



HAL
open science

Détection optique de films de mouillage de l'hélium liquide sur les métaux alcalins

Xavier Muller

► **To cite this version:**

Xavier Muller. Détection optique de films de mouillage de l'hélium liquide sur les métaux alcalins. Matière Condensée [cond-mat]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 1999. Français. NNT : . tel-00011779

HAL Id: tel-00011779

<https://theses.hal.science/tel-00011779>

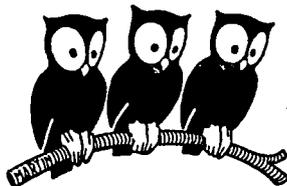
Submitted on 7 Mar 2006

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.

LABORATOIRE KASTLER BROSSEL

**DEPARTEMENT DE PHYSIQUE
DE L'ÉCOLE NORMALE
SUPÉRIEURE**



THESE DE DOCTORAT DE L'UNIVERSITE PARIS VI
spécialité: Physique des Solides

présentée par
Xavier MULLER

Pour obtenir le titre de
Docteur de l'université Paris VI

Sujet de la thèse:
**DETECTION OPTIQUE DE FILMS DE MOUILLAGE
DE L'HELIUM LIQUIDE SUR LES METAUX ALCALINS**

Soutenue le 5 novembre 1999 devant le jury composé de :

Mme A.-M. CAZABAT, Présidente
Mr R. BLOSSEY
Mr J. DUPONT-ROC
Mr J.-F. JOANNY
Mr E. ROLLEY

LABORATOIRE KASTLER BROSSEL

**DEPARTEMENT DE PHYSIQUE
DE L'ECOLE NORMALE
SUPERIEURE**



THESE DE DOCTORAT DE L'UNIVERSITE PARIS VI
spécialité: Physique des Solides

présentée par
Xavier MULLER

Pour obtenir le titre de
Docteur de l'université Paris VI

Sujet de la thèse:
**DETECTION OPTIQUE DE FILMS DE MOUILLAGE
DE L'HELIUM LIQUIDE SUR LES METAUX ALCALINS**

Soutenue le 5 novembre 1999 devant le jury composé de :

Mme A.-M. CAZABAT, Présidente
Mr R. BLOSSEY
Mr J. DUPONT-ROC
Mr J.-F. JOANNY
Mr E. ROLLEY

Table des matières

I	Introduction	3
A.	Rappel sur le diagramme de phase de mouillage d'un système simple	3
B.	Notations	4
C.	Revue des expériences de mouillage hélium/métaux alcalins	6
D.	L'effet du désordre sur la transition de prémouillage et sa modélisation	10
E.	But poursuivi	12
II	Dispositif expérimental	15
A.	Le profilomètre optique de l'ESPCI	15
1.	Principe du contraste interférentiel différentiel	15
2.	L'appareil de l'ESPCI	16
B.	Adaptation du profilomètre optique...	20
1.	Choix d'une solution	21
2.	Réalisation pratique	22
C.	La cellule et son environnement	27
D.	Performances et limitations	29
1.	Bruit du système d'acquisition	29
2.	Calibration et traitement des images	30
3.	Lien entre le déphasage $\delta\varphi$ et les observables de la surface	33
4.	Conclusion	37
III	Production et caractérisation des couches de césium	39
A.	Surfaces idéales et surfaces réelles	39
1.	Imperfection et désordre des surfaces solides	39
2.	Pureté chimique	41
B.	Préparation des surfaces de césium	42
1.	Choix d'un procédé	42
2.	Choix du substrat	43
3.	Protocole de fabrication de la couche de césium	44
4.	Suivi de la croissance pour quelques surfaces	46
C.	Mesure des angles de contact	51

1.	Procédure expérimentale	51
2.	Profils théoriques du ménisque	52
3.	Angles de contact mesurés et température de mouillage	59
4.	Comparaison avec les résultats des autres groupes	64
D.	Conclusions	65
IV Transition de prémouillage		67
A.	Observation de films métastables de prémouillage	69
1.	Préparation et images du film	69
2.	Mesure de l'épaisseur de films	70
B.	Transition de prémouillage sur la surface 1	76
1.	Evolution du bord du film avec la température	76
2.	Variation de la différence de couverture avec la température	77
3.	Tentative d'interprétation	80
4.	Angle de contact sur une surface de couverture intermédiaire	80
5.	Comparaison avec le modèle RFIM	83
C.	Transition de prémouillage sur la surface 2	86
1.	Observation de la transition	86
2.	Morphologie du film	86
3.	Cinétique de l'invasion	89
4.	Anisotropie de l'invasion	91
5.	Début de démouillage du film	92
D.	Epaississement du film de prémouillage	94
1.	Faits expérimentaux	94
2.	Discussion d'hypothèses	96
V Conclusion		99
I Acquisition : appareillage et signal		101
A.	Expression du signal	101
B.	Réglage du déphasage θ_i	102
C.	Relation entre la réflectivité et les signaux	103
II Expression de la différence de marche due aux Wollastons		107
A.	Dépendance de l'indice extraordinaire en l'angle	107
B.	Déphasage introduit par les Wollastons	108
1.	W_1	108
2.	W_2	109
C.	Déphasage entre les deux prismes	110
D.	Déphasage entre W_2 et la lentille	110
E.	Déphasage total	111

Chapitre I

Introduction

En 1991, une équipe de théoriciens a découvert que la surface des métaux alcalins les plus lourds devait avoir des propriétés de mouillage exceptionnelles pour l'hélium liquide, et que des transitions de phase de mouillage et de prémouillage devaient pouvoir être observées ([1]).

A. Rappel sur le diagramme de phase de mouillage d'un système simple

Rappelons que, pour un liquide simple en équilibre avec sa vapeur en présence d'une paroi, la transition de mouillage est l'annulation pour une certaine température de l'angle de contact θ du liquide avec la paroi, conduisant à un mouillage total de cette dernière. Pour un système où les interactions sont dominées par des forces à longue portée (i.e. qui décroissent algébriquement comme les forces de Van der Waals), un diagramme de phase tel que celui montré sur la figure I.1 est généralement attendu. La transition de mouillage est prolongée en dehors de saturation par une ligne de transition de prémouillage entre deux états de couverture de la paroi différents, appelé dans la suite "film mince" ou "surface sèche", et "film épais" ou "surface mouillée" ([2], [3]). Ces transitions sont du premier ordre, jusqu'au point critique de prémouillage du type 2D-Ising. Soulignons que ces prédictions sont relatives à des états d'équilibre pour une paroi supposée parfaitement homogène. Pour de tels systèmes, on s'attend donc à un saut discontinu de la couverture lorsqu'on traverse la ligne de prémouillage, l'amplitude de ce saut étant infini à saturation, et nul au point critique de prémouillage. A la transition, il peut y avoir coexistence entre les deux états de couverture, l'interface entre les deux phases "film mince" et "film épais" étant stabilisée par un gradient de potentiel chimique dû par exemple à la gravité ou à un gradient du pouvoir d'étalement, si la surface n'est pas strictement homogène. Enfin, comme pour toutes les transitions du premier ordre, la nécessité de nucléer l'autre phase peut donner lieu à un retard de la transition observée expérimentalement par rapport à la valeur du paramètre de contrôle où il y a équilibre des phases. Ceci conduit en pratique à une hystérésis de la transition observée, déterminée par le temps de nucléation de la phase devant apparaître comparé à la durée de l'expérience. L'évaluation des barrières de nucléation et de l'hystérésis possible a été faite dans

le cas des transitions de prémouillage ([4], [5]). La conclusion est que l'hystérésis peut être très large comme l'indique la position des lignes spinodales sur la figure I.2.

Bien que les transitions de prémouillage soient en principe un phénomène général au voisinage du point critique du fluide, elles n'étaient pas observées au début des années 90 pour des liquides ordinaires. Ainsi, outre la vérification du non-mouillage de la surface des métaux alcalins par l'hélium, les premières expériences visaient également à observer ces transitions et à établir le diagramme de phase.

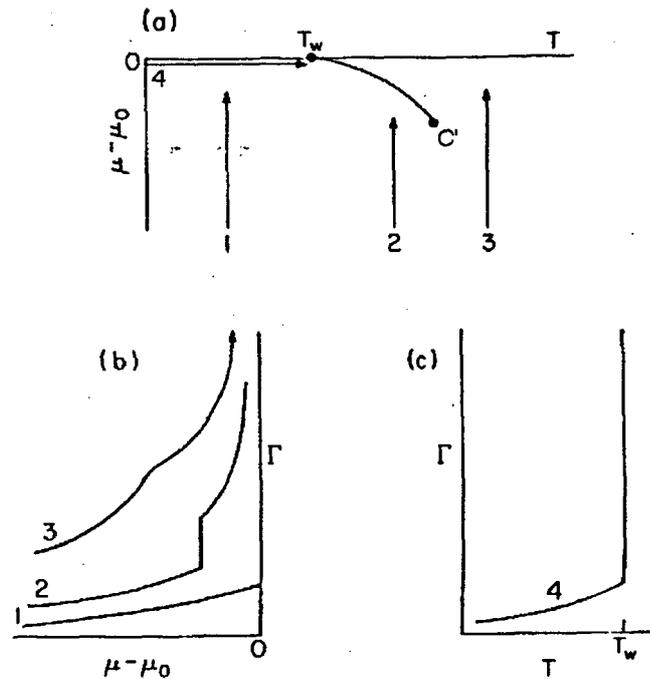


Fig. I.1: Diagramme de phase de mouillage (en haut) dans le plan (température T)/(écart au potentiel chimique de saturation $\mu - \mu_0$). T_w est la température de mouillage, C' le point critique de prémouillage. L'évolution de la couverture Γ de la surface lorsqu'on traverse la température de mouillage à saturation est montrée en bas à droite. L'évolution à température fixée en faisant varier l'écart à saturation le long des chemins 1), 2) ou 3), est représentée en bas à gauche. La courbe 2) représente une transition de prémouillage (figures reproduite de la référence [6]). Dans certains cas particuliers, la ligne de prémouillage est absente et la transition de mouillage est du second ordre (voir la référence [7] pour une mise en évidence expérimentale de transition du second ordre).

B. Notations

Le potentiel chimique μ du système sera repéré par son écart $\Delta\mu$ par rapport à la valeur $\mu_{sat}(T)$ pour laquelle il y a équilibre liquide/vapeur à la même température (cette dernière sera largement au-dessous de la température critique du fluide). Numériquement, $\Delta\mu$ sera donné par la valeur de $\Delta\mu/k_B$ en kelvin.

La tension de surface de l'hélium liquide sera notée γ . Nous utiliserons les valeurs expérimentales de Eckardt *et al.* (ref. [8]).

L'interaction de la paroi avec les atomes du fluide est décrite dans les études théoriques ([1], [9]) par un potentiel caractérisé par le coefficient de Van der Waals C_3 et la profondeur D

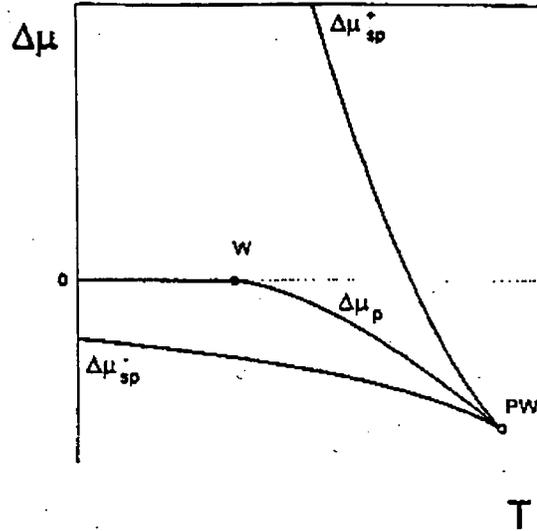


Fig. 5. The wetting phase diagram in $T, \Delta\mu$. Shown are the prewetting line $\Delta\mu_p$ and the surface spinodals $\Delta\mu_{sp}^+$, $\Delta\mu_{sp}^-$, the metastability limits of the nonwet and the wet surface states.

Fig. I.2: Ligne de prémouillage et ses spinodales. D'après la ref. [5].

du puits de potentiel. D'après Vidali *et al.* ([9]), pour le métal qui va nous intéresser dans cette thèse, le césium, $C_3^{Cs} = 672 \text{ KÅ}^3$. La relation de Frenkel Healsey Hill entre la désaturation $\Delta\mu$ et l'épaisseur e du film épais fait intervenir plutôt la différence $\Delta C_3 = C_3^{Cs} - C_3^{He}$ entre C_3^{Cs} et l'attraction C_3^{He} exercée à grande distance par le liquide lui-même :

$$\Delta\mu = -\frac{\Delta C_3}{e^3}$$

D'après la référence [10], $C_3^{He} \simeq 120 \text{ KÅ}^3$ de sorte que $\Delta C_3 \simeq 550 \text{ KÅ}^3$.

De façon macroscopique, l'interaction entre la paroi et le liquide est décrite par l'énergie de surface σ_{sl} , et celle avec la vapeur, beaucoup plus faible, par σ_{sv} .

Il est intéressant de généraliser la notion de pouvoir d'étalement, qui s'écrit habituellement pour le cas à saturation, pour le film épais à potentiel chimique constant. Dans le cadre d'un modèle négligeant l'épaisseur des interfaces et assimilant les interactions à leur partie longue distance, on peut l'écrire (en s'inspirant de [11]) :

$$S = \sigma_{sv} - [\sigma_{sl} + \gamma + \frac{3}{2}(\Delta C_3)^{1/3} \Delta\rho (-\Delta\mu)^{2/3}] \quad (\text{I.1})$$

où $\Delta\rho = \rho_l - \rho_v$ est la différence de densité entre liquide et vapeur. S représente l'abaissement d'énergie (algébrique) par unité d'aire de la surface quand la couverture passe du film "mince" au film "épais". Mentionnons dès maintenant que, pour les surfaces que nous considérerons, les variations de S avec la température à $\Delta\mu$ constant résultent essentiellement de celles de γ (d'autres groupes ont trouvé une dépendance de $\sigma_{sv} - \sigma_{sl}$ en température, ce n'est pas notre cas; voir figure III.20):

$$\Delta S |_{\Delta\mu} \simeq \Delta\gamma$$

Au contraire, à température constante, elles sont déterminées par $\Delta\mu$:

$$\Delta S|_T \simeq -\frac{3}{2}(\Delta C_3)^{1/3} \Delta\rho [(-\Delta\mu)^{2/3}]$$

C. Revue des expériences de mouillage hélium/métaux alcalins

Avant de passer en revue les résultats expérimentaux concernant les transitions de mouillage et de prémouillage de l'hélium sur la surface de métaux alcalins, il est utile de mentionner qu'en parallèle avec les expériences précédentes, des transitions de prémouillage ont été observées (voir tableau I.2) sur d'autres systèmes. Parmi ceux-ci, le système cyclohexane/méthanol au voisinage d'un point de démixion, étudié par Kellay, Bonn et Meunier, est particulièrement intéressant ([12], [13]). La surface considérée pour le mouillage est la surface libre de la phase riche en cyclohexane qui est en contact par l'intermédiaire des parois de la cellule avec un réservoir de méthanol. Cette surface liquide est une bonne approximation d'une surface idéale invariante par translation, et les phénomènes observés sont tout à fait conformes au schéma précédent. On observe en particulier une forte hystérésis se terminant par un saut de la couverture.

Fluide	Surface	T_W, T_{pw} ou $T_{C'}$	Année	référence
méthanol	cyclohexane	$T_{C'} = 39^\circ\text{C}$	93	[12]
H ₂	Cs	$T_W \simeq 20\text{ K}$	98	[14]
He	K	$T_{C'} \simeq 2\text{ K}$	98	[15]
He	Na	$T_{C'} \simeq 1.7\text{ K}$	98	[15]
Ne	Rb	$T_{C'} \simeq 40\text{ K}$	97	[16]
Hg	Sapphire	1300-1500 °C	97	[17], [18]
phase uniaxiale d'un cristal liquide	phase isotrope du même cristal li- quide	$T_{pw} = 90^\circ\text{C}$	97	[19]

(I.2)

Qu'en est-il de l'hélium à la surface des métaux alcalins ? Les premières expériences ont étudié le film de prémouillage éventuellement assez proche de la saturation. Elles ont été réalisées sur le césium, puis sur le rubidium.

La méthode utilisée au laboratoire ([20], [21], [22]) reposait sur la mesure d'une résistance thermique entre deux points de part et d'autre d'un anneau de métal déposé sur la paroi interne d'un tube de verre vertical scellé et contenant de l'hélium au-dessous de T_λ . La résistance thermique mesurée, R_{th} , est sensible à la longueur de recouvrement entre le film d'hélium "épais" et le métal. Elle est négligeable pour un taux de recouvrement supérieur à $40\ \mu\text{m}$ dans la gamme de température 1-2 K. Elle devient finie et mesurable pour des valeurs inférieures du recouvrement, saturant pour un recouvrement nul à une valeur R_{th0} déterminée uniquement par les propriétés du verre. Les figures I.3 et I.4 montrent deux exemples de variation de la résistance normalisée R_{th}/R_{th0} en fonction du paramètre de contrôle, T ou $(-\Delta\mu)^{2/3}$, sur le césium et le rubidium.

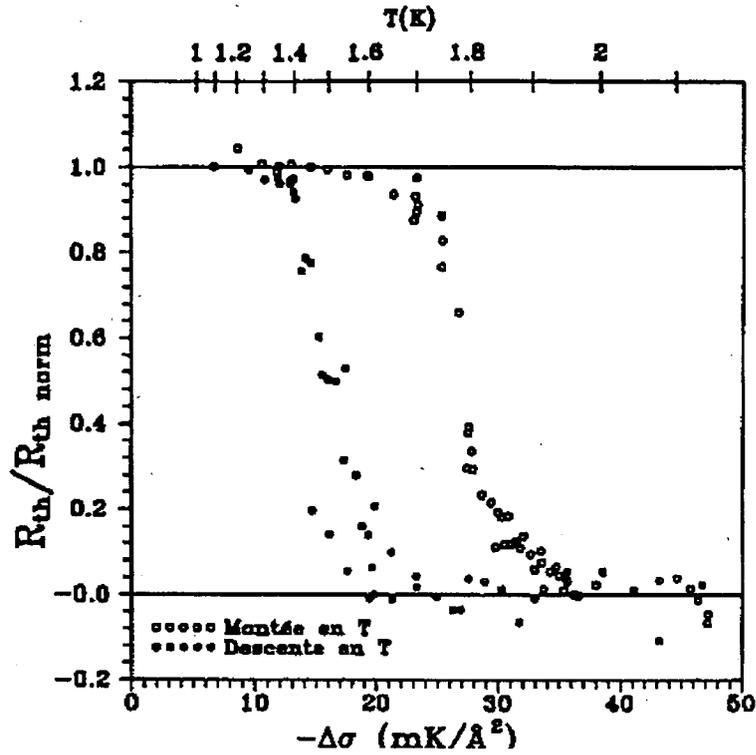


Fig. I.3: Variation de la résistance thermique au cours d'un cycle de mouillage-démouillage sur le césium, en fonction de la variation $\Delta\sigma$ (notée ici $\Delta\gamma$) de la tension de surface de l'hélium lorsqu'on varie la température (tiré de [20]). L'écart à la saturation est de l'ordre de $\mu - \mu_{sat} = -0.5$ mK.

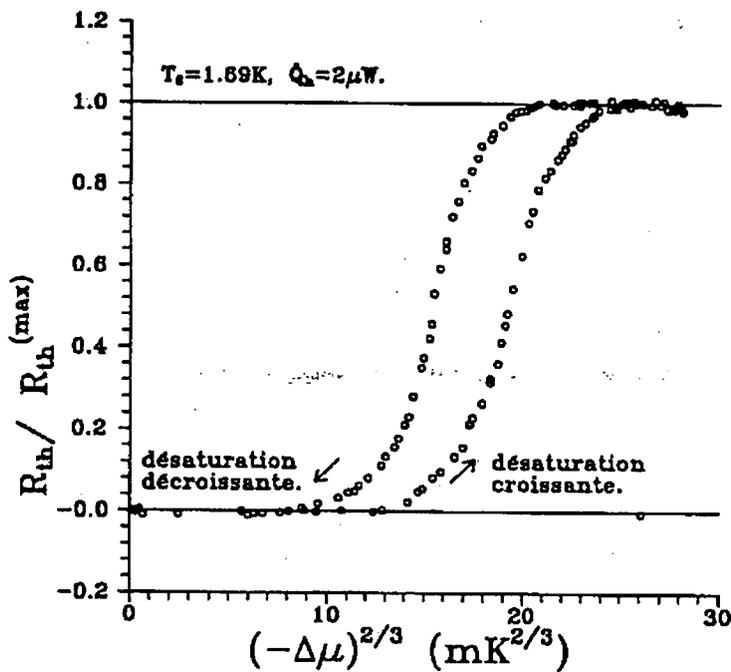


Fig. I.4: Même observable que pour la figure précédente mais sur le rubidium en variant la désaturation ([20]). $(-\Delta\mu)^{2/3}$ est proportionnel avec un signe opposé à la variation du pouvoir d'étalement moyen du film épais.

On constate que la variation est continue et hystérétique. La variation continue de la longueur de recouvrement avec le paramètre de contrôle est incompatible avec une transition du premier ordre. Notons que les états intermédiaires sont stables à l'échelle de la durée d'une expérience, contrairement à ce que pourrait être un état transitoire lors d'un saut entre les deux couvertures stables d'une transition du premier ordre.

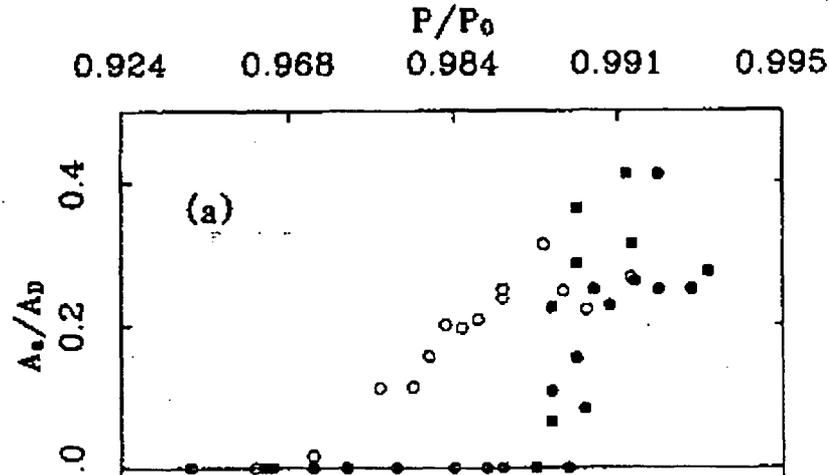


Fig. I.5: Expérience de U. Mass. : Amplitude normalisée de transmission du 3^{ème} son entre deux points de part et d'autre d'un dépôt de césium, en fonction de la désaturation (ref. [23]). A température constante et partant d'une situation sèche, les symboles pleins montrent l'évolution en allant vers la saturation et les symboles ouverts le retour à la désaturation.

Dans l'expérience du groupe de U. Mass ([23]), c'est une mesure de propagation de 3^{ème} son qui détermine si le film est épais ou mince. Le 3^{ème} son est une onde de température et d'épaisseur qui se propage dans un film superfluide ([25]). Les expériences étaient réalisées à température constante en faisant varier le potentiel chimique de l'hélium au-dessous de la saturation, et mesuraient la transmission d'une impulsion de 3^{ème} son dans un film d'hélium sur une surface de verre césiée. Le césium est ici déposé à froid à partir d'une source que nous détaillerons au chapitre 3. La figure I.5 montre que le taux de transmission montre une hystérésis importante, et que le saut d'un état à l'autre n'est pas brusque. Des points intermédiaires existent mais sans que soit mentionné leur degré de stabilité. Ainsi, là aussi, la transition semble continue et hystérétique.

Le groupe d'Irvine mesurait la couverture avec une microbalance à quartz. Les microbalances sont une technique typique d'adsorption car la modification de leur fréquence de résonance f est directement liée à la variation de la masse adsorbée entraînée par l'oscillation. Les premières expériences ont porté sur des surfaces de césium ([26], [24]), et plus récemment ([27]) des surfaces de rubidium ont été également étudiées en détail. Dans les deux cas, le métal alcalin est déposé à froid sur les électrodes d'or de la microbalance suivant le même procédé que précédemment. La figure I.6 montre la variation de la fréquence lorsque, pour une faible désaturation ($\Delta\mu$ de l'ordre de quelques dizaines de μK) et utilisant une surface de césium, la température est augmentée. Les auteurs interprètent ces résultats dans le schéma d'une transition de mouillage du premier ordre : l'augmentation rapide de la couverture vers 1.95 K est la transition de prémouillage,

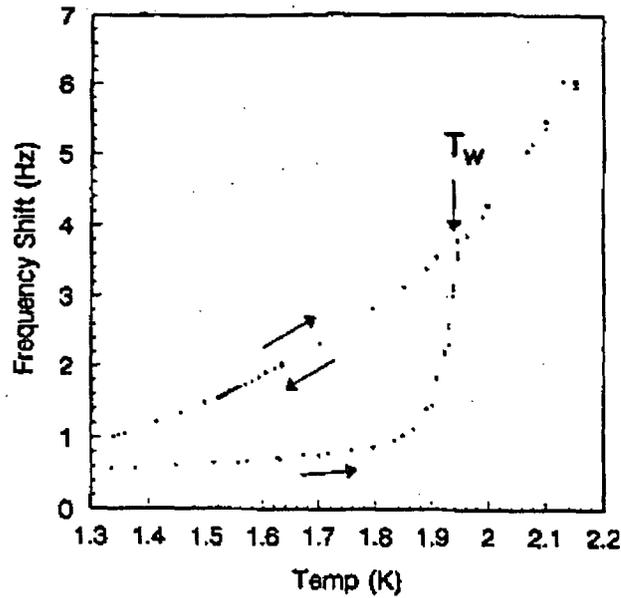


FIG. 4. Δf_{sat} vs T , showing hysteresis in the film. Measurement frequency is 5 MHz. The lower branch corresponds to the small values of Δf_{sat} defined by the top of isotherms for $T < T_w$, such as Fig. 1(c). If the surface is covered by a thick film above T_w and then cooled, a thick, superfluid, metastable film remains on the surface even below T_w , as shown on the upper branch. The slope of the upper branch is due to the variation of the normal fluid fraction with temperature.

Fig. I.6: Expérience d'Irvine : Variation de la fréquence de résonance du quartz microbalance au cours d'un cycle de pré-mouillage en fonction de la température ([24]).

la présence de film d'hélium épais sur la surface voisine du césium évitant tout retard à la transition. L'absence de dé-mouillage est au contraire attribuée à la métastabilité du film épais par rapport à la nucléation du film mince. L'absence de réelle discontinuité de la couverture à 1.95 K reste toutefois inexplicée dans une telle interprétation. Par ailleurs, les mêmes auteurs ont réussi plus tard sur des substrats analogues à observer le dé-mouillage sur le césium vers 1.2 K par une autre méthode, sans que la caractère discontinu ou non ait été recherché.

Dans les études de pré-mouillage sur le rubidium du groupe d'Irvine, les transitions "mince" \rightarrow "épais" et "épais" \rightarrow "mince" entre 0.8 K et 1.8 K lorsqu'on varie $\Delta\mu$ sont séparées par une large hystérésis, mais aucune discontinuité de f n'apparaît. Les auteurs mentionnent qu'une telle hystérésis n'était pas observée dans les expériences sur le césium, mais aucune donnée n'a été publiée sur cette question. Notons que la variation de la fréquence observée ne s'interprète pas simplement en terme de variation de couverture : la superfluidité, lorsqu'elle apparaît, découple une partie de la masse ; une topologie non connexe du film épais peut au contraire ajouter une masse hydrodynamique.

En définitive, l'interprétation de l'hystérésis des transitions de pré-mouillage comme associée à un retard à la nucléation du film mince n'est pas complètement convaincante : la dynamique

associée au saut de couverture qui doit se manifester à la sortie de métastabilité n'a jamais été mis en évidence, contrairement aux expériences à la surface du cyclohexane. Si cette dynamique est empêchée, il n'y a a priori pas de raison que cet empêchement ne se manifeste pas aussi pour la transition "mince" \rightarrow "épais". On est alors amené à penser que les deux transitions sont affectées par l'hystérésis. Ceci doit être pris en compte quantitativement dans la comparaison avec une théorie faite pour un substrat parfait.

Des expériences mettant en jeu le mouillage par un film d'hélium des métaux alcalins ont aussi été effectuées par un groupe de Constance. L'écoulement d'une goutte d'hélium déposée sur une surface césiée inclinée a été étudiée ([28], [29]). La détection de l'hélium se fait par microscopie par plasmons de surface. Les plasmons sont des ondes électromagnétiques voyageant à la surface des métaux. On peut les coupler avec une lumière incidente par l'intermédiaire d'une onde évanescente créée en éclairant la base d'un prisme sous condition de réflexion totale. La présence d'un film d'hélium à la surface du métal modifie cette condition. La variation de réflectivité correspondante permet d'imager une surface recouverte d'hélium d'épaisseur allant de quelques Å à 750 nm, avec une résolution latérale de 20 μm . Selon la température, l'expérience a montré deux régimes d'écoulement : Dans un régime basse température, la goutte s'écoule par des canaux de 1 mm de large, tandis qu'à plus haute température (vers 1.85 K) elle s'écoule de manière compacte sans changer sa forme, en étant entourée d'un film d'épaisseur de 30 nm qui s'étale à une vitesse de l'ordre du cm/s. La cellule étant légèrement en désaturation par rapport à la goutte, l'avancée de ce film a été interprété comme une traversée spatiale du diagramme de phase de prémouillage à travers la ligne de prémouillage.

Depuis ces études de film, d'autres expériences se sont attachées à caractériser le système hélium-césium par la mesure d'angle de contact. Le groupe d'E. Rolley l'a fait par interférométrie avec des franges d'égaux épaisseurs ([30]), et celui d'Irvine par visualisation directe par côté sur des substrats préparés à froid ([31], [32]). Une large hystérésis d'angle a été trouvée : A 1.4 K, l'angle d'avancée est de l'ordre de 20°, contre 0° pour l'angle de recul. Pour certains substrats, un angle de recul non nul a pu être observé pour des températures inférieures à 1.2 K, compris entre 0 et 10°. Notons que ce simple résultat exclut complètement l'interprétation de l'hystérésis comme liée à la nucléation du film mince : on peut avoir coexistence d'un film mince et d'un film épais vers 1.2 K, aussi bien qu'à 1.95 K. Il n'y a pas de transition de prémouillage bien définie.

L'équipe de A.F.G. Wyatt a aussi cherché à mesurer les angles de contact de l'hélium sur le césium mais a obtenu des résultats différents. Sa méthode repose sur l'ascension capillaire entre de multiples plaques de tungstène exposées avant la mise à froid à du césium sous pression de vapeur saturante à 200 °C. En augmentant la température entre 1 et 2 K, l'angle de contact diminue et l'hélium monte entre les plaques. La quantité d'hélium dans la cellule étant fixée, l'ascension entraîne une diminution de la pression au fond de la cellule. La variation de la pression est mesurée par une jauge capacitive et est traduite en angle de contact par un étalonnage préalable. En abaissant la température, une réaugmentation de la pression a été observée et est interprétée en angle de recul en faisant l'hypothèse que la ligne triple est libre de se mouvoir. Cette méthode donne des résultats très différents de ceux des autres groupes : il

Il y a peu d'hystérésis sur la force mesurée, les angles d'avancée qu'on en déduit sont nettement plus importants, mais la température de mouillage est sensiblement la même, ce qui implique une forte dépendance en température de σ_{sl} . Les auteurs attribuent ces résultats à la bonne qualité supposée de leur surface, qui permettrait l'existence de l'équivalent des ondes capillaires à l'interface surface/liquide.

Le phénomène d'hystérésis de l'angle de contact est bien connu en physico-chimie ([33]), et est associé au désordre de la surface, c'est à dire au fait que ses propriétés de mouillage ne sont pas homogènes. On sait qu'il peut exister de l'hystérésis dans l'angle de contact sans désordre microscopique de la surface (par exemple, un simple relief à grande échelle peut en être la cause; voir la référence [34] pour diverses causes d'hystérésis dans l'angle de mouillage). Il est donc intéressant de déterminer si c'est le même désordre qui est responsable des propriétés d'hystérésis à la fois sur les angles et sur le film de prémouillage.

D. L'effet du désordre sur la transition de prémouillage et sa modélisation

L'effet de fluctuations figées du pouvoir mouillant de la surface sur la transition de prémouillage a été étudié sur le plan théorique ([36]). La conclusion est que la ligne de prémouillage doit disparaître, même pour un désordre arbitrairement faible, pour être remplacée par une transition progressive entre une couverture moyenne faible et une couverture moyenne forte. Cette prédiction est relative à l'état d'équilibre du système (énergie minimum) à la limite thermodynamique d'un système infini. Elle repose sur l'analogie entre le problème de la couverture de la surface par un film "mince" ou "épais", et le modèle d'Ising à 2D. Pour ce dernier, un champ magnétique aléatoire figé de moyenne nulle détruit tout ordre à longue portée à température finie ([37]) au profit d'un mélange de régions finies de spins \oplus et \ominus en proportions égales. Cette proportion change lorsqu'on applique un champ magnétique H au système, conduisant à une variation continue de la polarisation moyenne autour de 0. S'agissant d'états d'équilibre, il n'y a pas d'hystérésis. En résumé, les propriétés d'équilibre du modèle d'Ising à champ aléatoire ("Random Field Ising Model" ou RFIM) interdisent l'existence d'une transition de prémouillage du premier ordre pour un substrat désordonné, mais ne prédisent pas le comportement expérimentalement observé.

Les considérations précédentes ne prennent pas en compte les conditions de croissance des zones d'une couverture "épaisse" ou "mince" au détriment de l'autre lorsqu'on change la valeur du paramètre de contrôle. C'est cette évolution qu'il faut décrire pour rendre compte de la transition observée expérimentalement. Elle rapproche la transition de prémouillage sur une surface désordonnée de tout un ensemble de phénomènes de croissance dans un milieu à désordre figé. Citons par exemple, l'invasion d'un milieu poreux par un fluide, la disparition de la phase normale dans un supraconducteur avec du désordre, le renversement de l'aimantation dans un ferromagnétique réel. On ne cherche plus quel est l'état d'équilibre du système, mais quelle

est la dynamique de déplacement des parois de domaines en fonction du paramètre de contrôle. Comme pour les transitions de phase, le prémouillage est analogue au RFIM en dimension 2. Il est naturel d'essayer d'étendre cette analogie aux propriétés dynamiques, et d'essayer de modéliser les transitions de prémouillage telles qu'elles sont observées expérimentalement par la dynamique de renversement de l'aimantation d'un aimant d'Ising 2D sur lequel agit un champ aléatoire figé, lorsqu'on balaye un champ statique uniforme dans un sens ou dans l'autre. Un certain nombre de travaux ([38], [39], [40], [41]) ont porté spécifiquement sur ce problème. Avant d'en discuter les résultats, nous allons rappeler comment s'établit la correspondance entre le prémouillage d'une surface désordonnée et un aimant d'Ising 2D à champ aléatoire.

Pour une surface uniforme en présence de fluide avec un écart à la saturation $\Delta\mu$, les films "épais" ou "minces" sont deux minima locaux du grand potentiel par unité de surface Ω , $\Omega^{\text{épais}}$ et Ω^{mince} . La transition de prémouillage a lieu lorsque $\Delta\Omega = \Omega^{\text{épais}} - \Omega^{\text{mince}}$ s'annule. Comme $\Delta\Omega$ est l'opposé du pouvoir d'étalement généralisé pour le film épais nous poursuivrons en raisonnant sur S . Pour une surface désordonnée, on admet simplement que S dépend du point $\vec{r} = (x, y)$ sur la surface. On sépare S entre sa valeur moyenne \bar{S} sur la surface, et ses fluctuations $\delta S(\vec{r})$: $S(\vec{r}) = \bar{S} + \delta S(\vec{r})$. \bar{S} dépend des paramètres de contrôle $\Delta\mu$ et T . Nous admettrons qu'en première approximation $\delta S(\vec{r})$ n'en dépend pas. Pour faire la correspondance avec un aimant d'Ising, les coordonnées \vec{r} doivent être discrétisées. La surface est pavée de carrés ou d'hexagones de côté a assez petits pour que les propriétés de mouillage puissent être considérées homogènes. Le pavé i est identifié avec un spin d'Ising dont les états \oplus et \ominus représentent les états de couverture "épais" et "mince". La différence d'énergie entre ces deux états, $S(\vec{r}_i) \times a^2$, est équivalente à un champ magnétique $H + h_i$ agissant sur le spin s_i , H correspondant à la partie homogène $\bar{S} \times a^2$, et h_i aux fluctuations $\delta S(\vec{r}) \times a^2$. Enfin, le couplage ferromagnétique entre deux régions voisines décrit le coût énergétique d'une région de couverture intermédiaire entre "épais" et "mince" qui doit exister à la frontière entre deux pavés de couvertures différentes. Il est donc directement relié à la tension de ligne Λ associée à un bord entre un film épais et un film mince. Notons que cela suppose implicitement que la taille de la région de transition constituant le bord est petite par rapport à a . La couverture moyenne de la surface, en excès par rapport à celle du film "mince", est simplement proportionnelle à $C = \frac{1}{2}(s_i + 1) = \frac{1}{2} + \frac{M}{2}$ où M est l'aimantation moyenne. De façon plus microscopique, les régions recouvertes d'un film épais correspondent aux domaines de spin \oplus . Ainsi l'envahissement de la surface par le film épais lorsqu'on augmente la température correspond à étudier comment les domaines de spins \oplus s'étendent lorsqu'on augmente le champ magnétique H .

Les études citées ont toutes été faites à température nulle, en admettant pour la dynamique la règle simple qu'un spin change d'état dès que le champ magnétique total agissant sur lui (champ des voisins) $H + h_i$ change de signe. Robbins *et al.* ont imposé une règle supplémentaire de connexité pour l'invasion : seuls peuvent basculer des spins en contact avec d'autres spins déjà basculés. On exclut par là la nucléation de domaines indépendants.

Les résultats essentiels intéressants pour la transition de prémouillage sont les suivants :

i) La morphologie des domaines lors de la croissance fait apparaître deux longueurs : une

longueur de corrélation à petite échelle, d'autant plus petite que le champ aléatoire domine l'échange, et une morphologie à grande échelle de type percolation. La croissance est en général isotrope, et la morphologie autosimilaire entre les deux échelles précédentes. Toutefois, à faible désordre pour une distribution finie de h , on peut avoir une morphologie autoaffine.

ii) Lorsque H croît, il existe un seuil bien défini H_c^\oplus où la longueur de percolation diverge : la croissance de la phase \oplus donne lieu à une transition critique en H_c^\oplus . Lorsque H décroît, la croissance de la phase \ominus est déterminée par un seuil H_c^\ominus différent de H_c^\oplus . Sauf pour le réseau carré, H_c^\oplus et H_c^\ominus sont symétriques par rapport à $H = 0$. Ainsi le modèle prévoit pour la transition de prémouillage deux transitions continues, l'une pour le mouillage, l'autre pour le démouillage, symétriques par rapport à ce que serait la position de la transition pour un substrat homogène ayant comme pouvoir mouillant la moyenne de celui de la surface réelle.

iii) La valeur de $H_c^{\oplus/\ominus}$ dépend du réseau et des hypothèses concernant la nucléation. L'ordre de grandeur est déterminé par J .

Le modèle RFIM à température nulle reproduit certains aspects des résultats expérimentaux (hystérésis, deux transitions continues et distinctes). Toutefois, il contient certaines insuffisances : l'hypothèse de température nulle laisse indéterminée l'échelle de temps d'évolution du système ; la discrétisation sur une échelle a de l'ordre de l'échelle des fluctuations des propriétés de la surface, mais petite devant la largeur du bord de film épais n'est pas forcément vérifiée dans la réalité ; enfin les hypothèses possibles sur la nucléation de nouvelles phases restent largement arbitraires.

E. But poursuivi

Une observation microscopique de la morphologie du film à la transition de prémouillage apparaît comme particulièrement intéressante pour caractériser les phénomènes, pour conforter, infirmer, ou améliorer la modèle précédent, ou pour en suggérer d'autres. Ainsi l'objectif de cette thèse était de faire expérimentalement l'image de la progression d'un film d'hélium sur une surface de césium à la transition de prémouillage.

Le plan du mémoire est le suivant :

- Dans le chapitre 2 nous décrivons la méthode utilisée pour faire ces images ainsi que la façon dont nous l'avons mis en oeuvre.

- Le chapitre 3 décrit la réalisation des surfaces de césium et la mesure des angles de contact de l'hélium sur ces surfaces.

- Le chapitre 4 décrit l'observation de la transition de prémouillage sur deux types de surface, l'une apparemment assez désordonnée et une autre sur laquelle un envahissement beaucoup plus coopératif est observé.

Chapitre II

Dispositif expérimental

Ce chapitre est consacré à la description de certains éléments du montage expérimental et des procédures utilisées. Nous commencerons par décrire en détail le principe et le fonctionnement de l'appareil optique utilisé (section A), et les aménagements effectués pour l'adapter aux basses températures (section B). La section C présente une discussion des performances obtenues en terme de stabilité et fiabilité. La section D décrit la cellule dans laquelle sont réalisées les expériences et son environnement.

A. Le profilomètre optique de l'ESPCI

L'appareil utilisé est une adaptation d'un profilomètre optique subnanométrique développé à l'ESPCI par A. Boccara, P. Gleyzes et H. St Jalmes, réalisé à partir d'un microscope à contraste interférentiel différentiel. Après avoir rappelé le principe du contraste de phase, nous décrirons brièvement les éléments essentiels de l'appareil de l'ESPCI.

1. Principe du contraste interférentiel différentiel

Le principe est décrit dans le cas d'un microscope travaillant en réflexion, avec une image intermédiaire à l'infini. La figure II.1 représente le trajet d'un faisceau correspondant à un point du champ observé. Ce point est éclairé par les rayons issus d'un point de la source qui forment un faisceau parallèle dans l'espace intermédiaire. Son image à l'infini à travers l'objectif sera reprise par une lentille pour faire l'image finale observée. Pour constituer toute l'image du champ, il faudra considérer l'ensemble des faisceaux correspondants.

L'élément important est un prisme de Wollaston qui est constitué en accolant tête-bêche deux prismes biréfringents d'angle α au sommet dont les axes principaux sont perpendiculaires. Pour les polarisations linéaires principales, il est équivalent à un prisme simple de déviation $\pm\alpha(n_o - n_e)$, où n_o et n_e sont les indices ordinaires et extraordinaires du milieu biréfringent.

Le faisceau incident, polarisé linéairement par le polariseur orienté à 45° des axes principaux, est séparé en deux faisceaux cohérents, correspondants aux deux polarisations principales, et

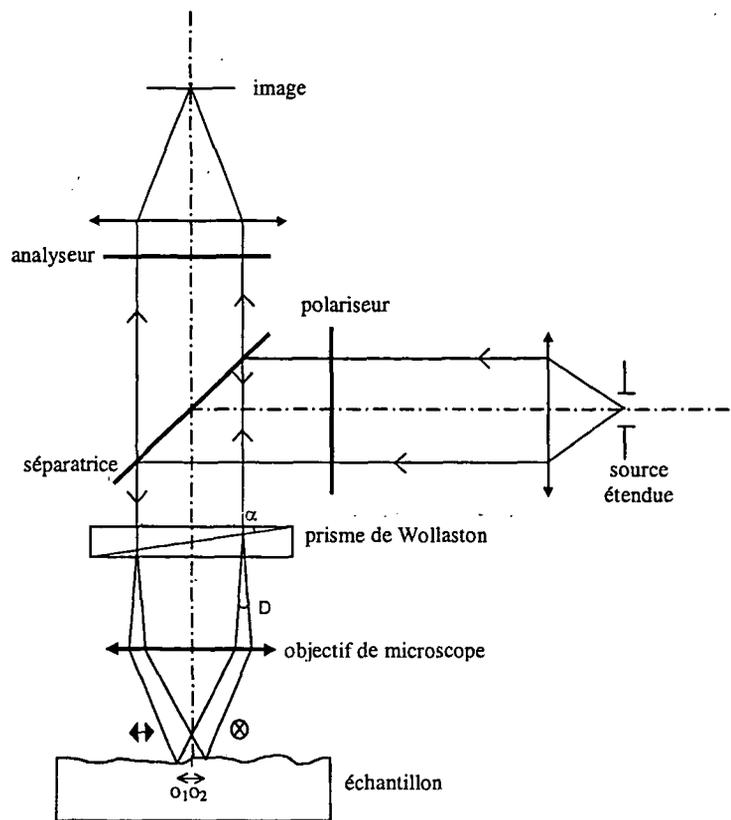


Fig. II.1: Schéma de principe du microscope à contraste interférentiel différentiel.

séparés de l'angle D :

$$D = 2\alpha(n_o - n_e) \quad (\text{II.1})$$

Après passage dans l'objectif, les faisceaux se réfléchissent sur le miroir en deux points voisins o_1 et o_2 , distants de $o_1o_2 = fD$, où f est la distance focale de l'objectif. Un écart d'altitude δz entre o_1 et o_2 se traduit par une différence de phase $\delta\varphi$:

$$\delta\varphi = 2\pi \frac{2\delta z}{\lambda} \quad (\text{II.2})$$

Au retour, les faisceaux font le chemin inverse, sont recombinaés dans le Wollaston et forment une image à l'infini. Un analyseur traduit en différence d'intensité lumineuse le déphasage $\delta\varphi$. La détection de variations d'intensité lumineuse de quelques pourcents conduit à une sensibilité à des différences d'altitude entre les deux points o_1 et o_2 très inférieure à λ .

L'image de la surface apparaît comme le gradient local d'altitude selon la direction de séparation du Wollaston, ce qui la fait ressembler à une photo aérienne prise sous un soleil rasant.

2. L'appareil de l'ESPCI

L'appareil de l'ESPCI est un microscope à contraste interférentiel différentiel en réflexion Olympus, dans lequel le système d'analyse de la polarisation, la source lumineuse et la façon

de produire l'image, ont été modifiés pour obtenir une grande sensibilité. Il est décrit dans la thèse de P.Gleyzes [42], dans le rapport de stage de M.Lebec [43], et dans plusieurs publications ([44] [45]). Nous nous contenterons ici d'en décrire les éléments essentiels.

a. Partie optique

L'analyseur linéaire A originel est transformé en analyseur de polarisation circulaire en interposant une lame de phase ajoutant à $\delta\varphi$ un déphasage φ_M . Ce déphasage est modulé dans le temps et prend alternativement des valeurs opposées auxquelles correspondent deux images $I_{\oplus}(x, y)$ et $I_{\ominus}(x, y)$. Considérons un pixel donné. Soit I_1 l'intensité qui l'atteindrait si on avait $\delta\varphi = \varphi_M = 0$ et P et A parallèles. L'intensité avec les polariseurs croisés et des valeurs quelconques de déphasages est $I(\delta\varphi) = \frac{I_1}{2} [1 - \cos(\delta\varphi + \varphi_M)]$. Pour de petites valeurs de $\delta\varphi$, en faisant osciller φ_M symétriquement autour de 0, on obtient directement un signal

$$S \equiv \frac{I_{\oplus} - I_{\ominus}}{I_{\oplus} + I_{\ominus}} \quad (\text{II.3})$$

proportionnel à $\delta\varphi$ et indépendant de I_1 .

