S_{1/2} \rightarrow 8P_{3/2}$ et $6S_{1/2} \rightarrow 8P_{1/2}$ à l'interface avec du CaF_2 , nous a motivé pour étudier ces structures, observées autour des raies $8P_{3/2}$ et $8P_{1/2}$.

Nous considérerons deux hypothèses pour l'origine de la formation de ces structures : i) Des effets de propagations non linéaires liés à la forte intensité des faisceaux. ii) La formation de dimères de césium autour des niveaux $8P$.

Nous commencerons ce chapitre par discuter quelques effets non linéaires pour des faisceaux intenses dans des vapeurs atomiques. Puis nous discuterons les niveaux moléculaires existants autour des niveaux $8P$ du césium atomique ainsi que quelques techniques utilisées pour former des dimères à partir d'atomes alcalins. Nous détaillons ensuite les différents montages expérimentaux réalisés pour étudier les structures supplémentaires.

5.2 Effets non linéaires

Il est bien connu que l'utilisation de faisceaux de forte intensité dans des vapeurs atomiques peut donner lieu à des effets non-linéaires de propagation : ainsi la modification de l'indice de la vapeur par le champ électrique (effet Kerr) donne lieu à des effets bien connus d'autofocalisation [Abr90]. Un autre phénomène typiquement observé est une émission conique autour d'un faisceau intense. Celle-ci peut être due à plusieurs phénomènes différents comme la conjugaison de phase entre le faisceau et des photons ayant subi une diffusion de Rayleigh [Pen90]. L'utilisation de deux faisceaux contre-propageants intenses augmente la complexité des phénomènes possibles, donnant lieu notamment à des émissions hexagonales [Gry88].

La complexité de ces phénomènes peut induire des modifications de la propagation : ces modifications varient rapidement avec les fréquences des faisceaux. La détection du faisceau sonde de façon synchrone avec une modulation sur le faisceau pompe peut se caractériser par des structures étroites en fréquence, induites par des effets de propagation, tels que la modification de la superposition des faisceaux et de l'intensité des faisceaux, ou par d'autres effets non linéaires comme la conversion de photons incidents en une autre fréquence [Pen90].

Généralement la fréquence à laquelle ces phénomènes ont lieu dépend des paramètres expérimentaux (densité atomique, puissance des faisceaux, alignement de ceux-ci,...). Dans le cas d'une vapeur atomique, un bel exemple de modification de l'autofocalisation d'un faisceau avec la densité atomique est présenté dans [Gri70].

5.3 Présence de dimères dans la vapeur de césium

La formation de dimères à partir d'atomes se fait à partir d'une collision à trois corps, pour avoir une conservation d'énergie. Dans une cellule contenant de la vapeur atomique, une population de dimères peut se former par collisions entre trois atomes. Plus la densité atomique est grande, plus ces collisions sont favorisées, tendant à augmenter le rapport entre population de dimères et population atomique. Ce rapport se comporte comme N^3 , où N est la densité atomique. Pour des densités trop élevées, les collisions entre atomes et dimères deviennent trop fréquentes de sorte que la compétition entre taux de formation et taux de destruction des dimères diminue la population d'équilibre [Ban01].

En pratique, à des densités de vapeur de césium élevées, où il y aurait opacité sur les raies de résonance, il est facile d'observer des transitions attribuables aux dimères. Ainsi, nous avons observé des dimères de césium formés par collisions à l'état $X^1\Sigma_g^+$ dans un montage d'absorption saturée en réalisant la transition $X^1\Sigma_g^+ \rightarrow B^1\Pi_u$ autour de 780 nm [Che06], permettant l'observation de transitions sub-Doppler. Nous avons travaillé avec des températures de réservoir de césium allant de 220°C à 250°C (densités atomiques de 3.7×10^{15} atomes/cm³ à 10^{16} atomes/cm³). En dessous de 220°C le signal d'absorption était trop faible pour bien distinguer les différentes raies de dimères. Nous utilisons un faisceau pompe avec une intensité d'environ 200 mW/mm², bien supérieure à l'intensité de saturation (environ 6mW/mm² [Che06]). Le faisceau sonde a une intensité d'environ 7 mW/mm². A la figure (5.1), nous montrons les résultats d'absorption saturée et d'absorption linéaire ainsi que les raies atomiques D1 du ^{87}Rb utilisées comme référence absolue de fréquence (obtenue dans une cellule auxiliaire). Nous observons de nombreuses résonances jusqu'à -14GHz (limite de balayage de notre source) par rapport à la transition $5S_{1/2}(F=2) \rightarrow 5P_{3/2}(F'=3)$ du ^{87}Rb . Les résonances entre -3 GHz et -2 GHz ont été identifiées comme étant des états vibrationnels ayant un nombre quantique allant de $v=5$ à $v=10$ [Che06]. La grande absorption observée

quand on s'approche de la résonance Rb est due à du rubidium atomique présent dans notre cellule (impureté classique dans une vapeur alcalin de césium).

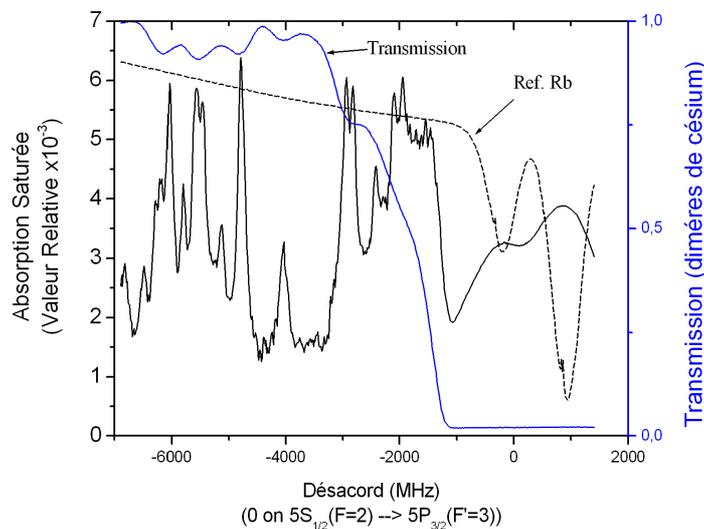


Figure 5.1 – Transmission et absorption saturée de dimères de césium autour de 780 nm. Les positions des raies d'absorption sont repérées par rapport à la transition $5S_{1/2}(F = 2) \rightarrow 5P_{3/2}(F' = 3)$ du ^{87}Rb (montré également en traits tiretés). La transmission nulle observée autour de la résonance atomique du Rb est dû à la présence d'atomes de Rb (impuretés) dans la cellule césium.

Un autre mécanisme usuel de formation de dimères est le processus de photoassociation dans lequel la collision se fait entre deux atomes et un photon [Wei99]. Pour que le processus ait lieu, l'énergie du photon doit être égale à la différence entre les énergies des deux atomes et l'énergie du dimère dans un état rovibrationnel. Ce processus est aussi favorisé si les deux atomes ont des vitesses proches, de sorte que le temps de collision soit plus long : ceci est notamment le cas pour la photoassociation dans un ensemble d'atomes froids. Comme deux atomes participent à la formation des dimères, la population d'équilibre dépend du carré de la densité atomique. Cette population dépend aussi linéairement de la puissance du faisceau. M. Pichler et collaborateurs [Pic06] ont réalisé la photoassociation d'atomes froids de césium menant à des dimères autour du niveau $7P_{3/2}$ du césium. A notre connaissance c'est le niveau de césium le plus énergétique sondé par photoassociation d'atomes froids (qui permettent une meilleure résolution des raies).

L'existence de raies de dimères de césium autour de 388nm est connue depuis long-

temps. En 1934 F.W. Loomis et P. Kusch ont publié un article [Loo34] où ils ont observé les raies de dimères de césium autour de 387.7 nm et mentionnent que celles ci avaient déjà été identifiées en 1932 par Kuhn. Plus récemment T. Ban et collaborateurs [Ban01] ont étudié le taux d'absorption et de dissociation de ces dimères formés par collisions à trois atomes à hautes températures (entre 400°C et 700°C). Nous n'avons pas de connaissance de dimères de césium autour des niveaux 8P observés à des températures voisines de la température ambiante.

5.4 Expériences avec deux faisceaux contrepropageants de même fréquence

Les premières observations que nous avons faites des structures supplémentaires ont été obtenues pour un montage d'absorption saturée avec les faisceaux en contrepropagation et de même fréquence. Cette configuration permet d'identifier les principales caractéristiques de l'apparition des résonances supplémentaires.

Les résultats expérimentaux présentés dans ce chapitre ont été obtenus pour la cellule décrite sur le chapitre IV dans la section décrivant l'absorption saturée (section 4.2.3). Cette cellule a une longueur de 1 cm et permet le contrôle de la densité de césium en contrôlant la température du réservoir de césium. Nous avons aussi détecté ces structures supplémentaires sur d'autres cellules (de 1 cm à 7 cm) mais nous n'avons pas fait de mesures systématiques sur celles ci. Nous avons tout de même vérifié que les structures apparaissent aux mêmes fréquences pour toutes les longueurs de cellule.

Nous détectons la transmission d'une cavité Fabry Perot (celle décrite au chapitre IV) et utilisons la distance connue entre ses pics (83MHz) pour calibrer notre balayage laser. Le faisceau sonde est détecté de façon synchrone, soit avec une modulation de fréquence, soit avec une modulation d'amplitude sur le faisceau pompe.

Nous montrons à la figure (5.2) un exemple de spectre obtenu, en appliquant une modulation d'amplitude sur le faisceau pompe, soit à partir de l'état fondamental $F=3$, soit à

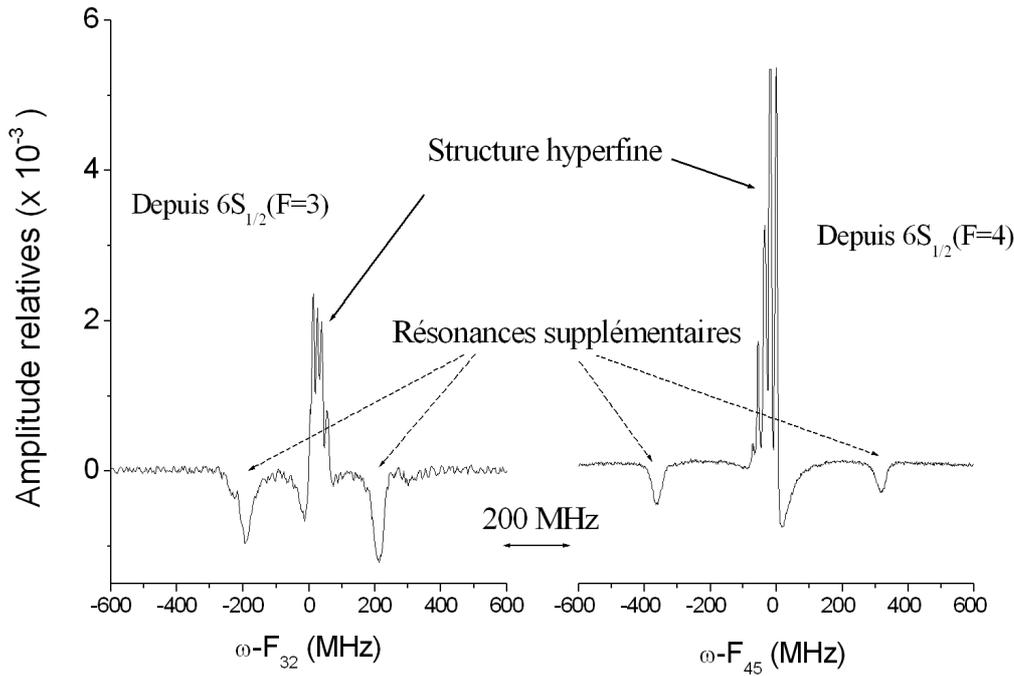


Figure 5.2 – Spectres obtenus avec des faisceaux de même fréquence en contre-propagation depuis le sous-niveau fondamental $F=3$ et $F=4$. Les spectres sont obtenus en détection synchrone avec une modulation d’amplitude sur le faisceau pompe. Les zéros des axes de fréquences sont pris sur les transitions $F = 3 \rightarrow F' = 2$ et $F = 4 \rightarrow F' = 5$ pour les spectres depuis $F = 3$ et $F = 4$ respectivement. Pour les deux spectres, l’absorption linéaire est d’environ 30%. Les intensités des faisceaux sonde utilisés sont respectivement : 50 mW/mm^2 et 25 mW/mm^2 .

partir de l’état fondamental $F=4$. Les deux spectres n’ont pas été obtenus pour les mêmes conditions d’intensité de faisceau, ni de densité de la vapeur atomique.

On observe sur les spectres de la figure (5.2), en plus de la structure hyperfine, deux structures situées de chaque côté des transitions atomiques. Ce sont ces structures qui nous intéressent ici. Les acquisitions étant faites de façon synchrone avec la modulation d’amplitude sur le faisceau pompe, un signal positif indique une transmission plus forte du faisceau sonde quand le faisceau pompe est présent. Ceci est typiquement le cas pour le spectre d’absorption saturée, où le pompage optique des atomes vers le sous-niveau fondamental non résonant diminue le nombre d’atomes sur le sous-niveau résonant et réduit ainsi l’absorption subie par le faisceau sonde. On observe en revanche que les structures supplémentaires ont

un signe négatif, ce qui indique que pour ces fréquences, moins de lumière est transmise en présence du faisceau pompe.

La largeur des structures, quoique supérieure à la largeur naturelle des transitions atomiques est inférieure non seulement à la largeur Doppler, mais aussi à la structure hyperfine atomique du $Cs(8P_{3/2})$ (ou $Cs(8P_{1/2})$). Un point remarquable est donc que la structure hyperfine du niveau atomique a « disparu » pour ces composantes, soit éventuellement parce qu'un seul des sous-niveaux y contribuerait, soit plus vraisemblablement, parce que les résonances observées ne sont pas des résonances impliquant le niveau atomique $Cs(8P_{3/2})$ (ou $Cs(8P_{1/2})$), voire, ne sont pas des résonances d'origine atomique.

L'amplitude des résonances supplémentaires semble être très sensible à l'angle entre les deux faisceaux. En conséquence, il faut porter une attention particulière à ce que les faisceaux soient alignés de façon bien colinéaire, d'autant plus que les faisceaux sont souvent focalisés pour augmenter leur intensité. Nous n'avons pas fait d'étude systématique en variant l'angle pour étudier le comportement. Il n'est pas écarté que ce comportement soit simplement un effet du mauvais recouvrement des faisceaux dans la zone de croisement.

5.4.1 Positions des résonances supplémentaires

Une des principales caractéristiques de l'observation des résonances supplémentaires est que la position en fréquence de celles-ci ne varie pas, pour les différentes conditions expérimentales analysées (puissance sonde, densité de vapeur...). Dans nos expériences, nous avons varié les intensités sonde et pompe de 5 mW/mm^2 à 250 mW/mm^2 , la densité atomique de $3 \times 10^{11} \text{ atomes/cm}^3$ à $4 \times 10^{13} \text{ atomes/cm}^3$ et la longueur de la cellule de 1 cm à 5 cm sans voir aucune modification sur la fréquence des résonances supplémentaires. Pour certaines conditions expérimentales (grandes densités de césium ou forte intensité du faisceau sonde) de nouvelles structures supplémentaires apparaissent (voir figure (5.3)).

Le tableau (5.1) présente la position des différents pics observés, pour les deux sous-niveaux du fondamental. Notons que les positions des résonances supplémentaires ne sont pas symétriques par rapport à la résonance atomique.

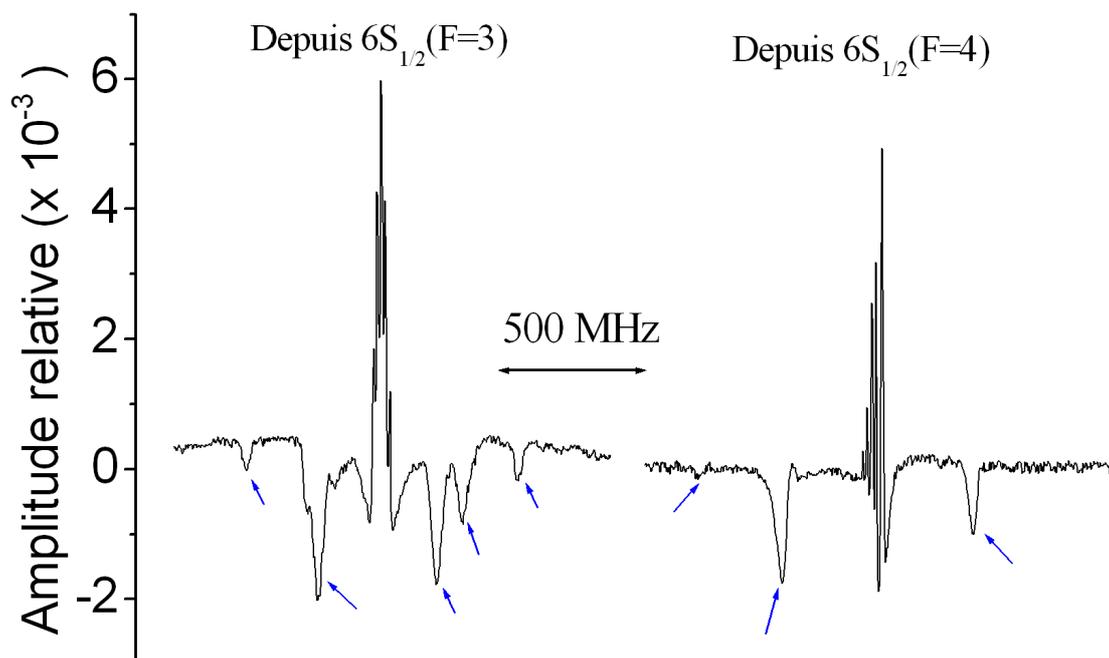


Figure 5.3 – Apparition de résonances supplémentaires multiples pour de grandes intensités du faisceau sonde et de grandes densités atomiques (par comparaison à la figure 5.2). Les flèches indiquent les résonances supplémentaires. Le spectre depuis $6S_{1/2}(F = 3)$ a été enregistré pour une densité atomique de 8.9×10^{12} atomes/cm³ (absorption de 50%) et une intensité sonde de 10 mW/mm². Le spectre depuis $6S_{1/2}(F = 4)$ a été enregistré pour une densité atomique de 5.7×10^{12} atomes/cm³ (absorption de 55%) et une intensité sonde de 15 mW/mm²

| État fondamental | Positions des résonances supplémentaires | | | | |
|------------------|--|----------|---------|---------|---------|
| F=3 | -425 MHz | -180 MHz | 210 MHz | 300 MHz | 500 MHz |
| F=4 | -620 MHz | -330 MHz | 310 MHz | - | - |

Table 5.1 – Tableau avec les positions des résonances supplémentaires rencontrées. Les positions sont repérées par rapport à la transition « cyclante » pour chaque sous-niveau fondamental. Les positions en fréquence sont mesurées avec une précision de ± 10 MHz.

Dans la suite, les analyses quantitatives ne sont faites que pour les résonances supplémentaires les plus proches de la résonance atomique (celles qui apparaissent sur la figure (5.2)), car les autres pics n'apparaissent que pour des conditions de grande densité et grande puissance laser, pour lesquelles un changement d'un paramètre expérimental modifie la propagation des faisceaux avant le croisement de ceux ci. Nous désignons par la suite comme résonance supplémentaire rouge celle à fréquence inférieure à la résonance atomique, et bleue celle à fréquence supérieure.

5.4.2 Dépendance de l'amplitude des résonances supplémentaires avec l'intensité du sonde.

L'amplitude des résonances supplémentaires présente la caractéristique inhabituelle de dépendre de façon non linéaire de l'intensité du faisceau sonde. Cette dépendance est présentée à la figure (5.4a), et est comparée à la dépendance de l'amplitude du pic de la transition $F = 3 \rightarrow F' = 3$ de l'absorption saturée. Les points expérimentaux ont été pris pour des intensités sonde allant de 5 mW/mm² à 15 mW/mm², supérieures à l'intensité de saturation de cette transition que nous estimons être environ 100 fois plus grande que celle pour la raie D1 (à peu près le rapport entre les forces d'oscillateurs [Liu00]), soit 2.5 mW/mm². Nous observons, comme attendu pour le pic de l'absorption saturée, une amplitude proportionnelle à l'intensité sonde (avec amplitude nulle pour une intensité nulle). Par contre, malgré un comportement qui paraît linéaire sur la figure 5.4a de l'amplitude des résonances supplémentaires, une extrapolation à puissance nulle ne donne pas une amplitude zéro. En revanche, les résultats expérimentaux peuvent être décrits par une loi de puissance en I^α , où I est l'intensité du laser, et nous obtenons (cf figure (5.4b)) alors $\alpha_{rouge} = 2.5$ et $\alpha_{bleu} = 2.4$. Cela indique bien un comportement non linéaire de l'amplitude des résonances supplémentaires par rapport à la puissance sonde. Ceci est une des principales caractéristiques observées indiquant que le faisceau sonde ne fait pas que sonder les structures, mais participe aussi au processus de leur formation.

