



HAL
open science

Cavité nanométrique de vapeur de Césium : spectroscopie à haute résolution et interaction de surface de type van der Waals

Gabriel Dutier

► **To cite this version:**

Gabriel Dutier. Cavité nanométrique de vapeur de Césium : spectroscopie à haute résolution et interaction de surface de type van der Waals. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université Paris-Nord - Paris XIII, 2003. Français. NNT : . tel-00583452

HAL Id: tel-00583452

<https://theses.hal.science/tel-00583452>

Submitted on 5 Apr 2011

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

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

**UNIVERSITE PARIS 13
INSTITUT GALILEE
LABORATOIRE DE PHYSIQUE DES LASERS**

THESE DE DOCTORAT DE L'UNIVERSITE PARIS 13

présentée par
Gabriel DUTIER

pour obtenir le titre de
Docteur en science de l'Université Paris 13

Sujet de la thèse :

**Cavité nanométrique de vapeur de Césium :
spectroscopie à haute résolution et interaction de
surface de type van der Waals**

Soutenue le 15 septembre 2003 devant le jury composé par :

M. Jacques BAUDON	Président
M. Martial DUCLOY	
M. Ed.A HINDS	
M. Philippe JACQUIER	Rapporteur
M. Joseph ZYSS	Rapporteur
M. Daniel BLOCH	Directeur de Thèse

”Le paon fait la roue
le hasard fait le reste
Dieu s’assoit dedans
et l’homme le pousse.”

La brouette ou les grandes inventions.
Jacques Prévert

Pour Agnès, mon amour...

Remerciements

Je voudrais remercier tout particulièrement Daniel Bloch qui fut mon directeur de thèse au cours de ces trois années de formation au travail de recherche. Toujours disponible, il m'a appris la rigueur nécessaire à la mise en place et à l'interprétation théorique d'une expérimentation. Je tiens également à le remercier vivement pour les conseils toujours justes qu'il m'a donné lors de la rédaction de ce mémoire.

Je suis également profondément reconnaissant à :

Martial Ducloy pour ses conseils toujours avisés ainsi que sa mobilisation lors de l'obtention de l'allocation de recherche,

Alexandre Yarovitsky pour son amitié et le partage de la richesse de son expérience,

Solomon Saltiel pour sa gentillesse, ses grandes qualités humaines ainsi que pour son aide apportée à l'élaboration du travail théorique,

Michèle Fichet pour son dynamisme et son enthousiasme,

Marie-Pascale Gorza pour ses explications toujours claires et concises,

Hélène Perrin pour sa précieuse relecture et ses commentaires lors de la préparation de la soutenance de thèse,

Alexis Fischer pour m'avoir permis d'enseigner,

Toute l'équipe du Laboratoire de Physique des Lasers, Thierry Billeton, Olivier Lopez, Marc Barbier, Gérard Baqué, Michel Fosse et Martine Alsters, Sabine Barbut, Solange Dousset qui sont d'un grand soutien au quotidien et qui font de ce laboratoire un excellent cadre de travail pour la préparation d'une thèse.

L'ensemble des membres du Jury :

Jacques Baudon pour ses discussions et ses remarques d'une grande pertinence,

Philippe Jacquier pour avoir accepté d'être rapporteur ainsi que pour ses enseignements de DEA et ses conseils qui m'ont permis d'aborder cette thèse avec les compétences adéquates,

Joseph Zyss pour avoir accepté d'être rapporteur et de m'accueillir au sein du LPQM pour un stage post-doctoral,

Ed. Hinds pour son regard d'expert et ses excellentes remarques.

Table des matières

Introduction générale	9
1 Cellule mince : théorie	13
1.1 Introduction	13
1.2 Spectroscopie sub-Doppler	14
1.2.1 Hypothèses et généralités	14
1.2.2 Régime linéaire d'interaction en transmission en cellule mince . . .	15
1.2.2.1 Position du problème	15
1.2.2.2 La polarisation microscopique du modèle atomique à deux niveaux.	17
1.2.2.3 Discussions	19
1.2.2.4 Calcul de la dérivée en fréquence de la transmission	21
1.2.3 La réflexion sélective	22
1.2.3.1 Position du problème.	22
1.2.3.2 Calcul du signal de réflexion sélective.	25
1.2.3.3 La dérivation en fréquence du signal de réflexion sélective	27
1.3 "Nouvelle" approche générale des cellules ultra minces	27
1.3.1 Réflexion et transmission d'un Fabry-Perot mince rempli d'un gaz dilué.	27
1.3.2 Vapeur diluée et approximation des milieux optiquement minces . .	32
1.3.3 Le régime d'interaction linéaire	33
1.3.4 Milieu dilué à deux niveaux en régime linéaire	34

1.3.5	Spectroscopie en modulation de fréquence (FM) avec un système à deux niveaux	37
1.4	Conclusion	38
Introduction générale		13
2	Les cellules ultra minces	41
2.1	Résumé	41
2.2	Description et géométries des cellules minces	41
2.3	Température et pression de vapeur	44
2.3.1	Cellules centimétriques	45
2.3.2	La cellule ultra mince dans son four	45
2.3.3	Discussion	48
2.4	Mesure de l'épaisseur des cellules ultra minces	48
2.4.1	Le principe de la mesure d'épaisseur	48
2.4.1.1	La cellule mince : un Fabry-Perot	48
2.4.1.2	La réflexion comme outil de mesure	50
2.4.2	Détermination théorique des intensités transmises et réfléchies	51
2.4.2.1	Le calcul du Fabry-Perot	51
2.4.2.2	L'approximation à faible angle d'incidence	54
2.4.3	Limites et performances expérimentales de la mesure d'épaisseur	56
2.4.3.1	Les limitations	56
2.4.3.2	Le montage expérimental et la mise en oeuvre de la mesure d'épaisseur	57
2.4.3.3	Cartographie et mesure <i>in situ</i>	61
2.5	Conclusion.	61
3	Spectroscopie en cellule ultra mince	63
3.1	Introduction	63
3.2	Présentation de l'expérience	64
3.2.1	Objectifs	64
3.2.2	Choix de la raie D_1	64
3.3	Dispositif et conditions expérimentales	65

3.3.1	Le montage expérimental	65
3.3.1.1	Le montage dans son ensemble	65
3.3.1.2	La référence d'absorption saturée	66
3.3.1.3	Près de la cellule mince	66
3.3.2	Utilisation des différents éléments du montage	67
3.3.2.1	La source laser	67
3.3.2.2	La cellule mince dans son four	68
3.3.2.3	L'ensemble du système de détection	69
3.3.3	Définition et caractéristiques expérimentales de la modulation de fréquence	72
3.4	Résultats expérimentaux et interprétations	73
3.4.1	L'absorption en cellule ultra mince	73
3.4.2	Le rétrécissement cohérent Dicke à l'épaisseur de $\lambda/2$ et sa renais- sance à $3\lambda/2$	74
3.4.3	Présentation des résultats expérimentaux pour l'ensemble des épais- seurs en cellule ultra mince	77
3.4.3.1	La transmission	77
3.4.3.2	La réflexion	79
3.5	Mesures complémentaires à l'épaisseur de $\lambda/2$	82
3.5.1	Introduction	82
3.5.2	Absorption directe et FM à basse pression	82
3.5.2.1	Conditions expérimentales	82
3.5.2.2	Présentation et interprétation des résultats expérimentaux	82
3.5.3	Élargissements et déplacements collisionnels	84
3.5.3.1	Introduction	84
3.5.3.2	Élargissements des composantes hyperfines avec la densité	85
3.5.3.3	Déplacements des composantes hyperfines avec la densité	85
3.6	Conclusion du chapitre	88
4	Interaction atome-surface : théorie	89
4.1	Introduction	89
4.2	Interaction de van der Waals atome-surface	90

4.2.1	Énergie potentielle d'un atome proche d'une surface métallique : modèle des images électriques	90
4.2.2	Changement de la durée de vie d'un niveau atomique près d'une surface	92
4.2.3	Interaction de van der Waals entre le niveau atomique fondamental et un milieu diélectrique non dispersif	93
4.2.4	Interaction de van der Waals entre le niveau atomique fondamental et un milieu diélectrique dispersif	93
4.2.5	Interaction de van der Waals entre niveau excité et milieu diélec- trique dispersif	94
4.2.5.1	Déplacement du niveau excité	94
4.2.5.2	Interprétation du couplage avec le diélectrique dispersif : le polariton de surface	95
4.2.5.3	Changement de la durée de vie d'un niveau excité proche d'une paroi diélectrique dispersive	96
4.2.6	Évaluations théoriques de l'interaction van der Waals pour des sur- faces de YAG et de saphir	97
4.2.6.1	Les coefficients d'image diélectrique du YAG et du saphir	97
4.2.6.2	Calcul numérique du déplacement van der Waals	98
4.3	Croisement de niveaux par répulsion-attraction	101
4.3.1	Introduction	101
4.3.2	Description qualitative du croisement de niveaux	102
4.3.3	Estimation théorique de la distance à la surface pour le croisement de niveau	104
4.3.4	Résultat et conclusion	105
4.4	Interaction atome-2 surfaces	106
4.4.1	Introduction	106
4.4.2	Modèle électrostatique d'un atome entre deux parois	106
4.4.3	Modification en énergie d'un niveau atomique quelconque entre deux surfaces diélectriques non résonnantes	110
4.4.4	Comparaison de la modification en énergie d'un niveau quelconque dans différentes approches	111

4.4.5	Interaction atome-2 surfaces diélectriques dispersives résonantes . . .	112
4.5	Conclusions du chapitre	114
5	Interaction atome-surface : expériences	115
5.1	Introduction	115
5.2	Interaction de surface du niveau $6P_{1/2}$	117
5.2.1	Introduction	117
5.2.2	Description de l'expérience	117
5.2.3	Résultats expérimentaux	118
5.2.4	Interprétation des résultats	121
5.2.5	Conclusions et perspectives	124
5.3	L'interaction van der Waals résonnante	124
5.3.1	Introduction	124
5.3.2	Excitation par étapes	126
5.3.2.1	Introduction	126
5.3.2.2	Le montage expérimental	126
5.3.2.3	Résultats expérimentaux	129
5.3.2.4	Conclusion	134
5.3.3	Excitation directe à deux photons	135
5.3.3.1	Introduction	135
5.3.3.2	Principe de la transition à deux photons vers le niveau $6D_{3/2}$ et montage de la référence	136
5.3.3.3	La configuration à deux photons à "60°"	138
5.3.3.4	Le montage à deux photons contra-propageants	142
5.3.3.5	Conclusions et perspectives	147
5.4	Conclusion du chapitre	147
6	Croisement de niveaux par répulsion-attraction	149
6.1	Introduction	149
6.2	Le laser 917-921 nm	150
6.2.1	Présentation générale du problème	150
6.2.2	Principe général de fonctionnement et architecture physique du laser	150

6.2.3	Pilotage informatique complet du balayage en fréquence	152
6.2.4	Les limites du système	154
6.3	Montage en ondes évanescentes	155
6.3.1	Introduction	155
6.3.2	Principe et utilisation des ondes évanescentes	156
6.3.3	Montage expérimental	156
6.3.4	Résultats et interprétations	158
6.3.5	Conclusion	161
6.4	Cellule ultra mince	161
6.4.1	Introduction	161
6.4.2	Montage expérimental	162
6.4.3	Résultats et interprétations	162
6.4.4	Conclusion	164
6.5	Conclusion du chapitre	165
	Conclusion générale	167
	A Article J. Opt. Soc. Am. B	171
	B Les effets de moyennage sur l'épaisseur locale.	181
	C Calcul du coefficient C_3	183
	D Calcul de la susceptibilité du champ	185

Introduction générale

L'interaction de van der Waals entre un atome et une surface métallique parfaite a été traitée par Lennard-Jones en 1932 [1] en utilisant la méthode des images électriques. L'interaction entre le dipôle source et son image est l'origine de l'interaction de van der Waals attractive. Puis Lifshitz, en 1956 [2], utilise les fluctuations du champ électromagnétique pour traiter le problème de l'interaction de van der Waals entre des objets macroscopiques à partir de leur permittivité. C'est à partir de ce travail que McLachlan et Mavroyannis [3, 4] en 1963 ont traité de l'interaction d'un atome avec une surface diélectrique non dispersive en s'appuyant sur la théorie de la réponse linéaire. Dans ces approches, ce sont les fluctuations du champ électromagnétique ou des dipôles atomiques qui induisent une image instantanée dans la surface pondérée du coefficient de permittivité pour les milieux non dispersifs.

Les fluctuations atomiques induisent des couplages suivant les transitions virtuelles et impliquent une dépendance en fréquence de la permittivité pour les milieux diélectriques dispersifs. C'est en 1984-85 que Wylie & Sipe [5, 6] utilisent une approche quantique pour traiter ces résonances entre atome et surface. Dans l'équipe du laboratoire ce sont les effets quantitatifs de ces résonances entre atome et surface qui ont été étudiés, tant théoriquement [7, 8] qu'expérimentalement [9, 10, 11].

L'interaction de van der Waals pourtant présente dans la plupart des phénomènes à petite échelle est rarement mesurée directement. Il existe diverses techniques d'approche comme par exemple Sandoghdar *et al.* en 91-92 [12, 13], qui mesurent directement l'interaction de van der Waals entre un atome et ses images dans une cavité micrométrique à l'aide d'un jet atomique jusqu'à une distance atome-surface de $0.5 \mu\text{m}$. Dans l'équipe, l'approche spectroscopique utilise la technique de réflexion sélective en vapeur diluée [15, 16]. Celle-ci sonde des atomes à une épaisseur de l'ordre de $\lambda/2\pi$ (avec λ la longueur d'onde)

en mesurant la réflexion lumineuse à une interface fenêtre-vapeur. L'avantage de la vapeur sur des techniques mécaniques consiste en la possibilité d'études sur des niveaux à faible durée de vie. Il a ainsi été démontré que le potentiel du niveau $6D_{3/2}$ du Césium avec une surface de saphir c_{\perp} est fortement répulsif [9, 10].

Le point de départ de cette thèse a consisté en l'étude d'une éventuelle manifestation du croisement des potentiels répulsif et attractif de la structure fine du niveau $6D$ du Césium séparée d'un THz. Ce croisement induirait alors un puits de potentiel à distance atome-surface de l'ordre de 5 nm. L'étude d'interactions à des distances aussi petites nécessite des outils d'investigation inhabituels en spectroscopie comme l'utilisation d'ondes évanescentes confinées avec laquelle cette expérience a débuté. La seconde approche consiste à utiliser des cellule minces afin de confiner les atomes proche des surfaces. De telles cellules d'épaisseurs micrométriques sont connues et étudiées dans l'équipe depuis quelques années pour des expériences de spectroscopie sub-Doppler à haute résolution [17, 18] et nous avons eu la chance de disposer de la première cellule ultra mince fabriquée par un laboratoire de recherche Arménien.

Cet objet se décrit comme étant une cavité Fabry-Pérot remplie de vapeur de Césium. Les fenêtres de la cellule sont en YAG ou en saphir et présentent un parallélisme dans la cavité tel que la pression atmosphérique provoque un changement local de l'épaisseur entre 30 et 1300 nm. L'extrême confinement de la vapeur ainsi que la nouveauté sur ce nouvel objet a nécessité nombres d'investigations préliminaires. Premièrement, il a fallu mettre au point d'une technique de mesure d'épaisseur purement optique nous assurant une précision sur l'épaisseur sondée de quelques nanomètres. Deuxièmement, la spectroscopie dans des épaisseurs de vapeur de l'ordre de la longueur d'onde a nécessité un modèle théorique adapté à cette configuration.

Les études expérimentales de l'équipe du laboratoire portaient sur des cellules minces d'épaisseur comprise entre 1 mm et 15 μm . Le modèle théorique élaboré pour la spectroscopie d'un atome à deux niveaux en transmission dans ces cellules qui négligeait toutes les réflexions [19] avait relevé un certain nombre d'aspects typiques de ces épaisseurs. Les collisions sur les surfaces induisent un régime atomique transitoire et favorise des atomes lents en vol parallèle aux surfaces. Des spectres sub-Doppler en transmission normale aux surfaces en sont alors la principale manifestation [20]. Il a également été prédit des effets de cohérence sur la polarisation induite dans la vapeur aux épaisseurs de $\lambda/2$, $3\lambda/2$, etc...

par le groupe du laboratoire [21]. Le même effet de cohérence a été observé par Dicke en 1955 [22] dans le domaine micro-onde.

A cette approche en transmission nous ajoutons l'apport de la connaissance de la réflexion sélective dans l'élaboration de notre modèle. En effet, nous avons démontré que le signal complet en cellule ultra mince est un mélange interférométrique du signal en transmission précédemment utilisé et de réflexion sélective. Ainsi, en cellule ultra mince, il est possible d'effectuer une spectroscopie aussi bien en transmission qu'en réflexion dans le cadre d'un modèle théorique complet.

Des expériences ont alors été mené sur la transition D_1 du Césium à différentes épaisseurs et l'accord avec le modèle à deux niveaux est tout à fait satisfaisant. C'est principalement au regard de cette interprétation que nous avons pu commencer à investiguer les interactions atome-surface de type van der waals et ce jusqu'à des épaisseurs de 50 nm. Nous montrons alors que la spectroscopie du niveau D_1 de Césium à des épaisseurs aussi petite est possible dans ces cellules. L'interprétation de nos mesures a ensuite nécessité la mise en place d'un second modèle théorique incluant le potentiel de van der Waals en cellule mince. Celui-ci est différent en cavité et il semble qu'il faille tenir compte des images multiples générées par le dipôle atomique fluctuant dans les parois. Ce modèle van der Waals en cavité s'avère relativement satisfaisant et une caractérisation détaillée de la résolution spatiale de l'interaction de van der Waals est en cours.

A la suite de ces expériences, nous avons investigué les expériences sur le niveau $6D_{3/2}$ qui nécessite une double excitation. Celle-ci soulève des questions relatives au peuplement du niveau intermédiaire ainsi que la faisabilité d'une excitation directe à deux photons. Nous avons alors montré que ces excitations étaient réalisables jusqu'à des épaisseurs d'une centaine de nanomètre puis beaucoup plus délicates aux épaisseurs inférieures. La résonance de ce niveau avec les surface de YAG ou de saphir c_{\perp} a ainsi été recherchée pour le même ordre de grandeur d'épaisseur. L'étude du niveau $6D_{3/2}$ en cellule ultra mince nous a permis de continuer l'investigation du croisement des potentiels attractif et répulsif. Cette étude présente aussi l'intérêt de sonder des niveaux excités pour lesquels l'interaction de van der Waals est très forte à ces petites distances.

Ce manuscrit est séparé en deux sous-ensembles, constitués des chapitre 1-2-3 et 4-5-6.

Le premier considère uniquement les effets optiques en cellules ultra minces négligeant l'interaction de van der Waals. Le second traite des interactions atome-surface dans différentes configurations.

Nous présentons dans le **premier chapitre** les développements théoriques de la spectroscopie d'un atome à deux niveaux en cellule ultra mince de différentes épaisseurs.

Le **deuxième chapitre** présente des réalisations de cellules ultra minces ainsi que la technique de mesure d'épaisseur utilisée tout au long des expériences. Cette technique permet d'atteindre des précisions de quelques nanomètres sur une mesure d'épaisseur comprise entre 30 et 1300 nm.

Au cours du **troisième chapitre**, nous retraçons les mesures spectroscopiques à différentes épaisseurs comprises entre 200 et 1300 nm en cellule ultra mince sur la transition D_1 du Césium. Dans cette gamme d'épaisseurs, où nous négligeons les interactions atome-surface de type van der Waals, nous présentons le pendant expérimental du modèle théorique du chapitre 1.

Le **quatrième chapitre**, théorique, est consacré aux calculs des interactions atome-surface dans les configurations atome-surface ou atome-cavité à deux surfaces. Une partie est dédiée à la description d'un croisement entre deux potentiels atomiques attractif et répulsif lorsqu'ils sont situés à une distance de l'ordre de 5 nm de la surface. En parallèle, nous développons une ébauche d'approche théorique de ces couplages résonnants en cavité.

Le **cinquième chapitre** présente les différentes expériences effectuées en cellules ultra minces recherchant l'interaction de van der Waals. Il s'agit de la transition D_1 du Césium suivie des doubles excitations par étapes ou à deux photons vers le niveau résonnant avec la surface de saphir c_{\perp} .

Enfin dans le **dernier chapitre**, nous décrivons les deux expériences menées sur le sujet du croisement des potentiels, en ondes évanescentes et en cellule ultra mince.

Chapitre 1

Cellule mince : théorie

1.1 Introduction

En spectroscopie résonnante d'une vapeur macroscopique le libre parcours moyen atomique est petit devant la dimension de la cellule. En revanche, en cellule mince le temps de vol libre des atomes est restreint au vol de paroi à paroi et il devient anisotrope. La réponse optique des atomes se propageant parallèlement aux surfaces est alors privilégiée et il est possible d'étudier les propriétés spectrales de ces atomes confinés. Nous retrouvons le même type d'effet avec l'utilisation de la technique de réflexion sélective, qui consiste à mesurer la variation de réflectivité du faisceau réfléchi à l'interface entre la fenêtre et la vapeur à résonance, car ce sont les atomes en vol quasi-parallèle et proche de la surface qui participent majoritairement au signal.

Nous commençons par présenter la spectroscopie de transmission en cellule mince en négligeant la réflexion sur la deuxième fenêtre [Briaudeau 98-99] [18, 20]. Ces analyses théoriques et expérimentales ont montré que le spectre en transmission comporte une structure étroite liée à l'épaisseur. Ces résonances sub-Doppler résultent des interférences partiellement destructives de l'émission dipolaire en régime transitoire. La résonance à $L = \lambda/2$ a été prédite et observée par [Romer55] [22] dans le domaine radio fréquence.

Dans une deuxième partie, nous présentons la réflexion sélective dans ses grandes lignes et nous montrerons que cette technique génère des spectres sub-Doppler qui ont des similitudes avec ceux de la transmission en cellule mince.

La dernière partie du chapitre présente une analyse théorique incluant l'aspect interférométrique de type Fabry-Perot dans les cellules minces. Nous prenons en compte l'extrême parallélisme entre les deux surfaces et nous montrons que les spectres sont un mélange entre les effets de transmission en cellule mince et de réflexion sélective.

1.2 Spectroscopie sub-Doppler

1.2.1 Hypothèses et généralités

Nous considérons que les atomes suivent des trajectoires rectilignes entre chaque collision. Nous négligeons les effets de l'interaction atome-surface (van der Waals) jusqu'au chapitre 4 et considérons qu'entre deux collisions, les trajectoires atomiques sont parcourues à vitesses constantes. Il est donc possible de définir une vitesse atomique v_z transverse aux surfaces, l'axe z étant toujours perpendiculaire à celles-ci.

Un point essentiel pour la suite consiste à supposer que l'atome perd toute mémoire optique après une collision sur une paroi, toute excitation atomique est alors perdue.

Les atomes sont en vol libre entre chaque collision sur les parois, car le libre parcours moyen atomique de la vapeur pour des pressions inférieures au Torr est plus grand que l'épaisseur de la cellule.

La distribution des vitesses des atomes dans la vapeur est supposée isotrope. Elle suit une distribution thermique du type Maxwell Boltzmann. De même, après une collision avec une paroi, lorsque l'atome se décolle de la paroi, la distribution de vitesse atomique reste isotrope. Ce dernier point est discutable car difficile tant à confirmer qu'à infirmer.

L'onde incidente dans la vapeur est prise plane et d'intensité faible devant l'intensité de saturation optique. La fréquence de Rabi¹ est très inférieure au taux de désexcitation ($\Omega_R \ll \gamma_{eg}$).

Le nombre d'atomes accessibles est faible et il est possible de faire l'approximation des milieux optiquement minces. L'absorption lumineuse est alors faible et reste négligeable devant l'intensité incidente.

Le diamètre du faisceau incident est bien plus grand que l'épaisseur de la cellule. Le temps de transit des atomes est donc bien lié à la distance entre les parois et non à la

1. Voir équation (1.9).

taille du faisceau.

1.2.2 Régime linéaire d'interaction en transmission en cellule mince

1.2.2.1 Position du problème

Dans cette partie, nous allons considérer une vapeur atomique (nommée 0) bornée par deux surfaces transparentes identiques, soit deux fenêtres nommées respectivement 1 et 2 (voir figure 1.1). Cet ensemble sera appelé une cellule. Dans cette section, nous allons définir la transmission sans tenir compte ni du faisceau réfléchi à l'interface de la deuxième surface, ni du faisceau réfléchi par la vapeur. Cette approche est celle généralement utilisée jusqu'ici [Zambon 97, Briaudeau 98-99] [19, 18, 20].

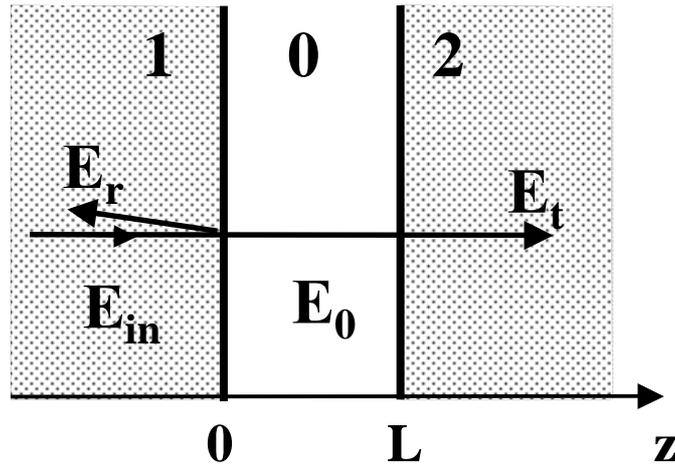


FIG. 1.1 – Vue en coupe de la cellule

Le champ incident \mathbf{E}_{in} est une onde plane dans le milieu 1 d'indice n (comme le milieu 2). Le faisceau est à incidence normale à la surface (suivant l'axe z) avec l'amplitude E_{in} considérée comme réelle sans restriction de généralité :

$$\mathbf{E}_{in}(z,t) = \frac{1}{2} E_{in} \exp[-i(\omega t - knz)] + c.c. \quad (1.1)$$

et le champ transmis \mathbf{E}_0 à l'intérieur de la vapeur :

$$\mathbf{E}_0(z,t) = \frac{1}{2} E_0(z) \exp[-i(\omega t - kz)] + c.c. \quad (1.2)$$

avec ω la fréquence circulaire et k vérifiant $k = \omega/c$ et *c.c.* voulant dire *complexe conjugué*.

L'objectif est de trouver l'expression du champ transmis en toute position z dans la vapeur afin d'en déduire l'absorption α :

$$\alpha = \frac{|E_0(0)|^2 - |E_0(L)|^2}{|E_0(0)|^2} \quad (1.3)$$

qui devient avec l'hypothèse du milieu optiquement mince $|E_0(0)|^2 - |E_0(L)|^2 \ll |E_0(0)|^2$ (absorption très faible) :

$$\alpha = 2\Re\left(\frac{E_0(0) - E_0(L)}{E_0(0)}\right) = \frac{-2}{E_0(0)} \int_0^L dz \Re\left(\frac{\partial E_0(z)}{\partial z}\right) \quad (1.4)$$

avec \Re la *partie réelle de* et L l'épaisseur de la cellule.

Ce champ \mathbf{E}_0 *transmis* obéit à l'équation de propagation des ondes de Maxwell :

$$\nabla^2 \mathbf{E}_0 - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}_0}{\partial t^2} = \mu_0 \frac{\partial^2 \mathbf{P}_0}{\partial t^2} \quad (1.5)$$

avec μ_0 la perméabilité du vide, c la vitesse de la lumière dans le vide et où l'on définit l'amplitude de la polarisation induite dans la vapeur $P_0(z)$ comme suit :

$$\mathbf{P}_0(z, t) = \frac{1}{2} P_0(z) \exp[-i(\omega t - kz)] \mathbf{e}_z + c.c. \quad (1.6)$$

En faisant l'approximation de l'enveloppe lentement variable² qui est appropriée tant que la réflexion n'est pas considérée³, nous obtenons avec (1.5) :

$$\frac{\partial E_0(z)}{\partial z} = \frac{-ik}{2\epsilon_0} P_0(z) \quad (1.7)$$

où ϵ_0 est la permittivité du vide. Avec $S_T^{lin} = \alpha E_0^2(0)$, le signal transmis s'écrit :

$$S_T^{lin} = -\frac{kE_0(0)}{\epsilon_0} \int_0^L dz \Im P(z) \quad (1.8)$$

avec \Im la *partie imaginaire*.

Ce qu'il faut noter dans ce calcul, c'est que nous n'avons fait aucune hypothèse locale dans la vapeur ni sur la polarisation ni sur le champ. Nous n'avons défini aucune contrainte supplémentaire sur les champs quelque soit les points de la vapeur.

2. La dérivée seconde du champ est négligeable devant la dérivée première sur une distance d'une longueur d'onde.

3. Voir la section 1.2.3 pour plus d'explications.

1.2.2.2 La polarisation microscopique du modèle atomique à deux niveaux.

Nous considérons un modèle atomique à deux niveaux $|g\rangle$ et $|e\rangle$. Ils sont séparés en énergie de $\hbar\omega_0$ et couplés par une transition dipolaire électrique de moment μ_{eg} . Le taux de relaxation spontanée est défini par γ et le taux de relaxation du dipôle associé à la transition $|g\rangle \leftrightarrow |e\rangle$ est γ_{eg} (voir figure 1.2). La condition de faible intensité sur le faisceau incident est telle que le champ ne soit pas saturant ($\Omega_R \ll \gamma_{eg}$) avec la fréquence de Rabi définie par :

$$\Omega_R = \frac{\mu_{eg}E_0(0)}{\hbar} \quad (1.9)$$

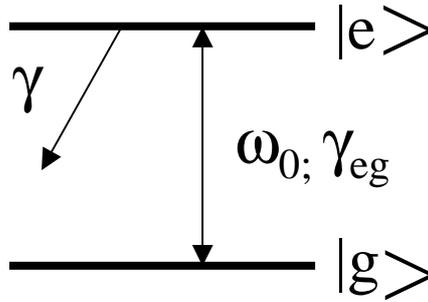


FIG. 1.2 – Niveau atomique fondamental $|g\rangle$ et excité $|e\rangle$ séparé d'une fréquence ω_0 .

La polarisation $P_0(z)$ inclut l'interaction transitoire entre les atomes et le champ lumineux. Elle se calcule à partir du moment dipolaire de l'atome $\boldsymbol{\mu}$ et de la matrice densité du système $\boldsymbol{\sigma}$. En se plaçant dans le référentiel tournant à la fréquence de l'onde optique incidente ω et en tenant compte de l'intégration sur toutes les classes de vitesses de la matrice densité, on trouve [par exemple Ducloy 91] [23]:

$$P_0(z,t) = N\mu_{eg} \int_{-\infty}^{+\infty} dv_z \sigma_{eg}(z,v_z)W(v_z) \quad (1.10)$$

où $W(v_z)$ est la distribution de vitesse de type Maxwell Boltzmann⁴:

$$W(v_z) = \frac{1}{u\sqrt{\pi}} \exp\left[-\left(\frac{v_z}{u}\right)^2\right] \quad (1.11)$$

4. Cette hypothèse n'est pas nécessaire pour (1.10) mais est la plus raisonnable.

avec u la vitesse la plus probable :

$$u = \sqrt{\frac{2k_b T}{m}} \quad (1.12)$$

avec k_b la constante de Boltzmann, m la masse de l'atome et T la température de la vapeur.

Afin de trouver les expressions de la matrice densité, il faut écrire l'équation d'évolution de Liouville dans le repère tournant :

$$i\hbar \frac{d\sigma}{dt} = [H, \sigma] + i\hbar \left[\frac{\partial \sigma}{\partial t} \right] \quad (1.13)$$

où le *Hamiltonien* total du système dans la base $|g\rangle, |e\rangle$ s'écrit avec $E_0(z) \approx E_0(0)$:

$$\mathbf{H} = \begin{pmatrix} 0 & -\mu_{eg} E_0(0) \\ -\mu_{eg} E_0(0) & \hbar\omega_0 \end{pmatrix} \quad (1.14)$$

Nous obtenons alors les équations de Bloch après utilisation de la dérivée hydrodynamique $d/dt = \partial/\partial t + \mathbf{v} \cdot \nabla$ et de l'approximation séculaire :

$$\frac{\partial \sigma_{ee}}{\partial t} = -i\Omega_R (\sigma_{eg} - \sigma_{ge}) - \gamma \sigma_{ee} \quad (1.15)$$

$$\frac{\partial \sigma_{gg}}{\partial t} = +i\Omega_R (\sigma_{eg} - \sigma_{ge}) + \gamma \sigma_{ee} \quad (1.16)$$

$$\frac{\partial \sigma_{eg}}{\partial t} = +i\Omega_R (\sigma_{gg} - \sigma_{ee}) - \Lambda \sigma_{eg} \quad (1.17)$$

avec

$$\Lambda = \gamma_{eg} - i[(\omega - \omega_0) - kv_z] \quad (1.18)$$

Par hypothèse, la population du niveau excité est négligeable devant celle du niveau fondamental car le champ n'est pas saturant ($\Omega_R \ll \gamma_{eg}$ et $\sigma_{ee} \ll \sigma_{gg}$). Les conditions initiales imposent aussi $\sigma_{gg}(t=0) = 1$, $\sigma_{eg}(t=0) = \sigma_{ee}(t=0) = 0$. La solution du terme croisé de la matrice densité $\sigma_{eg}(t)$ s'écrit :

$$\sigma_{eg}(t) = \frac{i\Omega_R}{\Lambda} [1 - \exp(-\Lambda t)] \quad (1.19)$$

Tous les éléments du calcul sont maintenant présents avec une intégrale double, l'une sur les vitesses (1.10) et l'autre sur les positions z (1.8). Il s'agit ici d'une étape importante du raisonnement, c'est la transformation de la dépendance temporelle de l'élément de matrice densité en une dépendance sur les positions *via* la transformation générique $|t| = z/|v|$. La matrice densité dépend donc de la position des atomes entre les fenêtres. Par ailleurs, il faut prendre garde au fait que la polarisation en un point z dépend de la polarisation aux temps antérieurs. En séparant les deux sens de propagation des atomes, nous pouvons intégrer respectivement sur $t = z/v_z$ pour $v_z > 0$ et $t = (z - L)/v_z$ pour $v_z < 0$. Avec (1.19) dans (1.10), l'expression intégrale de la polarisation s'écrit :

$$P_0(z) = iN\mu_{eg}\Omega_R \left[\int_{-\infty}^0 \frac{dv_z W(v_z)}{\Lambda} \left[1 - \exp\left(-\Lambda \frac{(z-L)}{v_z}\right) \right] + \int_0^{+\infty} \frac{dv_z W(v_z)}{\Lambda} \left[1 - \exp\left(-\Lambda \frac{z}{v_z}\right) \right] \right] \quad (1.20)$$

Et ainsi, avec (1.20) dans (1.8), après permutation de l'ordre d'intégration et intégration sur les positions, nous obtenons le signal transmis dans une cellule mince de longueur L :

$$S_T^{lin} = \frac{N\mu_{eg}^2 E_{in}^2}{2\hbar\epsilon_0} \Re \int_{-\infty}^{+\infty} W(v_z) dv_z \left[\underbrace{-\frac{kL}{\Lambda}}_{J_1} + \underbrace{\frac{k|v_z|}{\Lambda^2}}_{J_2} - \underbrace{\frac{k|v_z|}{\Lambda^2} \exp\left(-\frac{\Lambda L}{|v_z|}\right)}_{J_3} \right] \quad (1.21)$$

1.2.2.3 Discussions

L'expression précédente peut être décomposée sous une forme plus explicite :

$$S_T^{lin} = A \sum_{i=1}^3 S_T^{lin}(i) \quad (1.22)$$

avec

$$S_T^{lin}(i) = \int_{-\infty}^{+\infty} dv W(v_z) J_i \quad (1.23)$$

et J_i défini en (1.21) avec $i = 1, 2, 3$.

Le premier terme du résultat, $S_T^{lin}(1)$, représente la réponse du milieu élargie par effet Doppler, il s'écrit simplement comme :

$$S_T^{lin}(1) \propto \exp\left[-\left(\frac{\omega - \omega_0}{ku}\right)^2\right] \quad (1.24)$$

Les deux autres termes $S_T^{lin}(2)$ et $S_T^{lin}(3)$ proviennent de l'intégration du régime transitoire du dipôle. Une analyse approfondie [Briaudeau thèse] [21], nous montre que $S_T^{lin}(2)$ est assimilable à une intégrale sur toutes les durées d'interaction possibles. Il existe dans toute vapeur, il est indépendant de L et il ne dépend que du rapport γ_{eg}/ku , ce qui le rend négligeable devant $S_T^{lin}(1)$ dès que $L \gg \lambda ku/\gamma_{eg}$, et permet néanmoins de l'observer à des épaisseurs de cellule de 20 ou 50 μm .

Cette analyse nous montre aussi que le troisième terme $S_T^{lin}(3)$ représente l'intégrale du régime transitoire sur des temps supérieurs au temps de vol des atomes dans la vapeur. Il comporte une exponentielle complexe qui induit des oscillations de son amplitude avec la variation de L et de période $\lambda/2$.

Discutons maintenant de l'évolution de S_T^{lin} en fonction de l'épaisseur de la cellule. On observe l'apparition d'une composante sub-Doppler superposée au spectre Doppler et oscillant avec une période de $(2n + 1)\lambda/2$ où n est entier. Cette contribution étroite provient de la somme $S_T^{lin}(2) + S_T^{lin}(3)$ qui est une fonction de l'épaisseur⁵ de période $\lambda/2$ et dont l'amplitude s'atténue continuellement avec l'épaisseur pour devenir négligeable en vapeur "macroscopique".

C'est précisément à une épaisseur de $L = \lambda/2$ que le contraste entre $S_T^{lin}(1)$ et $S_T^{lin}(2) + S_T^{lin}(3)$ est maximal car l'absorption est faible et la cohérence est maximale. Une demi-période plus loin en $L = \lambda$, la résonance sub-Doppler est minimale. On observe alors que $S_T^{lin}(1)$ est le terme dominant car $S_T^{lin}(2)$ et $S_T^{lin}(3)$ sont de signe opposé au centre de raie. Ce comportement est illustré sur la figure 1.3-a,b pour des épaisseurs de $L \approx \lambda$ et de $L \approx 5\lambda$ où il reste toujours une contribution étroite mais avec un contraste de plus en plus faible. La structure particulièrement étroite en $L = \lambda/2$ a été prédite comme étant un effet de cohérence atomique globale et a été observée par Romer et Dicke en 1955 [22] dans le domaine micro-onde.

Revenons maintenant sur le terme $S_T^{lin}(2)$ représenté sur la figure 1.4. Il présente une forme triangulaire en $\omega = \omega_0$ qui devient une singularité logarithmique lorsque $\gamma_{eg}/ku \rightarrow 0$ qui s'explique par une contribution de toutes les classes de vitesse atomique avec un poids en $1/v_z$ [Briaudeau thèse] [21].