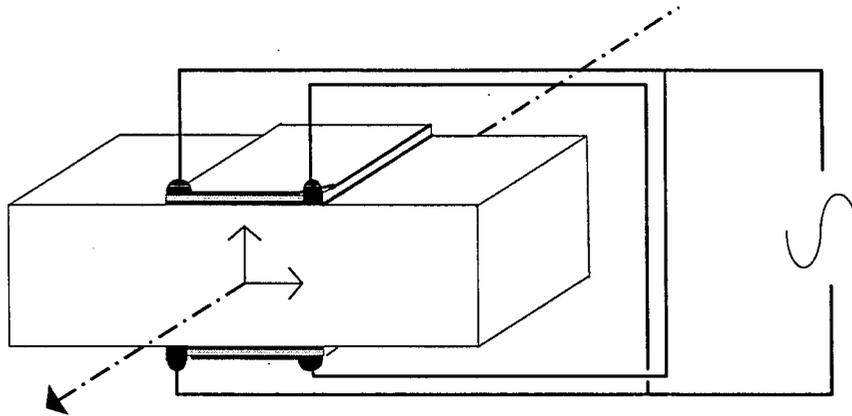


Fig. II.2: Modulateur acousto-optique

La lame de phase ou modulateur, est constituée d'un barreau de silice parallélépipédique excité à sa fréquence de résonance longitudinale $\frac{\omega}{2\pi} = 50$ kHz, par deux plaques piézo-électriques (figure II.2). En se dilatant ou en se contractant perpendiculairement à l'axe optique sur un plan de symétrie du barreau, le barreau devient biréfringent, le déphasage oscillant de façon symétrique par rapport à zéro ($\varphi_M(t) = \phi_M \sin \omega t$). L'acquisition de l'image \oplus se fait pendant une demi-période de l'oscillation, celle de l'image \ominus pendant l'autre demi-période. Comme les caméras courantes ne peuvent pas acquérir une image en $10 \mu\text{s}$ (durée d'une demi-période), la source lumineuse est pulsée de façon synchrone avec l'une ou l'autre des demi-périodes du modulateur pendant la durée d'acquisition d'une image ($\tau_a = 30$ ms dans notre cas). Chaque image \oplus ou \ominus résulte ainsi de l'intégration d'un nombre n_{imp} d'impulsions lumineuses ($n_{imp} \leq \frac{\omega}{2\pi} \times \tau_a$), ce nombre étant limité par la saturation de la caméra. Pour pouvoir être modulée au rythme de 100 kHz, la source lumineuse continue du microscope est remplacée par une diode électroluminescente IR (Hitachi, $\lambda = 761$ nm, $P=35$ mW, ref. : HE7601SG, distribuée par Omnitech) pulsée de

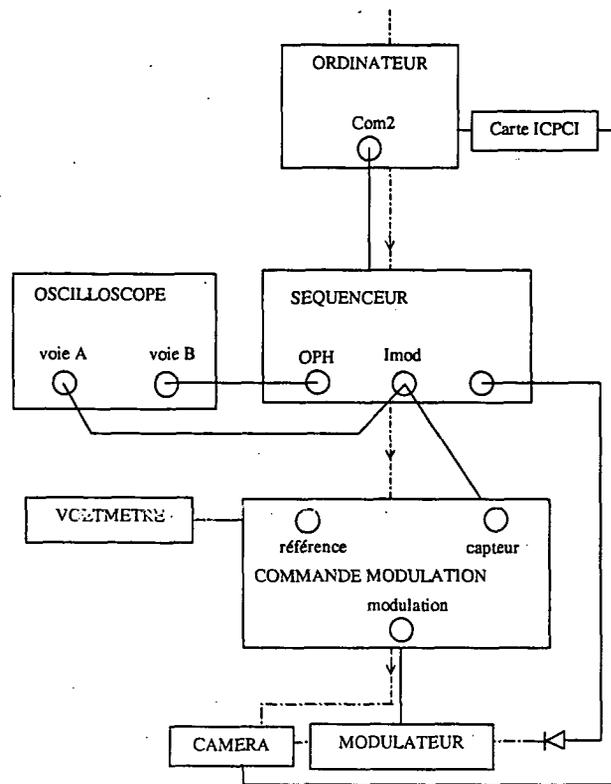


Fig. II.3: Appareillage de l'acquisition et ses branchements. Les flèches indiquent l'ordre de la chaîne de commande.

façon synchrone avec les oscillations du modulateur. Les images \oplus et \ominus sont transférées à un ordinateur où elles sont additionnées jusqu'à un nombre N fixé à l'avance. On réalise ainsi sur toute l'image une détection synchrone à la fréquence $1/2\tau_a$ ($\simeq 17$ Hz) avec une constante de temps d'intégration de $2\tau_a N$ ($\simeq 6$ s pour $N = 100$). On élimine ainsi tous les bruits basses fréquences qui seraient présents si on faisait la différence de deux images prises à plusieurs secondes d'intervalle.

b. Electronique de commande et système d'acquisition

Un appareil appelé "séquenceur" est chargé de synchroniser le modulateur, la source lumineuse, la caméra et l'ordinateur recueillant les données (voir ref. [43] pour plus de détails). Un schéma d'ensemble est donné sur la figure II.3.

La sortie "référence" du boîtier de commande du modulateur fournit une sinusoïde synchrone avec l'oscillation du modulateur qui sert de référence au séquenceur. Ce dernier commande l'allumage de la source aux moments où le modulateur a la phase désirée et la caméra est prête à acquérir une image. La sortie OPH, exactement en phase avec l'alimentation de la LED, permet de vérifier à l'oscilloscope la synchronisation. Les images de la caméra (Dalsa, CAD1, 256×256 pixels) sont digitalisées sur 8 bits par une carte d'acquisition (IC-PCI d'Imaging Technology, avec module analogique AM-VS). Le pilotage du séquenceur et de la carte d'acquisition est effectué par un programme général fonctionnant sous Labview. L'interface comporte les paramètres ajustables suivant : le nombre N de sous-images constituant chacune des images I_{\oplus} et I_{\ominus} , le

nombre N_{imp} d'impulsions de la source constituant chacune des sous-images, les seuils de digitalisation de la carte vidéo, le déphasage entre le modulateur et la LED, l'intensité du courant dans la LED.

c. Les signaux recueillis

Regardons comment s'exprime le signal recueilli en fonction des différents paramètres. Aux déphasages $\delta\varphi(x, y)$ et φ_M s'ajoute le déphasage φ_W introduit par le Wollaston. Pour un appareil correctement réglé, φ_W est indépendant de l'angle d'incidence, donc des coordonnées (x, y) du pixel considéré. Il dépend par contre linéairement de l'écart X_W entre le centre du Wollaston et l'axe optique (le facteur 2 en tête de formule vient du fait que le faisceau passe deux fois à travers le Wollaston) :

$$\varphi_W = 2 \times 2\alpha(n_o - n_e)X_W \frac{2\pi}{\lambda} = 4\pi \frac{DX_W}{\lambda} \quad (\text{II.4})$$

Il faut également tenir compte du fait que le taux de polarisation de la lumière n'est pas parfait. L'intensité I comprend également une partie non modulée I_0 , celle-ci incluant le courant d'obscurité du détecteur. Si I_1 est l'intensité maximale qui passe, l'expression de l'intensité reçue par un pixel (x, y) à un instant t devient alors :

$$I(x, y, t) = I_0 + \frac{(I_1 - I_0)}{2} [1 - \cos(\delta\varphi(x, y) + \varphi_M(t) + \varphi_W)] \quad (\text{II.5})$$

Les intensités I_{\oplus} et I_{\ominus} , enregistrées lorsque la phase φ_M est respectivement positive et négative, s'obtiennent facilement à partir de l'expression (II.5). Le calcul est détaillé dans l'annexe I. Le résultat peut s'exprimer, en oubliant la référence à chacun des pixels, sous la forme :

$$S = \frac{I_{\oplus} - I_{\ominus}}{I_{\oplus} + I_{\ominus}} = S_{\max} \frac{\sin a_0 \sin(\delta\varphi + \varphi_W)}{1 - \cos a_0 \cos(\delta\varphi + \varphi_W)} \quad (\text{II.6})$$

S_{\max} est la valeur maximale de S , atteinte pour $\delta\varphi + \varphi_W = a_0$. Les paramètres a_0 et S_{\max} s'expriment en fonction de l'amplitude de modulation ϕ_M et du contraste

$$c = \frac{I_0}{I_1}$$

entre l'intensité minimum et maximum que l'on peut recueillir sur la caméra d'après la formule (II.5) :

$$\cos a_0 = J_0(\phi_M) \frac{1 - c}{1 + c}$$

$$S_{\max} = \frac{4}{\pi} \left(\frac{1 - c}{1 + c} \right) \frac{1}{\sin a_0} \sum_{k=0}^{\infty} \frac{J_{2k+1}(\phi_M)}{2k + 1}$$

où les fonctions J_l sont les fonctions de Bessel.

Pour de faibles valeurs du déphasage $\delta\varphi + \varphi_W$, la relation se linéarise sous la forme

$$S = \frac{1}{4\pi\kappa} (\delta\varphi + \varphi_W)$$

avec

$$\kappa = \frac{16 \sum_{k=0}^{\infty} \frac{J_{2k+1}(\phi_M)}{2k+1}}{\frac{1+c}{1-c} - J_0(\phi_M)} \quad (\text{II.7})$$

D'après la formule (II.2), l'écart d'altitude δz s'exprime directement en fonction de S si on règle $\varphi_W = 0$:

$$\delta z(x, y) = \kappa \lambda S(x, y) \quad (\text{II.8})$$

La figure II.4 montre κ pour différentes valeurs du contraste et de ϕ_M . La détection d'un taux de polarisation S de l'ordre de 10^{-3} pour un contraste de 0.1 conduit à une sensibilité optique de l'ordre de 30 pm.

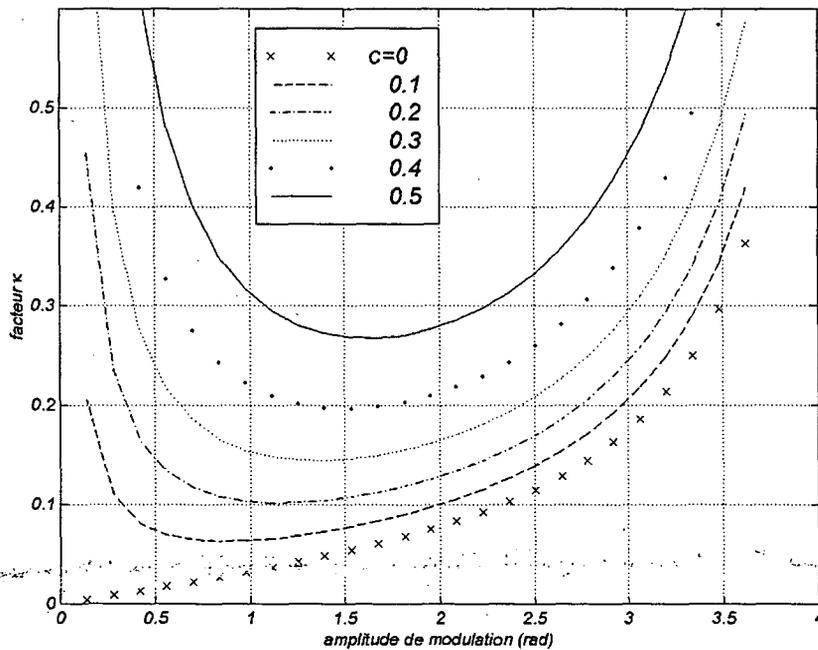


Fig. II.4: La sensibilité κ fonction de l'amplitude de la modulation ϕ_M pour plusieurs valeurs du contraste c .

B. Adaptation du profilomètre optique aux basses températures

Pour pouvoir étudier les propriétés de mouillage d'une surface par l'hélium liquide, cette dernière doit être enfermée dans une cellule étanche placée dans un cryostat. La surface est ainsi

séparée de l'extérieur par au moins deux fenêtres, l'une fermant le cellule, l'autre séparant le vide d'isolement de l'extérieur. Pour assurer une bonne isolation thermique, il est préférable d'avoir deux autres enceintes, donc deux autres fenêtres, à 4K et 77K. Lorsqu'on observe l'intérieur de la cellule avec un microscope situé à l'extérieur, une première difficulté est que les fenêtres se trouvent dans la partie convergente du faisceau et qu'elles induisent des aberrations. Le fait que la distance entre l'extérieur et la surface soit nécessairement de plusieurs centimètres est en soi une deuxième contrainte si on veut conserver un grossissement important pour observer la transition de prémouillage à l'échelle la plus petite possible. Nous discuterons divers arrangements possibles pour résoudre ces problèmes et les raisons du choix que nous avons fait. Nous présenterons ensuite les aménagements pratiques du profilomètre qui ont été réalisés et le reste du dispositif expérimental.

1. Choix d'une solution

Une première méthode consisterait à garder le microscope à l'extérieur et à utiliser un objectif à grande distance de travail (voir par exemple les produits proposés par Ealing). Si on conserve la longueur standard de tube de microscope (160 mm), le grossissement est limité à $\times 3$ pour des distances frontales de plusieurs centimètres. Pour accéder à des grossissements plus importants, il faut travailler avec un objectif de plus grande focale et éloigner proportionnellement l'image. Il faut de plus que l'objectif soit spécialement compensé des aberrations dues aux fenêtres. Dans cet arrangement, il faut également assurer une stabilité de la surface observée par rapport au microscope meilleure que la résolution latérale. Or la partie la plus interne d'un cryostat n'est fixée à l'extérieur que par le haut et la cellule se retrouve ainsi au bout d'un bras de levier de l'ordre d'un mètre. Cette méthode implique donc quelques contraintes : optique spéciale et encombrante, précautions à apporter pour éliminer les vibrations. Un tel dispositif a néanmoins été réalisé avec d'excellentes performances ([46]).

Une deuxième possibilité serait de mettre l'ensemble de l'optique, jusqu'à la caméra, à froid. Des montages de ce type ont été réalisés à Helsinki (ref. [47]). Si on évite ainsi un certain nombre de fenêtres, une telle solution n'était pas envisageable dans notre cas car les prismes de Wollaston ne peuvent être refroidis sans dommages. Ils sont en effet réalisés en collant ensemble et perpendiculairement à leur axe des matériaux dont les coefficients de dilatation sont très anisotropes.

Nous avons choisi une troisième possibilité, consistant à placer l'objectif à froid et le reste du microscope à chaud. On peut alors utiliser des objectifs de courte focale. Les fenêtres se trouvant dans la partie parallèle du faisceau, les problèmes d'aberration sont éliminés, et les éventuelles oscillations de la cellule n'ont plus d'impact sur l'image. Le prix à payer se situe à d'autres niveaux. Tout d'abord, pour faire la mise au point et changer le champ, il faut bouger le miroir par rapport à l'objectif, et ce à l'intérieur de la cellule étanche. Ensuite, le microscope étant maintenant en deux parties séparées, il faut pouvoir aligner leur axe optique (comme les faisceaux sont parallèles dans cette région, ce réglage ne joue que sur un diaphragme supplémen-

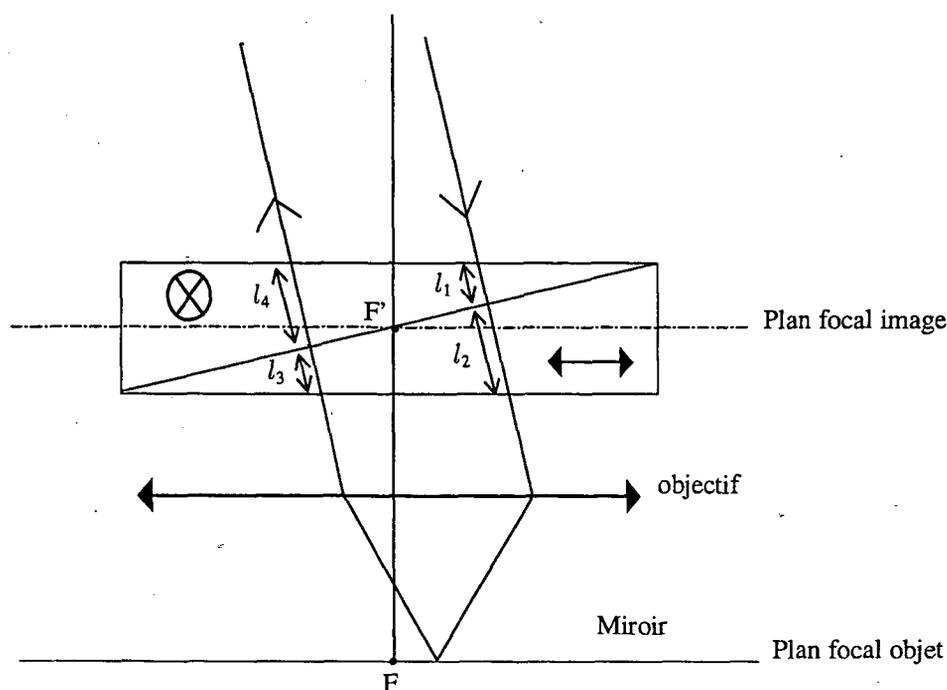


Fig. II.5: Nécessité de placer le Wollaston dans le plan focal image de l'objectif. Parce qu'un faisceau entrant dans la lentille en ressort symétrique par rapport au point focal image F' , on a, si le centre du Wollaston est en F' , $l_1 = l_3$ et $l_2 = l_4$, quelque soit l'angle d'incidence. Les chemins optiques sont alors identiques pour les deux polarisations et valent $(l_1 + l_2)(n_o + n_e)$. Si le prisme est déplacé dans le plan focal, cela ajoute une lame à face parallèle biréfringente et les deux chemins optiques diffèrent d'une constante.

taire éventuel d'un des faisceaux). Le choix de l'objectif à froid a également une conséquence concernant le Wollaston. L'image du miroir se formant à partir des diverses directions des faisceaux de la source, il ne faut pas que ces faisceaux acquièrent une phase différente les uns et les autres lors du double passage à travers le prisme de Wollaston. Pour que cela soit réalisé, il faut placer le Wollaston au foyer image de l'objectif, comme cela est rappelé dans la figure II.5 et dans l'annexe II. Si l'objectif a une courte focale, ce foyer est à l'intérieur du cryostat. Or nous avons vu qu'il était impossible de mettre ces prismes à froid. Nomarski, l'inventeur du microscope interférentiel différentiel, a proposé différentes méthodes (ref. [48]) pour déplacer le prisme du foyer image : utiliser le prisme portant son nom (un prisme de Wollaston dont les axes principaux des milieux biréfringents ne sont plus perpendiculaires) ou bien utiliser deux Wollastons. Nous avons choisi la deuxième solution, car elle permet une plus grande flexibilité.

2. Réalisation pratique

La figure II.6 montre l'ensemble de la cellule et du bas du cryostat. La figure II.7 détaille la partie optique que nous présentons maintenant.

a. L'objectif

Nous avons utilisé pour objectif une lentille asphérique (fabricant Thorlabs) de focale 18.4 mm, de diamètre utile 5.8 mm, traitée anti-reflet 600-1050 nm. Dans la suite, nous donnerons

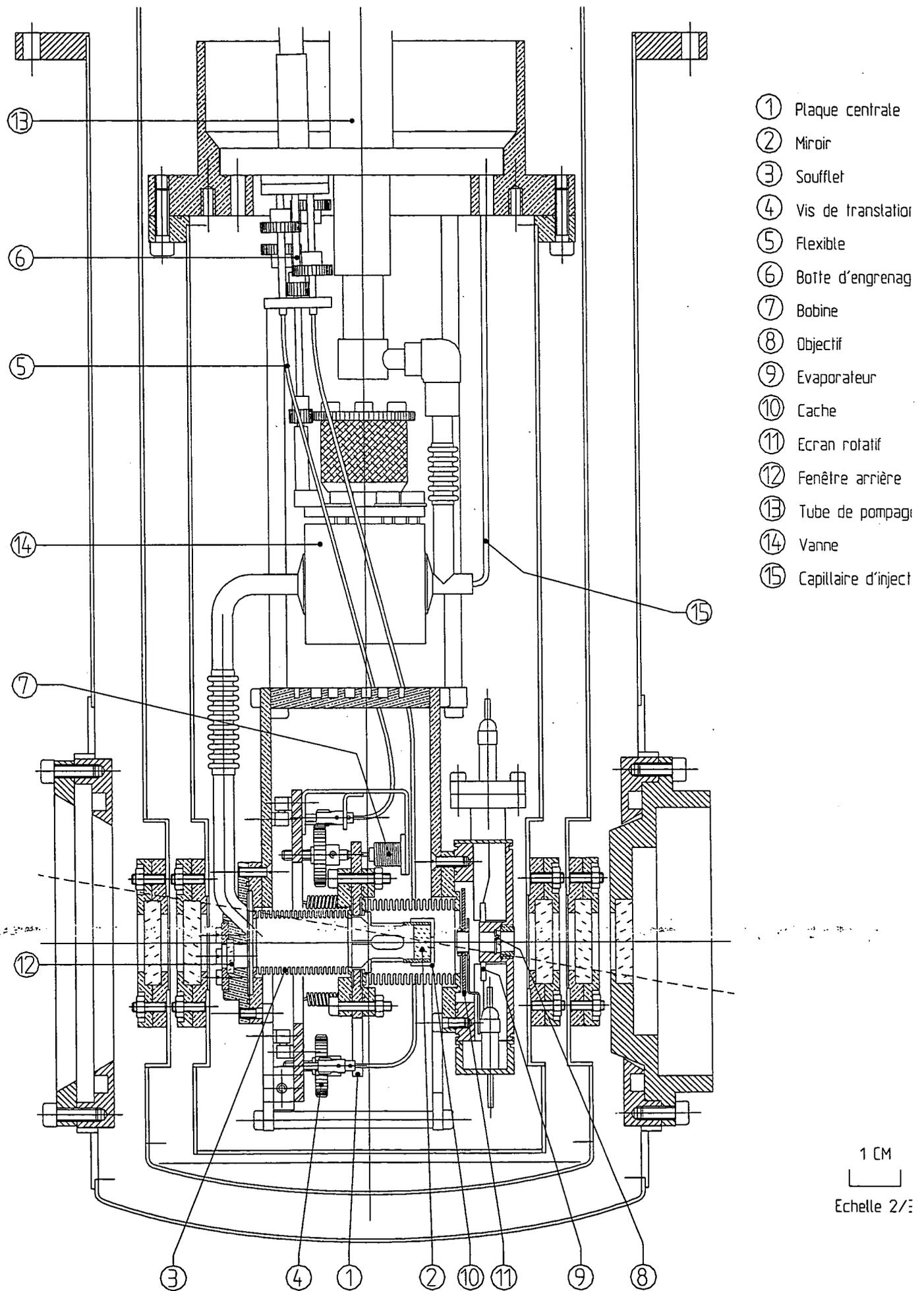


Fig. II.6: Schéma de la cellule et de son environnement.

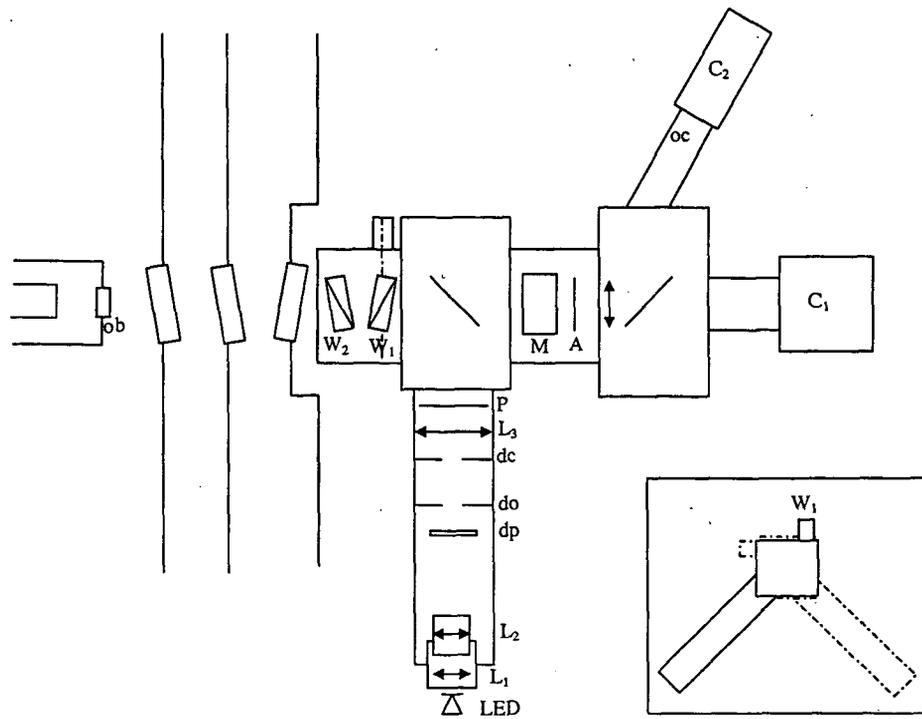


Fig. II.7: Projection de l'optique sur un plan vertical. L_1 et L_2 : lentilles de collection de l'éclairage; dp : dépoli; do : diaphragme d'ouverture; dc : diaphragme de champ; L_3 : lentille de champ. P : polariseur; W_2 et W_1 : prismes de Wollaston; ob : objectif; M : modulateur; A : analyseur; C_1 : caméra de l'acquisition; oc : oculaire; C_2 : caméra d'observation du niveau du liquide. L'encadré montre la même optique projetée dans le plan parallèle au miroir. En traits pleins figure la position de l'ensemble pour avoir une séparation verticale des Wollastons, et en pointillés, celle pour une séparation horizontale.

l'ouverture des optiques sous la forme $NA = \text{rayon utile}/\text{distance focale}$; on a donc ici $NA = 0.1$. Cette focale donne un grossissement de 8.7 et compte tenu de la taille de la CCD, un champ de $450 \mu\text{m}$. On trouve également chez le même fabricant des lentilles de focale 4.54 mm, de diamètre 3.7 mm ($NA = 0.4$), qui permettraient d'obtenir un grossissement de 35. L'objectif est utilisé comme fenêtre d'entrée de la cellule (index (1) sur la figure II.6). Il est monté sur le flasque avant de la cellule avec deux joints d'indium pour l'étanchéité selon le schéma de la figure II.8. L'examen entre polariseur croisé ne révèle pas de biréfringence induite par le serrage.

b. Le système de prismes de Wollaston

Le système de prismes de Wollaston a été entièrement modifié. Les deux prismes W_1 et W_2 sont intégrés dans un bloc cylindrique, bridé sur l'enceinte extérieure du cryostat. Le reste du microscope vient se fixer sur ce bloc par le système de fixation standard conique du microscope Olympus. Le système de bridage permet une translation latérale de ± 0.5 cm dans toutes les directions pour pouvoir ajuster l'axe du microscope sur celui de l'objectif, et laisse également la liberté de tourner l'ensemble du microscope par rapport au cryostat afin de choisir l'orientation de la séparation des Wollastons par rapport au miroir.

La figure II.9 montre comment la succession des deux prismes de Wollaston W_1 et W_2 , de déviations respectives D_1 et D_2 comptées algébriquement, est équivalente à un prisme de

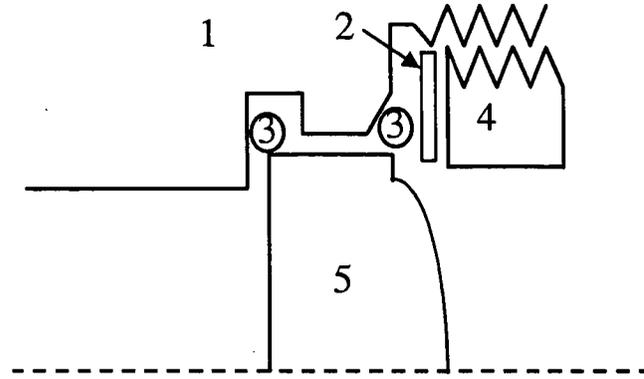


Fig. II.8: Montage de l'objectif (échelle 6 :1). 1 : flasque avant de la cellule. 2 : rondelle. 3 : joints d'indium de diamètre 0.8 mm. 4 : anneau de serrage. 5 : objectif.

déviations $D = D_1 + D_2$ placé en F_W tel que

$$D_1 W_1 F_W + D_2 W_2 F_W = 0 \quad (\text{II.9})$$

(ref. [48]). Pour que F soit à l'extérieur des deux prismes physiques, qui sont hors du cryostat, il faut que D_1 et D_2 soient opposées. Le calcul détaillé de la phase entre les deux faisceaux après un aller-retour dans les deux prismes est fait dans l'annexe II. Ce calcul montre les points suivants :

i) Si F_W est confondu avec le point focal image F' de l'objectif, l'invariance de cette phase au 1^{er} ordre par rapport à l'angle d'incidence i est réalisée dans le cas des deux Wollastons.

ii) Au 2^{ème} ordre en i , cette phase a une variation en selle de cheval du type $i_x^2 - i_y^2$, qui résulte de la dépendance quadratique de l'indice extraordinaire avec l'angle d'incidence. Cela se traduit par l'addition à l'image réelle d'un fond en forme de selle. L'utilisation de deux prismes faits avec des cristaux uniaxes d'anisotropies opposées permet de supprimer cet effet, et de rendre le fond plat à un ordre supérieur à 2.

iii) Pour éviter les réflexions parasites, les faces des prismes doivent être inclinées sur l'axe optique. Pour conserver un fond plat, les inclinaisons doivent être opposées pour des prismes d'anisotropies de même signe, et vice et versa.

Pour avoir une image du gradient d'altitude δz avec la meilleure résolution possible, D est prise au minimum autorisé par la diffraction. Le minimum de D est donc égal au pouvoir séparateur de l'objectif, c'est à dire quand le centre d'une des taches de diffraction est sur le 1^{er} minimum de l'autre, i.e. $D_{\min} = \frac{1.22\lambda}{2r_o}$, avec r_o rayon de l'objectif. Soit pour $\lambda = 760$ nm et $r_o = 2.9$ mm, $D_{\min} = 1.6 \cdot 10^{-4}$ rad.

Nous avons d'abord utilisé deux Wollastons en quartz avec $D_1 = 2'$ et $D_2 = 2.68'$, avec $W_1 F = 4$ cm et $W_2 F = 3$ cm. La distance entre W_2 et l'objectif, 4.8 cm, est suffisante pour que les Wollastons se retrouvent à l'extérieur du cryostat. La séparation totale est $D = D_2 - D_1 = 0.68' = 1.98 \cdot 10^{-4}$ rad et l'espacement entre les deux taches est $\sigma_1 \sigma_2 = f \cdot D = 3.64 \mu\text{m}$. Ensuite, afin d'avoir un fond plus plat, le 2^{ème} prisme a été changé pour un prisme en saphir tout en gardant le même D_2 .

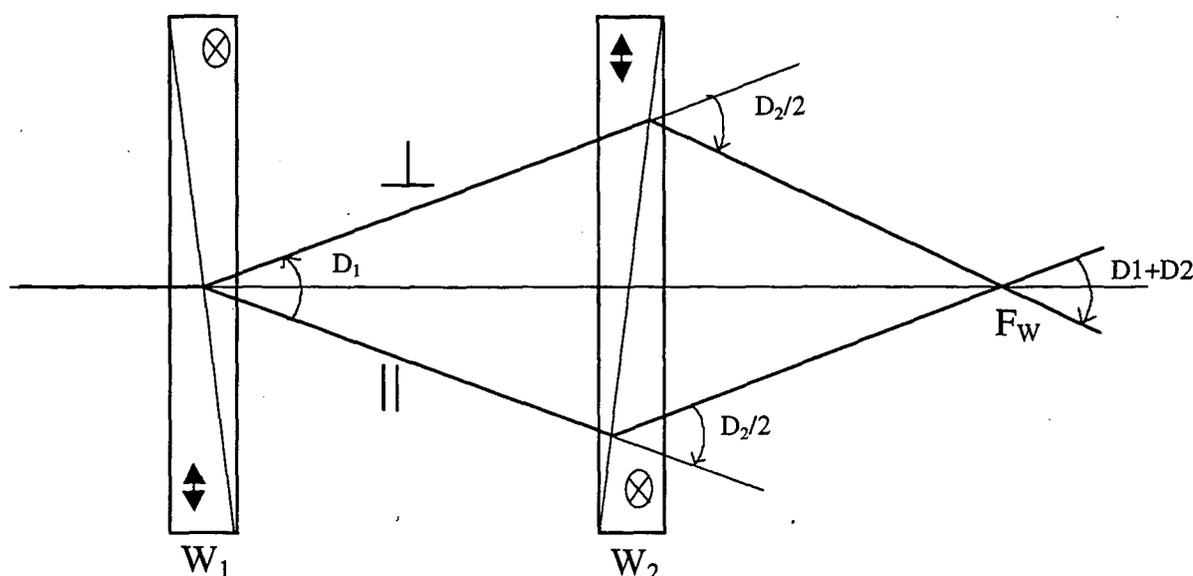


Fig. II.9: Deux prismes de Wollastons W_1 et W_2 jouent le même rôle de séparateur angulaire qu'un seul Wollaston qui serait placé en F_W . La séparation angulaire est la somme algébrique des séparations de chacun des prismes.

Le prisme W_2 est monté sur une platine de translation parallèle à l'axe optique pour réaliser finement la condition (II.9). Le prisme W_1 peut également être traduit, mais perpendiculairement à l'axe optique pour faire varier φ_W et l'ajuster à 0. On peut également régler son inclinaison sur l'axe optique. On fait ainsi coïncider la direction autour de laquelle φ_W est indépendant de l'incidence avec la direction moyenne du faisceau optique.

c. L'éclairage

Le système d'éclairage a été également modifié pour être adapté à la nouvelle géométrie. Le diaphragme d'ouverture (do sur la figure II.7) a été rapproché de la lentille L_3 de façon à ce que son image se fasse sur l'objectif. Pour des raisons d'encombrement cette condition ne peut être remplie exactement. Le diaphragme de champ reste au foyer de la lentille L_3 de façon à ce que son image à travers l'objectif soit dans le plan de la surface observée.

Pour avoir un contraste identique sur toute l'image, on a intérêt à avoir un éclairage aussi uniforme que possible dans le plan de l'image. Pour cela on utilise le fait que l'intensité lumineuse de la LED est constante sur un demi-angle d'ouverture de 45° . On fait alors l'image de la lentille L_1 ($f=3.1$ mm, $NA=0.7$) qui recueille la lumière de la LED sur le diaphragme d'ouverture par la lentille L_2 ($f=18.4$ mm, $NA=0.16$). Toutefois l'ouverture angulaire de la source ainsi faite ($NA=0.09$) est insuffisante pour couvrir celle ($NA=0.16$) de l'objectif. On conserve donc le dépoli dp du microscope Olympus pour l'élargir.

d. L'imagerie

La caméra DALSA est placée au bout du tube image du microscope. Elle recueille l'image produite par la lentille L_4 de focale 160 mm. Sa surface sensible (4.1×4.1 mm pour 256×256),

correspond à un champ de 480×480 (μm)². Pour observer la totalité du champ du microscope (ϕ 2.5 mm), on dispose d'une deuxième caméra vidéo installée à la place d'un des oculaires. Elle permet de surveiller en particulier le niveau du liquide lors du remplissage de la cellule.

C. La cellule et son environnement

Un schéma de la cellule dans son environnement est donné dans la figure II.6. Nous en décrivons seulement les éléments principaux.

e. Description de la cellule

La cellule est constituée d'une plaque centrale indexée en (1), portant le miroir (2), reliée par deux soufflets (3) en nickel mince aux deux flasques avant et arrière qui sont fixes. La plaque peut être déplacée selon quatre mouvements sur quelques mm : trois selon un arrangement point-trait-plan, et un pour une translation transversale perpendiculaire à la figure. La résistance des soufflets est d'environ 1N/mm, que ce soit pour un déplacement longitudinal ou transversal. Les mouvements sont produits par des vis (4) au pas de 0.5 mm. Nous avons essayé d'actionner les pignons avec des moteurs à courant continu Portescap préparés pour fonctionner à basse température selon la méthode mise au point par C. Guthmann (ref. [49]). Toutefois la suppression de toute lubrification rend les moteurs inaptes à une utilisation intensive, les balais s'usant très rapidement. Finalement, les pignons sont actionnés par des flexibles (5), reliés par une boîte d'engrenage (6) à une commande qui se trouve à la tête du cryostat. Suivant le tirage de la commande, sa rotation entraîne un des quatre mouvements.

Pour contrôler les déplacements, compter les tours réalisés sur les flexibles n'est pas pratique. Un circuit LC résonant fonctionnant à quelques MHz va fournir une mesure plus directe : des noyaux de cuivre sont fixés par une de leur extrémité à une tige fixée à la plaque centrale et leur autre extrémité est à moitié enfoncé à l'intérieur d'une bobine (7) qui constitue avec une capacité le circuit résonant. Les noyaux de cuivre blindent le flux et diminuent la self de la bobine proportionnellement à leur pénétration dans celle-ci. Le changement de fréquence de résonance du circuit LC est donc proportionnel au déplacement du noyau sur une certaine plage. L'incertitude sur la mesure des déplacements est de l'ordre de 0.1 mm et suffit à retrouver une région du miroir déjà observée.

Outre l'objectif (8), le flasque avant comporte les deux évaporateurs de césium (9), dont l'utilisation sera décrite plus tard. Un cache en tôle d'inox (10), glissé sur le miroir, permettra d'obtenir une ombre du flux de césium, afin de mesurer l'épaisseur du dépôt. Une plaque aimantée (11) tournant autour de l'axe de l'objectif, permet de bloquer dans sa position horizontale, le flux des évaporateurs. Elle est actionnée de l'extérieur par deux grosses bobines. La position de cet écran peut être vérifiée au moyen de contacts de butée qui se font en position verticale et horizontale.

Le flasque arrière comporte une fenêtre (12) qui permet de surveiller le niveau du liquide dans la cellule, et le tube de pompage (13). Ce dernier peut être fermé par une vanne métallique

(14). Elle est actionnée par la même tige de commande que les mouvements de la plaque, dans une cinquième position. La vanne n'est toutefois pas étanche au superfluide, mais permet de réduire les oscillations thermiques, qui dans certaines conditions se déclenchent dans le tube de pompage.

L'ensemble de la cellule est accroché à environ 20 cm au-dessous du fond en cuivre du vase à hélium du cryostat par un ensemble de barres d'inox triangulé pour augmenter la rigidité. Il permet quelques réglages pour disposer la cellule en face des fenêtres.

L'ensemble du cryostat est incliné de 10° par rapport à la verticale. Ainsi, lorsque le niveau du liquide atteint le milieu du miroir, il n'a pas encore atteint l'objectif. L'horizontale est indiquée par un trait incliné sur la figure.

f. Thermalisation et remplissage

La cellule est entourée d'une enceinte étanche en cuivre thermalisée au bain d'hélium. Suivant les besoins, le volume autour de la cellule peut être évacué, ou bien rempli d'hélium comme gaz d'échange. Dans le premier cas, on peut chauffer la cellule jusqu'à 100 K, en conservant le bain à 4 K. Ceci est utile pour conserver un vide propre dans la cellule tout en élevant sa température, les impuretés éventuelles se piégeant plus haut le long du tuyau de pompage de la cellule.

Il était prévu de refroidir la cellule par un réfrigérateur à hélium 4. Pour éviter dans un premier temps des modifications trop nombreuses du cryostat existant, le réfrigérateur n'a pas été mis en place, et le refroidissement de la cellule se fait en pompant le bain d'hélium, ce qui permet d'atteindre 1.4K. Notons que lorsque le tour de la cellule est vide, la thermalisation de la cellule au bain se fait essentiellement par le film superfluide dans le tuyau de pompage. La température est mesurée par une résistance carbone fixée sur la plaque centrale en cuivre de la cellule, qui est en contact avec l'hélium de la cellule et le miroir. La résolution est de l'ordre du mK à 1.8 K. L'inertie thermique du bain, en particulier près de T_λ , permet de stabiliser la température à quelques mK sur plusieurs heures. La quantité d'hélium du bain autorise une durée d'expérience maximale d'environ 24 h à 2 K. On peut descendre la température de la cellule à 1.2 K en pompant l'hélium de la cellule, dans des conditions d'équilibre thermique cependant plus discutables.

Le remplissage de la cellule en hélium est fait à partir d'une bouteille d'hélium N55 de Air Liquide. Les éventuelles impuretés sont condensées par passage du gaz dans une section de capillaire plongée dans un bidon d'hélium. Le débit de gaz vers la cellule est réglé par une vanne pointeau. Il est évalué en regardant le temps de vidage d'un petit volume tampon V de 200 cm^3 placé avant cette vanne (figure II.10). L'hélium atteint la cellule par le capillaire (15) après avoir traversé le bain d'hélium, où il se condense en liquide. Il faut environ 20 cm^3 de liquide pour que le niveau du liquide soit au milieu du miroir, qui sont condensés en environ 1 h.

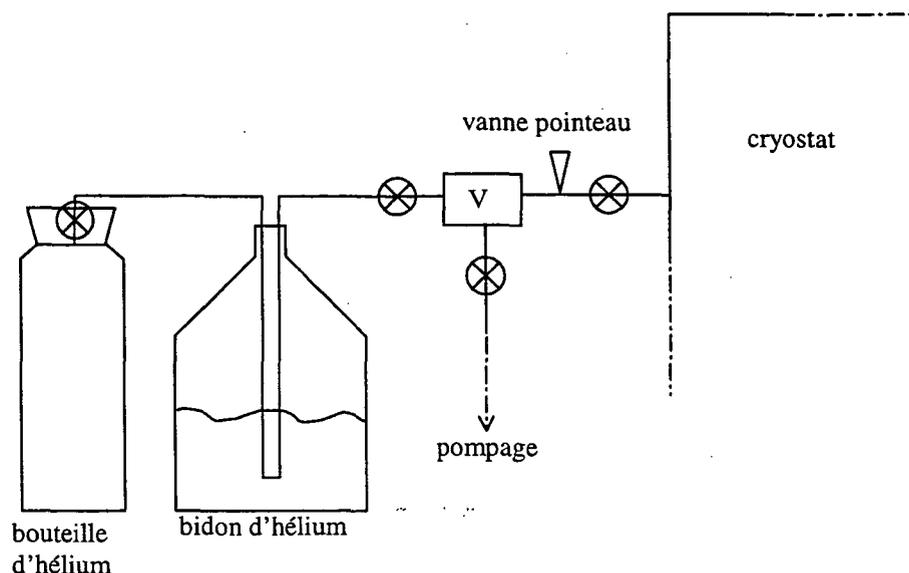


Fig. II.10: Circuit de remplissage de la cellule. Les croix cerclées représentent des vannes.

D. Performances et limitations

Nous discutons dans cette section différentes causes d'incertitudes et d'erreur qui affectent les mesures effectuées avec le profilomètre. Le bruit du système d'acquisition est le plus facile à évaluer. Nous décrivons ensuite comment les signaux sont calibrés et comment certaines composantes parasites des images sont éliminées. Enfin, nous discuterons plus en détail les grandeurs physiques de la surface auxquelles les signaux optiques détectés donnent accès.

1. Bruit du système d'acquisition

Nous considérons ici une surface aussi lisse que possible pour laquelle les signaux optiques recueillis sont traduits comme une carte de gradient d'altitude $\delta z(x, y)$ selon la formule (II.2). On observe que la différence entre deux images prises successivement dans des conditions identiques n'est pas nulle. On obtient un "bruit blanc" dont l'écart quadratique moyen $\sigma(\delta z)$ pour un pixel est donné dans le tableau II.10 pour différents nombres de sous-images moyennées, N .

N	1	10	100
$\sigma(pm)$	458	148	48
$\frac{\sigma(N=1)}{\sqrt{N}}(pm)$	458	145	46

(II.10)

Le bruit $\sigma(\delta z)$ représente la limite de sensibilité du dispositif. Il varie clairement comme \sqrt{N} , ce qui traduit simplement le moyennage de ce bruit avec le nombre d'échantillon. Une analyse de la formule $\delta z = \kappa \lambda S$ pour des intensités moyennes $I_{\oplus} \simeq I_{\ominus} = I$, dont les fluctuations sont non corrélées et de même variance $\sigma(I)$, montre que :

$$\sigma(\delta z) = 2\kappa\lambda \frac{\sigma(I)}{I}$$

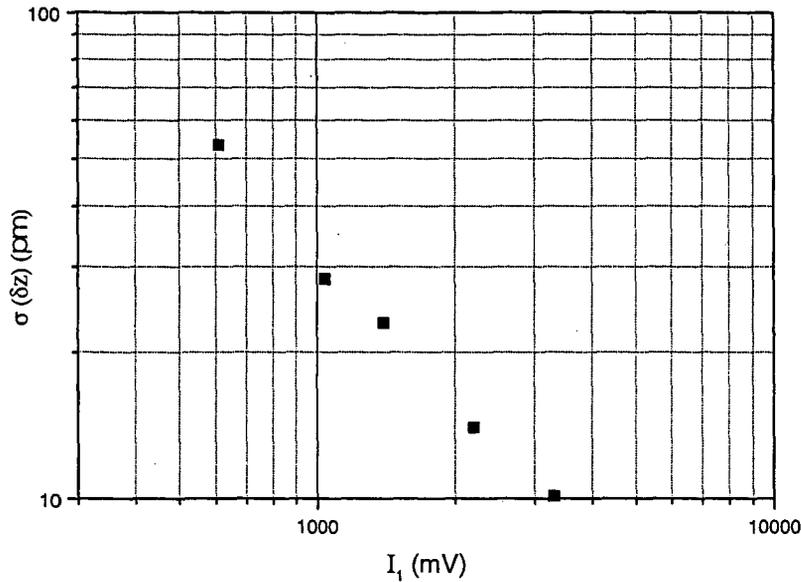


Fig. II.11: Bruit de l'acquisition en fonction de l'intensité lumineuse maximale I_1 . Sur l'échelle log-log, la fonction est une droite de pente -1.