5.4.3 Comportement en densité atomique des résonances supplémentaires

Nous avons étudié le comportement des résonances supplémentaires en fonction de la densité de la vapeur. Une des principales motivations de cette expérience est de rechercher

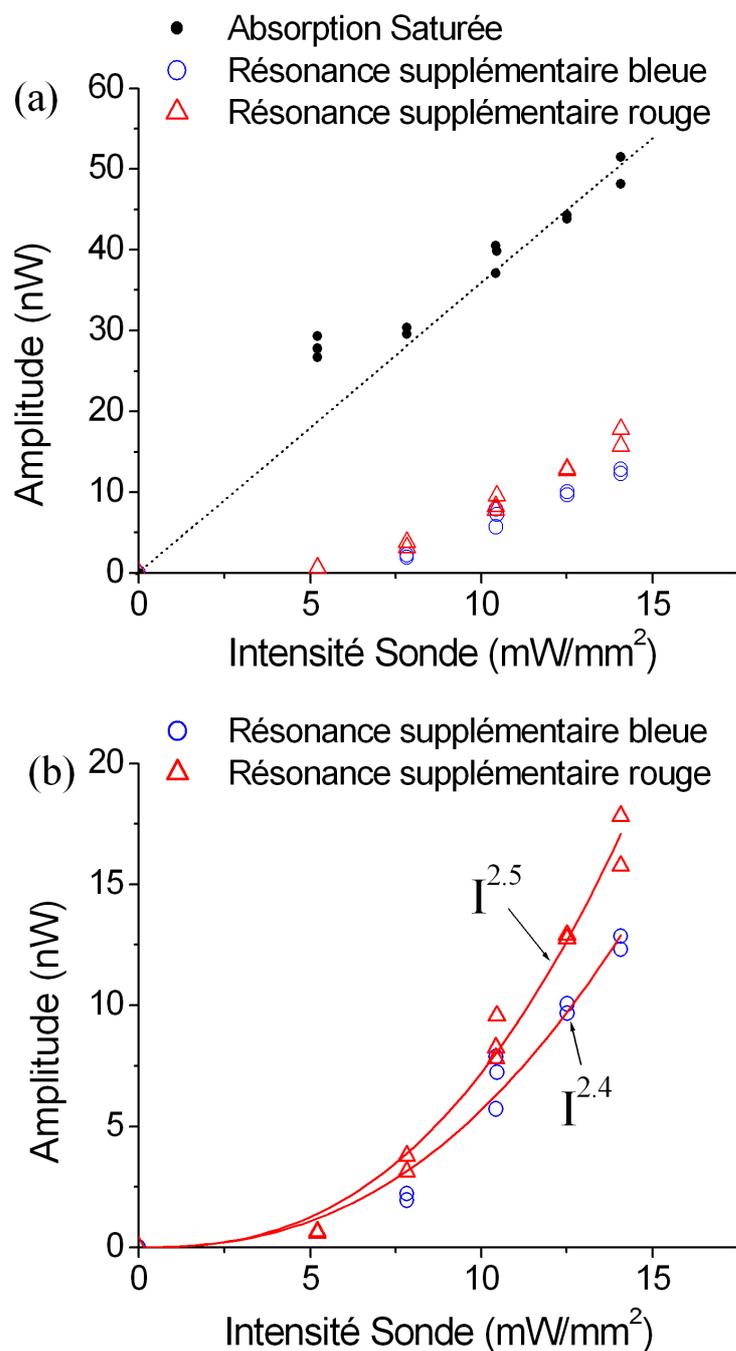


Figure 5.4 – Comportement de l'amplitude des résonances supplémentaires quand on varie l'intensité du faisceau sonde. Sur la courbe (b) nous avons ajusté une loi du type $A = bI^\alpha$ en imposant que les courbes passent à amplitude nulle pour une intensité zéro.

si le comportement de l'amplitude des résonances supplémentaires avec la densité atomique est typique de celui de la formation de dimères : ce comportement peut être quadratique pour la formation par photoassociation, ou cubique dans le cas de collisions à trois atomes. Nous montrons à la figure (5.5a) la variation de l'amplitude des structures avec la densité de césium. Nous observons que l'extrapolation à densité nulle ne donne pas une amplitude zéro indiquant un comportement non linéaire de celle-ci.

Pour pouvoir voir les structures pour les cellules considérées, il nous faut être dans des situations où l'absorption de la vapeur n'est pas négligeable ($\geq 10\%$), ce qui fait que quand on augmente la densité atomique, on change aussi la puissance laser des faisceaux sonde et pompe dans la région du croisement. Ceci est d'autant plus vrai aux grandes densités, pour lesquelles nous vérifions une sorte de saturation sur l'amplitude des structures qui est due à l'absorption des faisceaux avant leur croisement.

Nous avons ajusté les points expérimentaux jusqu'à une densité de 1.8×10^{12} atomes/cm³ (pour laquelle nous avons une absorption de 10% du faisceau) par une loi de puissance N^β , où N est la densité de césium. Nous obtenons respectivement des valeurs de $\beta = 2.85$ et $\beta = 2.87$ pour la résonance bleue et rouge. Ces valeurs indiquent bien l'aspect non linéaire des amplitudes avec la densité de césium. Cependant une incertitude sur ces valeurs, due aux effets de saturation, empêche de conclure sur le type de phénomène observé.

Nous avons essayé de vérifier le comportement des résonances supplémentaires avec la densité de césium en utilisant une cellule de 100 μm d'épaisseur. En principe, cette cellule aurait dû permettre de faire de plus grandes variations de densité sans atténuation des puissance des faisceaux au croisement. Nous n'avons en fait pas réussi à observer ces structures sur cette cellule, malgré les larges gammes de puissance laser et de densités de césium utilisées (nous avons retrouvé les même taux d'absorption que sur la cellule 1 cm).

Notons qu'avec une cellule de 5 cm de longueur, on a observé ces résonances supplémentaires à des températures aussi basses que 45°C pour le réservoir de césium (densités de 3×10^{11} atomes/cm³).

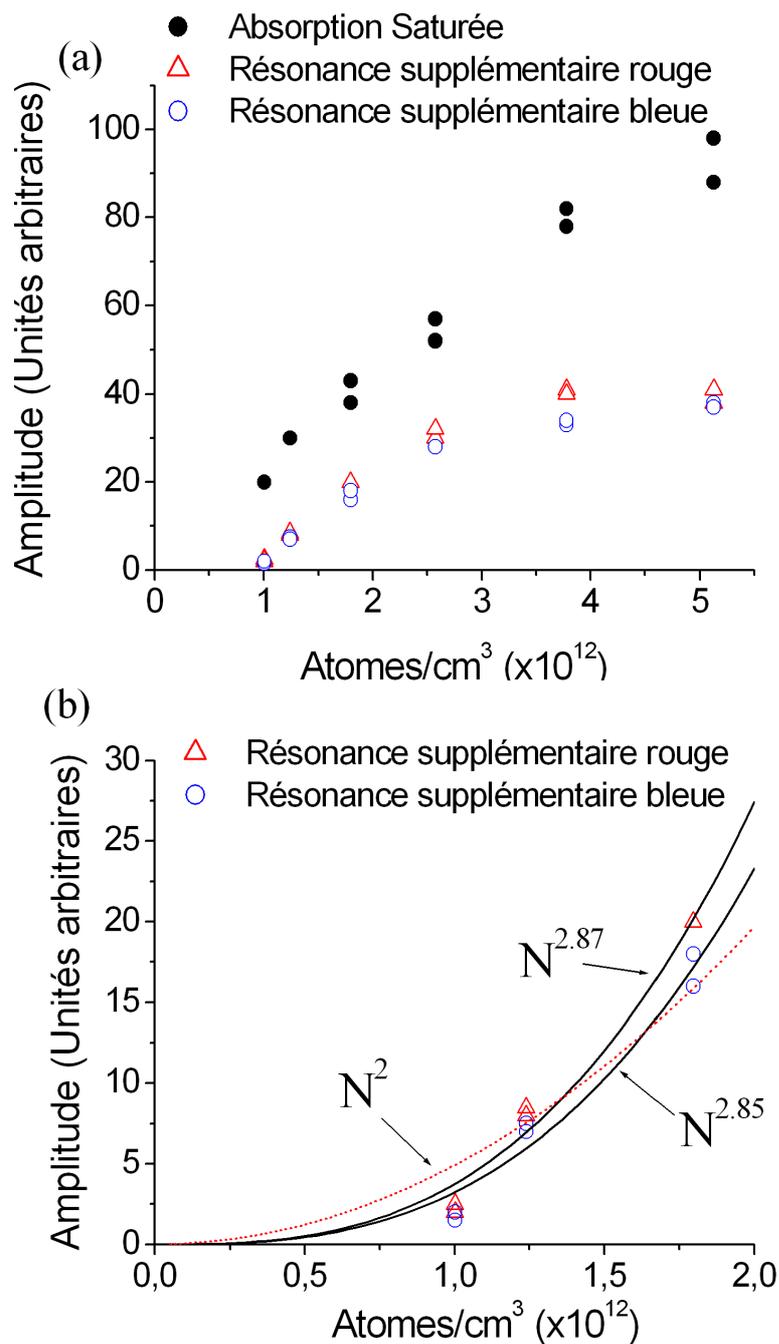


Figure 5.5 – Variation de l'amplitude (a) des résonances supplémentaires avec la densité de césium. (b) Ajustement de loi de puissance N^β , où N est la densité de césium. Les meilleures ajustements donnent des puissance $\beta = 2.85$ et $\beta = 2.87$ pour les résonances supplémentaires bleue et rouge, respectivement. Nous montrons aussi une courbe ayant $\beta = 2$ pour comparaison.

5.4.4 Changement du signal avec la vitesse de la modulation

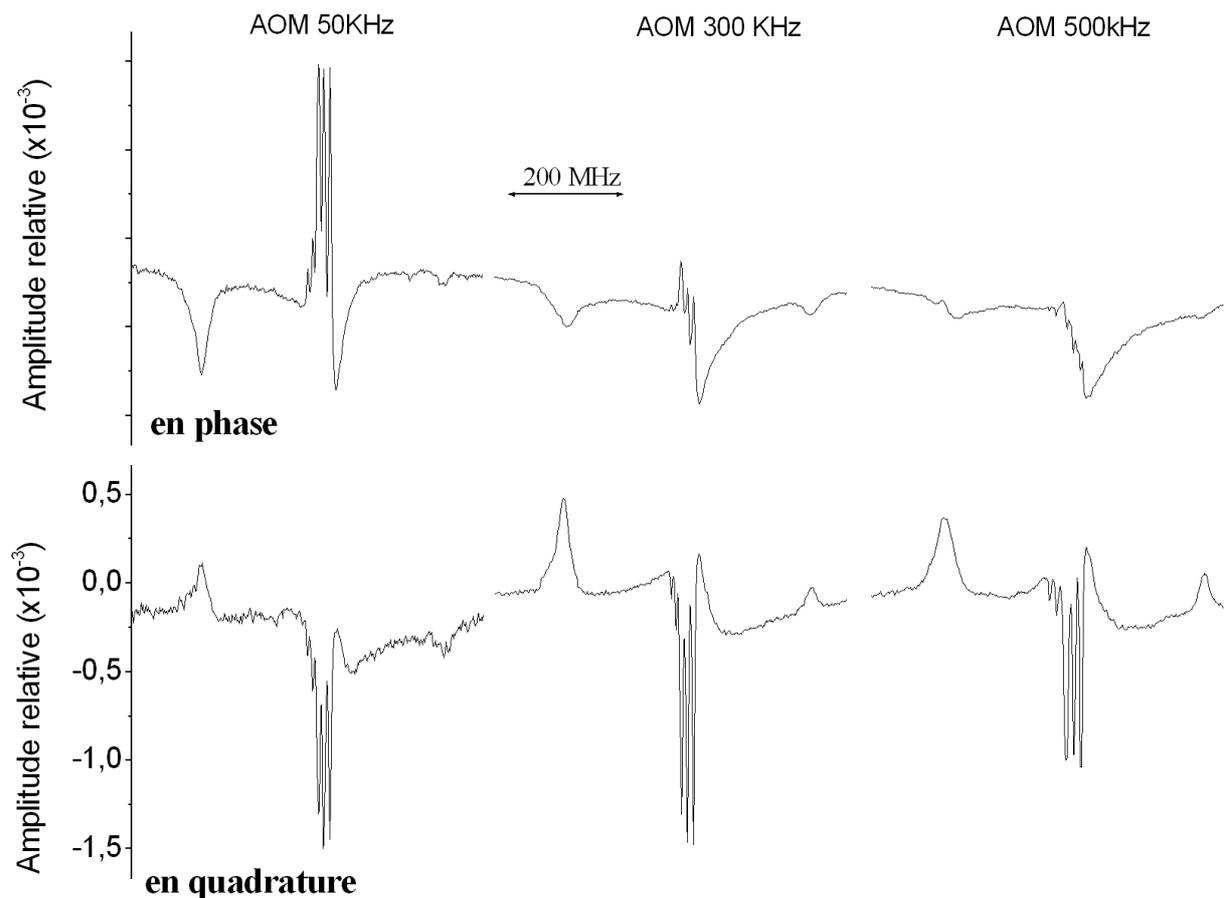


Figure 5.6 – *Changement des signaux en phase et en quadrature avec la modulation quand on augmente la vitesse de celle-ci. Les spectres ont été obtenus avec une modulation d’amplitude faite sur le faisceau pompe avec un modulateur acousto-optique (AOM).*

Nous avons analysé la dépendance du signal avec la fréquence de modulation. Le but de cette expérience est de vérifier si le processus de formation des résonances supplémentaires nécessite un temps relativement long, typique pour les processus incluant une étape de pompage optique, ou si il est rapide (phénomènes linéaires...). Cette analyse a été effectuée soit en modulation de fréquence soit en modulation d’amplitude, avec pour cela un passage du faisceau pompe dans un modulateur acousto optique autorisant des fréquences élevées qui ne peuvent être atteintes par un modulateur mécanique. La figure 5.6 montre que pour des fréquences de modulations de quelques dizaines de kHz, le signal commence à être déphasé, avec la diminution du signal en phase avec la modulation et apparition d’un signal en quadrature. Ce résultat indique que la formation des résonances supplémentaires inclut une

étape de pompage optique (avec des temps caractéristiques de quelques μs), redistribuant les atomes dans les différents sous-niveaux fondamentaux (qui peuvent éventuellement être moléculaires).

L'existence du pompage optique sur la formation des résonances supplémentaires pourrait éventuellement expliquer la non-observation des extra structures dans la cellule d'épaisseur $100 \mu m$. En effet pour rechercher un signal mesurable nous avons dû travailler à des densités atomiques plus élevées (5×10^{14} atomes/cm³). Pour ces densités, la largeur collisionnelle est de l'ordre de 10MHz, soit un temps typique entre collisions atomiques de $0.1 \mu s$. Le faible temps entre collisions par rapport au temps du pompage optique présent dans la formation de résonances supplémentaires peut justifier la non-observation de celles-ci pour la cellule $100 \mu m$.

5.4.5 Informations supplémentaires obtenues à partir de l'expérience à deux faisceaux contrepropageant de même fréquence

En plus des caractéristiques principales mentionnées ci dessus, nous énumérons par la suite quelques observations faites dans cette expérience.

5.4.5.1 Dépendance de l'amplitude et de la largeur des résonances supplémentaires avec la puissance pompe

A la figure (5.7a) nous montrons le comportement de l'amplitude des résonances supplémentaires, ainsi que de l'amplitude du pic $F = 3 \rightarrow F' = 3$ de l'absorption saturée, quand on varie l'intensité du faisceau pompe. Nous observons un comportement linéaire des amplitudes jusqu'à une intensité pompe de 10 mW/mm^2 , après quoi nous avons une saturation des amplitudes. Le comportement linéaire est typique d'un montage d'absorption saturée (de même pour les montages où il y a du pompage optique) où le nombre d'atomes pompés vers le sous-niveau fondamental non résonnant dépend linéairement de l'intensité du faisceau pompe. Pour des intensités plus grandes nous n'avons plus le comportement linéaire car nous commençons à bien saturer la transition. La valeur limite de la zone linéaire de 10 mW/mm^2 n'est pas intrinsèque à la transition atomique mais peut dépendre des conditions expérimentales telles que l'alignement, le taux d'absorption avant croisement des deux faisceaux,... Notons que la zone linéaire paraît être la même pour les résonances supplémentaires

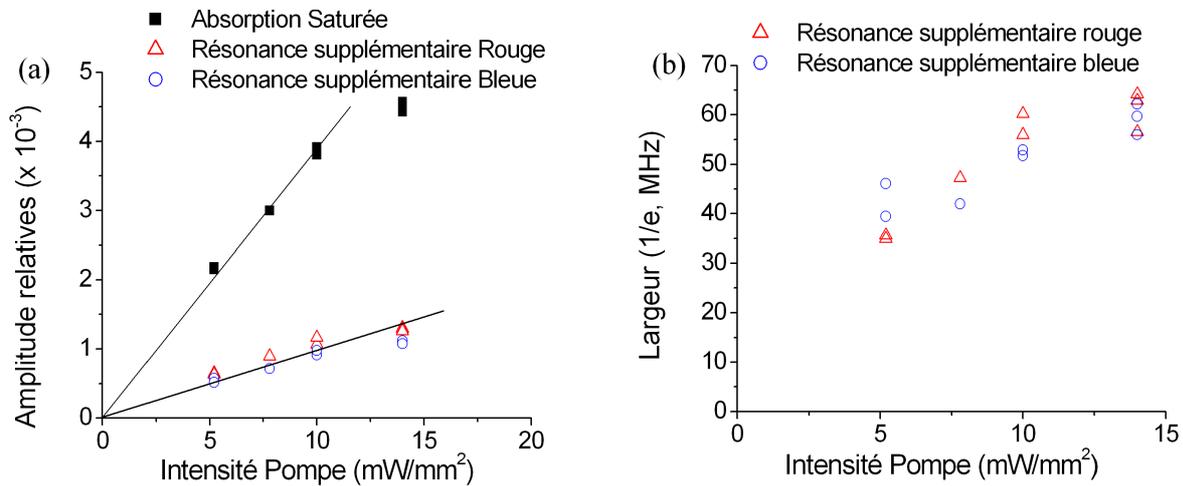


Figure 5.7 – (a) Variation de l'amplitude des résonances supplémentaires avec l'intensité du faisceau pompe. (b) Évolution de la largeur des résonances supplémentaires avec l'intensité du faisceau pompe. Les largeurs ont été obtenues en ajustant les résonances supplémentaires avec une fonction gaussienne et en prenant la largeur à hauteur $1/e$.

et pour l'absorption saturée.

A la figure (5.7b) nous montrons l'évolution de la largeur des résonances supplémentaires avec la puissance pompe. Nous notons un comportement à peu près linéaire de l'évolution des largeurs.

5.4.5.2 Signe des résonances supplémentaires

Comme nous l'avons mentionné, les résonances supplémentaires correspondent généralement à une plus grande absorption du faisceau sonde quand le faisceau pompe est présent. Il nous est toutefois arrivé d'observer des résonances supplémentaires de signe opposé (voir figure 5.8). Ces observations ont été faites pour des petites fréquences de modulation de sorte que la phase du signal soit bien définie. Nous n'avons observé des résonances de même signe que l'absorption saturée, que quand il y a un petit angle entre les deux faisceaux contre-propageants (≈ 10 mrad), ou pour des intensités de faisceau sonde particulièrement élevées (> 200 mW/mm^2). Notons qu'avoir un faisceau sonde moins intense et une intensité pompe > 200 mW/mm^2 ne modifie pas le signe des résonances supplémentaires. Cependant, ces observations ont une reproductibilité limitée. Notons que dans tous les cas les résonances du côté rouge et du côté bleu sont de même signe, et se situent aux mêmes positions quelque soit leur signe.