5. Seul le terme $S_T^{lin}(2)$ est indépendant de l'épaisseur.

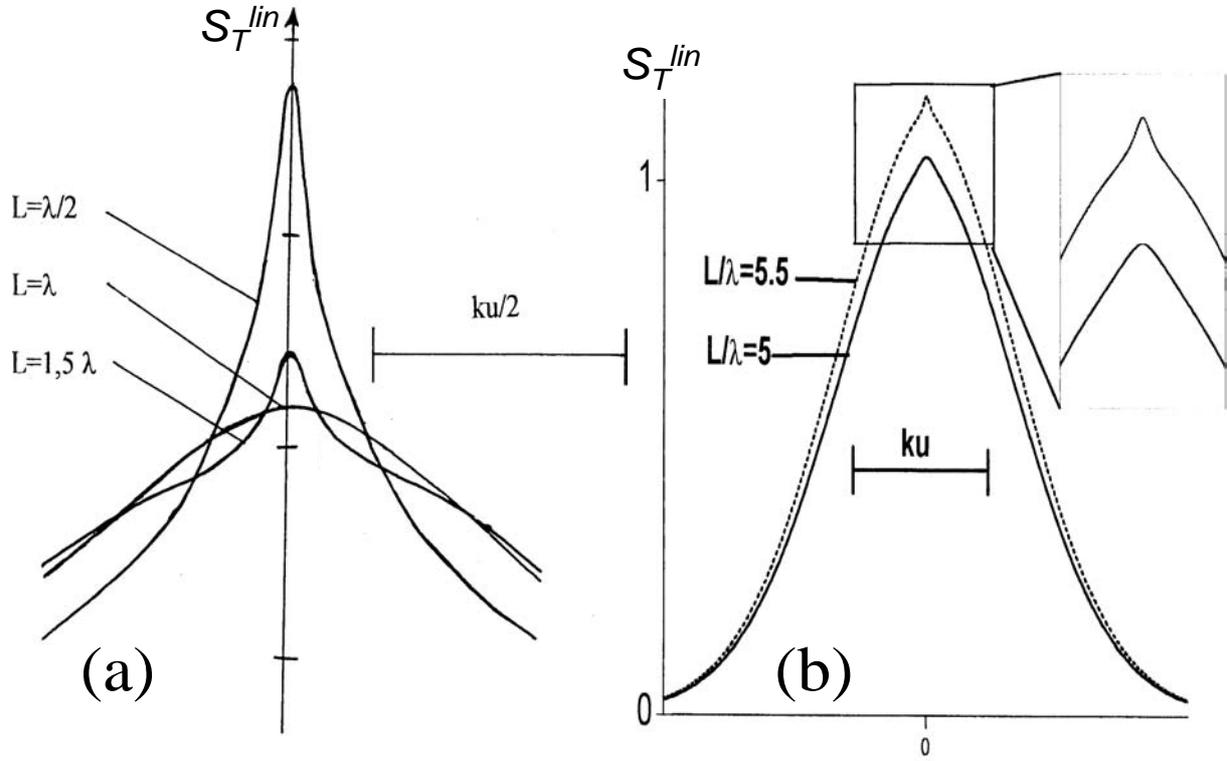


FIG. 1.3 – S_T^{lin} pour $L \approx \lambda$ et $L \approx 5\lambda$ avec $ku = 50\gamma_{eg}$

1.2.2.4 Calcul de la dérivée en fréquence de la transmission

Discutons à présent de la dérivée en fréquence de la transmission (1.21). La dérivée en fréquence est exploitable expérimentalement par la technique de modulation de fréquence que nous mentionnerons au chapitre 3.

Il est possible de calculer la dérivée des différents termes de l'absorption dans l'approximation Doppler infinie ($ku \gg \gamma_{eg}$) et à faible saturation optique. Nous obtenons de (1.24) et [21]:

$$S_T^{lin(1)FM} = \frac{\partial S_T^{lin(1)}}{\partial \omega} \propto (\omega - \omega_0) \exp \left[- \left[\frac{(\omega - \omega_0)}{ku} \right]^2 \right] \quad (1.25)$$

$$S_T^{lin(2)FM} + S_T^{lin(3)FM} = \frac{\partial (S_T^{lin(2)} + S_T^{lin(3)})}{\partial \omega} \propto \frac{(\omega - \omega_0)}{1 + \left(\frac{(\omega - \omega_0)}{\gamma_{eg}} \right)^2} (1 - \cos(kL)) \quad (1.26)$$

Le premier terme correspond simplement à la dérivée de l'absorption. Et le second

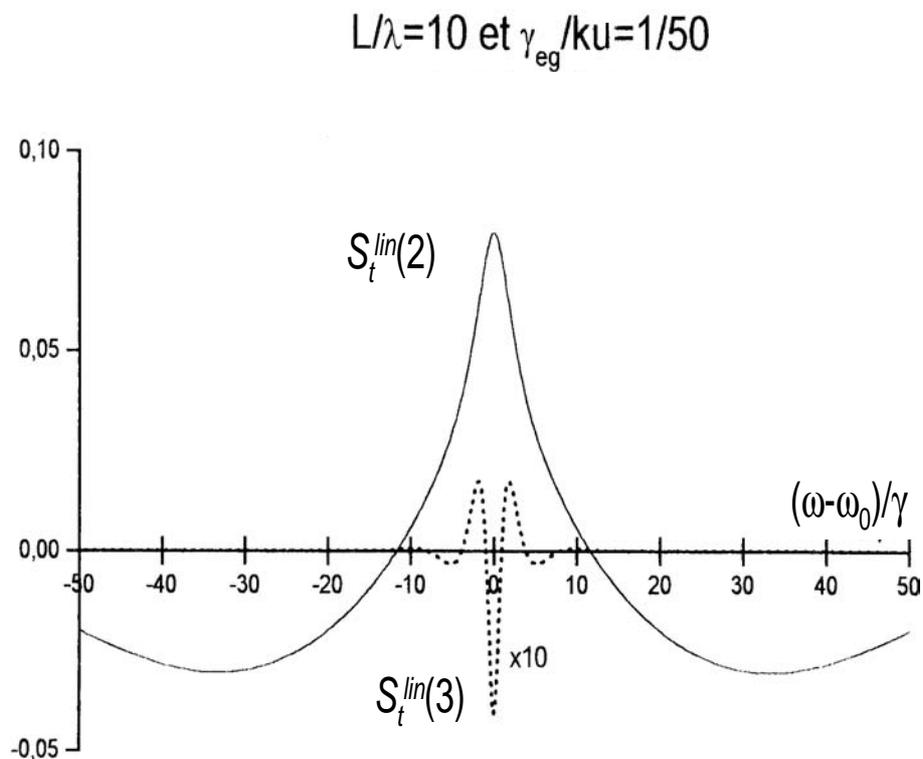


FIG. 1.4 – $S_T^{lin}(2)$ en trait plein et $S_T^{lin}(3)$ en pointillés, pour $L/\lambda = 10$ et $\gamma_{eg}/ku = 1/50$.

terme, représenté sur la figure 1.5 [21] est oscillant et a une largeur proche de γ_{eg} . De plus, il s'annule totalement pour $L = n\lambda$, avec n un entier, ce qui correspond aux épaisseurs pour lesquelles il n'y a pas de contribution étroite.

Il est alors incontestable ici que la technique de modulation de fréquence permet de faire ressortir les contributions étroites dans les spectres, d'autant plus que le spectre comporte une singularité logarithmique au pic d'absorption.

1.2.3 La réflexion sélective

1.2.3.1 Position du problème.

La réflexion sélective est une technique qui exploite la modification du faisceau réfléchi à résonance dans une vapeur quelconque de grande dimension devant les longueurs d'onde

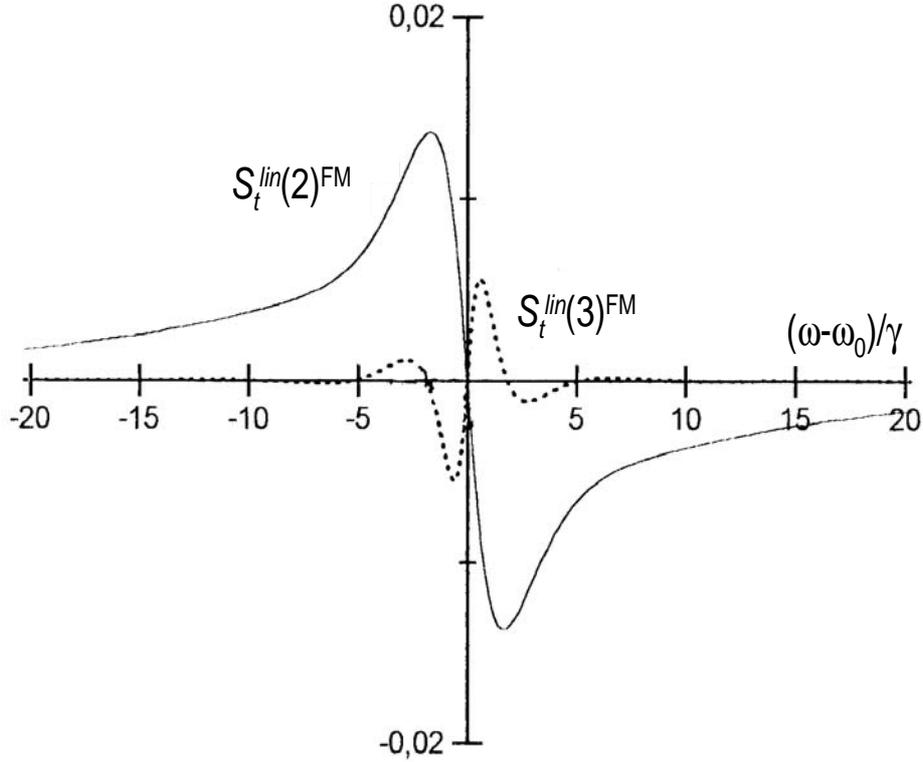


FIG. 1.5 – Spectre en modulation de fréquence de $S_T^{lin}(2)$ en trait plein et $S_T^{lin}(3)$ en pointillés, pour $L/\lambda = 10$ et $\gamma_{eg}/ku = 1/50$.

optiques [Wood 09] [24]. Le faisceau incident induit une polarisation dipolaire dans la vapeur qui change alors localement son indice modifiant la réflectivité à l'interface.

Dans la suite nous reprendrons en partie le développement de Ducloy & Fichet 1991 [23]. Les notations pour les champs électriques incidents et transmis sont les mêmes que dans la section 1.2.2 et nous écrirons le champ réfléchi de la manière suivante :

$$\mathbf{E}_r(z,t) = \frac{1}{2} E_r \exp[-i(\omega t - knz)] + c.c. \quad (1.27)$$

Comme précédemment, nous recherchons le signal induit par la vapeur. Pour cela, nous utiliserons les conditions de continuité des champs électriques et magnétiques à l'interface en $z = 0$:

$$E_{in} + E_r = E_0(0) \quad (1.28)$$

$$ink(E_{in} - E_r) = ikE_0(0) + \frac{\partial E_0}{\partial z}(0) \quad (1.29)$$

d'où l'on déduit avec (1.28) dans (1.29) :

$$E_r = \underbrace{\frac{n-1}{n+1} E_{in}}_{\text{réflexion interface}} - \underbrace{\frac{1}{ik(n+1)} \cdot \frac{\partial E_0}{\partial z} \Big|_{(z=0)}}_{\Delta E_r} \quad (1.30)$$

Ainsi, puisque l'on détecte une variation d'intensité sur le champ réfléchi avec ΔE_r sa partie résonnante, le signal de réflexion sélective s'écrit :

$$S_{RS}^{lin} = |E_r + \Delta E_r|^2 - |E_r|^2 \quad (1.31)$$

puis avec $|\Delta E_r| \ll E_r$ (vapeur diluée), on obtient finalement :

$$S_{RS}^{lin} = 2E_r \Re(\Delta E_r) \quad (1.32)$$

Pour calculer la partie résonnante du champ réfléchi, il faut calculer la dérivée spatiale du champ dans la vapeur. Ainsi, partant de l'équation de Maxwell (1.5), nous obtenons :

$$\frac{\partial^2 E_0(z)}{\partial z^2} + 2ik \frac{\partial E_0}{\partial z}(z) = -\frac{k^2}{\epsilon_0} P_0(z) \quad (1.33)$$

Nous remarquons alors qu'il n'est pas possible dans ce cas d'utiliser l'approximation de l'enveloppe lentement variable⁶. En effet, la réponse de la polarisation au niveau de la première fenêtre provient de l'ensemble des dipôles induits par le faisceau incident sur une extension spatiale nettement supérieure à la longueur d'onde. Nous pouvons écrire (1.33) de manière équivalente :

$$\frac{\partial}{\partial z} \left(\exp(2ikz) \frac{\partial E_0(z)}{\partial z} \right) = -\frac{k^2}{\epsilon_0} P_0(z) \exp(2ikz) \quad (1.34)$$

et dont la solution générale s'écrit comme :

$$\frac{\partial E_0}{\partial z}(z) = \frac{\partial E_0}{\partial z}(z_0) \exp(-2ikz) - \frac{k^2}{\epsilon_0} \exp(-2ikz) \int_{z_0}^z P_0(z') \exp(2ikz') dz' \quad (1.35)$$

Les conditions aux limites du milieu imposent que lorsque $z_0 \rightarrow +\infty$ (cellule en volume), le champ E_0 et sa dérivée spatiale tendent vers 0 ($E_0 \rightarrow 0$ et $\partial E_0/\partial z \rightarrow 0$). Ainsi, la partie résonnante ΔE_r s'écrit :

$$\Delta E_r(\omega) = \frac{ik}{(n+1)\epsilon_0} \int_0^{+\infty} P_0(z) \exp(2ikz) dz \quad (1.36)$$

6. La dérivée seconde du champ est négligeable devant sa dérivée première.

qui définit complètement le signal de réflexion sélective.

Cette expression fait apparaître le terme oscillant $\exp(2ikz)$. Il nous montre que les atomes situés à une distance comprise entre la surface et $L = \lambda/4\pi$ sont ceux qui contribuent principalement au signal de réflexion sélective [Ducloy91] [23]. C'est grâce à cette propriété que des interactions van der Waals atome-surface ont été mises à jour [Failache 99] [9]. Rappelons que dans ce chapitre nous chercherons à étudier simplement les effets optiques sur la vapeur et que nous ne tiendrons pas compte de ces interactions.

1.2.3.2 Calcul du signal de réflexion sélective.

Le calcul de la polarisation à proprement parler est exactement le même que précédemment. Ainsi avec (1.20) dans (1.36) puis dans (1.32), nous obtenons l'expression suivante pour la réflexion sélective⁷:

$$S_{RS}^{lin} = \frac{2N\mu_{eg}^2 E_{in} E_r}{\hbar(n+1)\epsilon_0} \int_0^{+\infty} W(v_z) \underbrace{\frac{\omega - \omega_0 + kv_z}{\gamma_{eg}^2 + (\omega - \omega_0 + kv_z)^2}}_{\mathcal{L}(\omega)} dv_z \quad (1.37)$$

Dans la suite, nous nous placerons dans le cas où la largeur Doppler est très grande devant γ_{eg} et la distribution $W(v_z)$ est très large par rapport à la *Lorentzienne* dispersive $\mathcal{L}(\omega)$ de largeur γ_{eg} . Ainsi, nous pouvons considérer la distribution $W(v_z)$ constante près de $\omega = \omega_0$, à la fréquence où la fonction $\mathcal{L}(\omega)$ est non négligeable. Le signal peut alors être approché par [Vartanyan94] [25]:

$$S_{RS}^{lin}(\omega) \propto W(0) \left[Cte - \frac{1}{2} \text{Ln} \left[\frac{(\omega - \omega_0)^2 + (\gamma_{eg}/2)^2}{(ku)^2} \right] \right] \quad (1.38)$$

$|\omega - \omega_0| \ll ku$

avec $Cte \approx -0.2885$.

Cette équation (1.38) met à jour clairement l'aspect logarithmique de la réflexion sélective et la formule (1.37) nous montre que toutes les vitesses contribuent au signal avec un poids $\approx 1/v_z$ pour les vitesses importantes. La figure 1.6 montre le spectre en réflexion sélective et sa dérivée. On remarque l'aspect triangulaire de la courbe proche du pic ainsi que les ailes *Lorentziennes*.

7. La contribution des atomes avec $v_z < 0$ est identique que celle des atomes avec $v_z > 0$.

Par ailleurs, la largeur du spectre croît rapidement en fonction de l'épaisseur : à mi-hauteur (de la partie positive du spectre) elle est de $(\gamma_{eg}ku)^{1/2}$ puis de $\gamma_{eg}^{1/4}(ku)^{3/4}$ au quart de hauteur. Il s'agit d'une convolution avec une demi-maxwellienne.

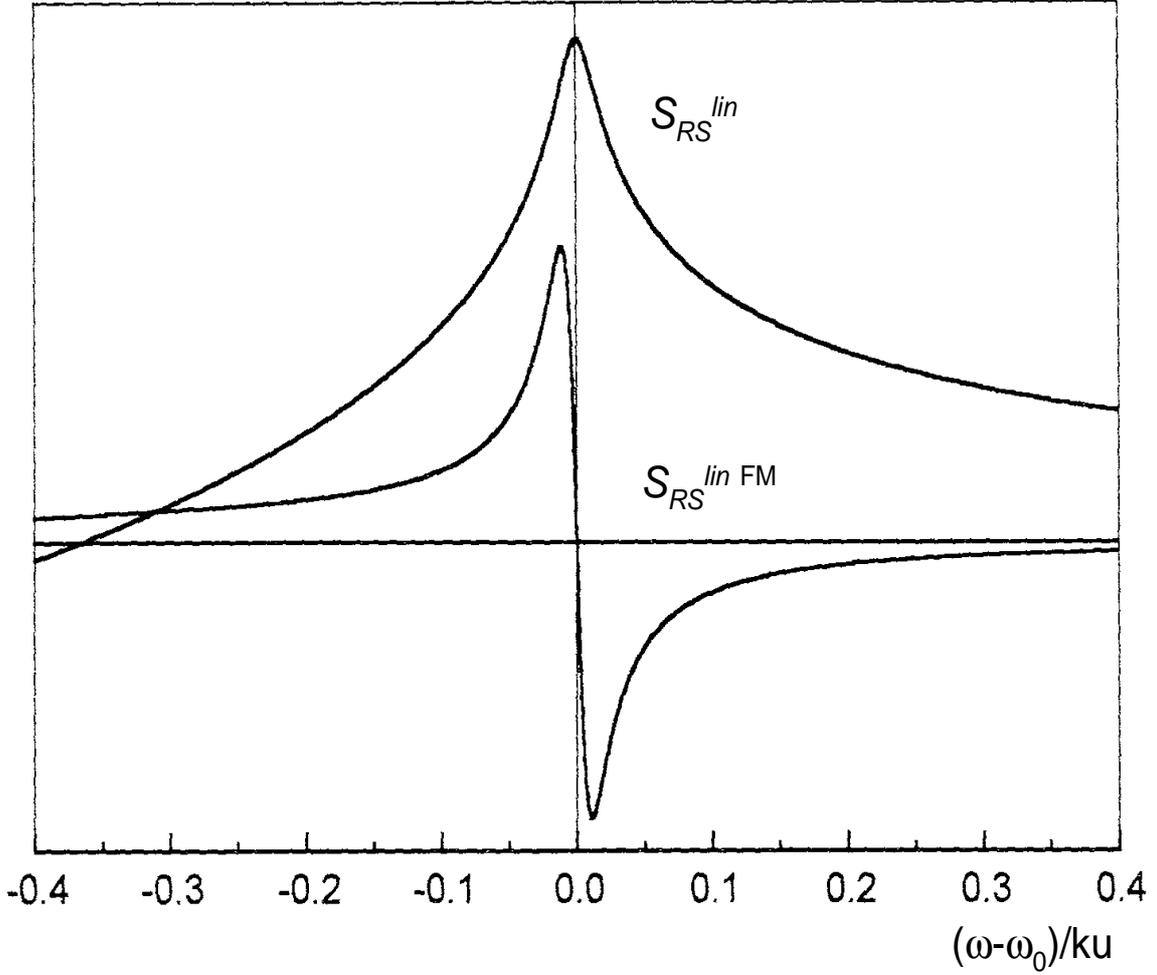


FIG. 1.6 – Signal de réflexion sélective pour $\gamma_{eg}/ku = 0.01$ et sa dérivée.

Il est possible de généraliser ce résultat pour une cellule d'épaisseur quelconque L en repartant de (1.30) [Zambon97] [19].

$$S_{RS}^{lin} = \frac{2E_r N \mu_{eg}^2 E_{in}}{\hbar(n+1)\epsilon_0} \Re \int_{-\infty}^{+\infty} W(v_z) dv_z \left[\frac{1}{2i} \left[\frac{1}{\Lambda_{\mp}} - \frac{\exp(2ikL)}{\Lambda_{\pm}} \right] - \frac{k|v_z|}{\Lambda_+ \Lambda_-} \exp\left(-\frac{\Lambda_{\mp} L}{|v_z|}\right) \right] \quad (1.39)$$

avec

$$\Lambda_{\pm} = \gamma_{eg} - i(\omega - \omega_0) \pm ikv_z \quad (1.40)$$

suivant $v_z > 0$ ou $v_z < 0$.

1.2.3.3 La dérivation en fréquence du signal de réflexion sélective

Le résultat du calcul de la dérivée de la réflexion sélective (1.37) par rapport à ω dans les mêmes conditions de grandes largeurs Doppler que précédemment ($\gamma_{eg} \ll ku$) s'écrit comme :

$$\frac{\partial S_{RS}^{lin}}{\partial \omega} \propto W(0^+) \frac{\omega - \omega_0}{\gamma_{eg}^2 + (\omega - \omega_0)^2} \quad (1.41)$$

Ce signal est une fonction *Lorentzienne* dispersive de largeur homogène γ_{eg} donc dénuée de tout effet Doppler. L'opération de dérivation permet de sélectionner la classe de vitesse des atomes de vitesses faibles, c'est-à-dire pratiquement en vol parallèle, qui sont les seuls à fournir une réponse au signal. De plus, le fond Doppler est négligeable devant le signal. Sur la figure 1.6, la dérivée est de très faible largeur devant sa primitive (le signal direct).

Il est à noter que toutes ces analyses ont aussi été faites pour un angle d'incidence oblique [Failache thèse] [37]. Le résultat de cette étude nous apprend qu'un angle d'incidence ne change pas fondamentalement les formes de raies mais induit un élargissement de l'ordre de la largeur $ku \sin \theta$ avec θ l'angle d'incidence. Ce résultat est très rassurant quant au petit angle que nous allons introduire dans nos expériences.

1.3 "Nouvelle" approche générale des cellules ultra minces

1.3.1 Réflexion et transmission d'un Fabry-Perot mince rempli d'un gaz dilué.

Dans cette partie, nous allons considérer une cellule constituée de deux fenêtres parallèles, identiques d'indice n et remplie d'une vapeur diluée. A la différence de la section

1.2, nous prendrons en compte les réflexions multiples entre les faces internes des fenêtres et nous considérerons la cellule comme un Fabry-Perot.

Par la suite, nous reprendrons en partie le développement de [Dutier 03] [26], présenté en annexe A. Comme précédemment, le milieu est excité sous incidence normale par un champ incident $\mathbf{E}_{in}(z,t)$ se propageant dans le sens positif à travers la première fenêtre d'indice n . Le champ transmis $\mathbf{E}_t(z,t)$, au travers de la seconde fenêtre de même indice n que la première, s'écrit :

$$\mathbf{E}_t(z,t) = \frac{1}{2} E_t \exp[-i(\omega t - knz + \varphi)] + c.c. \quad (1.42)$$

avec $\varphi = k(n-1)L$. Le champ réfléchi $E_r(z,t)$ est défini de la même manière que précédemment.

Nous devons par la suite calculer les champs induits de façon résonnante dans la vapeur E_t'' et E_r'' avec :

E_t'' : amplitude du champ **résonnant transmis**

E_r'' : amplitude du champ **résonnant réfléchi**

et

$$E_t'' = E_t - E_t' \quad (1.43)$$

$$E_r'' = E_r - E_r' \quad (1.44)$$

avec

E_t' : amplitude du champ transmis dans un **Fabry-Perot vide** défini plus bas en (1.55)

E_r' : amplitude du champ réfléchi dans un **Fabry-Perot vide** défini plus bas en (1.56).

Afin de trouver les contributions résonnantes, nous utilisons les deux équations de continuité pour le champ électromagnétique à chacune des interfaces complétées par les équations de Maxwell de propagation au travers d'un milieu résonnant. Nous décrivons le champ \mathbf{E}_0 et la polarisation \mathbf{P}_0 à l'intérieur du milieu atomique par :

$$\mathbf{E}_0(z,t) = \frac{1}{2} E_0(z) \exp[-i(\omega t - kz)] + c.c. \quad (1.45)$$

$$\mathbf{P}_0(z,t) = \frac{1}{2} P_0(z) \exp[-i(\omega t - kz)] + c.c. \quad (1.46)$$

où les amplitudes E_0 et P_0 sont fonction de z .

Les équations de continuité donnent⁸,

en $z = 0$:

$$E_{in} + E_r = E_0(0) \quad (1.47)$$

$$ink(E_{in} - E_r) = ikE_0(0) + \frac{\partial E_0}{\partial z}(0) \quad (1.48)$$

en $z = L$:

$$E_0(L) = E_t \quad (1.49)$$

$$\left[ikE_0(L) + \frac{\partial E_0}{\partial z}(L) \right] = inkE_t \quad (1.50)$$

Puis, nous écrivons les deux relations entre E_0 et P_0 , calculées à partir de (1.5) et déjà écrites en (1.33) et (1.34), où comme précédemment pour la réflexion sélective, nous n'utiliserons pas l'approximation de l'enveloppe lentement variable car nous prenons en compte la réflexion. Ainsi, l'intégration de ces équations entre $z = 0$ et $z = L$ permet-elle de résoudre la propagation du champ et entraîne un couplage des équations aux limites (1.47-1.48) et (1.49-1.50):

$$\frac{\partial E_0}{\partial z}(L) - \frac{\partial E_0}{\partial z}(0) + 2ik[E_0(L) - E_0(0)] = 2ikI_f \quad (1.51)$$

$$\frac{\partial E_0}{\partial z}(L) \exp(2ikL) - \frac{\partial E_0}{\partial z}(0) = 2ikI_b \quad (1.52)$$

où nous avons défini les intégrales vers l'avant I_f (forward) et vers l'arrière I_b (backward) que l'on retrouve en partie dans (1.8) et (1.36):

$$I_f = \frac{ik}{2\epsilon_0} \int_0^L P_0(z) dv \quad (1.53)$$

$$I_b = \frac{ik}{2\epsilon_0} \int_0^L P_0(z) \exp(2ikz) dv \quad (1.54)$$

En effet, les intégrales I_f et I_b sont associées respectivement avec la spectroscopie en transmission et la réflexion sélective dans la limite des grandes cellules ($L \rightarrow \infty$) (cf. section 1.2). La solution du système linéaire à six équations (1.46-49) et (1.50-51), fonction

8. en $z = 0$ il s'agit des équations (1.28) et (1.29) déjà écrites précédemment.

de E_t et E_r , découle simplement des solutions du Fabry-Perot vide E'_t et E'_r (obtenue pour $P_0 = 0$ soit $I_f = I_b = 0$):

$$E'_t = t_{02} t_{10} \frac{E_{in}}{F} \quad (1.55)$$

$$E'_r = r [1 - \exp(2ikL)] \frac{E_{in}}{F} \quad (1.56)$$

et des contributions résonnantes E''_t et E''_r :

$$E''_t = t_{02} \frac{(I_f - rI_b)}{F} \quad (1.57)$$

$$E''_r = t_{01} \frac{[I_b - rI_f \exp(2ikL)]}{F} \quad (1.58)$$

avec

$$r = \frac{n-1}{n+1}; \quad t_{10} = \frac{2n}{n+1}; \quad t_{01} = t_{02} = \frac{2}{n+1}; \quad F = 1 - r^2 \exp(2ikL) \quad (1.59)$$

La principale différence entre cette approche (Fabry-Perot) et celle de la section 1.2 est résumée dans les équations (1.56-57) pour les champs résonnants transmis et réfléchi. Ce qui apparaît, c'est que l'intégrale de retour I_b ne peut pas être négligée dans une détection en transmission, et cela même s'il y avait un film anti-reflet sur la seconde fenêtre. Cela signifierait alors, en distinguant l'indice de la première et de la deuxième fenêtre par n_1 et n_2 , que $n_2 \rightarrow 1$, soit $r_2 \rightarrow 0$ pour le coefficient de réflexion de la deuxième fenêtre⁹. Par ailleurs, la contribution I_b s'annulerait uniquement pour un traitement anti-reflet sur la première fenêtre, qui correspond à une situation dans laquelle aucun signal ne peut être considéré [Chevrollier 01] [27]. De même, pour une expérience en réflexion, la réponse atomique induite par le faisceau transmis est toujours présente¹⁰, bien qu'elle soit modulée avec un facteur de phase.

Aussi, d'un point de vue purement optique, l'effet Fabry-Perot de la cellule est complètement pris en compte par le facteur F . En revanche, il faut tenir compte d'un effet Fabry-Perot sur les réponses atomiques I_f et I_b simplement induit par les oscillations spatiales du champ $E_0(z)$ qui gouvernent la réponse $P_0(z)$.

Il est important de remarquer que dans la seule approche en transmission [Zambon 97] [19], la contribution I_b dans l'équation (1.56) est négligée. En effet, contrairement à

9. Pour plus de détail voir Dutier *et al.* 2003 [26] en annexe A.

10. Elle s'annule uniquement pour $r_2 = 0$.

l'accord de phase intrinsèque de la réponse I_f , la réponse I_b a une longueur de cohérence limitée à une petite épaisseur, comme nous pouvons le voir dans l'équation (1.53) de la réflexion sélective. Partant de (1.57), nous voyons avec l'argument d'accord de phase¹¹ que I_f domine la réponse de I_b pour des cellules relativement longues.

En nous plaçant en vapeur assez diluée pour que l'amplitude du champ résonnant soit bien plus petite que l'amplitude du champ non résonnant ($E_r'' \ll E_r'$ et $E_t'' \ll E_t'$), les contributions résonnantes de transmission et de réflexion, sont respectivement données par :

$$S_T^{lin}(FP) = |E_t|^2 - |E_t'|^2 \quad (1.60)$$

$$S_R^{lin}(FP) = |E_r|^2 - |E_r'|^2 \quad (1.61)$$

Notons que les signaux transmis et réfléchi peuvent être interprétés comme les battements homodynes respectifs entre les champs transmis et réfléchi d'un Fabry-Perot vide (sauf à $\lambda/2$). Puis, en substituant (1.54-57) dans (1.59-60), nous obtenons :

$$S_T^{lin}(FP) = 2t_{10}t_{02}^2 E_{in} \frac{\Re(I_f - rI_b)}{|F|^2} \quad (1.62)$$

$$S_R^{lin}(FP) = 2t_{01} E_{in} \frac{\Re(r[1 - \exp(-2ikL)][I_b - rI_f \exp(2ikL)])}{|F|^2} \quad (1.63)$$

Notons que pour le signal de réflexion $S_R^{lin}(FP)$, la réponse de la réflexion du Fabry-Perot vide s'annule avec une périodicité de $\lambda/2$ lorsque $L = m\lambda/2$ avec m entier ($E_r' = 0$ dans (1.53)) et donc, pour ces épaisseurs particulières, le signal réfléchi consiste uniquement en l'intensité ré-émise par la vapeur. Ainsi, ce signal réfléchi est proportionnel à $|E_r''|^2$ et son amplitude bien plus petite s'écrit comme :

$$S_R = \frac{|I_b - rI_f|^2}{(1+r)^2} \quad (1.64)$$

Le signal de réflexion est uniquement relié avec l'intensité incidente par la polarisation du milieu dans les intégrales I_f et I_b . Nous n'avons cependant jamais observé cet effet car l'extinction totale n'a pas été obtenue dans les cellules.

11. avec une deuxième fenêtre sans traitement anti-reflet.

1.3.2 Vapeur diluée et approximation des milieux optiquement minces

Les expressions précédentes sont utilisables si les intégrales I_f et I_b peuvent être évaluées. Toujours dans la limite des milieux très dilués, ($E_t'' \ll E_t'$) le champ $E_0(z)$ qui définit la polarisation $P_0(z)$ dans le milieu est essentiellement le champ $E_0'(z)$ d'un Fabry-Perot vide avec $E_0''(z)$ le champ résonnant :

$$E_0(z) = E_0'(z) + E_0''(z) \quad (1.65)$$

où $E_0'(z)$ et $E_0''(z)$ sont définis de la même manière que précédemment.

Nous obtenons :

$$E_0'(z) = E_{in} t_{10} \frac{1 - r \exp[-2ik(z-L)]}{F} \quad (1.66)$$

Cette équation (1.65) montre que E_0' présente toujours un noeud sur la seconde fenêtre en $z = L$. Il s'agit d'une caractéristique spécifique d'une cellule mince en vapeur, le contraste entre les noeuds et les pleins augmente jusqu'à $\frac{(1+r)}{(1-r)} = n$, (soit jusqu'à n^2 en intensité), et peut donc être relativement grand. Néanmoins, le Fabry-Perot reste de faible finesse, et cela malgré les minimums locaux de $|E_0'(z)|$. La condition $|E_0''(z)| \ll |E_0'|$ peut donc être vérifiée tout le long de la cellule tant que la condition $E_t'' \ll E_t'$ est respectée.

Cette modulation spatiale a des conséquences importantes sur la structure de la polarisation du dipôle induit dans le milieu, et particulièrement quand elle est combinée avec la réponse spatiale inhomogène. Parmi les exemples retenus, nous devons considérer les processus non linéaires comme l'excitation à deux photons, ou bien des processus excités par un champ pompe auxiliaire. Ainsi, la structure Fabry-Perot du champ affecte les champs pompes et nous en attendons des variations spatiales rapides pour la polarisation induite $P_0(z)$ et le champ correspondant $E_0''(z)$. Aussi, lorsque nous considérons l'influence de l'interaction atome-surface van der Waals à longue portée sur les propriétés optiques de la cellule [Dutier 03] [26], nous prédisons une influence plus faible de la seconde fenêtre que celle attendue sans une analyse de la structure du Fabry-Perot. Inversement, le champ exciteur est maximisé à côté de la première fenêtre quand la longueur de cellule est un multiple pair de $\lambda/4$, et la sensibilité aux interactions atomes-surface peut être augmentée. Il faut rajouter que ces effets relatifs aux inhomogénéités spatiales du champ exciteur

$E'_0(z)$ seront usuellement minorés lorsque le mouvement atomique induit un moyennage spatial de ces effets.

1.3.3 Le régime d'interaction linéaire

Tant que la réponse du milieu résonnant se comporte linéairement par rapport au champ exciteur, et tant que l'approximation du milieu optiquement mince est satisfaite (voir paragraphe 1.2), nous pouvons séparer les deux sens de propagation pour le champ dans le Fabry-Perot vide et la polarisation induite par ce champ :

$$E'_0 = \frac{1}{2}E_0'^+ \exp[-i(\omega t - kz)] + \frac{1}{2}E_0'^- \exp[-i(\omega t + kz)] + c.c. \quad (1.67)$$

$$P_0 = \frac{1}{2}P_0^+(z) \exp[-i(\omega t - kz)] + \frac{1}{2}P_0^-(z) \exp[-i(\omega t + kz)] + c.c. \quad (1.68)$$

où $P_0^+(z)$ et $P_0^-(z)$ sont gouvernés respectivement par les seules amplitudes des champs $E_0'^+$ et $E_0'^-$ dans la vapeur avec (1.65), (1.44) et (1.45) :

$$E_0'^+ = \frac{E_{in}t_{10}}{F} \quad (1.69)$$

$$\begin{aligned} E_0'^- &= -\frac{E_{in}t_{10}r \exp(2ikL)}{F} \\ &= -r \exp(2ikL) E_0'^+ \end{aligned} \quad (1.70)$$

$$P_0(z) = P_0^+(z) + P_0^-(z) \exp(-2ikL) \quad (1.71)$$

De plus, avec des arguments de symétrie entre les deux fenêtres (comme notamment la symétrie de la distribution de vitesse, une interaction de surface identique exercée par les deux fenêtres lorsqu'elles sont de même nature et une homogénéité spatiale¹²), nous écrivons :

$$\frac{P_0^-(L-z)}{E_0'^-} = \frac{P_0^+(z)}{E_0'^+} \quad (1.72)$$

Combinant (1.68-69) avec (1.52-53), nous pouvons exprimer la contribution résonnante des champs transmis et réfléchi (1.56-57) comme une combinaison de la transmission et

12. Ces arguments de symétrie sous-entendent que la cellule soit insensible au sens de propagation du champ.

de la réflexion sélective. De la même manière qu'au paragraphe (1.2.2-3), nous écrivons maintenant I_T^{lin} et I_R^{lin} avec la polarisation correspondante :

$$I_T^{lin} = \frac{ik}{2\epsilon_0} \int_0^L P_0^+(z) dz \quad (1.73)$$

$$I_R^{lin} = \frac{ik}{2\epsilon_0} \int_0^L P_0^+(z) \exp(2ikz) dz \quad (1.74)$$

Par ailleurs, les équations (1.52-53) peuvent être ré-écrites avec (1.69-73) :

$$I_f = I_T^{lin} - r I_R^{lin} \quad (1.75)$$

$$I_b = I_R^{lin} - r \exp(2ikL) I_T^{lin} \quad (1.76)$$

Et pour finir, la transmission et la réflexion en intensité dans une cellule mince s'écrivent à partir de (1.56-57) :

$$\begin{aligned} I_T &= I_f - r I_b \\ &= [1 + r^2 \exp(2ikL)] I_T^{lin} - 2r I_R^{lin} \end{aligned} \quad (1.77)$$

$$\begin{aligned} I_R &= I_b - r I_f \exp(2ikL) \\ &= [1 + r^2 \exp(2ikL)] I_R^{lin} - 2r \exp(2ikL) I_T^{lin} \end{aligned} \quad (1.78)$$

Après toutes ces simplifications, nous voyons ici que les équations (1.76-77) sont le résultat d'une combinaison interférométrique des réponses et des formes de raies en transmission et en réflexion.

Dans la partie suivante, ces résultats seront illustrés dans le cas élémentaire d'un système atomique à deux niveaux sensibles à l'élargissement Doppler.

1.3.4 Milieu dilué à deux niveaux en régime linéaire

En reprenant les calculs précédents et en prenant en compte la modulation spatiale du champ ainsi que les réflexions multiples, nous calculons les formes suivantes de l'intégration spatiale de la réponse atomique transitoire :

$$I_T^{lin} = C \int_{-\infty}^{+\infty} W(v_z) g(\omega - \omega_0, v_z, L) dv_z \quad (1.79)$$

$$I_R^{lin} = C \int_{-\infty}^{+\infty} W(v_z) h(\omega - \omega_0, v_z, L) dv_z \quad (1.80)$$

avec

$$g(\omega - \omega_0, v_z, L) = -\frac{kL}{\Lambda_+} + \frac{k|v_z|}{\Lambda_+^2} \left[1 - \exp\left(-\frac{\Lambda_+ L}{|v_z|}\right) \right] \quad (1.81)$$

$$h(\omega - \omega_0, v_z, L) = h_{\pm}(\omega - \omega_0, v_z, L) \quad (1.82)$$

$$= \frac{1}{2i} \left[\frac{1}{\Lambda_{\mp}} - \frac{\exp(2ikL)}{\Lambda_{\pm}} \right] - \frac{k|v_z|}{\Lambda_+ \Lambda_-} \exp\left(-\frac{\Lambda_{\mp} L}{|v_z|}\right) \quad (1.83)$$

et

$$\Lambda_{\pm} = \gamma_{eg} - i(\omega - \omega_0) \pm ikv_z; \quad C = \frac{N\mu_{eg}^2 t_{10} E_{in}}{4\hbar F \epsilon_0} \quad (1.84)$$

avec $h_{\pm}(v_z)$ choisi respectivement pour $v_z > 0$ et $v_z < 0$ dans (1.82).

Au coefficient multiplicateur du Fabry-Perot près, nous retrouvons respectivement dans (1.78) et (1.79), les réponses (1.21) et (1.39) de la transmission et de réflexion en cellule mince déjà étudiées dans les paragraphes (1.2.2) et (1.2.3) correspondants.

La figure 1.7 illustre les prédictions théoriques des spectres en transmission (1.7-a,b) et en réflexion (1.7-c,d) déterminées en appliquant (1.78-79) dans (1.76-77) et en les reportant dans (1.61-62) qui correspondent au cas d'une cellule réaliste ultra-mince ($r = 0.29$ pour des fenêtres en YAG). Comme nous l'avons vu précédemment avec les homologues de (1.78-79), le spectre exhibe clairement des composantes sub-Doppler reliées à la contribution croissante des atomes subissant un grand temps d'interaction. Les spectres montrent une structure sub-Doppler spécialement marquée lorsque l'épaisseur est de $\lambda/2, 3\lambda/2, \dots$. Cet accroissement de la structure sub-Doppler est une propriété de la réponse cohérente transitoire de l'interaction construite entre les fenêtres [Romer 55] [22] et discuté dans la section 1.2. Nous noterons également que le spectre en transmission n'est plus un simple spectre d'absorption, ni même un spectre symétrique seulement relié aux propriétés de l'absorption¹³. Ce spectre en transmission inclut plutôt une contribution dispersive reliée avec le mélange entre les formes spectrales d'absorption et de réflexion sélective, données par $I_T = I_T^{lin} - rI_R^{lin}$. En ce qui concerne le spectre en réflexion, nous noterons que les propriétés familières de dispersion de la réflexion sélective dans une longue cellule ont disparu.

13. comme prédit lorsque la réflexion interne sur la première fenêtre est négligée (i.e. $r_1 = 0$) [Vartanyan 95, Zambon 97] [28, 19].