La figure II.11 montre comment varie $\sigma(\delta z)$ lorsqu'on augmente l'intensité lumineuse. $\sigma(\delta z)$ décroît avec I avec une puissance proche de -1 . Ceci suggère que $\sigma(I)$ est encore dominé par un bruit constant probablement d'origine électronique qui masque le bruit de grenaille du photodétecteur. On aurait donc intérêt à augmenter l'intensité lumineuse pour augmenter la sensibilité du dispositif. Toutefois, par crainte de perturber par des effets thermiques les phénomènes observés, nous avons utilisé des puissances de l'ordre de $20 \mu\text{W}$ en sortie de la LED, bien inférieures à sa puissance maximale. En mesurant l'échauffement de la plaque centrale de la cellule lorsqu'elle est vide et isolée, nous avons pu estimer que sur un miroir de cuivre, la puissance absorbée est de l'ordre de $0.3 \mu\text{W}$.

En conclusion, dans les conditions de fonctionnement choisies, la sensibilité de l'appareil est limitée à une différence de hauteur d'environ 50 pm sur une distance de $3.6 \mu\text{m}$.

2. Calibration et traitement des images

a. Détermination des paramètres

Le signal $S(x, y)$ est calculé à partir des deux images $I_{\oplus}(x, y)$ et $I_{\ominus}(x, y)$ fournies par le système d'acquisition. Pour remonter au déphasage $\delta\varphi(x, y)$ d'où l'on tirera $\delta z(x, y)$ par la formule (II.2), ou bien la pente $\delta z(x, y)/o_1 o_2$, on utilise la formule (II.8) si $\delta\varphi$ est petit ou bien le programme de traitement d'image inverse numériquement la relation (II.6). Pour cela, il faut connaître précisément le contraste $c = I_0/I_1$ et l'amplitude de la modulation ϕ_M . A un contraste donné correspond une valeur optimum de ϕ_M qui minimise le facteur κ de l'équation (II.7). Pour des raisons historiques, la valeur couramment utilisée est $\phi_M = 1.97$, soit $1 - J_0 = 0.75$

et $\sum \frac{J_{2k+1}^2}{2k+1} = 0.62$. L'étalonnage de ϕ_M a été fait en introduisant un déphasage fixe entre les deux polarisations avec une lame $\lambda/4$, pour avoir un signal constant sur toute l'image. En comparant l'amplitude de ce signal avec le signal théorique lorsqu'on varie la tension d'excitation du modulateur, on peut déterminer le coefficient de proportionnalité entre le voltage V_M qui repère l'amplitude d'oscillation du modulateur et ϕ_M .

La détermination du contraste doit se faire en principe pour chaque pixel. Pour cela, on prend deux images sans modulation ($\varphi_M = 0$). Pour la première, on ajuste l'intensité (II.5) au minimum I_0 en translatant W_1 , ce qui correspond à $\varphi_W = 0$; pour la seconde, on cherche le maximum I_1 obtenu pour $\varphi_M = \pi$. Le réglage de l'uniformité de l'éclairage permet rarement de faire mieux que 8% sur toute l'image. Une variation de 8% de I_1 conduit pour les réglages courants, à des variations de 3% du facteur κ . Quand on peut tolérer une erreur de cet ordre sur la détermination des épaisseurs, on utilise le même rapport de contraste pour toute l'image, ce qui allège le calcul. C'est en particulier le cas pour les films de prémouillage dont les épaisseurs sont faibles, et l'incertitude relative sur l'épaisseur nettement plus importante que 3%. Au contraire, pour la détermination des angles de contact, les épaisseurs sont importantes, et il vaut mieux utiliser une matrice de contrastes.

b. Vérification de la calibration

Il est prudent de vérifier que l'ensemble de la chaîne d'acquisition et des programmes de traitement donne un résultat fiable. Pour cela, on peut remarquer que c'est la somme $\delta\varphi + \varphi_W$ qui intervient dans toutes les formules. Une variation connue $\delta\varphi_W$ doit produire une augmentation des δz de la quantité $-\lambda\delta\varphi_W/8\pi$.

Pour connaître φ_W , on commence par étalonner la variation linéaire de φ_W avec la translation X_W de W_1 (formule II.4) en mesurant sans le modulateur, l'intensité transmise en fonction de X_W . D'après (II.5), on obtient une variation sinusoïdale dont la période P_W fournit le coefficient cherché :

$$\frac{\varphi_W}{2\pi} = \frac{X_W}{P_W} + cste$$

On trouve $P_W = 0.67$ mm, en accord raisonnable avec la valeur fourni par la formule (II.4), $P_W = \lambda/2D_1 = 0.65$ mm.

On prend ensuite des images en fonctionnement normal pour différentes valeurs de X_W . D'après l'étalonnage précédent, on connaît le déphasage introduit par W_1 , que l'on peut traduire sous la forme d'un

$$(\delta z)_W = -\lambda \frac{\varphi_W}{2\pi} = -\frac{\lambda X_W}{P_W} + cste$$

représenté par la droite sur la figure II.12. Le traitement des images fournit un δz uniforme ajouté au relief de l'image, dont les valeurs sont indiquées par les points de la même figure. Le faible écart entre les points et la droite théorique est de l'ordre de l'incertitude sur le relevé des positions de W_1 . Les pentes des deux concordent à 1% près.

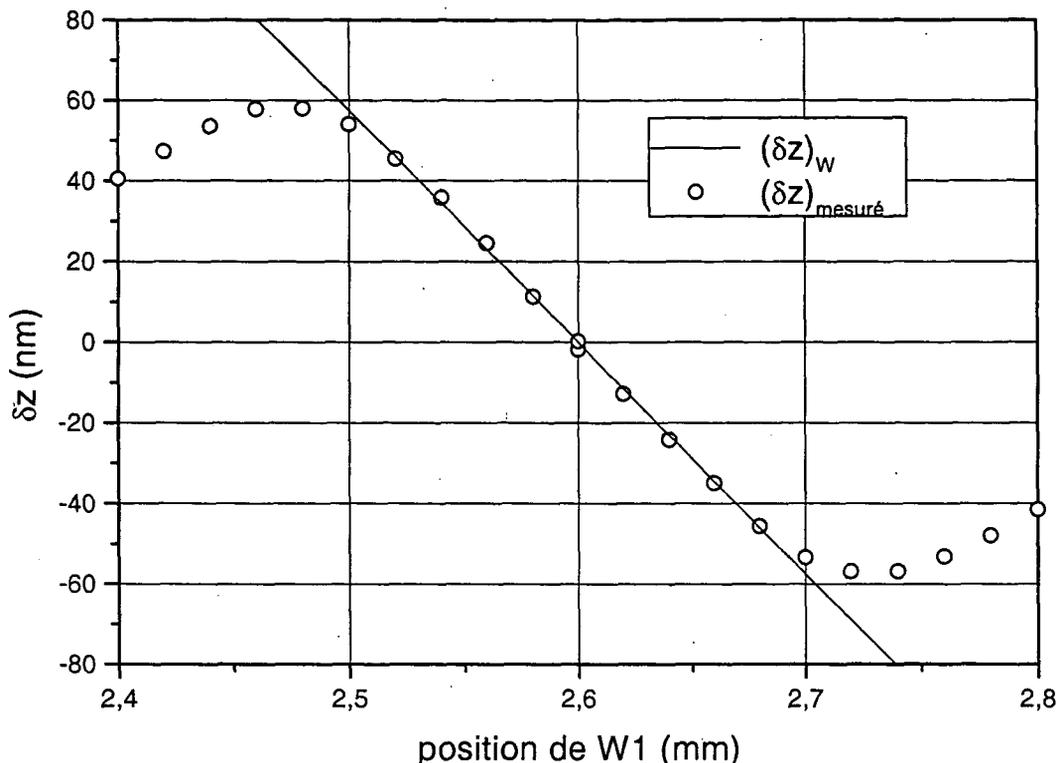


Fig. II.12: δz introduit par les Wollastons en fonction de la position de W_1 (l'origine de cette position est arbitraire). $(\delta z)_W$ est déduit de l'étalonnage de W_1 . $(\delta z)_{\text{mesuré}}$ est la valeur donnée par le système d'acquisition, moyennée sur toute une image.

Notons d'autre part sur la figure, que pour ce choix de l'amplitude de modulation, les δz mesurables sont limités à environ ± 45 nm.

c. Traitement des images

Les traitements qui sont effectués sur les images $\delta z(x, y)$ obtenues peuvent se classer en deux catégories. Un premier type consiste à corriger l'image de défauts connus, ou à faire ressortir l'évolution de l'image par rapport à une image de référence. Un deuxième type vise à calculer à partir de l'image un certain nombre de quantités physiques, qui dépendent du problème considéré. Nous discutons ici la première catégorie de traitement.

Nous avons vu qu'à l'image de la surface se superpose l'image du déphasage $\delta\varphi_W(x, y)$ dû aux Wollastons. Or pour des surfaces bien planes, le fond créé par $\delta\varphi(x, y)$ peut excéder largement le relief propre de la surface. Comme l'information utile se situe souvent à des échelles beaucoup plus petites que la taille de l'image, on améliore notablement la lisibilité de l'image en lui retirant un polynôme du second degré en x et y , ajusté pour minimiser l'écart. Notons que l'on peut faire une telle opération sur une partie de l'image, si l'on a de bonnes raisons de penser qu'elle seule doit être plane. Une fois cette opération effectuée, on a une image de la surface composée

d'un ensemble de δz centré en 0.

Souvent la rugosité propre de la surface est supérieure aux déphasages introduits par les films d'hélium que l'on souhaite étudier. On soustrait alors de l'image en présence d'hélium, une image de la même région en l'absence d'hélium. Toutefois, des effets mécaniques ou thermiques provoquent au cours du temps des déplacements du miroir de quelques μm qui rendent la soustraction imparfaite. On fait alors une recherche automatique de la translation en minimisant l'écart type de la différence. Pour décaler une image de valeurs de x et y ne correspondant pas à un nombre entier de pixels, une interpolation est nécessaire. A l'expérience, cette opération ajoute un bruit d'interpolation qui peut atteindre une valeur maximale de l'ordre de 70 pm. Remarquons également qu'au cours du temps, le fond $\varphi_W(x, y)$ peut lui-même se décaler. Lors de la différence entre deux images, il reste alors un fond linéaire en x et y . Ainsi, lorsqu'on fait une différence de deux images, on est souvent amené à retirer également un plan pour obtenir un fond aussi constant et proche de zéro que possible.

3. Lien entre le déphasage $\delta\varphi$ et les observables de la surface

Dans ce travail, nous aurons à considérer deux types de surface : d'une part des surfaces métalliques, en particulier des films de césium déposés sur un substrat de cuivre ou d'or, et d'autre part des films d'hélium liquide d'épaisseur et de formes variées déposés sur les surfaces précédentes. Dans ces deux cas, il faut relier le déphasage $\delta\varphi(x, y)$ mesuré aux caractéristiques de la surface.

a. Surfaces métalliques

Pour un substrat métallique massif d'indice complexe $n = n_r + i\kappa$, l'amplitude complexe de l'onde réfléchie par rapport à celle de l'onde incidente au niveau de la surface physique, est donnée par la formule de Fresnel en incidence normale :

$$r = -\frac{n-1}{n+1}$$

que l'on écrit

$$r = -\sqrt{R}e^{-4i\pi d/\lambda}$$

où, λ est la longueur d'onde de la lumière,

$$R = \frac{(n_r - 1)^2 + \kappa^2}{(n_r + 1)^2 + \kappa^2}$$

le coefficient de réflexion, et

$$d = \frac{-\lambda}{4\pi} \arctan\left(\frac{2\kappa}{n_r^2 - 1 + \kappa^2}\right)$$

la profondeur de pénétration de l'onde dans le métal.

Tout se passe comme si le faisceau lumineux se réfléchissait sur un plan d'abscisse $z = d$ par rapport à la surface réelle. Le tableau II.11 donne les valeurs de ces différents paramètres pour le cuivre, l'or et le césium, mesurés à la longueur λ .

	n_r	κ	R	d (nm)	λ (nm)	référence
Cs à T_{amb}	0.28	1.65	0.74	-64.8	763	[50]
Au évaporé	0.14	4.266	0.97	-27.8	750	[51]
Cu	0.4	3.55	0.89	-32.8	750	[51]

(II.11)

Le microscope ne mesure donc pas exactement la topographie $z_r(x, y)$ de la surface réelle, mais plutôt celle d'une surface apparente $z_a = \overline{(z_r + d)}_{(x, y)}$, la moyenne étant prise sur la tache de diffraction du microscope. Le lien entre $\delta\varphi$ et z_a est alors

$$\delta\varphi = 4\pi \frac{\delta z_a}{\lambda}$$

δz_a étant la différence de z_a entre les deux spots.

Dans le cas d'un film métallique d'épaisseur e et d'indice n_1 , sur un substrat d'indice n_s , l'amplitude complexe réfléchie est, en prenant toujours la surface du substrat comme référence (voir par exemple [52]) :

$$r = e^{-4i\pi e/\lambda} \frac{r_{01} + r_{1s} e^{4i\pi n_1 e/\lambda}}{1 + r_{01} r_{1s} e^{4i\pi n_1 e/\lambda}} \quad (\text{II.12})$$

avec $r_{01} = -\frac{n_1-1}{n_1+1}$ et $r_{1s} = -\frac{n_s-n_1}{n_s+n_1}$.

Il est facile de vérifier que pour $e = 0$, on retrouve $R = R_s$ et $d = d_s$. Pour une couche épaisse ($e \gg \kappa_1 \lambda$), on trouve bien $R = R_1$ et $d = e - d_1$. Pour des petites épaisseurs on a :

$$R = R_s \left[1 + \frac{8\pi}{\lambda} \text{Im} \left(\frac{n_1^2 - 1}{n_s^2 + 1} \right) e + \dots \right] \quad (\text{II.13})$$

$$d = d_s + \text{Re} \left(\frac{n_1^2 - 1}{n_s^2 + 1} \right) e + \dots$$

L'épaississement apparent diffère de l'épaisseur réelle dans le facteur $\text{Re} \left(\frac{n_1^2 - 1}{n_s^2 + 1} \right)$.

b. Film d'hélium

Comme la polarisabilité optique de l'hélium est faible, les calculs seront faits au premier ordre en $(n - 1)$. On utilise les formules d'empilements de deux systèmes de couches minces. Si la surface est recouverte d'un film d'hélium d'épaisseur e , le coefficient de réflexion initialement égal à r_0 , peut s'écrire sous la forme :

$$\begin{aligned} r = & r_0 e^{4i\pi(n-1)e/\lambda} + \\ & + \frac{n-1}{2} e^{4i\pi(n-1)e/\lambda} - \frac{n-1}{2} r_0^2 e^{4i\pi(n-1)e/\lambda} + \\ & - q \frac{n-1}{2} e^{-4i\pi e/\lambda} + q \frac{n-1}{2} r_0^2 e^{4i\pi(2n-1)e/\lambda} + \text{termes d'ordre } (n-1)^2 + \dots \end{aligned} \quad (\text{II.14})$$

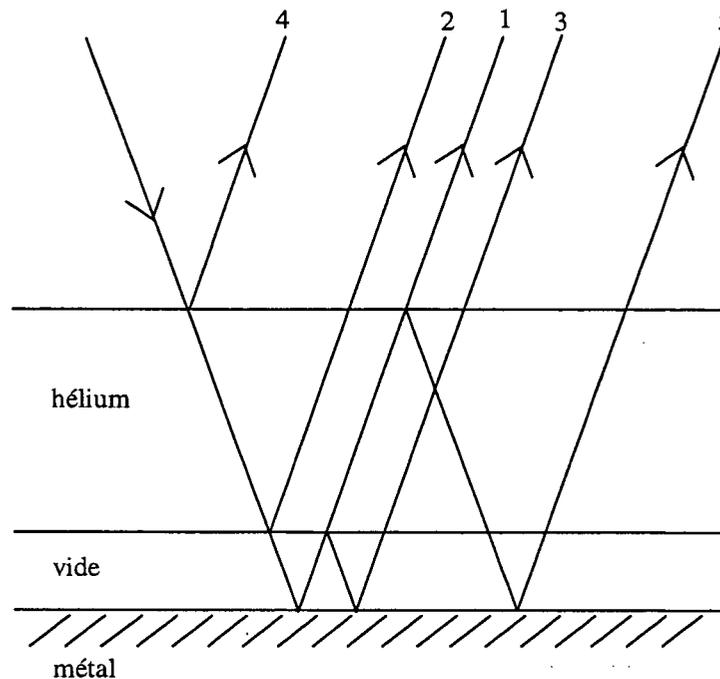


Fig. II.13: L'équation (II.14) vue en termes de réflexions. Les correspondances entre les termes de l'équation et les rayons sont dans le texte.

Le premier terme est l'amplitude réfléchi par le miroir, déphasée par la traversée du film d'hélium à l'aller et au retour (rayon 1 de la figure II.13).

Les termes de la seconde ligne représentent la contribution de la surface du film d'hélium contre le miroir. On peut en effet considérer qu'on a ajouté à l'interface vide/métal, une interface d'hélium/vide qui lui est superposée. La présence de cette interface donne naissance à partir de l'onde incidente à une première onde réfléchi d'amplitude $\frac{n-1}{2}$, déphasée par la traversée aller-retour du film (rayon 2). Elle est décrite par le premier terme de la deuxième ligne. Cette même interface donne également naissance à partir de l'onde qui s'est réfléchi dans le miroir (d'où un premier facteur r_0) à une onde d'amplitude $-\frac{n-1}{2}$ qui est renvoyée vers le miroir, qui s'y réfléchit (d'où un deuxième facteur r_0) et ressort vers le haut (rayon 3). Cette onde subit le déphasage dû à deux traversées du film d'hélium. Cette amplitude est décrite par le deuxième terme de la deuxième ligne de (II.14).

La troisième ligne représente la contribution de la surface libre du film d'hélium. Le premier terme est l'amplitude réfléchi directement à partir de l'onde incidente (rayon 4). Le facteur de phase décrit l'avance de phase due au décalage e par rapport à la surface du miroir. Le facteur q a été ajouté pour tenir compte de l'inclinaison éventuelle de l'interface lorsqu'on a un angle de contact θ non nul. L'onde réfléchi est alors inclinée d'un angle 2θ par rapport à l'axe optique et seule une partie de l'onde réfléchi se trouve dans l'angle solide de l'ouverture du microscope. Ainsi $q = 1$ pour un angle de contact nul, et $q = 0$ pour une inclinaison de la surface égale ou supérieur au demi-angle d'ouverture. Le deuxième terme de la troisième ligne est l'amplitude réfléchi par l'interface libre du film à partir de l'onde réfléchi par le miroir. Elle est renvoyée

s'y réfléchir une deuxième fois, et subit un déphasage correspondant à quatre traversées du film d'hélium (rayon 5). Si l'interface est inclinée, cette onde fait un angle -2θ avec l'axe optique, et elle n'est également que partiellement recueillie par le microscope, d'où la présence du facteur q .

Deux cas simples que nous rencontrerons par la suite sont traités de façon plus détaillée : un film mince parallèle et un coin d'angle supérieur à la demi-ouverture. Le cas du ménisque sera examiné au chapitre III.

i) film mince ($4\pi e/\lambda \ll 1$)

On a alors $q = 1$ et on peut réécrire r au premier ordre en e , et en négligeant les termes d'ordre $(n-1)^2$:

$$r \simeq r_0 \left[1 + 4i\pi(n-1) \frac{e}{\lambda} \left(1 + \frac{1}{2r_0} + \frac{r_0}{2} \right) + \dots \right]$$

d'où

$$d = d_0 - (n-1)e\beta + \dots$$

avec

$$\beta = 1 - \left(\frac{1}{2\sqrt{R_0}} + \frac{\sqrt{R_0}}{2} \right) \cos\left(\frac{4\pi d_0}{\lambda}\right) \quad (\text{II.15})$$

Ainsi la variation d'altitude apparente z_a , due à la présence du film, est l'opposé de l'épaisseur optique $(n-1)e$, multipliée par un facteur d'efficacité β . Les valeurs de β pour différents substrats sont donnés dans le tableau. II.16

substrat	β
césium évaporé	0.213
Au évaporé	0.051
Cu	0.066

(II.16)

ii) dièdre d'angle supérieur à la demi-ouverture

On a alors $q = 0$, et

$$r \simeq r_0 e^{4i\pi(n-1)e/\lambda} \left[1 + \frac{n-1}{2} \left(\frac{1}{r_0} - r_0 \right) + \dots \right]$$

d'où l'on tire

$$d = d_0 - (n-1)e + \frac{\lambda(n-1)}{4\pi} \sin\left(\frac{4\pi d_0}{\lambda}\right) \left(\frac{1}{2\sqrt{R_0}} + \frac{\sqrt{R_0}}{2} \right) + \dots$$

Outre la variation d'altitude apparente due à la couverture (terme $-(n-1)e$), d comprend également une correction à d_0 dont l'ordre de grandeur est $(n-1)d_0$. Elle n'est présente que sur la surface couverte par le liquide.

c. Effet d'amplification

Jusqu'ici nous avons implicitement admis que les films métalliques constituant le substrat étaient faits de matériaux homogènes ayant les propriétés optiques des matériaux massifs. Or il est connu que ce n'est pas souvent le cas ([53]).

i) Tout d'abord l'indice effectif des couches déposées sous vide est différent de celle du matériau massif. Pour le césium, Monin ([54]) fait état de changement des propriétés optiques des couches déposées à 77 K lorsqu'on les réchauffe à 195 K. Il faut donc s'attendre à une certaine incertitude sur les valeurs de d et R à utiliser.

ii) Il existe également des possibilités de résonance avec les plasmons de surface donnant lieu à une amplification des déphasages optiques observés. Cette propriété est d'ailleurs exploitée pour exalter la génération de seconde harmonique ou l'effet Raman produit par des molécules à la surface de certains films métalliques ([55]).

Rappelons que les plasmons de surface sont des excitations électromagnétiques se propageant dans le plan de la surface, et dont les champs décroissent exponentiellement vers l'extérieur et vers l'intérieur du métal. Pour une surface plane, ces ondes ne sont pas couplées aux ondes optiques incidentes sur le métal, et restent donc invisibles. Une rugosité de la surface, ou une inhomogénéité du matériau à une échelle de l'ordre ou plus petite qu'une longueur d'onde optique, a deux conséquences importantes. Tout d'abord, les plasmons de surface se présentent plutôt comme un ensemble de modes localisés latéralement dans le plan de la surface. De plus, ils peuvent être diffusés vers l'extérieur par les rugosités. Inversement, ils peuvent être excités par une onde incidente sur la surface. Ainsi, le champ électrique au voisinage de la surface n'est plus donné par les équations de Fresnel, mais peut être notablement plus important en certains endroits si une résonance γ est excitée.

Voyons maintenant les conséquences pour les signaux optiques recueillis. En l'absence de film d'hélium, on s'attend à des variations locales de la réflectivité mesurée et de la longueur de pénétration apparente d . Un film d'hélium, d'épaisseur e faible par rapport à la portée des fluctuations des champs optiques, va se trouver localement dans des champs plus élevés que ceux prévus par les équations de Fresnel. Le champ E_p créé par la polarisation électrique du film, dans ce champ local, va être plus grand dans la même proportion. Comme c'est l'interférence entre le champ E_p et le champ renvoyé par le miroir qui donne naissance au déphasage que nous mesurons, on s'attend à voir ce déphasage amplifié dans la même proportion. Nous donnons au chapitre IV un exemple où l'on peut supposer qu'un tel phénomène existe.

4. Conclusion

La méthode optique retenue a une sensibilité suffisante pour faire l'image d'un bord de film d'hélium d'une épaisseur de l'ordre d'une dizaine de nm. En revanche, la calibration absolue des épaisseurs peut être affectée par plusieurs phénomènes parasites, dont il faudra tenir compte.

Chapitre III

Production et caractérisation des couches de césium

La qualité des surfaces utilisées est un élément déterminant des expériences de mouillage. C'est également le paramètre le plus difficile à maîtriser et à caractériser. Dans ce chapitre, nous discuterons les différents éléments qui contribuent aux propriétés de mouillage d'une surface de césium, ainsi que les différentes façons de les produire. Puis nous détaillerons la procédure de réalisation utilisée dans ce travail, et les mesures d'épaisseur et de réflectivité effectuées pendant la réalisation des couches de césium. Nous avons choisi de caractériser les propriétés de mouillage des surfaces en mesurant l'angle de contact d'avancée de l'hélium dans l'intervalle de température de 1.4 K à 2 K, qui contient la température de mouillage. Nous décrivons la procédure de mesure de ces angles et les résultats obtenus pour les surfaces réalisées. Ces résultats seront comparés à ceux obtenus par les autres groupes.

A. Surfaces idéales et surfaces réelles

Les propriétés de mouillage d'une surface par un liquide dépendent à la fois des propriétés à courte et à longue distance de l'interaction entre le fluide et la surface. Le cas idéal d'une interaction invariante par translation le long de la surface n'est réalisé avec une bonne approximation que pour la surface non structurée d'un liquide, comme dans les expériences réalisées par J. Meunier, D. Bonn et leurs collaborateurs ([13], [12]). Les surfaces solides comme celle du césium s'écartent de cet idéal de différentes façons que nous allons discuter.

1. Imperfection et désordre des surfaces solides

La meilleure approximation d'une surface idéale est un plan cristallin de haute symétrie. Par exemple, pour le césium qui cristallise dans un réseau cubique centré de paramètre de maille $a_{Cs} = 6 \text{ \AA}$, ce serait un plan du type $[1\ 1\ 1]$ ou $[1\ 0\ 0]$. Même dans ce cas, il faut ajouter à un potentiel uniforme, une modulation décrivant la corrugation du potentiel à l'échelle atomique. On peut remarquer que, pour un plan $[1\ 0\ 0]$, la taille de la maille est 6.08 \AA , alors que la

distance moyenne entre atomes d'hélium dans le liquide est 3.6 Å. Bien que ce point n'est pas fait l'objet d'étude précise, on peut penser que la longueur importante de coeur du potentiel métal/alcalin ($\simeq 5$ Å) contribue à atténuer cette corrugation. Il n'existe à l'heure actuelle aucune évaluation des conséquences d'une modulation aussi microscopique du potentiel d'interaction sur les propriétés de mouillage dans le cas hélium/césium. Si la surface n'a pas exactement l'une des directions précédentes correspondant aux surfaces d'énergie minimum, elle peut se décomposer en marches successives. Ces marches constituent des lignes où l'énergie de liaison des atomes d'hélium présente un maximum dans le creux de la marche et un minimum sur le sommet. On s'attend ainsi à une modulation du pouvoir mouillant dans la direction perpendiculaire aux marches. L'évaluation de cet effet, même qualitativement, est délicate dans la mesure où il résulte de contributions contradictoires de la modification de l'attraction de Van der Waals, et de la distorsion de la densité électronique par la marche. Il en est de même pour tous les défauts d'empilement qui peuvent altérer l'ordre cristallin de la dernière couche.

En fait, bien que des surfaces monocristallines de césium aient pu être réalisées dans des conditions particulières ([56]), on s'attend plutôt à ce que les surfaces réelles soient celles de polycristaux, ou même encore plus désordonnées.

- Si le procédé de fabrication permet aux atomes de césium de diffuser sur la surface pour rejoindre les bords de terrasse plus liants, on s'attend à une croissance locale d'édifices cristallins. On peut obtenir un monocristal uniquement s'il n'y a qu'un seul site de nucléation comme dans la croissance à partir d'une pointe froide, ou si la surface du substrat de départ est celle d'un monocristal judicieusement choisi ([56]). Dans tous les autres cas, les conditions initiales inhomogènes génèrent des polycristaux d'orientations variées dont la taille typique est au plus de l'ordre de l'épaisseur e_{Cs} de la couche de césium construite. On s'attend alors à ce que les surfaces exposées de ces cristaux, fassent des angles avec la surface moyenne, et que les plans cristallins constituant ces surfaces diffèrent d'un point à l'autre sur des distances de l'ordre de e_{Cs} . M. Swift, F. Toigo et M. Cole ([57]) ont cherché à évaluer la variation des propriétés de mouillage avec le plan cristallin exposé. Ils ont montré que selon le plan cristallin en contact avec l'hélium, la variation de la densité électronique pouvait entraîner une variation de 10% de la profondeur du puits de potentiel. Ceci entraîne à 0K une variation de σ_{sl} de $0.03K/\text{Å}^2$, c'est à dire 100% de la variation entre 0K et 2K du pouvoir d'étalement S du film. Il faut donc retenir que les fluctuations de l'orientation du plan cristallin sur un substrat polycristallin sont susceptibles de produire des fluctuations significatives du pouvoir d'étalement. On peut évaluer également l'ordre de grandeur de l'effet des fluctuations de l'orientation de la surface elle-même à un niveau mésoscopique. Si α est l'angle d'inclinaison locale de la surface par rapport à la surface moyenne, le pouvoir d'étalement moyen d'un film épais recouvrant l'ensemble des reliefs supposés faibles est (loi de Wenzel) ([58]) :

$$\overline{S_f} = -\gamma + (\sigma_{sv} - \sigma_{sl}) \left\langle \frac{1}{\cos \alpha} \right\rangle$$

- Lorsque la température est trop basse et que le flux de déposition est important, les atomes n'ont pas le temps de diffuser pour s'arranger en édifice cristallin. On obtient alors une structure

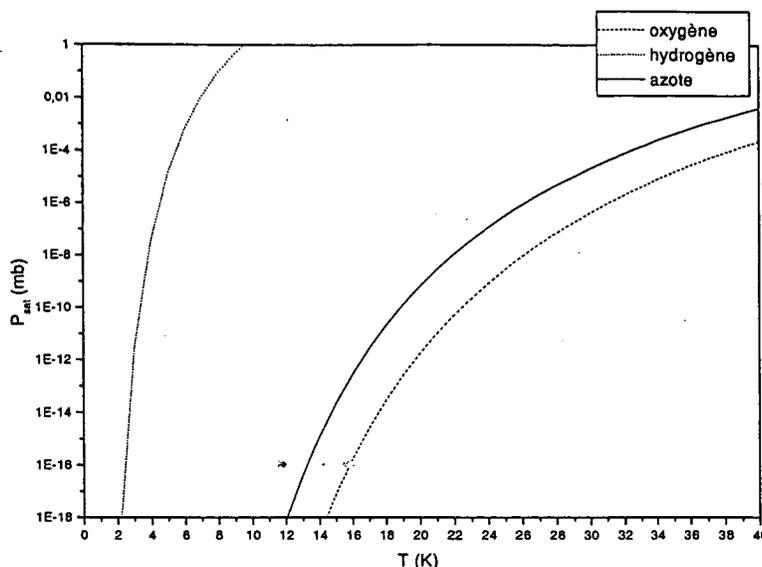


Fig. III.1: Pression de vapeur saturante de gaz susceptibles d'être présents dans la cellule.

désordonnée, éventuellement non compacte, d'autant plus que le flux de déposition est grand. Il est ainsi connu que les miroirs métalliques faits de cette façon sont caractérisés par un coefficient de réflexion et un indice différent du métal massif correspondant. Dans le cas du césium, une telle observation a été faite par Monin ([54]).

2. Pureté chimique

La pureté chimique de la surface dépend d'une part du procédé de fabrication que nous détaillerons dans la partie B, et d'autre part de la pression partielle des contaminants éventuels dans l'enceinte contenant la surface. Pour conserver à une surface ses propriétés originales à mieux que 1% pendant une semaine, il faut que la densité des impuretés en phase gazeuse dans l'enceinte soit inférieure à 10^3 cm^{-3} . Ceci correspond à une pression partielle à température ambiante inférieure à $0.5 \times 10^{-13} \text{ mbar}$, ou $3 \cdot 10^{-16} \text{ mbar}$ à 2 K. De telles conditions de pureté ne peuvent être obtenues qu'à basse température: La figure III.1 donne les pressions de vapeur saturante de quelques gaz susceptibles d'être présents dans la cellule en fonction de la température. Ces valeurs sont extrapolées de données à plus haute température ([59]) en utilisant une formule du type :

$$\log_{10} p_{sat} = \log_{10} T + A - \frac{B}{T}$$

La figure III.1 montre que si les parois de la cellule ou du tuyau de pompage restent au dessous de 13.K, les conditions précédentes sont réalisées pour l'oxygène et l'azote mais pas pour l'hydrogène. Des impuretés éventuelles déposées sur la surface de césium constitueraient des centres plus attractifs pour l'hélium que la surface de césium. Toutefois, il faut mettre à part le cas de l'oxygène qui, en faible quantité, crée des sous-oxydes de césium à faible travail de sortie pour

les électrons. Il peut ainsi diminuer la profondeur du puits du potentiel de Van der Waals et rendre la surface moins mouillable pour l'hélium (voir [20] et [60]). A plus haute concentration, la formation d'oxydes saturés conduit à l'inverse à des zones plus mouillantes.

Les remarques précédentes pourraient laisser supposer qu'il est impossible de préparer des surfaces de césium autrement qu'à basse température. En fait, il n'en est rien grâce à deux propriétés qui font du césium un excellent "getter" permettant de conserver le vide dans des tubes fermés étanches en piégeant en particulier l'oxygène et l'eau. La première propriété est que les oxydes de césium sont solubles dans le métal, la seconde est la tension de vapeur assez élevée pour permettre à la surface du métal de se renouveler. Si la quantité de césium métal dans l'enceinte est suffisante, elle permet une sorte d'autonettoyage de l'oxygène de l'enceinte et un renouvellement de la surface tant que la tension de vapeur du césium est suffisante.

B. Préparation des surfaces de césium

1. Choix d'un procédé

Il existe deux types de procédés pour obtenir un substrat de césium.

On peut utiliser directement la surface d'un métal massif fondu et solidifié à température ambiante. Ce procédé a été utilisé dans les premières expériences de mouillage et prémouillage sur le césium et le rubidium ([61], [62]). Les surfaces obtenues ainsi sont très rugueuses et diffusent la lumière. Elles ne peuvent pas être utilisées comme miroir. Une variante utilisée par Klier et Wyatt consiste à mettre dans la cellule du césium massif et à mettre la cellule à 200 °C pour que la pression de vapeur saturante du césium crée une couche de césium sur toutes les parois lors du refroidissement. Il faut alors choisir des surfaces qui soient mouillées par le césium à ces températures, ce qui est le cas du tungstène. Ce procédé suppose une technologie entièrement ultravide pour la cellule permettant de très bien dégazer les parois, c'est à dire une température supérieure à 200 °C. Ceci est incompatible avec les joints d'indium assurant l'étanchéité de l'objectif. Il faudrait également empêcher le dépôt du césium sur l'objectif. Enfin, ce procédé demande que la cellule soit fermée de façon étanche à température ambiante, puis rouverte in situ à basse température pour permettre son remplissage en hélium, ce qui complique le dessin de la cellule.

Ceci nous a conduit à nous tourner vers le deuxième procédé consistant à déposer sur un substrat froid des couches de césium à partir d'un évaporateur "SAES Getters". Ces sources sont constituées d'un creuset métallique de 12 mm de long et de 1 mm² de surface renfermant un mélange de chromate de métal alcalin et d'un agent réducteur (alliage Zr-Al). Le chauffage par le passage d'un courant de quelques ampères à une température de l'ordre de 800 °K déclenche la réaction et les évaporateurs libèrent leur alcalin ainsi que quelques autres produits en traces infimes. Le flux est fonction de la température et donc du courant de chauffage. La "qualité" des couches de césium produites par ces évaporateurs peut être appréciée, entre autres, par les résultats obtenus dans le groupe de P. Toennis. Dans la référence [56], les auteurs étudient

la structure et les phonons de films alcalins, notamment de films de césium. La référence nous éclaire sur les précautions à prendre pour que le césium évaporé soit bien pur et sur les conditions de croissance : Le substrat est un monocristal de cuivre dont on a préparé une surface [111] par polissage, nettoyage par bombardement ionique, et recuit à un millier de degrés C°. L'ensemble de l'expérience est effectuée dans des conditions d'ultravide. Les évaporateurs sont dégazés une heure avant chaque évaporation. Le dépôt est réalisé à un flux très faible, (1.2 monocouche/min). En fonction de la température T du substrat durant l'évaporation, la croissance de la couche emprunte différentes voies. A basse température ($T=25\text{K}$), la construction du dépôt de césium se fait couche après couche : une couche naît après que la précédente ait été remplie. Aux températures supérieures, une couche commence à croître alors que la précédente n'est pas finie d'être remplie, sans que cela semble nuire à l'ordre cristallin. Mais la surface est constituée de plusieurs plans cristallins. Pour obtenir une bonne couche de césium, la température du substrat ne doit pas être trop froide pour permettre aux atomes de césium de se mouvoir sur la surface, ni trop chaude pour ne pas délocaliser la surface sur plusieurs plans cristallins. Pour le césium sur le cuivre, la température de ce compromis semble être 75K.

Il n'est malheureusement pas possible de reproduire ici les mêmes résultats. Les modalités pour obtenir une surface cristallographique d'un monocristal sont impossibles à réaliser dans notre montage. Mais nous utiliserons les indications générales fournies par les références [63] et [56] pour utiliser les évaporateurs SAES et fixer les conditions de dépôt.

2. Choix du substrat

A défaut d'un substrat plan à l'échelle microscopique, nous avons cherché des substrats présentant un minimum de défauts pour la méthode optique utilisée, c'est à dire bien réfléchissant et aussi peu rugueux que possible. Ainsi la faible surépaisseur correspondant au film d'hélium apparaîtra plus facilement.

Au cours de cette thèse, nous avons réalisé des dépôts de césium sur des substrats de nature et de rugosité différentes. Leur rugosité a été caractérisée en utilisant le profilomètre. La rugosité est prise comme l'écart type des fluctuations de δz , c'est à dire qu'elle est mesurée à l'échelle de la résolution du microscope ($3.6 \mu\text{m}$). Des images sont montrées sur la figure III.2 et le tableau III.1 en récapitule les caractéristiques. Le cuivre avait été choisi pour sa bonne conductivité thermique. Il a été abandonné à cause des difficultés de polissage mais a été utilisé pour une expérience. Une microbalance d'un modèle similaire à celles utilisées dans le groupe d'Amherst a été testé également. Finalement, pour les comportements de films de prémouillage qui sont décrits dans cette thèse, ce sont les miroirs d'or évaporé sur des substrats de silice polie, fabriqués par la société SESO, qui ont servi de substrats aux dépôts de césium.

substrat	fabrication par	rugosité
cuivre OFHC massif	atelier du laboratoire	6 nm
cuivre OFHC massif	société SESO	2.3 nm
or déposé sur microbalance	société Colorado Crystal Corporation	0.5 nm
or déposé sur silice polie optique	société SESO	de 0.1 à 0.5 nm

(III.1)

Notons que ces résultats ne permettent pas de préjuger de la géométrie de la surface à une échelle microscopique.

3. Protocole de fabrication de la couche de césium

L'ensemble des remarques précédentes, et l'expérience, ont conduit à élaborer un protocole de production des couches de césium. Il n'a été appliqué que sur les expériences les plus récentes. Pour les expériences antérieures, la cellule et les évaporateurs ont été moins bien dégazés et les flux étaient plus élevés. Le protocole est le suivant :

- dégazage de la cellule et des tuyaux de pompage pendant une journée à 80°C. En même temps, dégazage des évaporateurs avec une alimentation régulée à 3.8 A (un courant inférieur à celui où démarre la réaction) pendant 5 heures.

- Une fois le cryostat à l'hélium, le miroir est déplacé de telle manière que le microscope observe la limite de l'ombre du cache pour l'un des deux évaporateurs, le droit par exemple (figure III.4, étape 1). Le microscope est orienté de façon à observer le relief dans la direction perpendiculaire à cette ombre (position en pointillé de la figure II.7). Il y a dans le champ du microscope à la fois une zone ne recevant pas de césium, et une zone recevant le flux maximum. Il sera donc possible de suivre la croissance de la couche, aussi bien par la variation de la réflectivité que par la mesure de l'épaisseur.

- L'écran rotatif de la cellule est mis en position de blocage du flux de césium et le courant traversant les évaporateurs est monté en 15 mn à 5.5 A, valeur à laquelle il est maintenu pendant 10 mn pour déclencher la réaction de production du césium. La cellule est en pompage pendant toute la durée du processus.

Le flux de césium dépend de la température de l'évaporateur, qui elle-même dépend du courant qui traverse l'évaporateur, mais aussi de son isolement thermique par rapport à son environnement. Celui-ci peut varier d'une expérience à l'autre et être différent pour les deux évaporateurs. La figure III.3 montre les taux de croissance obtenus pour différents courants au cours d'une expérience. On s'attend à ce que l'allure de la courbe soit la même d'une expérience à l'autre, mais la courbe doit être recalée à chaque expérience pour un courant choisi aux environs de 5 A car on souhaite des taux de croissance faibles (de l'ordre de la monocouche par minute).

- Le courant est ajustée à la valeur choisie et on attend 10 min que le flux se stabilise. L'écran rotatif est alors basculé pour laisser passer le flux de césium pendant quelques minutes. Des images sont prises toutes les trente secondes. Elles donnent accès à la réflectivité et à la

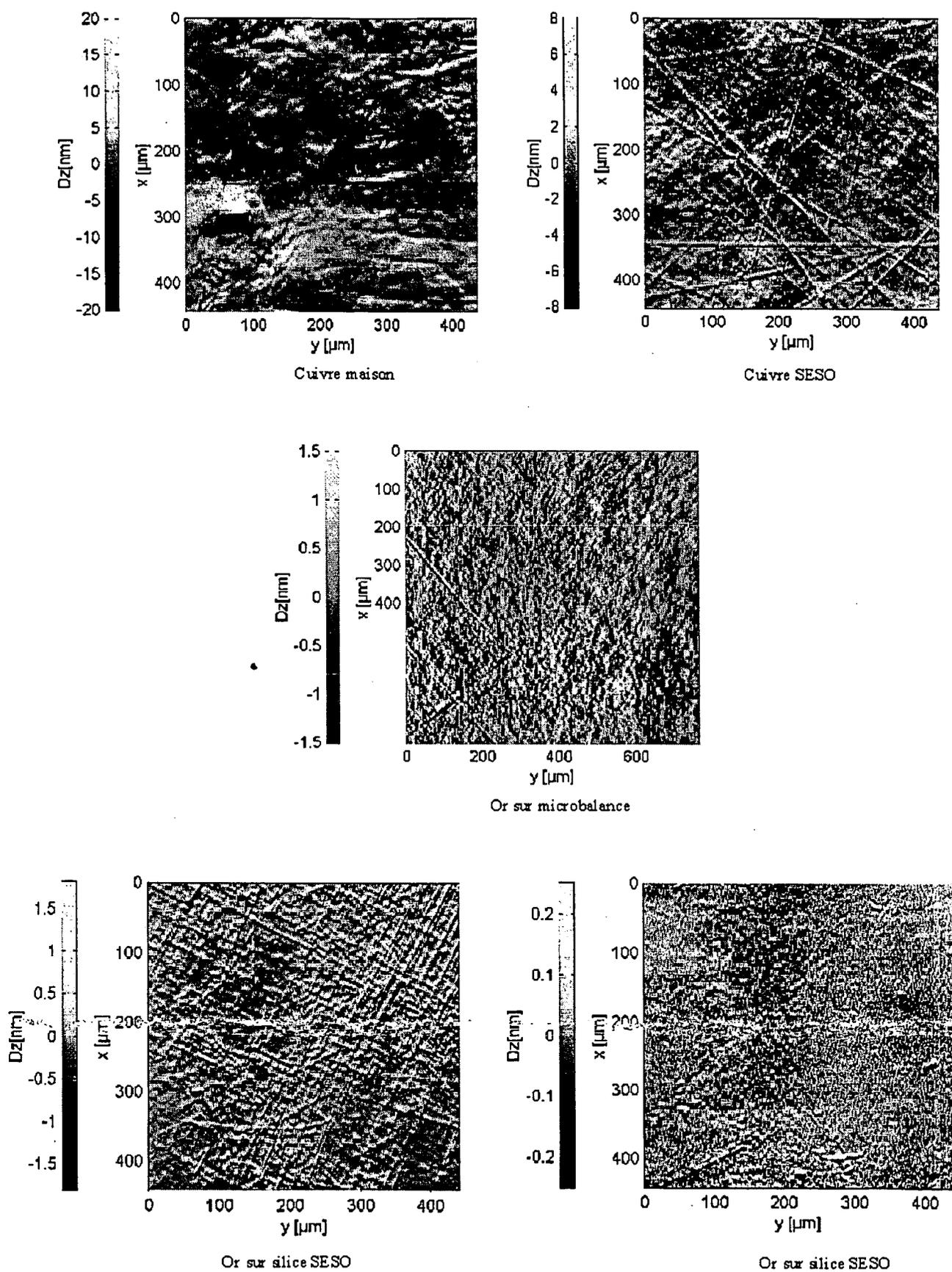


Fig. III.2: Les différents substrats étudiés. Attention, les échelle des δz ne sont pas les mêmes. L'image de la microbalance a été prise avec un objectif $\times 5$.

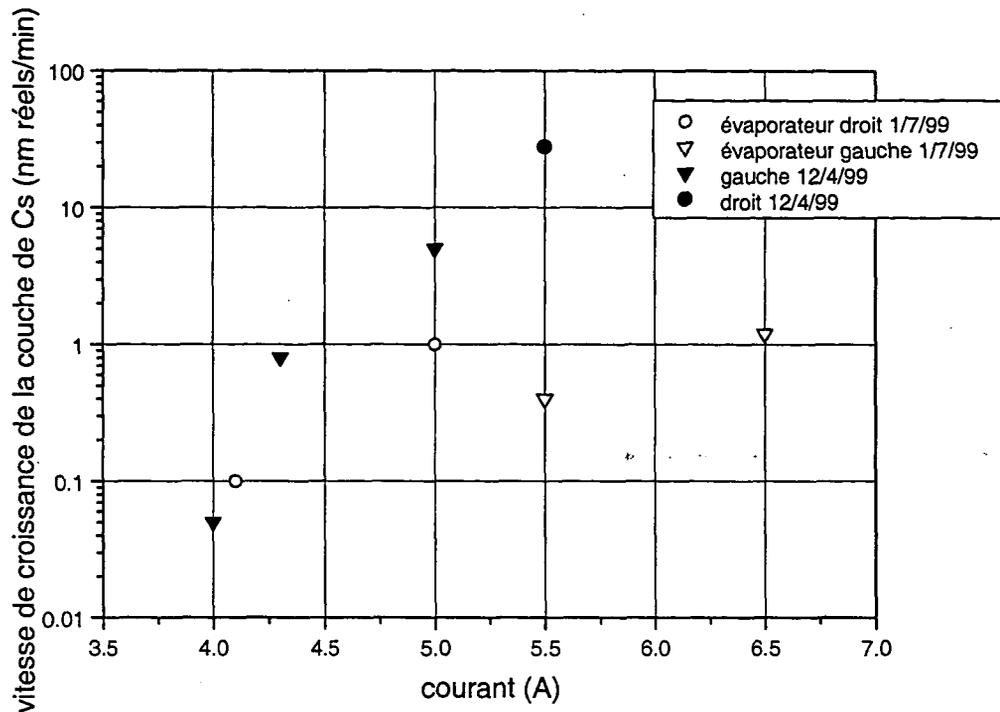


Fig. III.3: Flux des évaporateurs de césium en fonction du courant qui les traverse pour deux expériences.

hauteur apparente de la marche de césium en fonction du temps. Tous les deux nous renseignent sur l'épaisseur réelle de la couche (voir paragraphe suivant).