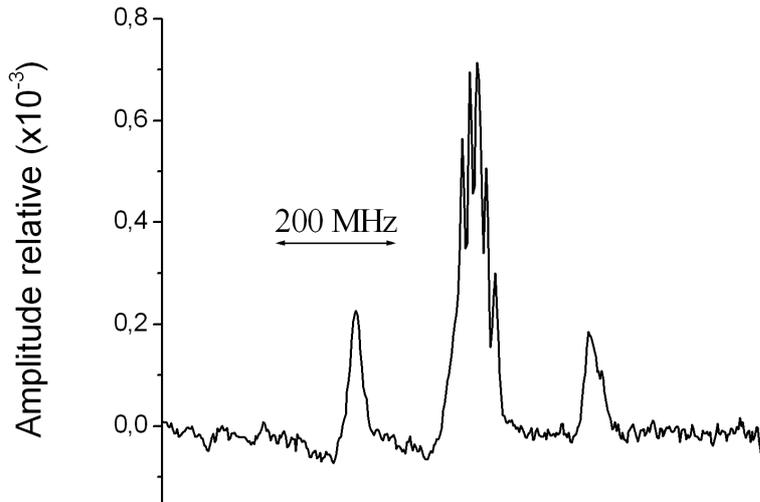


Figure 5.8 – Observation des résonances supplémentaires correspondant à une diminution de l'absorption en présence du faisceau pompe. Intensité sonde de $50\text{mW}/\text{mm}^2$, densité atomique de 10^{13} atomes/ cm^3 .

5.4.5.3 Détection de la fluorescence

En utilisant une cellule d'épaisseur 1 cm ayant une troisième fenêtre perpendiculaire à l'axe des faisceaux, nous avons détecté la fluorescence induite dans un montage identique aux précédents. Nous avons effectué une modulation d'amplitude sur le faisceau pompe et détectons la fluorescence de façon synchrone. Nous détectons simultanément la transmission du faisceau sonde. Nous observons que, pour les fréquences où on observe les résonances supplémentaires en A.S., la fluorescence est très légèrement plus grande (voir figure (5.9)). Cela signifie que la diminution du nombre de photons transmis aux résonances supplémentaires se traduit par une émission plus grande de photons de fluorescence. La fréquence de cette fluorescence n'a cependant pas été analysée.

5.4.5.4 Observation d'un fond d'absorption Doppler.

Pour des puissances sonde ou des densités atomiques plus élevées, on commence à voir apparaître d'autres résonances telles que celles présentés à la figure (5.3). Si nous augmentons encore plus la puissance sonde on note, en plus des résonance supplémentaires, un fond

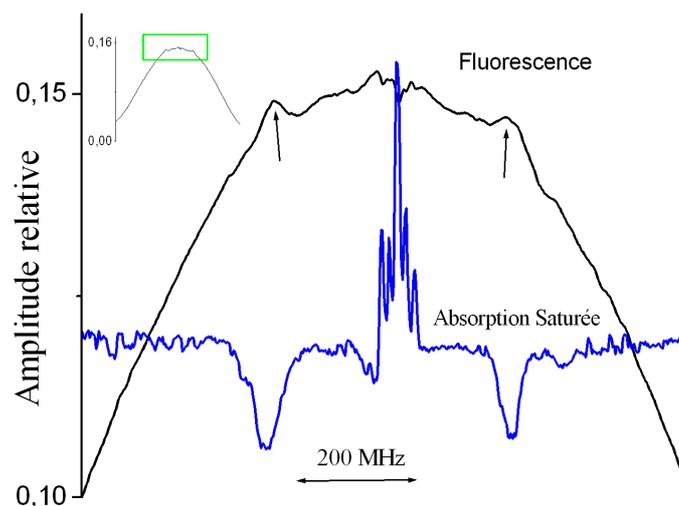


Figure 5.9 – Fluorescence et transmission du faisceau sonde en détection synchrone, en faisant une modulation d’amplitude sur le faisceau pompe. Les résonances supplémentaires sur la fluorescence sont montrées par des flèches. L’échelle verticale de la fluorescence est le rapport entre la fluorescence détectée en détection synchrone et la fluorescence totale détectée.

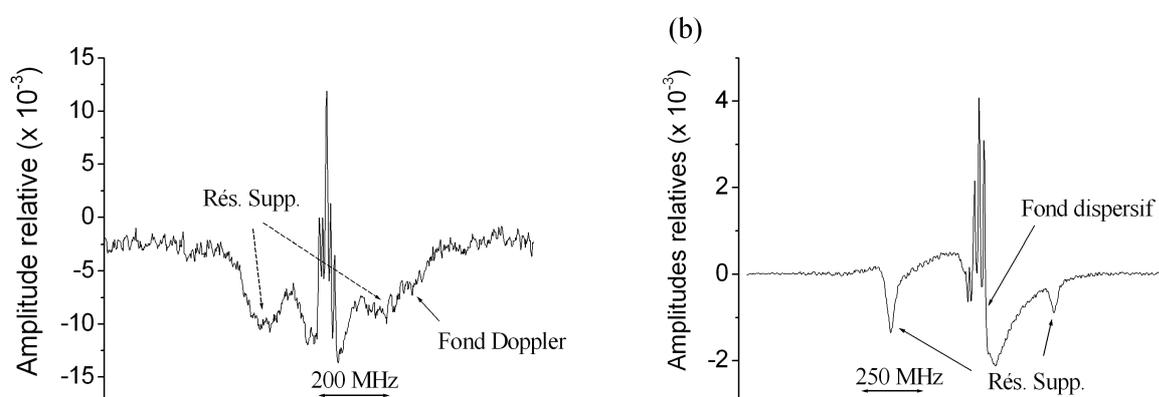


Figure 5.10 – Spectres d’absorption saturée plus résonances supplémentaires avec apparition de fond d’absorption Doppler (a) et de fond dispersif (b) : Intensité sonde : (a) $400\text{mW}/\text{mm}^2$; (b) $60\text{mW}/\text{mm}^2$

Doppler (voir figure (5.10a)) correspondant à une absorption plus forte quand la pompe est présente. Ce fond Doppler n’apparaît pas si c’est seulement l’intensité pompe qui est augmentée.

Pour les spectres depuis $6S_{1/2}(F = 4)$, pour des intensités pas trop élevées (60 mW/mm^2), c'est un fond dispersif qui apparaît autour de la résonance atomique (voir figure (5.10b)).

Notons que l'apparition de ces fonds semble être un phénomène différent de celui donnant origine aux résonances supplémentaires, les phénomènes ayant lieu à des régimes d'intensités différentes.

5.4.6 Observations des résonances supplémentaires pour le niveau $8P_{1/2}$ du césium

Nous avons aussi observé les résonances supplémentaires pour le niveau $8P_{1/2}$ du césium. Le coefficient d'absorption d'Einstein vers ce niveau est environ trois fois plus faible que celui vers le niveau $8P_{3/2}$ (voir chapitre I et [Liu00]) et il faut des puissances et densités atomiques plus élevées pour observer des résonances supplémentaires analogues à celles décrites précédemment ; celles-ci sont plus facilement observables depuis le sous-niveau du fondamental $F=4$ que pour le $F=3$.

Pour pouvoir observer des résonances supplémentaires, nous avons dû augmenter la puissance du faisceau sonde. A la figure (5.11a), nous montrons le spectre d'absorption saturée et les résonances supplémentaires pour une transition depuis $6S_{1/2}(F = 4)$. Ce spectre a été obtenu pour une intensité sonde d'environ 550 mW/mm^2 , une intensité pompe d'environ 250 mW/mm^2 et une densité de césium de 2.8×10^{13} atomes/cm³. La figure (5.11b) montre le spectre équivalent depuis le $6S_{1/2}(F = 3)$. Pour voir les résonances supplémentaires depuis ce sous-niveau fondamental, il nous a été nécessaire d'utiliser une densité atomique plus grande (1.8×10^{14} atomes/cm³) pour la même intensité laser.

Les positions des résonances supplémentaires (-450MHz et 400MHz depuis le $6S_{1/2}(F = 4)$ et -510MHz et 500MHz depuis le $6S_{1/2}(F = 3)$) sont différentes de celles obtenues pour le niveau $8P_{3/2}$. Notons que pour les spectres depuis les deux sous-niveaux fondamentaux, on a observé des résonances supplémentaires avec un signe positif, signifiant une plus grande transmission du faisceau sonde en présence du faisceau pompe. A cause du petit nombre d'acquisition faites pour cette transition et de la faible variabilité des paramètres (puissances,

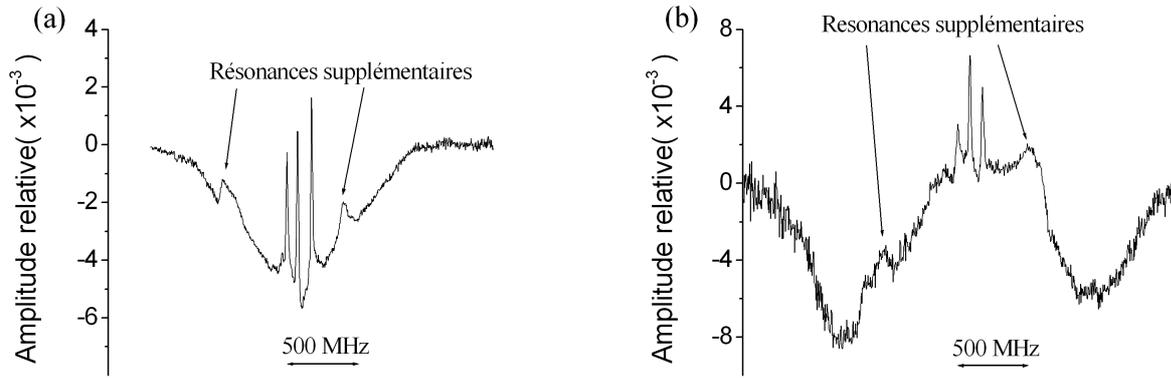


Figure 5.11 – Résonances supplémentaires pour le niveau $8P_{1/2}$. (a) autour de $6S_{1/2}(F = 4) \rightarrow 8P_{1/2}$ avec les résonances situées à -450MHz et 400MHz et (b) autour de $6S_{1/2}(F = 3) \rightarrow 8P_{1/2}$ avec les résonances situées à -510 MHz et 500 MHz . Avec l'intensité du faisceau sonde utilisée dans (a), un fond Doppler absorptif apparaît. La « remonté » du fond dans (b) est due à une diminution par absorption de l'intensité des faisceaux au croisement (l'absorption au centre de la raie est de 90%).

densité...) on ne peut pas savoir si le signe des résonances supplémentaires observées ici est intrinsèque à cette transition où s'il est dû à une configuration particulière de l'expérience.

Notons que pour la transition $6S_{1/2} \rightarrow 8P_{1/2}$ les intensités nécessaires pour l'observation des résonances supplémentaires sont suffisamment élevées pour qu'il soit possible d'observer le fond Doppler sans la présence des résonances supplémentaires. Ce qui renforce l'argument que les deux phénomènes ont des origines différentes.

5.4.7 Discussions sur l'origine des résonances supplémentaires

Compte tenu des informations collectées dans les expériences précédentes nous discuterons brièvement des hypothèses que nous avons faites pour expliquer la formation des résonances supplémentaires. L'énumération de ces hypothèses nous servira de guide pour élaborer des tests qui seront décrits par la suite.

- Les photons utilisés pour cette expérience étant assez énergétiques (longueur d'onde de 388 nm), un processus impliquant une ionisation atomique est envisageable. En effet, la limite d'ionisation du césium est à $\approx 318.4\text{ nm}$ [Moh29]. Ceci signifie que l'absorption d'un photon à 388nm par un atome qui n'est déjà pas dans l'état fonda-

mental amène celui ci à une énergie au dessus de la limite d'ionisation. Cependant une transition vers un continuum d'états ne peut rendre compte des structures étroites observées.

- Le comportement non linéaire par rapport à l'intensité du faisceau sonde, inhabituel pour des expérience de spectroscopie, nous a poussé à envisager que les résonances supplémentaires puissent être dues à des effets d'optique non linéaire liés à la propagation du faisceau. De nombreux effets de propagation tels que l'autofocalisation de faisceau [Gri70] et l'émission conique [Pen90] sont connus pour exister pour des vapeurs relativement denses et des fortes puissances laser. Cependant, ces effets ne sont généralement pas observés aussi près des résonances atomiques que les résonances supplémentaires et la fréquence pour laquelle ces effets ont lieu dépend de nombreux paramètres expérimentaux comme la densité de la vapeur et la puissance laser. Dans nos expériences nous avons varié la puissance sonde de $10 \mu\text{W}$ à $500 \mu\text{W}$, la densité atomique de 3×10^{11} atomes/cm³ à 4×10^{13} atomes/cm³ et la longueur de la cellule de 1cm à 5cm sans voir aucune modification sur la position des résonances supplémentaires. Nous pensons donc que cette hypothèse n'est pas envisageable.
- La largeur sub-Doppler des résonances supplémentaires et leur positions bien déterminées nous font penser que celles ci correspondent à des transitions supplémentaires. Il ne doit alors pas s'agir de transition du césium atomique, mais éventuellement de transitions de dimères. Cette espèce n'existant pas « naturellement » dans notre cellule (aux densités et températures considérées, le nombre de dimères formés par collisions dans l'état fondamental est très petit), elle serait créée par les faisceaux laser. Une façon bien connue de changer l'équilibre entre population atomique et de dimères, en introduisant des photons, est le processus de photoassociation. Cependant la dépendance non linéaire des résonances supplémentaires avec le faisceau sonde indique un processus plus compliqué. En effet, nous n'arrivons pas à simplement sonder ces espèces, le faisceau sonde participant aussi à la formation de celles ci . Nous émettons donc l'hypothèse que nous formons et sondons des dimères de césium.

Pour essayer de mieux analyser les différentes hypothèses nous avons réalisé des expériences selon différentes configurations. Nous discuterons celles-ci par la suite.

5.5 Expériences avec deux faisceaux de fréquences différentes.

L'achat, au cours de cette thèse, d'une seconde source laser émettant autour de 388 nm nous a permis de réaliser des montages expérimentaux plus complexes en ayant des faisceaux avec des fréquences différentes.

5.5.1 Déplacement des structures pour une fréquence du faisceau pompe fixe différente de la transition atomique

L'intérêt d'une telle expérience est double : elle permet de tester s'il y a un processus de sélection de vitesse dans la formation des résonances supplémentaires ; et, en plaçant le faisceau pompe sur les ailes de la dispersion atomique, elle permet de modifier considérablement les effets de propagation.

5.5.1.1 Deux faisceaux contre-propageants

Soient respectivement ω_p et ω_s les fréquences des faisceaux pompe et sonde supposés contre-propageants dans le référentiel du laboratoire. Si ces fréquences sont en résonance avec deux transitions données par $\omega_0 + \Delta$ et $\omega_0 + \delta$, on peut écrire pour un atome avec la composante de vitesse v dans la direction de propagation du faisceau pompe :

$$\omega_p - kv = \omega_0 + \Delta \quad (5.1)$$

$$\omega_s + kv = \omega_0 + \delta \quad (5.2)$$

où k est le vecteur d'onde du faisceau que nous avons supposé identique en module pour la pompe et la sonde, c'est-à-dire que l'on considère $\Delta, \delta \ll \omega_0$. De l'équation 5.1 on obtient $kv = \omega_p - \omega_0 - \Delta = \delta_p - \Delta$, où δ_p est le désaccord par rapport à la transition ω_0 . En remplaçant cette expression pour kv dans l'équation 5.2 on obtient :

$$\delta_p + \delta_s = \Delta + \delta \quad (5.3)$$

où $\delta_s = \omega_s - \omega_0$. Nous commencerons par analyser ce qui se passe pour le spectre bien connu de l'absorption saturée. Pour une absorption saturée nous avons des pics quand les deux faisceaux sont résonnants avec les mêmes transitions hyperfines ($\Delta = \delta$) ou quand ils sont résonnants avec des transitions différentes (résonance de croisement). Considérons d'abord

le cas où $\Delta = \delta = 0$ (transition unique à ω_0) : nous avons $\delta_s = -\delta_p$, c'est à dire que si la fréquence pompe est fixe et en désaccord (δ_p) avec la transition ω_0 , le signal induit par la sélection de vitesse se verra quand la sonde aura un désaccord de $-\delta_p$ par rapport à ω_0 . On note que pour $\delta_p \neq 0$ les atomes participant au signal auront une vitesse non nulle, donnée par $kv = \delta_p$. L'amplitude du signal sera donc modulée par le pourcentage d'atomes dans une telle classe de vitesse (distribution de Maxwell-Boltzman). Pour les deux faisceaux en résonance avec une autre transition hyperfine $\omega_1 = \omega_0 + \Delta$ avec $\delta = \Delta \neq 0$, on obtient $\delta_s = -\delta_p + 2\Delta$. Ainsi, dans cette configuration, la distance entre deux pics correspondants à des transitions hyperfines différentes est deux fois la distance entre les sous-niveaux hyperfins. Pour les résonances de croisement ($\delta = 0$ et $\Delta \neq 0$) on aura $\delta_s = \Delta - \delta_p$ et donc la distance entre le pic correspondant aux deux laser résonnant avec la transition ω_0 ($\Delta = \delta = 0$) et le pic correspondant au croisement entre ω_0 et ω_1 sera égale à la distance entre ω_0 et ω_1 (Δ). Si les deux faisceaux sont à la même fréquence (laser unique) on a bien sûr $\delta_s = \delta_p$, et la distance entre deux pics de résonance hyperfine est égale à l'écart en fréquence entre les transitions ; la distance entre le croisement entre ω_0 et ω_1 est la moitié de la distance entre les transitions ($\Delta/2$).

Si la formation de résonances supplémentaires suit une sélection de vitesse, le raisonnement ci-dessus indique que les résonances observées, dans la nouvelle configuration avec la fréquence pompe fixe et la fréquence sonde balayable, doivent avoir une distance à l'absorption saturée qui est le double de celle observée dans l'expérience avec les faisceaux à même fréquence.

Pour analyser les spectres obtenus dans cette expérience il nous est nécessaire de connaître les fréquences des faisceaux pompe et sonde. Pour connaître la fréquence sonde nous utilisons une expérience auxiliaire d'absorption saturée sur une cellule de référence et une cavité Fabry Perot. Pour connaître la fréquence pompe (fixe), nous mesurons la distance entre la position d'une transition hyperfine sur l'absorption saturée par rapport à celle obtenue dans la cellule de référence.

Un exemple de spectre obtenu depuis le sous-niveau fondamental $F=3$ est montré à la figure (5.12a). Sur cette acquisition la fréquence pompe est décalée d'environ 370 MHz par rapport à la transition $F = 3 \rightarrow F' = 2$ (zéro de l'axe des fréquences), de telle façon que

la résonance supplémentaire bleue se situe près de la résonance atomique. On note que la taille de la résonance supplémentaire rouge, qui est assez décalée par rapport à la résonance atomique, est beaucoup plus petite que la structure bleue. En comparant l'amplitude des résonances supplémentaires pour différents décalages du faisceau pompe, on note que celle-ci est proportionnelle à l'absorption atomique du faisceau sonde, variable avec δ_s . Ceci paraît indiquer que le mécanisme de formation des résonances supplémentaires passe par une étape intermédiaire avec des atomes Cs($8P_{3/2}$) excités par le faisceau sonde. Ce processus devient moins efficace si l'on s'écarte du centre Doppler, à cause du plus faible nombre d'atomes (à $v \neq 0$) qui contribuent au signal.