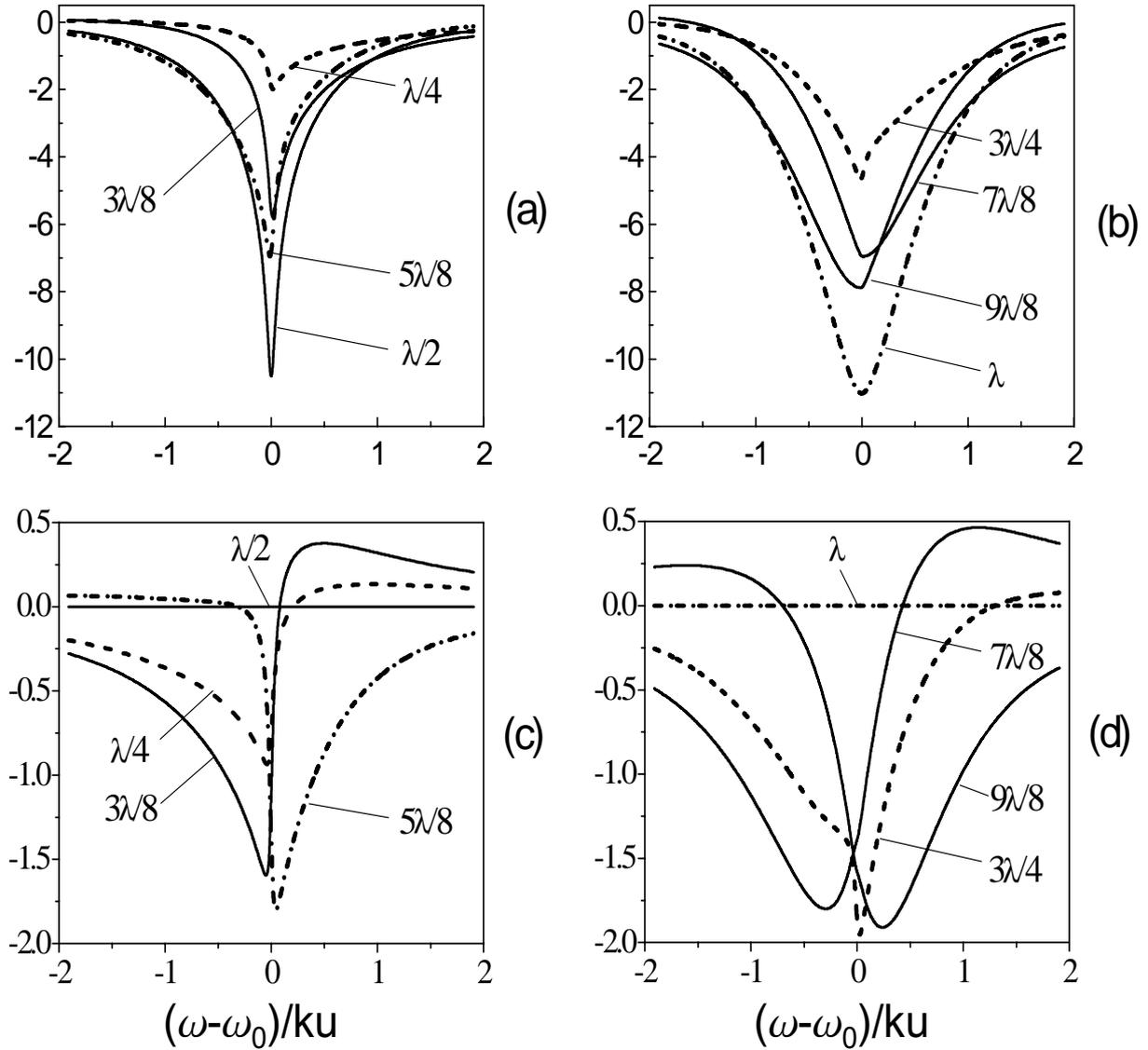


FIG. 1.7 – Spectres en transmission (a-b) et en réflexion (c-d) pour différentes épaisseurs avec $\gamma_{eg}/ku = 0.025$.

Avec un traitement anti-reflet sur la fenêtre de sortie (i.e. $r_2 = 0$), les spectres en réflexion, dépendant seulement du terme $I_R = I_R^{lin}$, reproduisent ceux étudiés au paragraphe 1.2.2. Pour une cellule avec des fenêtres identiques, les spectres ne montrent plus aucune symétrie reconnaissable, et les différences avec une cellule traitée anti-reflet deviennent importantes avec l'augmentation de la longueur de la cellule, puisque la contri-

bution de "l'absorption" I_T devient relativement grande. Notons encore que le signal de réflexion résonnant pour les épaisseurs de $L = \lambda/2, 3\lambda/2, \dots$ est trop petit pour être observé. De manière similaire, l'accroissement dans le champ transmis prédit dans les ailes lointaines du spectre (*e.g.* aile rouge pour $L = 7\lambda/8$, aile bleue pour $L = 9\lambda/8$) est relié au déplacement de la résonance du Fabry-Perot induit par la dispersion de la vapeur, qui domine dans les ailes de la résonance.

1.3.5 Spectroscopie en modulation de fréquence (FM) avec un système à deux niveaux

Supposant une faible modulation de fréquence, la spectroscopie FM permet d'obtenir la dérivée des spectres en absorption [Briaudeau 99, Ducloy 91] [20, 23]. La forme FM est sans aucun effet Doppler (*c.f.* sections précédentes), et cette approche correspond aussi à une situation expérimentale d'un intérêt majeur, comme l'accroissement de l'amplitude de la structure étroite (voir paragraphe 1.2).

En supposant l'épaisseur de la cellule assez petite ($L \ll u/\gamma_{eg}$), la polarisation FM locale induite après une intégrale sur les vitesses dans la limite Doppler (i.e. $ku \gg \gamma_{eg}$) s'écrit :

$$\frac{dP_0^+}{d\omega}(z) = 2\epsilon_0 C \frac{[\exp(ikL - ikz) - \exp(-ikz)]}{[\gamma - i(\omega - \omega_0)] ku\sqrt{\pi}} \quad (1.85)$$

De cette simple forme *Lorenztienne* de la polarisation FM induite, nous déduisons avec (1.72-73) :

$$\frac{dI_T^{lin}}{d\omega} = -\frac{4iC}{ku\sqrt{\pi}} \frac{\sin^2(kL/2)}{\gamma - i(\omega - \omega_0)} \quad (1.86)$$

$$\frac{dI_R^{lin}}{d\omega} = \frac{dI_T^{lin}}{d\omega} \exp(ikL) \quad (1.87)$$

Et en reportant (1.85-86) dans (1.76-77) qui prennent en compte les effets du Fabry-Perot, nous obtenons :

$$\frac{dI_T}{d\omega} = -\frac{4iC}{ku\sqrt{\pi}} \frac{\sin^2(kL/2)}{\gamma - i(\omega - \omega_0)} [1 - r \exp(ikL)]^2 \quad (1.88)$$

$$\frac{dI_R}{d\omega} = \frac{dI_T}{d\omega} \exp(ikL) \quad (1.89)$$

Il doit être noté que ce résultat général montre que, dans la vapeur, l'amplitude FM qui détermine le signal de transmission est égale en module au signal correspondant en réflexion sélective. Notons aussi que (1.87-88) impliquent une diminution simultanée et périodique du signal FM pour $L = m\lambda$ qui coïncide avec la disparition de la contribution sub-Doppler étroite apparue dans la figure 1.7 pour ces épaisseurs de cellules.

Finalement, les signaux FM respectifs vers l'avant et vers l'arrière sont donnés par les expressions suivantes :

$$\frac{dS_T}{d\omega} = \frac{2(1-r)(1-r^2)E_{in}}{|F|^2} \Re\left(\frac{dI_t}{d\omega}\right) \quad (1.90)$$

$$\frac{dS_R}{d\omega} = -\frac{4(1-r)rE_{in}\sin(kL)}{|F|^2} \Im\left(\frac{dI_t}{d\omega}\right) \quad (1.91)$$

Les spectres de la figure 1.8 proviennent des équations (1.89-90) de la transmission et de la réflexion pour différentes épaisseurs entre $L = \lambda/4$ et $L \approx \lambda$ de la même cellule réaliste utilisée précédemment¹⁴. Soulignons que la technique de modulation de fréquence élimine les ailes Doppler. Pour l'épaisseur de $\lambda/2$ en réflexion, le signal est totalement négligeable à cette échelle. Ces spectres sont calculés pour un petit rapport de γ_{eg}/ku , impliquant que la contribution spectrale qui est croissante avec l'épaisseur reste très faible pour ces variations d'épaisseurs. Ainsi, il est à noter une quasi-antisymétrie entre les spectres aux épaisseurs de $\lambda/4$ et $3\lambda/8$ avec ceux des épaisseurs de $3\lambda/4$ et $5\lambda/8$. De même, les spectres aux épaisseurs de $7\lambda/8$ et $5\lambda/8$ sont pratiquement égaux.

1.4 Conclusion

Les cellules ultra minces, d'épaisseur L de l'ordre de la longueur d'onde optique λ , montrent une grande dépendance vis-à-vis de l'effet Fabry-Perot sur la transmission et la réflexion. De cette dépendance, nous avons distingué l'effet global de l'onde stationnaire de l'effet local des champs entrants et sortants induits par la polarisation dipolaire. Cette analyse approfondie de la réponse optique des cellules ultra minces était nécessaire pour être en mesure, par la suite, de différencier les effets de surfaces des effets propres de la cellule.

14. $r_1 = r_2 = 0.29$ pour une cellule en YAG.

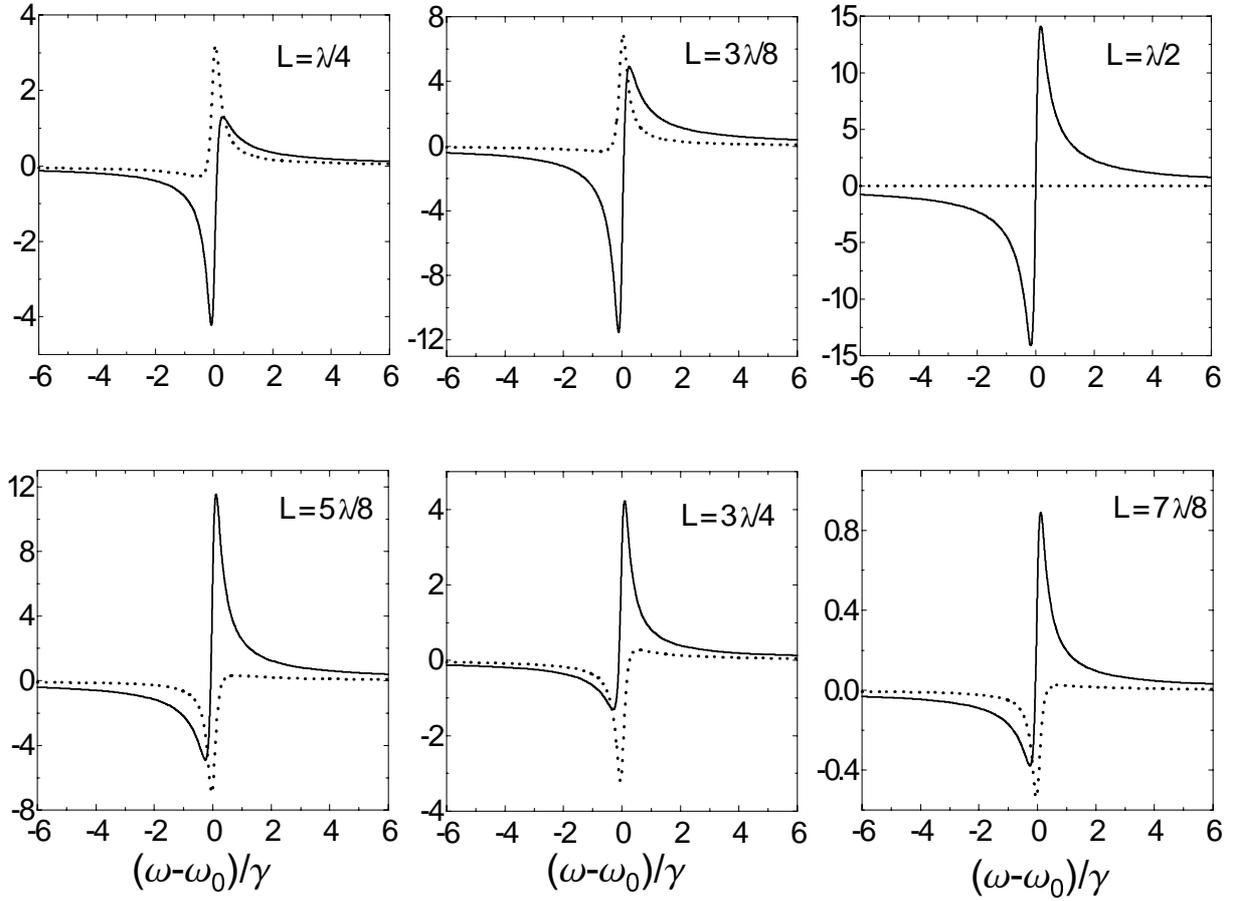


FIG. 1.8 – Dérivée des spectres en transmission (traits pleins) et en réflexion (traits pointillés) pour différentes épaisseurs avec $\gamma_{eg}/ku = 0.025$.

Nous exposerons au troisième chapitre une expérience sur un système à deux niveaux en régime linéaire. Il s'agit de la transition D_1 du Césium dans une cellule ultra mince d'épaisseur comprise entre 30 et 1300 nm.

Chapitre 2

Les cellules ultra minces

2.1 Résumé

Notre groupe est en étroite collaboration avec David Sarkisyan de l'Institut de Recherche Physique d'Ashtarak en Arménie pour sa technique d'assemblage des matériaux qui lui permet de fabriquer des cellules de toutes sortes. Par son savoir-faire il peut assembler aussi bien des cellules de taille centimétrique que sub-micrométrique. Nous détaillerons principalement dans ce chapitre les caractéristiques physiques des cellules ultra minces, puis nous développerons une technique de mesure d'épaisseur atteignant des précisions de quelques *nanomètres*.

2.2 Description et géométries des cellules minces

C'est principalement sur la demande de notre groupe que des cellules ultra minces ont été construites. Auparavant, depuis une dizaine d'années, des cellules commercialisées étaient réalisées pour des épaisseurs nominales comprises entre 10 μm et 1 mm, avec une assez grande imprécision sur l'épaisseur locale. Par exemple, une cellule d'épaisseur nominale vendue 10 μm , mesurait en réalité $14 \pm 4 \mu\text{m}$ d'un bord à l'autre (mesure effectuée par interférogramme [Briaudeau thèse][21]). Il y a alors eu un saut technologique entre ces cellules commercialisées construites par emboîtement de deux cylindres l'un dans l'autre sur lesquels sont collées des fenêtres non parallèles entre elles faute de planéité et une



FIG. 2.1 – Photographie de cellules minces : à gauche fenêtre en YAG (30 à 1300 nm), à droite fenêtre en saphir (200 à 600 nm)

cellule d'épaisseur inférieure à $1 \mu\text{m}$.

C'est en février 2001 que D. Sarkisyan fabriqua la première cellule ultra mince en saphir avec des fenêtres en YAG grâce à une technique de collage du saphir à haute température. La réalisation de cette cellule est née d'une nouvelle conception inspirée d'un prototype de notre groupe, qui s'était révélé inopérant, où les deux fenêtres étaient maintenues espacées par un anneau d'or. Une fois la technique mise au point, il en fabriqua plusieurs autres sur le même modèle en YAG mais aussi en saphir (figure 2.1). Ces cellules sont constituées de fenêtres circulaires d'un diamètre de l'ordre de 20 mm ou bien de forme ovoïde de taille comparable. Les épaisseurs des fenêtres sont assez grandes (2.5 mm) afin d'assurer une excellente qualité de polissage et de planéité. Un dépôt de Al_2O_3 , à environ 5 mm du bord des fenêtres, en forme d'anneau ou en trois plots distincts, permet de maintenir les deux fenêtres espacées l'une de l'autre. La largeur nominale de ce dépôt est comprise entre 300 et 600 nm suivant les cellules. Un trou a été préalablement creusé dans la longueur des fenêtres afin d'y introduire le queusot ou le réservoir à césium (voir figure 2.2). Les

deux fenêtres et le queusot sont alors assemblés puis collés au niveau de leur pourtour [Sarkisyan 01][29].

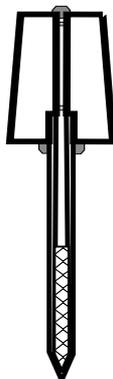


FIG. 2.2 – *Vue en coupe de la cellule*

L'évacuation de l'air dans la cellule (le pompage) est effectuée à des températures de 400°C pendant plusieurs heures afin d'éliminer le plus d'impuretés possible par désorption, celles-ci pouvant provoquer un élargissement collisionnel additionnel. Puis une phase de remplissage permet d'introduire l'élément atomique souhaité dans le queusot. Nous avons demandé un remplissage en Césium afin d'obtenir des résonances avec les modes de surface du YAG ou du saphir (voir chapitre 4-5-6).

Notons ici que par construction, ces cellules minces comportent un petit angle sur leurs fenêtres comme le montre la représentation en coupe de la figure 2.2. Cet angle permet de bien séparer les trois faisceaux réfléchis, tout d'abord pour pouvoir les distinguer les uns des autres, et ensuite pour éviter des interférences dans les cavités formées par les trois plans réfléchissants constitués des deux faces externes et du plan des deux faces internes¹.

Revenons un instant sur la phase de pompage. Lorsque la pression interne diminue, les fenêtres subissent alors la pression atmosphérique sur leurs surfaces et se déforment. C'est ainsi que la distance entre les fenêtres est généralement plus petite au centre et plus grande sur les bords (là où se situent les plots d'espacement). Sur la photographie de la figure 2.1, où l'on observe la cellule en réflexion, les régions très minces (moins de 200 nm) apparaissent plus foncées, puis les franges d'interférences montrent l'agrandissement de

1. Comme discuté au chapitre 1, les deux faces internes de la cellule sont fortement parallèles et très proches l'une de l'autre formant ainsi un unique faisceau réfléchi.

l'interface. Notons que la pression de vapeur interne reste toujours nulle comparativement à la pression atmosphérique (avec 1 Torr au maximum lors d'utilisations à de hautes températures de l'ordre de 300°C). Les changements de pression de vapeur à l'intérieur de la cellule n'altèrent donc pas l'espacement entre les deux fenêtres lors du chauffage. De plus, pour des épaisseurs de fenêtres relativement grandes (2.5 mm), la déformation des matériaux à des températures de l'ordre de 300°C reste négligeable: nous n'avons noté aucune variation d'épaisseur entre les fenêtres, ni au cours de la journée, ni au bout de plusieurs mois d'utilisation. En revanche, D. Sarkisyan a également construit des cellules constituées de fenêtres d'épaisseur beaucoup plus fine (≤ 1 mm). Il a pu noter une variation importante de l'épaisseur (jusqu'à 50%) lors de la variation de la température de la cellule, qu'il explique comme une déformation thermique de ces fenêtres fines. Il a aussi été capable de changer localement l'épaisseur de la cellule, après l'avoir placé dans une enceinte dont la pression est contrôlée.

Il reste à signaler que la colle utilisée devient visqueuse à partir de 400°C: la colle devenant souple permet aux fenêtres de se réajuster entre elles en modifiant ainsi principalement les faibles épaisseurs qui nous intéressent. La topologie interne est alors irrémédiablement changée. La cellule en YAG que nous venons de présenter (figure 2.1) ayant subi un dépôt de Césium sur ses fenêtres², nous l'avons chauffée pendant quelques heures à une température de 500°C afin de permettre l'évaporation du Césium. Néanmoins son épaisseur avait inexorablement changé: elle avait augmenté en moyenne de 200 nm sur l'ensemble de la surface.

2.3 Température et pression de vapeur

La pression de la vapeur de Césium à température ambiante ($T=25^\circ\text{C}$) est de 2.10^{-3} mTorr et l'absorption (en régime linéaire) de l'ordre de 50% pour la transition D_1 du Césium dans une cellule de 3.5 cm de long. Pour les mêmes conditions de température (ambiante), dans la cellule mince, l'absorption est très faible³. La solution consiste alors à augmenter la densité atomique en travaillant à une température de cellule plus élevée.

2. lors d'une mauvaise manipulation dans le four le chauffage

3. Le nombre d'atomes accessibles au champ sonde est par définition beaucoup plus faible.

2.3.1 Cellules centimétriques

De manière générale, pour des cellules usuelles, c'est-à-dire centimétriques, la température du queusot assure une bonne correspondance avec la pression de vapeur. On considère que l'équilibre de la vapeur saturante se produit juste au niveau de l'interface liquide-vapeur dans le queusot, et que l'espace accessible aux atomes est isotrope, c'est-à-dire qu'il n'y a pas de source secondaire d'atomes (comme peuvent l'être les parois très rapprochées des cellules ultra minces). La pression d'une vapeur est donc en principe reliée à la température du queusot et non à celle des fenêtres. Par ailleurs, lors du chauffage d'une cellule, il faut toujours s'assurer que la température des fenêtres est supérieure à celle du queusot afin d'éviter tout problème de condensation de vapeur. La pression de vapeur est reliée à la température du queusot, et pour le Césium, cette relation entre la densité et la température est approximée par la formule suivante [Steck 1998][30]:

$$\log_{10} P = 8.221 - \frac{4006.048}{T} - 0.000601T - 0.196 \cdot \log_{10} T \quad (2.1)$$

avec P la pression en Torr et T la température du réservoir en Kelvin. La densité n de la vapeur atomique s'écrit

$$n = \frac{P}{RT} \quad (2.2)$$

avec $R = 62.363$ L.Torr/mol/K, n la densité en mol/L, P la pression en Torr et T la température en Kelvin. La pression et la densité en fonction de la température sont reportées dans les figures 2.3 en échelle *Log*.

2.3.2 La cellule ultra mince dans son four

Le système de chauffage que nous utilisons est celui proposé par l'équipe Arménienne. Il est constitué d'une partie chauffante isolée thermiquement et d'un support pour le queusot directement à l'air libre sous la partie chauffante, pour que la cellule puisse être positionnée verticalement. La cellule est accessible uniquement par quatre trous de 1.5 cm de diamètre dans la partie chauffante, positionnés à 90° les uns des autres. La configuration géométrique de la partie chauffante du four permet, dans les conditions normales d'utilisation, de s'assurer que le queusot est plus froid que les fenêtres afin d'éviter toute condensation. L'élévation de température de la cellule se fait par contact

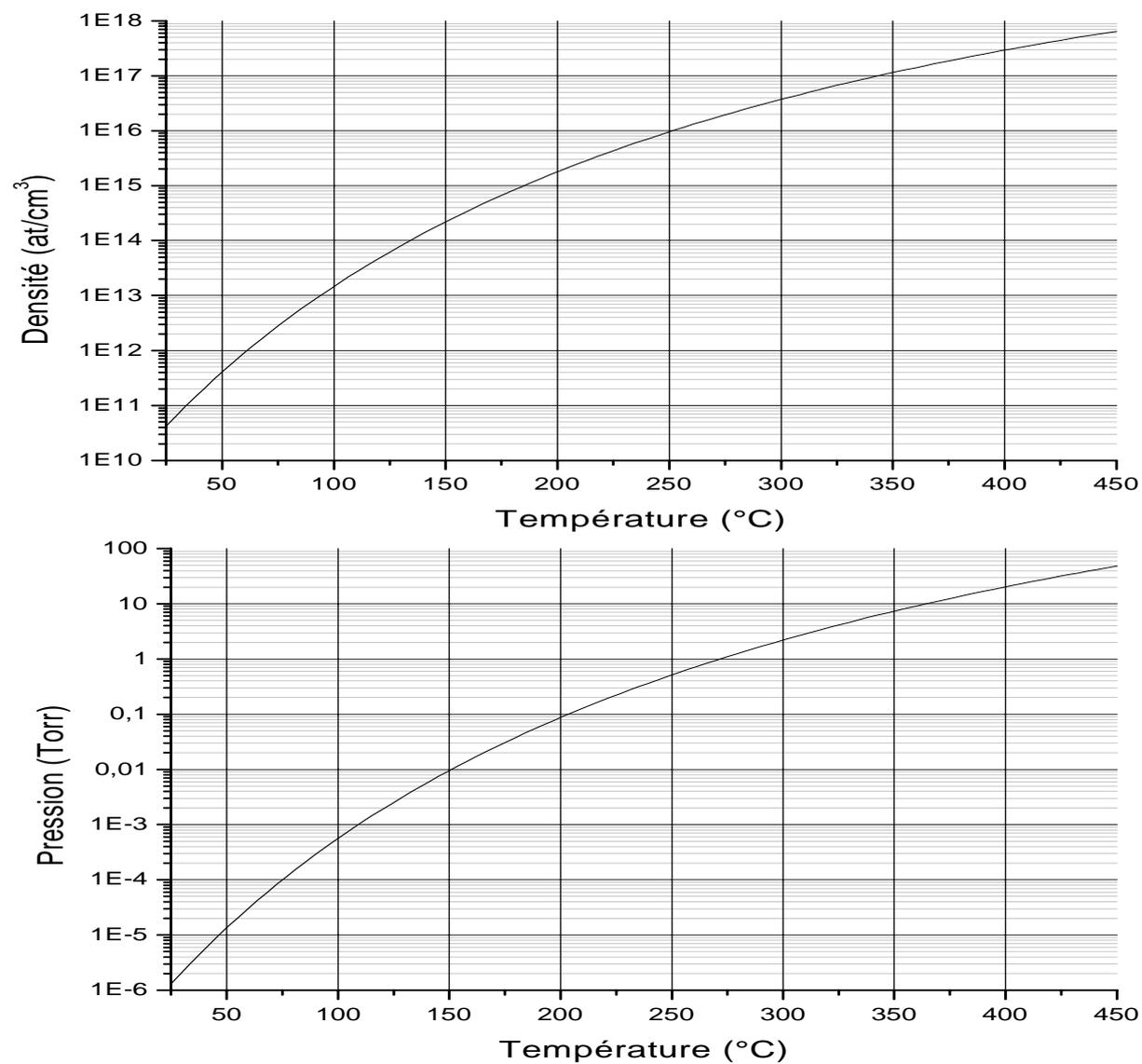


FIG. 2.3 – Densité et pression de Césium en fonction de la température d'après l'expression de Steck [30]

de l'air chaud emprisonné dans le four, puis par conduction des fenêtres vers le queusot. La température du queusot contrôle essentiellement la pression de la vapeur, et deux fils chauffants sont placés, l'un au sommet du four et l'autre très proche du queusot, afin de permettre la modification du rapport de puissance fournie entre le haut et le bas du four

et pour modifier ainsi la différence de température entre le queusot et les fenêtres. Ces fils chauffants⁴ sont connectés à des alimentations stabilisées. La température est mesurée directement sur le queusot et dans l'air du four au niveau des fenêtres par des sondes en Chrome Alumel assurant une précision de quelques degrés sur la mesure. La température de la pièce est elle-même climatisée afin d'éviter des écarts journaliers allant jusqu'à plusieurs degrés dans la cellule. Rappelons que pour le Césium, pour des températures avoisinants 150°C, la pression augmente d'un ordre de grandeur environ tous les 50 degrés (*cf.* figure 2.3).



FIG. 2.4 – *La cellule ultra mince dans son four à quatre fenêtres.*

Sur ce four (figure 2.4), il n'y a pas de fenêtre transparente au niveau des trous dans l'axe principal, évitant ainsi tout problème de réflexion supplémentaire. La cel-

4. Les fils sont doublés par construction pour éliminer au mieux le champ magnétique.

lule est maintenue au niveau du queusot par un bras articulé qui permet de positionner précisément le plan des fenêtres dans l'orientation souhaitée.

2.3.3 Discussion

L'absorption d'une cellule de 3.5 cm à 25°C est de 50%. Il est possible d'extrapoler la pression à partir d'une longueur de cellule connue tant que l'on se place en régime linéaire^{5,6}. Puis avec la formule (2.1), nous calculons la température correspondante à cette pression. Cette estimation nous a montré que la température au niveau des fenêtres de la cellule correspondait mieux avec la température de la vapeur qu'avec celle du queusot, contrairement aux cellules "centimétriques". Nous pouvons alors émettre l'hypothèse d'une source secondaire d'atomes au niveau des fenêtres augmentant la pression de la vapeur.

Néanmoins, il ne faut pas oublier les effets caractéristiques des formes de raie dans les cellules minces abordées au chapitre 1, et dont nous n'avons pas tenu compte ici. Nous avons vu qu'il est possible, à l'aide d'un spectre complet et en connaissant précisément l'épaisseur (par la technique que nous allons exposer), de déterminer la largeur γ_{eg} et l'amplitude du spectre. Ainsi, avec ces paramètres, nous pouvons remonter, *via* le moment dipolaire (lui aussi connu pour le Césium), à la densité de la vapeur. Une telle mesure *in situ* n'en est encore qu'au stade de projet.

2.4 Mesure de l'épaisseur des cellules ultra minces

2.4.1 Le principe de la mesure d'épaisseur

2.4.1.1 La cellule mince : un Fabry-Perot

Pour connaître la planéité d'une surface transparente, un opticien observe les franges d'interférence entre un étalon parfaitement plan et cette surface, car il s'agit d'une cavité Fabry-Perot. De même, avec les cellules minces commercialisées (de 10 à 100 μm

5. $dI/dz = -\alpha I$ avec I l'intensité lumineuse, α le coefficient d'absorption et z l'épaisseur sondée.

6. Par exemple, pour une épaisseur de cellule de 1 μm à température ambiante, l'absorption est de 2.10^{-5} .

d'épaisseur), il est possible d'observer des franges d'interférence entre les faces internes des fenêtres, ce qui est révélateur d'un petit angle entre ces deux plans. L'existence d'un angle entre les deux faces externes permet d'exclure toutes possibilités d'interférences entre ces deux faces, car les faisceaux réfléchis ne se croisent jamais. Pour les cellules ultra minces, l'épaisseur varie souvent de quelques μm d'un bord à l'autre des fenêtres, laissant alors apparaître plusieurs franges observées en réflexion et en lumière blanche, réparties sur toute la surface. La variation d'épaisseur alors est de l'ordre de⁷ $1.3 \mu\text{m}$ pour une longueur de 2.5 mm et donc un angle interne de l'ordre de 5.10^{-4} rad. Ainsi, par cette méthode, il est possible d'estimer le parallélisme entre les fenêtres de n'importe quelle cellule. Sur la photographie 2.5 prise en réflexion, qui représente les fenêtres de la cellule en YAG en gros plan, nous pouvons compter sur les bords quatre franges en lumière monochromatique à $\lambda = 633 \text{ nm}$, correspondant à une épaisseur de l'ordre de $1 \mu\text{m}$ ($\approx 4 \times \lambda/2$) sur une longueur de 1 mm, soit un angle de 10^{-3} rad dans une région très pentue. De même, dans la région centrale qui est très plate, nous mesurons un angle de 3.10^{-5} rad.

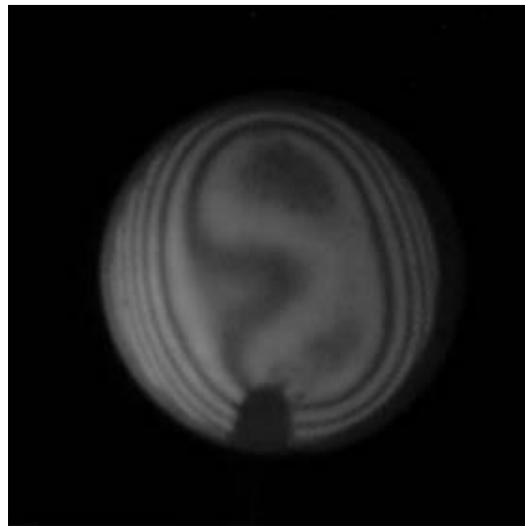


FIG. 2.5 – Photographie de la cellule YAG, lumière laser à 633 nm

7. 1 frange $\approx 300 \text{ nm}$, 4 franges $\approx 1.3 \mu\text{m}$

2.4.1.2 La réflexion comme outil de mesure

Nous utilisons des cellules constituées de fenêtres en YAG ou en saphir, d'indices respectifs $n_{YAG} = 1.82$ et $n_{saphir} = 1.75$ pour les longueurs d'onde optique. Un calcul de l'intensité transmise par la cellule⁸ indique une variation maximale de 30% sur l'intensité en fonction de l'épaisseur. En revanche, si nous considérons la réflexion, l'intensité peut varier de 100% (d'où l'obtention de franges noires). C'est la raison pour laquelle l'information du faisceau réfléchi est bien plus importante que celle du faisceau transmis.

Ainsi, en utilisant la réflexion provenant de l'interface d'un unique faisceau laser (une seule longueur d'onde λ), nous pouvons caractériser l'épaisseur uniquement comme un multiple de $\lambda/2$ tant que nous ne disposons pas d'un point de repère sur la cellule dont nous connaissions l'épaisseur. La détermination de l'épaisseur à l'aide d'une seule longueur d'onde n'est donc pas possible tant que nous nous limitons à la réflexion à incidence normale. En revanche, si nous faisons varier l'angle d'incidence du faisceau continûment en un point de la cellule, la mesure de la réflexion fournirait une nouvelle information⁹ et la mesure serait possible. Cette technique¹⁰ ne convient pas à une mesure locale et précise de l'épaisseur car les fenêtres sont trop épaisses, et au cours de la rotation il est difficile de conserver avec certitude le même point dans la vapeur sans l'utilisation d'un montage complexe.

Afin de pallier ce manque d'information, nous avons employé une mesure avec plusieurs sources lasers, de différentes longueurs d'onde, disponibles dans notre groupe : l'HeNe pour 633 nm, une diode DBR à 894 nm de la raie D_1 du césium et une diode à 1300 nm. Avec la mesure des trois réflexions de ces trois faisceaux, il est possible de déterminer avec précision l'épaisseur sondée. Ceci est vrai en pratique si la précision sur la mesure des réflexions est très grande. Nous allons détailler dans la section suivante le principe de la méthode de mesure ainsi que les limitations de cette mesure d'épaisseur.

8. On utilise par exemple la formule (2.12) explicitée plus loin.

9. La réflexion à un angle quelconque d'un Fabry-Perot.

10. utilisée par le groupe de D. Sarkisyan.

2.4.2 Détermination théorique des intensités transmises et réfléchies

2.4.2.1 Le calcul du Fabry-Perot

L'objectif est de calculer la réflexion provenant de la région nommée 0 sur la figure 2.6¹¹. Pour cela nous prendrons garde à distinguer la réflexion propre du Fabry-Perot défini par le champ E'_{RFP} et la réflexion provenant de ce même Fabry-Perot mais ayant subi une transmission supplémentaire entre la fenêtre 1 et l'air qui est définie par le champ E_{RFP} . Les notations sont reprises sur la figure 2.6 en précisant bien que les angles d'incidence α et α' sont ici agrandis pour plus de lisibilité.

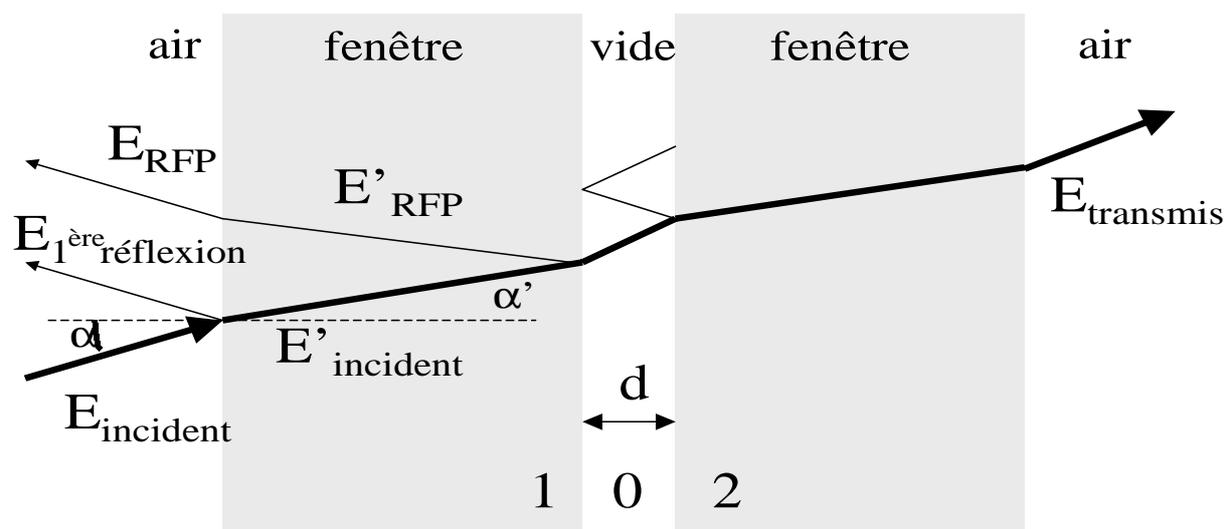


FIG. 2.6 – La cellule et le Fabry-Perot.

L'interféromètre de type Fabry-Perot sera considéré dans un premier temps comme parfait, c'est à dire sans perte par absorption ou diffusion ($R + T = 1$).

Commençons par définir les coefficients de réflexion à incidence normale aux interfaces 1-0 et 0-2 respectivement par r_1 et r_2 (le sens de propagation est défini de a vers b avec la notation $a-b$ où a et b sont les milieux 0,1 ou 2). Ainsi, par symétrie, les coefficients de réflexion à incidence normale aux interfaces 0-1 et 2-0 sont respectivement r_2 et r_1 .

11. Il s'agit de la réflexion du Fabry-Perot constitué du vide et des deux fenêtres.

En considérant le sens de propagation indiqué sur la figure 2.6 (de 1 vers 2), r_1 et r_2 correspondent aux coefficients de réflexion fenêtre-vide et vide-fenêtre :

$$r_1 = \frac{n_{fen\hat{e}tre} - 1}{n_{fen\hat{e}tre} + 1} \quad \text{et} \quad r_2 = \frac{1 - n_{fen\hat{e}tre}}{1 + n_{fen\hat{e}tre}} = -r_1 \quad (2.3)$$

avec $n_{fen\hat{e}tre}$ l'indice de la fenêtre, et nous retrouvons bien $r_1 = -r_2$. De même nous pouvons définir t_1 et t_2 les coefficients de transmission en amplitude entre les interfaces 1-0 et 0-2 comme $t_1^2 + r_1^2 = 1$ et $t_2^2 + r_2^2 = 1$. De même, les coefficients de transmission en amplitude entre les interfaces 2-0 et 0-1 sont t_1 et t_2 . Les coefficients de transmission T et de réflexion en intensité R aux interfaces s'écrivent alors [Born & Wolf][36] :

$$T = t_1 t_2 \quad R = r_1^2 = r_2^2 \quad (2.4)$$

Il nous est maintenant possible d'écrire les coefficients des réflexions multiples du champ incident $E'_{incident}$:

$$r_1, \quad t_1 t_2 r_2 \exp(i\varphi), \quad t_1 t_2 r_2^3 \exp(2i\varphi), \quad \dots, \quad t_1 t_2 r_2^{(2p-3)} \exp((p-1)i\varphi), \quad \dots \quad (2.5)$$

avec la différence de marche φ définie dans le vide et à incidence normale (nous discuterons plus avant de la dépendance angulaire) :

$$\varphi = \frac{4\pi}{\lambda} d \quad (2.6)$$

où d est l'épaisseur entre les fenêtres et λ la longueur d'onde dans le vide.

Ainsi, le champ réfléchi E'_{RFP} superposé avec p réflexions est égal à :

$$E'_{RFP}(p) = \left[r_1 + \left[\frac{1 - r_2^{2(p-1)} \exp((p-1)i\varphi)}{1 - r_2^2 \exp(i\varphi)} \right] t_1 t_2 r_2 \exp(i\varphi) \right] E'_{incident} \quad (2.7)$$

que l'on ré-écrit avec $p \rightarrow +\infty$:

$$E'_{RFP} = -\frac{r_2 [1 - (r_2^2 + t_1 t_2) \exp(i\varphi)]}{1 - r_2^2 \exp(i\varphi)} \cdot E'_{incident} \quad (2.8)$$

Il est maintenant possible d'introduire pour plus de généralité dans la discussion, le coefficient d'absorption en intensité et de diffusion A tel que :

$$T + R + A = 1 \quad (2.9)$$

avec lequel nous obtenons la formulation complète de l'intensité réfléchie du Fabry-Perot:

$$|E'_{RFP}|^2 = \frac{F}{1 + F \sin^2(\varphi/2)} \cdot \left[(1 - A) \sin^2(\varphi/2) + \frac{A^2}{4} \right] |E'_{incident}|^2 \quad (2.10)$$

avec :

$$F = \frac{4R}{(1 - R)^2} \quad (2.11)$$

Lorsque $A = 0$, nous reconnaissons dans l'équation (2.10) les extinctions totales de l'intensité réfléchie pour les épaisseurs de $0, \lambda/2, \lambda$ etc... où il est à noter que l'extinction a bien lieu pour une épaisseur nulle¹². Cette périodicité spatiale de $\lambda/2$ de l'intensité réfléchie est d'une grande utilité par sa grande fréquence pour l'obtention d'une bonne précision sur la mesure de distance.