- Si la vitesse de croissance est satisfaisante, on étalonne l'autre évaporateur en répétant les mêmes opérations de l'autre côté du miroir.

- Une fois l'étalonnage effectué, afin d'éviter que des amas de césium ne créent des zones d'ombres, la couche est créée en utilisant les deux évaporateurs en même temps. Vu la quantité d'hélium dans le bain, l'ensemble des opérations de chauffage doit durer moins d'une heure. Si on a besoin de transférer de l'hélium, les évaporateurs et le chauffage de la cellule sont arrêtés et on recommencera les diverses étapes à partir du chauffage progressif des évaporateurs inclus. Le dépôt est fait à environ 80 K, la température étant mesurée sur la plaque de cuivre centrale qui tient le miroir. La chaleur dégagée par les évaporateurs est complétée par celle d'une résistance chauffante (≈ 3 W) pour que la cellule atteigne cette température. Le fait que la liaison entre la cellule et le bain d'hélium soit faite par des tubes d'inox mince permet d'avoir la cellule à cette température tout en conservant le tuyau de pompage de la cellule à 4 K à la traversée du bain.

4. Suivi de la croissance pour quelques surfaces

Nous détaillerons ci-dessous les paramètres relevés lors de la croissance des deux couches de césium qui ont donné lieu à des expériences de prémouillage détaillées. Elles sont dénommées "surface 1" et "surface 2". Nous verrons dans la suite que la première apparaît nettement plus

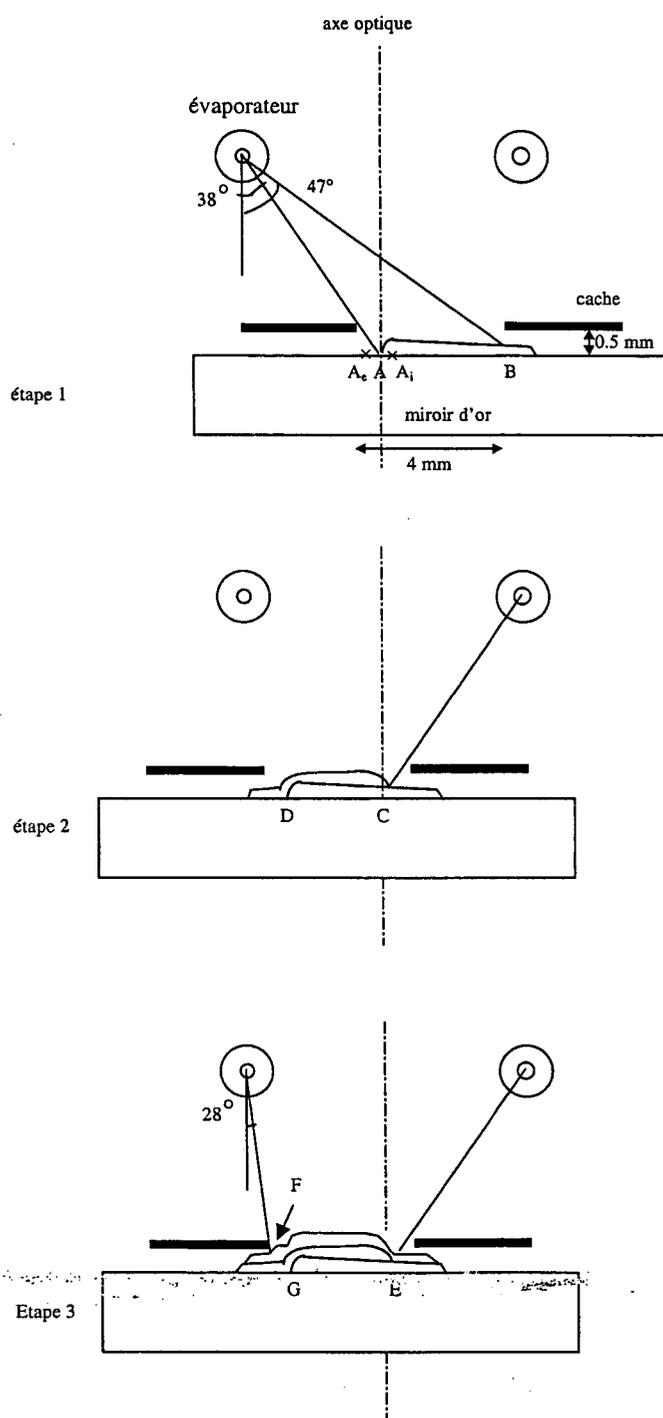


Fig. III.4: Géométrie et étapes du dépôt de la couche de césium. Les deux premières étapes servent à l'étalonnage des évaporateurs. A l'étape 3, les évaporateurs marchent de concert. Les traits pleins sont les flux d'évaporation à chaque étape. Les lettres désignent les différentes marches observables. Dans le texte, les épaisseurs labellées X_i ou X_e font référence aux épaisseurs de chaque côté de la marche X , respectivement côté intérieur du cache par rapport à l'axe optique et côté extérieur. Notons que le flux en B de l'évaporateur est 0.67 fois celui en A . De même le flux en D est 0.7 fois celui en C .

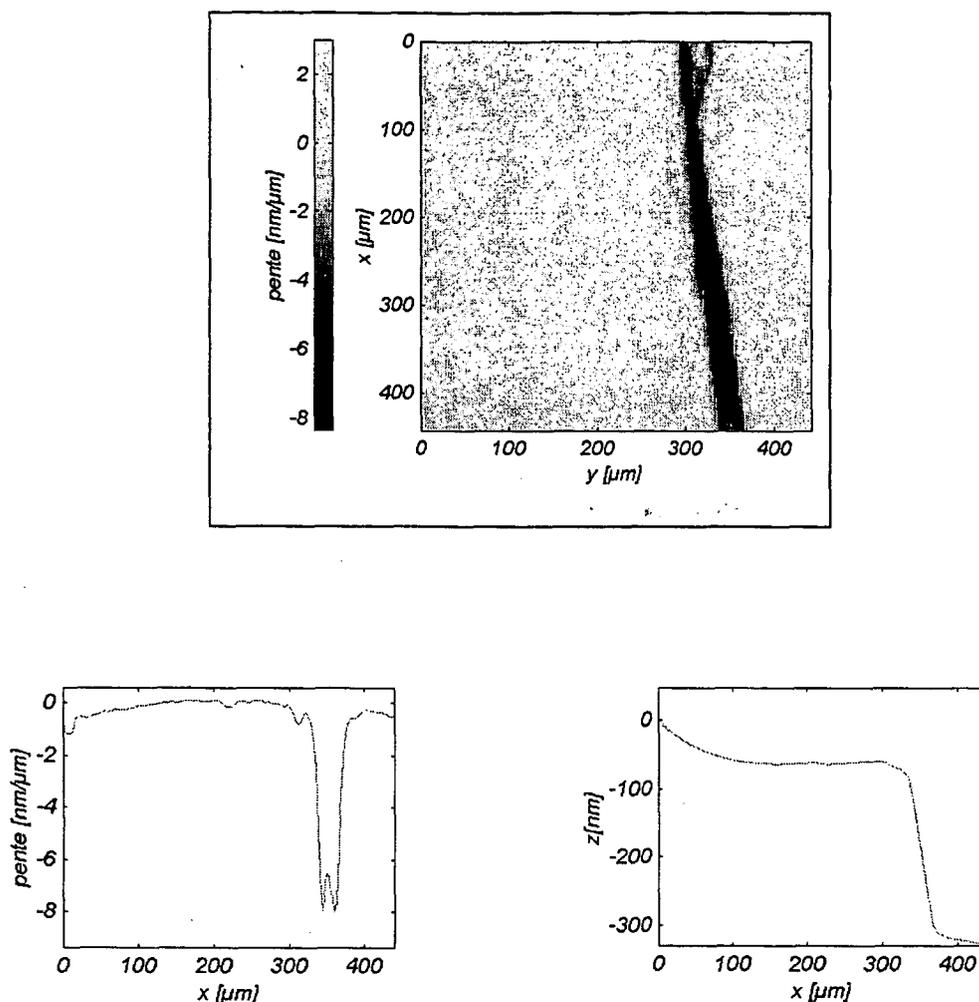


Fig. III.5: Image de la marche située en F de la surface 1, moyennée sur un tiers d'image (profil de gauche) et intégrée (profil de droite).

désordonnée que la seconde.

a. Surface 1

Le protocole de production de la surface 1 diffère légèrement de celui exposé au paragraphe 4. Le dégazage des évaporateurs a été fait alors que le cryostat était froid avec un courant de 3 A pendant 3 h. De plus un problème de mesure de courant traversant un des évaporateurs a eu comme conséquence la production d'une couche très épaisse. La figure III.5 montre l'image de la marche située en F , ainsi qu'une coupe moyennée sur un tiers d'image et son intégration. Le long de la marche, la hauteur apparente de marche varie entre 200 et 300 nm. Vu les longueurs de pénétration de la lumière dans le césium (-63 nm) et dans l'or (-28 nm), la différence entre épaisseur apparente et épaisseur réelle sera négligeable, ainsi que les hauteurs des autres marches, nettement plus faibles. On en conclut que l'épaisseur réelle déposée est $e_1 \simeq 250$ nm et qu'elle l'a été au rythme de 40 nm/min.

Pour trouver la réflectivité, il nous faut faire quelques étapes intermédiaires. Durant la pre-

mière étape, $(I_{\oplus} + I_{\ominus})_{A_i}$ (voir la figure III.4 pour la référence des lettres indicées aux différentes marches de césium) a été multiplié par 0.985. Le flux de césium de l'autre côté étant 0.67 fois plus faible, $(I_{\oplus} + I_{\ominus})_B$ a été multiplié par $(1-0.985)*0.67=0.99$. La variation de réflectivité étant faible, nous avons fait l'hypothèse qu'elle était linéaire en l'épaisseur. Nous ne pouvons pas mesurer directement cette réflectivité parce que, à même réflectivité, le flux lumineux change lorsque le miroir est déplacé. Dans la 2^{ème} étape $\frac{(I_{\oplus}+I_{\ominus})_{C_i}}{(I_{\oplus}+I_{\ominus})_B} = 0.990$, et dans la 3^{ème} étape $\frac{(I_{\oplus}+I_{\ominus})_{E_i}}{(I_{\oplus}+I_{\ominus})_{C_i}} = 0.826$. En appliquant trois fois la formule I.3 de l'annexe I qui donne la réflectivité en fonction du signal, on en déduit les réflectivités relatives des surfaces B/A , C/B , E/C (pour cette expérience on avait $I_p = 1575mV$, $I_{np} = 125mV$ et $I_{ob} = 75mV$). D'où la valeur de la réflectivité de la surface de césium par rapport à celle de l'or :

$$\frac{R_1^{(Cs)}}{R^{(Au)}} = 0.79 \pm 0.02$$

En utilisant la valeur de $R^{(Au)}$ de l'or évaporé donnée au chapitre 1, on trouve

$$R_1^{(Cs)} = 0.76 \pm 0.02$$

Cette valeur n'est pas très différente de la valeur calculée (0.74) avec l'indice du césium évaporé donné au chapitre 1. Nous utiliserons dans la suite cet indice.

b. Surface 2

Le protocole de fabrication est celui exposé au paragraphe 4. La couche étant nettement plus mince que celle de la surface 1, nous ne pouvons pas négliger l'effet des longueurs de pénétration. Pour cela, regardons la progression des épaisseurs au cours des étapes de l'évaporation. Les étapes sont celles décrites sur la figure III.4.

Etape 1 : L'épaisseur apparente de la marche A , intégrée sur sa largeur ($20 \mu m$), est de 7 nm. La figure III.6 montre l'épaisseur apparente d en fonction de l'épaisseur réelle e de la couche pour une couche de césium sur un substrat d'or, calculée d'après la formule II.12. Dans le cas d'une couche inhomogène, la surface apparente est à une altitude d correspondant à la valeur locale de l'épaisseur réelle e . Le profilomètre mesure le gradient d'altitude de la surface apparente, pris sur $3.6 \mu m$. En intégrant ce gradient d'altitude, on obtient la différence d'épaisseur apparente par rapport au point initial. Si on part d'une région non couverte, celle-ci vaut zéro. Sinon, il faut connaître l'épaisseur initiale. A 7 nm d'épaisseur apparente intégrée correspond une épaisseur réelle en A_i de 22 nm. Compte tenu de la variation de flux entre A et B , l'épaisseur réelle en B est de l'ordre de $22 \text{ nm} \times 0.67 = 14.7 \text{ nm}$. L'incertitude sur la mesure de l'épaisseur apparente vient des fluctuations d'épaisseurs sur la zone de détermination, c'est à dire une demi-image. Elle est de 0.4 nm. Il lui correspond une incertitude d'épaisseur réelle de 2 nm en A_i et 1.3 nm en B . La vitesse de dépôt durant cette étape a été en B de 28 nm/min.

Etape 2 : L'épaisseur apparente en C est 4.5 nm. En tenant compte du fait qu'il y a sous cette marche 14.7 nm d'épaisseur réelle de césium, la variation d'épaisseur réelle correspondante est 10.6 nm, soit au total une couche en C_i de 25.3 nm. L'épaisseur réelle en D_i est maintenant

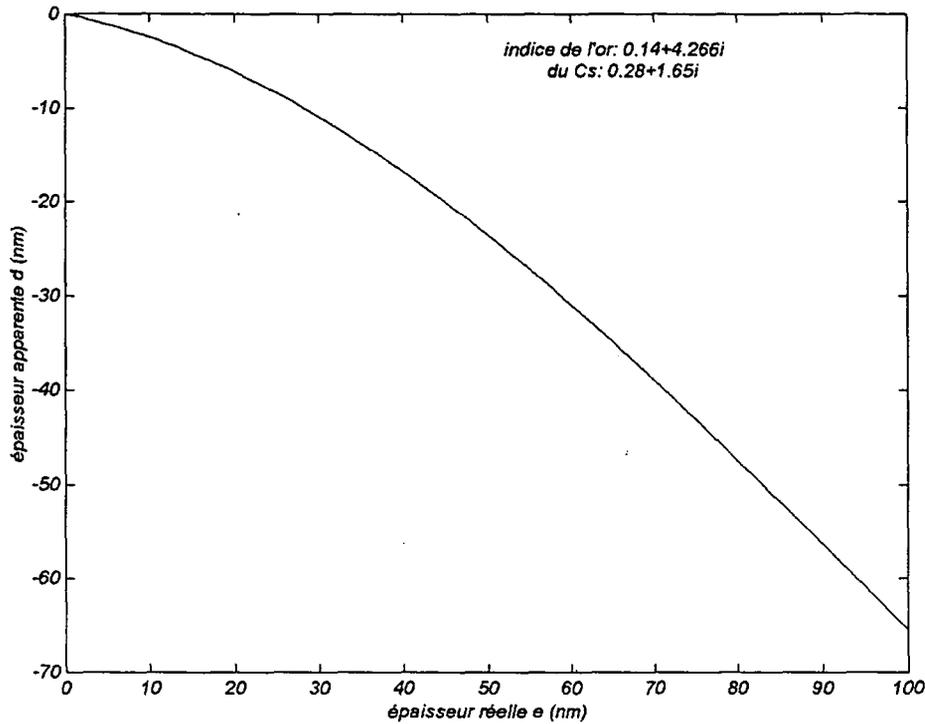


Fig. III.6: Courbe d'épaisseur apparente d en fonction de l'épaisseur réelle e pour une couche de césium sur un substrat d'or et pour les indices notés en haut et à droite de la courbe.

celle en $D_e = 10.6 * 0.67 = 7.1$ plus celle de A_i (22 nm) soit 29.1 nm. La vitesse de dépôt en C_i a été 5 nm/min.

Etape 3 : Les deux évaporateurs marchent simultanément. Nous ne pouvons pas passer directement des épaisseurs apparentes mesurées sur chacune des marches en E et en F aux épaisseurs réelles, car il faut connaître la nouvelle épaisseur extérieure à chacune des marches. Nous procédons par itération. Imaginons d'abord que l'évaporateur opposé à E n'y a rien déposé. L'épaisseur de référence est alors celle B_i , soit 14.7 nm. De l'épaisseur apparente, 10, 7 nm, on en déduit la dénivellation réelle correspondante, 22 nm. On en déduit l'épaisseur réelle en F_e : $22 * 0.67 = 14.8$ nm. L'épaisseur apparente de la marche F , 3.4 nm, correspond à une épaisseur réelle de 8.26 nm. On en déduit l'épaisseur réelle qui s'est déposée en E_e que l'on ajoute aux 14.7 nm initiaux. On corrige alors les calculs précédents, et ainsi de suite jusqu'à convergence. Après plusieurs itérations, on arrive au résultat : épaisseurs réelles en E_i , $e = 40.6 \pm 3.0$ nm et en G_i , $e = 43.9 \pm 3.7$ nm. L'étape 3 a été réalisée en deux fois, la première à la vitesse de 1.3 nm/min, et le dépôt final pour une épaisseur de l'ordre de 1 nm, à la vitesse de l'ordre de 0.3 nm/min.

Nous ne pouvons pas comparer cette épaisseur à celle donnée par la baisse de réflectivité, car le courant d'obscurité de la caméra a semble-t-il varié notablement au début des mesures.

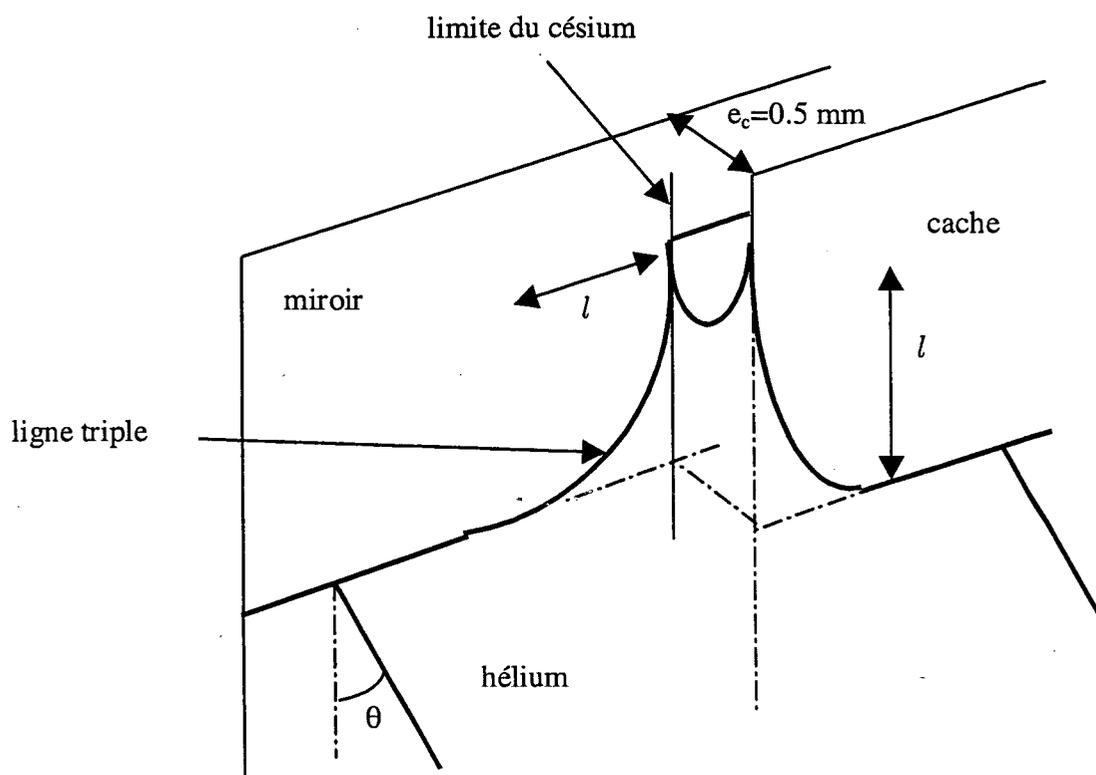


Fig. III.7: Effet de l'ascension capillaire de l'hélium sous le cache. L'ascension capillaire vaut $l = \frac{l_c^2}{e_c} \simeq 1$ mm pour $l_c = 0.7$ mm à 1.8 K.

C. Mesure des angles de contact

Afin de caractériser les surfaces de césium obtenues et de les comparer à celles des autres groupes, nous avons mesuré sur chacune d'elles les angles de contact de l'hélium en fonction de la température. Nous décrirons d'abord la manière dont sont obtenues expérimentalement les images de l'hélium mouillant partiellement la surface. Nous calculerons ensuite le profil théorique à travers la fonction d'appareil du ménisque associé à un angle de contact donné. Ceci nous permettra de déterminer les angles à partir des images obtenues.

1. Procédure expérimentale

La mesure des angles de contact doit se faire avec une ligne triple non courbée. L'hélium mouille le miroir dépourvu de césium sous le cache. Il y subit une ascension capillaire qui courbe le ménisque à proximité des bords du cache sur une région d'environ 1 mm de large (voir figure III.7). Les angles sont mesurés hors de cette région.

L'injection d'hélium se fait à la température désirée, et est arrêtée lorsque l'on voit dans la caméra regardant à travers l'oculaire, le haut du ménisque proche du champ de la caméra d'acquisition. Après l'arrêt de l'injection, le liquide continue à monter lentement, parce que l'hélium condensé dans le tuyau de pompage s'écoule au fond vers la cellule. La ligne triple traverse la zone observée à la vitesse de l'ordre de $1 \mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$. On prend une série d'images de

l'avancée du ménisque sur la surface avec le profilomètre mesurant le gradient de couverture dans la direction perpendiculaire à la ligne triple. La figure III.8 montre un exemple de telles images.

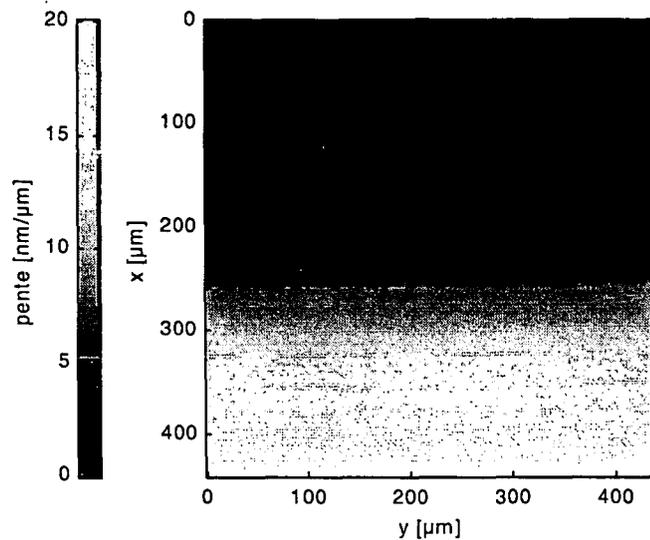


Fig. III.8: Image du liquide mouillant partiellement la surface. L'angle de contact est de l'ordre de 20° . La surface sèche est la partie supérieure de l'image, le ménisque, la partie inférieure. L'angle de contact non nul apparaît à travers la discontinuité de la pente à la ligne triple.

On y voit clairement que le gradient d'épaisseur est discontinu à la ligne triple, et donc que l'angle de contact est non nul. On note également que la pente du liquide n'est pas constante, mais qu'elle croît lorsqu'on s'éloigne de la ligne triple. C'est l'effet de courbure du ménisque dû à la gravité, caractérisé par la longueur capillaire l_c . La figure III.9 montre des profils tirés de ces images. Pour analyser ces profils et en tirer l'angle de contact, nous avons déterminé les profils théorique attendus compte tenu de la fonction d'appareil, pour différents angles de contact de 0 à 20° .

2. Profils théoriques du ménisque

La géométrie et les notations sont définies dans la figure III.10. Nous devons d'abord déterminer le profil $z(h)$ du ménisque, puis calculer le signal correspondant donné par le système d'acquisition.

Pour la première étape, nous avons adapté le calcul de Adamson *et al* ([64]) à notre géométrie. Ce calcul prend en compte la gravité et les forces de Van der Waals non retardées, représentées par un potentiel $V(z) = -\frac{\Delta C_3}{z^3}$ où ΔC_3 est la différence des coefficients de Van Der Waals entre He/He et He/Cs. En fonction de l'altitude X par rapport à la surface libre du

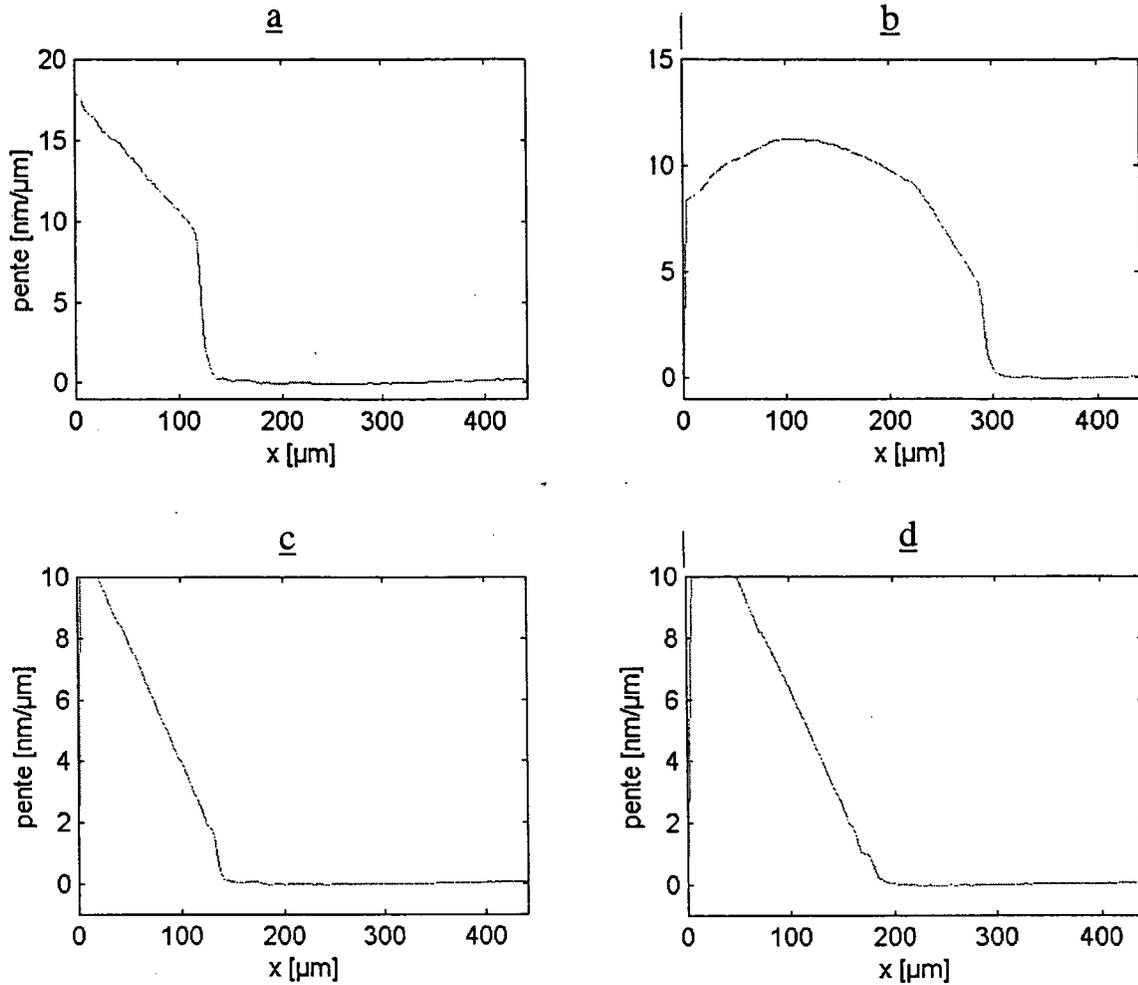


Fig. III.9: Profils expérimentaux tirés d'images prises l'hélium avançant sur la surface 2, pour plusieurs températures : a : 1.54 K ; b : 1.71 K ; c : 1.80 ; d : 1.82 K. Les profils b, c et d, ont été moyennés sur 50 pixels pour faire disparaître le bruit venant de fluctuations de l'interface. On voit sur les profils c et d, au pied de la pente, l'oscillation venant du facteur d'interférence β . L'aspect du profil b dans l'intervalle 0-210 μm vient de la saturation du signal optique.

liquide et à la distance z par rapport à la surface de césium, l'équation d'équilibre de l'interface s'écrit :

$$\frac{\gamma}{R} + \rho g X - \frac{\rho}{m} \frac{\Delta C_3}{z^3} = 0$$

où γ est la tension de surface liquide-vapeur, R le rayon de courbure du ménisque à l'altitude X , ρ la densité massique volumique du liquide (on néglige ici la densité de la vapeur par rapport à celle du liquide), m la masse d'un atome d'hélium. Ou encore en utilisant la relation $R = -(1 + z')^{3/2}/z''$, où z' est la dérivée de z par rapport à h , la longueur capillaire $l_c = \sqrt{\gamma/\Delta\rho g}$, et b la longueur définie par $b^4 \equiv \frac{\Delta C_3}{mg}$:

$$l_c^2 \frac{z''}{(1 + z')^{3/2}} = 2\left(X - \frac{b^4}{z^3}\right) \quad (\text{III.2})$$

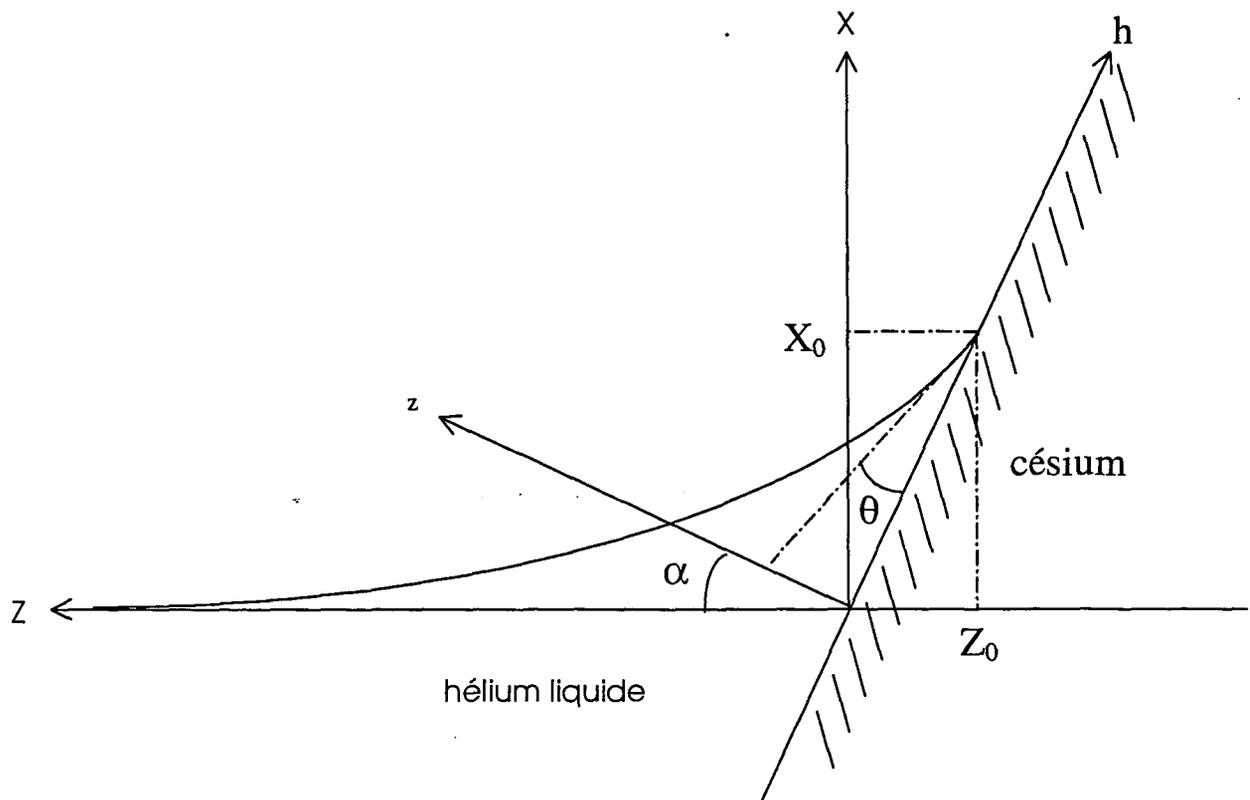


Fig. III.10: Système de coordonnées et ménisque dans le cas d'un angle de contact θ . L'ascension capillaire maximum est atteinte au point (X_0, Y_0) .

Le passage des variables (X, Z) à (h, z) est donné par :

$$\begin{vmatrix} X \\ Z \end{vmatrix} = h \begin{vmatrix} \cos \alpha \\ -\sin \alpha \end{vmatrix} + z \begin{vmatrix} \sin \alpha \\ \cos \alpha \end{vmatrix}$$

qui permet le changement de variables des dérivées :

$$\frac{dz}{dh} = \frac{\tan \alpha + \frac{dZ}{dX}}{1 - \tan \alpha \frac{dZ}{dX}}$$

et l'équation III.2 devient alors :

$$l_c^2 \frac{z''}{(1 + z'/l_c)^{3/2}} = 2(h \cos \alpha + z \sin \alpha - \frac{b^4}{z^3}) \quad (\text{III.3})$$

Cette équation doit être intégrée avec comme conditions aux limites $\frac{dz}{dh} = -1/\tan \alpha$ lorsque $z \rightarrow \infty$, et $\frac{dz}{dh} \simeq \theta$ lorsque $z \ll l_c$ mais $z \gg b(b/l_c)^{1/3}$. Ces deux conditions sont difficiles à exprimer pour une intégration numérique. On procède alors de la façon suivante. On détermine la solution analytique de l'équation (III.3) en l'absence des forces de Van der Waals ($b = 0$) et correspondant aux mêmes conditions aux limites. On trouve ainsi les coordonnées X_0, Z_0 de la ligne triple :

$$\begin{aligned} X_0 &= l_c \sqrt{1 - \sin(\theta + \alpha)} \\ \frac{Z_0}{l_c} &= -\sqrt{1 - \sin(\theta + \alpha)} \tan \alpha + \frac{\sin(\theta + \alpha)}{\sqrt{1 + \sin(\theta + \alpha)} + 1} - \frac{1}{\sqrt{2}} \ln \left[\frac{\sqrt{1 + \sin(\theta + \alpha)} + \sqrt{2}}{(1 + \sqrt{2})\sqrt{1 - \sin(\theta + \alpha)}} \right] \end{aligned} \quad (\text{III.4})$$

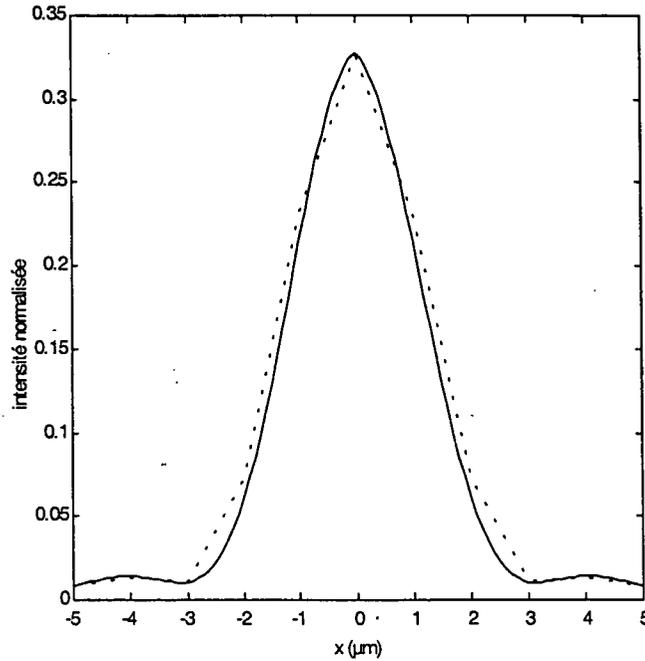


Fig. III.11: Intensité lumineuse de la tache de diffraction de l'objectif sur le miroir, moyennée selon une direction. La courbe continue est la courbe théorique. La courbe en tireté est la courbe approchée utilisée par le programme de calcul de la fonction d'appareil.

Cette solution est une bonne approximation de la solution exacte loin de la paroi. On s'en sert donc comme condition initiale $[h_i, z_i, (\frac{dz}{dh})_i]$ de l'intégration numérique de (III.3) à une distance z_i de l'ordre de 100 nm. La tangente de l'angle de contact réel correspond au maximum de (dz/dh) . Un léger ajustement de z_i permet de l'ajuster à $\tan \theta$. Cet ajustement est particulièrement sensible pour $\theta = 0$, ce qui était le cas considéré par Adamson. Il est également à prendre en compte pour des angles faibles.

Pour trouver ensuite l'image de ce profil à travers la fonction d'appareil, le programme calcule les amplitudes et phases de deux faisceaux réfléchis par le miroir à l'altitude h distants dans la direction verticale de $o_1o_2 = 3.64 \mu\text{m}$. Ces amplitudes locales sont calculées en utilisant la formule (II.14) qui prend en compte l'inclinaison de la surface libre de l'hélium. Le facteur q , qui décrit la fraction de l'amplitude réfléchi par cette surface qui tombe dans l'angle solide de l'objectif, est pris comme une fonction de $|\frac{dz}{dh}|$, qui vaut 1 en 0, 0 pour $|\frac{dz}{dh}|$ supérieur à la demi-ouverture de l'objectif, et varie linéairement entre ces deux valeurs. Les amplitudes sont ensuite moyennées sur la tache de diffraction en convoluant par la tâche de diffraction approchée montrée en figure III.11.

La valeur de δz fournie par l'appareil se déduit de la différence de phase $\delta\varphi$ entre les deux faisceaux par la formule II.2, d'où l'on déduit la pente apparente p :

$$p = \frac{\delta z}{o_1o_2} = \frac{\lambda}{o_1o_2} \frac{\delta\varphi}{4\pi}$$

Les paramètres utilisés sont présentés dans le tableau III.5.

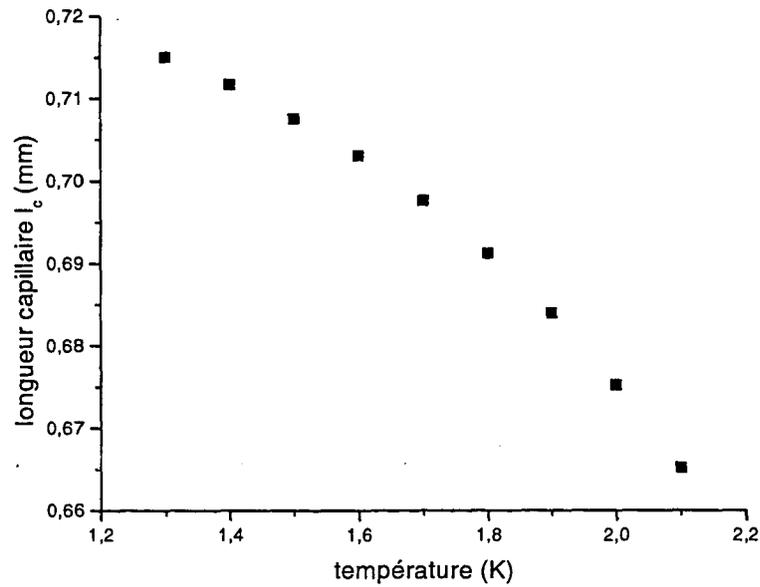


Fig. III.12: Longueur capillaire de l'hélium, $l_c = (\gamma/\rho g)^{1/2}$. γ est tiré de [8] et ρ de [78].

paramètre	valeur	référence
α	10°	
σ_{102}	$3.64 \mu\text{m}$	
ΔC_3	$\Delta C_3 = 673 - 120 = 553 \text{ K}\text{\AA}^3$	[9], [10]
l_c	0.7 mm	voir figure III.12
réflectivité	0.74	voir tableau II.11
d_{Cs}	65 nm	

(III.5)

La figure III.13 montre des profils obtenus pour différentes valeurs d'angles de contact. Les courbes en tireté sont les courbes idéales correspondant à la pente locale réelle multipliée par $(n-1)$.

Pour des angles de contact θ supérieurs à 5° , la discontinuité des courbes à la ligne triple est reliée à l'angle de contact θ par :

$$\Delta p = (n - 1) \tan \theta$$

On constate qu'on peut tirer cette discontinuité de la courbe simulant une courbe expérimentale, en prenant la distance entre les asymptotes des parties droite et gauche de la courbe, à l'abscisse où la pente est la plus grande.

Les courbes de la pente sont ensuite quasi-linéaires, indiquant que le profil du ménisque est en bonne approximation parabolique. La pente $|dp/dh|$ de cette courbe est, d'après (III.3) et

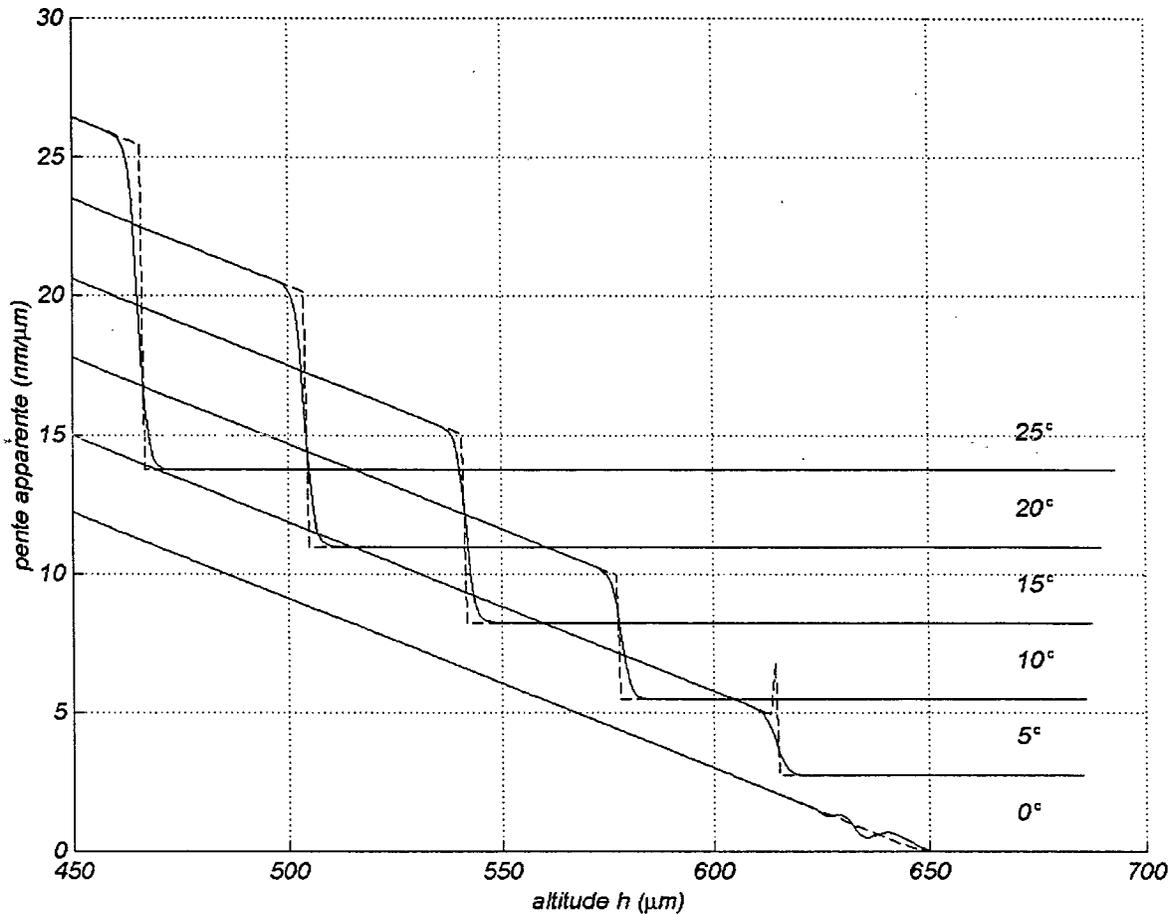


Fig. III.13: Profils théoriques à travers la fonction d'appareil d'un ménisque pour différents angles de contact. Les paramètres sont donnés dans le texte. Les courbes en tireté représentent simplement la pente réelle du liquide multipliée par $(n-1)=0.026$ (le pic pour les angles faibles est un artefact numérique). Les courbes successives sont décalées verticalement pour plus de clarté.

(III.4) :

$$\left| \frac{dp}{dh} \right| = (n-1) |z''| \simeq (n-1) \frac{2}{l_c \cos^3 \theta} \sqrt{1 - \sin(\alpha + \theta)} \quad (\text{III.6})$$

La figure III.14 compare les valeurs expérimentales aux valeurs théoriques utilisant les angles correspondants. Il existe un écart systématique d'un peu plus de 10 % entre les deux qui pourrait venir de l'influence du cache.