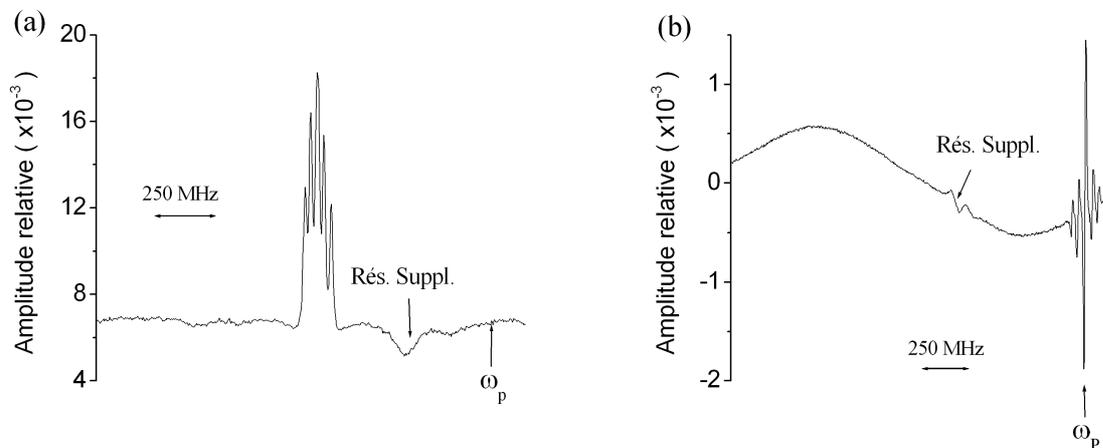


Figure 5.12 – Spectres obtenus avec le faisceau pompe fixe en fréquence et le faisceau sonde balayable. (a) Dans une configuration en contrepropagation obtenue en modulation d'amplitude (b) Dans une configuration en copropagation obtenue en modulation de fréquence.

La distance entre la structure bleue et la transition atomique $F = 3 \rightarrow F' = 2$ observée dans la figure (5.12a) est de 400 MHz correspondant bien à deux fois la valeur indiquée sur le tableau (5.1). De même pour des acquisitions où on a décalé le faisceau pompe du côté rouge, la position de la structure rouge est de 370 MHz, deux fois celle indiquée sur le tableau (5.1). Ceci est compatible avec une sélection de vitesse pour la formation des résonances supplémentaires, indiquant aussi que les structures correspondent bien à des résonances, alors que les effets de propagation sont fortement modifiés par le décalage de la fréquence pompe.

Une expérience antérieure à l'époque où nous ne disposions que d'une seule source, utili-

sant un modulateur acousto-optique pour décaler la fréquence pompe par rapport à la sonde nous avait permis d'observer un comportement similaire, où la distance entre résonances supplémentaires et la structure hyperfine restait inchangée.

5.5.2 Deux faisceaux co-propageants

Nous avons aussi étudié une configuration avec deux faisceaux co-propageants. Dans ce cas les équations équivalentes à 5.1 et 5.2 décrivant les résonances s'écrivent :

$$\omega_p - kv = \omega_0 + \Delta \quad (5.4)$$

$$\omega_s - kv = \omega_0 + \delta \quad (5.5)$$

éliminant kv dans les équations on obtient :

$$\delta_p - \delta_s = \Delta - \delta \quad (5.6)$$

Dans ce cas pour les deux faisceaux résonnants avec la même transition hyperfine ($\delta = \Delta$) on a $\delta_p = \delta_s$, c'est-à-dire qu'un décalage de la fréquence pompe induit un décalage de la sonde de même quantité et signe. On observe que pour des transitions hyperfines différentes, on obtient les pics d'absorption saturée pour la même fréquence sonde (si $\delta = \Delta$ alors $\delta_s = \delta_p$ peu importe la valeur de Δ). On s'attend alors à avoir un pic de l'absorption saturée dominant (accompagné de résonances de croisement) qui est la somme de toutes les contributions hyperfines. Si les résonances supplémentaires sont formées par les deux faisceaux résonnants avec la même transition (éventuellement moléculaire), la structure sera confondue avec le pic principal de l'absorption saturée. Pour les résonances de croisement ($\delta = 0$ et $\Delta \neq 0$) on a $\delta_s = \delta_p + \Delta$, c'est-à-dire que la distance entre le pic principal de l'absorption saturée et la résonance de croisement correspond à la distance entre les sous-niveaux hyperfins. Si les résonances supplémentaires sont formées quand un faisceau est sur la transition atomique et l'autre sur une transition dimère la distance entre celle-ci et l'absorption saturée doit être la même que celle observée en contre-propageant (Δ).

Expérimentalement, les deux faisceaux co-propageant arrivaient sur le détecteur, nous avons donc modulé en fréquence le faisceau sonde et réalisé une détection synchrone. Cela nous a permis d'éliminer une bonne partie du bruit lié au faisceau pompe. Nous avons observé des résonances supplémentaires ayant le même comportement que pour la configuration contre-propageante et aux mêmes positions (5.12b).

Ces résultats sont compatibles avec une sélection de vitesse. Une autre interprétation envisageable est que les dimères sont formés à partir de l'absorption de photons de faisceaux pompe et sonde, et que les résonances supplémentaires observées correspondent à des transitions type Raman entre deux états fondamentaux du dimère. Bien qu'une résonance Raman soit à priori large (Doppler) pour une configuration en contre-propagation, les dimères sont formés à partir d'une absorption sélective en vitesse, ce qui peut faire que la résonance Raman en contre-propagation soit étroite.

5.5.3 Expérience avec les fréquences des faisceaux accordés autour de transitions hyperfines différentes.

Nous avons réalisé une expérience en pompant depuis un sous-niveau hyperfin fondamental et en sondant une transition depuis l'autre état hyperfin fondamental (voir figure 5.13a). Les deux faisceaux sont donc décalés de ≈ 9 GHz. Un exemple de spectre obtenu

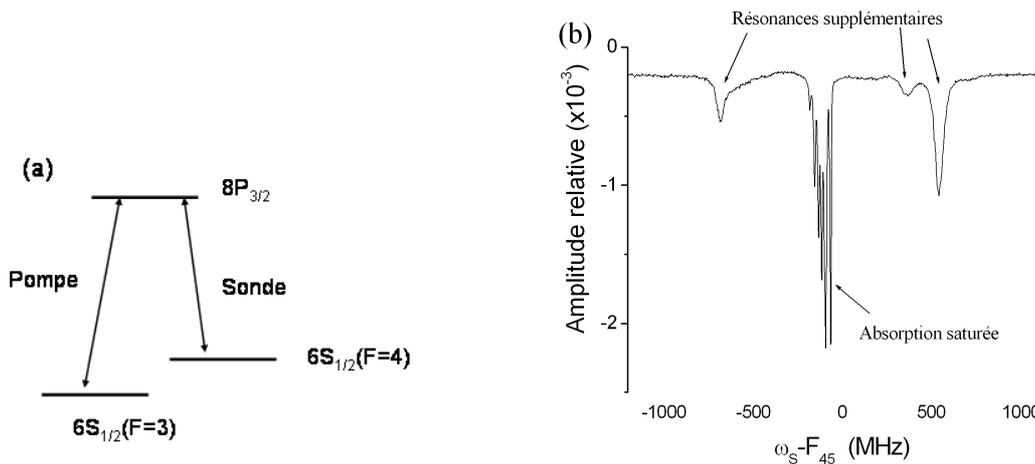


Figure 5.13 – (a) Diagramme de l'expérience avec les deux faisceaux résonnants avec des sous-niveaux fondamentaux différents. (b) Spectre obtenu dans une configuration en contre-propagation avec la fréquence pompe fixe sur $6S_{1/2}(F = 3) \rightarrow 8P_{3/2}$ et la sonde balayée autour de $6S_{1/2}(F = 3) \rightarrow 8P_{3/2}$. Le zéro repère la transition $F = 4 \rightarrow F' = 5$ sur une cellule de référence.

en pompant l'état $F=3$ et en sondant l'état $F=4$ est montré sur la figure (5.13b)). Le signal d'absorption saturée est maintenant négatif, indiquant une plus grande absorption quand le faisceau pompe est présent. En effet, le faisceau pompe transfère les atomes de l'état $F=3$ à l'état $F=4$, de façon à ce que le faisceau sonde voit plus d'atomes. On observe l'existence de trois structures, relativement grandes par rapport au signal d'absorption saturée, et ayant

un signe négatif. Ainsi, comme quand faisceaux pompe et sonde étaient accordés sur le même sous-niveau du fondamental, les résonances supplémentaires correspondent à une diminution de la transmission en présence du pompe. Les distances des structures obtenues sur la figure (5.13) sont : -650 MHz et 610 MHz, correspondant à deux fois les distances pour les structures trouvées auparavant en utilisant une seule source laser pour l'état $F=4$, et 430 MHz correspondant à la résonance supplémentaire bleue trouvée pour l'état $F=3$ (voir tableau 5.1).

Pour les expériences en pompant l'état $F=4$ et en sondant $F=3$ on trouve des structures à des distances de : -1050 MHz, -520 MHz et 750 MHz. Celles-ci ne correspondent pas aux distances trouvées auparavant.

Nous avons aussi réussi à observer les résonances supplémentaires en pompant sur la transition $6S_{1/2} \rightarrow 8P_{3/2}$ et en sondant sur la transition $6S_{1/2} \rightarrow 8P_{1/2}$ (figure 5.14).

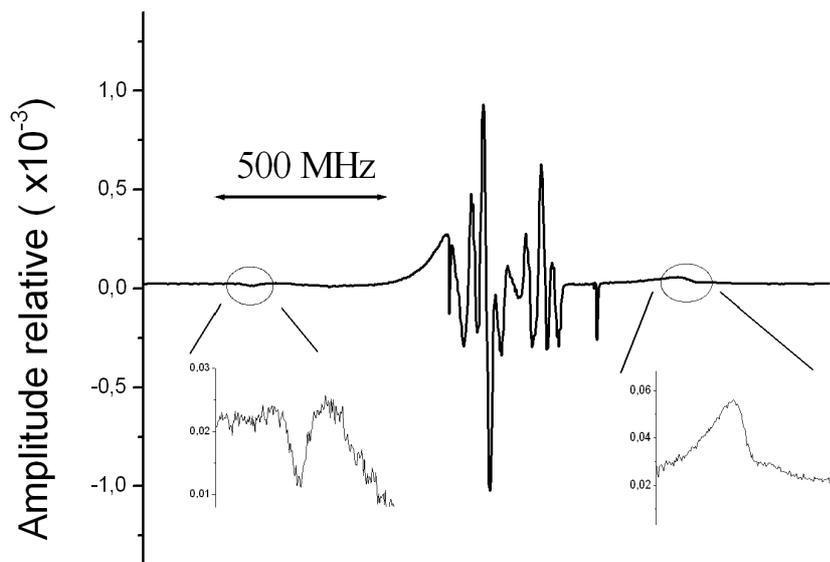


Figure 5.14 – Spectre obtenu dans une configuration en contre-propagation avec la fréquence pompe fixe sur $6S_{1/2}(F = 4) \rightarrow 8P_{3/2}$ et la fréquence sonde balayée autour de $6S_{1/2}(F = 4) \rightarrow 8P_{1/2}$.

5.6 Expériences utilisant trois faisceaux.

Pour valider l'idée que les résonances supplémentaires observées sont associées à la formation de dimères il serait intéressant de faire la spectroscopie de ces dimères. On sait que le spectre des transitions électroniques se compose de bandes de vibration-rotation et nous avons déjà observé la bande autour de 780 nm pour des dimères formés par collisions atomiques. L'utilisation d'un troisième faisceau pour sonder les dimères que nous formons devrait permettre de faire une étude spectroscopique de ceux-ci sur une gamme de fréquences suffisamment large.

Nous avons argumenté que les résonances supplémentaires correspondent à une absorption du faisceau sonde par des dimères. Cela veut dire que le laser autour de la résonance atomique du césium 8P permet de sonder les bons niveaux rovibrationnels. Nous avons réalisé une expérience en fixant deux faisceaux contrepropageants de même fréquence sur une résonance supplémentaire et en balayant un troisième faisceau au voisinage de la résonance atomique. Il devrait être possible d'observer des absorptions de dimères y compris à l'extérieur de la largeur Doppler. Le faisceau que nous utilisons pour sonder les dimères est utilisé avec une intensité faible pour éviter que lui même ne forme des dimères. Nous n'avons pas réussi à voir une absorption dimère sur le troisième faisceau, avec une sensibilité allant jusqu'à 5×10^{-5} .

Nous avons aussi cherché à sonder la formation de dimères formés par les faisceaux à 388 nm en sondant des raies de dimères vers 780 nm (voir section 5.3). Pour cela nous utilisons deux faisceaux 388 nm, contre-propageants et de même fréquence, fixée à la fréquence d'une résonance supplémentaire. Nous alignons le faisceau à 780 nm de façon colinéaire avec les faisceaux 388 nm. Nous séparons la détection des faisceaux 780 nm et 388 nm co-propageants en utilisant deux miroirs réfléchissant le bleu (plus de 95% de réflectivité) et transmettant le rouge. Nous modulons en amplitude les faisceaux bleus et détectons le 780nm en détection synchrone. Nous n'avons pas réussi à voir ni une absorption linéaire ni une absorption saturée des dimères à 780 nm. Nous estimons la sensibilité de nos mesures à environ 5×10^{-6} . Les expériences ont été faites pour de fortes puissances des faisceaux 388 nm et des densités de césium autour 1.5×10^{13} atomes/cm³, pour être sûr d'avoir une puissance suffisante des faisceaux au point de croisement en évitant une trop grande diminution des puissances par

absorption. Les faisceaux 388 nm ne sont pas très focalisés pour que la longueur de Rayleigh soit suffisante et permette une superposition convenable du faisceau 780 nm.

Nous avons aussi essayé de fixer le laser 780 nm aux alentours d'une raie de dimère (repérée auparavant) et de balayer la fréquence des lasers 388nm en cherchant une absorption à 780 nm quand les faisceaux 388nm sont autour de la résonance supplémentaire, sans résultats concluants.

La non-détection des dimères en utilisant le laser 780 nm n'exclut pas la formation de ceux-ci à l'état fondamental. La petite portion de la bande d'absorption dimère que nous sondons (une dizaine de GHz, comparée à environ 50 nm couvert par la bande [Che06]) n'exclut pas la possibilité que nous formions des dimères de façon sélective sur certains niveaux rovibrationnels autres que ceux sondés.

5.7 Conclusion

En réalisant des expériences de type absorption saturée, nous avons observé des résonances supplémentaires dans la largeur Doppler des raies $8P_{3/2}$ et $8P_{1/2}$ du césium. Ces résonances ont : une position en fréquence fixe, indépendante des conditions expérimentales ; une amplitude qui dépend de l'intensité du faisceau sonde de façon non linéaire ; une largeur sub Doppler et plus étroite que les structures hyperfines des niveaux $8P_{3/2}$ et $8P_{1/2}$ du césium ; et un temps de formation relativement long indiquant un processus de pompage optique. En général ces résonances supplémentaires correspondent à une augmentation de l'absorption du faisceau sonde en présence du faisceau pompe.

L'invariance de la position des résonances supplémentaires avec la modification de la propagation des faisceaux dans les différentes conditions expérimentales, nous permet d'écarter des effets non linéaires liés à la propagation. Les expériences avec la fréquence pompe fixe dans les configurations co-propageante et contre-propageante renforcent cette argumentation.

L'invariance des positions des résonances supplémentaires, alliée à l'absence de structure hyperfine indiquent que ces résonances sont d'origine non-atomique, semblant indiquer

que celles-ci sont des résonances de dimères.

Le comportement non-linéaire des amplitudes des résonances supplémentaires avec l'intensité du faisceau sonde indique que celui-ci non seulement sonde, mais participe à la formation des dimères.

Pour les expériences avec deux fréquences différentes, la conservation de la distance en fréquence entre l'A.S. et les résonances supplémentaires est compatible avec un processus avec une sélection de vitesse pour la formation des dimères. L'observation des résonances supplémentaires correspond soit à de l'absorption du faisceau sonde par les dimères formés de façon sélective en vitesse dans une bande du fondamental, soit à une transition du type Raman entre pompe et sonde entre l'état fondamental moléculaire formé et un autre état fondamental.

Nous avons cherché à faire une spectroscopie des bandes de dimères depuis l'état peuplé par nos deux faisceaux 388nm, en utilisant un troisième faisceau. Nous avons sondé des bandes connues de dimères de césium autour de 780 nm et de 388 nm. Les deux essais ont été infructueux. Il est cependant possible que nous formions les dimères dans un état rovibrationnel autre que ceux sondés par notre troisième faisceau.

Notons que le processus permettant l'éventuelle formation de dimères permet d'avoir des transitions bien résolues pour une configuration expérimentale bien plus simple que celle utilisée pour la photoassociation d'atomes froids. En même temps, elle permet l'observation des éventuels dimères à des températures bien plus basses que les températures usuelles pour la formation de dimères par collisions atomiques. Nous avons observé des résonances supplémentaires à des températures aussi basses que 45°C.

Bibliographie

- [Abr90] N.B. Abraham et W.J. Firth « Overview of transverse effects in nonlinear-optical systems », *J. Opt. Soc. Am. B* **7**, 951 (1990)
- [Ban01] T. Ban, H. Skenderović, S. Ter-Avetisyan, G. Pichler « Absorption measurements in dense cesium vapor using a UV-violet light-emitting diode », *Applied Phys. B* **72**, 327 (2001)
- [Cat96] F.S. Cataliotti, C. Fort, F.S. Pavone et M. Inguscio, « Doppler-free excitation of the weak $6S_{1/2} \rightarrow 8P_{1/2}$ cesium transition at 389 nm », *Z. Phys. D* **38**, 31 (1996)
- [Che06] H. Chen, Thèse de Doctorat, Texas A & M University (2006)
- [Gri70] D. Grishchowsky « Self-Focusing of light by potassium vapor », *Phys. Rev. Lett* **24**, 866 (1970)
- [Gry88] G. Grynberg, E. Le Bihan, P. Verkerk, P. Simoneau, J.R.R. Leite, D. Bloch, S. Le Boiteux et M. Ducloy « Observation of instabilities due to mirrorless four-wave mixing oscillation in sodium », *Opt. Com.* **67**, 363 (1988)
- [Liu00] Y.-W. Liu et P.E.G. Baird, « Measurement of the caesium $6S_{1/2} \rightarrow 8P_{1/2}$ transition frequency », *Appl. Phys B* **71**, 567 (2000)
- [Loo34] F.W. Loomis et P. Kusch « The band spectrum of Caesium », *Phys. Rev.* **46**, 292 (1934)
- [Moh29] F.L. Mohler « Recombination and Photo-ionization », *Rev. Mod. Phys.* **1**, 216 (1929)
- [Pen90] J. Pender et L. Hesselink « Degenerate conical emissions in atomic-sodium vapor », *J. Opt. Soc. Am. B* **7**, 1361 (1990)
- [Pic06] M. Pichler, J. Qi, W.C. Stwalley, R. Beuc et G. Pichler « Observation of bleu satellite bands and photoassociation at ultracold temperatures », *Phys. Rev. A* **73**, 021403 (2006)

[Wei99] J. Weiner, V.S. Bagnato, S. Zilio et P.S. Julienne « Experiments and theory in cold and ultracold collisions », Rev. Mod. Phys. **71**, 1 (1999)

Chapitre 6

Oscillations de Bloch pour des atomes adsorbés sur une surface diélectrique

6.1 Introduction

Comme nous l'avons vu au chapitre I, un atome près de la surface ($z \leq \lambda/2\pi$) subit le potentiel longue portée de l'interaction de van der Waals. Si l'atome s'approche bien plus de la surface (quelques dixièmes de nanomètres), il subit une interaction répulsive due à la superposition des nuages électroniques de l'atome et de la surface. La combinaison de ces deux potentiels conduit à un puits de potentiel d'interaction [Hoi80]

Il y a quelques années, nous avons étudié une technique permettant de transférer des atomes d'un nuage froid vers un niveau quantique vibrationnel du puits du potentiel [Pas06]. Une fois dans un niveau quantique donné, l'atome se trouve piégé près de la surface et libre de se déplacer dans le plan parallèle à la surface. K. Hakuta et collaborateurs ont observé une modification du spectre atomique au voisinage d'une fibre optique à cause des transitions entre niveaux vibrationnels des puits de potentiel correspondants aux états électroniques fondamental, et excité, de l'atome [Nay07].

Le potentiel répulsif de courte portée est extrêmement sensible à la structure de la surface. Dans le cas d'une surface cristalline, les atomes sont régulièrement distribués sur un réseau périodique. Il en résulte que le potentiel répulsif de courte portée est périodique dans le plan de la surface. L'atome piégé subit les phénomènes typiques d'une particule dans un

potentiel périodique.

L'étude de particules dans des potentiels périodiques a commencé dans les années 1930 dans l'étude du transport quantique d'électrons dans des réseaux périodiques. Il a été montré que les fonctions d'onde des électrons obéissaient au théorème de Bloch et que les énergies permises des électrons se situaient dans des bandes séparées par des intervalles interdits. L'étude des électrons dans un potentiel périodique et soumis à une force extérieure stationnaire (via un champ électrique) a montré que cette situation donnait lieu à des phénomènes très intéressants comme l'effet tunnel entre bandes d'énergies, appelé effet tunnel Zener [Zen34].