Dans les cellules ultra minces, nous avons noté des pertes par diffusion et par absorption aux interfaces. Nous les assimilons un instant au coefficient A . Tant que ce coefficient reste petit, la courbe de réponse théorique de l'intensité réfléchie est diminuée en amplitude et décalée d'une petite quantité vers le haut. C'est-à-dire qu'il est impossible d'en obtenir l'extinction totale et que le maximum aux épaisseurs de $\lambda/4, 3\lambda/4$ etc... est plus petit avec absorption que sans. Il s'agit en première approximation d'un changement du coefficient de réflexion (les interfaces sont moins réfléchissantes) additionné d'un déplacement. Dans la suite du développement nous allons considérer le Fabry-Perot comme parfait ($A = 0$) avant d'effectuer un ajustement numérique entre les mesures expérimentales et théoriques explicité plus bas.

Calculons alors la transmission et la réflexion en intensité dans la cellule entière, c'est-à-dire en prenant en compte les interfaces air-1 et 2-air, en incidence normale ($\alpha = 0$) et pour $A = 0$:

- transmission en intensité normalisée au travers de la cellule :

$$T_{cellule} = \frac{|E_{transmis}|^2}{|E_{incident}|^2} = \frac{(1 - R)^2}{1 + F \sin^2(\varphi/2)} \quad (2.12)$$

- première réflexion en intensité normalisée :

$$R_{1^{\text{ère}}\text{réflexion}} = \frac{|E_{1^{\text{ère}}\text{réflexion}}|^2}{|E_{incident}|^2} = R \quad (2.13)$$

12. Lorsqu'il y a contact entre les fenêtres, il n'y a pas de réflexion d'où son extinction.

– réflexion provenant du Fabry-Perot normalisée en intensité :

$$R_{FP} = \frac{|E_{RFP}|^2}{|E_{incident}|^2} = (1 - R)^2 \cdot \frac{F \sin^2(\varphi/2)}{1 + F \sin^2(\varphi/2)} \quad (2.14)$$

Pour s'affranchir des fluctuations de puissance de nos lasers, nous mesurons l'intensité réfléchie à l'interface normalisée par l'intensité réfléchie sur la première fenêtre :

$$\frac{I_{RFP}}{I_{1^{ère}réflexion}} = \frac{R_{FP}}{R_{1^{ère}réflexion}} = \frac{(1 - R)^2}{R} \cdot \frac{F \sin^2(\varphi/2)}{1 + F \sin^2(\varphi/2)} \quad (2.15)$$

Ainsi, avec l'utilisation du même circuit optique pour les deux réflexions mesurées, la mesure s'affranchit de toute perte induite par des séparatrices ou des miroirs et dont il faudrait tenir compte. La figure 2.7 nous montre une représentation graphique de ce résultat pour nos trois longueurs d'onde (633, 894 et 1300 nm) sur une gamme d'épaisseur réduite pour plus de lisibilité. Pour ce calcul, nous avons tenu compte de la variation d'indice de la fenêtre en fonction de la longueur d'onde utilisée, soit pour le YAG : $n = 1.832$ à 633 nm et $n = 1.81$ à 1300 nm. Avant de discuter les limites théoriques et expérimentales de ce résultat (2.15), nous allons l'étudier dans le cas d'un petit angle d'incidence.

2.4.2.2 L'approximation à faible angle d'incidence

a) L'indice de réflexion. L'intensité réfléchie à une interface dépend de l'angle d'incidence α (figure 2.6) et de la polarisation du faisceau incident, selon les coefficients de réflexion de Fresnel. Soit alors l'angle α' tel que $\sin(\alpha) = n \sin(\alpha')$ (figure 2.6). Nous écrirons les coefficients de réflexion en amplitude pour les champs respectivement perpendiculaires et parallèles à la surface $r_{1\perp}$ et $r_{1\parallel}$ comme suit [Born & Wolf][36] :

$$r_{1\perp} = \frac{\sin(\alpha - \alpha')}{\sin(\alpha + \alpha')} ; \quad r_{1\parallel} = \frac{\tan(\alpha - \alpha')}{\tan(\alpha + \alpha')} \quad (2.16)$$

Tant que le faisceau incident reste quasi-normal, au premier ordre, l'équation (2.16) devient (2.3). A titre d'exemple, un écart d'un degré représente une variation maximale de $2 \cdot 10^{-3}$ sur le coefficient de réflexion en intensité R , ce qui est totalement négligeable. Cette variation croît cependant de manière quadratique avec l'augmentation de l'angle d'incidence (premier ordre du *cosinus*). Ainsi, nos approximations deviennent inutilisables pour des angles d'incidence supérieurs à 5 degrés.

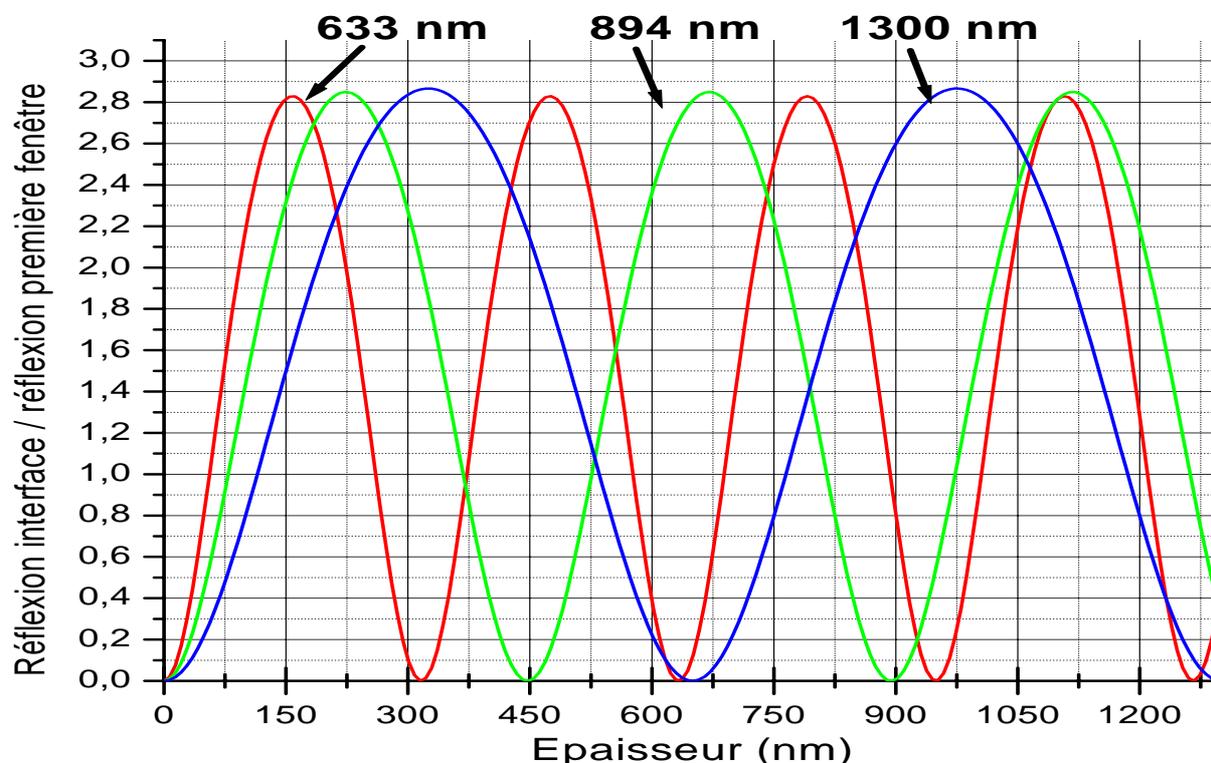


FIG. 2.7 – Valeur théorique du rapport entre l'intensité réfléchie entre les fenêtres et l'intensité réfléchie par la première fenêtre, équation (2.15) pour des fenêtres en YAG.

b) **La différence de marche φ .** L'expression complète de φ s'écrit [Born & Wolf][36] :

$$\varphi = \frac{2\pi}{\lambda} 2d \cos \alpha \quad (2.17)$$

L'angle d'incidence du faisceau intervient en *cosinus* dans la phase φ . Ainsi, un écart d'un degré sur l'angle d'incidence implique une variation relative¹³ de 10^{-7} sur le rapport des intensités réfléchies (2.15) pour des matériaux comme le YAG ou le saphir. Ce petit angle n'introduit donc aucune erreur théorique et il est très utile pour séparer les faisceaux réfléchis du faisceau incident.

En revanche, une déviation du faisceau à la normale introduit un changement de l'épaisseur effectivement mesurée légèrement plus important. Ce changement est en $\cos \alpha$, soit 10^{-4} , et nous le négligerons aussi.

13. Rapport de (2.15) avec (2.17)($\alpha = 1^\circ$) sur (2.15) avec (2.17)($\alpha = 0^\circ$).

2.4.3 Limites et performances expérimentales de la mesure d'épaisseur

2.4.3.1 Les limitations

Nous discutons ici différents types de limitations de la technique de mesure d'épaisseur.

a) La diffusion. Les pertes par diffusion lumineuse ne sont pas les mêmes pour toutes les cellules et dépendent aussi de la zone sondée. Cette différence provient certainement de la qualité du polissage qui introduit plus ou moins de rugosité sur les surfaces. La qualité de ce polissage est délicat à définir en terme optique car $\lambda/10$ dans le visible a peu de sens pour les transitions proche infrarouge. Nous estimons alors que cette rugosité sur les surfaces introduit de la diffusion principalement produite à l'interface pour des pertes d'intensité lumineuse comprises entre 5 et 7 %. Nous notons alors que le rapport entre l'intensité réfléchie à l'interface et l'intensité réfléchie sur la première fenêtre¹⁴ calculé théoriquement est plus grand que celui mesuré expérimentalement aux maximums de réflexion (par exemple aux environs de 210 nm ou de 620 nm pour la longueur d'onde de 894 nm) où il y a jusqu'à 7% d'intensité lumineuse en moins que prévu théoriquement.

Il s'agit alors de tenir compte de cette différence par une "renormalisation" de la théorie sur nos valeurs mesurées, et ce pour chacun des faisceaux utilisés. Rappporter les valeurs théoriques sur les mesures expérimentales par un changement d'échelle se justifie par l'allure pratiquement sinusoïdale des courbes théoriques (2.15). Cette correction n'augmente pas sensiblement nos précisions, mais nos résultats deviennent exploitables (voir l'exemple de mesure au paragraphe suivant). Il faut toutefois signaler qu'une cellule ayant trop de diffusion, comme la première cellule en saphir que nous ayons eue, rend cette technique complètement inopérante et cette correction, ainsi que la mesure, deviennent totalement inefficaces.

b) La fonction d'Airy. Une limitation, d'ordre théorique, s'impose directement par l'allure de la fonction de réflexion du Fabry-Perot (figure 2.7). Aux alentours des maximums et des minimums des réflexions, l'intensité varie très lentement en fonction de

14. Les pertes par diffusion lumineuse sur la première face varient localement suivant la qualité du polissage externe entre 1 et 10% en intensité.

l'épaisseur. En revanche, dans les autres régions, les variations d'intensité sont importantes, assurant une bonne précision sur la mesure de l'épaisseur. C'est ici la justification principale de l'emploi simultané des trois longueurs d'onde : pour une épaisseur donnée, il y a toujours au moins une longueur d'onde qui n'est pas à un extremum. Par exemple, autour de 320 nm, l'information du faisceau 1300 nm n'est pas pertinente alors que les deux autres le sont. Il est aussi à noter que les positions théoriques d'extinction totale, tous les $\lambda/2$ (par exemple 447 nm), sont très facilement localisables à mieux de 5 nm près, grâce à une extinction expérimentale quasi-totale (moyennage des épaisseurs, diffusion) de l'intensité réfléchie.

c) Les effets de moyennage sur l'épaisseur locale. A épaisseur constante, les faisceaux peuvent avoir un grand diamètre sans que la mesure n'en soit affectée. En revanche, lorsque l'épaisseur de la cellule varie rapidement (d'un angle de $3 \cdot 10^{-4}$ rad, soit 1 μm pour 4 mm comme sur les bords de la plupart des cellules), un faisceau de diamètre 100 μm recouvre une gamme de 30 nm autour de l'épaisseur nominale, en considérant une variation linéaire de l'épaisseur de la cellule. Ces 30 nm définissent alors une incertitude autour de l'épaisseur moyenne. En effet, la valeur mesurée est le résultat de la somme sur la gamme d'épaisseur atteinte par le faisceau et dont chaque épaisseur induit sa propre intensité réfléchie différente des autres et de la réflexion globale. Or, la somme des intensités réfléchies localement n'est pas égale à leur moyenne arithmétique et l'épaisseur mesurée est légèrement différente de l'épaisseur moyenne, de quelques nm au maximum (les calculs complets sont présentés en annexe B). Cet effet de moyennage sur l'épaisseur sera négligé lors de l'estimation de l'épaisseur.

2.4.3.2 Le montage expérimental et la mise en oeuvre de la mesure d'épaisseur

a) La méthode expérimentale de la mesure. Expérimentalement, nous devons avoir les trois faisceaux superposés puis focalisés à l'interface afin de réduire la zone sondée pour s'affranchir au mieux du gradient d'épaisseur. Par ailleurs, le principal intérêt de cette technique consiste à utiliser le faisceau sonde de la vapeur comme outil de mesure de l'épaisseur et les deux autres faisceaux doivent être superposés au premier. L'alignement

des faisceaux est alors assuré par deux diaphragmes d'ouverture variable et séparés de 150 cm, garantissant un accord angulaire à mieux que $2 \cdot 10^{-3}$ rad (figure 2.8).

Simultanément, la focalisation par une lentille unique de trois longueurs d'onde différentes ne donne pas les mêmes tailles de faisceaux focalisés et nous devons alors disposer au préalable de trois dimensions distinctes pour chacun des faisceaux. En accord avec la formule suivante applicable aux faisceaux gaussiens :

$$d_{focalisé} = \frac{4\lambda f}{\pi d_{incident}} \quad (2.18)$$

où f est la focale de la lentille, λ la longueur d'onde, $d_{incident}$ le diamètre du faisceau sur la lentille et $d_{focalisé}$ le diamètre du faisceau au foyer (très proche du waist).

Il faut utiliser des diamètres de faisceaux incidents de 1.6 mm pour 1300, 1.1 mm pour 894 et 0.8 mm pour 633 afin d'avoir une focalisation sur $100 \mu\text{m}$ de diamètre avec une lentille de 10 cm. Notons aussi qu'un trop petit diamètre de faisceau de l'ordre de $50 \mu\text{m}$ (pour une focale inférieure à 5 cm) provoque des interférences par recouvrement entre les trois faisceaux réfléchis respectivement sur l'avant de la première face, à l'interface et à l'arrière de la deuxième face. Ces interférences proviennent de l'angle entre les deux surfaces externes qui devient faible par rapport à la divergence des faisceaux¹⁵ et empêche toute mesure précise de l'épaisseur.

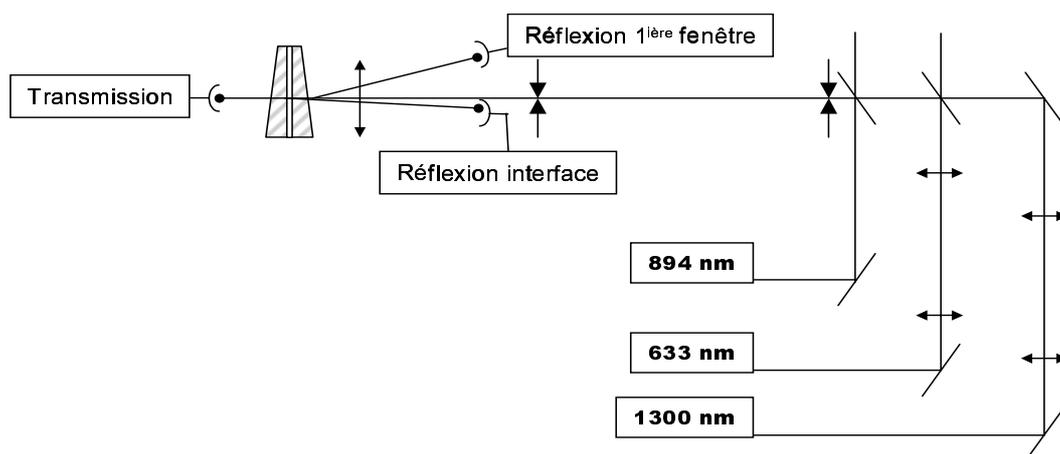


FIG. 2.8 – Montage expérimental de la mesure d'épaisseur

15. Il serait alors possible d'augmenter l'angle d'incidence mais nous ne serions plus dans des conditions propices pour une mesure précise, *c.f.* section précédente.

Lorsqu'un faisceau collimaté arrive sur une cellule, trois faisceaux sont réfléchis respectivement de la première fenêtre, de l'interface et de la deuxième fenêtre. Ces trois faisceaux réfléchis sont séparés angulairement de 1 à 2 degrés. Au milieu se trouve la réflexion de l'interface, le plus intense des deux autres faisceaux provient de la première fenêtre et le moins intense de la deuxième fenêtre (voir figure 2.8 et 2.2). L'angle à la normale se mesure entre le faisceau incident et le faisceau réfléchi provenant de l'interface, nous avons fait en sorte qu'il soit compris entre 1 et 2 degrés conformément à nos approximations théoriques. Nous pouvons alors mesurer l'intensité des faisceaux réfléchis (sans perturber les faisceaux incidents) directement sur deux photodiodes (en silicium ou germanium pour le faisceau à 1300 nm), une pour la première réflexion et l'autre pour la réflexion provenant du Fabry-Perot. Les trois faisceaux étant complètement superposés, leurs réflexions le sont aussi. Elles arrivent donc toutes directement sur les mêmes photodiodes (il faut simplement les remplacer lors des mesures avec le faisceau à 1300 nm).

Comme évoqué au paragraphe 2.3.2, les trous du four permettent de déplacer la position du faisceau (par déplacement du four et donc de la cellule) et ainsi de suivre l'évolution de l'épaisseur "en direct". Ceci permet d'atteindre les différents maximums des trois longueurs d'onde (pour trois épaisseurs différentes) et de renormaliser la courbe théorique. La mesure à proprement parler est alors effectuée pour chaque faisceau tour à tour. Les rapports entre les intensités à l'interface et les intensités de la première réflexion - équation (2.15) - sont ensuite comparés aux calculs théoriques corrigés (renormalisés) qui fournissent la mesure de l'épaisseur.

b) Un exemple de mesure. Le protocole de détermination de l'épaisseur peut être expliqué avec la série de mesures suivante (c.f. figure 2.9).

1. Dans une zone proche de l'épaisseur recherchée, nous mesurons les rapports maximaux $I_{RFP}/I_{1^{ère}réflexion}$ aux différentes longueurs d'onde :

$$(633 \text{ nm}) \rightarrow 2.62 \quad (894 \text{ nm}) \rightarrow 2.67 \quad (1300 \text{ nm}) \rightarrow 2.63$$

2. Nous renormalisons alors les courbes théoriques (c.f. figure 2.9).
3. Mesure des trois rapports d'intensités réfléchies à la position recherchée :

$$(633 \text{ nm}) \rightarrow 2.11 \quad (894 \text{ nm}) \rightarrow 2.67 \quad (1300 \text{ nm}) \rightarrow 2.14$$

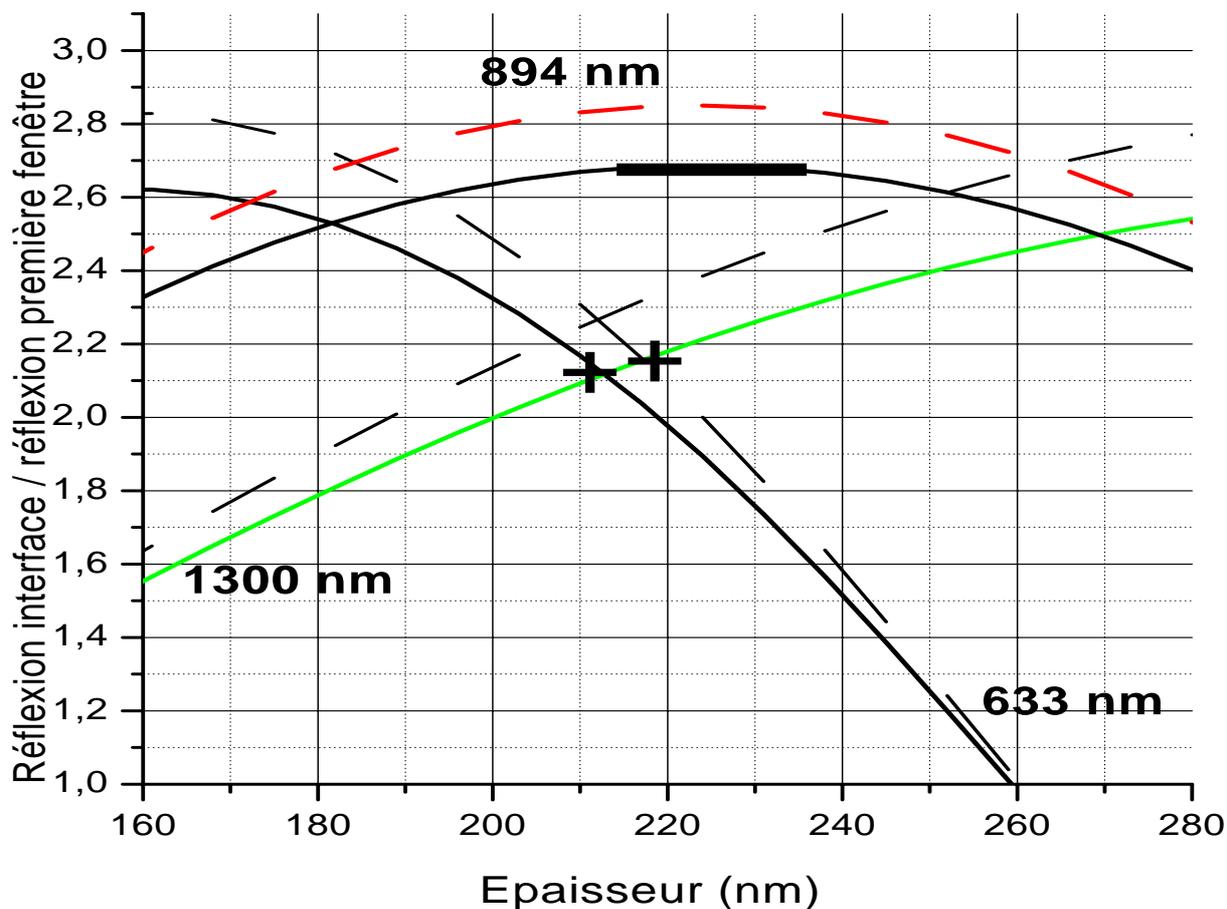


FIG. 2.9 – Traits pointillés : théorie; Trait plein : théorie renormalisée

4. Report de ces valeurs sur la courbe théorique normalisée:

$$(633 \text{ nm}) \rightarrow 211 \pm 2 \text{ nm} \quad (894 \text{ nm}) \rightarrow 224 \pm 6 \text{ nm} \quad (1300 \text{ nm}) \rightarrow 219 \pm 2 \text{ nm}$$

5. L'épaisseur au point de mesure est estimée à $219 \pm 10 \text{ nm}$.

On observe sur la figure 2.9 que la renormalisation ne change pas beaucoup l'épaisseur mesurée lorsque que la courbe est inclinée, ici pour 633 et 1300 nm. Quant à la courbe à 894 nm, elle nécessite cette renormalisation pour éviter les incohérences. Par exemple, la valeur mesurée sur le faisceau à 894 nm correspondrait à une épaisseur éloignée de 40 nm.

2.4.3.3 Cartographie et mesure *in situ*

Afin d'avoir une meilleure appréciation de la topographie des cellules, nous pouvons faire des mesures d'épaisseur point par point afin de reconstituer une carte suivant quelques lignes horizontales et verticales (*c.f.* figure 2.10). Ainsi, nous identifions les vallées, les régions de grandes pentes, les plus petites et plus grandes distances accessibles. Par exemple, la cellule en YAG avait des épaisseurs comprises entre 30 et 1300 nm. Il faut néanmoins préciser qu'une carte fournit uniquement des indications sur des zones limitées. Ainsi, lorsque nous allons sonder la vapeur, nous pourrions choisir la zone en fonction de l'épaisseur voulue mais il sera nécessaire de mesurer avec toute la précision possible l'épaisseur au point effectivement utilisé.

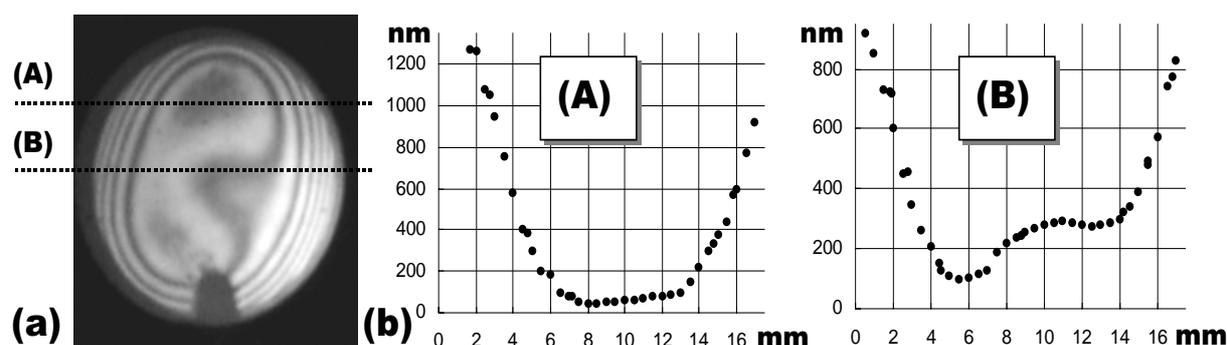


FIG. 2.10 – Cartographie de la cellule en YAG

La précision de la mesure d'épaisseur dépend de la qualité du polissage (de la diffusion) de la cellule et elle varie de 40 nm à 4 nm suivant les cellules et la région sondée. De plus, si l'on veut obtenir une précision très grande - de l'ordre de quelques nanomètres - nous devons nous placer à des positions caractéristiques, comme les minimums.

2.5 Conclusion.

Nous avons montré comment nous pouvons mesurer avec une grande précision l'épaisseur de la cellule. Cette mesure est primordiale pour les expériences et constitue une étape importante de l'analyse spectroscopique, développée au chapitre suivant.

Notons que les nouvelles cellules présentent moins d'épaisseurs accessibles et sont plus plates, par exemple de 300 à 600 nm pour une cellule en saphir. En outre, les faisceaux peuvent être plus grands, ce qui limite les problèmes de saturation optique. De nouvelles géométries de cellules sont en cours de réalisation. Un trou de quelques mm dans l'intérieur des fenêtres a par exemple été rajouté, permettant de faire des mesures simultanées à très faible épaisseur et en réflexion sélective pour la même densité atomique.

Chapitre 3

Spectroscopie en cellule ultra mince

3.1 Introduction

La cellule ultra mince a été conçue à l'origine pour l'étude de l'interaction atome-surface de van der Waals car les atomes sont nécessairement proches des parois. Comme nous le présentons au chapitre 4-5, ces interactions (en $1/z^3$) sont négligées pour des épaisseurs de cellule supérieures à 200 nm. Nous avons posé arbitrairement cette limite par rapport à la sensibilité de nos expériences qui ne nous permettent pas d'obtenir une précision inférieure à 2-3 MHz correspondant aux effets attendus à cette épaisseur. Dans ce chapitre, nous traitons des épaisseurs de cellule comprises entre 200 et 1300 nm. Cette gamme d'épaisseur est accessible dans la première cellule ultra mince de fenêtres en YAG présentée au chapitre 2.

Nous commençons par présenter l'expérience et les conditions expérimentales. Puis nous discutons des résultats et leurs interprétations en utilisant le modèle théorique présenté au chapitre 1.

Une expérience annexe a été réalisée grâce à la faible absorption des cellules ultra minces à hautes températures. Il s'agit de l'observation de l'élargissement et du déplacement des différentes transitions hyperfines de D_1 . Cette expérience a révélé une disparité inattendue suivant ces transitions en comparaisons d'avec les mesures effectuées en réflexion sélective (voir paragraphe 3.5.3).

3.2 Présentation de l'expérience

3.2.1 Objectifs

Une cellule aussi petite n'avait jamais été construite auparavant et il a fallu préalablement s'assurer :

- de son bon fonctionnement,
- de la présence de la vapeur dans l'ensemble de la cellule,
- de l'absence d'impuretés risquant d'élargir les transitions sondées¹

Après que les tests préliminaires aient été effectués et une fois misent au point les mesures d'épaisseur (chapitre 2), nous voulions vérifier plusieurs idées théoriques sur les cellules ultra minces, en particulier le rétrécissement Dicke et la comparaison entre la transmission et la réflexion.

3.2.2 Choix de la raie D_1

Nous avons choisi la transition D_1 (894 nm) du Césium plutôt que la transition D_2 (852 nm) car le niveau $6P_{1/2}$ permet une analyse indépendante de ses deux sous-niveaux hyperfins, séparés de 1.168 GHz entre $F' = 3$ et $F' = 4$, contrairement au niveau $6P_{3/2}$, où la structure hyperfine $F' = 2,3,4,5$ (séparés de 152, 203 et 253 MHz respectivement) est plus étroite et plus petite que l'élargissement Doppler.

Nous avons enregistré simultanément la transmission et la réflexion pour une épaisseur donnée. Les deux composantes hyperfines du sous-niveau excité sont enregistrées en un seul balayage. Un deuxième balayage est nécessaire pour enregistrer le deuxième sous-niveau du fondamental.

1. Le groupe de D. Sarkysian avait en partie étudié ces différents aspects de la cellule mais avec une diode de largeur 30 MHz rendant les mesures d'élargissement délicates.

3.3 Dispositif et conditions expérimentales

3.3.1 Le montage expérimental

3.3.1.1 Le montage dans son ensemble

Commençons par présenter le montage expérimental dans son ensemble ainsi que son fonctionnement global.

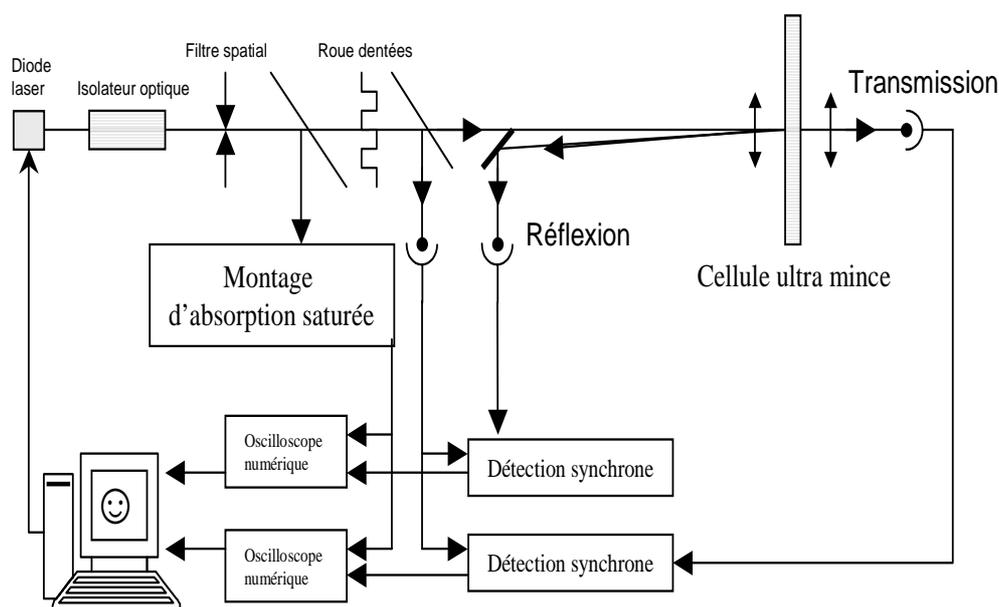


FIG. 3.1 – *Le montage expérimental*

Un ordinateur est relié aux différents instruments de mesure par le système GPIB. Nous avons ainsi connecté deux oscilloscopes numériques et deux détecteurs synchrones numériques², nous permettant d'avoir deux voies d'enregistrement en simultané pour la transmission et la réflexion (voir figure 3.1). Les détecteurs synchrones disposent d'une sortie ajustable en tension que nous avons utilisée pour le pilotage en fréquence du laser. Une référence en fréquence est assurée par un montage d'absorption saturée, et est enregistrée simultanément sur les deuxièmes voies des oscilloscopes numériques. Nous avons aussi enregistré des spectres en modulation de fréquence.

² afin de pouvoir les contrôler par GPIB.

3.3.1.2 La référence d'absorption saturée

Le montage d'absorption saturée de référence est très important car il permet de déterminer la position de la résonance et de définir l'échelle en fréquence. Ce montage permet aussi, par l'enregistrement du spectre Doppler, de nous alerter sur des problèmes relatifs au laser (comme un saut de mode ou une modulation de fréquence non appropriée).

Ce montage est tout à fait standard. Il comporte une cellule de 3.5 cm de long à température ambiante, avec des faisceaux pompe et sonde contrapropageants, d'écart angulaire inférieur au degré, et de diamètre 7 mm pour des intensités respectives de 50 et 20 $\mu\text{W}/\text{cm}^2$. L'absorption Doppler est de 50% et le signal d'absorption saturée de 25% de l'intensité absorbée. Il est à noter ici que la technique de balayage utilisée³ a été testée sur cette référence directement avec le signal de sortie de la photodiode. Ainsi, nous obtenons sur un même spectre l'absorption Doppler et le pic d'absorption saturée. En ayant choisi au préalable le sous-niveau du fondamental souhaité ($F = 3$ ou $F = 4$), le laser permet un balayage autour des deux composantes hyperfines du niveau $6P_{1/2}$ sans saut de mode.

Le montage de référence est aussi utilisé en modulation de fréquence à l'aide d'une détection synchrone. On peut alors utiliser la même technique de détection par moyennage à l'oscilloscope, à condition de sélectionner une constante de temps très inférieure au temps de balayage.

3.3.1.3 Près de la cellule mince

L'optique environnant la cellule mince est principalement constituée de deux lentilles, une de focalisation (focale 90 mm) et une pour recollimater le faisceau transmis, positionnées de part et d'autre du four, de sorte que le film de vapeur soit situé au foyer du télescope. Le diamètre du faisceau focalisé est de 100 μm , et sa longueur de Rayleigh est de 9 mm. Une façon de s'assurer que le foyer du faisceau est bien positionné au niveau de la vapeur consiste par exemple à obtenir que le faisceau réfléchi au niveau de la vapeur soit collimaté après son deuxième passage à travers la première lentille.

3. Il s'agit d'un balayage rapide de la fréquence du laser suivi du moyennage du signal à l'oscilloscope que nous décrivons au paragraphe 3.3.2.3.

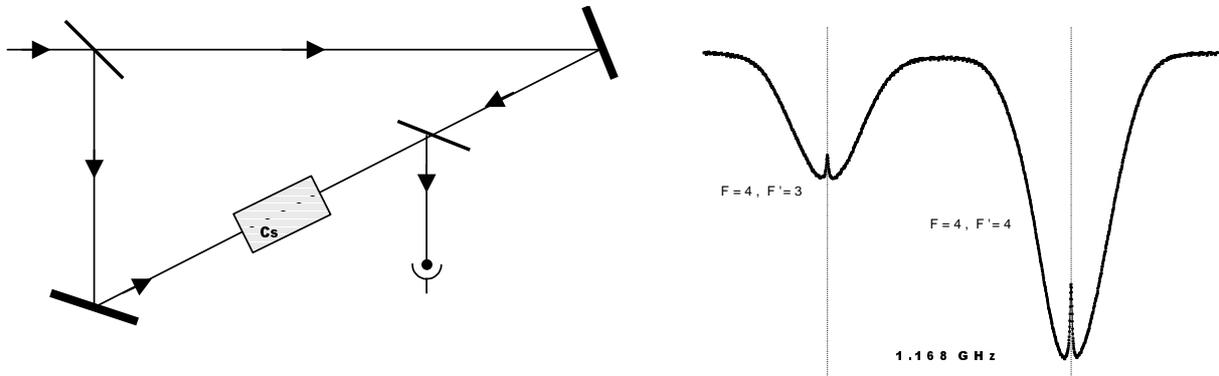


FIG. 3.2 – Le montage d'absorption saturée et son spectre ($6S_{1/2}(F = 4) \rightarrow 6P_{1/2}$ du Césium) obtenu directement par répétition et moyennage à l'oscilloscope.

3.3.2 Utilisation des différents éléments du montage

3.3.2.1 La source laser

Au cours de cette expérience, nous n'utilisons qu'un seul laser pour sonder le niveau $6P_{1/2}$ du Césium directement à partir du niveau fondamental $6S_{1/2}$, dont la transition résonnante est à la longueur d'onde⁴ de 894 nm. Il s'agit d'une diode à semi-conducteur à structure DBR (Distributed Bragg Reflector), dont la largeur spectrale est de l'ordre de 3 MHz. L'intensité de sortie du laser de 50 mW nous assure suffisamment de puissance disponible après le passage par les différents éléments optiques indispensables au montage. Ces éléments comportent notamment un isolateur optique assurant une réjection du retour optique (≥ 30 dB) et un filtre spatial afin de disposer d'un faisceau parfaitement circulaire.

Le point délicat de l'utilisation de cette diode réside dans la stabilisation en courant et en température qui sont les deux facteurs de variation de la fréquence. La température est stabilisée par un élément Peltier et une thermistance, intégrés dans le boîtier du laser et asservie par une électronique de précision à mieux que le mK. Ainsi, la fréquence de cette diode est uniquement pilotée par un balayage en courant de son alimentation stabilisée qui assure un bruit inférieur au μA pour des courant d'alimentation de l'ordre de 100 mA. Les balayages en courant sont typiquement de 13 μA pour un balayage en fréquence

⁴ $F = 3 \rightarrow F' = 3$: 894.582 nm, $F = 3 \rightarrow F' = 4$: 894.577 nm, $F = 4 \rightarrow F' = 3$: 894.606 nm et $F = 4 \rightarrow F' = 4$: 894.602 nm dans le vide.

de 10 MHz. Ils sont produits par une rampe externe dont le courant est additionné à l'alimentation de la diode. Il est alors possible de piloter la fréquence du laser à l'aide d'un ordinateur qui commande un générateur de courant connecté à l'alimentation du laser.

Une petite modulation rapide du courant peut être aussi introduite de manière additionnelle sur l'alimentation de la diode avec un générateur de fonction sinusoïdale. Nous utilisons une fréquence de modulation du courant d'injection de la diode à 12 kHz pour une amplitude de 10 MHz. Cette amplitude de modulation permet de ne pas élargir les spectres étroits (dont la largeur est au minimum de 25 MHz) et d'obtenir un rapport S/B suffisant (voir 3.3.3).

3.3.2.2 La cellule mince dans son four

Nous avons décrit la cellule mince et son four au chapitre 2 mais nous rappelons ici quelques points essentiels concernant le montage et les conditions expérimentales de température.

Tout au long de ces expériences où le paramètre important est l'épaisseur, la température a été maintenue constante à $T=120^{\circ}\text{C}$ pour le queusot et à $T=130^{\circ}\text{C}$ pour les fenêtres. Cet écart garantit l'absence de condensation du Césium sur les fenêtres.

La géométrie du four nous permet d'avoir un petit angle de l'ordre de 1° sur le faisceau réfléchi, de sorte que la réflexion sur la première surface soit aussi accessible⁵. La taille même du four ne nous permet pas d'utiliser des lentilles de focale inférieure à 4 cm. Le diamètre des trous du four (1.5 cm) restreint la surface accessible sur la cellule et donc la capacité à sonder différentes épaisseurs. Les épaisseurs voisines sont atteintes par déplacement du four (et donc de la cellule), puisque l'axe des faisceaux est conservé, tant qu'ils ne touchent pas les bords du four. En revanche, il est nécessaire de déplacer la cellule à l'intérieur même du four pour atteindre d'autres gammes d'épaisseur.

5. L'angle entre le faisceau incident et le faisceau réfléchi sur la première surface est alors $\approx 4^{\circ}$ car les surfaces de la fenêtre ne sont pas parallèles.

3.3.2.3 L'ensemble du système de détection

a) La chaîne de détection. Nous voulons réaliser une expérience de spectroscopie linéaire en transmission et en réflexion répétée ensuite pour différentes épaisseurs. Pour cela, il faut que l'intensité dans la vapeur soit non saturante, c'est-à-dire que le faisceau soit de faible intensité et de grande surface. Or, il est nécessaire de focaliser le faisceau pour des raisons de résolution spatiale dans la cellule (voir chapitre 2). Il faut donc trouver un compromis sur le diamètre du faisceau : soit il est fortement focalisé et l'intensité doit être très faible, soit il ne l'est pas et la résolution spatiale est inexploitable.