Pour des angles de contact inférieurs à 5° , on voit apparaître des oscillations qui rendent impossible un dépouillement simple de la courbe. La phase de ces oscillations par rapport à la ligne triple dépend de la longueur de pénétration d , et leur extension en h dépend de l'angle d'ouverture de l'objectif. En principe, l'enregistrement d'un profil une fois la surface mouillée ($\theta = 0^\circ$) devrait permettre par un ajustement de déterminer ces deux paramètres; puis, pour des angles non nuls de déterminer ces angles par ajustement avec le seul paramètre θ des profils théoriques, en conservant les paramètres précédents pour d et l'ouverture effective. En fait,

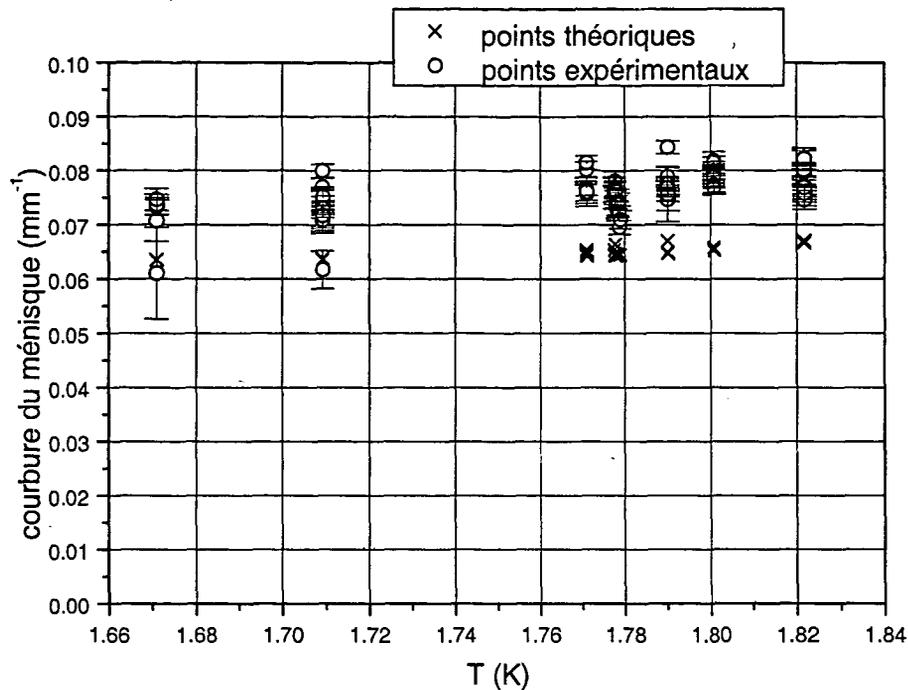


Fig. III.14: Courbure du ménisque (égale à la pente de la droite du signal donné par le ménisque). Les valeurs théoriques sont calculées par la formule (III.6), où l_c a été prise constante et égale à 0.7 mm. L'incertitude sur θ entraîne une barre d'erreur sur les valeurs théoriques inférieure à la taille des symboles.

nous n'obtenons pas de bons ajustements pour $\theta = 0^\circ$. La figure III.15 en montre un exemple. Pour faire apparaître le détail de l'oscillation au voisinage de $\delta z = 0$, on a soustrait aux profils théorique et expérimental des ajustements linéaires aux asymptotes. L'origine de l'abscisse est le point de rencontre de ces asymptotes. Le profil par rapport à ces asymptotes montre donc nécessairement une cassure de pente à l'origine correspondant à la pente $\left| \frac{dp}{dh} \right|$. Le profil expérimental a été pris sur une troisième surface, aux caractéristiques analogues à la surface 2. Le profil théorique a été calculé pour $d_1 = -63$ nm et $C_3 = 672$ KÅ³. On trouve de façon générale beaucoup moins d'oscillations sur les profils expérimentaux que sur les profils théoriques. Outre le bruit et les défauts, il est vraisemblable que les ondes capillaires excitées par les vibrations du montage brouillent en partie les oscillations. Ainsi un deuxième profil a été calculé en supposant des fluctuations de la position du sommet du ménisque de 2.5 μ m. On obtient un accord qualitatif avec le profil expérimental. Il faut souligner que ce dernier est très sensible à la détermination des asymptotes. En conséquence, les mesures des petits angles sont entachées d'une plus grande incertitude.

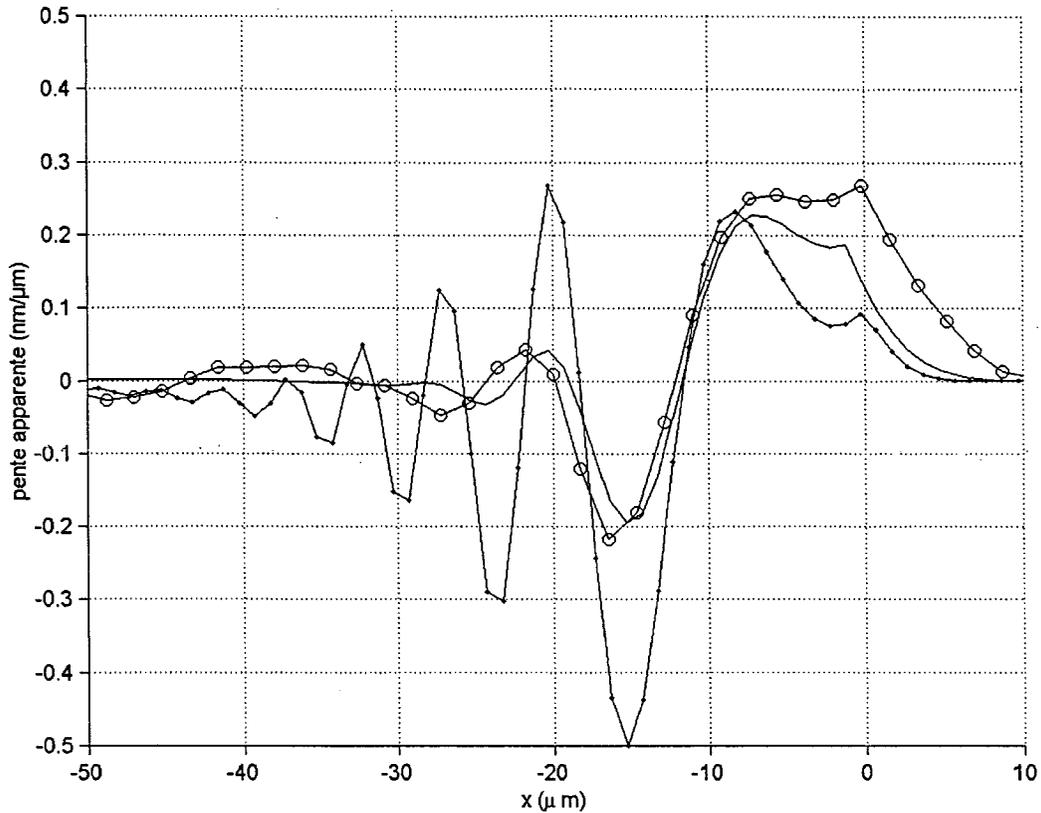


Fig. III.15: Profils expérimentaux et théoriques d'un liquide mouillant la surface 3 (aux caractéristiques analogues à la surface 2). La droite correspondant à la courbure du ménisque a été retirée aux profils afin de faire ressortir les oscillations venant du facteur β . Les cercles sont des points expérimentaux. Les deux autres courbes sont des courbes théoriques ajustées à la main pour $d_1 = -51$ nm. La courbe en trait continu sans point est celle avec des points convoluée par une exponentielle de largeur à mi-hauteur $2.5 \mu\text{m}$, pour simuler l'effet de fluctuations de la ligne triple.

3. Angles de contact mesurés et température de mouillage

a. Présentation des résultats

Les figures III.16 et III.17 montrent les angles d'avancée mesurés respectivement sur la surface 1 et la surface 2, pour différentes températures. La barre d'erreur, qui représente la dispersion des valeurs obtenues sur les différentes lignes d'une même image, est montrée pour deux points. Pour chaque température, les différents points expérimentaux représentent les différentes valeurs obtenues au cours de l'avancée. On constate que la dispersion de ces points est plus grande que la barre d'erreur de chacun d'eux, déterminée par l'écart quadratique des valeurs obtenues sur différentes lignes d'une image. Elle ne peut donc être attribuée à une inhomogénéité de la surface. En fait, nous avons constaté que l'avancée de la ligne triple n'est pas continue mais qu'elle fait parfois des sauts de $100 \mu\text{m}$, surtout à basse température. Après un saut, l'angle de contact diminue, puis réaugmente progressivement jusqu'au décrochage. L'angle d'avancée est alors représenté plutôt par la valeur maximum de l'angle avant décrochage. Nous attribuons ces grands sauts à un effet perturbant du cache. Entre chacun de ces sauts, la ligne progresse à

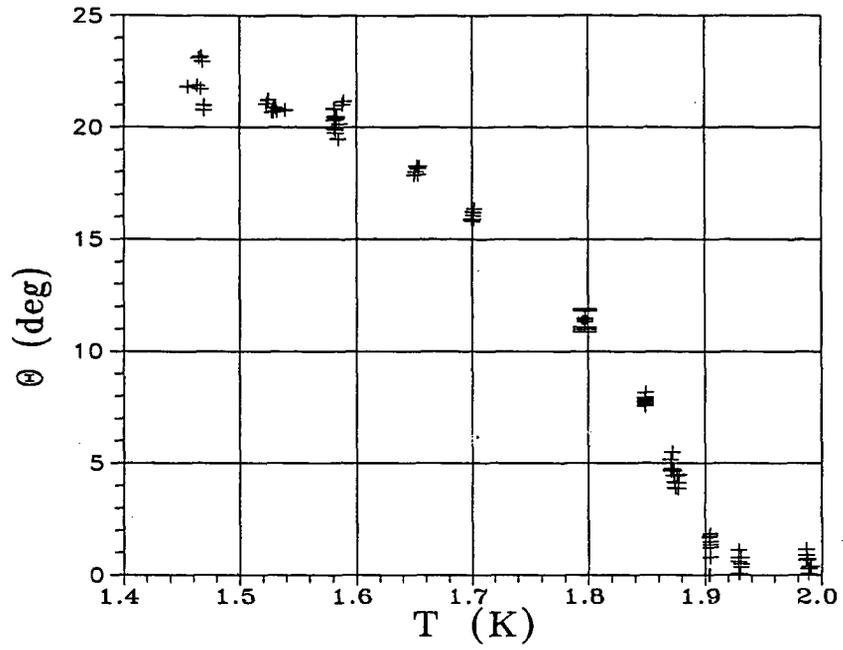


Fig. III.16: Angles de contact d'avancée sur la surface 1. La barre d'erreur est donnée sur les points à 1.8 K.

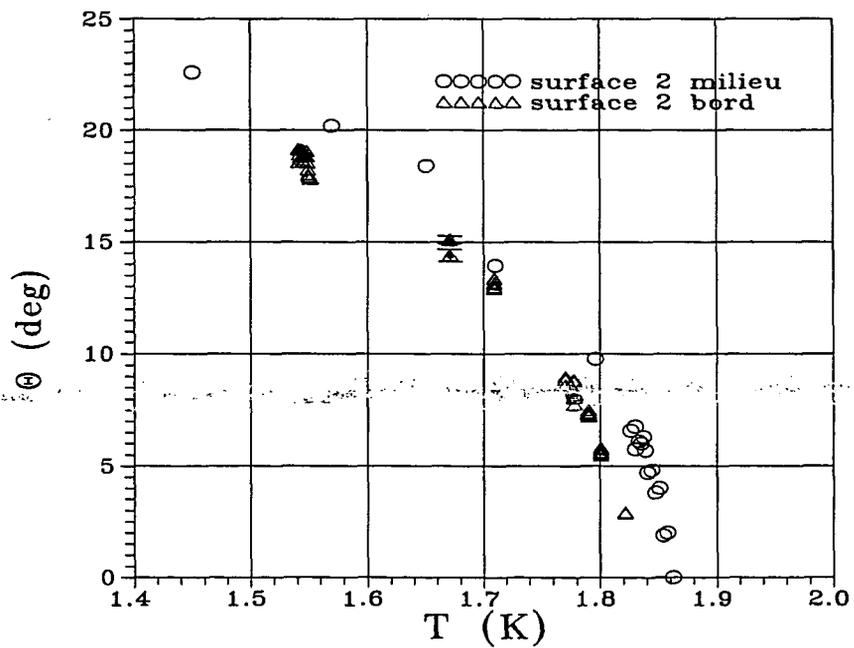


Fig. III.17: Angles de contact d'avancée sur la surface 2. La barre d'erreur est donnée sur les points à 1.67 K.

vitesse moyenne à peu près constante (voir la figure III.18) mais en réalisant des micro sauts de quelques μm visibles sur l'image en direct. Nous retrouvons ici le phénomène étudié en détail par E. Rolley (ref. [65], [66]).

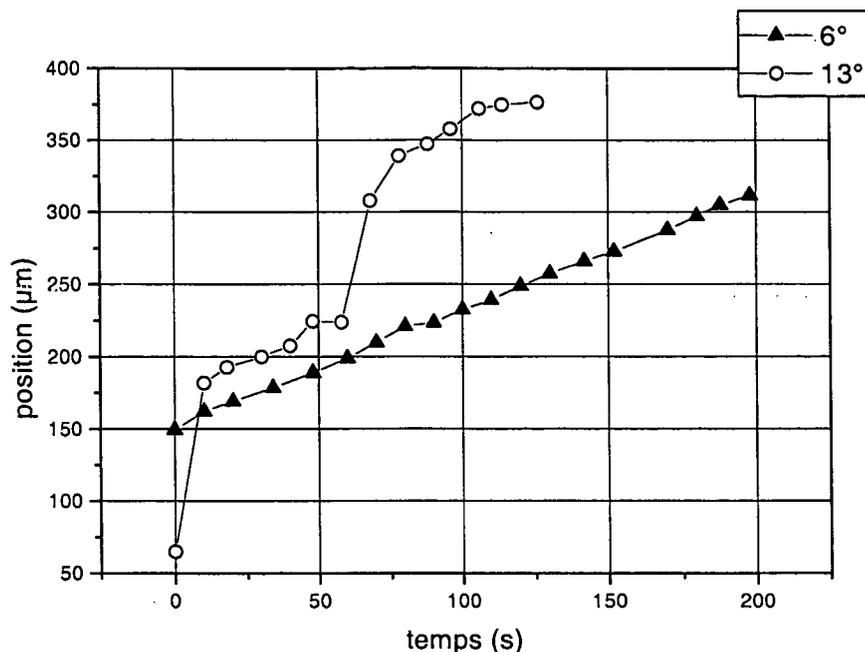


Fig. III.18: Position en fonction du temps pour un point de la ligne triple pour deux angles de contact.

La décroissance vers 0 de l'angle de contact d'avancée lorsque la température croît, apparaît clairement. L'extrapolation à zéro selon une loi du type $\theta^2 \sim T_W - T$ permet de repérer la température de mouillage. La figure III.19, qui ne prend en compte que les angles supérieurs à 5° , donne respectivement pour T_W :

$$\text{surface 1 : } T_W = 1.891 \text{ K}$$

$$\text{surface 2 bord : } T_W = 1.830 \text{ K}$$

$$\text{surface 2 milieu : } T_W = 1.859 \text{ K}$$

Les résultats sur les angles de contact sont traditionnellement présentés sous la forme $\gamma \cos \theta$ fonction de T , pour faire apparaître la dépendance de $\sigma_{sv} - \sigma_{sl}$ avec la température. La figure III.20 montre le graphe correspondant qui fait apparaître une dépendance faible compatible avec la suggestion de Pricaupenko et Treiner (ref. [67]) :

$$\sigma_{sl}(T) - \sigma_{sl}(T = 0) = -0.7 \times 10^{-3} T^3 \text{ K}/\text{\AA}^2$$

Une dernière façon de présenter les mêmes résultats consiste à porter le pouvoir d'étalement $S = \sigma_{sv} - \sigma_{sl} - \gamma = -\gamma(1 - \cos \theta)$ en fonction de $\Delta\gamma = \gamma(T) - \gamma(T = 0)$ (figure III.21), ce qui a l'avantage de faire apparaître clairement d'une part que γ crée l'essentiel de la variation de S

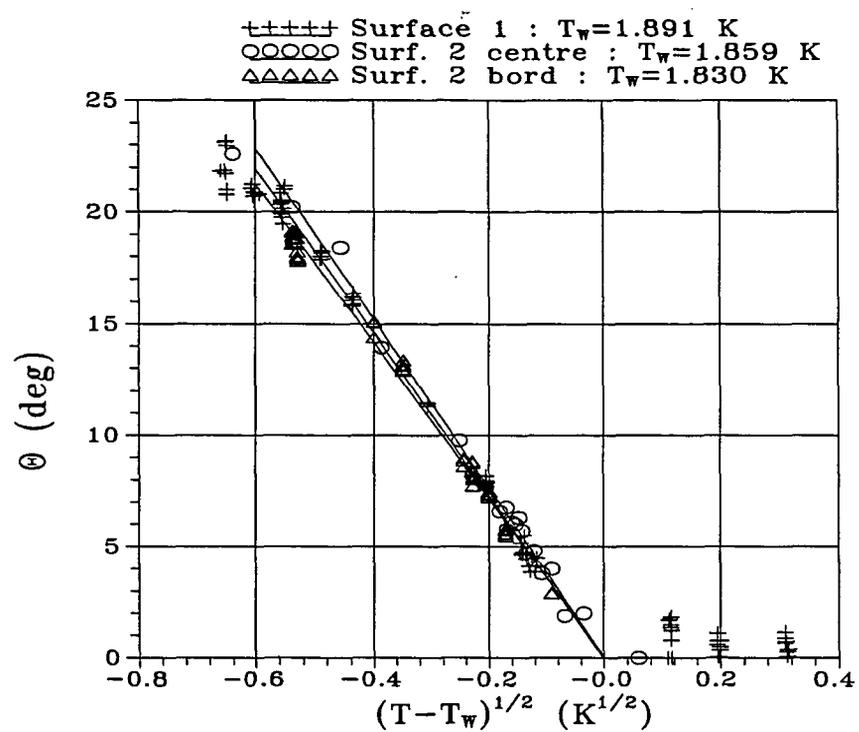


Fig. III.19: Détermination des températures de mouillage (T_w) par un développement limité de θ . Sur la surface 2, T_w est différente pour les deux zones de détermination des angles.

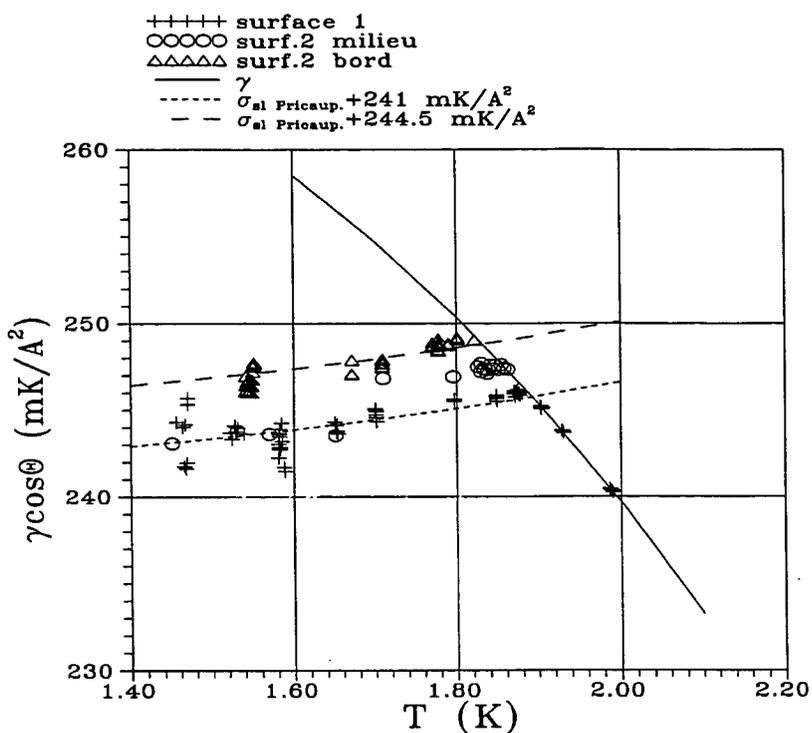


Fig. III.20: $\gamma \cos \theta$ fonction de la température. Les courbes en pointillés sont la variation de σ_{sl} prédite par Pricaupenko et Treiner, placées verticalement pour s'ajuster aux différentes courbes expérimentales de $\gamma \cos \theta$.

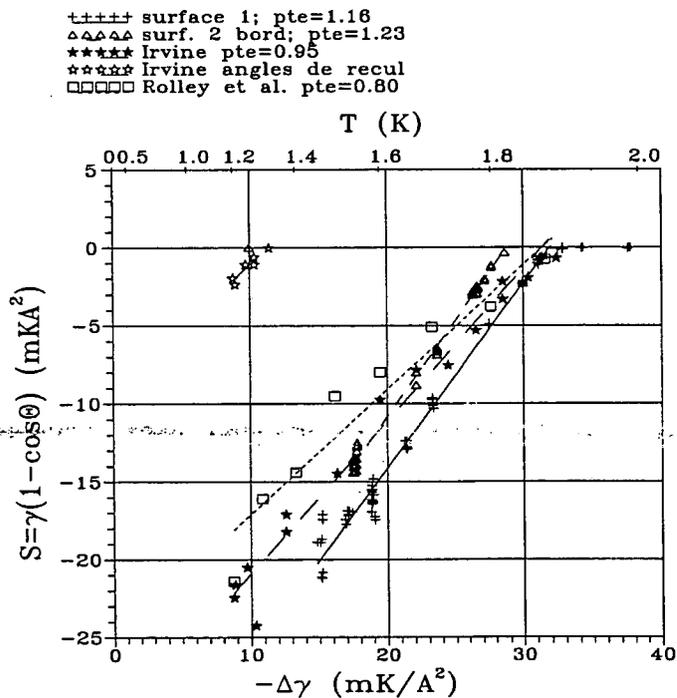


Fig. III.21: Pouvoir d'étalement S en fonction de la variation de la tension de surface liquide/vapeur $-\Delta \gamma(T) = \gamma(T = 0) - \gamma(T)$. Notez le démouillage de la surface 2 observé à 1.26 K (ce point ne correspond pas à l'observation d'un angle de contact de recul non nul mais au démouillage d'un film d'hélium décrit au chapitre suivant).

avec T , et d'autre part que γ et S évoluent très peu entre 0 et 1 K. La largeur de l'hystérésis en S pour la surface 2 est de l'ordre de :

$$\Delta S \simeq -23 \text{ mK}/\text{\AA}^2$$

La largeur de l'hystérésis est plus grande pour la surface 1 sans que nous puissions préciser sa valeur. La théorie de l'hystérésis de l'angle de contact de Joanny et de Gennes pour un désordre faible exprime le résultat final sous la forme ([34]) :

$$\gamma \cos \theta_r^a = \gamma \cos \theta_e \pm A$$

où θ_a et θ_r sont les angles d'avancée et de recul, θ_e l'angle d'équilibre et A une fonction croissante du désordre. Exprimé en terme de pouvoir d'étalement, l'hystérésis est symétrique par rapport au pouvoir d'étalement moyen de la surface. Dans cette perspective, il ressort que la plus faible hystérésis de la surface 2 traduit un désordre plus faible. Nous verrons, au vu des caractéristiques de la transition de prémouillage, que c'est effectivement le cas. On ne peut toutefois pas conclure qu'en l'absence de désordre, la transition de mouillage se situerait pour une température telle que $S = (S_a + S_r)/2$. En effet, quelque soit leur origine, il n'y a à priori aucune raison pour que les fluctuations du pouvoir d'étalement responsables de l'hystérésis aient une valeur moyenne nulle par rapport à une surface parfaite.

Terminons par un commentaire sur la figure III.16. Outre les points pour des angles supérieurs à 5° , qui ont servis à déterminer T_W pour la surface 1, elle inclut aussi des angles plus faibles, proches de 0 à des températures supérieures à T_W . Bien que les barres d'erreur soient importantes, il semble qu'il subsiste un angle de contact fini, mais très faible au delà de T_W . Nous verrons dans le chapitre suivant qu'une telle éventualité n'est pas exclue.

4. Comparaison avec les résultats des autres groupes

Des mesures d'angles de contact de l'hélium sur des surfaces de césium ont été effectuées par trois groupes. J. Klier et A. Wyatt les ont mesurés sur du césium déposé à chaud sur des plaques de tungstène avec une mesure de force capillaire sur une large gamme de température ([68]). E. Rolley, C. Guthman ([30]) d'une part, J. Rutledge, D. Ross, P. Taborek (groupe d'Irvine, ref. [69]) d'autre part, ont fait des mesures par des méthodes optiques sur des surfaces de césium fabriquées par des procédés semblables aux nôtres. Les valeurs publiées par le premier groupe sont près de deux fois plus importantes que celles des autres groupes pour une température de mouillage voisine. Ceci implique une forte dépendance en température de σ_{sl} . Enfin, l'hystérésis trouvée est très faible. Ces auteurs estiment que la "qualité" de leur surface est bien meilleure que celle obtenue par le procédé de dépôt à froid et que cela justifie les différences avec les autres groupes.

La comparaison de nos résultats avec ceux des deux autres groupes utilisant le même procédé de fabrication des couches de césium est faite sur la figure III.22. On constate une assez grande similitude. Il faut noter que chacun des groupes observe une certaine dispersion des résultats suivant les couches de césium produites, certaines d'entre elles permettant d'observer

le démouillage à basse température. Une mention particulière doit être faite des résultats récents de A. Prévost *et al* ([70]), qui ont mesuré des angles de contact sur un substrat où un désordre contrôlé a été introduit. Ils observent des angles de contact diminués par rapport à ceux d'un substrat normal mais une température de mouillage assez peu différente. Cette dernière remarque est également valable pour la figure précédente : toutes les expériences utilisant un dépôt de césium fabriqué par évaporation obtiennent une température de mouillage variant sur un intervalle faible comparé à la largeur de l'hystérésis. Nous verrons au chapitre suivant que le modèle d'Ising à champ aléatoire peut expliquer pourquoi : il prévoit dans le cas d'un désordre fort une faible dépendance de la température de mouillage vis à vis du désordre.

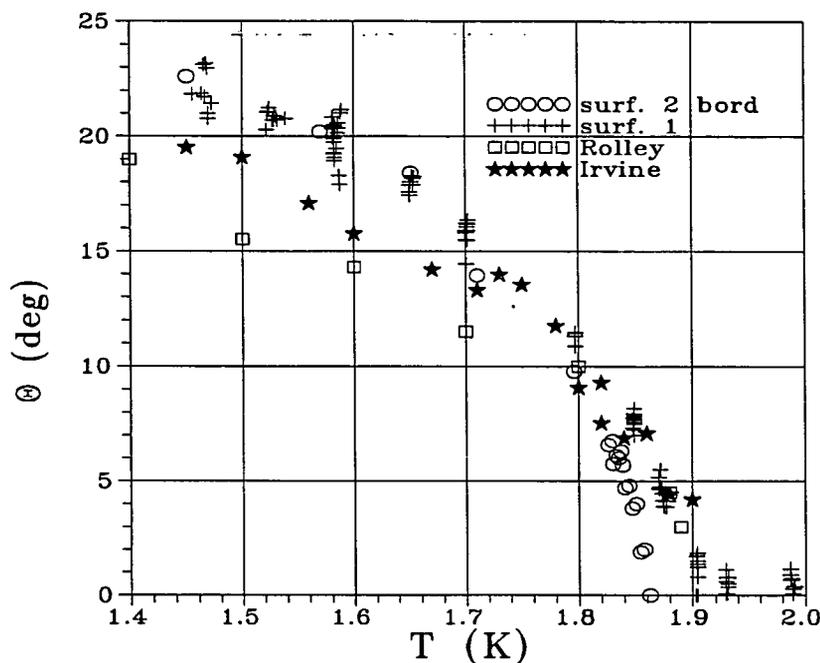


Fig. III.22: Angles de contact sur les deux surfaces de césium (hormis surface 2 "milieu"), ainsi que ceux mesurés par d'autres groupes.

D. Conclusions

Le procédé utilisé pour fabriquer les couches de césium est susceptible de fournir dans des conditions optimales, des surfaces quasimonocristallines. Dans les conditions où nous opérons, on s'attend plutôt à obtenir une surface polycristalline, ou pour des vitesses de croissance élevées, à une surface encore plus désordonnée. Les angles de contact sur les surfaces étudiées sont semblables à ceux des groupes utilisant des procédés similaires de préparation des surfaces.

Chapitre IV

Transition de prémouillage

Comme cela a été rappelé dans l'introduction, la transition de prémouillage est l'équivalent hors saturation de la transition de mouillage. On peut utiliser la gravité pour produire de faibles désaturations. La transition est alors simplement la façon dont une surface placée au-dessus de l'interface liquide-vapeur se couvre d'un film épais (mouillage) ou se sèche (démouillage) lorsqu'on varie la température, ou bien lorsqu'on monte ou descend le niveau du liquide. La gravité, en créant un gradient d'énergie potentielle, devrait permettre de stabiliser "l'interface" entre les couvertures minces et épaisses de la surface et permettre son observation. L'existence de l'hystérésis invalide en partie ce scénario simple, mais ouvre également une nouvelle possibilité. A l'intérieur du cycle d'hystérésis, on peut préparer un film mince ou épais, métastable par rapport à l'équilibre thermodynamique. La microscopie par plasmons de surface a mis en évidence ces films et leur métastabilité ([28], [29]).

Nous avons tiré parti de cette possibilité de créer à volonté une "interface" entre une région de couverture épaisse et une autre de couverture mince, pour étudier comment se fait la transition de prémouillage, c'est à dire comment on sort de cet équilibre métastable lorsqu'on augmente (ou diminue) la température. Dans la suite, nous appellerons "film de prémouillage" le film épais, stable ou métastable, dont l'épaisseur est fixée en première approximation par le coefficient de Van der Waals de la surface et l'écart au potentiel chimique de saturation.

Ce chapitre est divisé en trois parties. Nous présenterons tout d'abord la façon dont les films de prémouillage sont préparés et visualisés, ainsi que l'analyse de leur épaisseur. Puis nous décrirons successivement les transitions de prémouillage observées sur les surfaces 1 et 2 décrites au chapitre précédent, ainsi que quelques éléments d'interprétation de ces observations. Nous verrons que la visualisation du film de prémouillage à la transition, réalisée pour la première fois dans ces expériences, a révélé une variété de comportements inattendue.

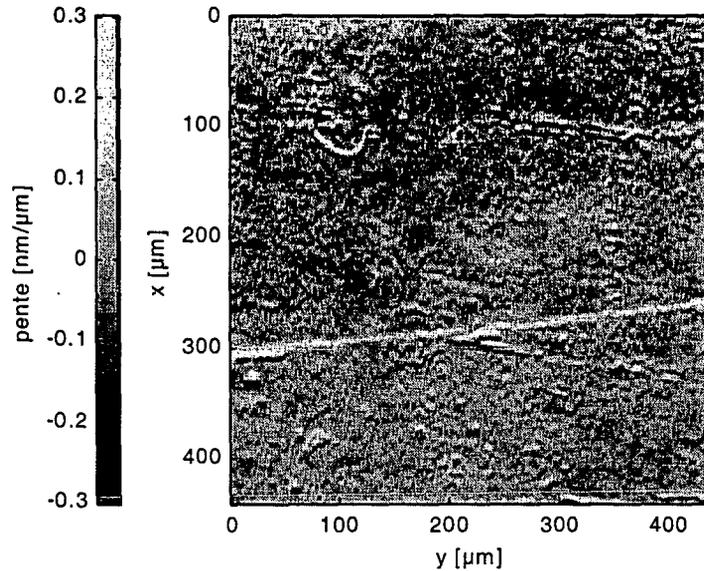


Fig. IV.1: Image obtenue après recul du liquide (le liquide est à environ 1 mm sous le bord). Un film persiste là où se trouvait la ligne triple. La température est 1.4 K.

A. Observation de films métastables de prémouillage

1. Préparation et images du film

Les désaturations que nous considérons sont produites par la gravitation sur une différence de hauteur comprise entre 1 et 20 mm, ce qui correspond à $\Delta\mu$ compris entre $-5 \mu\text{K}$ et $-100 \mu\text{K}$. Les variations correspondantes du pouvoir d'étalement du film sont données par la formule (I.1), et valent respectivement $-2 \mu\text{K}/\text{\AA}^2$ et $-15 \mu\text{K}/\text{\AA}^2$. Ces différences peuvent être rattrapées par une augmentation de température de 1.3 et de 8 mK. Ainsi les températures des transitions de prémouillage sont pratiquement confondues avec celles de mouillage. La région de métastabilité s'étend donc entre la température de démouillage (de 0 à 1.3 K selon la surface) et celle de mouillage (de l'ordre de 1.9 K). Pour une température dans cette plage, le niveau du liquide est avancé dans le champ observé, puis reculé en le pompant. Malheureusement, la disposition du tuyau de pompage par rapport à la cellule est telle qu'une mise en pompage déséquilibre la surface du liquide entre l'avant et l'arrière de la cellule. Afin que les vagues provoquées par le pompage du liquide ne mettent pas en mouvement le bord du liquide de façon intempestive, trois précautions sont prises. D'une part la température est choisie assez basse pour que la ligne triple soit "rigide", pratiquement $T \leq 1.6 \text{ K}$. D'autre part, avant de le faire par pompage, le liquide est d'abord reculé en chauffant légèrement la cellule : le chauffage augmente la pression de vapeur saturante et ceci a pour effet de diminuer le volume du liquide pour alimenter la vapeur. Enfin,

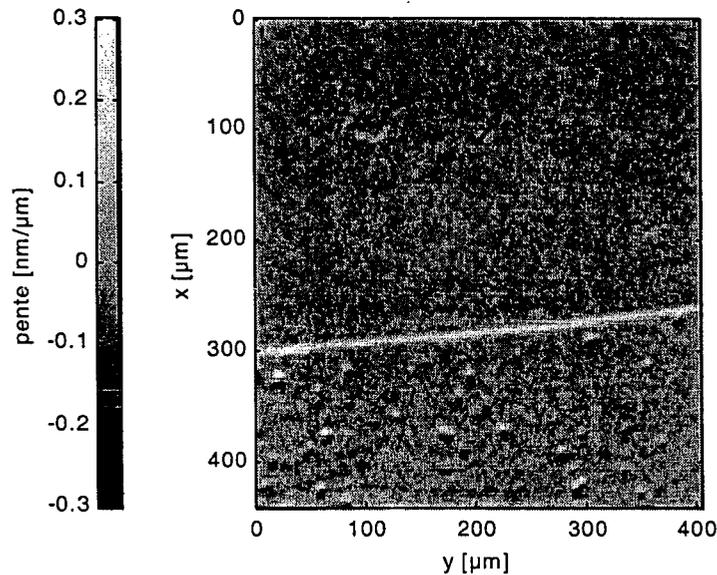


Fig. IV.2: Image différence (image précédente moins image de la même région sèche), faisant ressortir la couverture d'hélium.

l'ouverture de la vanne de pompage est effectuée de manière très progressive. Le chauffage est maintenu pendant la durée du pompage pour éviter un refroidissement de la cellule. A mesure que le niveau du liquide baisse, l'angle de contact diminue, puis s'annule sans que la ligne triple ne bouge. Une fois que l'angle de contact est nul, la ligne triple devient le bord supérieur du film de pré mouillage, qui s'étend vers le bas jusqu'au haut du ménisque. La figure IV.1 montre le bord de ce film sur la surface 1. La figure IV.2 montre la même image après soustraction de l'image de la même région sèche, ce qui fait disparaître les défauts de la surface et fait ressortir uniquement le gradient de couverture. Le film a été maintenu à la température 1.4 K et est insensible à un choc sur le cryostat.

On voit sur les images, côté film, comme des "bosses" d'hélium. Le profil d'une de ces bosses (figure IV.3) montre un sommet arrondi et des flancs décroissants, dans le cas exposé, sur une longueur de l'ordre de $13 \mu\text{m}$. Ces bosses sont vraisemblablement produites par la condensation capillaire de l'hélium autour de poussières. Certaines d'entre elles sont visibles, d'autres, submicroniques n'apparaissent pas optiquement. Nous verrons qu'elles constituent un révélateur commode de la présence d'un film épais dans leur voisinage.

Notons que, dans les conditions de température et d'épaisseur où nous opérons, les films épais sont toujours superfluides, et sont connexes au liquide massif. Les évolutions que nous aurons à considérer seront toujours lentes par rapport à la vitesse du $3^{\text{ème}}$ son qui assure l'uniformité du potentiel chimique. La géométrie très ouverte favorise la convection superfluide/vapeur et

assure une bonne uniformité de la température. Pour des puissances de chauffage de l'ordre de la dizaine de microwatt, les écarts de température restent en-dessous du μK . Remarquons que la situation serait différente pour une goutte isolée sur un plan de césium. Elle pourrait être amenée à s'épaissir ou s'affiner en fonction d'éventuels écarts de température avec d'autres parties de la cellule.

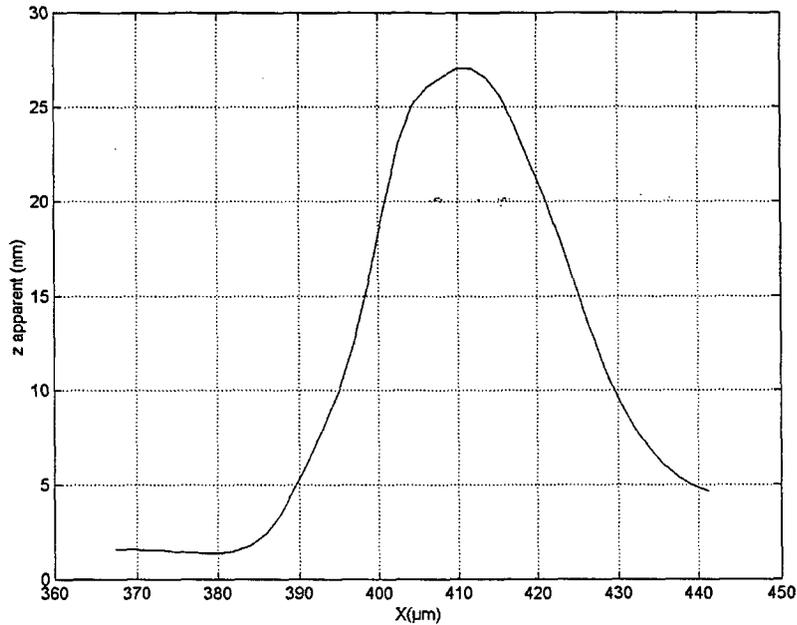


Fig. IV.3: Profil d'une bosse d'hélium. Le liquide est à environ 0.8 mm au-dessous.

2. Mesure de l'épaisseur de films

Théoriquement, l'épaisseur e du film à une hauteur H au-dessus du niveau du liquide (voir figure IV.4) est donnée (en négligeant la densité de la vapeur par rapport à celle du liquide) par les équations :

$$mgH - \frac{\Delta C_3}{e^3} = 0 \quad \text{pour } e \ll \frac{\lambda_{Cs}}{2\pi} \quad (\text{Van der Waals non retardées}) \quad (\text{IV.1})$$

$$mgH - \frac{\alpha}{e^4} = 0 \quad \text{pour } e \gg \frac{\lambda_{Cs}}{2\pi} \quad (\text{Van der Waals retardées}) \quad (\text{IV.2})$$

(voir par exemple la référence [33] pour la distinction entre les deux interactions) où λ_{Cs} est une longueur d'onde correspondant aux fréquences d'absorption du césium. D'après [71], $\lambda_{Cs} \simeq 440$ nm, soit $\frac{\lambda_{Cs}}{2\pi} = 70$ nm. Notons que le coefficient ΔC_3 n'a pour l'instant été déterminé que par le calcul et que α n'a été ni mesuré ni calculé. Comparer les mesures expérimentales d'épaisseurs avec celles données par ces équations présente donc l'intérêt de déterminer ces coefficients.

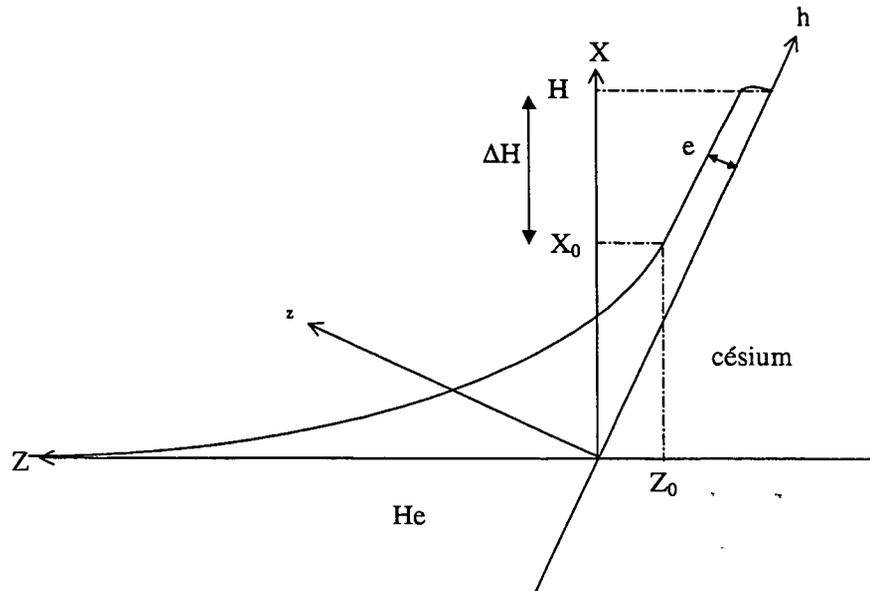


Fig. IV.4: Schéma du film de pré-mouillage resté accroché à la paroi après recul du liquide.

a. Méthode de mesure

L'altitude H est ajustée par pompage du liquide. Pour être certain de H , il faut pouvoir visualiser le niveau du liquide. C'est pourquoi les altitudes accessibles sont celles pour lesquelles le niveau est soit dans le champ des caméras, soit dans la fenêtre arrière de la cellule. Si le bord est dans le champ d'une des caméras, H est décomposé en $X_0 + \Delta H$. X_0 est l'ascension maximale du liquide (c.f. figure IV.4) pour un angle de contact nul (c.f. chap 1) et un angle du miroir par rapport à la verticale de 10° , soit $X_0 = l_c \sqrt{1 - \sin^2 10^\circ} = 0.63 \text{ mm}$ à 1.6K . ΔH est déterminé à partir des images des caméras. Notons que le niveau du liquide n'est stabilisé que 20 min après l'arrêt du pompage.

Pour une altitude H , l'épaisseur est déterminée de manière automatique à partir de l'image différence selon la méthode suivante. L'image est d'abord intégrée selon la direction de séparation des Wollastons. Puis, le bord est approximé par une droite dont l'équation est déterminée à partir de deux points entrés à la main. Ensuite, pour chaque profil on cherche un ajustement linéaire de chaque côté du bord, sur des zones de largeur $n \simeq 10$ pixels et distantes de $l \simeq 3$ pixels du bord du film. L'épaisseur du film est alors l'écart entre les deux droites au point du bord du film. La figure IV.5 montre un exemple de profil et des deux ajustements. S'il existe des accidents locaux qui peuvent gêner ces ajustements, comme par exemple les défauts déjà évoqués, ou bien si le bord du film est courbe, la région sur laquelle sont réalisées ces opérations peut être restreinte à une partie de l'image. La figure IV.6 montre la statistique de l'épaisseur déterminée ainsi sur 100 lignes successives. Nous en tirons l'épaisseur moyenne et l'écart standard.

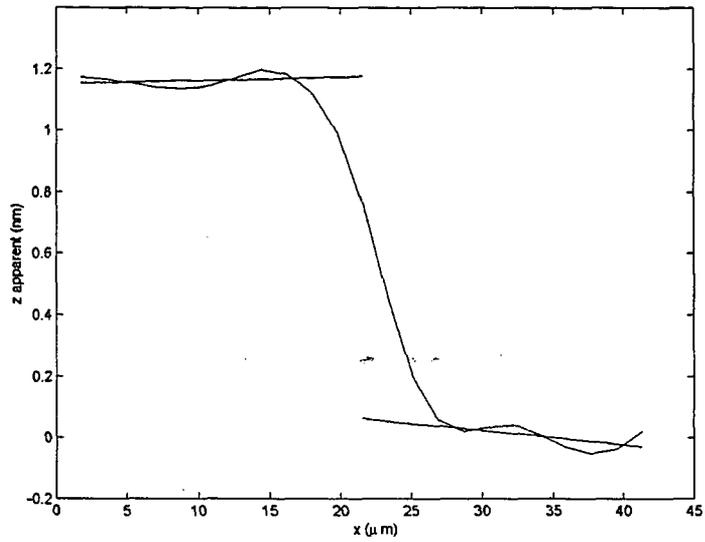


Fig. IV.5: Profil intégré d'un film de pré mouillage déposé sur la surface 1. L'épaisseur est l'écart pris au centre, entre les droites ajustées sur le profil de part et d'autre du bord.

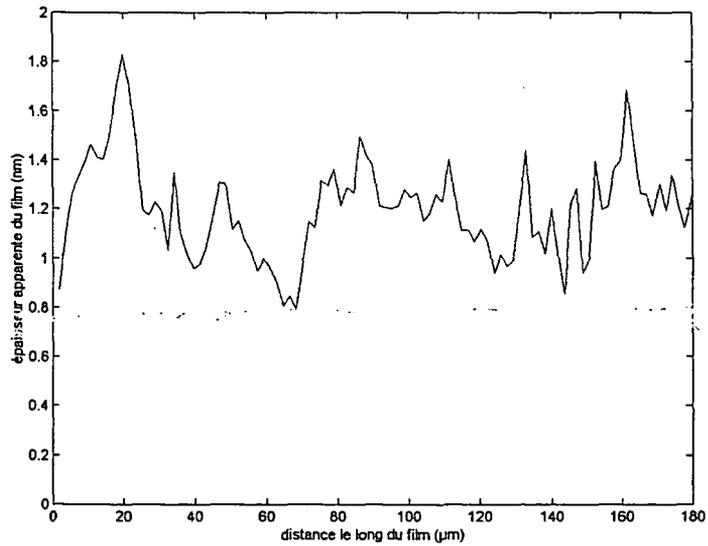


Fig. IV.6: Epaisseurs apparentes du film de pré mouillage sur la surface 1, le long du bord de film. L'écart r.m.s vaut 0.3 nm.

b. Résultats

La figure IV.8 montre l'épaisseur apparente moyenne du film pour différentes valeurs de H et pour trois substrats : les surfaces 1 et 2 (d'épaisseurs réelles respectives 250 nm et 40 nm) et une troisième dont l'épaisseur réelle de la couche de césium est 15 nm. Aux épaisseurs de ces trois couches de césium correspondent respectivement les longueurs de pénétration -63, -50 et -38 nm. La figure IV.7 rappelle la relation non linéaire entre l'épaisseur apparente et l'épaisseur réelle des films d'hélium pour les différentes longueurs de pénétration des couches de césium (celle du substrat d'or est -28 nm). On peut noter que l'effet de l'interférence est important au voisinage des épaisseurs type utilisées (20 - 70 nm) : à une épaisseur apparente donnée, elle fait varier l'interprétation en épaisseur réelle du simple au triple. La figure IV.9 donne les épaisseurs réelles déduites des courbes précédentes, ainsi que la courbe théorique calculée pour $\Delta C_3 = C_3^{Cs} - C_3^{He} = 673 - 120 = 553 \text{ K\AA}^3$.

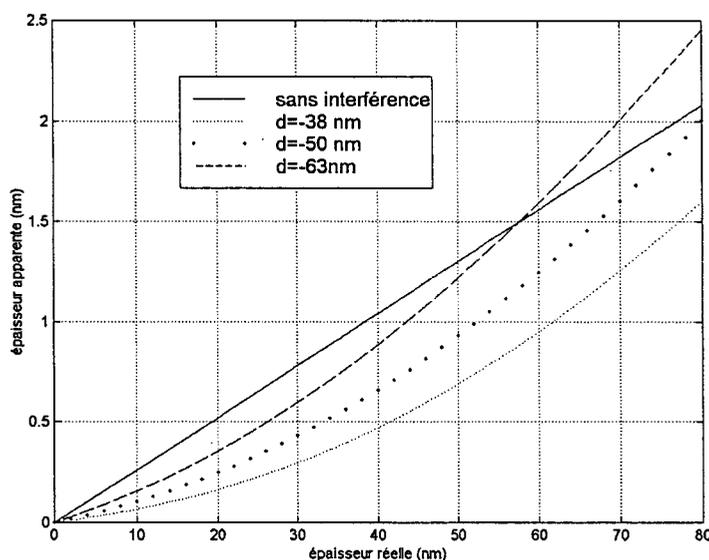


Fig. IV.7: Lien entre l'épaisseur réelle et l'épaisseur apparente d'un film d'hélium sur une couche de césium dont la longueur de pénétration est d .