Un autre phénomène intéressant est que cet électron a une trajectoire oscillante, malgré le fait d'être soumis à une force stationnaire. Ce comportement est dû à des effets d'interférence de réflexions de Bragg dans le potentiel périodique [Har04]. Ce phénomène ne fut jamais observé dans le système proposé originalement (électrons dans un réseau cristallin) à cause de la trop fréquente diffusion par des défauts du cristal. Dans les 20 dernières années, ce phénomène a été observé dans plusieurs systèmes différents : des électrons dans des super-réseaux (par exemple, [Was93]) ; des atomes froids dans des réseaux optiques (par exemple, [Ben96]) et des photons dans un réseau d'indice de réfraction (par exemple, [Sap03]).

Nous analysons dans ce chapitre un nouveau système pour l'observation d'oscillations de Bloch : un atome adsorbé dans le puit du potentiel atome-surface.

6.2 Potentiel d'interaction atome-surface pour des petites distances

Nous allons dans cette section décrire le potentiel d'interaction atome-surface pour des petites distances ($< \lambda/2\pi$). Nous allons traiter le potentiel d'interaction comme la superposition de deux contributions : i) Le potentiel longue portée attractif ; ii) Un potentiel de courte portée répulsif.

6.2.1 Potentiel attractif de longue portée

Un atome près d'une surface (à une distance z plus petite que la longueur d'onde réduite du champ émis par le dipôle atomique) subit l'interaction de van der Waals du type $-C_3/z^3$. Il a été prouvé expérimentalement que cette forme fonctionnelle est valable jusqu'à des distances aussi petites que 20 nm [Fic07]. Pour des distances encore plus petites le potentiel $-C_3/z^3$ est divergeant et le calcul utilisant un dipôle image n'est plus valable quand la distance se rapproche du rayon atomique. Pour éviter la divergence, certains auteurs proposent d'écrire l'interaction de vdW sous la forme [Var96] :

$$V_{vdW} = -\frac{C_3 (1 - e^{-z/\xi})^3}{z^3} \quad (6.1)$$

où le terme $(1 - e^{-z/\xi})^3$ est introduit pour éviter la divergence à $z \rightarrow 0$.

6.2.2 Potentiel répulsif de courte portée

A des distances atome-surface plus courtes, les atomes subissent un potentiel répulsif dû à la superposition des nuages électroniques atomiques et de la surface. Ce potentiel répulsif peut être décrit par une exponentielle décroissante [Goo86] :

$$V_{rep} = A \exp [a(Q(\vec{R}) - z)] \quad (6.2)$$

où $\vec{R} = (x, y)$ est la projection du vecteur position dans le plan parallèle à la surface et $Q(\vec{R})$ tient compte de la corrugation de la surface. Ce terme de corrugation prend en compte à la fois la variation des positions en z des différents constituants de la surface et les variations de l'interaction des différents constituants avec l'atome de la vapeur. Pour une surface diélectrique cristalline les électrons sont localisés autour des atomes de celle-ci. Ces atomes sont alors tous localisés de façon périodique sur le réseau cristallin. Le potentiel répulsif est donc périodique sur le plan parallèle à la surface (c'est-à-dire $Q(\vec{R})$ est périodique). C'est cette périodicité que nous allons exploiter dans les études faites dans ce chapitre.

6.2.3 Diffraction atomique sur des surfaces : informations expérimentales sur le potentiel

Une technique expérimentale largement utilisée pour obtenir des informations sur le potentiel d'interaction pour des petites distances atome-surface est la diffraction d'atomes neutres incidents sur la surface. Cette technique est particulièrement intéressante car la diffraction étant due à la périodicité du potentiel, il est possible d'obtenir des informations sur la partie répulsive de l'interaction [Hoi80]. De plus, une modification de la diffraction due à un couplage avec les états vibrationnels du puits de potentiel d'interaction, pour certaines conditions d'incidence (angle et vitesse), permet de connaître l'énergie de ces états. A partir des informations obtenues il est possible de remonter à un modèle du potentiel d'interaction.

Afin d'analyser la faisabilité de ce système pour l'observation d'oscillations de Bloch, nous allons étudier le cas spécifique d'un atome d'He à l'état fondamental interagissant avec une surface de LiF.

6.2.4 Potentiel d'interaction entre un atome d'Hélium et une surface de LiF

La principale raison de ce choix est la grande quantité de données sur l'interaction disponible dans la littérature, ce système étant le plus étudié en diffraction atomique.

Nous utiliserons ici le potentiel du type Morse corrugué proposé par V. Celli et collaborateurs [Cel85] pour reproduire théoriquement des résultats expérimentaux de diffraction d'un atome d'He dans l'état électronique fondamental, diffracté sur une surface de LiF. Le potentiel utilisé est :

$$V(\vec{r}) = D \left[e^{-2\alpha(z-z_0+Q(\vec{R}))} - 2e^{-\alpha_1(z-z_0)} \right], \quad (6.3)$$

où $D = 8.03$ meV est la profondeur du puits de potentiel, $\alpha = 1.35 \text{ \AA}^{-1}$, $\alpha_1 = 1.0 \text{ \AA}^{-1}$, $z_0 = 1.0 \text{ \AA}$ et $Q(\vec{R}) = 2h \left(\cos\left(\frac{2\pi}{d}x\right) + \cos\left(\frac{2\pi}{d}y\right) \right)$ est la fonction de corrugation avec $h = 0.102 \text{ \AA}$ et où $d = 2.84 \text{ \AA}$ est la constante du réseau. Ce potentiel a été choisi par sa simplicité mathématique et pour donner des très bons résultats comparés aux données expérimentales.

Étant donnée la périodicité sur le plan (x,y) du potentiel 6.3, on peut écrire celui-ci sous la forme :

$$V(\vec{r}) = V_0(z) + \sum_{\vec{G} \neq 0} V_{\vec{G}}(z) e^{i\vec{G} \cdot \vec{R}} \quad (6.4)$$

où \vec{G} représente les différents vecteurs réciproques du réseau, $\vec{G} = \left(m \frac{2\pi}{d}, n \frac{2\pi}{d}\right)$, m et n entiers. Le potentiel $V_0(z)$, que nous appellerons potentiel d'adsorption, est la moyenne latérale du potentiel d'interaction. Pour le potentiel 6.3

$$V_0(z) = \sigma^{-1} \int \int_{\sigma} V(\vec{r}) d^2 \vec{R} = D \left[I_0^2(2h\alpha) e^{-2\alpha(z-z_0)} - 2e^{-\alpha_1(z-z_0)} \right] \quad (6.5)$$

où $I_j(x)$ est la fonction modifiée de Bessel d'ordre j , et σ est la surface d'une cellule unitaire.

Ce potentiel en forme de puits, donne lieu à l'existence d'états liés, connus comme niveaux d'adsorption. Un atome piégé dans un niveau d'adsorption est piégé dans la direction perpendiculaire à la surface.

Le potentiel d'adsorption $V_0(z)$ de l'équation 6.5 est montré sur la figure 6.1 ainsi que les états liés de ce potentiel. Ce potentiel a trois états liés ayant pour énergie $E_0 = -5.98$ meV,

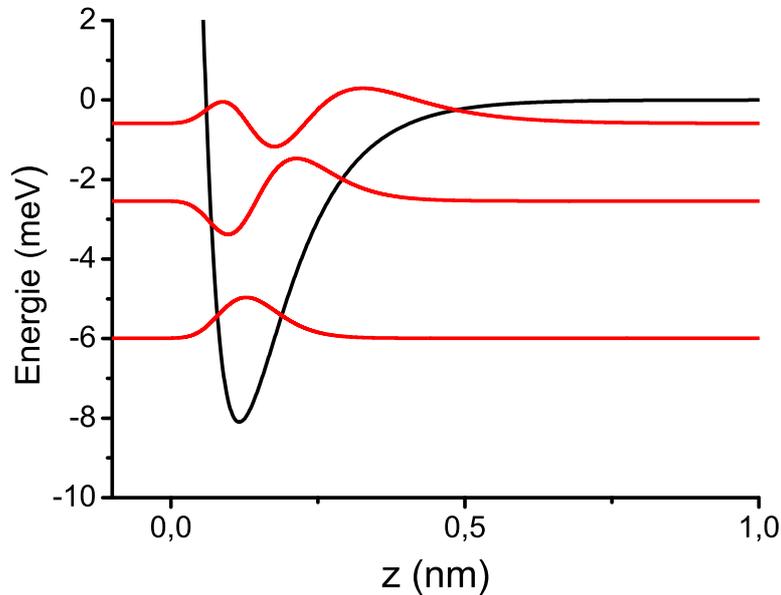


Figure 6.1 – Potentiel d'adsorption $V_0(z)$ pour le potentiel type Morse corrugué entre un atome d'hélium et une surface de LiF et les niveaux vibrationnels solutions de l'équation de Schrödinger

$E_1 = -2.54$ meV et $E_2 = -0.59$ meV. La partie attractive de ce potentiel tend vers zéro (pour $z \rightarrow \infty$) plus rapidement que le potentiel vdW. Comme conséquence de cela, nous n'avons que trois états liés au lieu des quatre états d'adsorption trouvés expérimentalement [Der78, Ril07]. Cependant, ce potentiel représente bien la partie la plus profonde du potentiel qui nous intéresse ici [Lim00].

Nous dénoterons par $\phi_n(z)$ les solutions de l'équation de Schrödinger indépendante du temps pour le potentiel $V_0(z)$:

$$\epsilon_n \phi_n(z) = \left[-\frac{\hbar^2}{2m} \frac{d^2}{dz^2} + V_0(z) \right] \phi_n(z) \quad (6.6)$$

avec m la masse de l'atome d'hélium. Les solutions avec des énergies ϵ_n négatives sont les états d'adsorption mentionnés plus haut et montrés sur la figure 6.1. Des solutions avec énergies positives sont possibles et correspondent aux atomes libres arrivant ou partant de la surface.

Nous avons étudié une technique radiative pour transférer des atomes froids arrivant sur la surface vers un état d'adsorption du puits de potentiel. Un bref résumé de la technique est introduit dans la section suivante.

6.3 Adsorption assistée par une technique type photoassociation

Nous avons étudié une technique radiative permettant de transférer des atomes froids arrivant à l'état fondamental sur une surface vers des états liés du potentiel électronique fondamental. Cette technique utilise une étape intermédiaire, type photoassociation, où les atomes sont transférés vers un état lié du potentiel d'interaction pour l'atome dans l'état électronique excité [Pas06]. La technique est illustrée sur la figure 6.2.

Un laser est résonnant entre un état libre $\phi_k(z)$ (où k dénote la projection du vecteur d'onde de l'atome, qui est supposé à une températures typiques des pièges magnéto-optiques (MOT), dans la direction perpendiculaire à la surface) du potentiel de l'état électronique fondamental, et un état lié $\phi'_n(z)$ du potentiel pour l'état électronique excité. L'efficacité des transferts vers les différents niveaux vibrationnels excités dépend des facteurs de Franck-Condon entre $\phi_k(z)$ et $\phi'_n(z)$. Des calculs pour le système atome de Lithium et surface de

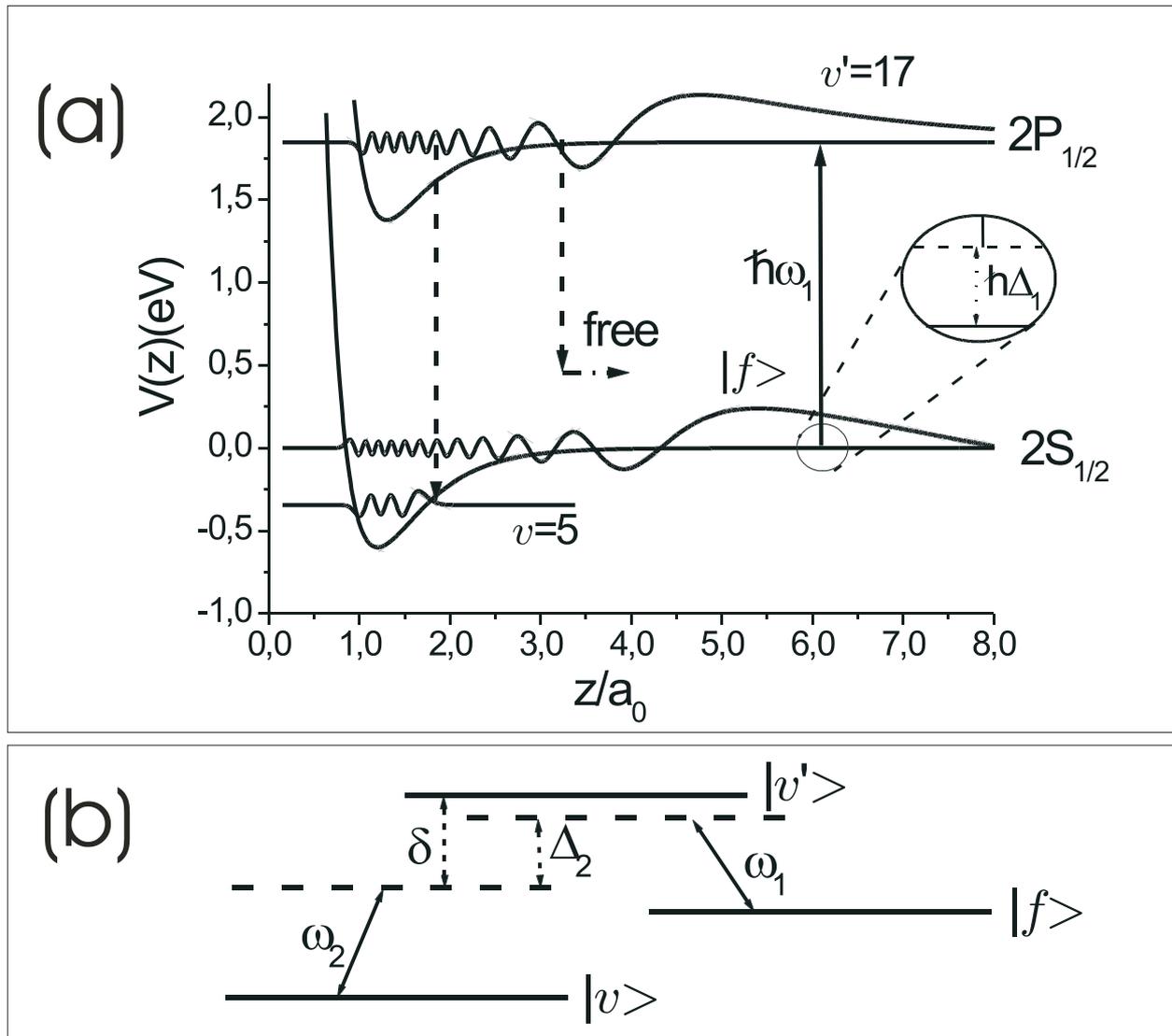


Figure 6.2 – Schéma de la technique radiative pour transférer des atomes libres vers des niveaux d'adsorption du puits de potentiel de l'état électronique fondamental. Les puits de potentiels montrés sont obtenus à partir d'une estimation de l'interaction entre un atome Li et une surface de LiF [Pas06]. Le laser ω_1 transfère les atomes vers un état lié du potentiel excité. Ces atomes peuvent être transférés vers les niveaux d'adsorption du potentiel fondamental par émission spontanée ou par l'utilisation d'un deuxième laser (émission stimulée)(b).

LiF indiquent que le taux de transfert vers les états plus proches de la dissociation (plus favorables en termes de facteurs de Franck-Condon) pour des intensités laser de $100\text{W}/\text{cm}^2$ sont de l'ordre de 10^7 atomes/s [Pas06].

Deux mécanismes peuvent être considérés pour transférer, ensuite, les atomes du niveau $\phi'_n(z)$ vers un niveau vibrationnel du potentiel fondamental $\phi_n(z)$: i) l'utilisation d'un

second laser pour faire la transition $\phi'_n(z) \rightarrow \phi_n(z)$; ii) le transfert vers des niveaux vibrationnels $\phi_n(z)$ par émission spontanée.

Le mécanisme i) permet de peupler sélectivement les niveaux vibrationnels les plus profonds du puits de potentiel fondamental. En effet, nos calculs montrent que nous arrivons à transférer 10^4 atomes vers le niveau le plus profond du potentiel ($\phi_0(z)$) en une centaine de microsecondes [Pas06].

ii) L'émission spontanée est une méthode assez efficace pour transférer les atomes vers les niveaux vibrationnels fondamentaux, ces derniers étant favorisés par rapport à l'émission spontanée vers un état fondamental libre. Cependant, les facteurs de Franck-Condon font qu'à peine les niveaux proches de l'énergie de dissociation sont peuplés. Nos calculs montrent qu'environ 10^4 atomes soient transférés par émission spontanée vers les niveaux vibrationnels fondamentaux les plus énergétiques. Cette grande efficacité du transfert par émission spontanée fait que dans l'utilisation du mécanisme i), un nombre non négligeable d'atomes est aussi transféré vers les niveaux vibrationnels plus énergétiques.

Les atomes dans les états vibrationnels du puits de potentiel peuvent interagir avec les phonons de volume perpendiculaires à la surface, induisant des transferts entre niveaux vibrationnels. Cette interaction a été prise en compte comme une vibration de la position z_0 de la surface due aux phonons acoustiques perpendiculaires à celle-ci [Gor80]. En considérant des surface à de basses températures (une dizaine de Kelvin), les interactions avec les phonons ont tendance à transférer les atomes vers les niveaux les plus profonds, de sorte qu'après un certain temps ($\approx 100 \mu\text{s}$) les atomes se retrouvent à l'état le plus profond ($\phi_0(z)$), celui-ci étant stable. La raison de ce transfert est que l'écart entre les niveaux vibrationnels est supérieur à l'énergie des phonons existant à ces températures, réduisant drastiquement la probabilité de transferts vers des niveaux plus élevés [Pas06],[leK07].

Cette technique radiative ne peut bien sûr pas être utilisée pour l'atome d'hélium fondamental, mais peut être éventuellement utilisée pour un atome d'hélium métastable. Nous considérerons dans ce chapitre, comme point de départ pour nos calculs, que nous avons transféré une bonne quantité d'atomes dans l'état vibrationnel le plus profond du puits de potentiel fondamental. Nous considérons que les calculs et résultats trouvés dans ce chapitre

pour le système He-LiF peuvent servir à envisager l'étude d'autres systèmes pour lesquels la technique radiative peut être utilisée.

L'atome piégé dans un niveau vibrationnel est soumis au potentiel périodique de surface de courte portée.

6.4 Fonctions de Bloch et bandes d'énergie

Revenons à notre potentiel d'interaction atome-surface périodique donné par l'équation 6.3, que nous pouvons écrire sous la forme 6.4. Soit le potentiel $\bar{V}_n(\vec{R})$ pris comme la moyenne de la partie périodique de $V(\vec{z})$ sur le niveau vibrationnel $\phi_n(z)$:

$$\bar{V}_n(\vec{R}) = \int \phi_n^*(z) \left(\sum_{\vec{G} \neq 0} V_{\vec{G}} e^{i\vec{R} \cdot \vec{G}} \right) \phi_n(z) dz \quad (6.7)$$

avec $V_{\vec{G}}$ donné par :

$$V_{\vec{G}} = \sigma^{-1} \int \int_{\sigma} V(\vec{r}) e^{-\vec{G} \cdot \vec{R}} d^2 \vec{R} \quad (6.8)$$

Pour le potentiel de Morse corrugué de l'équation 6.3, les composantes $V_{\vec{G}}$ sont données par [Goo86] :

$$V_{\vec{G}} = I_m(2h\alpha) I_n(2h\alpha) D \exp(-2\alpha(z - z_0)) \quad (6.9)$$

où on a pris $\vec{G} = \left(m \frac{2\pi}{d}, n \frac{2\pi}{d}\right)$. Soient les fonctions $\chi_{n,l}$, solutions de l'équation de Schrödinger avec le potentiel bidimensionnel périodique $\bar{V}_n(\vec{R})$:

$$E_{n,l} \chi_{n,l} = -\frac{\hbar^2}{2m} \left(\frac{d^2}{dx^2} + \frac{d^2}{dy^2} \right) \chi_{n,l} + \bar{V}_n(\vec{R}) \chi_{n,l} \quad (6.10)$$

$\chi_{n,l}$ étant solution de l'équation de Schrödinger pour un potentiel périodique. Les énergies $E_{n,l}$ sont distribuées en bandes d'énergie.