Cette expérience utilise un unique faisceau et les questions de sensibilité sont par conséquent délicates. Contrairement à une expérience où il y aurait deux faisceaux disponibles, il n'est pas possible d'en moduler un pour détecter l'autre. Cette technique à deux faisceaux permet d'amplifier *via* la détection synchrone le signal qui est induit par la modulation du premier faisceau sur le deuxième. Elle permet ainsi d'obtenir aisément une très bonne sensibilité. Pour notre expérience nous recherchons des absorptions de l'ordre de 10^{-3} pour un bruit typique de $10^{-5} - 10^{-6}$. L'absorption est trop faible pour utiliser directement l'intensité sonde.

Nous avons alors utilisé une détection différentielle. Elle consiste à séparer le faisceau en deux avant la vapeur à sonder puis à détecter les deux faisceaux séparément avec deux photodiodes (une pour le faisceau sonde et une pour celui qui ne passe pas par la vapeur). Sur ce type de montage, il est possible de rajouter une modulation avant la séparatrice soit par un oscillateur acousto-optique pour de grandes fréquences (> 100 kHz) soit par un "découpeur" à roues dentées pour des fréquences allant jusqu'à 2 kHz. Le bruit du laser diminue avec l'augmentation de la fréquence de modulation utilisée d'un facteur 2 entre 2 kHz et 11 kHz. L'intérêt d'une modulation acousto-optique, qui peut moduler l'intensité à une fréquence élevée, est alors bien justifié lorsque l'on veut un faible bruit. Cependant, nous avons souvent utilisé la modulation à roues dentées car elle est plus souple d'emploi.

Les intensités des deux faisceaux (I_{cell} et I_{ref}) modulées en amplitude sont alors soustraites l'une de l'autre et pour des intensités détectées identiques on a $I_{cell}(t) - I_{ref}(t) = 0$. Ainsi, lorsque le laser est à résonance, une petite absorption sur le faisceau sonde fournit un signal ($I_{cell}(t) - I_{ref}(t) = Signal$) entièrement modulé en amplitude que la détection synchrone détecte aisément. Les amplitudes mesurées respectivement

sur les deux chemins doivent naturellement être le plus proche possible (hors résonance) de manière à ce que leurs différences tendent vers zéro. C'est pourquoi il a fallu particulièrement soigner la forme géométrique des faisceaux et la manière dont ils sont coupés par la roue dentée afin d'éviter que cette différence ($I_{cell}(t) - I_{ref}(t)$) soit trop importante. C'est d'ailleurs pourquoi il est recommandé d'utiliser le même modèle de photodiode dans les mêmes conditions d'utilisation (bande passante, gain, etc...).

Nous analysons ci-dessous les différents types de bruits afin de comprendre quels sont les paramètres importants.

- **Le bruit quantique.** Il provient de la quantification de la lumière et des photons qui tombent sur le photodétecteur, qui les transforme en électrons. Leur arrivés suit un processus poissonnien, donc statistique, impliquant un bruit de grenaille ("shot-noise") qu'il n'est pas possible de réduire sauf dans des expériences de compression du bruit quantique ("squeezing"). Le bruit quantique s'écrit comme :

$$\left\langle \frac{\Delta i}{i} \right\rangle = \frac{1}{\sqrt{T}} \cdot \frac{1}{\sqrt{\Phi_{photon}}} \quad (3.1)$$

avec T le temps d'intégration et Φ_{photon} le flux de photon par unité de temps ref[Grynberg 97][31]. Ce bruit statistique Δi est proportionnel à la racine carrée du nombre de photons (soit à la racine carré de la puissance laser utilisée) et il diminue comme la racine carré du temps d'intégration. Et le bruit relatif $\Delta i/i$ est inversement proportionnel à la racine carré du nombre de photons.

Dans ce montage la puissance utilisée est de 100 nW, soit $5 \cdot 10^{11}$ photons/s et le bruit quantique relatif est de $1.5 \cdot 10^{-6}/s^{1/2}$.

- **Le bruit technique.** Il correspond à ce que rajoute l'électronique de détection sur le signal dans des conditions données, comme un niveau fixe qui ne dépend pas de la puissance détectée sur la photodiode. On remarque ici qu'il est donc avantageux d'avoir un bruit quantique au moins au niveau de ce bruit technique, ce qui implique l'utilisation de puissances lumineuses appropriées.
- **Le bruit d'amplitude.** Il est relié aux variations de l'amplitude de l'intensité du faisceau. Ces variations peuvent principalement provenir d'une mauvaise alimentation laser, ou bien d'éléments du montage qui ne seraient pas stables provoquant

des mouvements sur la position du faisceau et donc sur l'intensité reçue sur le photodétecteur ou au travers de la vapeur. Ce bruit est en général indépendant de la fréquence.

Ici encore, il est avantageux que ce bruit soit inférieur au bruit quantique (en ayant un montage le plus soigné possible). Mais en pratique, il est nécessaire de ne pas trop augmenter l'intensité lumineuse car ce bruit lui est proportionnel. Il y a donc un compromis à faire. Dans notre montage, l'intensité de 100 nW est satisfaisante.

- **Le bruit d'avalanche.** Il peut exister un excès de bruit pour les photodétecteurs utilisant un système d'amplification à avalanche. Il est proportionnel à $(P_{incident})^a$ (avec $a > 1$ et pour notre photodétecteur $a = 1.2$), introduisant un excès de bruit lorsque l'intensité détectée devient importante et que la photodiode est proche de la "saturation". Le rendement quantique de ces détecteurs induit un bruit de grenaille sur le courant de photo-électrons indépendant du flux de photons incidents.

Au cours de ces expériences nous avons utilisé différentes photodiodes suivant nos besoins. La plus utilisée a été une photodiode à faible bruit et gain variable - *New Focus 2001* - constituée d'une électronique d'amplification et de filtrage assurant un bruit technique inférieur au bruit quantique pour une puissance incidente supérieure à $0.5 \mu\text{W}$. L'électronique de cette photodiode est montée sur batterie, évitant ainsi tout couplage basse fréquence avec le réseau électrique, et acceptant une bande passante de 100 kHz à 20 kHz pour le gain maximum.

La seconde photodiode, fréquemment utilisée, a été une *Hamamatsu C5460-01* à effet avalanche. Comme nous venons de le voir, son bruit est plus grand que pour la précédente, mais elle a l'avantage d'avoir une bande passante beaucoup plus élevée de 100 MHz, et permet une détection optimale pour des puissances très faibles allant jusqu'à quelques nW.

b) L'influence du balayage en fréquence du laser. La plupart des spectres enregistrés recouvrent les deux sous-niveaux hyperfins de l'état excité $6P_{1/2}$, pour un sous-niveau donné ($F = 3$ ou $F = 4$) du fondamental. La technique standard de détection utilisée dans nos enregistrements préliminaires consiste à effectuer un balayage lent du laser de l'ordre de 13 MHz/s (pour une constante d'intégration de 300 ms, 12 dB à la

détection synchrone). Cette technique de balayage a révélé une instabilité de fréquence du laser, induite sans doute par des fluctuations lentes du courant d'alimentation. Ces fluctuations disparaissent pour un balayage plus rapide, et la reproductibilité de la plage de balayage en fréquence (commandée par le courant d'injection) est de l'ordre du MHz. Nous avons alors moyenné plusieurs spectres rapides à l'aide d'un oscilloscope numérique, de telle sorte que le temps global de mesure reste le même. Le nombre de spectres ainsi moyennés varie entre 8 et 128, suivant la vitesse de balayage, afin que le temps total de l'enregistrement soit inférieur à 2-3 minutes pour ne pas être sensible à la dérive lente du laser. Ainsi, l'effet du bruit basse fréquence du laser est-il redistribué aléatoirement sur l'ensemble du spectre : ceci évite l'apparition de distortions aléatoires sur les signaux, sans que ceux-ci ne soient pour autant élargis par le moyennage.

Il est possible de diminuer encore le bruit (et atteindre rapidement le bruit quantique) en augmentant le nombre de spectres moyennés par recalibrage de la dérive du laser à l'aide notamment du pic d'absorption saturée. Pour cela il faudrait effectuer la reconnaissance du pic par ordinateur, puis moyenner après réajustement de la dérive de fréquence. Lors de ces expériences, nous en étions aux balbutiements des techniques de pilotage par GPIB dans le groupe, et comme le rapport S/B s'est avéré largement suffisant, nous n'avons pas cherché à mettre au point un tel système.

3.3.3 Définition et caractéristiques expérimentales de la modulation de fréquence

La technique de modulation de fréquence consiste à moduler la fréquence optique du champ exciteur afin de détecter uniquement la modulation induite sur le signal. Pour une modulation $\omega(t) = \omega_0 + M \cos(\omega_{mod}t)$, le développement limité du signal par rapport à la modulation s'écrit comme :

$$S(\omega) \approx S(\omega_0) + M \cos(\omega_{mod}t) \left. \frac{\partial S}{\partial \omega} \right|_{\omega_0} + \dots \quad (3.2)$$

avec ω_0 la fréquence sonde et ω_{mod} la fréquence de modulation.

Lorsque la modulation M est très petite devant la largeur spectrale du signal, le signal de modulation de fréquence est proportionnel à la dérivée du signal. Ainsi, le spectre FM exacerbe tout naturellement les contributions étroites.

Le facteur de proportionnalité entre le signal FM et la dérivée du signal est justement la modulation M . Il faut alors trouver un compromis entre l'amplitude du signal FM et la condition M très petit devant la largeur spectrale. Une modulation trop faible produit un signal trop petit (dans le bruit). Pour une modulation trop grande, le développement limité (3.2) n'est plus valable, provoquant des élargissements et des distortions du signal.

3.4 Résultats expérimentaux et interprétations

3.4.1 L'absorption en cellule ultra mince

En spectroscopie linéaire d'une vapeur macroscopique, l'absorption est proportionnelle à :

$$\text{Absorption} \propto [1 - \exp(-\beta dL)] \quad (3.3)$$

avec L la longueur de vapeur sondée, d la densité atomique et β considérée comme une constante.

L'absorption linéaire est indépendante de l'intensité du faisceau sonde car le signal est proportionnel au nombre de photons. La saturation apparaît lorsque cette relation de proportionnalité n'est plus respectée, c'est-à-dire lorsqu'il y a un nombre non négligeable d'atomes dans l'état excité. De manière quantitative on écrit que :

$$\Omega_R t_{int} \geq 1 \quad (3.4)$$

avec t_{int} le temps d'interaction de l'atome dans le champ.

En cellule mince, le temps d'interaction avec le champ diminue par collision avec les parois (l'atome perd toute mémoire de la précession de Rabi lors de la collision). Nous voyons alors dans (3.4) que l'intensité caractéristique de la saturation devient plus importante. Par exemple, pour une épaisseur de cellule deux fois plus petite, la puissance nécessaire pour atteindre la saturation doit être quatre fois plus importante. Ainsi, à faible épaisseur, de plus fortes intensités du champ ne saturent pas pour autant la transition [Briaudeau 1996] [17].

La densité atomique, que l'on peut contrôler par la température de la cellule, a aussi son importance. En effet, les collisions interatomiques jouent un peu le même rôle que les

parois de la cellule mince : elles perturbent les atomes excités et la population du niveau excité est plus difficile à conserver pour une forte densité. La saturation apparaît par conséquent pour de plus grandes intensités optiques du faisceau lumineux. Ainsi, nous pouvons dire que la saturation optique est d'autant plus difficile à obtenir que l'épaisseur de la cellule est petite et que la densité atomique est grande.

Au cours de cette expérience, l'intensité du faisceau sonde était assez faible pour que le régime de saturation ne soit pas atteint. Pour s'en assurer, l'amplitude du signal doit être rigoureusement proportionnelle à l'intensité sonde. Il a aussi fallu prendre garde à la focalisation, car l'intensité par unité de surface croît comme l'inverse du carré du diamètre. Toutes ces conditions nous ont conduit à un faisceau d'un diamètre de $100 \mu\text{m}$ pour une puissance de 100 nW et une température de 120°C au queusot et 130°C aux fenêtres.

Avec ces paramètres, on obtient couramment une absorption supérieure à 10^{-3} tant que l'épaisseur est supérieure à 300 nm .

3.4.2 Le rétrécissement cohérent Dicke à l'épaisseur de $\lambda/2$ et sa renaissance à $3\lambda/2$

A l'épaisseur $L = \lambda/2$, la réflexion est nulle et la transmission est maximale dans la cellule. Pour cette épaisseur caractéristique, il y a un effet de cohérence maximal des atomes décrit théoriquement et expérimentalement par Romer & Dicke en 1955 [22] sur une transition de l'ammoniac à 24 GHz , soit $\lambda = 2.5 \text{ cm}$ dans une "boîte à pilule" (cellule mince).

Comme nous l'avons vu au chapitre 1, lorsque l'atome quitte la surface dans son état fondamental, nous prévoyons que le dipôle induit subit une précession en phase avec le champ. Un facteur de déphasage $\exp(ikL)$ est atteint au niveau de l'autre surface (pour $k = 2\pi/\lambda$). Ainsi, l'émission cohérente sub-Doppler, intégrée sur toutes les épaisseurs de cellule est maximale à $\lambda/2$ puis minimale à λ et reparaît à $3\lambda/2$: c'est le rétrécissement cohérent Dicke.

La figure 3.3 montre des spectres en transmission aux épaisseurs de $L = 447 \pm 3 \text{ nm} \Rightarrow \lambda/2$, $L = 894 \pm 8 \text{ nm} \Rightarrow \lambda$ et $L = 1150 \pm 7 \text{ nm} < 3\lambda/2$ (il s'agit de l'épaisseur maximale de la cellule). Ces spectres sont présentés avec un facteur d'échelle de sorte que les amplitudes soient égales (le coefficient multiplicateur est placé à droite des spectres) et l'échelle en

fréquence est agrandie autour du pic d'absorption, sur une largeur restreinte de 120 MHz, afin de faire ressortir les résonances sub-Doppler, c'est-à-dire l'aspect étroit aux épaisseurs de $\lambda/2$ et $3\lambda/2$. Ce sont des extraits de la figure 3.5 présentée plus bas.

C'est la première fois que ces phénomènes de cohérence et de renaissance sont observés dans une longueur d'onde optique [Dutier *et al.* 2003] [34]. Ces spectres nous rappellent les prédictions théoriques de Briaudeau de la figure 1.3-a du chapitre 1. La question des amplitudes relatives est développée au paragraphe 3.4.3.1.

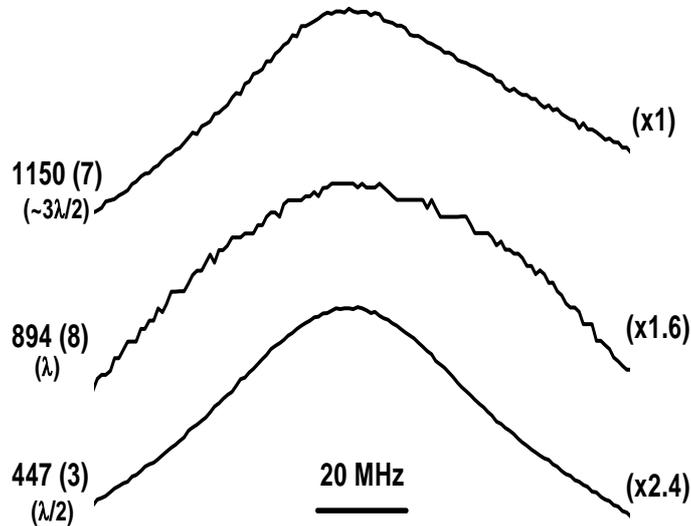


FIG. 3.3 – Région centrale des spectres expérimentaux en transmission directe pour les épaisseurs de $L = \lambda/2 = 447 \pm 3 \text{ nm}$, $L = \lambda = 894 \pm 8 \text{ nm}$ et $L \approx 3\lambda/2 = 1150 \pm 7 \text{ nm}$

Il est naturel de vouloir observer ces contributions étroites à l'aide de la technique FM (voir figure 3.4). Nous observons alors beaucoup plus clairement la structure étroite à $\lambda/2$ et sa renaissance à l'épaisseur disponible la plus proche⁶ de $3\lambda/2$ soit 1150 nm. Ce dernier spectre montre aussi distinctement la structure Doppler additionnée à la structure étroite. De plus, les spectres présentés sur cette figure n'ont pas été normalisés en amplitude et il est remarquable de constater qu'en FM, le signal à l'épaisseur de $\lambda/2$ reste aussi important que les autres alors que l'épaisseur est deux à trois fois plus petite. Les spectres

6. Cette renaissance apparaît dès que l'on dépasse λ pour être maximum à $3\lambda/2$.

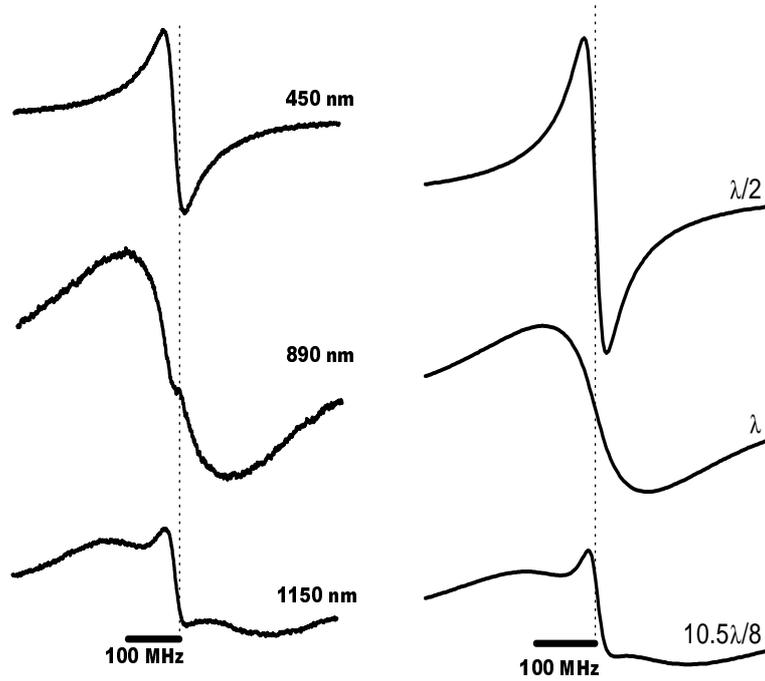


FIG. 3.4 – Spectres expérimentaux et théoriques ($\gamma_{eg} = 19$ MHz pour $ku = 250$ MHz) FM en transmission aux épaisseurs de 450, 890 et 1150 nm

théoriques sont calculés pour $\gamma_{eg} = 19$ MHz et $ku = 250$ MHz. Les formes de raies sont parfaitement reproduites. Seules les amplitudes ne trouvent pas un accord à mieux qu'un facteur 2, que l'on attribue à la difficulté expérimentale de maîtriser parfaitement les conditions d'enregistrements (température, intensité lumineuse, amplitude de modulation, épaisseur).

Le spectre à l'épaisseur λ sondé en FM est très intéressant car, contrairement à celui observé en direct, il est possible de distinguer un résidu de structure étroite au centre. La première raison est simplement expérimentale: il suffit que le faisceau soit quelques nanomètres à côté de l'épaisseur exacte de $\lambda/2$ (ce qui rentre parfaitement dans les barres d'erreurs de la mesure d'épaisseur) pour qu'une petite composante étroite commence à apparaître. Deuxièmement, comme nous l'avons vu au chapitre 1, les termes $S_T^{lin}(2)$ et $S_T^{lin}(3)$ sont égaux uniquement à $L = 0$. A l'épaisseur $L = \lambda$, l'effet de destruction de la cohérence n'est pas complet et il reste une petite composante étroite. Celle-ci n'est pas

visible sur le spectre théorique pour des raisons de rapport entre γ_{eg} et ku qui impliquent un lissage du spectre.

3.4.3 Présentation des résultats expérimentaux pour l'ensemble des épaisseurs en cellule ultra mince

3.4.3.1 La transmission

Nous présentons figure 3.5-a les enregistrements de l'absorption directe effectués en transmission pour des épaisseurs de $\approx \lambda/4$ à $\approx 11\lambda/8$ par pas, de l'ordre de $\lambda/8$, pour la transition $6S_{1/2}(F = 4) \rightarrow 6P_{1/2}(F' = 4)$ et sur une plage de balayage avoisinant 500 MHz. Nous avons enregistré les quatre transitions hyperfines mais nous avons choisi de montrer uniquement cette transition pour plus de lisibilité et parce qu'elle a le meilleur taux de transition. Sur la figure 3.5-b, sont reportés les spectres théoriques pour les mêmes épaisseurs avec $\gamma_{eg} = 19$ MHz pour $ku = 250$ MHz. La valeur de γ_{eg} a été choisie de manière à ce que les spectres théoriques soient le plus ressemblant possible aux spectres expérimentaux. Il est à noter que γ_{eg} est le seul paramètre ajustable, car les spectres théoriques sont normalisés en amplitude et ainsi le paramètre densité est occulté. Les amplitudes des spectres ont été normalisées par l'amplitude du spectre à $L = \lambda$ et les coefficients multiplicateurs sont placés à côté des courbes.

a) Les formes de raie. Commençons par discuter des formes des spectres. Ils sont fortement asymétriques sauf aux épaisseurs de $\lambda/2$ et λ conformément au comportement du Fabry-Perot exposé au chapitre 1. Rappelons que ces courbes sont le résultat d'un mélange entre la transmission et la réflexion sélective d'allure dispersive. Cette forme dispersive est particulièrement visible dans les ailes où la dispersion domine la réponse de l'absorption (reliée à la transmission). Ceci est particulièrement visible pour les épaisseurs de 335 et 1005 nm.

Nous pouvons observer (même à cette échelle de fréquence) un déplacement des pics d'absorption vers le rouge compris entre 5 et 15 MHz sur l'ensemble des spectres, particulièrement visible aux épaisseurs de 447, 670 et 1005 nm. Ces déplacements sont prédits théoriquement, induit par la dispersion, comme étant alternativement bleu et rouge en fonction de l'épaisseur. Nous notons en effet que l'amplitude de ce déplacement varie en

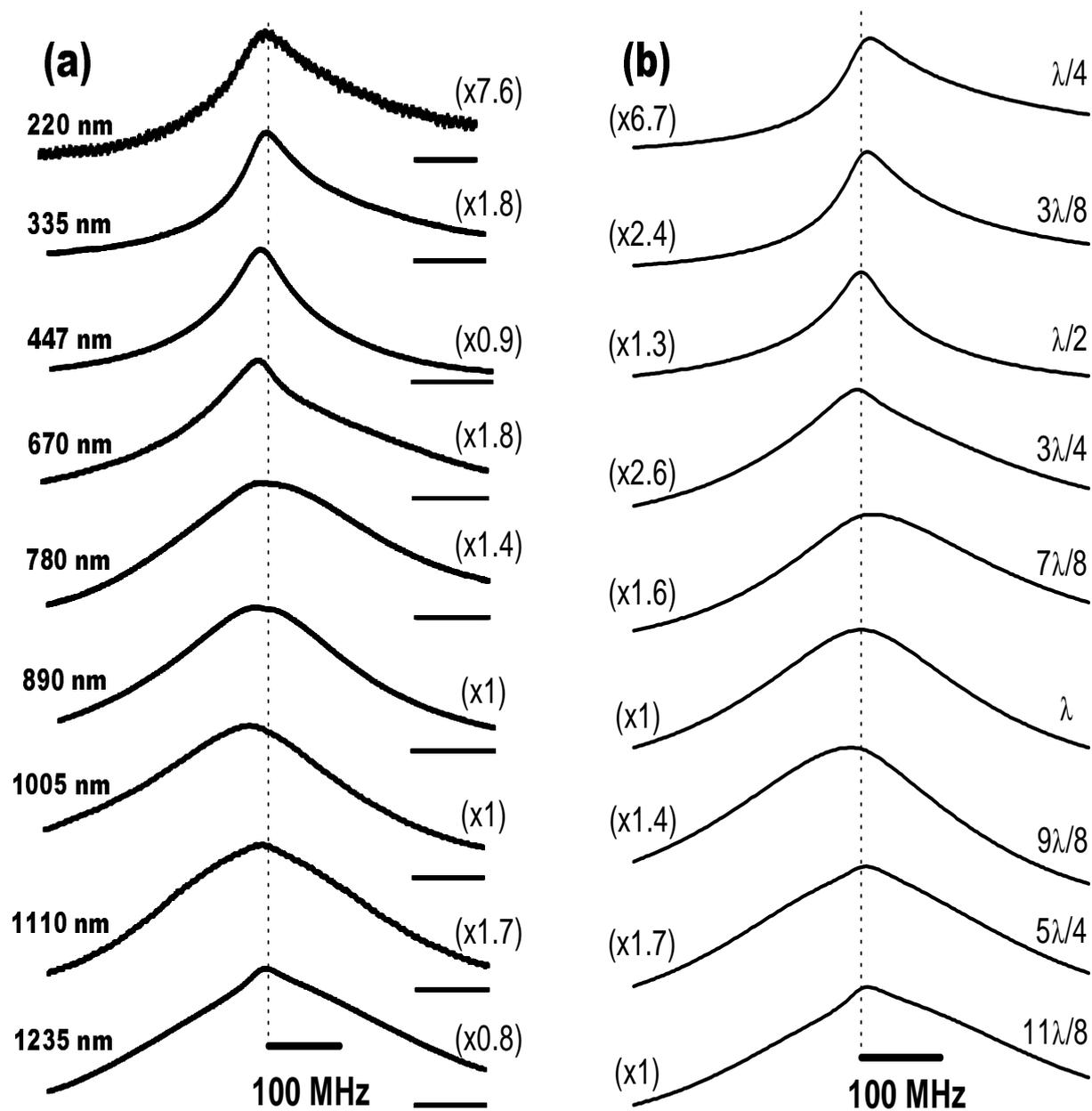


FIG. 3.5 – Spectres expérimentaux (a) et théoriques ($\gamma_{eg} = 19$ MHz pour $ku = 250$ MHz) (b) en transmission directe

fonction de l'épaisseur. Mais il reste néanmoins un déplacement global vers le rouge que nous expliquons alors par une largeur homogène γ_{eg} élevée, induite par une forte pression, impliquant des effets de déplacement relativement important. En effet la largeur homogène prise pour les spectres théoriques, de telle sorte que les formes soient les plus proches de nos résultats, est $\gamma_{eg} = 19$ MHz. Afin d'élucider cette question, nous avons repris cette expérience pour de plus faibles pressions, de manière à éliminer le plus possible la composante dispersive reliée à la largeur homogène. Ce déplacement a alors complètement disparu. Nous discutons de cette expérience à faible pression au paragraphe 3.5.2.

b) Les amplitudes. L'amplitude des spectres augmente en général avec la longueur de cellule. Mais en cellule mince, la contribution étroite entraîne comme une diminution de l'amplitude au centre de raie pour des épaisseurs multiples de $\lambda/2$. Ces effets sont quantifiables par le coefficient de normalisation de l'ordre de 1 proche des épaisseurs de $\lambda/2$, λ et $3\lambda/2$, là où les amplitudes sont les plus grandes autant théoriquement qu'expérimentalement. Par exemple, entre les épaisseurs $L = \lambda/2$ et $L = \lambda$, l'amplitude du pic est inchangée mais parallèlement, l'aire du spectre a augmenté, c'est-à-dire que l'aire sous les ailes a augmenté pour $L = \lambda$. Il en est de même pour les épaisseurs suivantes.

Inversement, lorsque l'on réduit l'épaisseur, la diminution de l'absorption est beaucoup plus rapide. Elle diminue d'un facteur de l'ordre de 2 entre $L = \lambda/2$ et $L = 3\lambda/8$, puis d'un facteur de l'ordre de 7 (6.7 théoriquement et 7.6 expérimentalement) entre $L = 3\lambda/8$ et $L = \lambda/4$. C'est la raison pour laquelle le bruit devient visible pour le spectre à 220 nm. Cette chute brutale de l'absorption s'explique principalement par le temps de transit (ou en distance, le "libre parcours moyen") qui devient petit devant le cycle de Rabi (ou la longueur d'onde sonde).

3.4.3.2 La réflexion

Comme nous l'avons mentionné précédemment, nous avons enregistré simultanément la réflexion et la transmission. Les spectres en réflexion sont montrés sur la figure 3.6 en direct et sur la figure 3.7 en FM. Rappelons que les amplitudes de ces spectres correspondent à la somme d'un signal résonnant et non résonnant, ce dernier variant de 100%

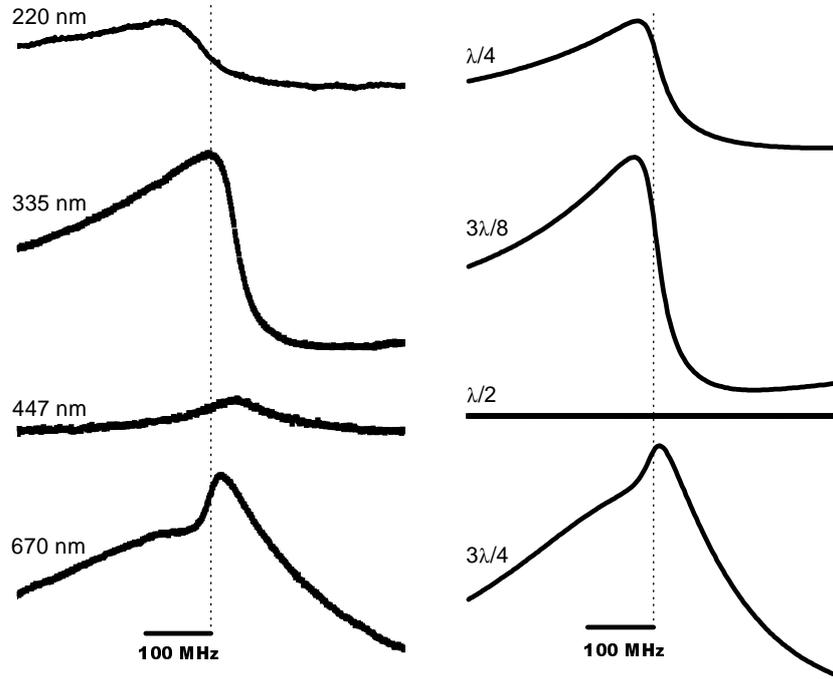


FIG. 3.6 – Spectres expérimentaux (a) et théoriques ($\gamma_{eg} = 19$ MHz et $ku = 250$ MHz) (b) en réflexion directe aux épaisseurs de 220, 335, 447 et 670 nm.

en amplitude tous les $\lambda/2$. Pour la figure 3.6, les amplitudes ne sont pas modifiées et les spectres théoriques sont représentés pour les mêmes paramètres que précédemment ($\gamma_{eg} = 19$ MHz et $ku = 250$ MHz). Et pour la figure 3.7, nous avons normalisé les amplitudes en reportant le coefficient de normalisation.

Sur ces deux figures, nous avons présenté un spectre expérimental pour l'épaisseur $L = \lambda/2$, afin de confirmer la quasi-nullité de son amplitude. Il en est de même pour toutes les épaisseurs multiples de $\lambda/2$ (non représentés ici), contrairement à la périodicité de la structure étroite (qui est de λ). Il est à noter que le spectre présenté à $L = \lambda/2$ n'est pas totalement égal à zéro. Il est probable que la taille du faisceau par rapport à la variation de l'épaisseur implique que d'autres épaisseurs soient prises en compte accidentellement ou bien, en accord avec les barres d'erreur sur l'épaisseur, que le faisceau soit centré quelques nanomètres au-delà de 447 nm.

Par ailleurs, les formes de raies changent beaucoup plus rapidement, relativement à l'épaisseur, en réflexion qu'en transmission. Ceci, une fois de plus, parce que la périodicité

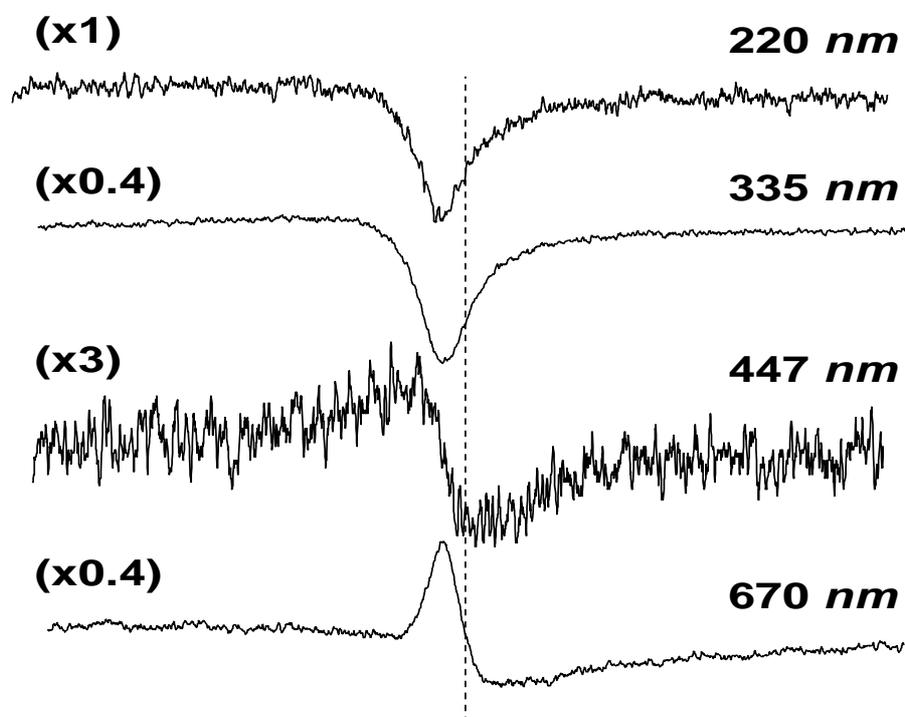


FIG. 3.7 – Spectres FM expérimentaux en réflexion aux épaisseurs de 220, 335, 447 et 670 nm.

de la réflexion est de $\lambda/2$ sur le champ non résonnant. Ces formes de spectres sont fortement dispersives comme la réflexion sélective. En revanche, au centre de raie, il y a des résidus de résonance sub-Doppler étroite provenant de la contribution au spectre de la transmission.

La comparaison des spectres expérimentaux avec le modèle théorique, une fois les meilleurs paramètres trouvés, nous montre (comme en transmission) des désaccords d'un facteur 2 sur quelques amplitudes, notamment ici à $\lambda/4$. Il est alors à préciser que la mesure expérimentale de l'amplitude n'est pas toujours simple sur un montage différentiel, où précisément l'intensité du faisceau sonde (principalement en réflexion) peut varier de 100 %.

3.5 Mesures complémentaires à l'épaisseur de $\lambda/2$

3.5.1 Introduction

Les déplacements vers le rouge et les grandes largeurs des spectres en transmission peuvent provenir d'une quantité non négligeable d'impuretés dans cette première fabrication de cellule ultra mince. Nous avons alors repris les expériences à l'épaisseur de $L = \lambda/2$, où les spectres sont plus étroits et sans dispersion, pour tenter d'obtenir des largeurs plus faibles, notamment en diminuant la pression, et ainsi de pouvoir observer des éventuels déplacements résiduels.

Par ailleurs, la finesse naturelle des spectres à cette épaisseur nous a permis d'entreprendre une nouvelle série de mesures de l'élargissement et du déplacement collisionnel en fonction de la densité atomique pour chaque composante hyperfine séparément.

3.5.2 Absorption directe et FM à basse pression

3.5.2.1 Conditions expérimentales

Comme nous venons de le voir, la pression était trop importante, et afin de s'assurer de la présence ou non d'impuretés, la voie naturelle à suivre a été d'améliorer la sensibilité au maximum afin de diminuer le plus possible la densité atomique (et donc le signal).

La première évolution du montage a été l'utilisation d'un modulateur acousto-optique en remplacement d'une roue dentée, permettant la réduction du bruit d'intensité du laser d'un facteur 2 par l'augmentation de la fréquence de modulation en amplitude. Puis, des photodiodes à avalanche *Hamamatsu C5460-01* ont permis de diminuer l'intensité jusqu'à 20 nW pour un faisceau de 100 μm de diamètre (voir discussion chapitre 3.3.1). L'absence totale de réflexion à $\lambda/2$ a aussi contribué à rendre l'expérience plus légère et la réflexion n'a pas été enregistrée. Le montage et les conditions expérimentales sont restés inchangés.

3.5.2.2 Présentation et interprétation des résultats expérimentaux

Avec des durées d'enregistrement pouvant atteindre cinq minutes, et en utilisant un moyennage sur plusieurs enregistrements (avec prise en compte de la dérive lente du laser), nous avons pu abaisser la température jusqu'à 60°C au niveau du queusot et 70°C au

niveau des fenêtres. Ainsi, les largeurs optiques à mi-hauteur des spectres en absorption directe sont passées de 150 à 80 MHz et de 40 à 25 MHz pour la FM (voir par exemple le spectre sur la figure 3.8 effectué à la température de 72°C). Les déplacements résiduels vers le rouge, évoqués plus haut, ont complètement disparus et la courbe théorique correspondant le mieux au spectre expérimental, à la très faible température de 60°C, est obtenue pour $\gamma_{eg} \approx 10$ MHz.

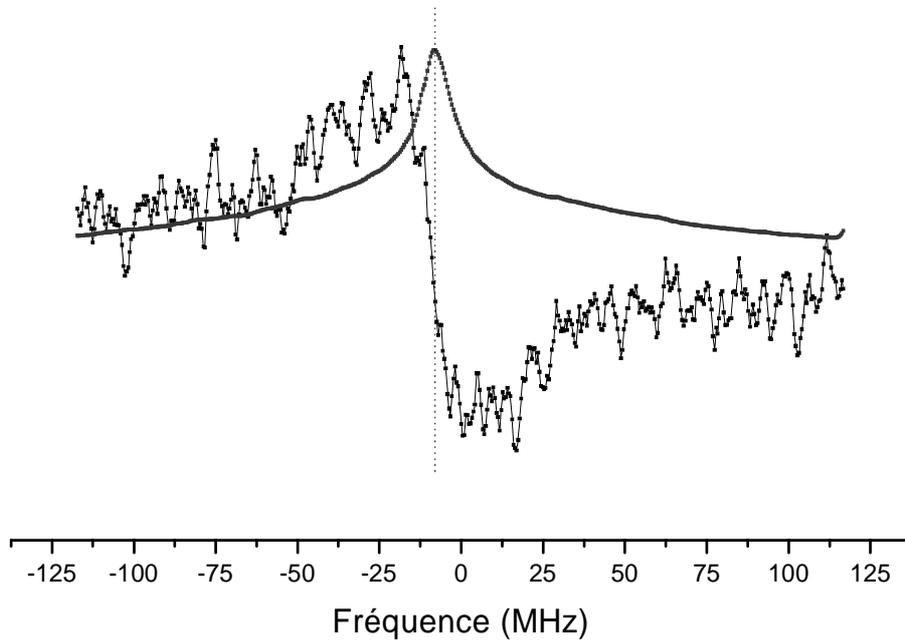


FIG. 3.8 – Spectre FM à l'épaisseur de $L = \lambda/2$ à $T=72^\circ\text{C}$ de la transition D_1 du Césium avec la référence d'absorption saturée en directe.

Parallèlement à ce résultat très satisfaisant, il est possible de comparer pour la même composante hyperfine le rapport entre les largeurs mesurées à mi-hauteur en direct et en FM en fonction de la largeur homogène γ_{eg} (voir figure 3.9). Cette représentation permet de s'affranchir de la mesure de température pour l'étude de la dépendance de γ_{eg} avec la pression. La courbe en pointillé sur la figure 3.9 résulte d'un calcul théorique. On constate alors qu'à faible densité, la largeur mesurée en FM diminue plus vite que la largeur mesurée en direct. C'est l'aspect logarithmique du spectre direct à l'épaisseur de $\lambda/2$ qui provoque cette augmentation du rapport direct/FM à faible pression. L'élargissement collisionnel a

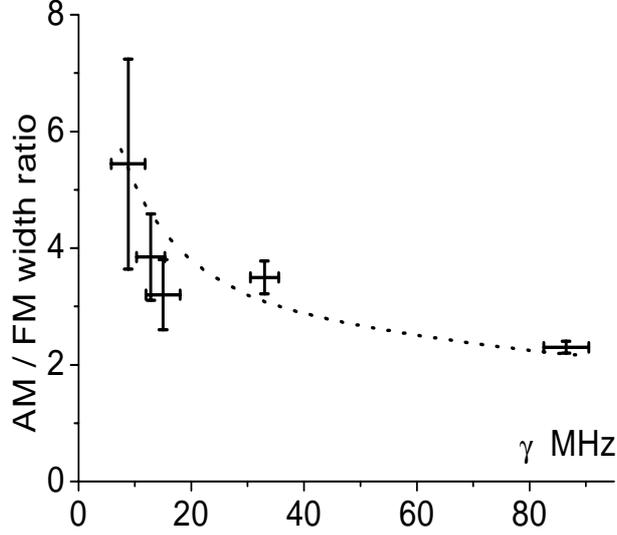


FIG. 3.9 – Rapport entre largeur directe et largeur FM à $L = \lambda/2$ en fonction de γ_{eg}

tendance à diminuer les effets de sélection de vitesse en cellule mince. Nous remarquons aussi que les barres d'erreur à faible pression sont plus importantes qu'à haute pression puisqu'il y a beaucoup moins d'atomes à faible pression pour participer au signal.