La variation expérimentale de l'épaisseur avec l'altitude est donc compatible avec la loi de puissance attendue des forces de Van der Waals non retardées. Par contre, si le C_3^{Cs} de la surface 1 peut être égal à la valeur théorique, celui des surfaces 2 et 3, par contre, paraît plus fort (Il en est de même si on prend pour C_3^{Cs} une estimation théorique plus récente que celle utilisée dans l'ensemble de la thèse et publiée dans [72] qui est de 993 K\AA^3). Mais il est vrai que ces deux surfaces ont leur épaisseur (40 et 15 nm respectivement) inférieure à la valeur absolue de la longueur de pénétration du césium volumique (-63 nm), on peut donc s'attendre à ce que le film sente l'effet de la sous-couche d'or qui possède un C_3 nettement plus important.

Pour conclure, la barre d'erreur importante et les incertitudes sur la correction ne font pas de la mesure des épaisseurs une mesure significative des coefficients de Van der Waals du césium.

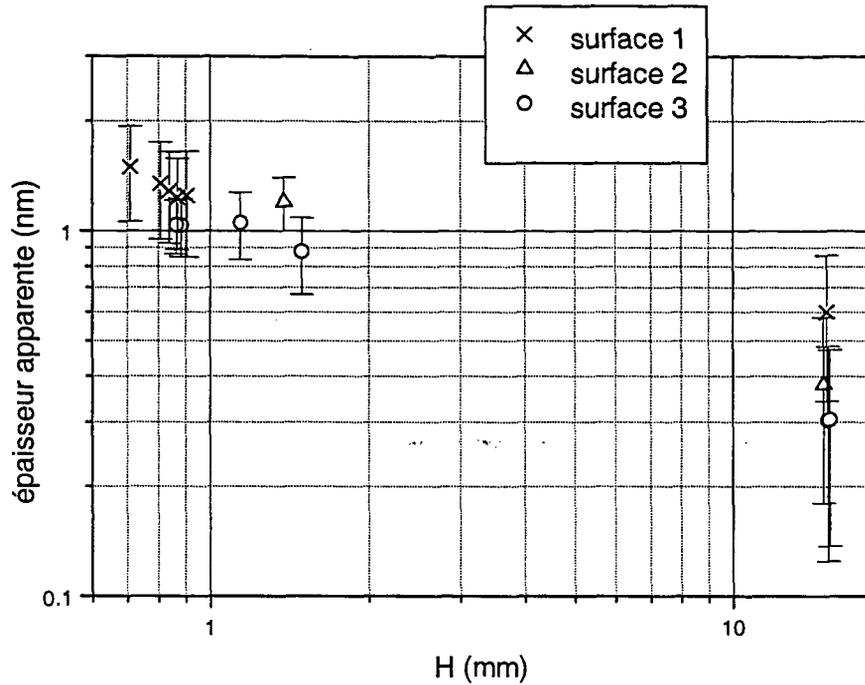


Fig. IV.8: Epaisseur apparente de films sur les surfaces 1 et 2 et sur une autre surface analogue à la n°2.

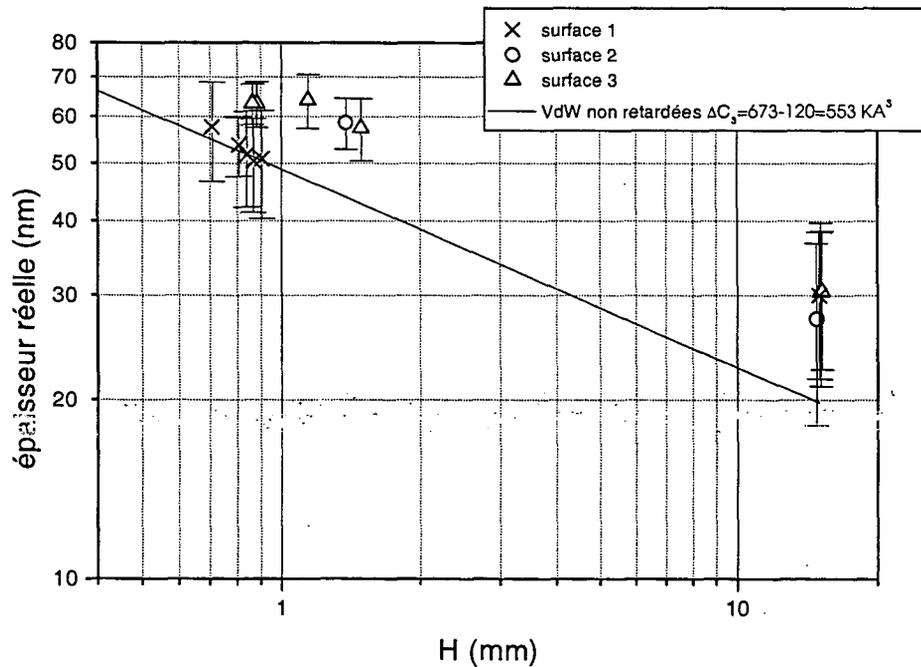


Fig. IV.9: Epaisseurs réelles correspondant aux épaisseurs apparentes de la figure IV.8. Les épaisseurs ont été corrigées de l'effet de l'interférence en prenant pour la surface 1, $d_1 = -63 \text{ nm}$, et pour les surfaces 2 et 3, $d_1 = -51 \text{ nm}$. En log-log, on s'attend à une droite de pente $-1/3$ pour $e \ll 70 \text{ nm}$ et une de pente $-1/4$ pour $e \gg 70 \text{ nm}$.

c. Cas d'une surface anormale

La figure IV.10 montre l'image d'un bord de film sur une surface de césium très épaisse ($e \geq 600$ nm), ayant été déposée à flux élevée (> 10 nm/min). Comparé à la figure IV.2, le film apparaît beaucoup plus épais, et présente des fluctuations d'épaisseurs de l'ordre de 1.5 nm. En supposant $\beta = 1$, on obtient une épaisseur moyenne $e \simeq 420$ nm, avec $\Delta e = 60$ nm, alors que l'on s'attend à $e \simeq 50$ nm.

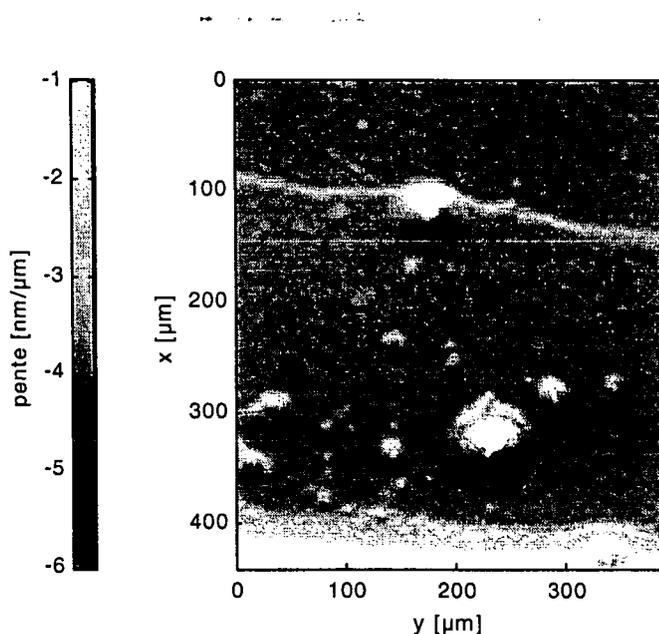


Fig. IV.10: Film anormalement épais vu sur certains substrats. Notez l'échelle de gris nettement plus importante que celle des images de film précédemment montrées. La bande blanche en bas est le début du ménisque.

Cette anomalie, qui a été reproduite au moins une fois, est vraisemblablement causée par des fluctuations géantes du facteur β liées à des résonances aléatoires dans la couche de césium. Nous avons évoqué au chapitre 1 la possibilité de telles résonances provoquées par des plasmons de surface. Ceci indique alors simplement que la couche de césium est assez rugueuse pour que de telles résonances soient excitées.

Nous avons cherché d'autres interprétations au cas où les épaisseurs mesurées seraient bien réelles. Elles ne résultent plus alors d'un équilibre entre la gravité et la force de Van der Waals. Une autre force doit être invoquée pour provoquer cet épaissement. L'effet "fontaine" provoqué par l'échauffement radiatif du substrat pourrait être une cause d'épaississement. Mais outre le fait que les ordres de grandeur des puissances nécessaires sont beaucoup trop élevées, une variation de la puissance lumineuse d'éclairage ne produit aucun effet. Récemment, Luusola *et al.* [73] ont suggéré qu'une densité suffisante de vortex piégés pourrait créer une énergie en $1/e$ s'ajoutant

à la pression de disjonction en $1/e^2$ due à l'attraction de Van der Waals. Toutefois plusieurs éléments s'accordent mal avec cette hypothèse. Dans le modèle de la référence précédente, la densité de vortex diminue de manière irréversible lorsque l'épaisseur augmente par annihilation par paires. Une fois que le liquide macroscopique est passé sur la surface, il ne devrait donc plus y avoir de force associée à ces vortex, et on devrait retrouver un substrat normal. Ce n'est pas le cas. On peut modifier le modèle en supposant que les vortex se reconnectent sans s'annihiler pour une épaisseur supérieure à leur distance. Mais il faudrait supposer de plus que la densité de vortex piégés est assez reproductible d'un remplissage à l'autre, et qu'elle est corrélée à une qualité locale du substrat car la "figure" des fluctuations d'épaisseur est assez semblable d'un remplissage à l'autre.

En définitive, il semble qu'il faille mettre ces épaisseurs anormales sur le compte d'un effet optique lié à la rugosité de cette couche particulière de césium.

B. Transition de pré mouillage sur la surface 1

En partant de la situation décrite à la section précédente, où l'on a déposé un film de pré mouillage dans le champ observé, en augmentant la température, l'hélium va envahir la région sèche. C'est la transition de pré mouillage qui se passe en principe à une température légèrement supérieure à la température de mouillage T_W . Toutefois la désaturation correspondant à une hauteur $H = 1$ mm n'est que de $\Delta\mu = -4.7 \mu\text{K}$. La figure IV.11 montre que l'écart attendu entre la température de pré mouillage et T_W est 1.3 mK, à la limite de la résolution de nos mesures de température. Remarquons qu'en partant de la même situation initiale, un abaissement de la température devrait conduire à une transition de dé mouillage, c'est à dire au séchage de la partie initialement couverte par le film épais. L'hystérésis sur la surface 1 est telle que la transition de dé mouillage nous est inaccessible et n'existe peut être même pas. Nous n'étudierons que la transition d'invasion de la surface par le film épais. Nous commencerons par décrire le comportement des observables pendant la transition, puis nous verrons qu'il nous apporte des informations complémentaires sur la courbe des angles de contact en fonction de la température.

1. Evolution du bord du film avec la température

Sur la surface 1, lorsqu'on élève la température, aucun mouvement du film n'est visible. La figure IV.12 montre l'image du film de la figure IV.2 et celle du même film chauffé à 1.85 K. L'effet majeur est la disparition progressive du contraste d'épaisseur entre les deux côtés du bord du film. Un autre phénomène notable est l'apparition de bosses d'hélium sur la région initialement sèche, de manière concomitante avec le début de la décroissance du contraste. Ces bosses sont tout à fait semblables à celles qui existaient dans le film épais. Ces dernières par contre ne changent pas. Il n'y a pas de variation pertinente de l'écart type des δz entre les bosses (voir figure IV.13).

Les deux observations précédentes impliquent la présence en avant du bord de film initial d'une couverture liquide qui évolue en fonction de la température. Notons que cette couverture

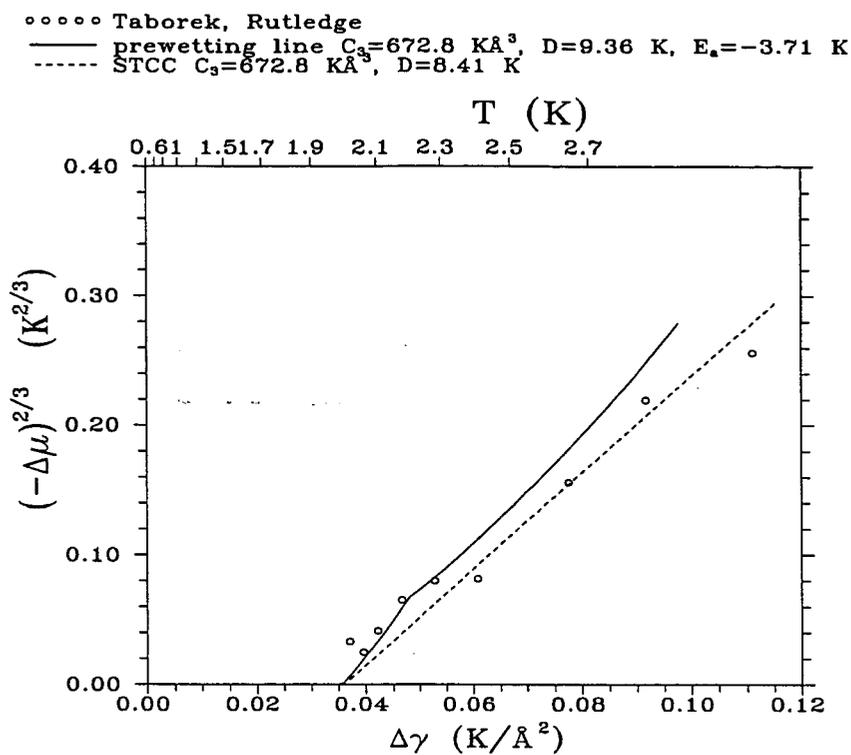


Fig. IV.11: Ligne de pré mouillage de l'hélium sur le césium dans le plan $(\Delta\gamma, (-\Delta\mu)^{2/3})$, tirée de la référence [20]. Les courbes en traits sont des courbes théoriques ajustées sur les points expérimentaux de Taborek *et al.* (groupe d'Irvine).

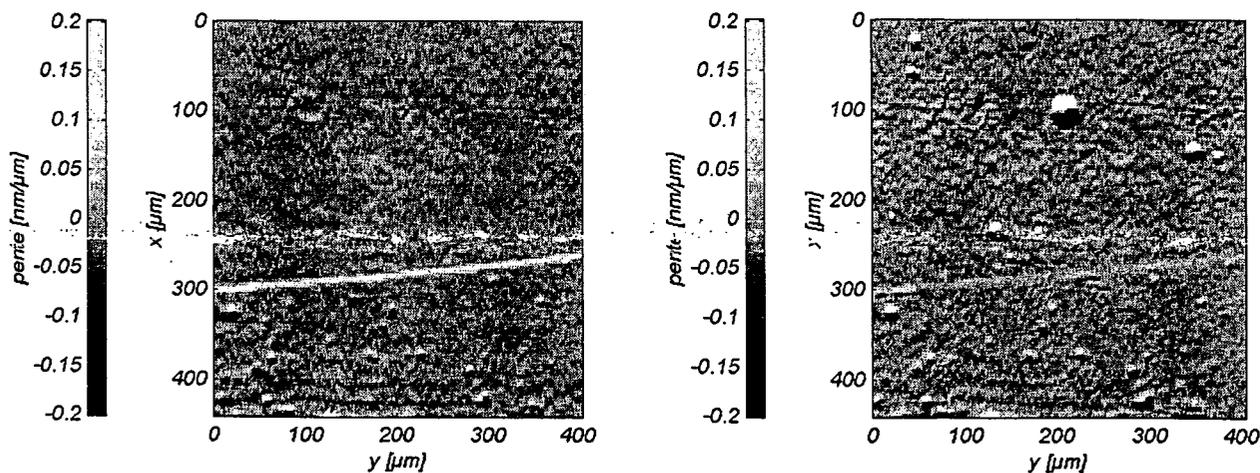


Fig. IV.12: Images avant et pendant la transition de pré mouillage sur la surface 2. La transition se manifeste par la diminution progressive de l'épaisseur apparente du bord du film initial et l'apparition de bosses d'hélium à l'avant de celui-ci.

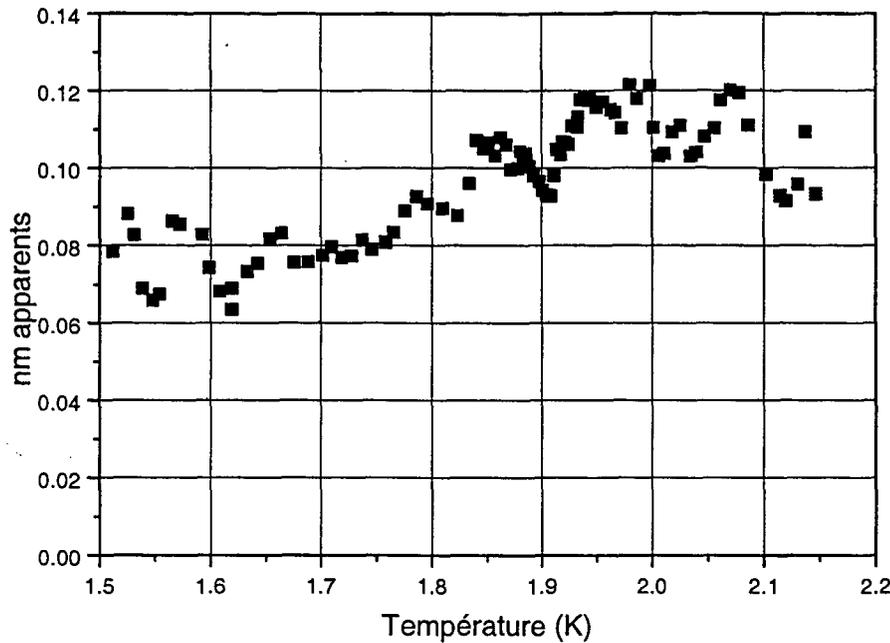


Fig. IV.13: Ecart type de δz au cours de la transition de pré mouillage sur une région initialement sèche et ne contenant pas une fois mouillée de bosses d'hélium. La variation générale n'est pas corrélée à la diminution de l'épaisseur apparente du film, mais à la translation à effectuer entre les images avec et sans hélium. Cette courbe n'est donc pas pertinente.

est stable, progressive, et qu'elle est irréversible. Si on stabilise la température à une valeur donnée, on n'observe pas d'évolution lente au cours du temps sur des durées de l'ordre de 30 min. Elle change par contre progressivement avec l'élévation de la température. Si au contraire on redescend la température, la situation se fige à celle correspondant à la température maximale explorée.

2. Variation de la différence de couverture avec la température

Pour quantifier le phénomène, on détermine la différence de couverture entre les deux régions de part et d'autre du bord initial par intégration du gradient de couverture vertical. La figure IV.14 montre l'évolution de la différence d'épaisseur apparente avec la température, pour trois expériences différentes effectuées sur la même région de la surface 1, pour une désaturation à $H \simeq 1$ mm ($\Delta\mu \simeq -5 \mu\text{K}$). On constate une bonne reproductibilité de la décroissance de la différence de couverture. Le phénomène commence à 1.85 K et s'achève vers 2 K. Une quatrième courbe illustre la métastabilité des états intermédiaires lorsqu'on redescend la température. La figure IV.15 montre la variation de la différence de couverture pour un film de pré mouillage plus mince, correspondant à $H \simeq 2$ cm ($\Delta\mu \simeq -100 \mu\text{K}$). L'allure générale est semblable même si la différence semble commencer à diminuer plus tôt et décroître plus vite. Théoriquement, l'écart entre la température de pré mouillage pour cette désaturation et celle pour $H = 1$ mm est de 8 mK.

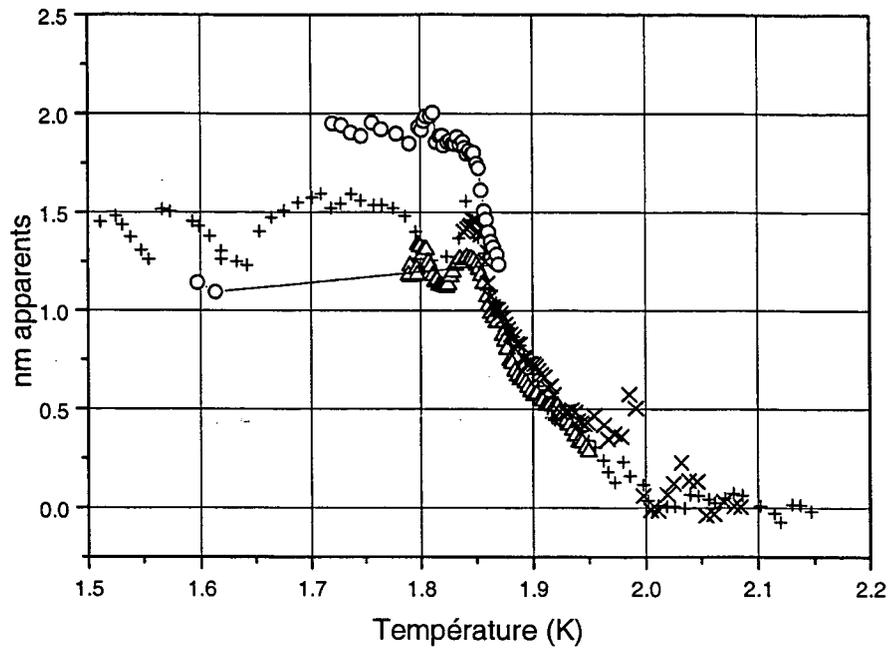


Fig. IV.14: Différence d'épaisseur apparente entre les deux côtés du bord du film en fonction de la température correspondant à une désaturation $H \simeq 1$ mm. Les différents symboles correspondent à des expériences successives sur la même surface. Une boucle d'hystérésis (cercles) montre que les couvertures intermédiaires sont stables au refroidissement.

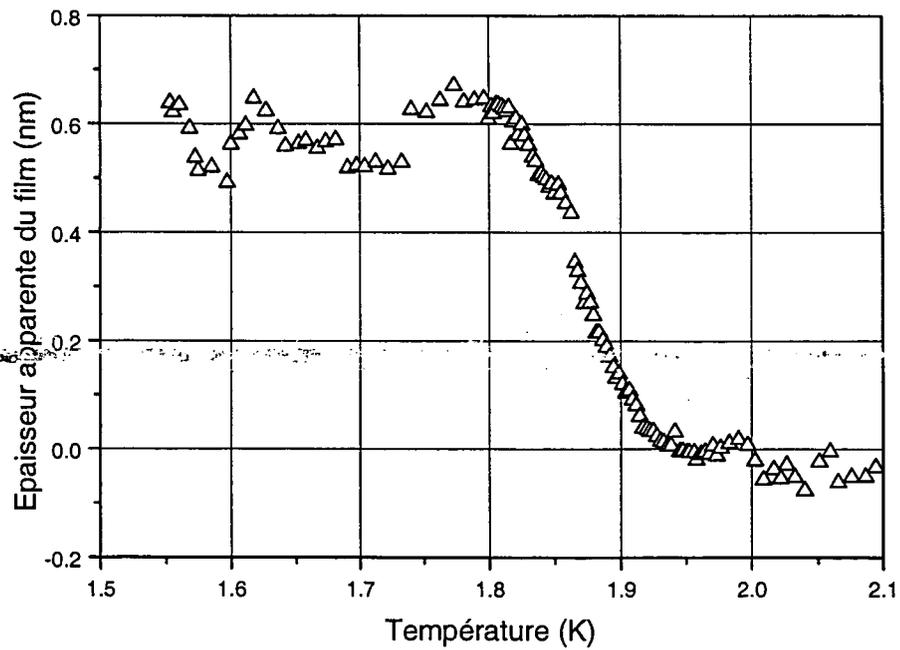


Fig. IV.15: Différence d'épaisseur apparente entre les deux côtés du bord du film correspondant à une désaturation $H \simeq 20$ mm.

Mentionnons que le même type d'évolution a été observée sur d'autres surfaces de césium. Tout en restant continue, l'évolution de certaines d'entre elles est plus rapide, ne s'étalant que sur 10 mK, au lieu des 150 mK observés ici.

3. Tentative d'interprétation

Nous avons vu que le film initial a l'épaisseur normalement prévue pour un film saturé. La diminution de la différence de couverture entre ce film et la partie initialement sèche ne peut donc correspondre qu'à la croissance progressive sur cette dernière d'une couverture partielle. Nous interprétons une telle couverture comme un film lacunaire à une échelle inférieure à la largeur des taches de diffraction. En effet, une couverture homogène ne peut exister qu'avec l'épaisseur du film mince ou celle du film épais. Les épaisseurs intermédiaires sont instables. Dans cette hypothèse, la proportion de la différence d'épaisseur par rapport à la valeur initiale représenterait en première approximation la portion restant sèche. Pour fixer les idées, précisons que la distance sur laquelle un film d'épaisseur adapte son épaisseur est donnée par :

$$\lambda_c = \left(\frac{m\gamma}{\rho C_3} \right)^{1/2} \left(\frac{C_3}{\Delta\mu} \right)^{2/3} \quad (\text{IV.3})$$

(réf. [74]). Pour des films d'épaisseur 50 nm, $\lambda_c \simeq 1 \mu\text{m}$. Dans la suite nous appellerons "couverture intermédiaire" un tel état de la surface. Nous verrons au prochain paragraphe que cette interprétation est appuyée par une autre observation. Notons pour terminer que les vortex à coeur très ouverts au voisinage de la transition de mouillage proposés par de Gennes pourraient contribuer à stabiliser une telle structure de film à trous (ref. [75]).

4. Angle de contact sur une surface de couverture intermédiaire

La persistance d'une partie sèche dans l'état de couverture intermédiaire devrait se traduire par un angle de contact non nul du liquide massif sur cette surface. Tirant parti du fait que l'on peut figer un état de couverture intermédiaire en redescendant la température, nous avons fait des mesures d'angle de contact à plus basse température. De plus cette expérience permet de répondre à une autre question : le film de couverture intermédiaire est-il macroscopiquement homogène sur toute la surface, ou bien a-t-il envahit uniquement la proximité du bord ?

Le chauffage d'un film épais est donc arrêté à une température T , comprise entre 1.85 K et 2 K. Puis la cellule est refroidie à 1.62 K, et de l'hélium est réinjecté. La figure IV.16 montre l'angle de contact θ relevé en fonction de la distance parcourue par la ligne triple à partir du bord du film pour une surface ayant été chauffée à 1.869 K. D'une part, on y constate que θ n'est pas nul, même si sa valeur est bien inférieure à celle sur une région complètement sèche ($\theta \simeq 21^\circ$). D'autre part, cette valeur est la même sur toute la plage en avant de l'ancien bord de film. Remarquons que la croissance initiale de l'angle s'effectue pour une position de la ligne qui reste fixe à 1 ou 2 pixels près. Nous concluons de cette courbe que toute la surface a bien été envahie par le film dans la même proportion. Nous avons vu que le début de la décroissance de l'épaisseur apparente correspondait à l'apparition des bosses d'hélium. Si le bord du film est

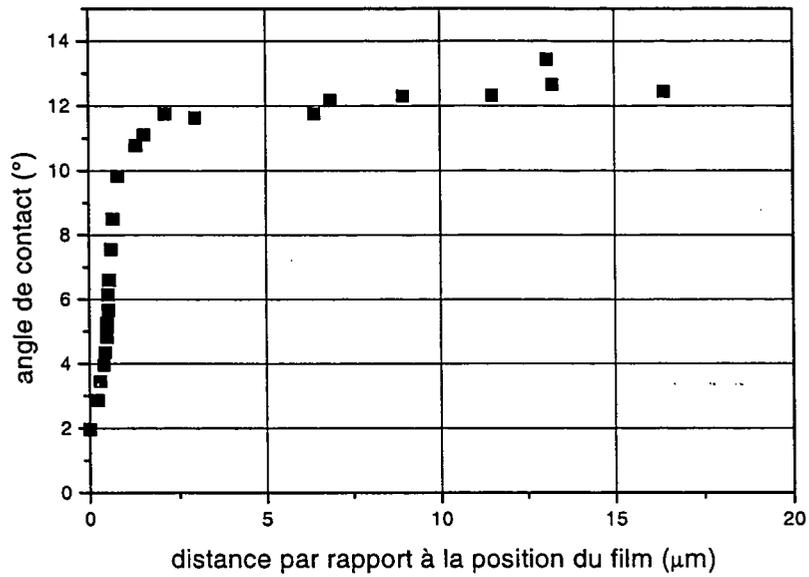


Fig. IV.16: Angle de contact d'avancée à 1.6 K sur une surface ayant été chauffée à 1.869 K, en fonction de la distance par rapport à la position du bord du film avant chauffage. La résolution en distance correspond à 2 pixels= $3.6 \mu\text{m}$.

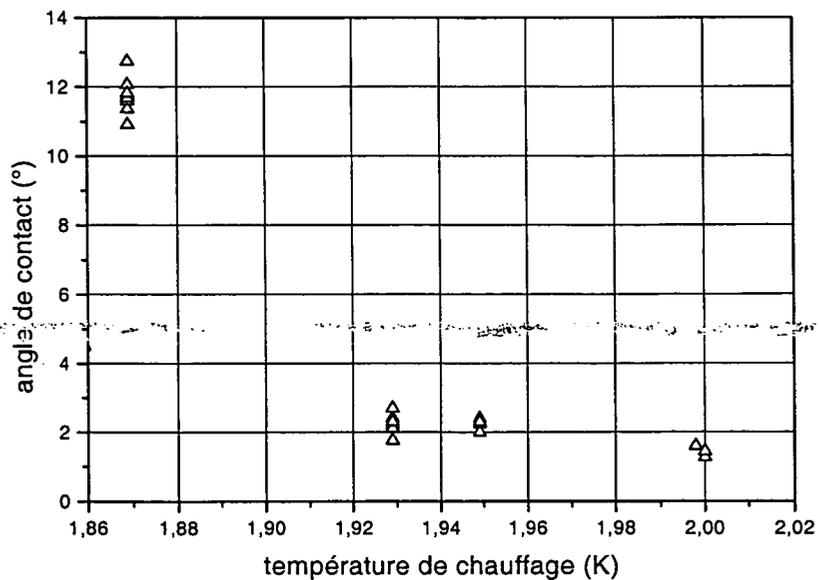


Fig. IV.17: Angle de contact d'avancée à 1.6 K en fonction de la température à laquelle a été chauffé la surface.

hors de l'image, l'existence des bosses d'hélium est alors un bon signe de la présence d'un film d'hélium sur la surface.

La figure IV.17 présente l'angle d'avancée pour quelques températures à laquelle a été chauffé le film. Essayons d'analyser cette courbe dans l'hypothèse de la présence d'un film lacunaire. Mentionnons tout d'abord que les théories existantes de l'hystérésis de l'angle de contact supposent que la ligne triple est faiblement déformée ([34]). Nous sommes ici dans la situation opposée où la ligne triple est non connexe, délocalisée sur une certaine profondeur. Contentons nous d'une simple moyenne des forces agissant sur la ligne triple. Soit q le taux de surface encore sèche, sur laquelle l'angle d'avancée serait θ_a . Nous admettons que q est donné expérimentalement par la proportion de l'épaisseur mesurée à l'épaisseur initiale. A la limite de l'angle d'avancée θ'_a , la ligne est en équilibre entre la force de freinage, $\gamma(\cos \theta'_a - \cos \theta_a)$ sur les parties sèches et la force d'étalement $\gamma(\cos \theta'_a - \cos 0)$ sur les parties mouillées, soit

$$q(\cos \theta'_a - \cos \theta_a) + (1 - q)(\cos \theta'_a - 1) = 0$$

Ce qui donne

$$1 - \cos \theta'_a = q(1 - \cos \theta_a)$$

Sur la figure IV.18, on peut comparer les points expérimentaux avec cette simple relation linéaire. Il apparaît que cette approche ne fonctionne pas ici alors qu'elle fonctionne dans la référence [70]. Ce point reste à éclaircir.

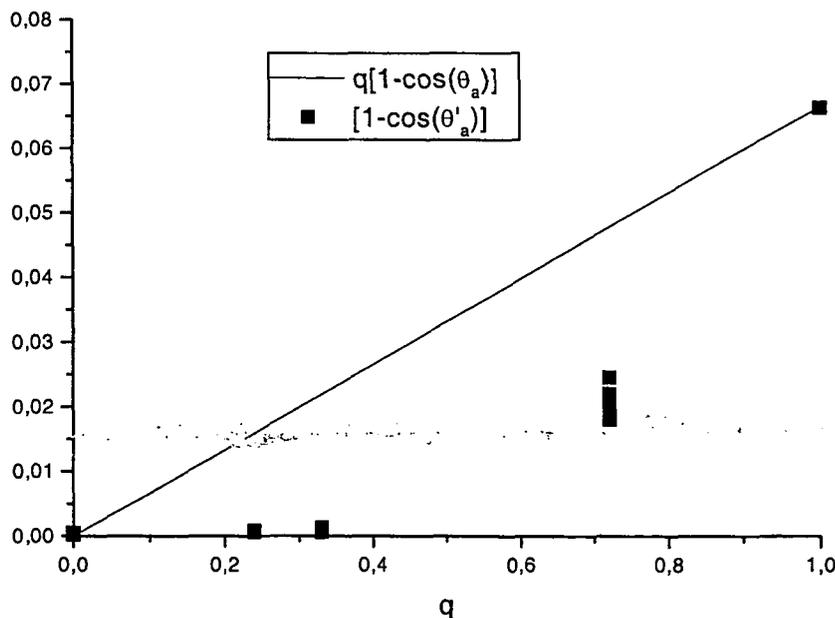


Fig. IV.18: Comparaison du pouvoir d'étalement moyen $- \gamma(1 - \cos \theta_a)q$ et du pouvoir d'étalement mesuré $- \gamma(1 - \cos \theta'_a)$ pour différentes proportions de surface sèche q , tirées de la courbe IV.17.

Le fait que la surface est en partie sèche entre 1.88 K et 2 K a des conséquences sur l'angle d'avancée du liquide sur cette surface dans cette gamme de températures. L'angle de contact

à ces températures devrait être non nul, quoique plus petit que les angles de la figure IV.17 mesurés à 1.6 K. Ainsi la courbe montrée au chapitre précédent (figure III.16) devrait posséder une extension des petits angles jusqu'à 2 K. Les premiers points au dessus de 1.9 K sur la figure semblent compatibles avec une telle possibilité.

5. Comparaison avec le modèle RFIM

Essayons d'abord d'évaluer le paramètre $\varepsilon = \frac{\sqrt{\langle (\delta h_i)^2 \rangle}}{J}$ qui caractérise la force du désordre. Soit a la taille typique d'une région homogène, $\delta S \simeq \delta \sigma_{sl}$ les fluctuations du pouvoir mouillant et e l'épaisseur du film. Remarquons que pour a petit par rapport à la largeur λ_c du bord de crêpe donnée par la formule IV.3, le film sera frustré et n'aura pas la possibilité de courber son bord afin de diminuer sa tension de ligne. Le profil du bord sera quasi-rectangulaire et la tension de ligne sera en ordre de grandeur $\Lambda = \gamma e \times \frac{e}{a}$. On a dans cette limite :

$$\varepsilon = \frac{\sqrt{\langle (\delta S)^2 \rangle} a^2}{\Lambda a} = \frac{\sqrt{\langle (\delta S)^2 \rangle}}{\gamma} \left(\frac{a}{e} \right)^2 \quad (\text{IV.4})$$

Les quantités $\langle (\delta S)^2 \rangle$ et a sont inconnues. Nous allons voir que l'on peut obtenir une description cohérente des observations sur la surface 1, ainsi que sur la surface 2 en admettant que $a \simeq 300$ nm. L'épaisseur e du film est 50 nm et $\gamma \simeq 270$ mK/Å². Remarquons que a est de l'ordre de grandeur de l'épaisseur de la couche de césium ($e_1 \simeq 250$ nm d'après le chapitre III). Ce n'est pas également éloigné de l'épaisseur sous-jacente d'or ($\simeq 80$ nm).

Le système se caractérise à la fois par une longueur de coopération faible, inférieure à quelques μm , et par l'apparition d'une couverture partielle, macroscopiquement homogène sur toute la surface initialement sèche. Qualitativement, le processus se rapproche de la situation de fort désordre $\varepsilon \geq 2$, où l'on observe la couverture moyenne rapportée à la couverture maximum. Toutefois, d'après la référence [41], dans l'hypothèse où l'on autorise la nucléation, il n'y a pas de seuil bien défini pour le début de la croissance de la couverture moyenne, et la largeur de l'hystérésis décroît lorsqu'on augmente le désordre. Nous avons alors considéré le cas étudié par Robbins *et al* pour lequel il n'y a pas de nucléation d'îlots séparés. Quelques images d'une telle simulation sont montrées sur la figure IV.19 dans le cas d'un réseau triangulaire pour $\varepsilon = 6$. Dans cette hypothèse, on retrouve un seuil pour la croissance de la couverture moyenne. Ce seuil dépend peu du désordre dès que $\varepsilon \geq 2$, et vaut $H_c^\oplus \simeq 2.5 J$. Quand on augmente H au delà du seuil, l'agrégat infini s'épaissit, et ceci d'autant plus lentement que le désordre est important. La figure IV.20 montre le résultat de simulations pour plusieurs paramètres de désordre et illustre ces caractéristiques. Lorsque $H \rightarrow \infty$ la fraction de spins Θ tend exponentiellement vers zéro, ce qui est lié au caractère gaussien du désordre choisi.

Nous avons cherché à comparer ces caractéristiques avec celles de la transition observée. L'épaisseur apparente, normalisée à l'épaisseur initiale est la fraction sèche de la surface. Elle correspond dans le modèle RFIM à la fraction des spins Θ qui est représentée dans la figure IV.20. Il faut ensuite faire correspondre l'échelle H du modèle à la variation de S pour les expériences. Pour cela nous savons que cette surface démouille à une température inférieure à

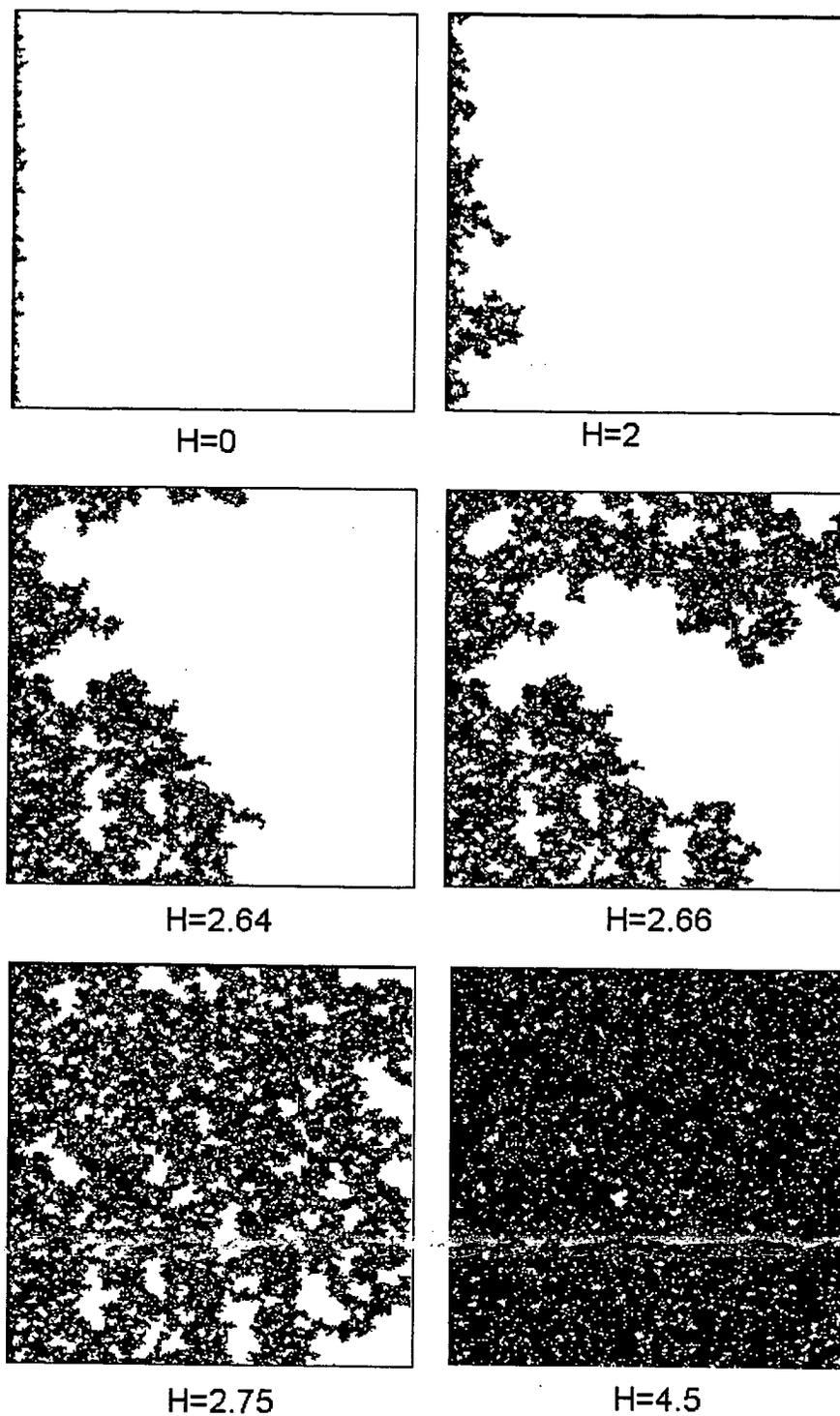


Fig. IV.19: Simulation du RFIM sans nucléation avec un désordre $\frac{\sqrt{\langle(\delta h_i)^2\rangle}}{J} = 6$ montrée à diverses valeurs du champ H . Les carrés noirs représentent des spins \oplus . Le seuil critique est $H_c \simeq 2.65$.

1.2 K et qu'elle mouille à environ 1.85 K. La largeur totale de l'hystérésis est au moins égale à $22 \text{ mK}/\text{\AA}^2$ sur une échelle telle que celle de la figure III.21 (qui à une constante près donne la variation de H). L'hystérésis du modèle d'Ising étant symétrique, le centre du cycle se situerait à $-\Delta\gamma = 11 \text{ mK}/\text{\AA}^2$, soit $T = 1.6 \text{ K}$, qui correspond à $H = 0$. La variation de S depuis ce point est $S(T) - S(1.6 \text{ K}) = -[\gamma(T) - \gamma(T = 1.6 \text{ K})]$. Elle correspond à H à un facteur p près qui est déterminé en faisant coïncider le seuil de mouillage avec le seuil du RFIM. Les points expérimentaux de la figure IV.20 ont été portés de cette façon. En comparant les pentes à mi-hauteur, on trouve que le comportement expérimental se rapproche des simulations faites avec comme paramètres de désordre 4.5 et 6 pour les films d'épaisseurs réelles respectives 30 et 60 nm. La figure IV.19 montre différentes étapes d'invasion dans le cas $\varepsilon = 6$. $\varepsilon = 4.5$ et $\varepsilon = 6$ sont des cas de fort désordre, pour lesquels la longueur de coopération est de l'ordre du pas du réseau, ici $a = 300 \text{ nm}$. Cette distance est effectivement nettement plus petite que la résolution optique.

En conclusion, la comparaison avec le modèle basé sur le RFIM suggère :

- qu'il s'agit d'une surface qui, pour le mouillage, est caractérisé par un désordre fort.
- qu'il y a un seuil d'invasion parce qu'il n'y a pas de nucléation spontanée d'îlots mouillés en avant du front.
- que la couverture progressive correspond à l'épaississement de l'agrégat "infini" formé lors de l'invasion.

C. Transition de pré-mouillage sur la surface 2

Cette surface se distingue nettement de la surface 1 pour les caractéristiques de la transition de pré-mouillage. Ici le bord du film se déplace à des échelles macroscopiques, permettant de "voir" la transition. De telles images seront d'abord montrées. Nous essayerons ensuite de caractériser la morphologie du film. Enfin nous étudierons sa dynamique en définissant une vitesse d'avancée dont nous discuterons l'évolution avec la température.

1. Observation de la transition

Un film d'épaisseur apparente 1.7 nm est déposé sur la surface à 1.6 K. Son bord est bien lisse, légèrement relevé sur la proximité du bord du cache. Puis la température est élevée. Vers $T = 1.817 \text{ K}$, le bord du film se distord. La température est alors stabilisée et reste égale à 1.817 K à quelques mK près pendant toute l'observation de l'évolution du front. Des images sont prises avec $N=100$ toutes les 2 min pendant 4 h. La figure IV.21 montre une sélection de ces d'images séparées de 20 min. Le même genre de séquences a été réalisée avec des films d'épaisseur différentes et à des températures différentes, ainsi que sur d'autres régions de la surface. Notons que c'est la première fois que de telles observations ont pu être faite pour la transition de pré-mouillage. Récemment, des observations semblables ont été faite sur un système magnétique à 2D (ref. [76]).