6.4.1 Fonctions de Bloch

Nous allons dans cette section traiter le problème d'un atome soumis au potentiel $\bar{V}_n(\vec{R})$, avec pour but de décrire les fonctions $\chi_{n,l}(\vec{R})$ et de calculer les bandes d'énergie $E_{n,l}$. Le problème d'une particule dans un potentiel périodique a déjà été largement étudié. Nous suivrons dans cette section ce qui est décrit en [Ash76].

Nous pouvons faire une expansion du potentiel périodique $\bar{V}_n(\vec{R})$ de la forme

$$\bar{V}_n(\vec{R}) = \sum_{\vec{G}} \bar{V}_{n,\vec{G}} e^{i\vec{G}\cdot\vec{R}} \quad (6.11)$$

avec $\bar{V}_{n,\vec{G}} = \int \phi_n^*(z) V_{\vec{G}}(z) \phi_n(z) dz$ obtenu à partir de l'équation 6.7.

En considérant que le cristal a une dimension L dans les directions x et y et que la fonction $\chi_{n,l}(\vec{R})$ doit être périodique avec périodicité L ($\chi_{n,l}(x, y) = \chi_{n,l}(x + L, y + L)$), on peut faire une expansion de $\chi_{n,l}(x, y)$ dans la base de vecteurs $\vec{K} = (n\frac{2\pi}{L}, m\frac{2\pi}{L})$:

$$\chi_{n,l}(\vec{R}) = \sum_{\vec{K}} C_{\vec{K}} e^{i\vec{K}\cdot\vec{R}} \quad (6.12)$$

En remplaçant l'expression pour $\bar{V}_{n,\vec{G}}$ et l'équation 6.12 dans l'équation de Schrödinger 6.10, on a :

$$\left(E_{n,l} + \frac{\hbar^2}{2m} \left(\frac{d^2}{dx^2} + \frac{d^2}{dy^2} \right) - \sum_{\vec{G}} \bar{V}_{n,\vec{G}} e^{i\vec{G}\cdot\vec{R}} \right) \sum_{\vec{K}} C_{\vec{K}} e^{i\vec{K}\cdot\vec{R}} = 0 \quad (6.13)$$

d'où on peut obtenir :

$$\sum_{\vec{K}} \left[E_{n,l} - \frac{\hbar^2 \vec{K}^2}{2m} \left(\frac{d^2}{dx^2} + \frac{d^2}{dy^2} \right) \right] C_{\vec{K}} e^{i\vec{K}\cdot\vec{R}} - \sum_{\vec{K}'} \sum_{\vec{G}} \bar{V}_{n,\vec{G}} C_{\vec{K}'} e^{i(\vec{K}'+\vec{G})\cdot\vec{R}} = 0 \quad (6.14)$$

En utilisant le fait que des termes en $e^{i\alpha x}$ et $e^{i\alpha' x}$ sont linéairement indépendants pour $\alpha \neq \alpha'$, l'équation 6.14 n'a de solutions non nulles que si on impose $\vec{K}' = \vec{K} - \vec{G}$. En faisant le changement $\vec{K} \rightarrow \vec{K} + \vec{G}'$ de façon à ramener les vecteurs \vec{K} à la première zone de Brillouin on a :

$$\left[E_{n,l} - \frac{\hbar^2 (\vec{K} + \vec{G}')^2}{2m} \right] C_{\vec{K}+\vec{G}'} - \sum_{\vec{G}} \bar{V}_{n,\vec{G}} C_{\vec{K}-\vec{G}+\vec{G}'} = 0 \quad (6.15)$$

Nous obtenons pour chaque valeur de \vec{K} dans la première zone de Brillouin, un système d'équations pour les variables $C_{n,\vec{K}+\vec{G}'+\vec{G}}$ avec une équation pour chaque valeur de \vec{G}' . Nous introduirons un indice \vec{K} pour les fonctions bidimensionnelles $\chi_{n,l}^{\vec{K}}$ et pour les auto-énergies, $E_{n,l}^{\vec{K}}$. Les vecteurs \vec{K} sont usuellement dénommés quasi-moment (ou moment cristallin) par analogie avec le moment linéaire, mais il ne s'agit pas du moment de l'atome.

Le système d'équations 6.15 n'a de solutions non triviales que si le déterminant de la matrice formée par les coefficients des variables $C_{n,\vec{K}+\vec{G}'+\vec{G}}$ est nul. Que le déterminant soit nul impose une équation pour les auto-énergies $E_{n,l}^{\vec{K}}$. En principe la dimension de la matrice

doit être infinie (nombre infini de valeurs différentes de \vec{G}). En pratique nous limitons la matrice à une certaine dimensionnalité N, faisant que N solutions différentes pour l'auto énergie $E_{n,l}^{\vec{K}}$ existent, qui consistent en N bandes d'énergie avec l'indice l indiquant les différentes bandes pour un niveau d'adsorption n donné.

Nous avons utilisé une matrice de dimension N=25, correspondant à prendre des termes avec $\vec{G}' = (n\frac{2\pi}{d}, m\frac{2\pi}{d})$ avec $m, n = \pm 2, \pm 1, 0$. Nous avons vérifié numériquement que la limitation à cette dimension était suffisante pour obtenir une bonne convergence. Les éléments de l'expansion du potentiel $\bar{V}_{n,\vec{G}}$ sont obtenus en utilisant l'équation 6.9. Nous obtenons :

$$\bar{V}_{n,\vec{G}} = I_m(2h\alpha)I_n(2h\alpha)D \underbrace{\int \phi_n^*(z) \exp(-2\alpha(z - z_0)) \phi_n(z) dz}_I \quad (6.16)$$

Nous obtenons I=0.55 pour n=0 (niveau vibrationnel le plus profond), I=0.35 pour n=1 et I=0.16 pour n=2. Les valeurs des composantes $\bar{V}_{0,\vec{G}}$ sont montrées sur la figure 6.3.

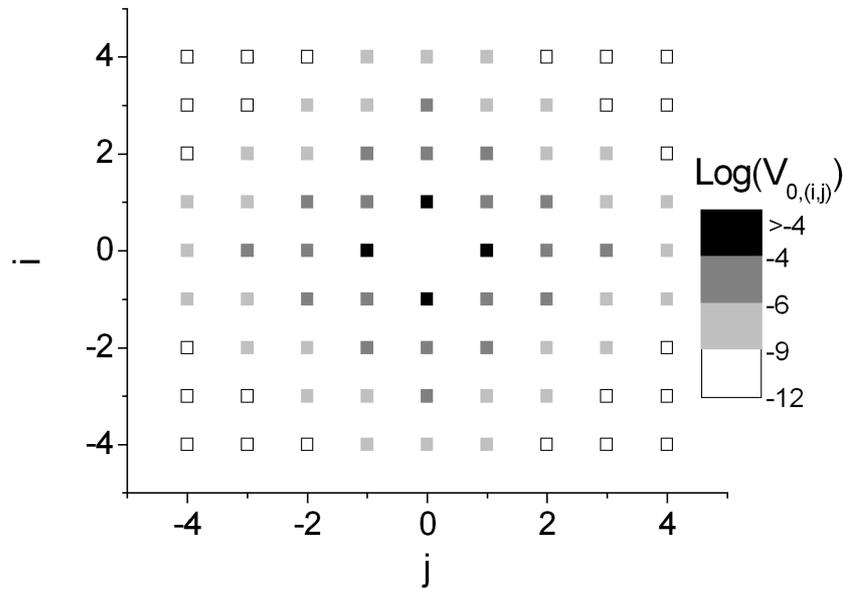


Figure 6.3 – Valeurs de $\text{Log}(\bar{V}_{0,\vec{G}})$, avec $\vec{G} = (i\frac{2\pi}{d}, j\frac{2\pi}{d})$, calculées à partir de l'équation 6.16.

Les trois premières bandes d'énergie pour le niveau vibrationnel n=0 sont montrées sur la figure 6.4. Nous allons définir la largeur de la bande $\Delta E_{n,l}$ comme étant la différence entre la plus grande et la plus petite énergie de la bande. La largeur de la première bande $E_{0,0}$ est

$\Delta E_{0,0} = 0.5$ meV. La séparation d'énergie entre la bande $E_{0,0}$ et la bande $E_{0,1}$ (c'est-à-dire, entre les deux premières bandes pour le niveau d'adsorption le plus profond) est de $\delta E = 1$ meV. Pour les autres niveaux vibrationnels on a un ensemble similaire de bandes d'énergie (que nous ne montrerons pas ici) séparées par les énergies des niveaux d'adsorption ϵ_n . La différence d'énergie entre les bandes $E_{0,0}$ et $E_{1,0}$ est de 3 meV, qui correspond à la différence d'énergie $\epsilon_1 - \epsilon_0$.

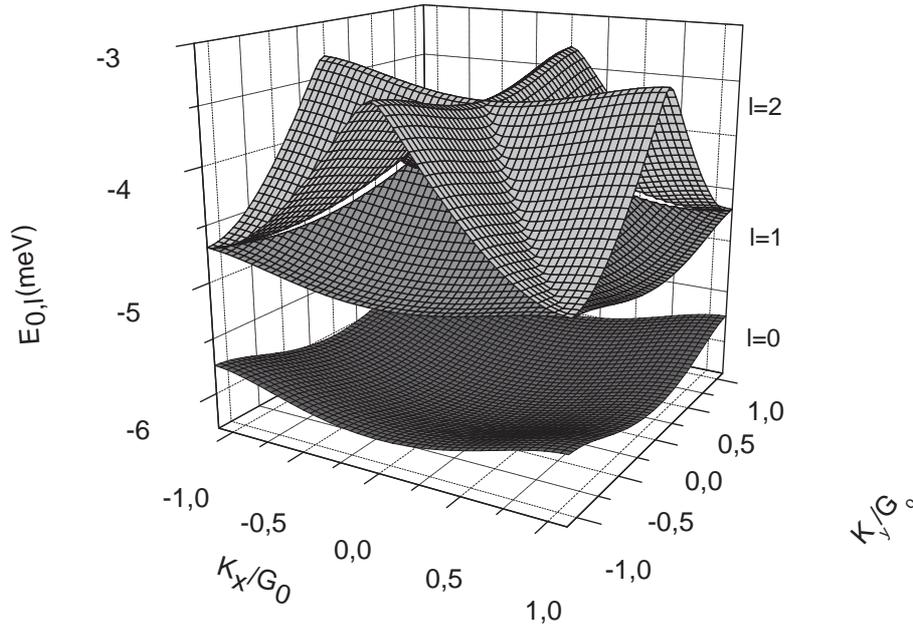


Figure 6.4 – Trois premières bandes d'énergie pour le potentiel \bar{V}_0 . Nous avons sommé pour chaque bande l'énergie ϵ_0 du niveau vibrationnel $\phi_0(z)$. Dans la figure $G_0 = \frac{2\pi}{d}$.

Les fonctions $\chi_{n,l}^{\vec{K}}$ peuvent être calculées en remplaçant dans le système d'équation 6.15 les bandes d'énergie calculées. Ces fonctions obéissent au théorème de Bloch [Ash76], c'est-à-dire :

$$\chi_{n,l}^{\vec{K}}(\vec{R}) = u_{n,l}^{\vec{K}}(\vec{R}) \exp(i\vec{K} \cdot \vec{R}) \quad (6.17)$$

avec $u_{n,l}^{\vec{K}}(x, y) = u_{n,l}^{\vec{K}}(x + d, y + d)$ une fonction avec la même périodicité que le potentiel $\bar{V}_n(\vec{R})$. Les fonctions $\chi_{n,l}^{\vec{K}}$ sont non localisées.

A partir des fonctions d'adsorption $\phi_n(z)$ et des fonctions $\chi_{n,l}^{\vec{K}}(\vec{R})$ solutions de l'équation 6.10, nous pouvons construire les fonctions composées : $\varphi_{n,l}^{\vec{K}}(\vec{r}) = \chi_{n,l}^{\vec{K}}(\vec{R})\phi_n(z)$. Ces fonctions

sont localisées dans la direction perpendiculaire à la surface et délocalisée dans le plan de la surface. Une telle fonction n'est pas solution de l'équation de Schrödinger avec le potentiel atome-surface $V(\vec{r})$, à cause des couplages entre les différents niveaux vibrationnels induits par la partie périodique du potentiel : $\int \phi_m^*(z) \left(\sum_{\vec{G} \neq 0} V_{\vec{G}} e^{i\vec{R} \cdot \vec{G}} \right) \phi_n(z) dz \neq 0$.

Nous pouvons donc écrire le Hamiltonien $-\frac{\hbar^2}{2m} \nabla^2 + V(\vec{r})$ comme étant la somme d'un Hamiltonien n'ayant que des éléments diagonaux dans la base $\varphi_{n,l}^{\vec{K}}(\vec{r})$ (H_0) et un potentiel contenant les éléments non diagonaux (V'). Soit la base $\phi_n(z) \chi_{n,l}^{\vec{K}}(\vec{R})$ écrite sous la forme $|n, l\rangle$ on a :

$$H_0 = -\frac{\hbar^2}{2m} \nabla^2 + V_0(z) + \sum_n \bar{V}_n(\vec{R}) |n, l\rangle \langle n, l| \text{ et} \quad (6.18)$$

$$\langle n, l | H_0 | n, l \rangle = \epsilon_n + E_{n,l}^{\vec{K}} \quad (6.19)$$

Le potentiel non diagonal V' peut s'écrire :

$$V' = \sum_{(n,l), (n',l') \neq (n,l)} \langle n', l' | \sum_{\vec{G} \neq 0} V_{\vec{G}}(z) e^{i\vec{G} \cdot \vec{R}} | n, l \rangle | n', l' \rangle \langle n, l | \quad (6.20)$$

6.4.2 Solution de l'équation de Schrödinger en présence d'une force

Si nous ajoutons au potentiel d'interaction atome surface une force (\vec{F}) parallèle à l'interface et statique, nous obtenons comme nouvelle équation de Schrödinger, l'équation :

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \varphi_{n,l}(\vec{r}, t) = \left(-\frac{\hbar^2}{2m} \nabla^2 + V_0(z) + \bar{V}_n(\vec{R}) - \vec{F} \cdot \vec{R} \right) \varphi_{n,l}(\vec{r}, t) \quad (6.21)$$

où nous avons écrit la fonction $\varphi_{n,l}^{\vec{K}}(\vec{r}, t) = \phi_n(z, t) \chi_{n,l}^{\vec{K}}(\vec{R}, t)$, et où nous avons introduit une dépendance temporelle pour les fonctions d'adsorption et les fonctions de Bloch. Dans notre système la force peut être obtenue en accélérant la surface ce qui est équivalent à réaliser une force inertielle sur les atomes. Comme la force introduite est dans le plan de la surface il n'y a pas de changement pour l'équation de Schrödinger perpendiculaire à la surface. L'évolution des fonctions d'adsorption est donnée par :

$$\phi_n(z, t) = \phi_n(z) e^{-i\frac{\epsilon_n}{\hbar} t} \quad (6.22)$$

Pour la dépendance temporelle de la fonction de Bloch nous allons dans un premier temps écrire les fonctions $\chi_{n,l}^{\vec{K}}(\vec{R}, t)$ obéissant explicitement au théorème de Bloch :

$$\chi_{n,l}^{\vec{K}}(\vec{R}, t) = u_{n,l}^{\vec{K}}(\vec{R}) \exp(i\vec{K} \cdot \vec{R}) \exp(-iE_{n,l}^{\vec{K}} t / \hbar) \quad (6.23)$$

Nous allons supposer que par l'introduction du terme $-\vec{F} \cdot \vec{R}$, ces fonctions sont modifiées de la façon suivante [Hou40] :

$$\chi_{n,l}^{\vec{K}_0}(\vec{R}, t) = u_{n,l}^{\vec{K}_0 + \vec{F}t/\hbar}(\vec{R}) \exp\left(i\left(\vec{K}_0 + \vec{F}t/\hbar\right) \cdot \vec{R}\right) \exp\left(-i \int^t d\tau E_{n,l}^{\vec{K}_0 + \vec{F}\tau/\hbar} t/\hbar\right) \quad (6.24)$$

Dans l'évolution de $\chi_{n,l}^{\vec{K}_0}(\vec{R}, t)$ de l'équation 6.24, il est implicite que la distribution initiale des vecteurs \vec{K} est étroite par rapport à la largeur de la première zone de Brillouin (c'est le cas pour des atomes froids chargés par la technique radiative décrite dans la section 6.3). C'est-à-dire que la fonction d'onde atomique s'étale sur plusieurs périodes du potentiel sur le plan de la surface. Ceci est une condition importante pour l'observation des oscillations de Bloch [Har04]. L'effet de la force est donc de faire évoluer le quasi-moment selon $\vec{K}(t) = \vec{K}_0 + \vec{F}/\hbar t$, c'est-à-dire que le système évolue en se déplaçant sur l'espace réciproque. Cependant, les fonctions montrées sur l'équation 6.24 ne sont pas solutions de l'équation 6.21. Il est toutefois possible de montrer que cette équation est satisfaite à moins d'un terme donné par :

$$i \exp\left(-\frac{i}{\hbar} \epsilon_n t\right) \phi_n(z) \vec{F} \cdot \nabla_K u_{n,l}^{\vec{K} + \vec{F}t/\hbar}(\vec{R}) \exp(i\vec{K} \cdot \vec{R}) \exp(-iE_{n,l}^{\vec{K}} t/\hbar), \quad (6.25)$$

qui peut donner lieu à des transitions entre bandes d'énergie. Cependant, si la force est suffisamment faible le terme 6.25 est négligeable et on peut écrire la solution de l'équation de Schrödinger 6.21 comme étant la fonction 6.24. Le critère pour que la force soit considérée comme petite est [Cri02] :

$$|\vec{F}| \ll \frac{md}{4\hbar^2} [\delta E]^2 \quad (6.26)$$

Nous considérerons que nous sommes toujours dans une situation où la relation 6.26 est satisfaite, c'est-à-dire nous négligerons toute transition entre bandes induite par la force externe.

Nous avons donc $\vec{K}(t)$ qui évolue sur la zone de Brillouin en explorant la bande d'énergie. Si la force suit la condition 6.26, en arrivant sur la limite de la zone, l'atome est réfléchi, avec la valeur de \vec{K} passant à la limite opposée de celle ci. Nous avons donc une évolution périodique des quasi-moments.

Un atome sur une bande d'énergie avec un quasimoment \vec{K} a une vitesse moyenne donnée par [Ash76] :

$$v_{x,y}(\vec{K}) = \hbar^{-1} \frac{\partial E_{n,l}^{\vec{K}}}{\partial K_{x,y}} \quad (6.27)$$

Comme la bande d'énergie est périodique dans l'espace réciproque, la vitesse l'est aussi. Le quasi-moment parcourant la zone de Brillouin suivant l'équation $\vec{K}(t) = \vec{K}_0 + \frac{F}{\hbar}t$ fait que la vitesse de l'atome est périodique au cours du temps. On observe donc une trajectoire périodique de l'atome. La période est donnée par $T_B = \hbar/Fd$, c'est-à-dire le temps que met le quasi-moment à parcourir la première zone de Brillouin.