L'intérêt spectroscopique des cellules ultra minces est alors bien compréhensible à cette épaisseur de $\lambda/2$. Les spectres, notamment en FM sont naturellement fins jusqu'à 25 MHz pour des températures de l'ordre de 60°C.

3.5.3 Élargissements et déplacements collisionnels

3.5.3.1 Introduction

La spectroscopie en cellule ultra mince à une épaisseur de $\lambda/2$ révèle des opportunités pour la mesure de la largeur homogène γ_{eg} et du déplacement en énergie des quatre différentes transitions accessibles par D_1 (encore jamais effectuée) que nous écrirons 33, 34, 43 et 44 :

$$6S_{1/2}(F = 3) \rightarrow 6P_{1/2}(F' = 3) \quad (\Leftrightarrow \quad 33)$$

$$6S_{1/2}(F = 3) \rightarrow 6P_{1/2}(F' = 4) \quad (\Leftrightarrow \quad 34)$$

$$6S_{1/2}(F = 4) \rightarrow 6P_{1/2}(F' = 3) \quad (\Leftrightarrow \quad 43)$$

$$6S_{1/2}(F = 4) \rightarrow 6P_{1/2}(F' = 4) \quad (\Leftrightarrow \quad 44)$$

Il est notamment possible d'observer, avant qu'il y ait absorption totale, l'intégralité du spectre jusqu'à des densités atomiques de l'ordre de 10^{15} at./cm³.

[Vuletic *et al.* 93, Müller & Weis 98][38, 39] ont réalisées respectivement des expériences de réflexion sélectives sur la raie D_1 du Césium et chacun pour une composante hyperfine différente. D'autres expériences [49, 50] ont été réalisées par une analyse spectrale dans les ailes de raies puisque l'absorption est totale. De même, des calculs théoriques [51, 52] ont déterminé la largeur de la transition sans différencier les composantes hyperfines.

L'expérience consiste à enregistrer les quatre résonances en transmission à l'épaisseur de $\lambda/2$ pour la gamme de température la plus large possible. Les systèmes de détection et de contrôle de la fréquence restent les mêmes que dans les expériences précédentes.

3.5.3.2 Élargissements des composantes hyperfines avec la densité

La mesure de la largeur des spectres en transmission directe est toujours délicate lorsqu'il s'agit de mesurer la largeur à mi-hauteur de spectres ayant un fort recouvrement des ailes comme c'est le cas à haute température. C'est la raison pour laquelle ces mesures grossières sont intrinsèquement imprécises. Nous les avons aussi comparées aux mesures pic-pic des spectres en FM, plus précises car comportant moins de recouvrement. L'ensemble de ces mesures est reportée sur la figure 3.10-a pour les quatre transitions hyperfines de la raie D_1 du Césium. Nous observons alors que, malgré les imprécisions de ces mesures, les élargissements des composantes 33 et 34 sont nettement différents (de l'ordre de 20 à 30% de leur largeur) alors qu'ils sont très proches pour les composantes 43 et 44. Leurs accroissements restent linéaire avec la pression.

Afin d'avoir une comparaison directe de ces mesures de largeur avec les valeurs en volume nous avons reproduit cette expérience sur les quatre transitions hyperfines en réflexion sélective. Les résultats sont présentés sur la figure 3.10-b qui montre clairement le même élargissement pour les quatre transitions hyperfines.

3.5.3.3 Déplacements des composantes hyperfines avec la densité

La figure 3.11-a montre les mesures du déplacement du centre de raie pour les quatre transitions mesurées aussi bien en direct par la mesure de la position du pic d'absorption

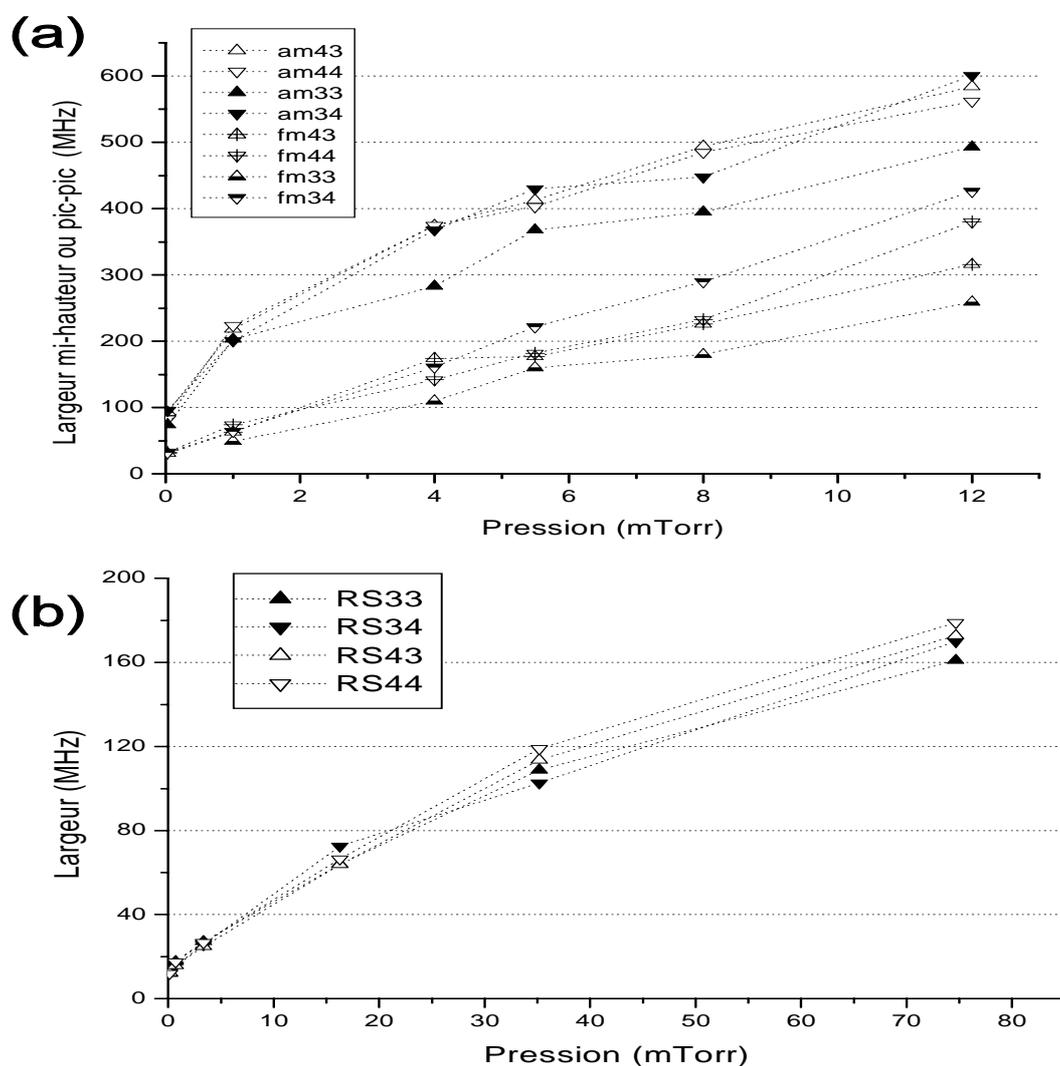


FIG. 3.10 – Élargissements en fonction de la pression pour chaque transition hyperfine de D_1 du Césium (a) en cellule ultra mince à l'épaisseur de $\lambda/2$, (b) en réflexion sélective sur une cellule en volume

qu'en FM par la mesure du milieu des deux extremums. Cette technique nous permet d'avoir une estimation des déplacements car le recouvrement Doppler des deux composantes à forte pression n'est pas pris en compte. Ces deux mesures (directe et FM) sont cohérentes entre elles et confirment les valeurs du déplacement. Il nous faudra ensuite appliquer à ces courbes un ajustement numérique pour augmenter la précision.

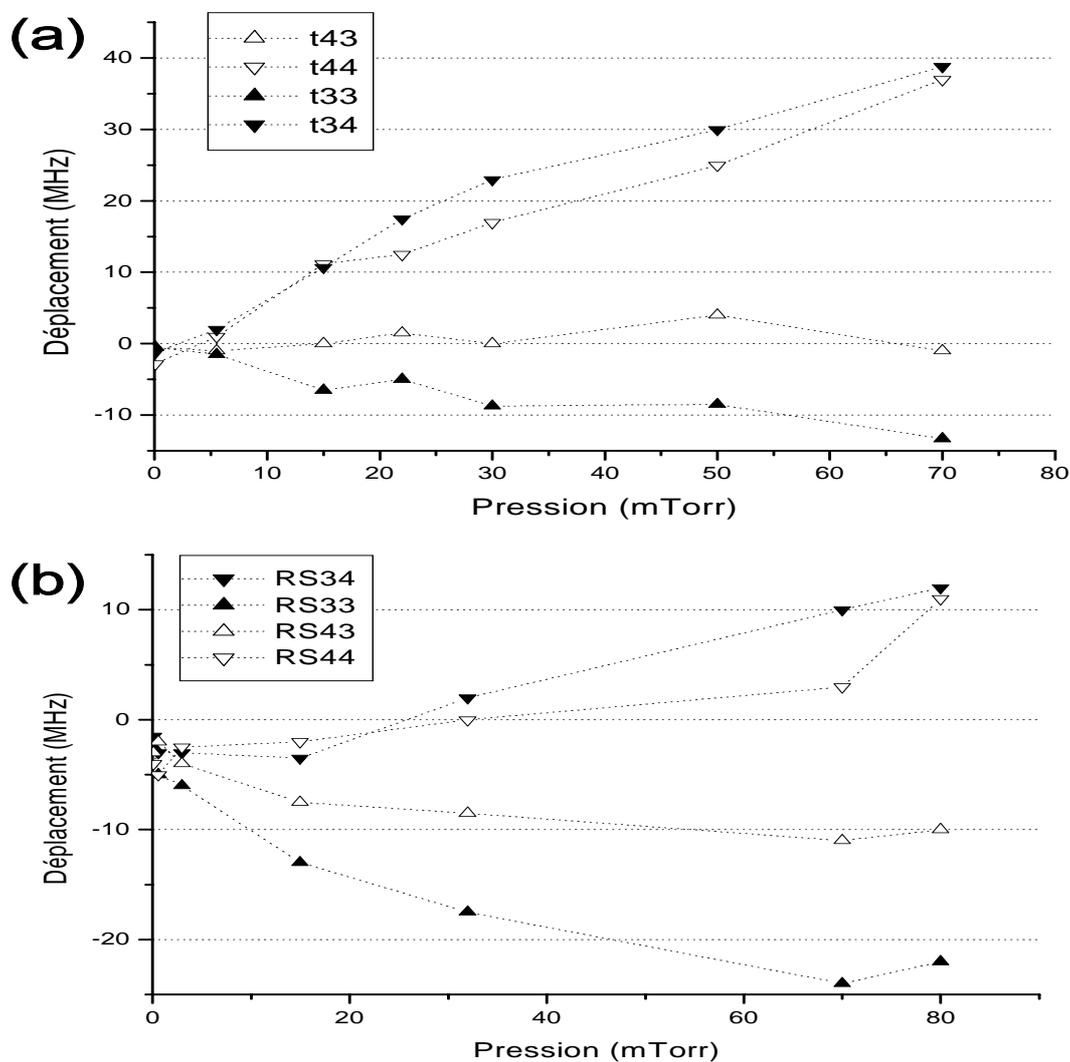


FIG. 3.11 – Déplacements en fonction de la pression pour chaque transition hyperfine D_1 du Césium (a) en cellule ultra mince à l'épaisseur de $\lambda/2$, (b) en réflexion sélective.

Nous voyons alors clairement sur la figure 3.11-a que les transitions 34 et 44 sont déplacées vers le rouge. La transition 33 ne subit aucun déplacement et la transition 43 subit un déplacement vers le bleu. Les seules expériences équivalentes ont été faites en réflexion sélective pour les transitions 34 [39] et 43 [38] pour une gamme de pression plus petite.

Comme précédemment nous avons comparé ces résultats à ceux de l'expérience en

réflexion sélective sur la cellule centimétrique. Ces résultats sont présentés sur la figure 3.11-b et ils montrent clairement le même comportement des transitions que celui de la figure 3.11-a.

3.6 Conclusion du chapitre

Nous avons montré la faisabilité de la spectroscopie atomique sur la transition D_1 du Césium en vapeur d'épaisseur comprise entre 200 et 1300 nm. Avec l'utilisation de notre modèle théorique en cellule ultra mince nous avons pu obtenir un accord tout à fait satisfaisant avec nos résultats expérimentaux. Nous avons ainsi observé la renaissance de la cohérence Dicke à une épaisseur proche de $3\lambda/2$ dans le domaine optique. Il est alors imaginable d'utiliser une longueur d'onde plus petite (diode Ultra Violette à 389 nm utilisée pour sonder des niveaux excités du Césium par l'équipe) qui permettrait d'observer dans ces mêmes cellules ces effets de cohérence, jusqu'à $5\lambda/2$. De même, la cohérence Dicke à l'épaisseur de $\lambda/2$ présente l'intérêt d'obtenir des spectres fortement sub-Doppler en spectroscopie linéaire. Ainsi nous avons mis en évidence une différence entre les élargissements collisionnels à cette épaisseur de cellule mince et en cellule en volume (en réflexion sélective). Cette différence pourrait provenir de l'interaction entre la cavité (la cellule mince) et les atomes en collision.

Chapitre 4

Interaction atome-surface : théorie

4.1 Introduction

Nous pouvons en première approche interpréter l'interaction atome-surface comme l'interaction entre les fluctuations dipolaires atomique et leur image instantanée dans le milieu. Ainsi, la distance entre l'atome et la surface implique deux types de régime d'interaction liés à la vitesse finie de la propagation de la lumière : retardé et non retardé. Pour un atome dans l'état fondamental et en régime retardé, Casimir décrit parfaitement l'évolution de l'interaction atome-surface [45]. Nous nous intéressons plus particulièrement au régime d'interaction en champ proche, ce qui signifie une distance atome-surface très petite par rapport aux longueurs d'onde de couplage entre niveaux, typiquement de plusieurs microns. Il n'est donc pas question ici de séparer les régimes retardés et non retardés mais plutôt de définir l'interaction de van der Waals qui est alors applicable à une gamme de distance comprise entre 1 nm et 1 μm .

Dans ce chapitre, nous traitons pour commencer l'interaction de van der Waals avec une seule surface. Nous commençons par le cas simple d'un atome avec une surface métallique. Nous traitons ensuite des cas d'une surface diélectrique non dispersive puis dispersive. Et enfin, nous mettons en évidence des phénomènes de résonance entre certains milieux diélectriques dispersifs et certains niveaux atomiques.

Nous discutons ensuite de l'étude du cas particulier d'un croisement entre le potentiel atomique d'un niveau résonnant avec la surface (qui est alors répulsif à l'approche de la

surface) et le potentiel atomique d'un niveau non résonnant avec la surface (qui subit l'attraction usuelle). Ce croisement peut alors donner lieu à des états vibrationnels.

La dernière section de ce chapitre traite le cas, encore jamais étudié, d'un atome entre deux parois. Ce travail théorique est né de la nécessité d'interpréter nos résultats expérimentaux en cellules ultra minces présentés au chapitre 5. Ce développement se divise en deux. Le calcul, entièrement achevé, du cas des interactions non résonnantes entre atome et surfaces (transition D_1 du Césium avec une surface en YAG par exemple) est basé sur des travaux de Barton [32] et Nha & Jhe [46]. Puis, nous terminons avec la présentation d'un calcul préliminaire dans le cas d'une interaction résonnante ($6D_{3/2}$ du Césium avec YAG ou saphir par exemple).

4.2 Interaction de van der Waals atome-surface

4.2.1 Énergie potentielle d'un atome proche d'une surface métallique : modèle des images électriques

Dans cette partie nous allons expliquer, par le modèle de la théorie des images électriques, l'action d'une paroi sur un atome à courte distance¹. Une charge q dans le vide, localisée à une distance z d'une surface métallique plane quelconque, induit instantanément dans le milieu diélectrique une charge image de signe opposé et localisée en $-z$ [Jackson 75] [41]. Les atomes ne possèdent pas de moment dipolaire permanent. En revanche, il existe un dipôle instantané μ , lié aux fluctuations dipolaires, qui induit un dipôle électrique image μ^{image} dans la surface. L'atome se trouve alors dans le champ de ce dipôle image et l'énergie électrostatique est celle du moment dipolaire instantané de l'atome dans ce champ image induit.

Dans la suite du développement, nous reprendrons les notations de Fichet *et al.* 1995 [7]. La symétrie dans le plan (x,y) (voir figure 4.1) nous impose une décomposition du dipôle image suivant ses composantes parallèles (x,y) et perpendiculaires (z) à la surface. Ainsi, les composantes perpendiculaires des dipôles images et sources sont de mêmes signes

1. Pour les gammes d'énergies mises en jeu, les courtes distances sont inférieures à $1 \mu\text{m}$.

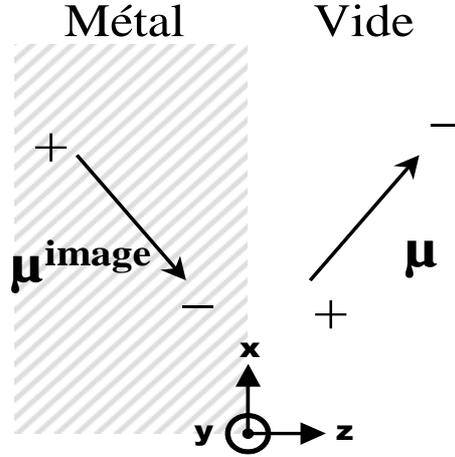


FIG. 4.1 – Le dipôle instantané μ de l'atome induit dans le milieu métallique un dipôle image μ^{image}

alors que les composantes parallèles sont de signes opposées. Nous les écrivons comme suit :

$$\mu_{x,y}^{image} = -\mu_{x,y} \quad \text{et} \quad \mu_z^{image} = \mu_z \quad (4.1)$$

L'énergie d'interaction V_{int} entre les deux dipôles², séparés d'une distance d quelconque, se calcule simplement à l'aide des lois de l'électrostatique :

$$V_{int}(z) = \frac{1}{2} \cdot \frac{\mu_x \mu_x^{image} + \mu_y \mu_y^{image} - 2\mu_z \mu_z^{image}}{d^3} \quad (4.2)$$

Après simplification, l'énergie d'interaction entre un atome et une surface métallique séparés de $d = 2z$ s'écrit :

$$V_{int}(z) = -\frac{\mu_x^2 + \mu_y^2 + 2\mu_z^2}{16z^3} \quad (4.3)$$

Les différents termes de ce résultat (4.3) sont toujours positifs. Le signe de l'interaction est donc toujours négatif, ce qui signifie que l'interaction de van der Waals entre un atome et une surface métallique est toujours attractive.

Du point de vue quantique, dans l'approximation de la théorie des perturbations, l'énergie d'interaction d'un niveau atomique $|a\rangle$ quelconque devient, après l'utilisation du

2. Nous réutiliserons cette approche pour les images multiples d'un dipôle dans une cavité, *c.f.* section 4.4.

principe de correspondance, appliqué à l'équation (4.3) et de la relation de fermeture :

$$\langle a | V_{int}(z) | a \rangle = -\frac{1}{16z^3} \sum_n \left(|\mu_x^{an}|^2 + |\mu_y^{an}|^2 + 2|\mu_z^{an}|^2 \right) \quad (4.4)$$

avec

$$\mu_i^{an} = \langle a | \boldsymbol{\mu}_i | n \rangle, \quad i = x, y, z \quad (4.5)$$

et $\boldsymbol{\mu}_i$ l'opérateur dipolaire électrique. La somme est effectuée sur tous les niveaux atomiques $|n\rangle$ reliés par une transition dipolaire électrique au niveau $|a\rangle$.

La somme sur transitions dipolaires nous montre que, plus l'atome est excité, c'est-à-dire plus ses fluctuations dipolaires sont importantes, plus il induit un couplage fort avec la surface. C'est pourquoi lors de la spectroscopie d'un atome proche d'une surface (en général non métallique) entre le niveau fondamental et un niveau excité, on néglige le déplacement du niveau fondamental pour prendre en compte uniquement celui du niveau excité.

4.2.2 Changement de la durée de vie d'un niveau atomique près d'une surface

La durée de vie d'un état excité atomique dans le vide est un effet du couplage avec le continuum des modes électromagnétiques du vide. Lorsque que l'atome se trouve proche d'une surface (cavité semi-infinie) ou entre deux parois (cavité), la distribution des modes du continuum est changée, et par conséquent la probabilité de désexcitation de l'atome en est modifiée.

Des calculs d'Électrodynamique Quantique [Meschede 90, Dalibard 82] [42, 43], sur un système à deux niveaux, ont montré que le taux de désexcitation près d'une surface métallique pouvait s'annuler ou doubler en $z = 0$, pour une orientation du dipôle atomique respectivement parallèle ou perpendiculaire à la surface. Puis, lorsque la distance à la surface z augmente, les taux de désexcitation du dipôle, qu'il soit orienté parallèlement ou perpendiculairement, entament des oscillations amorties.

En revanche, en champ proche et pour une surface diélectrique, le taux d'émission spontanée augmente toujours à l'approche d'une surface (pour une distance inférieure à $\lambda/2$) en raison de la désexcitation en ondes évanescentes dans le diélectrique, et croît

exponentiellement pour être jusqu'à triplé en $z = 0$ pour un indice optique de la surface de $n = 3$ [Lukosz 77] [44].

4.2.3 Interaction de van der Waals entre le niveau atomique fondamental et un milieu diélectrique non dispersif

Dans le calcul précédent, le remplacement d'un milieu métallique par un diélectrique idéal introduit le coefficient de réflexion de la géométrie plan-plan $\frac{\epsilon - 1}{\epsilon + 1}$ entre le dipôle objet et son image avec ϵ la constante diélectrique du milieu. Ainsi, l'énergie d'interaction d'un niveau atomique $|a\rangle$ quelconque avec une surface diélectrique idéale s'écrit comme :

$$\langle a | V_{int}(z) | a \rangle = -\frac{1}{16z^3} \cdot \frac{\epsilon - 1}{\epsilon + 1} \sum_n \left(|\mu_x^{an}|^2 + |\mu_y^{an}|^2 + 2|\mu_z^{an}|^2 \right) \quad (4.6)$$

avec les mêmes notations que précédemment.

Cette approche simpliste est justifiée dans la plupart des problèmes atome-surface tant que la réponse du milieu ϵ reste indépendante de la fréquence. Or, la constante diélectrique dépend toujours de la fréquence et dans le cas où les transitions dipolaires, qui contribuent majoritairement à la réponse du milieu, sont dans une gamme spectrale sans résonance, alors prendre la valeur de ϵ dans cette région (4.6) est une excellente approximation.

4.2.4 Interaction de van der Waals entre le niveau atomique fondamental et un milieu diélectrique dispersif

Pour traiter le problème de l'interaction de van der Waals entre un atome et une surface diélectrique dispersive, il existe plusieurs approches. Dans le domaine de l'Électrodynamique Quantique, Barton a par exemple calculé uniquement le couplage de l'atome avec les modes électromagnétiques de surface [32]. Une autre méthode utilise la théorie de la réponse linéaire [McLachlan, Mavroyannis, Wylie & Sipe] [3, 4, 5, 6] qui est facile à généraliser pour différents modèles de surface, mais pour laquelle la difficulté consiste à calculer la susceptibilité du champ dans le système physique considéré. Wylie & Sipe en 1984-85 [5, 6] ont réalisé le calcul complet du déplacement et de la modification de la durée de vie d'un niveau atomique près d'une surface diélectrique.

Dans ce formalisme, l'interaction de van der Waals provient d'une intégrale sur les fréquences imaginaires pures (iu) de la réponse optique du solide. Cette réponse optique tient compte de la dépendance en fréquence du coefficient de réflexion du milieu. Le déplacement du niveau fondamental $|g\rangle$ s'écrit en utilisant les notations de [Fichet *et al.* 95] [7]:

$$V_g(z) = -\frac{1}{16z^3} \cdot \sum_n \left[|\mu_x^{gn}|^2 + |\mu_y^{gn}|^2 + 2|\mu_z^{gn}|^2 \right] \cdot \underbrace{\frac{2}{\pi} \int_0^{+\infty} \frac{\epsilon(iu) - 1}{\epsilon(iu) + 1} \cdot \frac{\omega_{gn}}{\omega_{gn}^2 + u^2} du}_{r(\omega_{gn})} \quad (4.7)$$

avec iu la fréquence imaginaire pure, $\omega_{gn} = (E_n - E_g)/\hbar$ la pulsation de la transition $|g\rangle \rightarrow |n\rangle$ et E_i les énergies des niveaux associés.

Le coefficient d'image diélectrique $r(\omega_{gn})$ est une fonction monotone décroissante en fréquence. En prenant par exemple une surface de silice vitreuse, r varie entre 0.6 et 0.4 de 0 à 10^{15} Hz (il y a des différences dans l'UV que nous négligerons car le milieu devient opaque). La réponse d'un milieu diélectrique dispersif dans le niveau fondamental ne présente aucune différence qualitative avec une surface métallique ou non dispersive.

4.2.5 Interaction de van der Waals entre niveau excité et milieu diélectrique dispersif

4.2.5.1 Déplacement du niveau excité

L'expression de l'interaction van der Waals du niveau fondamental se généralise à n'importe quel niveau excité [5, 6, 7]. L'analogie de l'équation (4.7) pour un niveau excité quelconque $|e\rangle$ s'écrit :

$$V_e(z) = -\frac{1}{16z^3} \cdot \sum_{n'} \left(|\mu_x^{en'}|^2 + |\mu_y^{en'}|^2 + 2|\mu_z^{en'}|^2 \right) \times \underbrace{\left[\frac{-2}{\pi} \int_0^{+\infty} \frac{\epsilon(iu) - 1}{\epsilon(iu) + 1} \cdot \frac{|\omega_{en'}|}{\omega_{en'}^2 + u^2} du + 2\Re \left[\frac{\epsilon(|\omega_{en'}|) - 1}{\epsilon(|\omega_{en'}|) + 1} \right] \cdot \Theta(-\omega_{en'}) \right]}_{r_{excité}(\omega_{en'})} \quad (4.8)$$

où \Re signifie "partie réelle de" et $\Theta(x)$ est la fonction de Heaviside (égale à 0 pour $x < 0$ et 1 pour $x > 0$). Afin de discerner les différentes transitions possibles, par convention, lorsque le niveau $|n'\rangle$ est plus énergétique que le niveau $|e\rangle$ alors $\omega_{en'} > 0$ (il y a un

couplage dipolaire en émission de la surface comme pour le niveau fondamental). Et à l'inverse, lorsque le niveau $|n'\rangle$ est moins énergétique que le niveau $|e\rangle$ alors $\omega_{en'} < 0$ (il y a une absorption virtuelle de la surface).

Si l'on considère un niveau atomique excité $|e\rangle$ qui possède un couplage atomique en émission (absorption virtuelle de la surface) à une fréquence proche de celle d'une résonance de $r_{excité}(\omega_{en'})$, alors le nouveau terme $2\Re \left[\frac{(\epsilon(|\omega_{en'}|) - 1)}{(\epsilon(|\omega_{en'}|) + 1)} \right]$, qui peut être grand devant l'unité, va augmenter la réponse du milieu et induire une interaction de van der Waals beaucoup plus grande que dans le cas non résonnant [7]. De plus, suivant le signe positif ou négatif du coefficient de réflexion diélectrique $r_{excité}(\omega_{en'})$, cette interaction pourra être fortement attractive ou répulsive [Fichet 95, Gorza 01] [7, 8].

L'exemple du saphir (figure 4.2) montre que $r_{excité}(\omega_{en'})$ présente une dispersion centrée sur $12.15 \mu\text{ m}$ d'amplitude très supérieure à l'unité. Ce sont ces résonances du saphir, correspondant à des transitions excitées d'un atome (ici le Césium), qui changent l'interaction de van der Waals en une interaction résonnante.

4.2.5.2 Interprétation du couplage avec le diélectrique dispersif : le polariton de surface

Un polariton de surface est une excitation élémentaire qui se propage à la surface d'un milieu solide. Le polariton résulte du couplage entre un photon et un mode de surface du milieu comme un phonon. Les modes polaritons se situent en général dans le domaine des fréquences infrarouges, et par conséquent le couplage photon/phonon est nécessairement aussi dans cette gamme (dans l'UV, ce sont des modes plasmons polaritons).

Le mode polariton est un mode électromagnétique confiné à la surface. Il se propage suivant la surface et son champ est évanescent aussi bien dans le vide que dans le milieu diélectrique.

L'interaction résonnante entre un atome dans un niveau $|a\rangle$ et une surface s'interprète comme le couplage entre une émission virtuelle de ce niveau atomique $|a\rangle$ vers un niveau de plus faible énergie $|b\rangle$ et une excitation virtuelle $|U\rangle \rightarrow |W\rangle$ d'un mode électromagnétique de surface (le polariton de surface) [32].

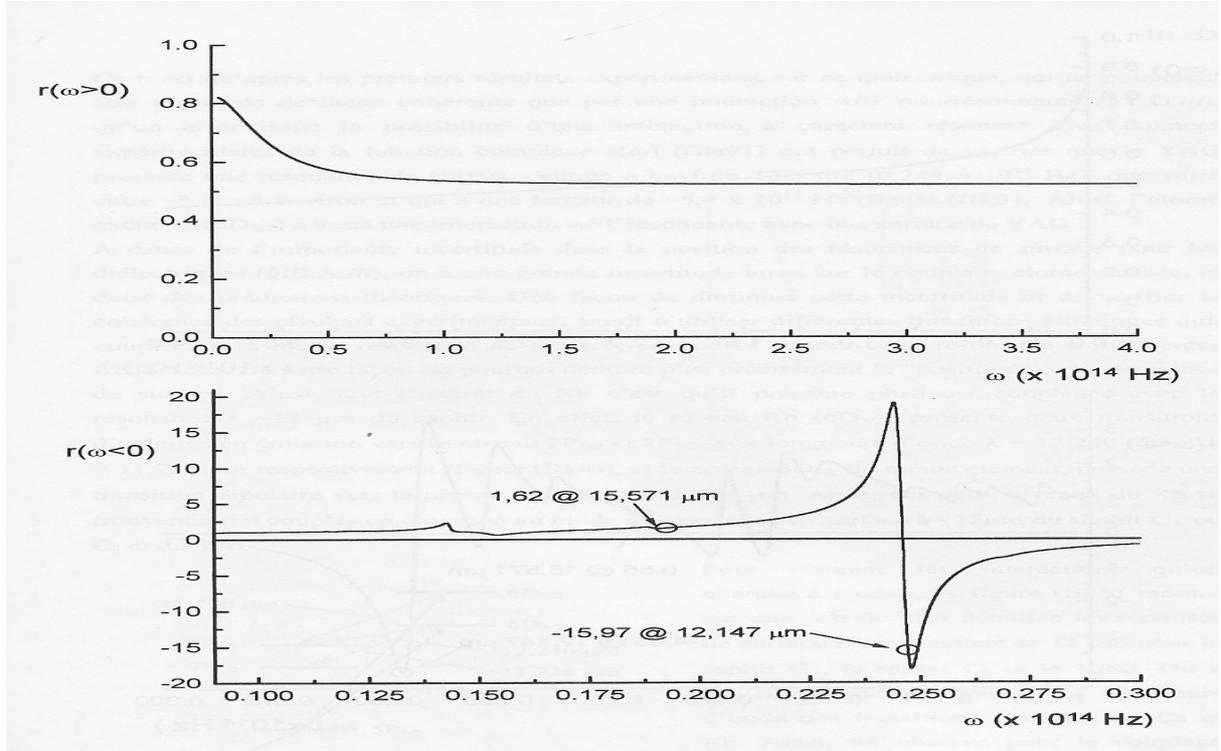


FIG. 4.2 – Coefficient d’image diélectrique pour le saphir c_{\perp} . Par convention $r(\omega > 0)$ et $r(\omega < 0)$ correspondent au couplage de la surface respectivement en émission et en absorption. Les fréquences des couplages avec les transitions du Césium $6D_{3/2} \rightarrow 7P_{1/2}$ ($\approx 12 \mu\text{m}$) et $6D_{3/2} \rightarrow 7P_{3/2}$ ($\approx 15.5 \mu\text{m}$) sont détaillées.

4.2.5.3 Changement de la durée de vie d’un niveau excité proche d’une paroi diélectrique dispersive

La durée de vie d’un niveau excité est perturbée lorsque l’atome est placé à proximité d’une surface (voir paragraphe 4.2.2) et ceci d’autant plus si ses transitions atomiques sont dans une même gamme d’énergie que les résonances de la surface. Le taux de désexcitation d’un niveau excité Γ_e , à une distance z de la surface, a été calculé par Wylie & Sipe en 1984 [5] en champ proche pour un niveau $|e\rangle$:

$$\Gamma_e(z) = -\frac{1}{8\pi z^3} \cdot \sum_{n'} \left[|\mu_x^{en'}|^2 + |\mu_y^{en'}|^2 + 2|\mu_z^{en'}|^2 \right] \cdot 2\Im \left[\frac{\epsilon(\omega_{en'}) - 1}{\epsilon(\omega_{en'}) + 1} \cdot \Theta(-\omega_{en'}) \right] \quad (4.9)$$

avec \Im la "partie imaginaire".

Ce résultat diffère du cas précédent (section 4.2.2) d'un niveau atomique quelconque avec une paroi diélectrique non dispersive [Lukosz 77] [44] où seule une désexcitation réelle dans le mode évanescent de la surface avait lieu. Dans le cas du diélectrique dispersif, il faut rajouter la contribution des multiples désexcitations virtuelles possibles du niveau excité de l'atome vers les modes de surface au cas précédent. Cette contribution résonnante supplémentaire est alors prépondérante.

La dépendance de la relaxation du niveau excité est en z^{-3} : plus l'atome se rapproche de la surface et plus la durée de vie de son niveau excité est courte. Le déplacement en énergie et le taux de désexcitation correspondent respectivement à la partie réelle (non dissipative) et imaginaire (dissipative) du même couplage qui peut s'expliquer par le couplage dissipatif entre une transition dipolaire en émission et l'excitation d'un mode électromagnétique de surface [Failache 2002] [10].

4.2.6 Évaluations théoriques de l'interaction van der Waals pour des surfaces de YAG et de saphir

4.2.6.1 Les coefficients d'image diélectrique du YAG et du saphir

Les coefficients d'image diélectrique permettent de fournir des prédictions théoriques sur les résonances entre différents matériaux et niveaux atomiques. Les précisions sur ces données sont cruciales pour que les estimations théoriques puissent être exploitables par les expériences.

Les données actuellement utilisées proviennent de la compilation de Palik [40] qui regroupe différentes mesures. Il existe des modèles théoriques permettant d'avoir une forme analytique de la réponse du milieu qui sont utilisés lors des calculs. Le problème de ces valeurs réside principalement dans le fait qu'elles sont très sensibles à la température qui induit des variations sur les élargissements ou déplacements des résonances. Or, les mesures de ces résonances ont été faites uniquement pour quelques températures et les couplages résonnants entre les transitions atomique et le milieu sont extrêmement sensibles à la position exacte de la résonance du milieu, faussant ainsi les estimations théoriques d'une quantité mal définie.

Les figures 4.2 et 4.3 présentent les courbes de la réflexion de l'image diélectrique pour

le YAG et le saphir.

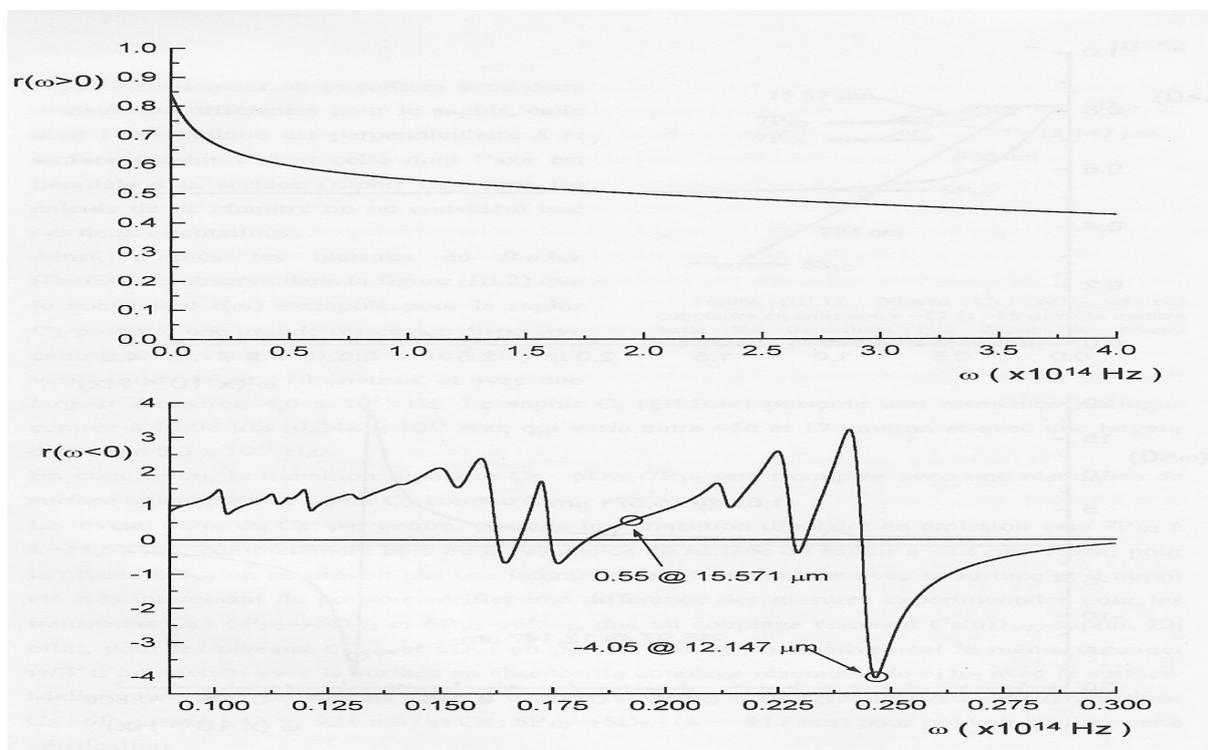


FIG. 4.3 – Coefficient d’image diélectrique pour le YAG. Par convention $r(\omega > 0)$ et $r(\omega < 0)$ correspondent au couplage de la surface respectivement en émission et en absorption. Les fréquences des couplages avec les transitions du Césium $6D_{3/2} \rightarrow 7P_{1/2}$ ($\approx 12 \mu\text{m}$) et $6D_{3/2} \rightarrow 7P_{3/2}$ ($\approx 15.5 \mu\text{m}$) sont détaillées.

Comme noté sur la figure 4.3, il existe des transitions du Césium dans la gamme de fréquence comportant des résonances du YAG. Le travail de mise en coïncidence entre les matériaux et les atomes a été l’objet d’une partie de la thèse d’Horacio Failache [37] et publications [7, 11].

4.2.6.2 Calcul numérique du déplacement van der Waals

Il nous faut à présent regarder le calcul explicite de l’effet van der Waals connaissant les données sur les surfaces (voir par exemple [37, 7, 11]).

La méthode. En reprenant le résultat précédent, équation (4.8), on définit le coefficient de proportionnalité C_3^a que l'on considérera indépendant de la distance entre l'atome et la surface³ pour un niveau $|a\rangle$ donné quelconque :

$$V_a(z) = -\frac{C_3^a}{z^3} \quad (4.10)$$

Ce coefficient s'écrit comme une somme sur les différentes transitions accessibles du niveau $|a\rangle$ pondérée du coefficient de réflexion diélectrique $r_{excité}(\omega_{en'})$, *c.f.* (4.8), associé à chaque transition ([37, 11] et annexe C). Il s'agit alors de le calculer pour un niveau et une surface donnés, afin de connaître le potentiel de ce niveau à une distance quelconque z . Par ailleurs, puisque nous observons une transition atomique entre deux niveaux, il faut soustraire leur deux potentiels afin d'obtenir l'écart en énergie mesurée :

$$\Delta\omega_{|a\rangle\rightarrow|b\rangle}(z) = -\frac{[C_3^b - C_3^a]}{z^3} = -\frac{C_3^{[b-a]}(|a\rangle \rightarrow |b\rangle)}{z^3} \quad (4.11)$$

avec $|a\rangle$ et $|b\rangle$ deux niveaux tels qu'une transition soit permise.