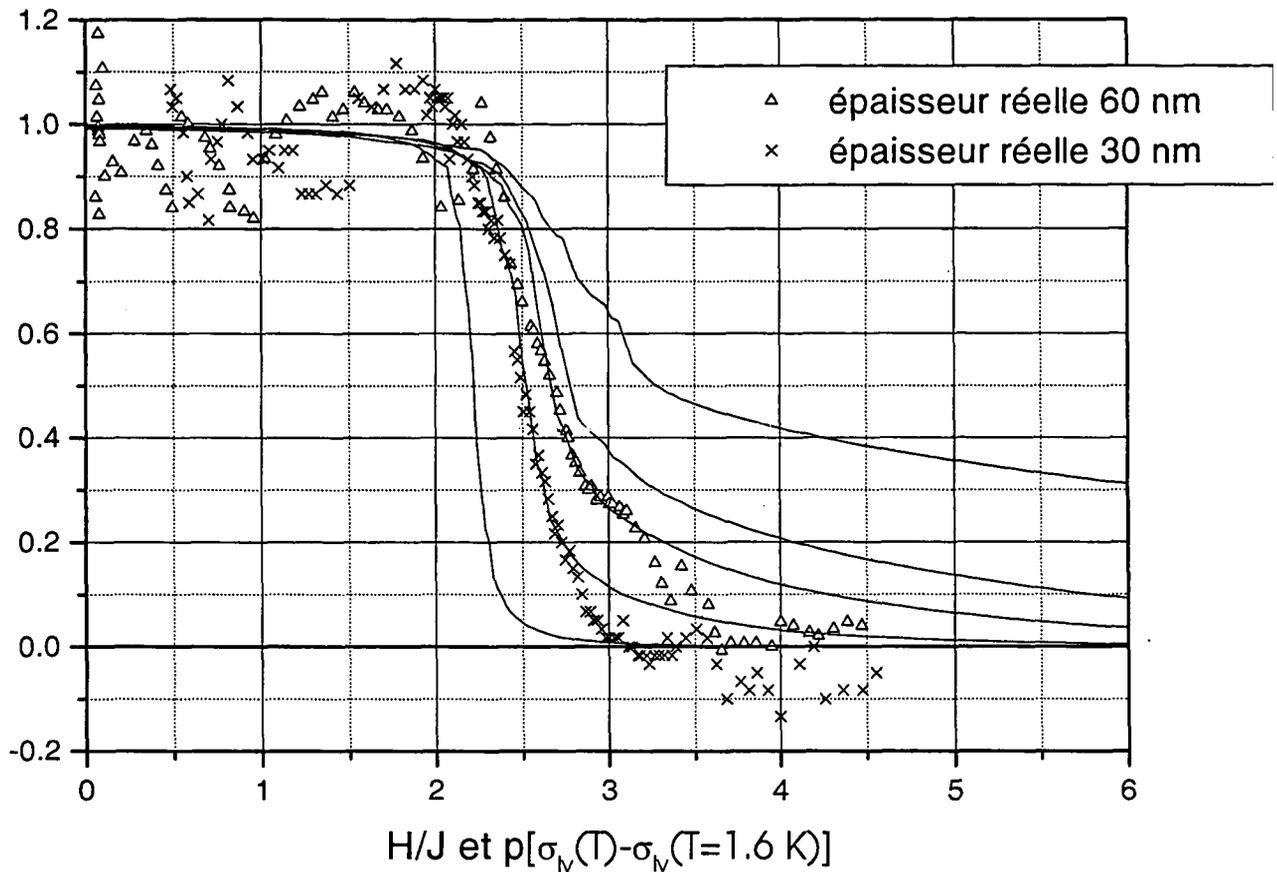


Fig. IV.20: Evolution de la fraction sèche d'une surface dans le modèle du RFIM avec l'augmentation du champ magnétique, et de l'épaisseur apparente normalisée de deux films d'hélium durant la transition de pré-mouillage sur la surface 2. Les simulations ont été faites dans l'hypothèse qu'il n'y a pas de nucléation, sur des réseaux triangulaires 256×256 et 500×500 , et pour une distribution gaussienne du champ aléatoire de largeur $\epsilon = \frac{\sqrt{\langle (\delta h_i)^2 \rangle}}{J}$ de gauche à droite égale à 3, 4.5, 6, 7.5, 15. L'axe des abscisses est H pour le modèle d'Ising et $p[\gamma(T) - \gamma(T = 1.6 \text{ K})]$ pour les épaisseurs, p étant un facteur ajusté pour faire se coïncider les seuils. La comparaison des pentes à mi-hauteur rapproche les courbes expérimentales des simulations faites avec $\epsilon \simeq 4.5$ et 6 pour les films d'épaisseurs réelles respectives 30 et 60 nm.

2. Morphologie du film

La morphologie du film est relativement constante au cours de l'invasion. Elle se caractérise par plusieurs points :

i) Le bord du film a une longueur de corrélation macroscopique clairement visible de l'ordre d'une dizaine de μm . Elle est donc nettement plus importante que pour la surface 1, pour laquelle elle était inférieure à la résolution du microscope. Pour caractériser plus quantitativement cette longueur, nous avons tracé pour certaines images l'écart type de la hauteur du front, $w(l)$, calculé sur une largeur l parallèle à l'orientation générale du bord. Le résultat est montré sur la figure IV.22. Aux courtes distances, la courbe démarre d'une valeur non nulle. Ceci est la conséquence du fait que le front n'est pas une fonction univaluée, mais contient des surplombs

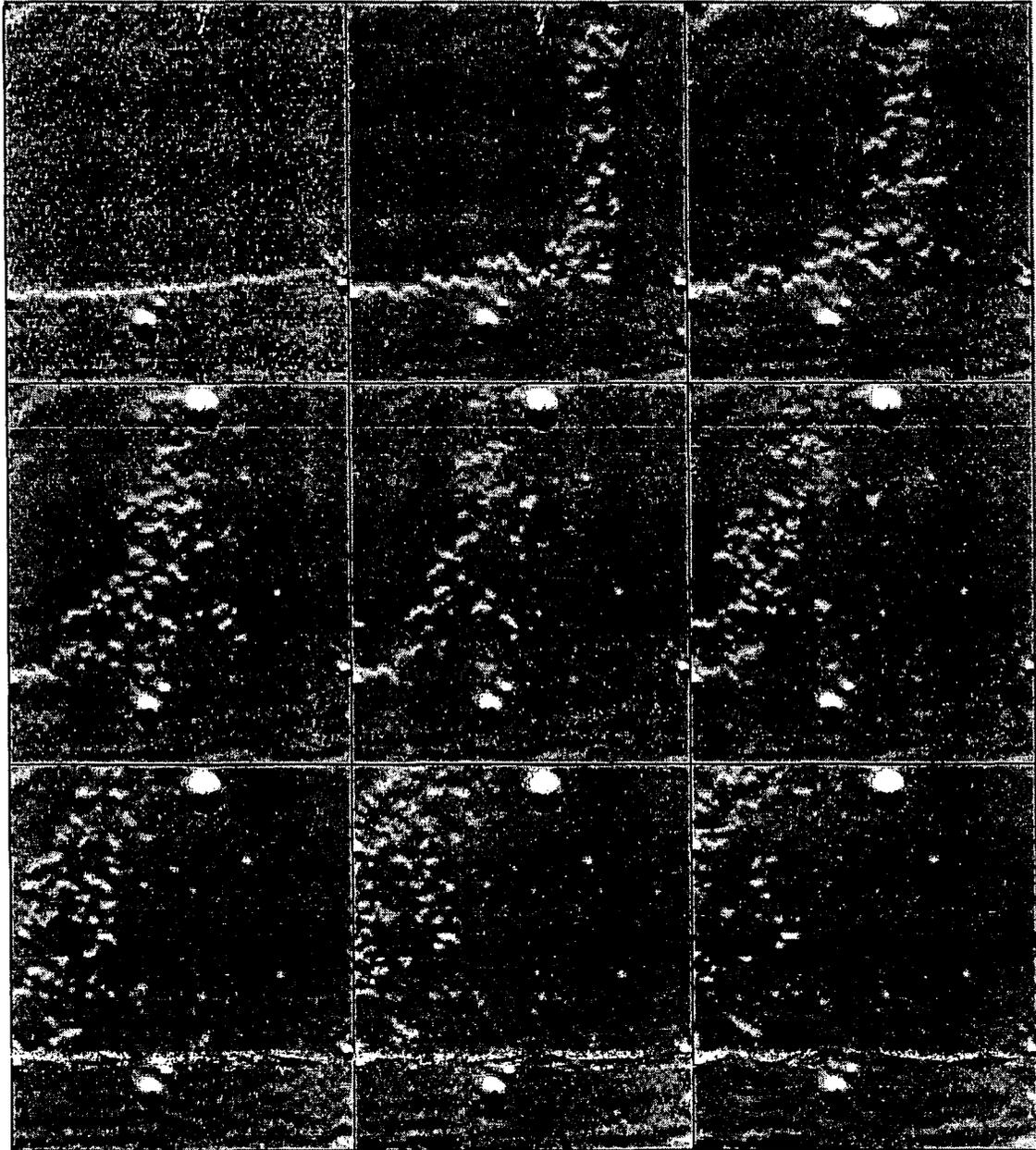


Fig. IV.21: Exemple de transition de pré mouillage sur la surface 2. La température est constante et vaut 1.817 K. L'épaisseur apparente du film est 1.7 nm, soit une épaisseur réelle de l'ordre de $e = 75$ nm. Vingt minutes séparent chaque image.

et des inclusions isolées. La profondeur de délocalisation du front est de l'ordre de $55 \mu\text{m}$. Cette caractéristique est complètement différente de la morphologie de la ligne triple pour un angle fini par exemple. A plus grande échelle, $w(l) \sim l^\alpha$, avec α de l'ordre de 0.18. Le passage entre les deux régimes se fait pour une longueur $l_{\text{correl}} \simeq 10 \mu\text{m}$.

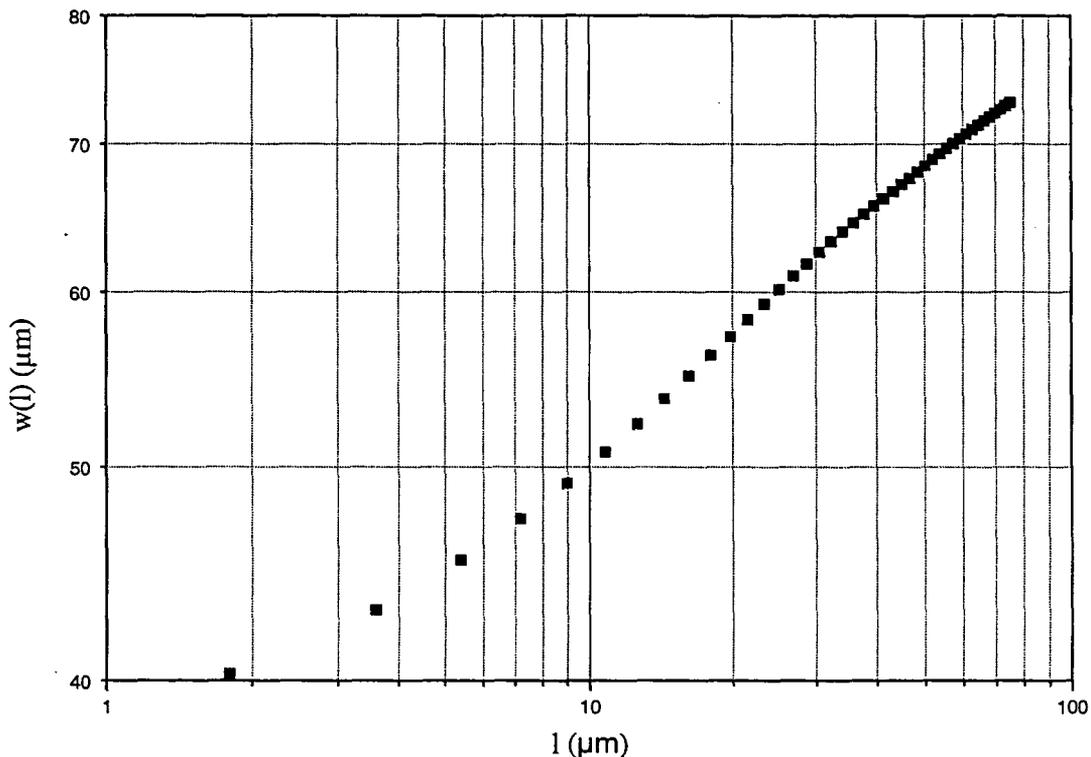


Fig. IV.22: $w(l)$ est l'écart quadratique des fluctuations du bord du film sur une distance l , le long d'une droite approximant le bord. Cette courbe est le résultat d'une double moyenne, faite sur plusieurs transitions et dans chaque transition sur plusieurs images. Au sein d'une même transition, les images utilisées sont celles où les bords du film sont statistiquement indépendants.

ii) S'il y a des flots secs à l'intérieur du film épais, il ne semble pas y avoir de nucléation d'flots indépendants en avant du front. Il est peu probable que des régions mouillées de taille inférieure à la résolution n'apparaissent. Même les défauts qui donnent lieu à une forte condensation capillaire ne se couvrent d'hélium que lorsque le bord arrive à leur niveau. On a ainsi une indication nette que la surface reste sèche en avant du front.

iii) Les morphologies successives du film ont des ressemblances entre les expériences à températures et épaisseurs différentes. La figure IV.23 montre des motifs de la taille de quelques $10 \mu\text{m}$ qui se répètent. Pour une épaisseur bien plus faible, la figure montre que les longueurs de corrélation sont équivalentes, et qu'on retrouve certains motifs. Le contour du film révèle donc certains motifs du désordre figé de la surface. Remarquons que l_{correl} est très grand par rapport aux dimensions typiques a qui caractérisent l'homogénéité de la surface de césium, qui peuvent varier de 0 à quelques épaisseurs de la couche (40 nm), ou de l'ordre de l'épaisseur de la couche

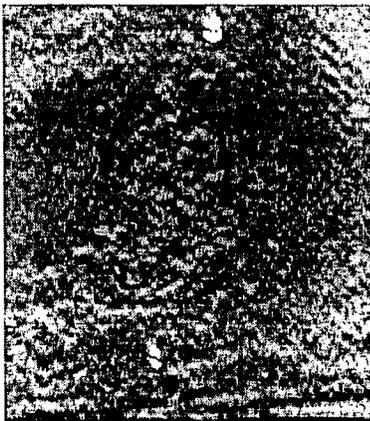
d'or (80 nm). On se trouve donc nécessairement dans le cas du désordre faible. Dans le RFIM, la longueur de corrélation croît exponentiellement avec l'inverse du carré du désordre :

$$\frac{l_c}{a} = \exp \left[s \left(\frac{J}{\sqrt{\langle (\delta h_i)^2 \rangle}} \right)^2 \right]$$

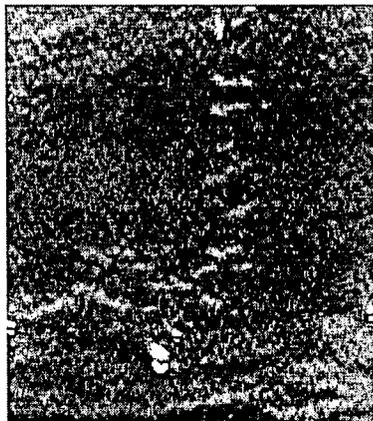
s étant un facteur de l'ordre de 2 ([77]). Une telle formule, conduit à :

$$\frac{\sqrt{\langle (\delta h_i)^2 \rangle}}{J} = \sqrt{\frac{s}{\ln \left(\frac{l_c}{a} \right)}}$$

On trouve $\frac{\sqrt{\langle (\delta h_i)^2 \rangle}}{J} \simeq 0.75$ pour $l_c = 10 \mu\text{m}$, $s = 2$, et en conservant $a = 300 \text{ nm}$. D'après la formule IV.4, cela correspond à $\sqrt{\langle (\delta S)^2 \rangle} \simeq 6 \text{ mK}/\text{\AA}^2$. Dans la limite des désordres faibles, la largeur du cycle d'hystérésis $2H_c$ du RFIM est de l'ordre de $2.4J$, soit $2.4 \times \frac{\sqrt{\langle (\delta h_i)^2 \rangle}}{\varepsilon}$. Avec $\sqrt{\langle (\delta S)^2 \rangle} \simeq 6 \text{ mK}/\text{\AA}^2$ et $\varepsilon = 0.75$, on trouve une largeur d'hystérésis $S^\oplus - S^\ominus \simeq 19.2 \text{ mK}/\text{\AA}^2$. On peut noter que ce résultat n'est pas très différent de la valeur $18 \text{ mK}/\text{\AA}^2$ qui apparaît sur la figure III.21. Toutefois, il faut noter que les considérations précédentes sont relatives à des modèles à température nulle, en dessous du seuil, alors que nous allons voir que nous sommes au dessus du seuil, en présence d'activation thermique.



e=0.38 nm, T=1.825



e= 1.2 nm, T=1.826



e=1.7 nm, T=1.817

Fig. IV.23: Analogie de motifs dans la morphologie de l'envahissement. Des formes de taille de quelques $10 \mu\text{m}$ sont communes à ces trois images, empruntées à des transitions de pré mouillage ayant eu lieu à des températures différentes et pour des épaisseurs de film différentes. Le motif redondant le plus visible dans les trois transitions est l'avancée du film qui se trouve sous le centre de l'image. D'autres, plus en haut, sont plus discrets, mais ne se retrouvent pas dans les trois en même temps.

3. Cinétique de l'invasion

Soulignons que la progression du film a lieu à température constante. Les états du film que nous avons discutés précédemment ne sont pas des états d'équilibre, mais des états transitoires. L'évolution se fait par des avalanches successives dont la taille maximale semble être de l'ordre de

l_{correl} . Toutefois, le rythme d'acquisition d'image n'est pas suffisant pour avoir une description de ces avalanches en particulier celles de petites tailles. Ainsi nous nous sommes contentés de définir une vitesse d'avancée moyenne. Pour cela nous avons relevé entre chaque image, l'augmentation de la surface recouverte par le film qui apparaît simplement sur la différence de deux images consécutives. Cette surface est évaluée par une approximation de polygones en incluant les trous qui se bouchent à l'intérieur du film. Cette surface, divisée par l'extension latérale du front (sans tenir compte de ses détails) et par le temps séparant les deux images, donne une vitesse d'avancée moyenne en $\mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$. Nous avons constaté d'une part que les variations de cette vitesse sont en valeur relative assez importante, et d'autre part que sa valeur moyenne dépend de la température et de l'épaisseur du film (nous verrons au paragraphe prochain que la vitesse dépend aussi de la position du bord de film sur la zone étudiée; les vitesses ont donc été toutes déterminées sur la première moitié de la zone). La figure IV.24 montre le résultat ainsi obtenu à partir de séquences réalisées à plusieurs températures. Notons que pour les vitesses les plus élevées, les acquisitions ont été faites avec $N = 10$ (l'acquisition dure alors 0.8 s), ce qui donne des images à faible signal sur bruit. Les épaisseurs indiquées sont les épaisseurs apparentes. Les films ont été classés en "film épais" pour lesquels la désaturation est de l'ordre du mm, et en "film mince" pour lesquels elle est de l'ordre du cm. La sensibilité de la vitesse à l'épaisseur du film est assez faible, mais en moyenne à une même température la vitesse est plus grande pour les films épais.

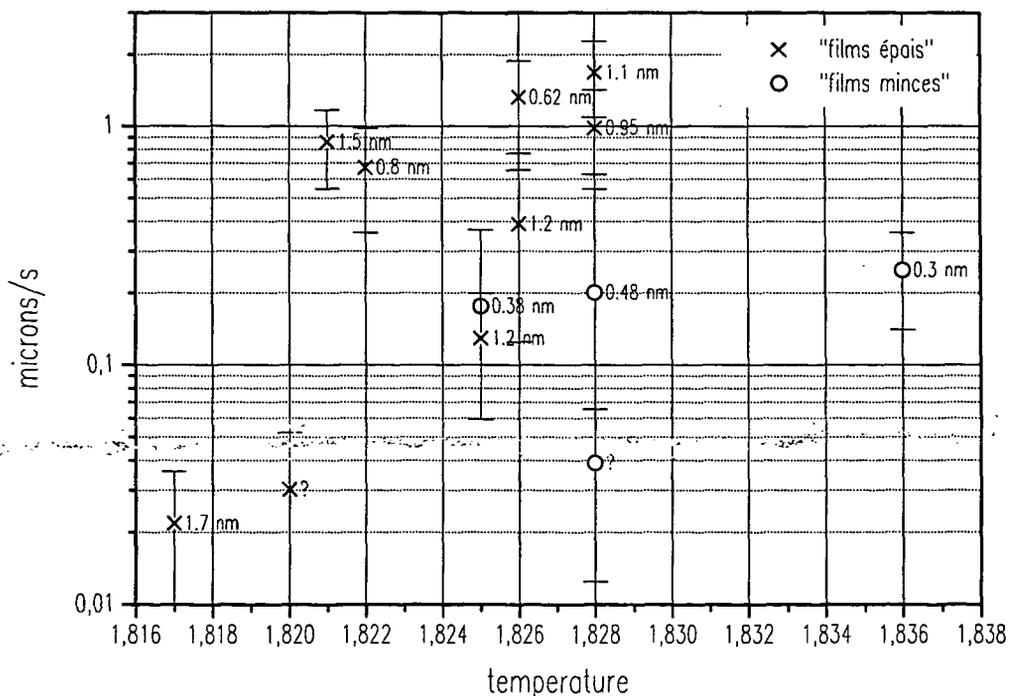


Fig. IV.24: Vitesse d'avancée du film selon la définition donnée dans le texte à diverses températures. Pour chaque catégorie de film, film mince ou film épais, l'épaisseur varie à cause de l'incertitude sur le pompage de la cellule. Certaines épaisseurs n'ont pu être mesurées à cause d'un problème de bruit de caméra.

La variation de la vitesse moyenne avec la température est très importante pour les films épais, environ deux ordres de grandeur pour une dizaine de mK. Elle semble moins marquée pour les films minces. La variation de la vitesse avec la température n'implique pas nécessairement un processus activé thermiquement. En effet la température fait aussi varier le paramètre de contrôle, ici le pouvoir mouillant. Dans le modèle RFIM, où la température est nulle, on obtient une vitesse non nulle au delà du seuil dans la mesure où il n'y a plus d'états d'équilibre. Dans le cas plus simple de transition de décrochage, la vitesse est strictement nulle en dessous d'un seuil pour la valeur du paramètre de contrôle, et croît comme une puissance de l'écart par rapport au seuil au-dessus. A température non nulle, les études de mouvement de ligne dans un milieu désordonné cherchent à décrire la vitesse par une loi du type :

$$v \sim e^{-\left(\frac{H-H_c}{T}\right)^\alpha}$$

au dessous du seuil. La vitesse n'est plus strictement nulle. Une telle loi, vérifiée récemment pour le mouvement de la ligne triple ([65]) et pour une paroi de domaine magnétique 2D ([76]), impliquerait ici une loi d'échelle du type :

$$\ln v \sim \left(\frac{T - T_W}{T}\right)^\alpha$$

La dispersion des points ne permet pas de déterminer α précisément. Tout au plus peut-on noter qu'ils sont compatibles avec une simple loi linéaire $\alpha = 1$, et que la pente croît avec l'épaisseur.

Remarquons qu'il y a un indice assez clair du rôle de l'activation thermique dans le processus d'avancée : les trous isolés qui sont laissés par le front au cours de son avancée finissent par se fermer, de sorte que la profondeur totale du front reste finie. En effet, à température nulle, lorsqu'un trou est fermé à un certain stade, tous les points de sa frontière sont accrochés au moment où il se fige. Il ne peut plus évoluer à un stade ultérieur dans la mesure où pour les spins le long de la frontière, le champ des voisins est définitivement fixé. Au contraire, en présence d'activation thermique, certains d'entre eux peuvent se retourner et déclencher de nouvelles avalanches. L'observation de l'avancée par avalanches successives du front à température constante relève du même phénomène.

Terminons sur une remarque concernant les expériences de Constance sur l'écoulement d'une goutte d'hélium sur une surface césinée inclinée. Cette équipe avait observé qu'à 1.85 K, l'écoulement de la goutte s'accompagnait de l'étalement d'un film d'hélium de 30 nm d'épaisseur, avançant à la vitesse de 0.5 cm/s ([28]). La zone entourant la goutte, étant en légère désaturation par rapport à celle-ci, le mouvement du film avait été interprété comme une traversée spatiale du diagramme de pré mouillage en même temps que la goutte descend. Si on rapproche la situation de cette expérience de celle de notre surface à faible désordre, l'avancée du film se ferait par activation thermique près du seuil de décrochage, mais un peu plus loin. L'extrapolation de la vitesse d'avancée du film de la figure IV.24 à la température de 1.85 K est effectivement compatible avec la vitesse mesurée par le groupe de Constance.

4. Anisotropie de l'invasion

L'évolution globale du film épais au cours de l'invasion fait également apparaître des caractéristiques intéressantes. Au début, un bord apparaît à droite de l'image. La présence de ce bord vertical peut s'expliquer par la présence initiale de ce côté d'un film épais sous le cache. Ce film a pu s'étendre sur toute la zone voisine, éventuellement plus mouillable, du fait de l'ascension capillaire du liquide sous le cache. Nous savons, pour y avoir regardé le film après qu'il ait traversé l'image, que la zone à gauche de la région observée est faiblement mouillante sur une grande partie délimitée par une ligne verticale où le film est nettement ralenti. La région observée est donc entourée de deux zones mouillant différemment. A partir de ce point, on s'attendrait à observer une avancée semblable du front vertical de droite, et du bord horizontal inférieur. Or il n'en est rien et l'on observe que c'est essentiellement le bord vertical qui progresse. Ainsi, au milieu de l'image, la vitesse de ce front est deux fois plus faible qu'elle n'a été pour le front horizontal. On est donc conduit à admettre que la surface est anisotrope, c'est-à-dire que les barrières à franchir pour l'avancée du bord du film sont plus importantes en moyenne dans le sens vertical qu'horizontal. Une telle propriété pourrait être liée au fait que les dépôts de la couche de césium sont faits avec une incidence à 45° dans le plan horizontal, mais ce point reste à confirmer expérimentalement. Enfin la figure IV.25 montre pour une expérience, la vitesse mesurée en fonction du temps. Au delà des fluctuations statistiques, on observe que la surface n'est pas macroscopiquement homogène (il est difficile de tracer cette courbe en fonction de la position pour en faire ressortir les corrélations car la direction du front évolue au cours de la traversée du film).

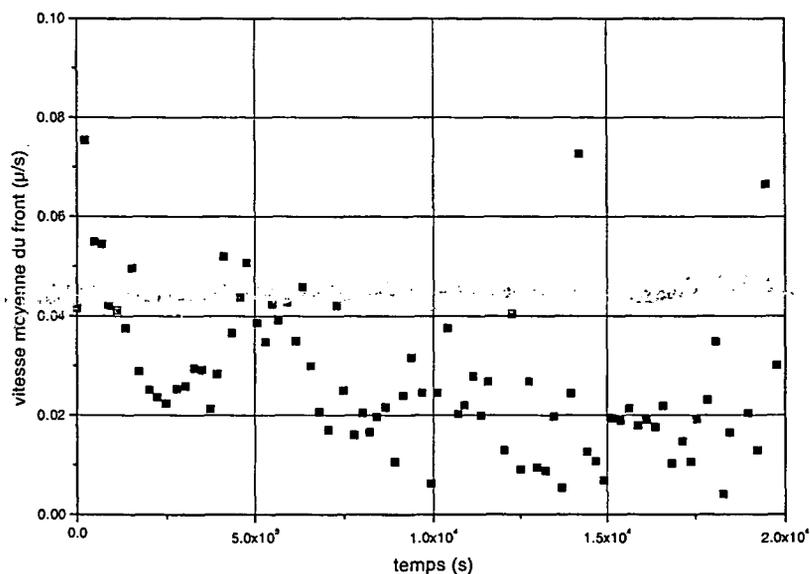


Fig. IV.25: Vitesse d'avancée du front au cours du temps à T=1.817 K.

5. Début de démouillage du film

Sur la partie de cette surface observée précédemment, plusieurs indications de démouillage du film ont pu être obtenues vers 1.2 K. Pour obtenir cette température, on pompe sur la cellule elle-même, ce qui fait que les conditions d'épaisseurs ne sont pas bien définies. Néanmoins, pour des épaisseurs faibles, le démouillage du film a pu être observé à $T=1.22$ K. Ce démouillage se fait de manière trop rapide pour être analysé. Pour des épaisseurs importantes, un démouillage incomplet a été observé à $T \simeq 1.23$ K. Dans ce cas, le démouillage a débuté à l'intérieur du film, qui a "craqué" sur des longueurs de quelques $10 \mu\text{m}$, donnant une image ressemblant à une fracture (figure IV.26). Puis le démouillage s'est propagé à partir de cette région asséchée, et s'est arrêté laissant l'hélium en une bande traversant l'image (figure IV.27). Le démouillage, comme le mouillage, est anisotrope et orienté horizontalement.

D. Epaisseur du film de prémouillage

Durant certaines transitions de prémouillage, nous avons observé une élévation soudaine de l'épaisseur apparente du film. Nous décrivons ce phénomène, puis en l'interprétant comme un véritable épaissement, nous discuterons diverses explications envisageables.

1. Faits expérimentaux

Au cours des observations des transitions de prémouillage du type de celles de la surface 1 (c'est à dire les cas où il n'y a pas de déplacement visible du front, mais seulement une baisse continue de l'épaisseur apparente mesurée), un phénomène inattendu est survenu. A la fin de la transition de prémouillage, alors qu'il n'y avait plus, ou presque plus, de bord apparent du film, un front d'hélium est apparu là où se trouvait le bord du film. Les figures IV.28 et IV.29 montrent deux acquisitions successives entre lesquelles est apparu ce phénomène. Le front est bien plus élevé que ne l'est le film de prémouillage. D'après la figure IV.30, qui montre un profil intégré moyen tiré de l'image, son épaisseur apparente est environ 6 nm (contre 0.4-1.7 nm pour les films de prémouillage étudiés), ce qui correspond à une épaisseur réelle de 250 nm en prenant $\beta = 1$ (le facteur β doit être ici légèrement différent de celui calculé au chapitre 1 car la surface étant quasiment entièrement mouillée, les deux polarisations traversent un film d'hélium). En même temps qu'apparaît ce front, les bosses d'hélium s'agrandissent.

Voici quelques observations que l'on peut faire sur ce phénomène :

- Sur une même surface, il eu lieu pour certaines des transitions prémouillages mais pas pour toutes. Toutes surfaces confondues, l'ensemble des épaisseurs de films de prémouillage sur lequel a lieu l'épaississement est compris entre 0.5 et 1.8 nm.
- Les températures d'apparition sont situées aux alentours de 1.95 K, et celles de disparition vers 2.05 K, sans qu'on puisse établir une corrélation avec les épaisseurs initiales.
- Le phénomène a montré une grande variété de comportements dynamiques. Le front montré sur l'image IV.29 est apparu soudainement entre deux acquisitions. Il a disparu puis est

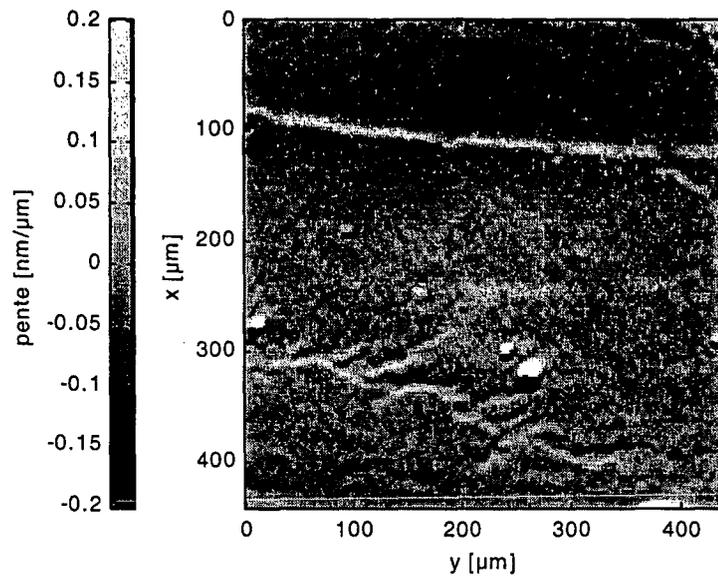


Fig. IV.26: Début de démoillage d'un film d'épaisseur apparente 1.2 nm, soit environ 50 nm d'épaisseur réelle, à $T = 1.22$ K, alors que la cellule est en pompage.

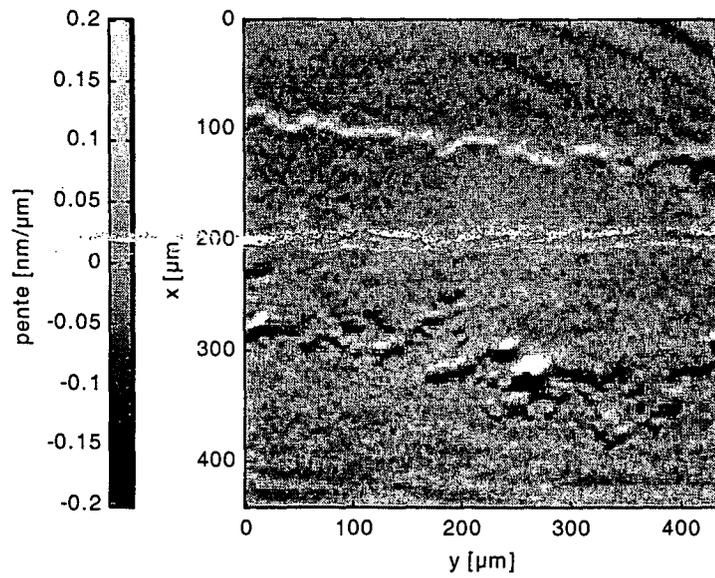


Fig. IV.27: Etape finale observée du démoillage.

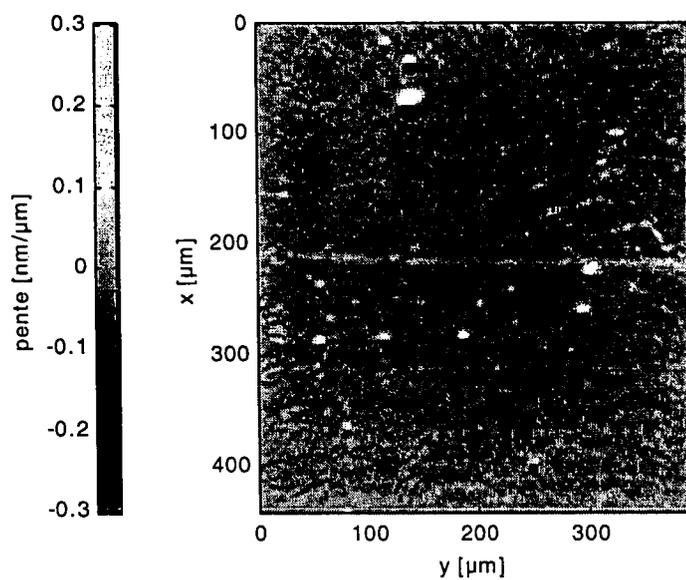


Fig. IV.28: Image juste avant épaisseur

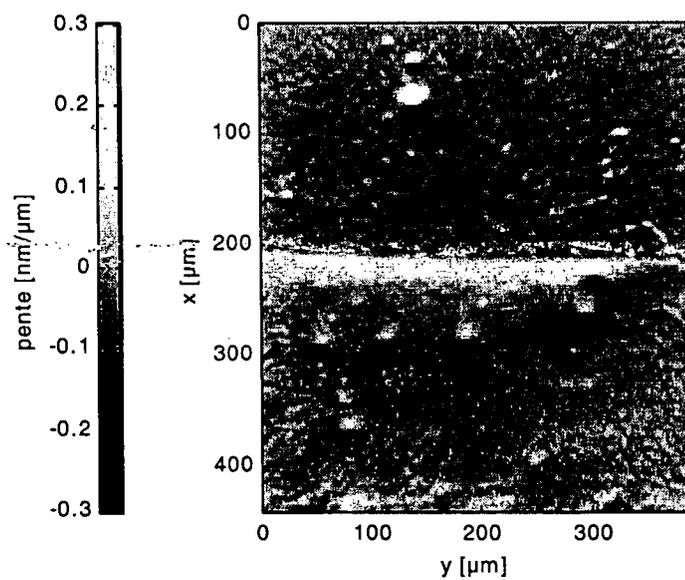


Fig. IV.29: Image de l'épaissement apparent du film. La température est de 1.963 K. Le bord du film, qui avait une épaisseur apparente de 1.5 nm avant la transition, se trouvait là où est l'actuel front.

réapparut, alors qu'on élevait la température. Dans d'autres transitions, le front a évolué comme une vague, soit sous la forme d'une onde solitaire qui se déplace, soit sous la forme de dépressions sans taille ni forme caractéristiques, elles aussi apparaissant puis disparaissant. Dans tous les cas, les hauteurs apparentes des dénivellations sont les mêmes et valent environ 6 nm.

- L'épaississement n'est pas exclusif à la zone anciennement recouverte par le film. Devant celle-ci, là où auparavant on ne voyait aucun signe de l'envahissement, on discerne maintenant par endroits le bord du film, qui s'avère, comme nous l'avions imaginé, très lacunaire. L'épaisseur de ce bord est nettement plus faible que le haut front. On a l'impression que sur cette zone, le film veut s'épaissir mais que la promiscuité avec des régions sèches l'en empêche. On constate que les régions mouillées autour des poussières augmentent également.

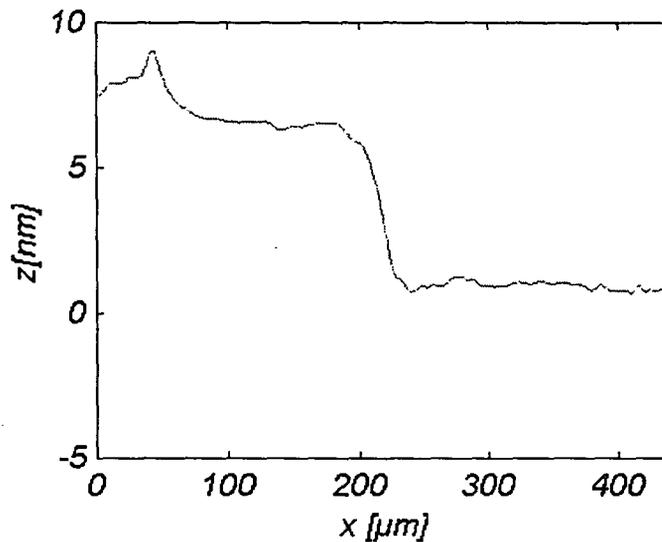


Fig. IV.30: Profil intégré et moyenné sur 30 pixels de l'épaississement tiré de l'image IV.29. Le moyennage a été fait dans la région où l'épaisseur apparente est constante. Celle-ci est ici de 6 nm. Le pic à gauche du profil n'est pas pertinent.

2. Discussion d'hypothèses

Examinons différentes hypothèses.

a. Ecoulement transitoire d'une goutte

La modification non seulement quantitative mais aussi qualitative (largeur du front plus grande $-50 \mu\text{m}$ contre $10 \mu\text{m}$ pour le film de pré-mouillage— et élargissement des bosses) de l'épaisseur apparente du film pourrait être liée au passage d'une goutte, qui en descendant, passe près du bord du film et impose son potentiel chimique. Toutefois, l'origine d'une telle goutte suppose une situation de fort non équilibre. De plus la durée du phénomène (plusieurs minutes) n'est pas un temps d'écoulement le long d'une paroi verticale.

b. Effet du chauffage par la lumière

Nous savons que lorsque la cellule est vide, la lumière du microscope élève légèrement la température du miroir. Cette variation de température nous a permis d'estimer à $P = 0.3 \mu\text{W}$ la puissance absorbée par le miroir. Par ailleurs, on peut estimer la puissance du rayonnement du corps noir atteignant le miroir dans la bande de longueur d'onde ($0.5\text{-}0.3 \mu\text{m}$) à moins du dixième de cette valeur. En présence du liquide, cette puissance va être évacuée, par conduction et convection entre le superfluide et la vapeur : évaporation au niveau de l'éclairage, recondensation de la vapeur sur la partie réfrigérée du film, et alimentation du liquide évaporé par le film superfluide. L'échauffement du film, qui dépend de la résistance thermique de ce cycle, abaisse le potentiel chimique à saturation du liquide constituant le film, ce qui doit être compensé par un épaissement du film.

Commençons par vérifier, comme nous le constatons expérimentalement, que les $0.3 \mu\text{W}$, n'amène pas le superfluide à sa vitesse critique. D'après la référence [78], le transport de matière d'un film superfluide saturé est indépendant de son épaisseur et est limité à $8 \cdot 10^{-5} \text{ cm}^3/\text{s}$ par centimètre de film à basse température. Il commence à décroître à partir de 1.8 K de manière à peu près linéaire avec la température, pour s'annuler à $T_\lambda = 2.17 \text{ K}$. A 2 K , il vaut $2 \cdot 10^{-5} \text{ cm}^3/\text{s}$. Si on admet une longueur de film égale au $1/2$ cercle de diamètre la diagonale du champ de la caméra ($\frac{\pi}{2}\sqrt{2} \times 0.045 \text{ cm}$), on obtient une puissance maximale transportable à 2 K de $6 \mu\text{W}$. Cette valeur est supérieure de plus d'un ordre de grandeur à la puissance absorbée par le miroir. Cela signifie que l'effet Fontaine est à même de l'évacuer.

La résistance thermique du cycle a été calculée dans la référence [20] pour un tube de diamètre $d = 0.1 \text{ mm}$ et de longueur $l = 10 \text{ mm}$ recouvert de film superfluide au-dessous du flux critique : $R_{th} = 10^{-3} \text{ mK}/\mu\text{W}$ à 2 K . On est ici dans une géométrie beaucoup plus ouverte que l'on peut assimiler grossièrement à un tube dont la longueur et le rayon sont égaux au rayon de la zone éclairée, soit 0.3 mm . La résistance thermique varie en l/d^4 . Nous calculerons donc R_{th} en multipliant la valeur précédente par $\frac{0.3^3}{0.1^3}$, soit :

$$R_{th} = 2 \cdot 10^{-7} \text{ mK}/\mu\text{W}$$

Pour une puissance de $0.3 \mu\text{W}$, la différence de température attendue est de l'ordre de 10^{-7} mK .

Evaluons maintenant la différence de température qui peut expliquer l'épaississement observé. En dessous du flux critique, le potentiel chimique du superfluide est constant. Si T_F est la température au niveau du film, tandis que T_L est celle du liquide, on a :

$$-\frac{\Delta C_3}{e^3} + mgH + \mu_{sat}(T_F) = \mu_{sat}(T_L)$$

La variation d'épaisseur de la valeur d'équilibre $e_0 = 18 \text{ nm}$, définie par $-\frac{\Delta C_3}{e_0^3} + mgH = 0$ pour $H = 2 \text{ cm}$, à la valeur $e = 230 \text{ nm}$ mesurée, suppose une différence de potentiel chimique

$$\mu_{sat}(T_F) - \mu_{sat}(T_L) = \frac{\Delta C_3}{e^3} - \frac{\Delta C_3}{e_0^3} \simeq -\frac{\Delta C_3}{e_0^3} \simeq 10^{-4} \text{ K}$$

Or d'après la référence [79], à 2 K , $\frac{d\mu_{sat}}{dT} = 0.4 \text{ K/K}$. Pour expliquer l'épaississement, il faudrait donc une différence de température $T_F - T_L \simeq 2 \cdot 10^{-4} \text{ K}$, supérieure de 6 ordres de grandeur à

la valeur calculée précédemment. Par ailleurs, si on supposait que le flux critique pour des films sur les métaux alcalins était beaucoup plus faible que les valeurs habituelles, alors le film devrait s'évaporer, ce qui n'est pas le cas. La conclusion est donc que la chaleur apportée par l'éclairage est largement emportée par la vapeur, qu'elle ne chauffe pas le film, et donc qu'elle ne peut pas expliquer l'épaississement observé.

Chapitre V

Conclusion

Dans cette thèse, nous avons cherché à imager par une méthode optique, les différentes étapes de l'invasion d'une surface de césium par un film d'hélium liquide au cours de la transition de prémouillage.

La partie optique a consisté à adapter aux basses températures une méthode de contraste interférentiel différentiel, qui donne accès selon une direction, au gradient de couverture locale d'hélium. L'intérêt de cette méthode est la sensibilité à de faibles épaisseurs optiques : des différences d'épaisseurs de film de l'ordre d'une dizaine de nm d'hélium liquide sont détectables. Par contre, sa résolution est limitée à celle d'un microscope optique, le temps d'acquisition est pour l'instant d'une dizaine de secondes, et la fiabilité de l'étalonnage des mesures d'épaisseur est limitée par l'incertitude sur les propriétés optiques de la couche de césium.

Les couches de césium ont été fabriquées par évaporation in situ à froid sur un miroir. En fonction du protocole de fabrication, nous avons obtenu diverses surfaces. Toutes montrent des angles de contact de l'hélium équivalents à ceux des autres groupes utilisant le même mode de fabrication de la couche, et leur température de mouillage, issue des angles supérieurs à 5° , se situe entre 1.83 et 1.85 K. Aucun angle de recul non nul n'a été observé au-dessus de 1.4 K.

Tirant partie de la métastabilité du film de prémouillage entre les températures de "mouillage" (ici entendu au sens d'invasion de la surface par le film) et de "démouillage" (assèchement de la surface), nous avons étudié l'épaisseur du film de prémouillage fonction de la désaturation. Les incertitudes expérimentales ne permettent qu'une mesure peu précise du coefficient de Van der Waals C_3 , néanmoins compatible avec les estimations théoriques. Des cas de films anormalement épais ont été observés et sont probablement à mettre sur le compte de résonances avec des plasmons de surface.

Les surfaces de césium peuvent être séparées en deux groupes pour chacun desquels le comportement du film durant la transition de prémouillage est radicalement différent. Sur le premier type de surface, l'envahissement de la surface par le film s'effectue en passant par un état intermédiaire qui apparaît comme un mélange de surfaces sèche et mouillée, à une échelle inférieure à la résolution optique. L'existence de tels états de couverture n'était pas soupçonnée jusqu'ici. La fraction de surface sèche diminue à partir de la température de mouillage tirée des angles de

contact et tend vers zéro. Nous avons montré que cela avait comme conséquence une extension de la courbe des angles de contact vers les hautes températures. L'évolution de la portion sèche avec la température peut s'interpréter dans le cadre du modèle RFIM sans nucléation avec un paramètre de désordre $\varepsilon \simeq 6$. Sur le deuxième type de surface, nous avons observé une transition de prémouillage par avancée du bord du film épais. Les longueurs de corrélation, bien plus importantes que sur le premier type de surface, sont de l'ordre de la dizaine de μm . La morphologie de la zone envahie correspond qualitativement à celle du modèle RFIM pour des valeurs de ε inférieures à 1. Pour cette surface, un début de démouillage a été observé à 1.22 K. Cette surface s'est donc avérée moins désordonnée que la première. Nous avons mesuré la vitesse d'avancée moyenne du front en fonction de la température et montré que l'avancée est un processus activé thermiquement.

L'obtention de surfaces faiblement désordonnées ne se fait pas encore de manière parfaitement reproductible. Il est clair que pour aller plus loin dans le sujet, il est nécessaire de produire des surfaces de césium aux caractéristiques plus contrôlées. Cela ne se fera pas sans une meilleure compréhension du processus de croissance d'une couche macroscopique de césium, dans les mêmes conditions de fabrication que les expériences de mouillage. Pour l'instant le caractère réactif du césium a freiné de telles études par microscopie électronique ou à force atomique. On peut espérer que des progrès seront faits dans cette direction.

Annexe I

Acquisition : appareillage et signal

A. Expression du signal

Rappelons l'intensité reçue par un pixel à un instant t :

$$I(t) = I_0 + \frac{(I_1 - I_0)}{2} [1 - \cos(\delta\varphi + \varphi_M(t) + \varphi_W)]$$

où $\delta\varphi$, $\varphi_M(t)$ et φ_W sont respectivement la phase introduite au niveau du miroir, la phase introduite par le modulateur, la phase introduite par le Wollaston.