6.4.3 Évolution tenant compte du couplage entre niveaux vibrationnels

Nous souhaitons observer des oscillations de Bloch. Pour cela, il est désirable que les atomes restent sur une bande d'énergie ($\epsilon_n + E_{n,l}$) pour un niveau vibrationnel donné. Or l'existence du potentiel V' (équation 6.20) fait que des transitions $|n', l'\rangle \rightarrow |n, l\rangle$ soient possibles. Nous allons essayer d'estimer l'influence des transferts entre les différents états $|n, l\rangle$. Pour cela nous allons construire une fonction :

$$\Psi_{\vec{K}}(\vec{r}, t) = \sum_{n,l} C_{n,l}^{\vec{K}} \phi_n(z) \chi_{n,l}^{\vec{K}}(\vec{R}, t) \quad (6.28)$$

donnée par la superposition des états $\varphi_{n,l}^{\vec{K}}$ aux différentes bandes d'énergie et différents états vibrationnels. L'évolution de la fonction $\chi_{n,l}^{\vec{K}}(\vec{R}, t)$ est donnée par l'équation 6.24, où nous négligeons le terme de phase car nous considérons que celle-ci est prise en compte par la valeur complexe de $C_{n,l}^{\vec{K}}$. En introduisant la fonction $\Psi_{\vec{K}}(\vec{r}, t)$ dans l'équation de Schrödinger dépendante du temps pour le potentiel $V(\vec{r}) - \vec{F} \cdot \vec{R}$ on a :

$$i\hbar \frac{\partial \Psi_{\vec{K}}}{\partial t} = (H_0 - \vec{F} \cdot \vec{R}) \Psi_{\vec{K}} + V' \Psi_{\vec{K}} \quad (6.29)$$

En considérant que le terme de l'équation 6.25 est négligeable on obtient un système d'équations pour les constantes $C_{n,l}^{\vec{K}}$ données par :

$$i\hbar \frac{d}{dt} C_{n,l}^{K_0(t)} = E_{n,l}^{K_0(t)} C_{n,l}^{K_0(t)} + \sum_{n', l' \neq n} C_{n', l'}^{K_0(t)} \int dz \phi_{n'}(z) V_{\vec{G}}(z) \phi_n(z) \int d\vec{R} \chi_{n', l'}^{K_0(t)}(\vec{R}) e^{i\vec{G} \cdot \vec{R}} \chi_{n,l}^{K_0(t)}(\vec{R}) \quad (6.30)$$

En utilisant des techniques de calcul numérique, nous pouvons calculer l'évolution des coefficients $C_{n,l}^{\vec{K}_0(t)}$ pour une condition initiale donnée $C_{n,l}^{\vec{K}_0}$.

Conditions initiales Nous admettons comme condition initiale du système que les atomes sont dans le niveau vibrationnel le plus profond du potentiel fondamental. Comme nous

avons mentionné plus haut, les atomes peuvent être mis dans ce niveau par la technique radiative décrite dans la section 6.3. Nous considérons aussi que les atomes incidents sont froids ($T \approx 150 \mu\text{K}$) de façon à ce que leurs vecteurs d'onde soient bien plus petits que les vecteurs réciproques du réseau. Comme notre technique radiative ne modifie pas le vecteur d'onde atomique (si on néglige le recul de l'atome dû à l'absorption du photon, qui est très petit par rapport aux vecteurs réciproques) on peut dire que l'on a initialement la composante parallèle à la surface du vecteur d'onde bien plus petite que la taille de la première zone de Brillouin ($\vec{K} \ll \frac{2\pi}{d}$), c'est-à-dire, que l'on peuple la première bande d'énergie [Pei97]. Ainsi, on a pour condition initiale :

$$C_{n,l}^{K_0 \vec{l}(t)} = \delta_{n0} \delta_{l0} \quad (6.31)$$

avec $K_0 = 0$ et δ_{ij} la fonction delta de Kronecker.

Nous avons effectué des calculs numériques pour évaluer l'évolution des $C_{n,l}$. A partir de $C_{n,l}$ nous pouvons obtenir l'évolution des populations atomiques dans chaque bande d'énergie données par $|C_{n,l}|^2$. On obtient rapidement une situation d'équilibre avec $|C_{0,0}| \approx 0.96$, c'est-à-dire qu'à peine quelques atomes sont transférés sur les autres niveaux vibrationnels. On peut donc considérer que la fonction atomique, évoluant selon la fonction de Houston (6.24), est une bonne approximation et nous avons négligé d'autres possibilités de transferts telles que l'interaction avec des phonons du solide que nous calculerons par la suite.

6.4.4 Interaction avec les phonons du solide

Les atomes adsorbés dans le puits de potentiel interagissent avec les phonons du solide. Ces interactions peuvent induire des transitions entre différents niveaux vibrationnels de l'atome et peuvent induire aussi des transitions vers des niveaux libres du puits de potentiel, c'est-à-dire induire une désorption. Nous allons utiliser le formalisme décrit dans [Gor80] pour calculer les différents taux de transitions et étudier leur influence sur la durée de vie d'un atome dans une bande d'énergie d'un niveau vibrationnel. L'interaction avec les phonons perpendiculaires à la surface est traitée dans [Gor80] comme une perturbation sur la position de la surface de façon à ce que le potentiel d'adsorption soit modifié $V_0(z) \rightarrow V_0(z + \delta z)$. Selon [Gor80] les transitions induites par phonons sont données pour une transition en émission :

$$R_{i,j} = \frac{2\pi}{\hbar} \sum_p \omega_p^{-1} |X(i,j)|^2 \left(n_p^{(ph)} + 1 \right) \delta(E_j - E_i - \hbar\omega_p) \quad (6.32)$$

| Niveau initial\final | 0 | 1 | 2 | Niveau initial\final | 0 | 1 | 2 |
|----------------------------------|-----------------------|-----------------------|---|----------------------------------|---|-----------------------|-----------------------|
| Taux (s ⁻¹) pour 4K | | | | Taux (s ⁻¹) pour 4K | | | |
| 1 | 7.6 × 10 ⁷ | - | - | 0 | - | 3460 | 9 |
| 2 | 1.0 × 10 ⁷ | 4.3 × 10 ⁷ | - | 1 | - | - | 34800 |
| Taux (s ⁻¹) pour 10K | | | | Taux (s ⁻¹) pour 10K | | | |
| 1 | 7.7 × 10 ⁷ | - | - | 0 | - | 1.4 × 10 ⁶ | 1.1 × 10 ⁵ |
| 2 | 6.0 × 10 ⁷ | 4.8 × 10 ⁷ | - | 1 | - | - | 1.2 × 10 ⁶ |

Table 6.1 – Tableau avec taux de transitions induits par l'interaction avec des phonons du volume.

où i, j sont des niveaux vibrationnels avec $j > i$, ω_p est la fréquence du phonon d'énergie $\hbar\omega_p$ et $n_p^{(ph)} = \left[\exp\left(\frac{\hbar\omega_p}{k_B T}\right) - 1 \right]^{-1}$ est la densité de modes de phonons à la fréquence ω_p , et :

$$X(i, j) = \left(\frac{\hbar}{2M_s N_s} \right)^{1/2} \int \phi_i^*(z) \frac{dV_0(z)}{dx} \phi_j(z) dz \quad (6.33)$$

où M_s et N_s sont la masse et le nombre des atomes du solide, respectivement. Pour une transition en absorption nous avons :

$$R_{j,i} = \frac{2\pi}{\hbar} \sum_p \omega_p^{-1} |X(i, j)|^2 n_p^{(ph)} \delta(E_j - E_i - \hbar\omega_p) \quad (6.34)$$

et pour une transition vers le continuum d'états libres (désorption) nous avons :

$$R_{c,i} = \frac{2\pi}{\hbar} \sum_p \omega_p^{-1} \sum_k |X(i, k)|^2 \left(n_p^{(ph)} + 1 \right) \delta(E_k - E_i - \hbar\omega_p) = \Gamma_i \quad (6.35)$$

où k est la projection, dans la direction perpendiculaire à la surface, du vecteur d'onde de l'atome libre.

Nous avons calculé les taux de transition entre niveaux vibrationnels pour des températures de 4K et 10K. Les résultats sont montrés sur les tableaux (6.1a) pour une transition en absorption de phonons et (6.1b) pour une transition en émission de phonons.

Les taux de désorption calculés pour un atome de He adsorbé sur une surface de LiF, en utilisant l'équation 6.35 sont $\Gamma_0 = 5.4 \text{ s}^{-1}$, $\Gamma_1 = 6175 \text{ s}^{-1}$ et $\Gamma_2 = 3.8 \times 10^5 \text{ s}^{-1}$ pour une température de surface $T = 4K$. Pour une température de 10K nous avons trouvé $\Gamma_0 = 5.2 \times 10^5 \text{ s}^{-1}$, $\Gamma_1 = 1 \times 10^6 \text{ s}^{-1}$ et $\Gamma_2 = 3.6 \times 10^6 \text{ s}^{-1}$.

Évolution des coefficients $C_{n,l}$ en tenant compte de l'interaction avec les phonons

Nous avons introduit ces taux de transitions induites par les phonons dans l'équation 6.30 pour l'évolution des coefficients $C_{n,l}(t)$. L'équation 6.30 peut se réécrire :

$$i\hbar \frac{d}{dt} C_{n,l}^{K_0(t)} = E_{n,l}^{K_0(t)} C_{n,l}^{K_0(t)} + \sum_{n',l' \neq n} C_{n',l'}^{K_0(t)} \int dz \phi_{n'}(z) V_{\vec{G}}(z) \phi_n(z) \int d\vec{R} \chi_{n',l'}^{K_0(t)}(\vec{R}) e^{i\vec{G} \cdot \vec{R}} \chi_{n,l}^{K_0(t)}(\vec{R}) + \sum_m \hbar R_{n,m} C_{m,l}^{\vec{K}_0(t)} - i\hbar \Gamma_n C_{m,l}^{\vec{K}_0(t)} \quad (6.36)$$

où nous prenons $R_{n,m}$ positif pour une absorption ($n > m$) et négatif dans le cas contraire. Pour une température de surface de 4K, on obtient toujours que $C_{0,0}(t) \gg C_{n,l}(t)$, pour $(n, l) \neq (0, 0)$, signifiant que l'atome reste dans la bande fondamentale du niveau vibrationnel le plus profond. Cependant le taux de désorption pour les différents niveaux d'adsorption fait que le temps de vie des atomes dans le niveau d'adsorption est d'environ de 0,1 ms.

Il nous faut donc, pour observer les oscillations de Bloch, avoir des périodes d'oscillations plus petites de 0,1 ms.

6.4.5 Trajectoires semi classiques

Nous pouvons calculer les trajectoires atomiques semi-classiques, dans le référentiel de la surface, en intégrant les équations suivantes [Kol03] :

$$\dot{K}_x = -\frac{F_x}{\hbar}, \quad \dot{x} = v_x(K_x, K_y) \quad (6.37)$$

$$\dot{K}_y = -\frac{F_y}{\hbar}, \quad \dot{y} = v_y(K_x, K_y) \quad (6.38)$$

où v_x, v_y sont donnés par l'équation 6.27.

Nous montrons sur la figure 6.5 un exemple de trajectoire pour lequel nous avons pris $a_x = a_y = 10^7 g$ où $a_{x,y} = F_{x,y}/m$ et $g = 9.81 \text{ m/s}^2$ est l'accélération de la gravité. Nous observons que la trajectoire est périodique avec $T_B = 3.5 \mu\text{s}$ et une amplitude d'oscillations de $\Delta x \approx 70 \mu\text{m}$ dans chaque direction. Pour des accélérations $a_x = a_y = 10^3 g$ on trouve $\Delta x \approx 70 \text{ cm}$ et $T_B \approx 35 \text{ ms}$.

Sur la figure 6.6 nous montrons des trajectoires avec $a_x = 2 \times 10^4 g$ et $a_y = 3 \times 10^4 g$. Nous obtenons une trajectoire complexe sur le plan xy avec l'atome qui revient à sa position

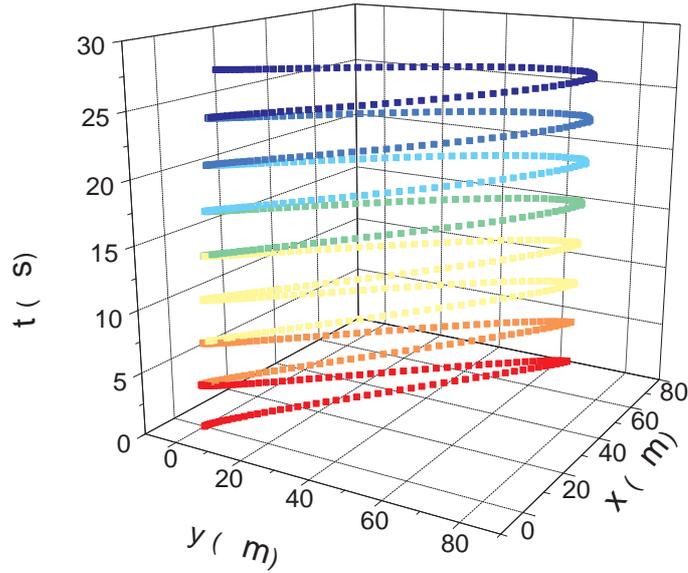


Figure 6.5 – Trajectoire de l'atome dans le référentiel de la surface quand il est soumis à une accélération extérieure $a_x = a_y = 10^7 g$

initiale après avoir fait trois oscillations sur l'axe y .

Les valeurs de T_B et ΔE obtenues indiquent que ce système n'est pas le meilleur pour observer des oscillations de Bloch. En effet, pour avoir des périodes suffisamment petites par rapport à la durée de vie dans le niveau vibrationnel le plus profond (≈ 0.1 ms) et des amplitudes d'oscillations petites par rapport aux tailles possibles de cristal sans défaut il nous faut utiliser des forces trop grandes pour que cela soit expérimentalement faisable.

Pour observer des oscillations de Bloch pour des atomes adsorbés sur une surface il nous faut trouver des systèmes pour lesquels nous avons des bandes d'énergie de largeur plus petite afin de réduire T_B et ΔE .

6.5 Super-réseau

Afin de voir quelle solution chercher pour avoir un système plus adéquat pour l'observations d'oscillations de Bloch, nous avons calculé comment varie ΔE si on varie les

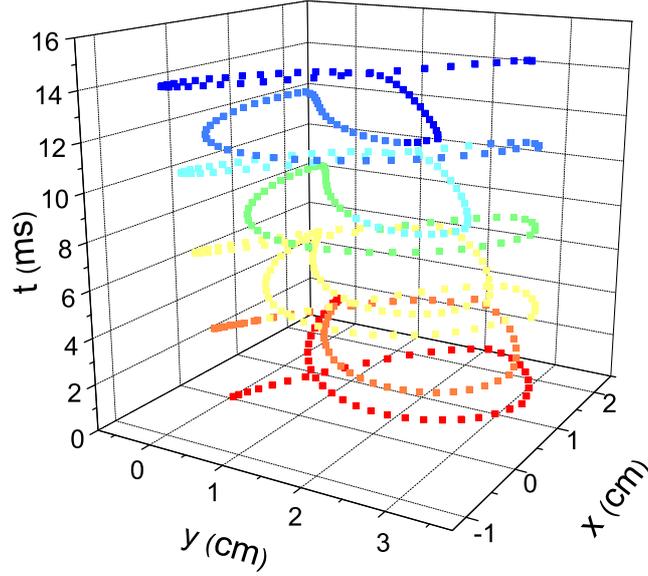


Figure 6.6 – Trajectoire de l'atome dans le référentiel de la surface soumis à une accélération extérieure $a_x = 2 \times 10^4 g$ et $a_y = 3 \times 10^4 g$

paramètres de constante du réseau d et de corrugation h pour un potentiel du type Morse corrugué (équation 6.3).

Sur la figure 6.7 on montre la variation de ΔE quand on varie la constante du réseau d . On trouve que ΔE diminue exponentiellement avec d . Ceci permet d'avoir pour $d = 5 \text{ \AA}$ des largeurs de bande environ 25 fois plus petites que pour $d = 2.84 \text{ \AA}$ (valeur pour une surface de LiF). Cela nous permet d'avoir des amplitudes d'oscillations plus petites qu'une centaine de micromètre pour des accélérations de $10^6 g$. Cependant, le gain sur la période d'oscillation est d'à peine un facteur 2 car $T_B \propto \frac{1}{d}$.

Nous avons fait une étude similaire en variant le paramètre de corrugation h , mais les valeurs de ΔE semblent être moins sensibles à ce paramètre. En effet pour une variation de $h = 0.05 \text{ \AA}$ à $h = 0.2 \text{ \AA}$ (voir figure 6.8) nous n'avons obtenu qu'une variation d'un facteur 2 sur ΔE . La dépendance de ΔE en fonction de h suit approximativement une loi de puissance. La puissance obtenue à partir de nos calculs est de -0.46 .

Les résultats obtenus en variant d et h indiquent que pour diminuer la largeur de la

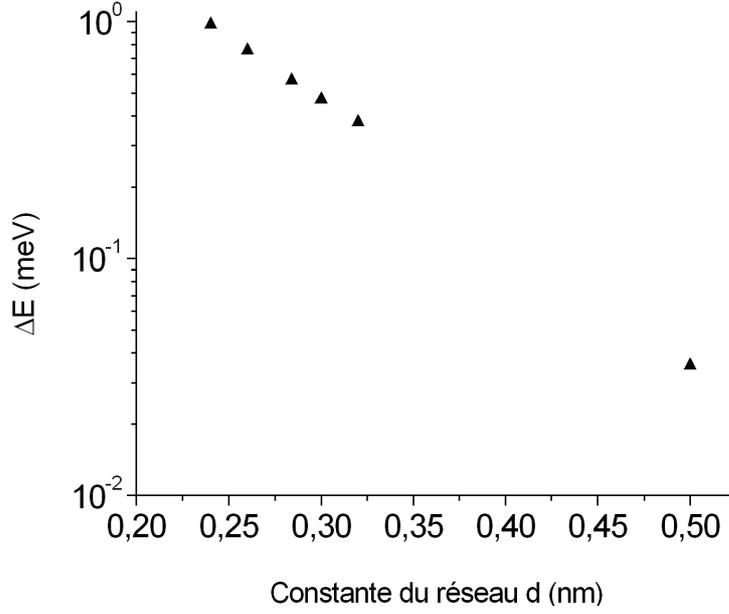


Figure 6.7 – Variations de la largeur de bande d'énergie en fonction de la constante de réseau d .

bande, il est plus efficace de modifier la constante du réseau. Une solution possible pour l'observation d'oscillations de Bloch pour des atomes adsorbés est de construire un super réseau, comme celui montré sur la figure 6.9, avec la construction de marches sur la surface. Dans une surface du type de celle montrée sur la figure 6.9 on a un potentiel qui peut être donné par :

$$V(x, z) = \begin{cases} V_0(z) \text{ pour } (q-1)d < x < (2q-1)d/2 \\ V_0(z+z_0) \text{ pour } (2q-1)d/2 < x < qd \end{cases} \quad (6.39)$$

avec q entier et $V_0(z)$ pris comme dans l'équation 6.5. Le potentiel donné ci-dessus est périodique, de période d . Pour ce potentiel, on obtient les éléments de l'expansion de Fourier :

$$V_G = \frac{i}{n\pi} \int dz \phi_n^*(z) (V_0(z+z_0) - V_0(z)) \phi_n(z), \text{ pour } n \text{ impair} \quad (6.40)$$

$$V_G = 0, \text{ pour } n \text{ pair}$$

En sélectionnant z_0 on peut varier la valeur de $D = \int dz \phi_n^*(z) (V_0(z+z_0) - V_0(z)) \phi_n(z)$. Nous admettrons $D = 0.1$ meV. Sur la figure 6.10 nous montrons la variation de la largeur de bande en fonction de la périodicité du super-réseau. Ce résultat indique que l'utilisation d'un super-réseau constitue une solution pour l'observation d'oscillations de Bloch d'atomes

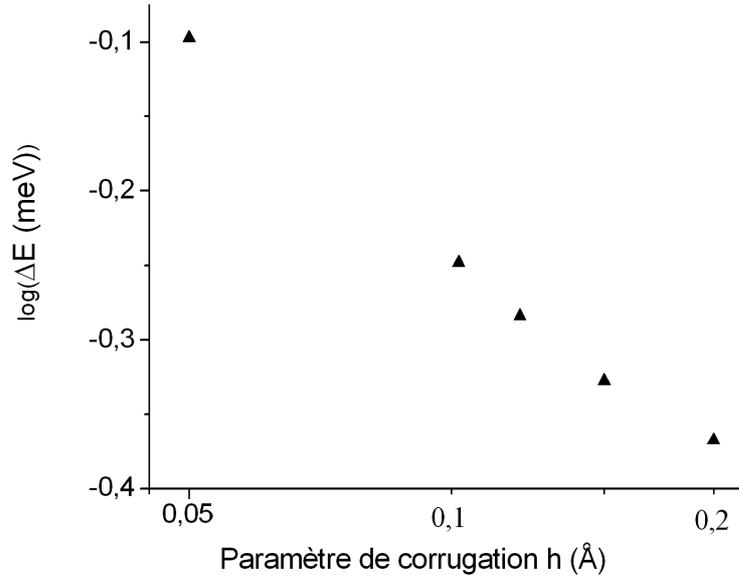


Figure 6.8 – Variation de la largeur de bande d'énergie en fonction du paramètre de corrugation h .

adsorbés. En effet, pour une accélération de 10^5g et une périodicité de 2.25 nm, nous obtenons des amplitudes d'oscillations $\Delta x \approx 10 \mu\text{m}$ et une période $T_B \approx 10 \mu\text{s}$, largement acceptables expérimentalement.