Les exemples du YAG et du saphir avec le Césium. Ces deux matériaux ont l'intérêt d'avoir une forte résonance avec un niveau excité du Césium (figure 4.4 et 4.2, 4.3). Les valeurs du coefficient $C_3^{6D_{3/2}}$ ont été calculées par Fichet 1995 et Failache 2003 [37, 7, 11]. Par exemple, pour le niveau $6P_{1/2}$ le calcul nécessite uniquement la prise en compte des transitions vers les niveaux $nS_{1/2}$ (avec $6 \leq n \leq 9$) et $nD_{3/2}$ (avec $5 \leq n \leq 9$). La figure 4.4 présente en flèches plus ou moins épaisses les poids relatifs des différents couplages, les transitions atomiques de longueurs d'onde très différentes de $12.15 \mu\text{m}$ sont alors négligeables⁴. Il faut aussi distinguer les différentes orientations de l'axe optique de la surface pour le saphir. En effet, la polarisation induite dans le milieu et donc la réponse du milieu est différente suivant son axe de polarisation. Les résultats théoriques nous concernant sont regroupés dans le tableau 4.1 et leurs confrontations avec les expériences sont présentées dans [11].

De plus, il est important de remarquer que dans le cas du niveau $6D_{3/2}$ avec une surface dont l'axe optique est perpendiculaire (c_\perp), on peut se contenter de ne considérer dans

3. Entre 1 nm et $1\mu\text{m}$.

4. La somme de toutes ces contributions négligeables reste négligeable.

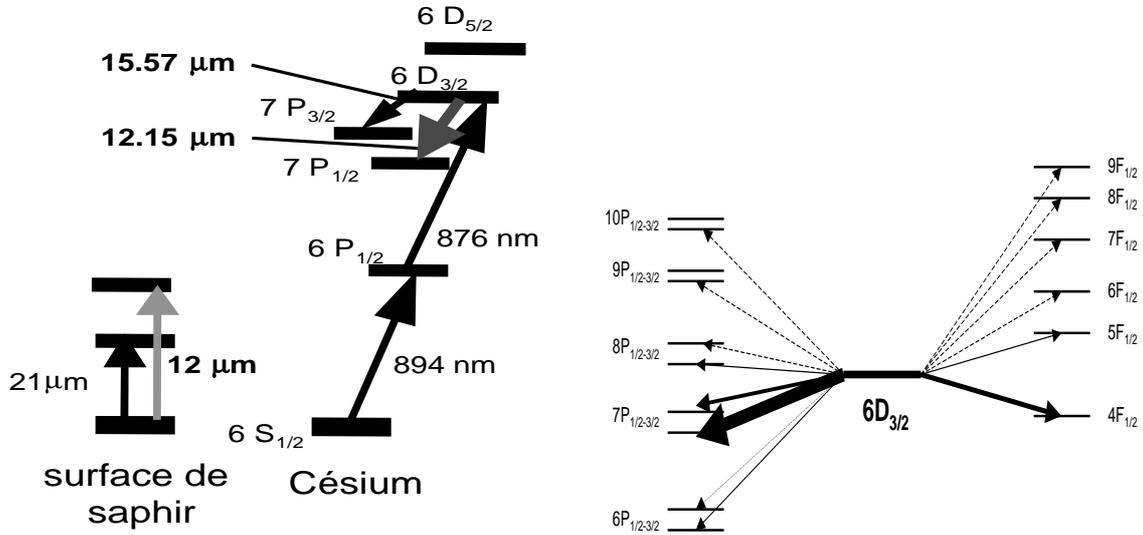


FIG. 4.4 – (a) Niveau du Césium et des résonances avec le saphir. (b) Les contributions des transitions prépondérantes du niveau $6D_{3/2}$ du Césium avec une surface de saphir c_{\perp} . L'épaisseur des flèches représente l'importance relative des contributions.

les calculs que la transition $6D_{3/2} \rightarrow 7P_{1/2}$ à 12.15 μm tant celle-ci domine la réponse de la surface⁵. Les autres résonances du saphir ainsi que les autres transitions permises du niveau $6D_{3/2}$ restent alors négligeables dans le calcul. Nous présentons ces résultats dans le tableau 4.1 sous la forme du déplacement induit sur la transition (le C_3^{a-b}).

Transition $6P_{1/2} \rightarrow 6D_{3/2}$	Silice vitreuse	Saphir c_{\perp}	YAG
$C_3^{[6D_{3/2}-6P_{1/2}]}$ (kHz. μm^3)	9.4	-98.6	-18.3

TAB. 4.1 – Coefficient de van der Waals $C_3^{[6D_{3/2}-6P_{1/2}]}$ de la transition $6P_{1/2} \rightarrow 6D_{3/2}$ pour les surfaces de silice, YAG et saphir [11].

5. Ceci n'est plus totalement valable lorsque l'atome est très proche de la surface (voir section 4.3).

Nous avons reporté la valeur du coefficient de van der Waals pour une surface comme la silice vitreuse qui ne présente pas de résonance avec le niveau $6D_{3/2}$ de l'atome de Césium. Cette valeur est positive et de l'ordre de $6 \text{ kHz} \cdot \mu\text{m}^3$ pour cette transition, ce qui correspond à une force de van der Waals attractive.

Le résultat est très différent avec le YAG et le saphir qui sont résonnants avec la transition $7P_{1/2} \rightarrow 6D_{3/2}$ du Césium. Le résultat est une augmentation de l'amplitude de l'effet van der Waals d'un facteur compris entre 3 et 20, le signe est changé pour le YAG et le saphir c_{\perp} , et le potentiel du niveau $6D_{3/2}$ devient alors fortement répulsif.

Nous discutons au chapitre 5 de l'effet de cette résonance dans des expériences en cellule ultra mince menée jusqu'à des épaisseurs inférieures à 50 nm (l'atome est à moins de 25 nm d'une surface) sur la transition non résonnante D_1 et résonnante $6P_{1/2} \rightarrow 6D_{3/2}$ ainsi que des références aux expériences qui ont mis en évidence ce phénomène.

4.3 Croisement de niveaux par répulsion-attraction

4.3.1 Introduction

Nous venons de voir que l'interaction entre une surface de saphir c_{\perp} et un atome de Césium dans le niveau $6D_{3/2}$ à l'approche de la surface est fortement répulsive à cause de la résonance. En revanche, le niveau supérieur $6D_{5/2}$ de la structure hyperfine du Césium $6D$, situé à 1.3 THz du niveau inférieur $6D_{3/2}$ (loin de la surface), n'est pas résonnant avec la surface et l'interaction est attractive comme à l'accoutumée. Les sous-niveaux hyperfins se comportent tous de manière identique et nous ne traiterons que des niveaux hyperfins pour simplifier. Le sujet de cette partie consiste en l'étude du croisement entre ces deux niveaux à l'approche de la surface. Nous verrons par la suite que la distance estimée pour ce croisement entre les niveaux $6D_{3/2}$ et $6D_{5/2}$ avec une surface de saphir c_{\perp} est de l'ordre de 5 nm. Ces niveaux pourraient alors subir, par couplage van der Waals, un croisement évité. Celui-ci pourrait induire des états liés dans le puits de potentiel ainsi formé qui seraient observables par une spectroscopie entre ces deux niveaux.

Cette distance atome-surface excessivement petite ouvre des perspectives nouvelles pour l'étude de l'interaction atome-surface à des distances jamais explorées.

4.3.2 Description qualitative du croisement de niveaux

Nous nous intéressons ici à la détermination précise de la distance entre l'atome et la surface lors du croisement. Ce calcul permet d'estimer la profondeur du puits de potentiel ainsi créé (elle est très sensible à la distance du croisement) dans la mesure où le calcul du couplage entre ces deux niveaux n'est pas effectué. Le déplacement du niveau $6D_{3/2}$ (répulsif) est beaucoup plus important que celui du niveau $6D_{5/2}$ (attractif), les coefficients $C_3^{6D_{3/2}}$ et $C_3^{6D_{5/2}}$ expérimentaux valent respectivement $-160 \text{ kHz} \cdot \mu\text{m}^3$ et $10 \text{ kHz} \cdot \mu\text{m}^3$. La figure 4.5 représente les énergies des niveaux $6D_{3/2}$ et $6D_{5/2}$ en fonction de la distance à la surface. Une première estimation de la distance de croisement peut se faire en considérant les deux coefficients C_3^a comme constants en fonction de z . La distance calculée est alors de $z = 5.1 \text{ nm}$ pour une profondeur du puits de potentiel de 80 GHz . Mais il faut néanmoins affiner cette démarche car les coefficients C_3^a ne sont plus nécessairement constants lorsque l'atome est aussi proche de la surface.

Pour cela, regardons plus en détail les interactions lorsque l'atome se rapproche fortement de la surface. Comme nous l'avons vu, l'interaction résonnante entre le niveau $6D_{3/2}$ et la surface de saphir est gouvernée par la fréquence de la transition $6D_{3/2} \rightarrow 7P_{1/2}$ que nous écrirons Ω_0 et par la contribution correspondante du pic dispersif de la résonance du saphir. La figure 4.6-a montre la résonance dispersive du saphir autour de $12 \mu\text{m}$, d'une largeur de 400 GHz environ.

Lors des expériences du groupe en réflexion sélective [9, 11], les atomes sont sondés à des distances moyennes de l'ordre de 100 nm . Cela signifie que le déplacement en énergie du niveau $6D_{3/2}$ est tout au plus de quelques dizaines de MHz. De même, au cours des expériences en cellule mince que nous décrirons au chapitre suivant, les déplacements en énergie n'excèdent pas quelques GHz (même pour le niveau résonnant $6D_{3/2}$), ce qui correspond à une variation⁶ de Ω_0 petite par rapport à la largeur de la résonance. Cette petite variation correspond à une distance atome-surface de l'ordre de 100 nm et pour laquelle C_3^a est constant. Cette approximation n'est plus valable lorsque la variation d'énergie du niveau atomique devient importante, soit pour des distances atome-surface inférieures à 10 nm .

Pour le niveau $6D_{5/2}$, son coefficient $C_3^{6D_{5/2}}$ est pratiquement indépendant des réso-

6. à l'échelle de la figure 4.6-a, cette variation est invisible.

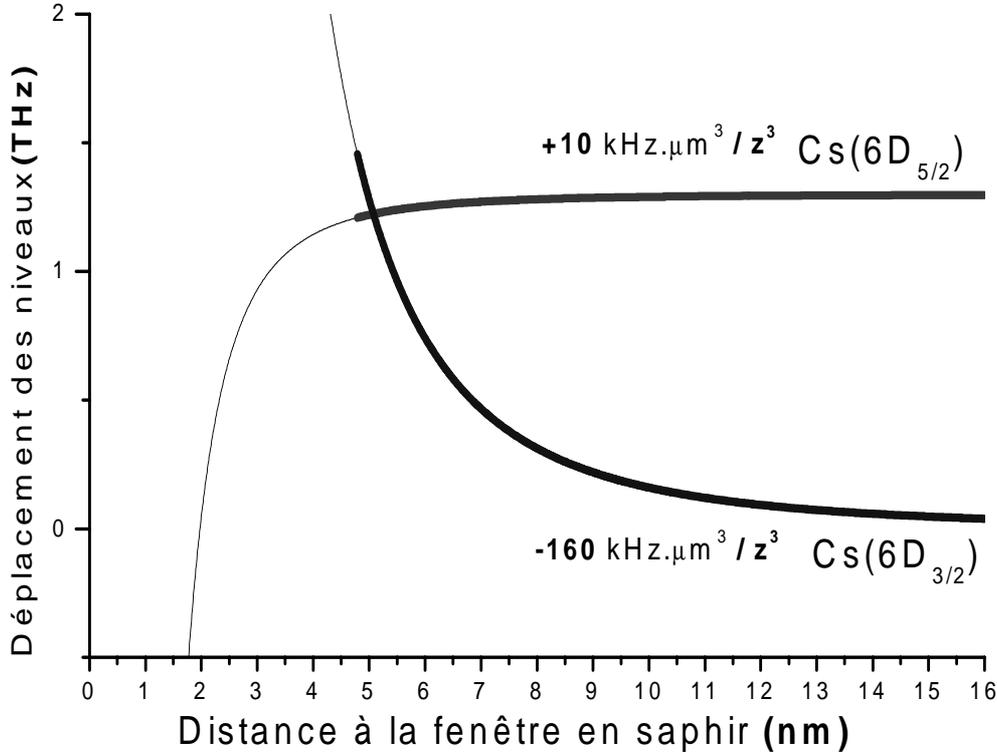


FIG. 4.5 – Représentation du potentiel des niveaux $6D_{3/2}$ et $6D_{5/2}$ du Césium, séparés de 1.3 THz, en fonction de la distance à une surface de saphir c_{\perp} . On remarque un croisement entre ces deux niveaux pour une distance de l'ordre de $z = 5 \text{ nm}$

nances du saphir, impliquant ainsi qu'au cours du rapprochement de l'atome vers la surface ce coefficient reste constant, même lorsque le niveau est fortement déplacé vers le rouge (potentiel attractif).

En revanche, il faut prendre en compte la variation de la réponse de la surface avec la fréquence pour le coefficient $C_3^{6D_{3/2}}$. En effet, lorsque le niveau $6D_{3/2}$ est fortement déplacé, il est nécessaire de recalculer l'interaction entre le milieu diélectrique et les niveaux atomiques déplacés par van der Waals: $C_3^{6D_{3/2}}$ est fonction de la distance à la surface z . Pour ce calcul, rappelons que la résonance à $12.15 \mu\text{m}$ du saphir est dominante dans l'interaction avec le niveau $6D_{3/2}$. Le niveau $7P_{1/2}$, comme le niveau $6D_{5/2}$, ne possède pas d'absorption résonnante vers le niveau $6D_{3/2}$ et leurs coefficients $C_3^{7P_{1/2}}$ et $C_3^{6D_{5/2}}$ sont

considérés comme constants. De manière qualitative, lorsque l'atome de Césium dans le niveau résonnant $6D_{3/2}$ se rapproche de la surface, le déplacement en énergie de ce niveau est tellement important qu'il induit un changement de la réponse du coefficient d'image diélectrique. Ce coefficient alors est déplacé vers les hautes fréquences (car ce niveau est répulsif et que le niveau $7P_{1/2}$ est faiblement attractif). Nous pouvons visualiser sur la figure 4.6-b ce changement d'énergie de la transition résonnante $6D_{3/2} \rightarrow 7P_{1/2}$ sur la courbe de réponse du saphir (l'image diélectrique) par le déplacement de Ω_0 (le gros point noir) vers les hautes fréquences avec le rapprochement de l'atome vers la surface.

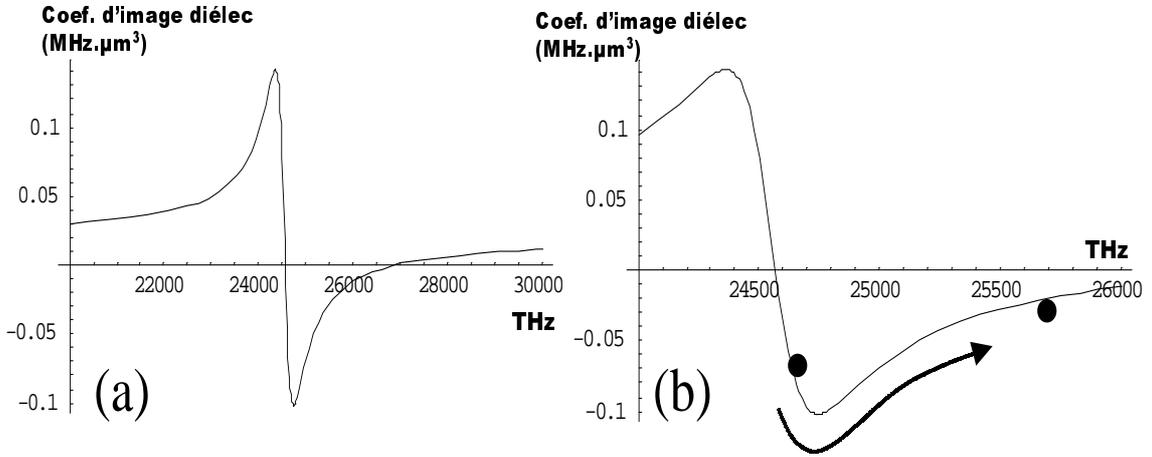


FIG. 4.6 – (a) : Coefficient d'image diélectrique du saphir autour de la résonance à $12.15 \mu\text{m}$. (b) : Zoom de (a), le point noir de gauche représente Ω_0 loin de la surface et la flèche sa variation jusqu'au croisement estimé au deuxième point noir à droite en $z \approx 5\text{nm}$.

4.3.3 Estimation théorique de la distance à la surface pour le croisement de niveau

La difficulté de la mise en équation du potentiel du niveau $6D_{3/2}$ en fonction de la distance à la surface et pour de faibles distances réside dans la détermination de $C_3^{6D_{3/2}}(z)$ que nous pouvons résumer par l'équation différentielle de la variation de l'énergie du niveau $6D_{3/2}$ en z :

$$\omega_{6D_{3/2}}(z + dz) - \omega_{6D_{3/2}}(z) = \left[C_3^{6D_{3/2}}(\omega_{6D_{3/2}}(z) - \omega_{7P_{1/2}}(z)) \right] \left[\frac{1}{(z + dz)^3} - \frac{1}{z^3} \right] \quad (4.12)$$

où $C_3^{6D_{3/2}}(\omega_{6D_{3/2}}(z) - \omega_{7P_{1/2}}(z))$ est bien une fonction de la fréquence de la transition $6D_{3/2} \rightarrow 7P_{1/2}$, qui elle-même dépend de z et où ω_a est la fréquence du niveau $|a\rangle$.

On explicite alors l'équation différentielle directement de (4.12) :

$$\frac{d\omega_{6D_{3/2}}}{dz} = -\frac{3}{z^4} C_3^{6D_{3/2}} [\omega_{6D_{3/2}}(z) - \omega_{7P_{1/2}}(z)] \quad (4.13)$$

avec :

$$\omega_{7P_{1/2}}(z) = \omega_{7P_{1/2}} \cdot \frac{-C_3^{7P_{1/2}}}{z^3} \quad (4.14)$$

Ainsi, sans avoir écrit la dépendance en z de $C_3^{6D_{3/2}}$, nous avons défini son comportement à l'approche d'une surface. Il est maintenant possible d'utiliser par exemple un modèle Lorentzien pour la résonance du saphir :

$$C_3^{6D_{3/2}}(z) = \beta \frac{(\Omega(z) - \Omega_R) \Gamma}{\Gamma^2 + (\Omega(z) - \Omega_R)^2} - \alpha \quad (4.15)$$

avec

$$\Omega(z) = \omega_{6D_{3/2}}(z) - \omega_{7P_{1/2}}(z) \quad (4.16)$$

et Ω_R est le centre de la résonance de la surface, Γ la demi largeur de cette résonance, α l'offset de la résonance de manière à tenir compte des autres transitions et β une constante d'ajustement d'amplitude.

4.3.4 Résultat et conclusion

Le résultat numérique du problème tel qu'il a été présenté en (4.12) avec la condition (4.15) donne une distance atome-surface de l'ordre de 4.5 nm.

Il a également été possible d'utiliser des raffinements théoriques de la variation des niveaux $7P_{1/2}$ et $6D_{5/2}$, ainsi que de l'ajustement du coefficient $C_3^{6D_{3/2}}$ avec la distance. Les distances entre l'atome et la paroi restent très proches de la première évaluation : la variation maximale est de 0.3 nm. En effet, le niveau $6D_{3/2}$ (potentiel répulsif) de l'atome subit beaucoup plus de variation d'énergie lorsqu'il est à cette distance de la surface que n'importe quel autre niveau à la même distance.

Il est à noter que nous n'avons pas cherché ici à quantifier le temps de vie du niveau excité et il reste à savoir si les états liés auraient le temps d'interagir avec une excitation

lumineuse (voir chapitre 6). De plus, rappelons que le couplage entre les deux niveaux n'a pas été calculé et que la durée de vie des états liés est fortement corrélé à ce couplage par la probabilité de transition du puits de potentiel vers le niveau inférieur.

4.4 Interaction atome-2 surfaces

4.4.1 Introduction

La configuration d'un atome entre deux parois diélectriques correspond à la géométrie de la cellule mince. Cette géométrie est radicalement différente d'une surface unique, notamment à cause des images multiples du dipôle atomique générées dans les deux parois. Ce type de calcul avait déjà été fait pour une surface diélectrique par Barton en 1997 [32], mais uniquement pour un atome au milieu des deux parois. Afin de modéliser la cellule mince, il faut intégrer sur toutes les positions des atomes et donc connaître le potentiel atomique induit par des parois à une distance quelconque.

Cette démarche est totalement nouvelle car jusqu'à présent, la seule expérience sur l'interaction de van der Waals entre deux parois a été réalisée avec des atomes issus d'un jet atomique et passant entre deux plaques d'écartement variable [Hinds 91, Sandoghdar 92, 96] [12, 13, 14]. Nous allons présenter, pour plus de clarté, le détail du cas d'un atome entre deux miroirs parfaits. L'extension aux surfaces diélectriques puis diélectriques dispersives sera ensuite résumée dans ses grandes lignes. Il s'agit d'un travail actuellement en cours de traitement avec Solomon Salties.

4.4.2 Modèle électrostatique d'un atome entre deux parois

Commençons par regarder les images multiples sur la figure 4.7. Deux surfaces métalliques parfaites sont séparées d'une distance L . 0 représente le dipôle objet à une position quelconque normalisée z' ($z' = 0$ au centre des plaques et $z' = \pm 1$ sur les bords). 1 et 1' sont les deux premières images, 2 et 2' les secondes et ainsi de suite à l'infini (l'exposant *prime* servant juste à distinguer les deux images de même ordre). Nous voyons aussi que les images paires sont toujours situées à une distance de l'objet indépendante de sa position entre les parois.

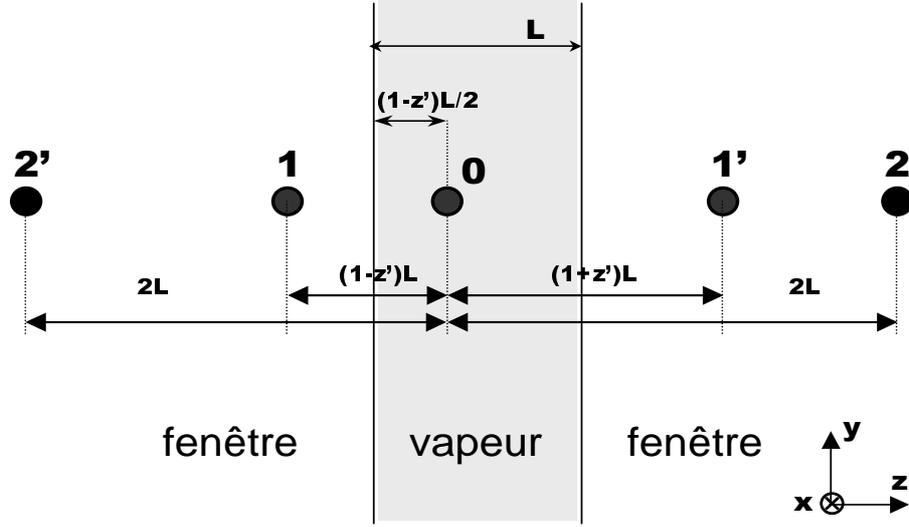


FIG. 4.7 – Distance entre les réflexions multiples et l'objet situé entre deux parois

La figure 4.8 montre l'orientation des dipôles induits dans les surfaces. Il y apparaît nécessaire de discerner les composantes perpendiculaires et parallèles du dipôle comme en 4.2.1 avec une surface. En effet, pour deux surfaces, la composante de l'image suivant l'axe z reste dans la même orientation que celle de l'objet, quelque soit l'ordre de la réflexion. En revanche, dans le plan des surfaces (x,y) , pour chaque réflexion paire, l'orientation des moments dipolaires images est la même que celle du moment dipolaire objet, ce qui implique un changement de signe à chaque ordre de réflexion.

L'expression de l'interaction entre le dipôle source et ses dipôles images multiples s'inspire directement de l'équation (4.2) (qui est restreinte à un dipôle et son unique dipôle image) dans le cas de miroirs parfaits. Il faut ici sommer sur tous les dipôles images :

$$V_{int}(z') = \underbrace{\sum_{i=1}^{+\infty} \frac{\mu_x^{i\text{ème image}}}{(d_i)^3}}_{\epsilon_x^{total}} \cdot \frac{\mu_x}{2} + \underbrace{\sum_{i=1}^{+\infty} \frac{\mu_y^{i\text{ème image}}}{(d_i)^3}}_{\epsilon_y^{total}} \cdot \frac{\mu_y}{2} - \underbrace{\sum_{i=1}^{+\infty} \frac{\mu_z^{i\text{ème image}}}{(d_i)^3}}_{\epsilon_z^{total}} \cdot \mu_z \quad (4.17)$$

avec

$$\mu_{x,y}^{i\text{ème image}} = (-1)^i \mu_{x,y} \quad (4.18)$$

$$\mu_z^{i\text{ème image}} = \mu_z \quad (4.19)$$

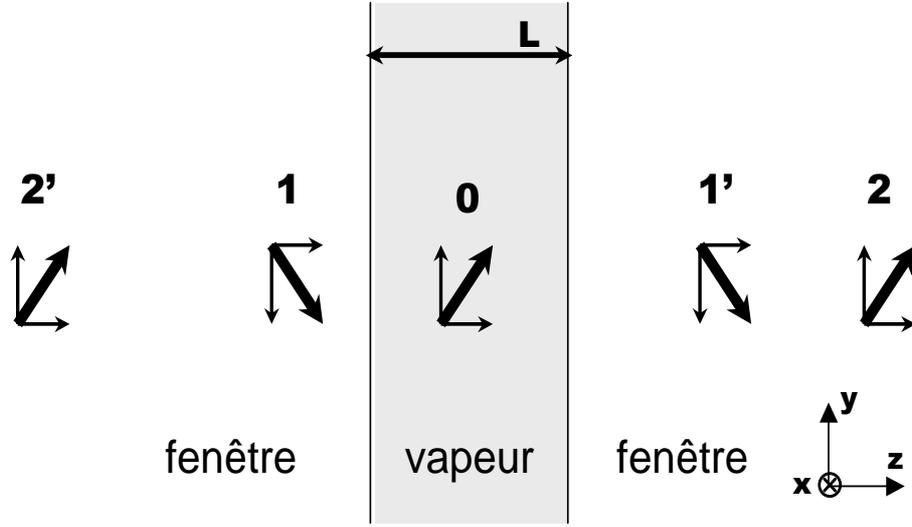


FIG. 4.8 – Orientation des dipôles images d'un dipôle objet entre deux parois

où l'incrément i représente la i ème réflexion et d_i la distance entre le dipôle objet et sa i ème réflexion.

Ainsi, pour la première réflexion, $\epsilon_{x,y,z}^{image\ 0,1}$ et $\epsilon_{x,y,z}^{image\ 0,1'}$ s'écrivent :

– Pour le dipôle image 1 :

$$\epsilon_{x,y}^{image\ 0,1} = \frac{(-1) \mu_{x,y}}{[L(1-z')]^3} \quad \text{et} \quad \epsilon_z^{image\ 0,1} = \frac{\mu_z}{[L(1-z')]^3} \quad (4.20)$$

– et pour le dipôle image 1' :

$$\epsilon_{x,y}^{image\ 0,1'} = \frac{(-1) \mu_{x,y}}{[L(1+z')]^3} \quad \text{et} \quad \epsilon_z^{image\ 0,1'} = \frac{\mu_z}{[L(1+z')]^3} \quad (4.21)$$

De même, pour la deuxième réflexion, on a les images 2 et 2'.

– Pour le dipôle image 2 :

$$\epsilon_{x,y}^{image\ 0,2} = \frac{\mu_{x,y}}{[2L]^3} \quad \text{et} \quad \epsilon_z^{image\ 0,2} = \frac{\mu_z}{[2L]^3} \quad (4.22)$$

– et pour le dipôle image 2' :

$$\epsilon_{x,y}^{image\ 0,2'} = \frac{\mu_{x,y}}{[2L]^3} \quad \text{et} \quad \epsilon_z^{image\ 0,2'} = \frac{\mu_z}{[2L]^3} \quad (4.23)$$

Et ainsi de suite. Nous pouvons maintenant écrire la somme de tous les termes sous la forme d'une série :

$$\epsilon_z^{total} = \frac{2 \mu_z}{(2L)^3} \sum_{m=0}^{+\infty} \left[\frac{1}{(1 - z' + 2m)^3} + \frac{1}{(1 + z' + 2m)^3} + 2 \frac{1}{(2 + 2m)^3} \right] \quad (4.24)$$

De même pour les composantes parallèles, en faisant attention que le changement de signe s'opère uniquement sur les ordres impairs des réflexions.

$$\epsilon_{x,y}^{total} = \frac{2 \mu_{x,y}}{(2L)^3} \sum_{m=0}^{+\infty} \left[\frac{-1}{(1 - z' + 2m)^3} + \frac{-1}{(1 + z' + 2m)^3} + 2 \frac{1}{(2 + 2m)^3} \right] \quad (4.25)$$

Pour finir notre calcul de l'interaction, nous ferons l'approximation usuelle d'un atome à symétrie sphérique : l'atome est dans un niveau S ou qu'une transition passe par un niveau S^7 . Le facteur $\frac{1}{12} = \frac{4}{3} \cdot \frac{1}{16}$ est la signature de cette approximation. Soit alors, avec cet argument d'isotropie ($\mu_x = \mu_y = \mu_z$) :

$$V_{int}(z') = -\frac{1}{12L^3} \sum_n |\boldsymbol{\mu}^{an}|^2 \sum_{m=0}^{+\infty} \left[\frac{1}{(2m + 1 + z')^3} + \frac{1}{(2m + 1 - z')^3} \right] \quad (4.26)$$

avec $\boldsymbol{\mu}^{an} = \langle a | \boldsymbol{\mu} | n \rangle$.

Il est important de remarquer que dans le cas d'une symétrie sphérique, le changement d'orientation des moments dipolaires images dans le plan (x,y) annule les contributions des ordres de réflexion paires. Dans ce cas simpliste de réflexion multiple dans un métal, la somme sur m , équivalente à une somme sur les distances entre le dipôle objet et ses dipôles images, est convergente sans aucune ambiguïté.

Si l'on revient maintenant en arrière pour plus de généralité (sans argument d'isotropie sur l'atome) et en plaçant l'atome exactement au centre des deux parois ($z' = 0$), alors (4.24) et (4.25) dans (4.17) font apparaître la série appelée fonction Tri-Logarithmique avec ici $u = 1$:

$$Tri \ Log(u) = \sum_{m=1}^{+\infty} \frac{u^m}{m^3} \quad (4.27)$$

Cette fonction est connue dans les calculs d'interaction entre un atome et deux surfaces [32, 46].

7. Les niveaux P , D peuvent s'approximer de la même manière tant qu'il n'y a pas de transition de P vers D .

4.4.3 Modification en énergie d'un niveau atomique quelconque entre deux surfaces diélectriques non résonnantes

Barton en 1997 [32] a fait le calcul de l'interaction d'un atome dans un niveau quelconque en $z' = 0$ avec deux surfaces diélectriques. Le coefficient de réflexion est statique $R_p = (\epsilon_s - 1)/(\epsilon_s + 1)$ et il intervient dans les calculs au numérateur en tant que coefficient pondérateur du dipôle image à la puissance $2m + 1$ (l'ordre de la réflexion du dipôle image). Voici son résultat en considérant l'argument d'isotropie de l'atome :

$$\delta E_0(z') = -\frac{2}{12(L)^3} \sum_n |\boldsymbol{\mu}^{an}|^2 \left[\sum_{m=0}^{+\infty} \frac{(R_p)^{2m+1}}{(2m+1)^3} \right] \quad (4.28)$$

avec $\boldsymbol{\mu}^{an} = \langle a | \boldsymbol{\mu} | n \rangle$.

On retrouve bien l'expression (4.26) en $z' = 0$ dans le cas du métal ($R_p = 1$). Barton note alors que les séries *Tri Log* restent convergentes lorsque $R_p > 1$ (car $\epsilon_s < -1$), et que l'approximation du régime non retardé reste valable bien qu'en apparence des images d'ordre élevé semblent ne plus satisfaire les conditions d'application de ce régime.

Le calcul complet de la modification en énergie d'un niveau atomique entre deux surfaces diélectriques dispersives non résonnantes à une distance quelconque z' doit faire intervenir en toute rigueur la susceptibilité du champ dans cette géométrie. Nha & Jhe [46] ont calculé la modification en énergie d'un niveau atomique de cette manière pour un atome en $z' = 0$. Nous avons alors développé ce résultat équivalent à (4.28) pour z' quelconque. Les détails de ce calcul sont un peu fastidieux, c'est pourquoi nous ne présentons ici que le résultat (les détails sont présenté en annexe D). Ainsi, le déplacement en énergie à la position z' d'un niveau quelconque $|a\rangle$ s'écrit :

$$\delta E_0(z') = -\frac{1}{12L^3} \sum_n |\boldsymbol{\mu}^{an}|^2 \sum_{m=0}^{+\infty} \left[\frac{(R_p)^{2m+1}}{(2m+1-z')^3} + \frac{(R_p)^{2m+1}}{(2m+1+z')^3} \right] \quad (4.29)$$

où nous avons conservé les mêmes notations que précédemment.

D'une part, nous retrouvons le résultat de [46] en $z' = 0$. D'autre part, il s'agit bien d'une généralisation de la formule de Barton (4.28) pour n'importe quelle position de l'atome z' et pour des milieux diélectriques dispersifs.

4.4.4 Comparaison de la modification en énergie d'un niveau quelconque dans différentes approches

Le calcul complet avec la prise en compte des images multiples n'est pas toujours nécessaire, c'est-à-dire que les ordres supérieurs de la première paire d'images sont négligeables. Pour s'en assurer numériquement, nous allons définir simplement la somme des potentiels van der Waals de deux parois (séparées d'une distance L) comme suit :

$$\delta E_0^{(2)}(z') = -\frac{R_p}{12L^3} \sum_n |\boldsymbol{\mu}^{an}|^2 \left[\frac{1}{(1-z')^3} + \frac{1}{(1+z')^3} \right] \quad (4.30)$$

où l'exposant (2) signifie qu'il s'agit du calcul où l'on ne considère que les deux premières images dans les parois avec les mêmes notations que précédemment. Rappelons juste que $z = 0$ exactement au milieu des deux parois et que $z' = \pm 1$ sur les bords de l'une ou de l'autre paroi.

Il est aussi intéressant de regarder le potentiel d'une paroi unique afin de comprendre à quelle distance l'influence de la deuxième paroi et de ses réflexions multiples commence à être significative. Nous écrirons son déplacement en énergie avec l'exposant (1) pour rappeler qu'il s'agit d'une seule paroi :

$$\delta E_0^{(1)}(z') = -\frac{R_p}{12L^3} \sum_n |\boldsymbol{\mu}^{an}|^2 \frac{1}{(1-z')^3} \quad (4.31)$$

Ces deux modèles sont valables, par exemple dans le cas d'une interaction non résonnante comme entre le niveau fondamental de l'atome de Césium et les surfaces de YAG ou de saphir. L'application numérique est montrée sur la figure suivante 4.9.

Cette figure représente le potentiel du niveau D_1 du Césium avec une surface de YAG. L'axe des abscisses représente la variable z' , -1 et 1 sont les bords de la cellule prise d'épaisseur $L = 200$ nm. Le résultat remarquable de ces calculs est que la plus importante différence est de $3 \cdot 10^{-2}$ (au centre des parois) entre le modèle à réflexions multiples (4.29) et la simple somme des deux potentiels des deux parois $\delta E_0^{(2)}(z')$. Autrement dit, la prise en compte uniquement des deux premières images est suffisante pour des calculs de déplacements en énergie de la transition D_1 du Césium. Le modèle (4.30) est alors bien plus simple d'emploi et tout aussi correct.

La comparaison avec le calcul à une seule paroi nous montre clairement qu'au centre des parois le potentiel est le double lorsqu'il y en a deux. Il est alors important de remarquer

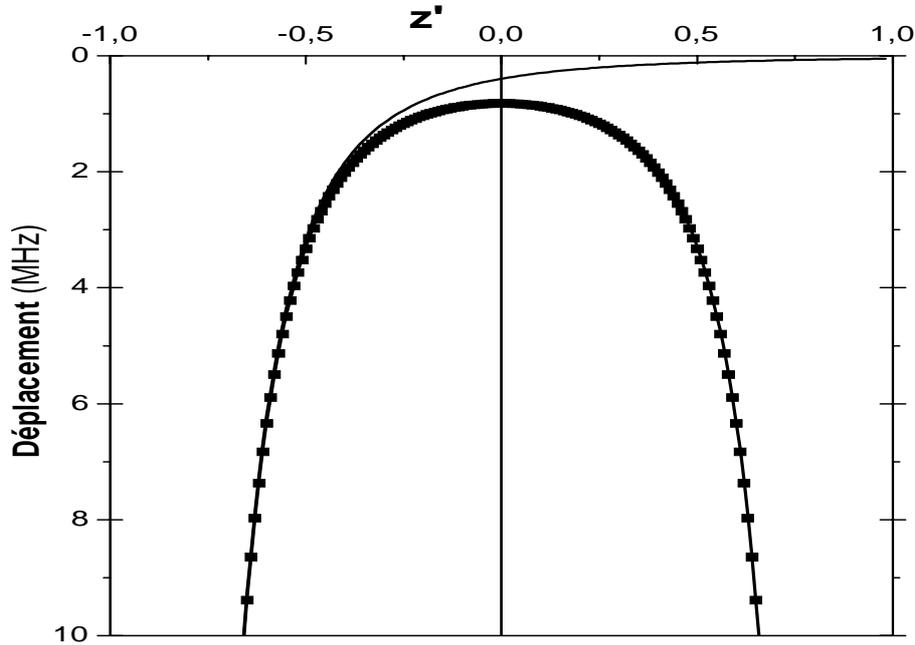


FIG. 4.9 – Comparaison du calcul numérique entre une paroi unique, deux parois (trait plein) et deux parois avec réflexions multiples (points carrés) dans le cas non résonnant du premier niveau excité du Césium pour une cellule en YAG d'épaisseur de 200 nm sur la transition D_1 du Césium.

que δE_0^2 et δE_0^1 sont égaux à 10^{-2} dès que l'atome est à 40 nm de la surface. Nous voyons ici un effet important du potentiel en z^{-3} : l'interaction est faible puis très violente. Ce qui nous amène à remarquer que, d'un point de vue spectroscopique, seul les 70% (à cette épaisseur de $L = 200$ nm) des atomes (ceux du centre de la vapeur) ont un déplacement en énergie inférieur à 10 MHz, et par là même, contribuent au signal. Les autres, ceux situés aux bords, contribuent très rapidement aux ailes lointaines puis deviennent complètement négligeables.

4.4.5 Interaction atome-2 surfaces diélectriques dispersives résonnantes

Bien que les calculs complets n'aient pas été achevés, il est possible à titre indicatif d'extrapoler l'équation (4.29) aux milieux diélectriques dispersifs résonnants, c'est-à-dire

au niveau $6D_{3/2}$ du Césium avec une surface de saphir ou de YAG (voir figure 4.10). Pour cela, $R_p(\omega)$ est fonction de la fréquence.

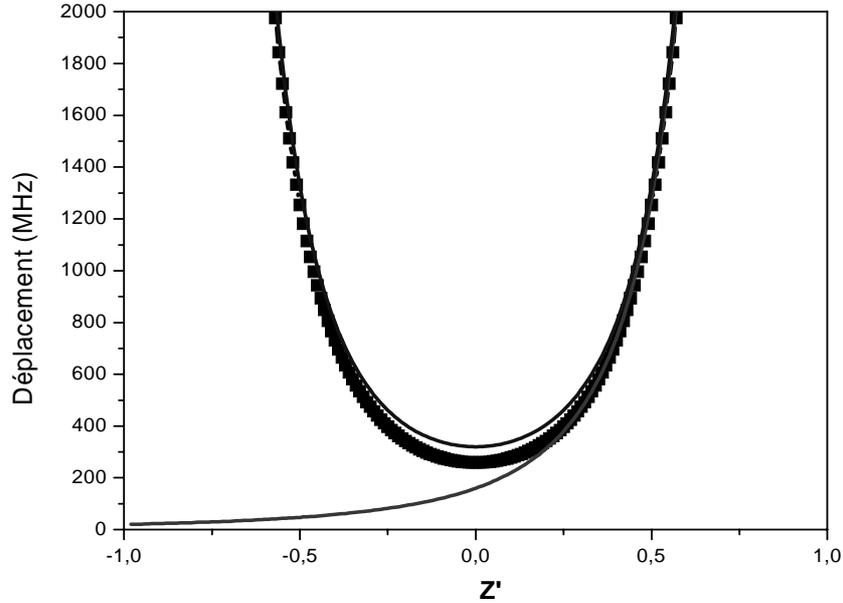


FIG. 4.10 – Comparaison du calcul numérique entre une paroi unique, deux parois (trait plein) et deux parois avec réflexions multiples (points carrés) dans le cas résonnant du niveau excité $6D_{3/2}$ du Césium pour une cellule en YAG d'épaisseur de 200 nm.