On a :

$$\varphi_M(t) = \phi_M \cdot \sin \omega t$$

Les intensités des deux phases d'acquisition s'écrivent :

$$I_{\oplus} = I_0 + \frac{(I_1 - I_0)}{2} \int_{\theta_i}^{\theta_i + \pi} \frac{d\theta}{\pi} [1 - \cos(\delta\varphi + \phi_M \sin \theta + \varphi_W)] \quad (\text{I.1})$$

$$I_{\ominus} = I_0 + \frac{(I_1 - I_0)}{2} \int_{\theta_i + \pi}^{\theta_i + 2\pi} \frac{d\theta}{\pi} [1 - \cos(\delta\varphi + \phi_M \sin \theta + \varphi_W)] \quad (\text{I.2})$$

où θ_i représente le déphasage entre la LED et le modulateur, son origine étant prise quand φ_M s'annule et la LED s'allume.

On a :

$$\begin{aligned} I_{\oplus} &= I_0 + \frac{(I_1 - I_0)}{2} \int_{\theta_i}^{\theta_i + \pi} \frac{d\theta}{\pi} [1 - \cos(\phi_M \sin \theta) \cos \delta\varphi + \sin(\phi_M \sin \theta) \sin \delta\varphi] \\ &= I_0 + \frac{(I_1 - I_0)}{2} \int_{\theta_i}^{\theta_i + \pi} \frac{d\theta}{\pi} \left[1 - J_0(\phi_M) \cos \delta\varphi - 2 \cos \delta\varphi \sum_{k=1}^{\infty} J_{2k}(\phi_M) \cos(2k\theta) \right. \\ &\quad \left. + 2 \sin \delta\varphi \sum_{k=1}^{\infty} J_{2k+1}(\phi_M) \sin((2k+1)\theta) \right] \\ &= I_0 + \frac{(I_1 - I_0)}{2} \left[1 - J_0(\phi_M) \cos(\delta\varphi) - \frac{4 \sin(\delta\varphi) \cos((2k+1)\theta_i)}{\pi} \sum_{k=0}^{\infty} \frac{J_{2k+1}(\phi_M)}{2k+1} \right] \end{aligned}$$

Calculé de la même manière, I_{\ominus} donne :

$$I_{\ominus} = I_0 + \frac{(I_1 - I_0)}{2} \left[1 - J_0(\phi_M) \cos(\delta\varphi) + \frac{4 \sin(\delta\varphi) \cos((2k+1)\theta_i)}{\pi} \sum_{k=0}^{\infty} \frac{J_{2k+1}(\phi_M)}{2k+1} \right]$$

Ainsi,

$$I_{\oplus} + I_{\ominus} = 2I_0 + (I_1 - I_0) [1 - J_0(\phi_M) \cos(\delta\varphi)]$$

et

$$I_{\oplus} - I_{\ominus} = -(I_1 - I_0) \frac{8 \sin(\delta\varphi) \cos((2k+1)\theta_i)}{\pi} \sum_{k=0}^{\infty} \frac{J_{2k+1}(\phi_M)}{2k+1}$$

Alors,

$$S \equiv \frac{I_{\oplus} - I_{\ominus}}{I_{\oplus} + I_{\ominus}} = \frac{-(I_1 - I_0) \frac{8 \sin(\delta\varphi) \cos((2k+1)\theta_i)}{\pi} \sum_{k=0}^{\infty} \frac{J_{2k+1}(\phi_M)}{2k+1}}{2I_0 + (I_1 - I_0) [1 - J_0(\phi_M) \cos(\delta\varphi)]}$$

- Dans le cas $\theta_i = 0$ (cas de l'acquisition des images), S peut s'écrire :

$$S = S_{\max} \frac{\sin a_0 \sin(\delta\varphi + \varphi_W)}{1 - \cos a_0 \cos(\delta\varphi + \varphi_W)}$$

S_{\max} est la valeur maximale de S , atteinte pour $\delta\varphi + \varphi_W = a_0$. Les paramètres s'expriment en fonction de l'amplitude de modulation ϕ_M et du contraste c :

$$\begin{aligned} c &= \frac{I_0}{I_1} \\ \cos a_0 &= J_0(\phi_M) \cdot \frac{1-c}{1+c} \\ S_{\max} &= \frac{4}{\pi} \left(\frac{1-c}{1+c} \right) \frac{1}{\sin a_0} \sum_{k=0}^{\infty} \frac{J_{2k+1}(\phi_M)}{2k+1} \end{aligned}$$

La figure I.1 montre le contraste c fonction de S_{\max} pour $\phi_M = 1.97$. Cette courbe a servi à déterminer le contraste d'images prises lors des premières expériences, durant lesquelles on ne mesurait pas encore celui-ci directement.

- Dans le cas $\theta_i = \frac{\pi}{2}$, $S = 0$

B. Réglage du déphasage θ_i entre la LED et le modulateur

C'est via l'interface d'utilisation que l'on modifie θ_i . L'origine de la valeur affichée étant arbitraire, il faut procéder au réglage en passant par les intensités lumineuses. La figure I.2 montre l'intensité I en fonction de la phase entre les deux polarisations, pour différentes valeurs de θ_i par lesquelles nous allons passer, pour amener θ_i à 0. Les flèches y représentent les phases durant lesquelles il faut intégrer I pour trouver I_{\oplus} et I_{\ominus} .

Pour régler $\theta_i = 0$, procédons ainsi : Tout d'abord, réglons la phase du Wollaston (en le déplaçant latéralement) à une valeur à peu près nulle mais pas strictement, en se plaçant sans

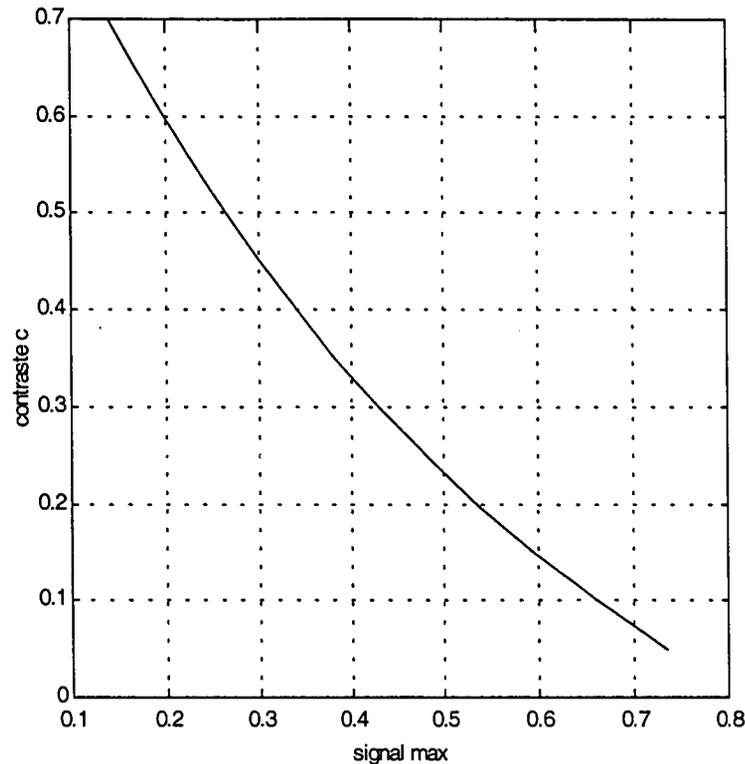


Fig. I.1: Expression du contraste en fonction du signal maximum.

modulation près de l'intensité minimale. En rajoutant la modulation, puisque θ_i est quelconque, I_{\oplus} et I_{\ominus} seront eux aussi quelconques mais différentes l'une de l'autre (figure I.2). La suite du réglage se fait à la manière d'une détection synchrone : On cherche le déphasage qui égalise I_{\oplus} et I_{\ominus} . Nous sommes alors dans le cas de la quadrature de phase $\theta_i = \frac{\pi}{2}$ établi au paragraphe précédent (figure I.3). L'ajout de $\frac{\pi}{2}$ à θ_i nous amène alors à la configuration désirée, $\theta_i = 0$ (figure I.4).

C. Relation entre la réflectivité et les signaux

La réflectivité peut être évaluée à partir des signaux I_{\oplus} et I_{\ominus} . La relation indique que pour $\delta\varphi \ll 1$, l'intensité moyenne recueillie est :

$$I_{\oplus} + I_{\ominus} = 2I_0 + (I_1 - I_0) [1 - J_0(\phi_M)]$$

Toutefois, à cause du courant d'obscurité, la variation relative de cette quantité ne donne pas directement le coefficient de réflexion R . Faisons apparaître dans I_1 et I_0 l'intensité dépendant de la réflectivité. Si I_{ob} est le bruit d'obscurité de la caméra, I_{np} la partie non polarisée de la lumière et I_p la partie polarisée, alors $I_1 = I_{ob} + I_{np} + I_p$, $I_0 = I_{ob} + I_{np}$ et

$$I_{\oplus} + I_{\ominus} = 2I_{ob} + 2I_{np} + I_p [1 - J_0(\phi_M)]$$

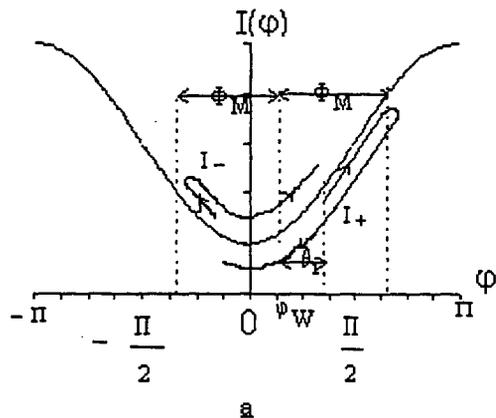


Fig. I.2: Réglage du déphasage entre le modulateur et la LED. Les flèches indiquent le sens de parcours de la phase du modulateur lors de l'acquisition de chacune des deux sous-images I_{\oplus} et I_{\ominus} . Voir le texte pour le reste du commentaire.

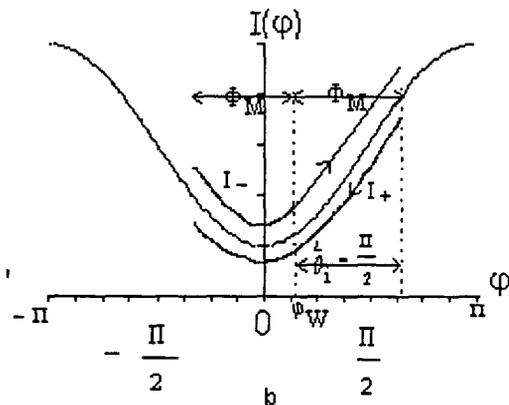


Fig. I.3:

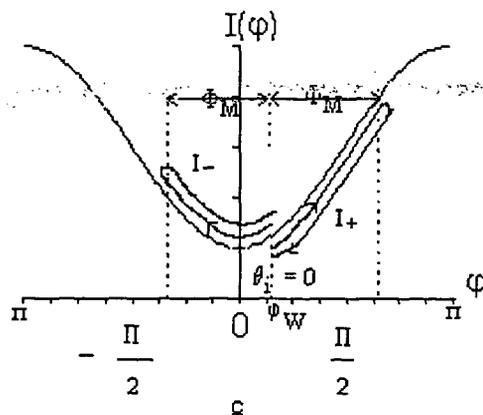


Fig. I.4:

Si la réflectivité est R , $I_{\oplus} + I_{\ominus}$ devient :

$$(I_{\oplus} + I_{\ominus})' = 2I_{ob} + 2RI_{np} + RI_p [1 - J_0(\phi_M)]$$

ou encore :

$$(I_{\oplus} + I_{\ominus})' = R(I_{\oplus} + I_{\ominus}) + (1 - R)2I_{ob}$$

D'où en posant

$$a = \frac{2I_{ob}}{I_{\oplus} + I_{\ominus}}$$

$$R = \frac{\frac{(I_{\oplus} + I_{\ominus})'}{(I_{\oplus} + I_{\ominus})} - a}{1 - a} \simeq \frac{(I_{\oplus} + I_{\ominus})'}{(I_{\oplus} + I_{\ominus})} (1 + a) - a \quad (I.3)$$

De la mesure expérimentale $\frac{(I_{\oplus} + I_{\ominus})'}{(I_{\oplus} + I_{\ominus})}$, la formule I.3 permet de calculer R .

Annexe II

Expression de la différence de marche due aux Wollastons

Pour calculer la différence de marche Δ entre les deux polarisations, introduite par les Wollastons, faisons le raisonnement suivant : Puisque les dioptres sont plans, on a $\varphi_{OE} = \varphi_{GH}$ (II.1) pour les deux polarisations, φ_{XY} étant la différence de chemin optique entre les points X et Y . D'autre part, tous les plans d'onde, quelque soit leur incidence, acquièrent la même phase entre le moment, où ils passent par F à l'aller du trajet à travers la lentille, et celui où ils y repassent au retour. On en déduit que

$$\Delta \equiv (\varphi_{OH})_{\parallel} - (\varphi_{OH})_{\perp} \equiv (\varphi_{OH})_{\parallel-\perp} = (\varphi_{OE} + \varphi_{GH})_{\parallel-\perp}$$

Donc, d'après ce qui a été dit plus haut :

$$\Delta \equiv 2(\varphi_{OE})_{\parallel-\perp} = 2(\varphi_{AE})_{\parallel-\perp}$$

Nous allons faire un développement de Δ au 2^{ème} ordre en l'angle d'incidence, en i_0 , et en $\alpha = (n_o - n_e)\theta$.

A. Dépendance de l'indice extraordinaire en l'angle

La surface de l'indice extraordinaire d'un milieu biréfringent est définie par :

$$\frac{1}{n^2} = \frac{\cos^2 r}{n_e^2} + \frac{\sin^2 r}{n_o^2}$$

avec n_o et n_e , indices ordinaires et extraordinaires, et r l'angle du vecteur d'onde extraordinaire avec l'axe optique.

Pour r petit :

$$\frac{1}{n^2} \simeq \frac{1 - r^2}{n_e^2} + \frac{r^2}{n_o^2} \simeq \frac{1}{n^2} = \frac{1}{n_e^2} + \frac{(n_e^2 - n_o^2)r^2}{n_o^2 n_e^2}$$

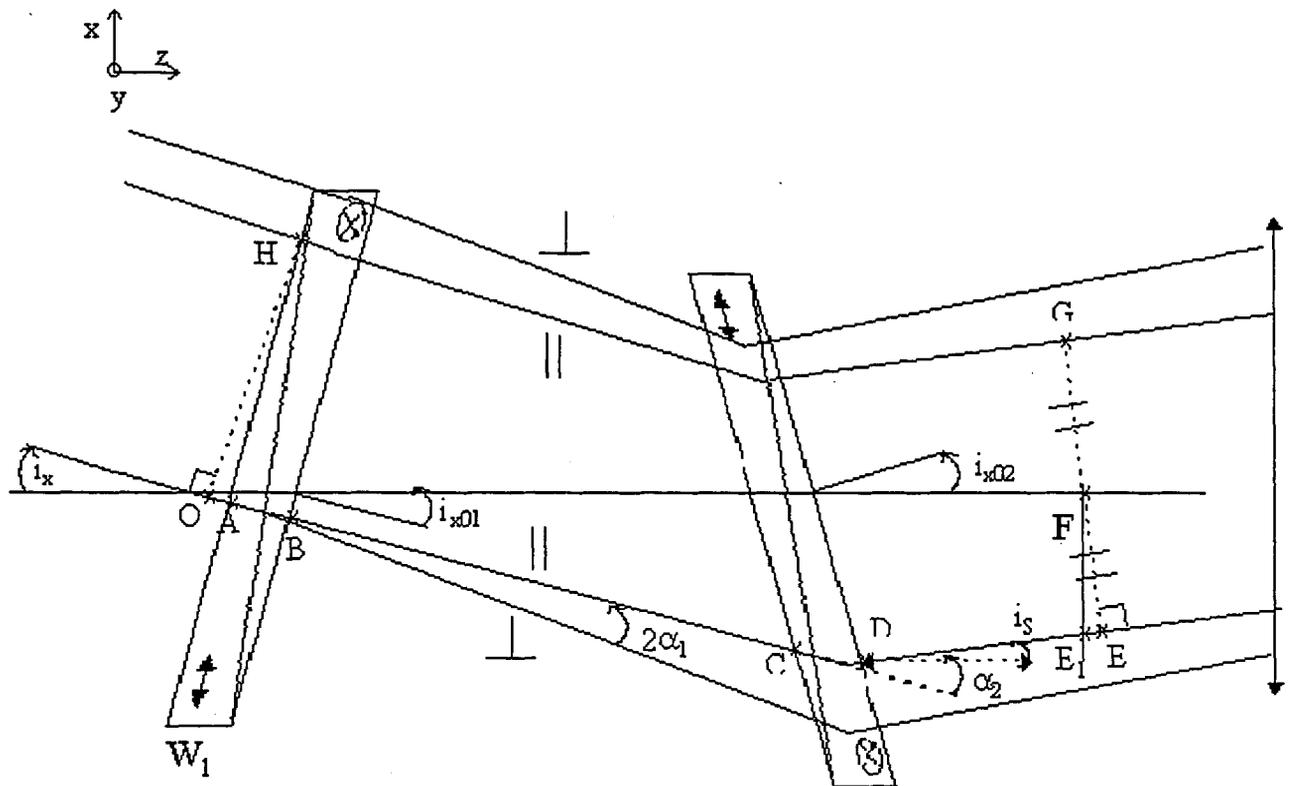


Fig. II.1: Trajet des polarisations à travers les deux prismes de Wollaston, projeté dans le plan (\bar{x}, \bar{z}) . Les paramètres α et θ sont ceux annulant certains termes de Δ . Le calcul traite le cas général et ne leur attribue pas de signe a priori.

$$n \simeq n_e \left[1 - \frac{1}{2} \frac{(n_e^2 - n_o^2) r^2}{n_o^2} \right]$$

$$n \simeq n_e - n_e'' r^2$$

avec

$$n_e'' = \frac{1}{2} \frac{n_e (n_e^2 - n_o^2)}{n_o^2}$$

B. Déphasage introduit par les Wollastons

x_i est l'abscisse d'entrée du faisceau dans le prisme. Les notations des divers paramètres sont celles de la II.1. les angles $i_{y...}$ sont les équivalents des angles $i_{x...}$ dans le plan (\bar{y}, \bar{z})

1. W_1

a. Polarisation \perp au plan (axe d'incidence, axe optique)

La séparation angulaire voulue étant faible, les indices ordinaires et extraordinaires seront proches. On va donc considérer que les angles pris par les polarisations dans le prisme sont égaux et valent r , définit par :

$$\sin(i - i_0) = \left(\frac{n_o + n_e}{2} \right) \sin r \Rightarrow r \simeq \frac{2}{n_o + n_e} (i - i_0)$$

Le wollaston apparaît alors comme une double lame d'épaisseurs $[\frac{e_1}{2} + \theta_1(x_1 - x_{01})]$ et $[\frac{e_1}{2} - \theta_1(x_1 - x_{01})]$, et d'indices respectifs n_{o1} et $n_{e1} - n''_{e1}r_x^2$. On a donc :

$$\begin{aligned} (\varphi_{AB})_{\perp} &= \left\{ n_{o1} \left[\frac{e_1}{2} + \theta_1(x_1 - x_{01}) \right] + (n_{e1} - n''_{e1}r_x^2) \left[\frac{e}{2} - \theta_1(x_1 - x_{01}) \right] \right\} \frac{1}{\cos r} = \{ \dots \} \left(1 + \frac{r^2}{2} \right) \\ &= \left[\frac{e(n_{o1} + n_{e1})}{2} + \alpha_1(x_1 - x_{01}) \right] \left[1 + \frac{2}{(n_{o1} + n_{e1})^2} \left(\frac{(i_x - i_{x01})^2}{2} + \frac{(i_y - i_{y01})^2}{2} \right) \right] \\ &\quad - n''_{e1} \left(\frac{2}{n_{o1} + n_{e1}} \right)^2 (i_x - i_{x01})^2 \left[\frac{e}{2} - \theta_1(x - x_{01}) \right] \end{aligned}$$

avec α_1 , séparation du prisme :

$$\alpha_1 = (n_{o1} - n_{e1})\theta_1$$

b. Polarisation \parallel au plan (axe d'incidence, axe optique)

$(\varphi_{AB})_{\parallel}$ est égal à $(\varphi_{AB})_{\perp}$ en y échangeant n_{o1} et n_{e1} ; et la dépendance de n_{e1} est vis à vis de r_y au lieu de r_x .

$$\begin{aligned} (\varphi_{AB})_{\parallel} &= \left\{ (n_e - n''_e r_y^2) \left[\frac{e}{2} + \theta(x - x_0) \right] + n_o \left[\frac{e}{2} - \theta(x - x_0) \right] \right\} \frac{1}{\cos r} = \{ \dots \} \left(1 + \frac{r^2}{2} \right) \\ &= \left[\frac{e_1(n_{o1} + n_{e1})}{2} - \alpha_1(x_1 - x_{01}) \right] \left[1 + \frac{2}{(n_{o1} + n_{e1})^2} \left(\frac{(i_x - i_{x01})^2}{2} + \frac{(i_y - i_{y01})^2}{2} \right) \right] + \\ &\quad - n''_{e1} \left(\frac{2}{n_{o1} + n_{e1}} \right)^2 (i_{y1} - i_{y01})^2 \left[\frac{e_1}{2} + \theta_1(x - x_{01}) \right] \end{aligned}$$

c. Différence $\perp - \parallel$

$$\begin{aligned} (\varphi_{AB})_{\perp - \parallel} &= 2\alpha_1(x - x_{01}) \left[1 + \frac{2}{(n_{o1} + n_{e1})^2} \left(\frac{(i_x - i_{x01})^2}{2} + \frac{(i_y - i_{y01})^2}{2} \right) \right] + \\ &\quad - n''_{e1} \left(\frac{2}{n_{o1} + n_{e1}} \right)^2 \left\{ (i_x - i_{x01})^2 \left[\frac{e_1}{2} - \theta_1(x_1 - x_{01}) \right] + (i_y - i_{y01})^2 \left[\frac{e_1}{2} + \theta_1(x - x_{01}) \right] \right\} \end{aligned}$$

2. W_2

$$\begin{aligned} (\varphi_{CD})_{\perp} &= \left[\frac{e(n_{o2} + n_{e2})}{2} + \alpha_2(x_{2\perp} - x_{02}) \right] \left[1 + \frac{2}{(n_{o2} + n_{e2})^2} \left(\frac{(i_x + \alpha_1 - i_{x02})^2}{2} + \frac{(i_y - i_{y02})^2}{2} \right) \right] + \\ &\quad - n''_{e2} \left(\frac{2}{n_{o2} + n_{e2}} \right)^2 (i_x + \alpha_2 - i_{x02})^2 \left[\frac{e}{2} - \theta_2(x_{2\perp} - x_{02}) \right] \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} (\varphi_{CD})_{\parallel} &= \left[\frac{e(n_{o2} + n_{e2})}{2} - \alpha_2(x_{2\parallel} - x_{02}) \right] \left[1 + \frac{2}{(n_{o2} + n_{e2})^2} \left(\frac{(i_x + \alpha_1 - i_{x02})^2}{2} + \frac{(i_y - i_{y02})^2}{2} \right) \right] \\ &\quad - n''_{e2} \left(\frac{2}{n_{o2} + n_{e2}} \right)^2 (i_y - i_{y0})^2 \left[\frac{e}{2} + \theta_2(x_{2\parallel} - x_{02}) \right] \end{aligned}$$

a. Différence $\perp\text{-}\parallel$

$$(\varphi_{CD})_{\perp\text{-}\parallel} = [\alpha_2(x_{2\perp} - x_{02}) + \alpha_2(x_{2\parallel} - x_{02})] \left[1 + \frac{2}{(n_o + n_e)^2} \left(\frac{(i_x - i_{x0})^2}{2} + \frac{(i_y - i_{y0})^2}{2} \right) \right] +$$

$$- n''_{e2} \left(\frac{2}{n_o + n_e} \right)^2 \left\{ (i_x + \alpha_1 - i_{x02})^2 \left[\frac{e}{2} - \theta_2(x_{2\perp} - x_{02}) \right] + (i_y - i_{y02})^2 \left[\frac{e}{2} + \theta_2(x_{2\parallel} - x_{02}) \right] \right\}$$

Comme $x_{2\perp} = x + (i_x + \alpha_1)W_1W_2$ et $x_{2\parallel} = x + (i_x - \alpha_1)W_1W_2$,

$$(\varphi_{CD})_{\perp\text{-}\parallel} = [-2\alpha_2x_{02} + 2\alpha_2x + 2\alpha_2i_xW_1W_2] \left[1 + \frac{2}{(n_o + n_e)^2} \left(\frac{(i_x - i_{x0})^2}{2} + \frac{(i_y - i_{y0})^2}{2} \right) \right] +$$

$$- n''_{e2} \left(\frac{2}{n_o + n_e} \right)^2 \left\{ (i_x + \alpha_1 - i_{x02})^2 \left[\frac{e}{2} - \theta_2(x_{2\perp} - x_{02}) \right] + (i_y - i_{y02})^2 \left[\frac{e}{2} + \theta_2(x_{2\parallel} - x_{02}) \right] \right\}$$

C. Déphasage entre les deux prismes

On a :

$$(\varphi_{BC})_{\perp} = W_1W_2 \left[1 + \frac{(i_x + \alpha_1)^2}{2} + \frac{i_y^2}{2} \right] = W_1W_2 \left[1 + \frac{\alpha_1^2}{2} + i_x\alpha_1 + \frac{i_x^2}{2} + \frac{i_y^2}{2} \right]$$

$$(\varphi_{BC})_{\parallel} = W_1W_2 \left[1 + \frac{(i_x - \alpha_1)^2}{2} + \frac{i_y^2}{2} \right] = W_1W_2 \left[1 + \frac{\alpha_1^2}{2} - i_x\alpha_1 + \frac{i_x^2}{2} + \frac{i_y^2}{2} \right]$$

$$\Rightarrow (\varphi_{BC})_{\perp\text{-}\parallel} = 2i_x\alpha_1W_1W_2$$

D. Déphasage entre W_2 et la lentille

Comme $DE_1 = W_2F(1 + \frac{i_x^2}{2})$, $E_1E = -i_s \cdot x_E$ et $x_E = x_2 + W_2F \cdot i_s$, on a $DE_1 = W_2F - i_s \cdot x_2 - W_2F \frac{i_x^2}{2}$ et donc :

$$(\varphi_{DE})_{\perp\text{-}\parallel} = -(i_x + \alpha_1 + \alpha_2) \cdot x_{2\perp} - W_2F \frac{(i_x + \alpha_1 + \alpha_2)^2}{2} + (i_x - \alpha_1 - \alpha_2) \cdot x_{2\parallel} + W_2F \frac{(i_x - \alpha_1 - \alpha_2)^2}{2}$$

$$= -(i_x + \alpha_1 + \alpha_2) \cdot x_{2\perp} + (i_x - \alpha_1 - \alpha_2) \cdot x_{2\parallel} - 2W_2F \cdot i_x(\alpha_1 + \alpha_2)$$

$$= -(i_x + \alpha_1 + \alpha_2) \cdot [x + (i_x + \alpha_1)W_1W_2] + (i_x - \alpha_1 - \alpha_2) \cdot [x + (i_x - \alpha_1)W_1W_2]$$

$$- 2W_2F \cdot i_x(\alpha_1 + \alpha_2)$$

$$= -2x(\alpha_1 + \alpha_2) - 4i_x\alpha_1W_1W_2 - 2i_x\alpha_2W_1W_2 - 2W_2F \cdot i_x(\alpha_1 + \alpha_2)$$

E. Déphasage total

Comme le centre des Wollastons s'éloigne peu de l'axe optique, $\theta(x_i - x_{0i})$ est du premier ordre par rapport à $\frac{\epsilon}{2}$. Alors,

$$\begin{aligned}
 \Delta &= (\varphi_{AB})_{\perp-\parallel} + (\varphi_{BC})_{\perp-\parallel} + (\varphi_{CD})_{\perp-\parallel} + (\varphi_{DE})_{\perp-\parallel} & (II.1) \\
 &= -2\alpha_1 x_{01} - 2\alpha_2 x_{02} \\
 &\quad + i_x [-2\alpha_1 W_1 W_2 - 2(\alpha_1 + \alpha_2) W_2 F] \\
 &\quad + e_1 n''_{e1} (i_{y01}^2 - i_{x01}^2) + e_2 n''_{e2} (i_{y02}^2 - i_{x02}^2) \\
 &\quad + 2i_x [n''_{e1} e_1 i_{x01} + n''_{e2} e_2 (i_{x02} - \alpha_1)] - 2i_y (n''_{e1} e_1 i_{y01} + n''_{e2} e_2 i_{y02}) \\
 &\quad + (n''_{e1} e_1 + n''_{e2} e_2) (i_y^2 - i_x^2)
 \end{aligned}$$

avec

$$\begin{aligned}
 e_1 &= \frac{e(n_{o1} + n_{e1})}{2} \\
 e_2 &= \frac{e(n_{o2} + n_{e2})}{2}
 \end{aligned}$$

La deuxième ligne de II.1 permet, en translatant W_1 ou W_2 , de décaler Δ d'une constante. La deuxième ligne donne un terme linéaire en i_x qui peut être annulé en prenant des prismes de déviations de signes opposés et en réglant la position de W_2 pour focaliser sur F . Le terme en i_y^2 de la quatrième ligne peut être annulé en réglant les incidences des Wollastons opposées si les anisotropies n''_e sont de même signe, ou bien égales dans le cas contraire. Pour le terme en i_x c'est la même chose, à ceci près que la différence des angles d'incidence en valeur absolue n'est pas nulle mais vaut α_1 . Comme on ne règle pas l'angle des Wollastons à cette précision, ce terme sera annulé par un petit décalage de la focalisation par rapport à F . La dernière ligne s'annule si on a choisit les prismes tel que $n''_{e1} e_1 + n''_{e2} e_2$; ceci est possible si les prismes ont des anisotropies de signes opposées en ajustant leurs épaisseurs relatives.

Pour les caractéristiques des primes choisis, voir chapitre 1.

Bibliographie

- [1] E. Cheng, M. W. Cole, W. F. Saam, and J. Treiner, "Helium prewetting and Nonwetting on weak-binding Substrates", *Phys.Rev.Lett* **67**, 1007 (1991)
- [2] J. W. Cahn, "Critical point Wetting", *J. Chem. Phys.* **66**, 3667 (1977)
- [3] C. Ebner and W. Saam, "New Phase-Transition in Thin Argon Films", *Phys.Rev.Lett* **38**, 1486 (1977)
- [4] R. Bausch, R. Blossey, "Life time of undercooled wetting layers", *Phys.Rev. E* **94**, 1759 (1996)
- [5] R. Blossey, "Nucleation at first-order wetting transitions", *Int. J. of Mod. Phys. B* **9**, 3489 (1995)
- [6] M. Schick, dans "Liquids at interfaces", Les Houches 1988, J. F. Joanny, J. Chavolin, Editeurs (Elsevier 1990)
- [7] K. Ragil, J. Meunier, D. Broseta, J. O. Indekeu, D. Bonn, "Experimental Observation of Critical Wetting", *Phys.Rev.Lett* **77**, 1532 (1996)
- [8] J. R. Eckardt, D. O. Edwards, S. Y. Shen, and F. M. Gasparini, "Surface tension and surface entropy of Superfluid ^4He ", *Phys.Rev.B* **16**, 1944 (1977)
- [9] G. Vidali, G. Ihm, H. Kim, M. W. Cole, "Potentials of physical adsorption", *Surf. Sci. Rep.* **12**, 133 (1991)
- [10] D. O. Edwards and P. P. Fatouros, "Theory of atomic scattering at the free surface of Liquid ^4He ", *Phys.Rev. B* **17**, 2147 (1978)
- [11] W. F. Saam, and J. Treiner, E. Cheng, M. W. Cole, "Helium wetting and prewetting phenomena at finite temperatures", *J. Low Temp. Phys.* **89**, 637 (1992)
- [12] H. Kellay, D. Bonn, and J. Meunier, "Prewetting in a Binary Liquid Mixture", *Phys.Rev.Lett* **71**, 2607 (1993)
- [13] D. Bonn, H. Kellay, G. H. Wegdam, "Experimental Observation of Hysteresis in a Wetting Transition", *Phys.Rev.Lett* **69**, 1975 (1992)
- [14] D. Ross, P. Taborek, and J. E. Rutledge, "Wetting behavior of H_2 on cesium", *Phys.Rev B* **58**, 4274 (1998)
- [15] J. A. Phillips, P. Taborek and J. E. Rutledge, "Experimental Survey of Wetting and Superfluid Onset of ^4He on Alkali Metal Surfaces", *J. Low Temp. Phys.* **113**, 829 (1998)

- [16] G. B. Hess, M. J. Sabatini, and M. H. W. Chan, "Nonwetting of Cesium by Neon near Its Critical Point", *Phys.Rev.Lett* **78**, 1739 (1997)
- [17] M. Yao, F. Hensel, "Wetting of mercury on sapphire", *J. Phys. Condens. Matter* **8**, 9547 (1996)
- [18] V. F. Kozhevnikov, D. I. Arnold, S. P. Naurzakov and M. E. Fischer, "Prewetting Transition in a near-Critical Metallic Vapor", *Phys.Rev.Lett* **78**, 1735 (1997)
- [19] R. Lucht, Ch. Bahr "Wetting Phenomena at the free surface of the Isotropic Phase of a Smectic Liquid Crystal", *Phys.Rev.Lett* **78**, 3487 (1997)
- [20] B. Demolder "Etude des propriétés de mouillage de l'hélium sur des métaux alcalins", *thèse de doctorat de l'université Paris XI*, 1996
- [21] B. Demolder, J. Dupont-Roc, "Experimental investigation of wetting properties of alkali metal surfaces by liquid ^4He ", *Physica B*, **194-196**, 975 (1994)
- [22] B. Demolder, N. Bigelow, P.J. Nacher, and J. Dupont-Roc, "Wetting Properties of Liquid Helium on Rubidium Metal", *J. Low Temp Phys.* **98**, 91 (1995)
- [23] K. S. Ketola, S. Wang, and R. B. Hallock "Anomalous Wetting of Helium on Cesium", *Phys.Rev.Lett* **68**, 201 (1992)
- [24] J. E. Rutledge and P. Taborek, "Prewetting Phase Diagram of ^4He on Cesium", *Phys.Rev.Lett* **69**, 937 (1992)
- [25] C.W. Everett, K.R. Atkins, A.Demenstein, "Third Sound in Liquid Helium Films", *Phys.Rev.* **136**, A1494 (1964)
- [26] J. E. Rutledge and P. Taborek, "Novel Wetting Behavior of ^4He on Cesium", *Phys.Rev.Lett* **68**, 2184 (1992)
- [27] J. A. Phillips, D. Ross, P. Taborek, and J. E. Rutledge, "Superfluid onset and prewetting of ^4He on rubidium", *Phys.Rev.B*, **58**, 3361 (1998)
- [28] D. Reinelt, I. Gau, S. Herminghaus and P. Leiderer, "Wetting Behavior of Superfluid ^4He Droplets on Cs", *Czech. J. Phys.* **46**, 432 (1996)
- [29] S. Herminghaus, J. Vorberg, H. Gau, R. Conradt, D. Reinelt, H. Ulmer, P. Leiderer, and M. Przyrembel, "Hydrogen and helium films as model systems of wetting", *Ann. Physik* **6**, 425 (1997)
- [30] E. Rolley, C. Guthmann, "Optical measurement of contact angle of Liquid helium on cesium", *J. Low Temp. Phys.* **108**, 1 (1997)
- [31] D. Ross, J.E. Rutledge, P. taborek, "Superfluid droplets on a solid surface", *Science* **278**, 664 (24 oct.1997)
- [32] J. E. Rutledge, D. Ross, and P. Taborek, "Direct Optical Imaging of Superfluid ^4He Droplets on a Cesium Surface", *J. Low Temp. Phys.* **113**, 811 (1998)
- [33] A. W. Adamson, "Physical Chemistry of Surfaces", fifth edition, Wiley-Interscience publication (1990)

- [34] J. F. Joanny, thèse de doctorat d'état de l'université de Paris VI (1985), "Le mouillage, quelques problèmes statiques et dynamiques"
- [35] E. Cheng, G. Mistura, H. C. Lee, M. H. W. Chan, M. W. Cole, C. Carraro, W. Saam, F. Toigo, "Wetting transition of Liquid Hydrogen Films", *Phys.Rev.Lett* **70**, 1854 (1993)
- [36] G. Forgacs, R. Lipowoski, T. M. Nieuwenhuizen, "Phase Transitions and Critical Phenomena" **14**, 136 (1991)
- [37] Y. Imry, S.-K. Ma, "Random-Field Instability of the ordered State of Continuous Symmetry", *Phys.Rev.Lett* **35**,1399 (1975)
- [38] N. Martis, Marek Cieplak, and M. O. Robbins, "Critical Phenomena in Fluid Invasion of Porous Media", *Phys.Rev.Lett* **66**, 1058 (1991)
- [39] C. S. Nolle, B. Koiller, N. Martys, and M. O. Robbins, "Effect of quenched disorder on moving interfaces in two dimensions", *Physica A* **205** 342 (1994)
- [40] C. S. Nolle, B. Koiller, N. Martys, and M. O. Robbins, "Morphology and Dynamics of Interfaces in Random Two-Dimensional Media", *Phys.Rev.Lett* **13**, 2074 (1993)
- [41] R. Blossey, T. Kinoshita, J. Dupont-Roc, "Random-field Ising model for the hysteresis of the prewetting transition on a disordered substrate", *Physica A* **248**, 247 (1998)
- [42] Philippe Gleyzes, "Contribution à l'amélioration de la résolution en microscopie optique : profilométrie différentielle picométrique et imagerie en champ proche", thèse de l'Université Paris XI, 93.
- [43] Martial Lebec, "Conception et réalisation d'un séquenceur pour détection synchrone multiplexée", rapport de stage, 95-96 Université Paris Sud
- [44] P. Gleyzes, A. C. Boccara, *Journal of Optics*, "Profilométrie picométrique. II. L'approche multi-détecteur et la détection synchrone multiplexée", **26**, 251 (1995)
- [45] P. Gleyzes, A. C. Boccara, H. Saint-Jalmes, "Multichannel Nomarski microscope with polarization modulation : performance and applications", *Optics Letters* **22** 1529 (1997)
- [46] D. Douillet, E. Roley, C. Gutmann, A. Prévost, *Compte rendus de LT 22, Physica B*, (2000), à paraître.
- [47] A.J Manninen, J.P Pekola, G.M Kira, J.P Ruutu, A.V. Babkin, H. Alkes, and O.V. Lounasmaa, *Phys.Rev.Lett.* **69**, 2392 (1992)
- [48] M. G. Nomarski, "Microinterféromètre différentiel à ondes polarisées", *J. de Phys. et Radium* **16**, 9S (1955)
- [49] C. Guthmann, S. Balibar, E. Chavalier, E. Rolley, and J.C. Sutra-Fourcade, "Accurate rotation and displacement in the millikelvin range : A new positioner design", *Rev. Sci. Instrum.* **65**, 273, (1994)
- [50] N. V. Smith, "Optical Constants of Rubidium and Cesium from 0.5 to 4.0 eV", *Phys.Rev. B* **2**, 2840 (1970)
- [51] American Institute of Physics Handbook, Mc Graw-Hill book company (1957)

- [52] L. Ward, "The optical constants of bulk materials and films", Optics & Optoelectronics Series, Institute of Physics Publishing (1994).
- [53] R. Chiarello, V. Panella, J. Krim, and C. Thomson, "X-Ray Reflectivity and Adsorption Isotherm Study of Fractal Scaling in Vapor-Deposited Films", *Phys.Rev.Lett* **67**, 3408 (1991)
- [54] J. Monin and G.-A. Bontry, "Optical and photoelectric properties of alkali metals", *Phys.Rev. B* **9**, 1309 (1974)
- [55] "Surface Enhanced Raman Scattering", édité par R. K. Chang et T. E. Furtak, Plenum Press, New York (1982)
- [56] E. Hulpke, J. Lower, A Reichmuth, "Strain and confined resonances in ultrathin alkali-metal films", *Phys.Rev. B* **53**, 13901 (1996)
- [57] M. W. Cole M. R. Swift, F. Toigo, "Zero point surface phonons : effect on wetting", *Phys.Rev.Lett*, **69**, 2682 (1992)
- [58] Wenzel, *Ind. Eng. Chem.* **28**, 988 (1936)
- [59] CRC. Handbook of Chemistry and Physics, édité par D. R. Lide 75th edition, CRC Press
- [60] B. Demolder, J. Dupont-Roc, "Wetting Transition of Liquid Helium on Oxidized Rubidium Metal Surfaces", *J. Low Temp. Phys* **104**, 359 (1996)
- [61] P. J. Nacher and J. Dupont-Roc, "Experimental evidence for Nonwetting with Superfluid Helium", *Phys.Rev.Lett* **67**, 2966 (1991)
- [62] P. Stefanyi, J. Klier, and A. F. G. Wyatt "Residual Mass Flow of ⁴He on a Nonwetted Cs Surface", *Phys.Rev.Lett.* **73**, 692 (1994)
- [63] M. Succi, R. Canino et B. Ferrario, "Atomic absorption evaporation flow rate measurements of alkali metal dispensers", *Vacuum* **35**, 579 (1985)
- [64] A. W. Adamson and A. Zebib, "Transition Region between an Infinite Plane meniscus and an Adsorbed Film", *J. Phys. Chem.* **84**, 2619 (1980)
- [65] E. Rolley, A. Prevost and C. Guthmann, "Depinning of the superfluid ⁴He-Cs contact line", *J. Low Temp. Phys.* **113** (1998) 787
- [66] E. Rolley, C. Guthmann, G. Gombrowicz, V. Repainy "Roughness of the contact line on a disordered substrate", *Phys.Rev.Lett.* **80**, 2865 (1998)
- [67] L. Pricapenko and J. Treiner, "Excitations of Inhomogeneous Liquid ⁴He : A Density Functional Study", *J. Low Temp .Phys* **96**, 19 (1994)
- [68] J. Klier, P. Stefanyi, and A. F. G. Wyatt "Contact Angle of Liquid ⁴He on a Cs Surface", *Phys.Rev.Lett* **75**, 3709 (1995)
- [69] D. Ross, P. Taborek, J.E. Rutledge, "Contact Angle of Superfluid on a cesium surface", *J. Low Temp. Phys.* **111**, 1 (1998)
- [70] A. Prévost, M. Poujade, E. Rolley, C. Guthmann, "Wetting of ⁴He on rough cesium substrates", à paraître dans les comptes rendus de LT 22, *Physica B*, (2000).

- [71] N. N. Aschcroft, N. D. Mermin, "Solid State Physics", Saunders College Publishing International Edition (1976)
- [72] A. Chizmeshya, M. W. Cole, and E. Zaremba, "Weak Binding Potentials and Wetting Transitions", *J. Low Temp. Phys.* **110**, 677 (1998)
- [73] R. Luusalo, A. Husmann, J. Kopu, and P. J. Hakonen, "Pseudo-contact angle due to superfluid vortices in ^4He ", à paraître dans *J. Low Temp. Phys.*
- [74] E. Cheng and J. Treiner, "Line Tension of Liquid Helium at Prewetting Transitions", *J. Low Temp. Phys* **101**, 331 (1995)
- [75] P-G de Gennes, "Dry vortices in thin helium films", à paraître
- [76] S. Lemerle, J. Ferré, C. Chappert, V. Mathet, T. Giamarchi, and P. Le Doussal, "Domain Wall Creep in an Ising Ultrathin Magnetic Film", *Phys.Rev.Lett* **80**, 849 (1998)
- [77] E. Seppälä and M. Alava, "A surprise in the 2D Random Field Ising Model at $T=0$: A Percolation Phase", à paraître dans les comptes rendus de LT 22, *Physica B*, (2000).
- [78] J. Wilks, "Properties of liquid and solid helium", Oxford University Press (1967)
- [79] J. Maynard, "Determination of the thermodynamics of He II from sound-velocity data", *Phys.Rev..B* **14**, 3868 (1976)

Résumé

Cette thèse présente une étude expérimentale de la dynamique de mouillage d'un film d' ^4He liquide superfluide sur une surface de césium, lors de la traversée en température de la transition de prémouillage. Pour imager le film d'hélium, nous avons adapté aux basses températures une méthode de contraste interférentiel différentiel, qui donne accès selon une direction au gradient de couverture locale d'hélium.

Les couches de césium ont été fabriquées par évaporation in situ à froid. Elles montrent des angles de contact de l'hélium équivalents à ceux des autres groupes utilisant le même procédé de fabrication. L'épaisseur de films d'hélium a été mesurée en fonction de la désaturation sur ces surfaces et est compatible avec les valeurs attendues.

Suivant les surfaces de césium, deux types de comportement du film durant la transition de prémouillage ont été observés. Sur un premier type de surface, l'envahissement par le film s'effectue en passant par un état intermédiaire qui apparaît comme un mélange de surface sèche et mouillée à une échelle inférieure à la résolution. Nous n'avons eu accès alors qu'à la proportion de surface sèche à l'avant du film, moyennée sur la tache de diffraction. L'évolution de la couverture moyenne avec la température peut s'interpréter dans le cadre du modèle d'Ising à champ aléatoire à température nulle sans nucléation, avec un paramètre de désordre important. Sur un deuxième type de surface, les longueurs de corrélation du film sont bien plus importantes et l'invasion de la surface par le film s'effectue par une avancée observable du bord du film. Celle-ci se fait à température constante, le film progressant par avalanches successives activées thermiquement. La vitesse d'avancée du front du film a été mesurée en fonction de la température et de l'épaisseur du film.

Abstract

This thesis is an experimental study of the wetting dynamics of a superfluid ^4He film on cesium surfaces, passing through the prewetting transition by changing the temperature. To get images of the helium film, we adapted to low temperatures an interferential differential contrast microscope, which gives access to the local gradient of helium coverage.

Cesium surfaces are obtained by evaporation on metallic substrates at low temperature. Contact angle were measured and are equivalent to others groups' using the same way of making cesium surfaces. Helium film thickness was measured as a function of off-saturation and is compatible with expected values.

Depending on the cesium surface deposition, two types of film behaviours during the prewetting transition were observed. In the first kind of surface, the film moves imperceptibly by passing through intermediate states which appear to be a mix between dry and wet surface at a lower scale than resolution. In this case, we only could know the proportion of dry surface ahead of the film edge, averaged on the diffraction spot. The way it behaves with temperature can be interpreted in the random field Ising model at zero temperature without nucleation, with a large parameter of disorder. In the second kind of surface, the correlation length was larger, and the motion of the film was clearly observable. The advancement of the film over the surface takes place at constant temperature by successive thermal activated avalanches. Velocity of the film as a function of temperature and thickness was measured.