6.6 Conclusion

Dans ce chapitre nous avons proposé un nouveau système pour l'observation d'oscillations de Bloch : des atomes adsorbés sur une surface cristalline.

Nos études préliminaires avec le système constitué d'un atome d'He sur une surface de LiF, montrent que pour ce système nous devons utiliser des forces trop grandes pour une réalisation expérimentale. Ceci est dû au fait que les périodes d'oscillations doivent être petites par rapport au temps de vie des atomes adsorbés dans le niveau vibrationnel le plus profond, limité par l'interaction avec les phonons du solide.

Afin de réduire la largeur de bande pour réduire l'amplitude d'oscillation, nous avons fait des calculs préliminaires, en considérant un super-réseau constitué par des marches de potentiel sur la surface. Nous obtenons des caractéristiques de trajectoires acceptables

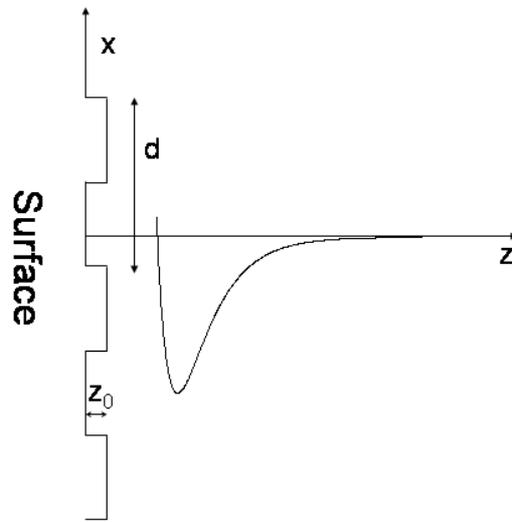


Figure 6.9 – *Illustration d'un super-réseau obtenu par construction de marches au long de la surface.*

expérimentalement, indiquant que le super-réseau est un chemin possible pour l'observation d'oscillations de Bloch pour des atomes absorbés.

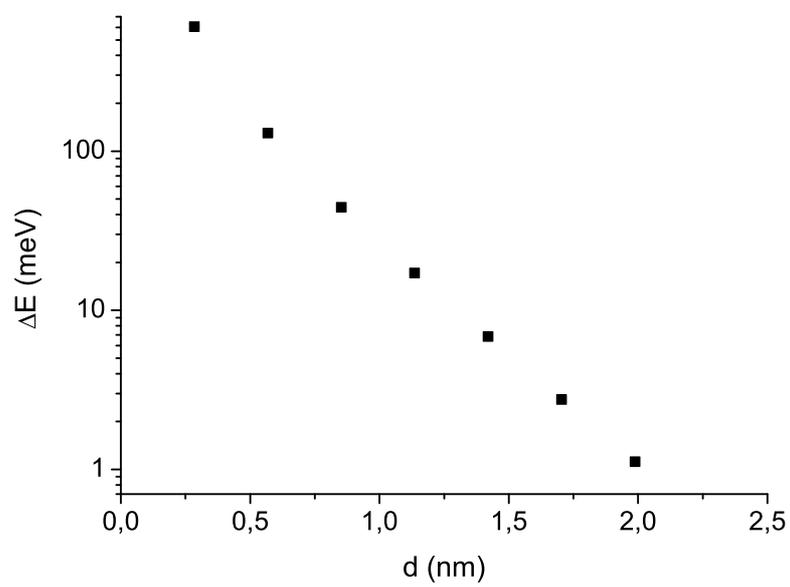


Figure 6.10 – *Variation de la largeur de bande d'énergie en fonction de la périodicité d du super-réseau.*

Bibliographie

- [Ash76] N.W. Ashcroft et N. D. Mermin Solid state physics, Saunders College Publishing, 1976 pp 131-173
- [Ben96] M. Ben Dahan, E. Peik, J. Reichel, Y. Castin et C. Salomon « Bloch oscillations of atoms in an optical potential », Phys. Rev. Lett **76**, 4508 (1996)
- [Cel85] V. Celli, D. Eichenauer, A. Kaufhold et J.P. Toennies « Pairwise additive semi *ab initio* potential for the elastic scattering of He atoms from the LiF(001) crystal surface », **83**, 2504 (1985)
- [Cri02] M. Cristiani, O. Morsch, J.H. Müller, D. Ciampini et E. Arimondo « Experimental properties of Bose-Einstein condensates in one-dimensional optical lattices : Bloch oscillations, Landau-Zener tunnelling, and mean-field effects », Phys. Rev. A **65**, 063612 (2002)
- [Der78] G. Derry, D. Wesner, S.V. Krishnaswamy and D.R. Frankl, Surf. Sc. 74, 245 (1978) ;
- [Fic07] M. Fichet, G. Dutier, A. Yarovitsky, P. Todorov, I. Hamdi, I. Maurin, S. Saltiel, D. Sarkisyan, M.-P. Gorza, D. Bloch et M. Ducloy « Exploring the van der Waals atom-surface attraction in the nanometric range », Europhys. Lett. **77**, 54001 (2007)
- [Goo86] F. O. Goodman et M. Cristina Vargas « Interaction potentials for diffraction of a He atom by a NaCl(001) surface », Surf. Science **176**, 619 (1986)
- [Gor80] Z.W. Gortel, H.J. Kreuzer et R. Teshima « Desorption by phonon cascades for gas-solid systems with many physisorbed surface bound states », Phys. Rev. B **22**, 5655 (1980)
- [Har04] T. Hartmann, F. Keck, H. J. Korsch et S. Mossmann « Dynamics of Bloch oscillations », New J. Phys. **6**, 1 (2004)
- [Hoi80] H. Hoinkes « The physical interaction potential of gas atom with single-crystal surfaces, determined from gas-surface diffraction experiments », Rev. Mod. Phys. **52**, 933 (1980)

- [Hou40] W.V. Houston « Acceleration of electrons in a crystal lattice », *Phys. Rev.* **57**, 184 (1940)
- [Kol03] A.R. Kolovsky et H.J. Korsch « Bloch oscillations of cold atoms in two-dimensional optical lattice », *Phys. Rev. A* **67**, 063601 (2003)
- [leK07] F. le Kien, S.D. Gupta et K. Hakuta « Phonon-mediated decay of an atom in a surface-induced potential », *Phys. Rev. A* **75**, 062904 (2007)
- [Lim00] E. G. Lima, M. Chevrollier, O. Di Lorenzo, P. C. Segundo, and M. Ória « Long-range atom-surface bound states », *Phys. Rev. A* **62**, 013410 (2000).
- [Nay07] K.P. Nayak, P.N. Melentiev, M. Morinaga, F. Le Kien, V.I. Balykin et K. Hakuta « Optical nanofibres as an efficient tool for manipulating and probing atomic fluorescence », *Optics Express*, **15**, 5431 (2007)
- [Pas06] T. Passerat de Silans, B. Farias, M. Ória et M. Chevrollier « Laser-induced quantum adsorption of neutral atoms in dielectric surfaces », *Appl. Phys. B* **82**, 367, (2006)
- [Pei97] E. Peik, M. Ben Dahan, I. Bouchoule, Y. Castin et C. Salomon « Bloch oscillations of atoms, adiabatic passage, and monokinetic atomic beams », *Phys. Rev. A* **55**, 2989 (1997)
- [Ril07] D. J. Riley, A. P. Jardine, S. Dworski, G. Alexandrowicz, P. Fouquet, J. Ellis, et W. Allison « A refined He-LiF(001) potential from selective adsorption resonances measured with high-resolution helium spin-echo spectroscopy », *J. Chem. Phys* **126**, 104702 (2007)
- [Sap03] R. Sapienza, P. Constantino, D. Wiersma, M. Ghulinyan, C. J. Oton et L. Pavesi « Optical analog of electronic Bloch oscillations », *Phys. Rev. Lett.* **91**, 263902 (2003)
- [Var96] M. Cristina Vargas et W. Luis Mochán « Bound state spectroscopy of He adsorbed on NaCl(001) band structures effects », *Surf. Science*, **355**, 115 (1996)
- [Was93] C. Waschke, H.G. Roskos, R. Schwedler, K. Leo, H. Kurz et K. Köhler « Coherent submillimeter-wave emission from Bloch-oscillations in a semiconductor superlattice », *Phys. Rev. Lett.* **70**, 3319 (1993)
- [Zen34] C. Zener, *Proc. R. Soc. London Ser. A* « A theory of the electrical breakdown of solid dielectrics », **145**, 523 1934

Conclusion générale

Nous avons dans cette thèse étudié différents aspects de l'interaction atome-surface. Nous avons aussi observé des résonances supplémentaires autour des transitions $6S_{1/2} \rightarrow 8P_{3/2}$ et $6S_{1/2} \rightarrow 8P_{1/2}$ du césium.

Nous avons, en collaboration avec l'équipe « Grandeurs radiatives et thermiques des matériaux » du CEMHTI d'Orléans, réalisé des spectres de réflectance sur des surfaces de saphir, CaF_2 et BaF_2 pour des températures entre 22°C et 500°C . En ajustant ces spectres avec un modèle semi-quantique pour la constante diélectrique nous avons obtenu la dépendance en température de la constante diélectrique de ces matériaux, dans une gamme de température pour laquelle il y avait peu de données disponibles dans la littérature et qui étaient de plus en désaccord entre elles. La connaissance de la dépendance en température de la constante diélectrique nous a permis de raffiner les prédictions théoriques par rapport aux calculs faits en utilisant la constante diélectrique à température ambiante pour l'interaction vdW pour le $\text{Cs}(8P_{3/2})$. Les prédictions théoriques ne sont pas beaucoup modifiées pour l'interaction avec une surface de CaF_2 , car depuis le niveau $8P_{3/2}$, la transition la plus importante pour l'interaction de vdW se situe sur les ailes de la résonance de surface. Toutefois pour des températures au dessus de 300°C une modification de la constante diélectrique statique déduite des ajustements induit une variation moins rapide de C_3 avec la température. Pour le BaF_2 , la résonance de surface est plus proche de la transition atomique dominante. L'élargissement et le déplacement des modes de surface avec la température diminuent, en principe, la contribution du terme résonnant, induisant une remontée de C_3 à des températures supérieures à 200°C . L'interaction de vdW, répulsive à des basses températures, devrait redevenir attractive autour de 500°C . Aucun changement sensible n'est prédit pour le saphir.

Nous avons réalisé des mesures de réflexion sélective pour les transitions atomiques de césium $6S_{1/2} \rightarrow 8P_{3/2}$ et $6S_{1/2} \rightarrow 8P_{1/2}$ à l'interface avec une surface de saphir et de CaF_2 . Ce sont les premières mesures de RS faites sur des raies aussi excitées à l'interface avec une surface CaF_2 et les premières mesures de RS effectuées pour une transition menant au niveau $8P_{1/2}$.

La valeur de C_3 obtenue pour l'interaction du niveau $8P_{3/2}$ avec la surface saphir est de $65 \pm 15 \text{ kHz} \times \mu\text{m}^3$, similaire à celle trouvée auparavant dans l'équipe [Cha07] et environ 1.5 fois supérieure aux prédictions théoriques. A l'interface avec le CaF_2 on trouve $C_3 = 70 \pm 20 \text{ kHz} \times \mu\text{m}^3$, ce qui est bien supérieur aux prédictions théoriques ($\approx 10 \text{ kHz} \times \mu\text{m}^3$) et incompatible avec celles-ci. Des résultats similaires sont trouvés pour le niveau $8P_{1/2}$. Nous avons cependant vérifié que les ajustements des spectres de RS obtenus sont compatibles avec un potentiel de type vdW en $-C_3/z^3$, mais incompatibles avec un potentiel du type $-C_2/z^2$, qui peut être induit par des charges distribuées sur la surface. Cette capacité à discriminer entre ces deux potentiels ([Shi74],[Che92]) n'était à priori pas évidente, d'autant que le recouvrement partiel des composantes hyperfines paraît rendre moins typiques les différences entre les formes de raie. En effet, les ajustements obtenus en utilisant le potentiel $-C_2/z^2$ ont une « qualité visuelle » similaire à ceux obtenus pour un ajustement vdW. La non-compatibilité du potentiel $-C_2/z^2$ se voit par un déplacement des raies (non induit par vdW) vers le bleu et non nul à l'extrapolation à $T = 0$. Cependant nous ne pouvons pas négliger la possibilité d'un mélange entre un potentiel $-C_3/z^3$ et $-C_2/z^2$ (le premier étant dominant) qui pourrait justifier les imperfections de nos ajustements.

Nous pensons que la non-concordance entre expérience et théorie peut être due à une modification de la nature de la surface. En effet, l'observation d'une absorption dans le barreau CaF_2 indique que celui-ci est devenu poreux de sorte qu'une modification de la structure du CaF_2 ne peut être négligée. Un tel changement peut modifier les résonances de surfaces ou même, interdire l'existence des polaritons de surface par l'introduction de défauts empêchant leur propagation. La dégradation de la structure cristalline du CaF_2 peut être induite par les contraintes thermiques dues au gradient de température auquel est soumis le barreau. Des chocs mécaniques induits par des explosions de gouttes de césium dans l'interstice peuvent aussi modifier la surface, même si aucun changement n'a été noté sur les formes de raies de RS après une visible cassure d'une partie de la surface suite à une explosion de Cs. Les

modifications de l'amplitude et de l'élargissement des spectres à l'interface avec le CaF_2 avec la température de la surface peuvent être éventuellement expliquées par la présence d'une autre espèce (dimères de césium, par exemple) qui modifierait les collisions et la population atomique d'équilibre. Nous travaillons à des densités de césium assez élevées (augmentation des collisions) et sondons des atomes assez proches de la surface ($z \approx \lambda/2\pi \approx 60$ nm), ce qui peut rendre les trajectoires non-balistiques. La proximité de la surface peut aussi faire que la rugosité (certainement augmentée par les diverses cassures) de la surface introduise des facteurs géométriques dans la distance atome-surface. Toutes ces considérations peuvent être à l'origine des imperfections des ajustements et peuvent modifier la valeur de C_3 obtenue.

Une expérience de RS sur une transition menant au niveau $\text{Cs}(7D_{3/2})$ aux interfaces de saphir et CaF_2 est actuellement en cours dans l'équipe. Le $\text{Cs}(7D_{3/2})$ a des transitions en émission vers les niveaux $8P_{3/2}$ et $8P_{1/2}$ qui sont symétriques de celles étudiées dans cette thèse. Observer l'influence de ces couplages sur C_3 peut nous donner des informations sur les résultats que nous avons obtenus. La recherche de l'effet du couplage résonnant en absorption atomique et émission thermique de la surface peut se faire à l'interface avec le BaF_2 , pour laquelle le changement attendu de C_3 avec la température pour le $\text{Cs}(8P_{3/2})$ est assez spectaculaire (interaction répulsive à température ambiante). Cependant de nombreux problèmes (fragilité du barreau BaF_2 , éventuelle évaporation des atomes de fluor,...) nous ont empêché jusqu'à présent de disposer d'une cellule avec fenêtre en BaF_2 , qui est en cours de fabrication par nos collaborateurs arméniens. En plus de l'intérêt d'étudier des effets thermiques en électrodynamique quantique de cavité, le changement de C_3 avec la température peut avoir des applications intéressantes telles que : la possibilité de contrôler l'interaction de vdW par changement de la température de la surface (éventuellement en la rendant répulsive), permettant la manipulation d'atomes à proximité de la surface ; ou la possibilité de piéger des atomes interagissant de façon répulsive avec deux parois d'une cellule mince [Lai98]. Les effets de température dans une cellule ultra-mince (cavité) avec suppression/amplification de certains modes émis par les surfaces, y compris pour des situations où les parois sont à des températures différentes, seraient aussi tout à fait intéressants. Il est aussi envisageable de chercher à observer des effets d'un couplage résonnant avec les modes de polaritons de surface (excités thermiquement) pour un niveau fondamental : en effet, les niveaux fondamentaux de molécules ont des transitions permises qui se situent dans l'infrarouge thermique, de sorte que ces effets pourraient vraisemblablement être explorés.

Nous avons observé des résonances supplémentaires dans la largeur Doppler des transitions $6S_{1/2} \rightarrow 8P_{3/2}$ et $6S_{1/2} \rightarrow 8P_{1/2}$. Les principales caractéristiques de ces résonances supplémentaires sont : l'invariance de leur positions pour différentes conditions expérimentales et de propagation des faisceaux ; la dépendance non-linéaire de leur amplitude avec l'intensité du faisceau sonde ; la non-observation de la structure hyperfine sur ces résonance malgré une largeur plus petite que la largeur de la structure hyperfine du niveau $8P_{3/2}$; un temps relativement long pour l'apparition des résonances supplémentaires indiquant un processus de pompage optique. Ces différentes caractéristiques nous font penser que ces résonances supplémentaires correspondent à la formation de dimères, et à l'observation de raies spécifiques aux niveaux peuplés de ces dimères. Notons que nous avons observé ces résonances supplémentaires à des températures proches de l'ambiante pour lesquelles la population d'équilibre de dimères formés par collision à trois atomes est négligeable. Des expériences avec deux faisceaux de fréquences différentes indiquent que la formation des dimères est compatible avec un processus impliquant une sélection de vitesse. Des expériences complémentaires peuvent être envisagées pour confirmer que les résonances supplémentaires correspondent bien à des raies de dimères, telles que : utilisation d'une source accordable sur une large bande pour sonder les niveaux rovibrationnels spécifiques éventuellement formés ; analyse spectrale de la fluorescence pour une irradiation faisant apparaître les résonances supplémentaires ; un laser sur la raie D1 peut aussi être utilisé pour modifier la distribution de vitesse d'un sous-niveau atomique fondamental (en pompant une classe de vitesse choisie) et obtenir, ainsi, des informations sur la formation des résonances supplémentaires (sélection de vitesse).

La complexité de la vapeur, avec présence de différentes espèces (atomes, dimères...) et un éventuel changement de l'équilibre de population en présence du faisceau laser, peut faire que nous obtenions, avec la technique de RS, un mélange de formes de raies correspondant aux différentes réponses de chaque espèce (polarisabilités différentes selon les espèces ; population d'équilibre qui dépend de la distance atome-surface...). Ceci est susceptible conduire à des erreurs sur les valeurs de C_3 et sur les ajustements obtenus.

Nous avons aussi étudié théoriquement l'interaction atome-surface dans un régime de distance beaucoup plus courte (quelques dixièmes de nm). Nous avons étudié des propriétés de transport quantique pour des atomes à l'état fondamental adsorbés sur une sur-

face diélectrique cristalline à basse température (quelques K). Plus spécifiquement, nous proposons le système « atome adsorbé + force externe » pour l'observation du phénomène d'oscillations de Bloch, en faisant usage de l'aspect à priori périodique du potentiel répulsif de courte portée pour l'interaction atome-surface. Nous avons réalisé des calculs pour un atome d'hélium adsorbé sur une surface de LiF, la force externe étant obtenue par accélération de la surface. Nos calculs montrent que pour des forces raisonnables, les trajectoires oscillantes obtenues ont une amplitude et une période trop grandes pour être réalisables. Avec des calculs préliminaires, nous pouvons suggérer qu'en utilisant un super-réseau construit à partir de marches sur la surface, des trajectoires plus raisonnables peuvent éventuellement être obtenues.

Bibliographie

- [Cha07] P. Chaves de Souza Segundo, I. Hamdi, M. Fichet, D. Bloch et M. Ducloy « Selective reflection spectroscopy on the Uv-third resonance line of Cs : Simultaneous probing of a van der Waals Atom-Surface interaction sensitive to far IR couplings and interatomic collisions », *Laser Physics* **17**, 983 (2007)
- [Che92] M. Chevrollier, M. Fichet, M. Oria, G. Rahmat, D. Bloch et M. Ducloy « High resolution selective reflection spectroscopy as a probe of long-range surface interaction : measurement of the surface van der Waals attraction exerted on excited Cs atoms », *J. Phys II France* **2**, 631 (1992)
- [Lai98] K.S. Lai et E.A. Hinds « Blackbody excitation of an atom controlled by a tunable cavity », *Phys. Rev. Lett.* **81**, 2671 (1998)
- [Shi74] A. Shih, D. Raskin, P. Kusch « Investigation of the interaction potentiel between a neutral molecule and a conducting surface », *Phys. Rev. A* **9**, 652 (1974)