Nous observons alors des différences sur le potentiel, allant jusqu'à 20% au centre des parois, entre le modèle à images multiples (4.29) et le modèle simple (4.30). La figure 4.11 présente le rapport de ces deux modèles.

Sur les bords de la cellule, l'interaction de la deuxième paroi est négligeable et les deux modèles sont équivalents. En revanche, plus on se rapproche de la région centrale de la cellule, là où les deux parois ont la même influence, plus le modèle à images multiples (4.29) diffère du modèle simple (4.30). On pourrait interpréter ce résultat comme provenant des interférences entre l'ensemble des images multiples.

Il reste à rappeler que ce dernier résultat est totalement préliminaire.

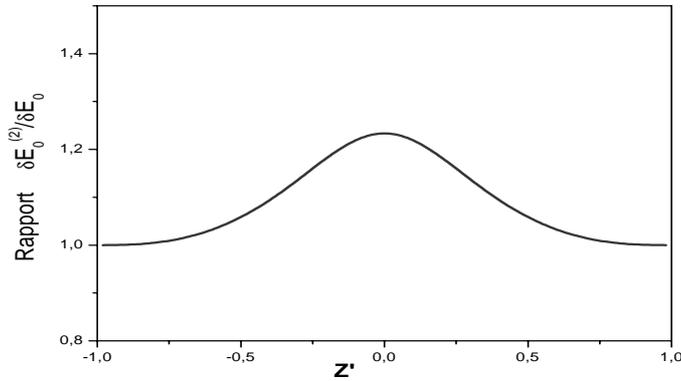


FIG. 4.11 – Rapport théorique entre deux parois ($\delta E_0^{(2)}$) et deux parois avec réflexions multiples (δE_0) dans le cas résonnant du niveau $6D_{3/2}$ du Césium avec une surface de YAG

4.5 Conclusions du chapitre

Nous avons présenté dans ce chapitre les différents outils nécessaires à l'interprétation de l'interaction de van der Waals avec une, puis deux parois diélectriques dispersives. Le cas d'une paroi unique est traité depuis plusieurs années, alors que celui d'une cavité à deux parois est actuellement en préparation pour une interaction résonnante entre l'atome et les surfaces. Les calculs préliminaires nous ont montré qu'il n'était pas toujours nécessaire de reconsidérer complètement la cavité en faisant intervenir les images de réflexions multiples dans les interactions non résonnantes entre atomes et surfaces. En revanche, lorsqu'il y a une interaction résonnante, le modèle à images multiples semble absolument nécessaire.

Nous avons par ailleurs montré comment nous pouvions étudier théoriquement le potentiel atomique d'un niveau résonnant avec la surface lorsqu'il est à quelques nanomètres de celle-ci. Cette étude nous a conduit à envisager le croisement de deux potentiels atomiques, l'un attractif et l'autre répulsif, lorsque l'atome est à ces très faibles distances de la surface. Ce croisement aurait alors lieu à une distance de la surface de l'ordre de 5 nm.

Chapitre 5

Interaction atome-surface : expériences

5.1 Introduction

La technique expérimentale pour sonder les atomes à des distances proches de la surface la plus utilisée dans le groupe, avant la construction des cellules ultra minces, était la réflexion sélective. Son aspect théorique a été développé au chapitre 4, et d'un point de vue expérimental, la réflexion sélective a permis d'observer et de caractériser l'attraction van der Waals non-résonnante du niveau $6P_{3/2}$ [27] ainsi que la contribution résonnante entre une surface de saphir et le niveau $6D_{3/2}$ de l'atome de Césium. Il n'en reste pas moins qu'en réflexion sélective, l'épaisseur sondée est fixée par la longueur d'onde employée (la région sondée s'étendant typiquement sur $\lambda/2\pi$) et qu'ainsi les déplacements induits par l'interaction atome-surface sont généralement de quelques MHz pour les transitions étudiées dans ce chapitre¹.

Avec l'arrivée des cellules ultra minces, il en est tout autrement. En effet, la variation en z^{-3} de l'interaction de van der Waals augmente d'un ordre de grandeur les effets recherchés lorsque la distance atome-surface est réduite d'un facteur 2.2 et il est possible de sonder des épaisseurs allant jusqu'à 30 nm. Par exemple, entre les 100 nm de la réflexion

1. L'utilisation d'une longueur d'onde dans l'UV, à 389 nm pour atteindre le niveau $8P$ du Césium, diminue l'épaisseur sondée et augmente les déplacements observés.

sélective et les 25 nm de la cellule ultra mince², il y a un facteur 60 (en considérant une seule paroi) dans l'interaction de van der Waals qu'elle soit résonnante ou non.

Dans ce chapitre, nous présentons les expériences et les montages en cellule ultra mince pour lesquelles l'interaction de van der Waals a été observé, ainsi que les différentes approches utilisées. Nous commençons par présenter l'expérience sur la transition D_1 du Césium ainsi que ses résultats. Puis, avec l'apport théorique du chapitre 4, nous comparons les spectres théoriques et expérimentaux pour différentes épaisseurs.

Après avoir observé de tels effets de l'interaction de surface pour une transition non-résonnante, nous avons voulu tenter d'observer directement³, pour la première fois, l'effet de la résonance entre une surface de YAG ou de saphir c_\perp et le niveau $6D_{3/2}$ du Césium. Cette expérience ne s'est pas révélée aussi aisée que la première, car l'utilisation nécessaire d'une double excitation est toujours délicate. Nous avons essayé plusieurs configurations expérimentales incluant la transition par étapes et la transition à deux photons directe⁴ entre le niveau fondamental et le niveau $6D_{3/2}$. Il est important de noter que la transition à deux photons évite les problèmes de peuplement et d'interprétation du niveau relais et s'avère donc en principe bien plus facile à exploiter. Le montage à deux photons a rencontré plusieurs problèmes que nous allons développer. C'est finalement avec l'aide d'une nouvelle cellule en saphir que nous avons repris un montage simple de transitions par étapes et que nous avons observé une très grande aile bleue (plusieurs GHz) du niveau résonnant.

L'étude du croisement de niveau est une expérience à part entière et nous en discutons au chapitre suivant.

2. Pour une épaisseur de 50 nm, les atomes sont à moins de 25 nm d'une surface.

3. Contrairement à l'expérience en réflexion sélective où il est naturellement observé un déplacement spectral vers le rouge [9].

4. La transition à deux photons est produite avec des excitations lumineuses non résonnantes mais voisines de quelques GHz du niveau relais $6P_{1/2}$.

5.2 Interaction de surface du niveau $6P_{1/2}$

5.2.1 Introduction

Dans cette section, nous allons discuter de l'observation directe de l'interaction de van der Waals en cellule ultra mince sur la transition D_1 du Césium (non-résonnante avec la surface de YAG). Cette expérience simple, comportant un unique faisceau en transmission, avait avant tout pour but de tester cette nouvelle cellule ultra mince. En effet, elle n'a pas été conçue dans l'objectif d'une caractérisation de l'interaction de van der Waals en fonction de l'épaisseur. Ce n'est que bien après, avec la réalisation du modèle théorique, que nous sommes revenus sur les résultats antérieurs et avons commencé leur interprétation.

Nous allons donc présenter l'expérience sachant que le montage expérimental est identique à celui employé au chapitre 3 sur les effets optiques de cellule ultra mince. Ensuite, nous décrirons les résultats obtenus aussi bien en transmission qu'en réflexion. Puis, nous présentons les calculs numériques correspondant aux épaisseurs sondées et montrons qu'il y a un bon accord entre eux et qu'une interprétation approfondie est réalisable.

5.2.2 Description de l'expérience

Le montage expérimental est rigoureusement le même que celui du chapitre 3 : nous sondons la même transition avec les mêmes techniques de détection. Pour rappel, le faisceau sonde excite le niveau $6P_{1/2}$ à partir du fondamental et il est orienté perpendiculairement à l'interface. Les faisceaux transmis et réfléchi sont enregistrés simultanément. Nous avons utilisé la première cellule ultra mince construite comme décrit au chapitre 3. Ses fenêtres sont en YAG et les épaisseurs accessibles sont comprises entre 30 et 1300 nm.

La principale différence par rapport au chapitre 3 réside dans la variation du paramètre température. En effet, le signal chute rapidement lorsque l'épaisseur diminue parce que le temps de transit des atomes entre les surfaces est fortement diminué et parce que le nombre d'atomes diminue. Il faut donc augmenter le nombre d'atomes, en augmentant la température de la cellule, pour conserver un signal exploitable. Ainsi, la température a été augmentée pour une épaisseur approximativement de 50 nm jusqu'à 185°C au niveau du queusot et 205°C au niveau des fenêtres. Par ailleurs, comme nous l'avons vu dans

le chapitre 1, l'augmentation de la température nous permet d'augmenter l'intensité du faisceau sans risquer la saturation optique, d'autant plus que les épaisseurs sont très petites.

Pour la détection, nous avons choisi d'utiliser la technique de modulation de fréquence afin d'être moins sensible au bruit de fréquence du laser. Par ailleurs, les spectres d'atomes très proches d'une surface sont fortement élargis par la diminution de la durée de vie induite par van der Waals, mais aussi et dans une moindre mesure, par la pression de vapeur qui est nettement supérieure à celle utilisée au chapitre 3. Cet élargissement permet d'introduire une forte modulation de fréquence, et ainsi de produire un signal de grande amplitude sans pour autant élargir les spectres. Un rapport S/B trop faible a limité la possibilité de mesures directes de l'absorption.

5.2.3 Résultats expérimentaux

Nous avons enregistré simultanément la transmission et la réflexion en modulation de fréquence (à 12 kHz et pour une amplitude voisine de 10 MHz) des deux transitions hyperfines $F' = 3$ et $F' = 4$ partant du fondamental $F = 4$. Nous présentons à la figure 5.1 la transmission pour les épaisseurs de 225, 90 et 53 nm. Les pointillés représentent une référence en fréquence déduite des pics d'absorption saturée.

Lorsque l'épaisseur diminue, il faut augmenter la température qui est alors respectivement de 130/155°C, 140/160°C et 185/205°C (queusot et fenêtres) pour les épaisseurs de 225, 90 et 53 nm. Parallèlement, le signal FM décroît d'un ordre de grandeur pour un bruit à $2 \cdot 10^{-6}$ proche du bruit quantique.

Le spectre à l'épaisseur de 225 nm montre une antisymétrie imparfaite qui peut provenir des effets de propagation en cellule ultra mince ($225 = \lambda/4$) ou bien d'un petit effet lié au van de Waals. Pour des épaisseurs plus petites (inférieures à 100 nm), ces effets dispersifs s'atténuent fortement et nous les négligerons dans le but de simplifier la discussion. En diminuant l'épaisseur de 225 à 53 nm, la forme de raie s'élargit considérablement, de 70 à 600 MHz. Il est alors remarquable que, même avec de tels élargissements, nous observons toujours distinctement un déplacement vers le rouge de ces spectres. Celui-ci est de 10 MHz à 225 nm pour 200 MHz à 53 nm.

Il est manifeste que ces comportements spectraux corrélés à la variation de la dis-

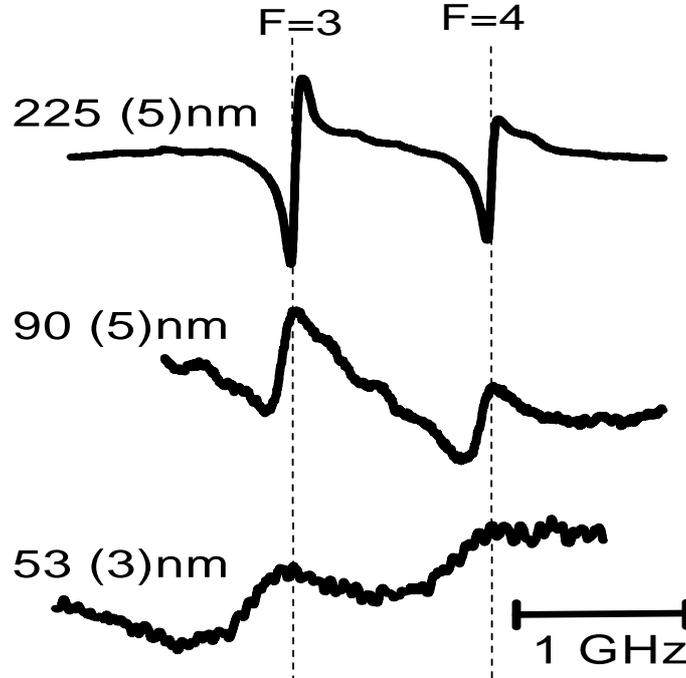


FIG. 5.1 – Spectres FM en transmission en cellule ultra mince de fenêtre en YAG pour des épaisseurs de 225, 90 et 53 nm. Les deux traits pointillés représentent la référence d'absorption saturée.

tance atome-surface sont la signature de l'interaction de van der Waals. Premièrement, le déplacement global des spectres n'est distinctement visible qu'à partir d'une épaisseur de cellule avoisinante 150 nm. Nous retrouvons ici l'ordre de grandeur de l'interaction de van der Waals pour cette transition (voir plus bas). Deuxièmement, en première approximation, le déplacement des spectres avec la variation de l'épaisseur de la cellule est proportionnel à une fonction puissance comprise entre z^{-2} et z^{-3} . Troisièmement, l'élargissement ne peut s'expliquer uniquement avec l'augmentation de la température mais plutôt avec la réduction de la durée de vie. Tous ces arguments nous montrent bien que nous avons observé l'effet d'une interaction van der Waals en fonction de la distance aux surfaces. Nous discutons de sa caractérisation à la section suivante. Il faut néanmoins prêter attention au fait que pour les épaisseurs comme 225 nm et plus, les effets dispersifs discutés aux chapitres 1 et 3 sont présents et qu'il peuvent induire en première observation

des déplacements spectraux liés à l'optique des cellules ultra minces et non à l'interaction de van der Waals.

Considérons maintenant les spectres en réflexion, enregistrés simultanément et toujours en modulation de fréquence, présentés sur la figure 5.2.

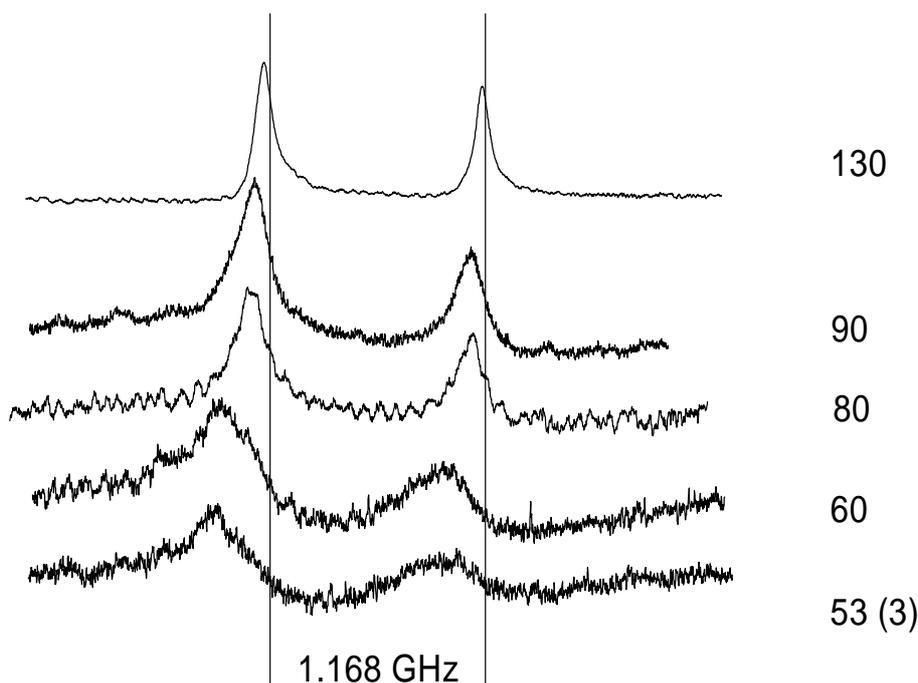


FIG. 5.2 – Spectres FM en réflexion en cellule ultra mince de fenêtre en YAG pour des épaisseurs de 130, 90, 80, 60, 53 nm. Les deux traits représentent la référence d'absorption saturée.

L'observation directe de ces spectres est trompeuse car nous pourrions croire à des pics d'absorption, mais il s'agit bien des dérivés des spectres en réflexion. Ces pics sont néanmoins de bonnes indications de la position des centres des raies (voir figure 5.4 et développements théoriques ci-dessous). Ainsi, à l'aide de ces enregistrements, nous pouvons observer bien plus distinctement les déplacements spectraux ainsi que les élargissements.

Il est à noter que nous n'avons pas effectué d'enregistrement à l'épaisseur minimale de 30 nm parce que nous ne connaissions pas encore le comportement de la cellule ultra

mince à des températures aussi élevées que 200°C (risque d'attaque chimique du Césium sur les surfaces, etc.). Nous savons aujourd'hui que ces cellules résistent quotidiennement à des températures de l'ordre de 300°C et plus sans se détériorer.

5.2.4 Interprétation des résultats

Le travail d'interprétation est actuellement en cours et nous avons voulu en donner ici l'état d'avancement. Les calculs théoriques prennent en compte l'épaisseur de la cellule ultra mince d'un point de vue optique (voir chapitre 1). Le potentiel van der Waals est alors simplement ajouté dans les calculs sous la forme du potentiel de deux parois séparées d'une distance L , sans tenir compte des images multiples (voir chapitre 4) avec $C_3^{6P_{1/2}} = 2 \text{ kHz} \cdot \mu\text{m}^3$. Puis, de la même manière qu'au chapitre 3, le seul paramètre ajustable est l'élargissement homogène γ_{eg} de la transition parce que l'épaisseur est considérée comme fixée et connue. Ainsi, puisque nos mesures ne sont effectuées ni aux mêmes températures, ni aux mêmes épaisseurs, la largeur homogène γ_{eg} est différente pour tous les spectres. Cette valeur de l'élargissement homogène est une fonction linéaire de la pression (voir chapitre 1) et peut être estimée à l'aide de la mesure de température dans la cellule. Les effets de propagation en cellule ultra mince sont pris en compte par l'environnement optique de la cellule ainsi que par l'ajout du potentiel van der Waals. Sur la figure 5.3 sont représentés les résultats de ces calculs en transmission FM avec γ_{eg} égal à 24, 40 et 230 MHz pour les trois épaisseurs respectives de 225, 90 et 53 nm. La valeur du coefficient $C_3^{6P_{1/2}}$ a été prise de $2 \text{ kHz} \cdot \mu\text{m}^3$ avec $k_u = 250 \text{ MHz}$.

On distingue plus aisément sur ces courbes théoriques que sur les spectres expérimentaux les ailes de raie qui tendent rapidement vers 0 pour les épaisseurs supérieures à 90 nm. Ceci nous montre que pour les épaisseurs comprises entre 90 et 300 nm, les deux transitions hyperfines $F' = 3$ et $F' = 4$ peuvent être étudiées de manière indépendante. En revanche, en deçà de 90 nm, il y a un recouvrement des ailes des raies sur la seconde transition hyperfine, qui nous oblige à considérer simultanément les deux transitions.

Sur la courbe à 225 nm, nous distinguons clairement une asymétrie qui induit un déplacement vers le rouge. C'est pourquoi, à ces épaisseurs, il est délicat d'affirmer que le déplacement vers le rouge est uniquement induit par l'interaction van der Waals. Le déplacement à cette épaisseur est de l'ordre de 10 MHz. La réelle contribution de l'inter-

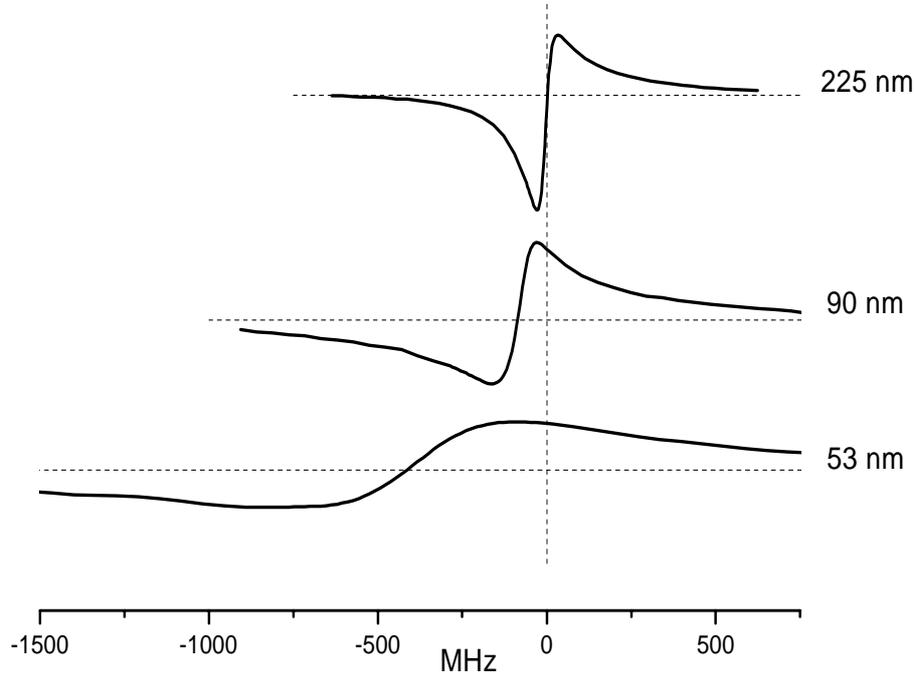


FIG. 5.3 – Courbes théoriques en transmission FM pour les épaisseurs de 225, 90 et 53 nm. $C_3^{6P_{1/2}} = 2 \text{ kHz} \cdot \mu\text{m}^3$. $ku = 250 \text{ MHz}$, γ_{eg} vaut respectivement 230, 40 et 24 MHz pour ces épaisseurs.

action van der Waals est certainement plus faible. Les asymétries sont moins importantes aux épaisseurs inférieures et il est alors possible de mesurer directement le déplacement rouge des spectres.

L'accord entre les courbes théoriques et expérimentales est remarquable, principalement pour les épaisseurs de 225 et 90 nm où les déplacements et les élargissements ont des différences inférieures à 10%. En revanche, à l'épaisseur de 53 nm, la gamme spectrale d'enregistrement est trop petite et nous prive en partie des ailes de raies, ce qui rend la comparaison de l'élargissement délicate. De plus, les courbes théoriques sont calculées uniquement pour une composante et il est nécessaire de tenir compte du recouvrement des ailes. Néanmoins, le déplacement spectral est bien reproduit théoriquement avec 350 MHz et une mesure expérimentale approximativement estimée à 250 MHz.

Les courbes théoriques dans le cas de la réflexion en FM (figure 5.4), ont été calculées avec les mêmes paramètres que pour la transmission (figure 5.3). La forme même du

spectre nous aide dans la comparaison. Les ailes de raies sont beaucoup moins grandes qu'en transmission pour les mêmes épaisseurs et les pics indiquent directement le déplacement. A ces épaisseurs, les effets d'asymétries sont négligeables.

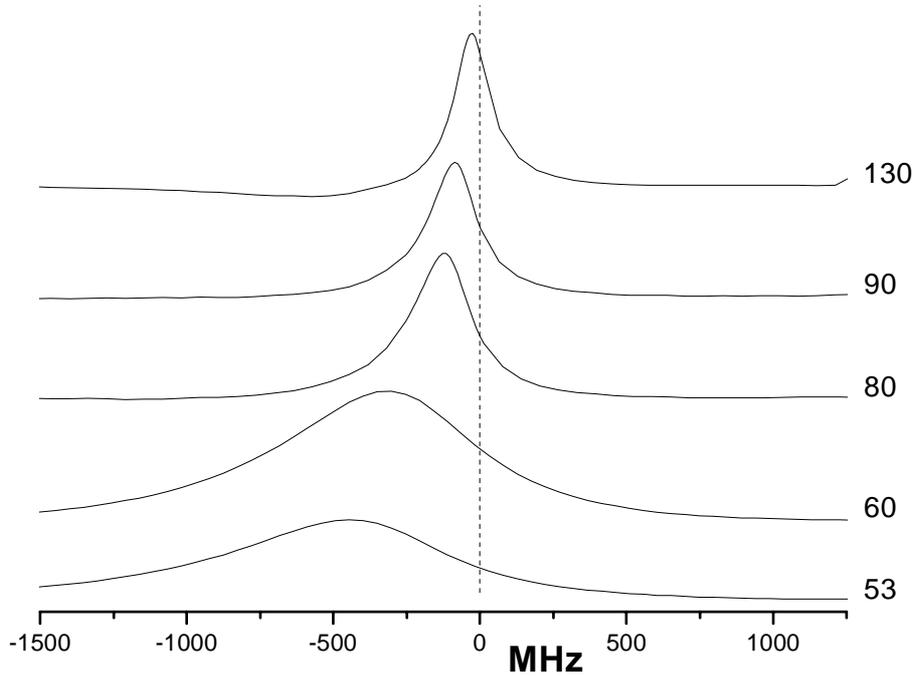


FIG. 5.4 – Courbes théoriques en réflexion FM pour les épaisseurs de 130, 90, 80, 60 et 53 nm. $C_3^{6P_{1/2}} = 2 \text{ kHz} \cdot \mu\text{m}^3$ et $ku = 250 \text{ MHz}$.

L'accord tant sur le déplacement que sur l'élargissement est de l'ordre de 10% jusqu'à l'épaisseur de 80 nm. Les spectres à 60 et 53 nm, quant à eux, nécessitent certainement la prise en compte simultanée des deux résonances car les ailes de raies ne sont plus négligeables même à 1 GHz du centre de rai. Il est remarquable que ces accords avec des calculs préliminaires soient aussi satisfaisant. Par ailleurs, la prise en compte simultanée de la transmission et de la réflexion constitue un certain atout pour l'analyse théorique, car le seul paramètre γ_{eg} gouverne deux spectres dans la mesure où l'épaisseur est parfaitement connue.

5.2.5 Conclusions et perspectives

Actuellement, nous disposons de mesures expérimentales et d'un modèle théorique achevé. Nous avons montré par des comparaisons préliminaires que nos mesures et notre modèle théorique étaient en assez bon accord pour un dépouillement plus approfondi.

Il est néanmoins nécessaire de rappeler ici que le modèle théorique a été réalisé après ces expériences, pour lesquelles nous ne cherchions qu'à valider un effet de l'interaction van der Waals en cellule ultra mince avant d'explorer le croisement de niveaux discuté au chapitre 6. Il s'est avéré que la caractérisation de l'interaction van der Waals est d'un grand intérêt, tant expérimental que théorique. Jamais auparavant cette interaction n'avait été observée à de si petites distances entre atome et surface. C'est pourquoi quelques améliorations du montage expérimental comme l'observation directe de l'absorption et une parfaite connaissance des épaisseurs ainsi qu'une grande diversité de courbes théoriques⁵ permettraient de caractériser complètement l'interaction de van der Waals en fonction de l'épaisseur, et de définir par exemple la loi de variation du potentiel entre deux surfaces qui n'est plus exactement en z^{-3} (voir chapitre 4). Il est à noter que la mesure directe du van der Waals la plus proche d'une surface a été réalisée par une technique de jet entre deux plaques sur des niveaux de Rydberg à l'épaisseur de $500 \mu\text{m}$ [Sandoghdar 96] [14].

5.3 L'interaction van der Waals résonnante

5.3.1 Introduction

L'étude du niveau $6D_{3/2}$ du Césium avec une surface de YAG ou de saphir comporte plusieurs points délicats du fait de la nécessité d'exciter l'atome à l'aide d'une double excitation pour passer du niveau fondamental $6S_{1/2}$ au niveau $6D_{3/2}$ (par étapes ou à deux photons). Il y a deux niveaux intermédiaires possibles, le niveau $6P_{1/2}$ et le niveau $6P_{3/2}$ (voir figure 5.5). Dans le cas d'une excitation par étapes, la première contrainte réside dans la nécessité du peuplement du niveau intermédiaire ($6P_{1/2}$ ou $6P_{3/2}$) pour avoir

5. Il n'est pas possible de faire des ajustements numériques sur les courbes expérimentales avec ces calculs car ils nécessitent trop de temps machine.

un nombre suffisant d'atomes. L'inconvénient majeur de cette technique réside dans la difficulté d'une description rigoureuse (temporelle et spatiale) de ce peuplement du niveau intermédiaire en cellule ultra mince. Premièrement, les atomes sont en régime transitoire entre les fenêtres de la cellule. Deuxièmement, la répartition spatiale du champ n'est pas homogène à cause des effets interférométriques en cellule ultra mince (voir chapitre 1) et la fréquence de Rabi change spatialement. Troisièmement, l'absorption dans la vapeur n'est plus négligeable si l'on recherche une grande absorption de ce niveau. Quatrièmement, ce niveau est lui aussi astreint à une interaction de van der Waals, certes non-résonnante, mais dont il faut tenir compte et qui induit une répartition inhomogène du niveau $6P_{1/2}$ suivant la distance des atomes aux parois.

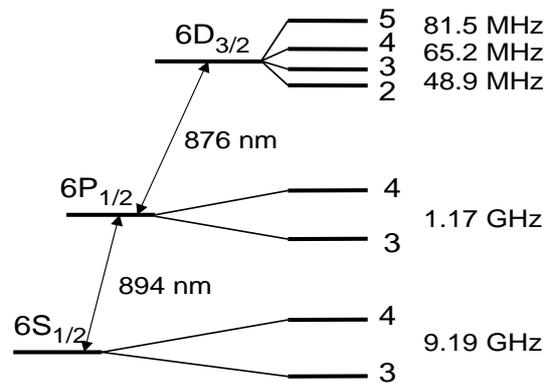


FIG. 5.5 – Niveaux du Césium

Dans le cas d'une transition à deux photons, nous nous affranchissons de toutes les difficultés de description de la population du niveau intermédiaire. En revanche, même en nous plaçant à proximité du niveau relais $6P_{1/2}$, il est nécessaire d'employer de tels champs lumineux que l'effet Stark dynamique est à prendre en compte et perturbe l'interprétation simple des spectres.

Au cours de cette recherche, nous avons utilisé plusieurs approches incluant les deux types de transitions vers le niveau $6D_{3/2}$. Afin de comprendre les difficultés auxquelles nous avons été confronté, nous exposons successivement les différents montages expérimentaux utilisés.

Nous commençons par exposer le montage pour lequel l'excitation du niveau $6D_{3/2}$ est effectuée par étapes, en précisant que nous avons utilisé plusieurs cellules ultra minces

en YAG et en saphir au fur et à mesure de leur fabrication. Puis, nous discutons de la configuration à deux photons.

5.3.2 Excitation par étapes

5.3.2.1 Introduction

Le niveau $6D_{3/2}$ est accessible par deux niveaux relais: le $6P_{1/2}$ (excitation à 894 nm puis 876 nm) ou le $6P_{3/2}$ (excitation à 852 nm puis 921 nm) (voir figure 5.5). Nous disposons d'une diode à cavité étendue à 876 nm et nous avons donc choisi pour cette expérience le niveau relais $6P_{1/2}$ ⁶. Cette diode dispose d'une largeur spectrale de 3 MHz, elle peut balayer jusqu'à 10 GHz lorsqu'elle est soigneusement préparée (alignement optimisé du réseau du laser) et elle fournit jusqu'à 50 mW de puissance de sortie. La transition à 894 nm utilise le même laser que précédemment.

Nous avons essayé plusieurs configurations avec plusieurs cellules. C'est ainsi que nous avons observé des effets pouvant provenir du van der Waals résonnant. Cette expérience a été réalisée avec une cellule en YAG pour les grandes épaisseurs (supérieures à 300 nm) et avec une cellule en saphir pour les plus petites.

Nous commençons par présenter le montage expérimental avec sa référence en fréquence. Puis, nous discutons principalement les résultats expérimentaux en fonction de l'épaisseur sondée.

5.3.2.2 Le montage expérimental

a) La référence d'absorption saturée à 876 nm. Il s'agit d'un montage d'absorption saturée classique pour l'équipe, décrit dans la thèse d'H. Failache [37]. Une cellule de 100 μm d'épaisseur chauffée à 90°C est irradiée par le faisceau à 894 nm appelé excitateur et par les deux faisceaux à 876 nm respectivement pompe et sonde (voir figure 5.6).

Afin d'augmenter la saturation optique dans la vapeur nous avons focalisé les faisceaux pompe et sonde avec une lentille de focale $f=80$ mm. Après focalisation, les intensités dans la vapeur sont de 26 W/cm^2 pour la pompe et de 1 W/cm^2 pour la sonde. Le faisceau

6. Pour l'expérience du croisement de niveau (chapitre 6), nous avons choisi le niveau relais $6P_{3/2}$.

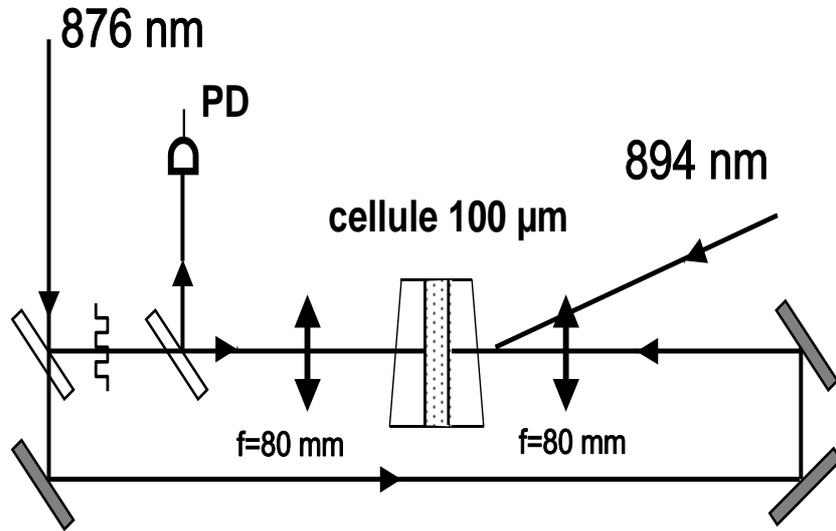


FIG. 5.6 – Montage d'absorption saturée de la transition $6P_{1/2} \rightarrow 6D_{3/2}$. Le faisceau à 894 nm peuple le niveau intermédiaire $6P_{1/2}$. Les faisceaux contra-propageants à 876 nm sont pompe pour celui se propageant de gauche à droite sur la feuille dans la vapeur et sonde pour celui arrive dans la photodiode.

excitateur n'est pas focalisé, et avec un diamètre de 4 mm, il dispose d'une intensité de 3 mW/cm².

Une roue dentée (voir figure 5.6) permet de détecter le signal d'absorption saturée. Les sous-niveaux $6D_{3/2}(F'' = 2,3,4)$ ou $6D_{3/2}(F'' = 3,4,5)$ sont atteints lorsque le niveau $6P_{1/2}$ est pompé sur son sous-niveau hyperfin $F' = 3$ ou $F' = 4$. Des effets de transfert [37] entre les deux sous-niveaux du niveau relais induisent un peuplement du second sous-niveau, ce qui explique pourquoi nous observons les deux transitions de la référence (voir figure 5.9). L'efficacité de la saturation est de l'ordre de 50%. Les *cross-over* sont néanmoins visibles et nous disposons d'une bonne référence en fréquence.

Il est à noter que le faisceau à 894 nm peut avoir une incidence oblique et qu'il n'est pas nécessairement accordé exactement sur la résonance. Ceci signifie qu'il n'est pas sélectif en vitesse de manière à assurer une redistribution thermique du peuplement.

b) Près de la cellule ultra mince. L'orientation du faisceau pompe (à 894 nm) n'est pas importante. Comme pour la référence, le peuplement de toutes les classes de vitesse

peut se faire par redistribution thermique des atomes. En revanche l'orientation de la sonde (à 876 nm) doit toujours rester le plus possible en incidence normale par rapport aux fenêtres de la vapeur afin d'exciter principalement les atomes à incidence normale qui interagissent le plus longtemps avec les surfaces.

Les faisceaux sont focalisés avec des lentilles de 200 et 258 mm de focale (voir figure 5.7) pour un diamètre dans la vapeur de 200 et 280 μm respectivement pour la sonde et la pompe, de manière à ce que le faisceau sonde reste toujours plus petit et à l'intérieur du faisceau pompe dans la vapeur⁷. Cette dimension des faisceaux est intéressante, d'une part pour la résolution spatiale dans la cellule, et d'autre part, afin d'augmenter au maximum le peuplement du niveau relais (par une plus grande intensité disponible dans la vapeur).

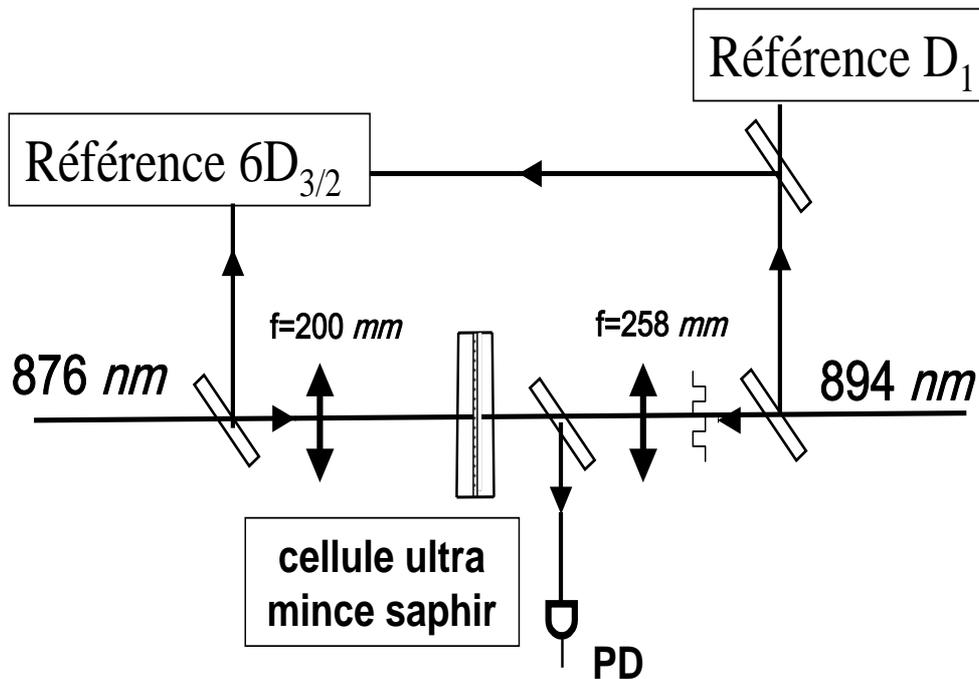


FIG. 5.7 – Montage expérimental autour de la cellule ultra mince

Le faisceau pompe est accordé sur la transition hyperfine souhaitée ($F' = 3$ ou $F' = 4$) et modulé en amplitude à 100 kHz avec un modulateur acousto-optique (voir figure 5.7)

7. Si une partie du faisceau sonde croise des atomes dans l'état fondamental, il sera porteur de bruit sans aucun signal.

afin de réduire au maximum son bruit d'amplitude. L'intensité absorbée par la vapeur du faisceau sonde est alors aussi modulée en amplitude. Ce qui permet d'utiliser une détection synchrone à 100 kHz pour extraire la partie modulée de la sonde, soit des absorptions jusqu'à 10^{-5} . Le balayage est alors effectué par la diode à cavité étendue à 876 nm pour des vitesses de 2-3 MHz/s, soit une durée pour le spectre complet de quelques minutes pendant lesquelles la dérive du laser à 894 nm est négligeable.

L'intensité incidente de la sonde sur la cellule ultra mince est de 30 W/cm^2 (pour une puissance de $17 \mu\text{W}$), ce qui nous assure un faible bruit avec l'utilisation de la photodiode *new focus 2001*. Les puissances incidentes de la pompe sur la cellule ultra mince sont comprises entre 20 et $900 \mu\text{W}$. Cette grande variation de la puissance pompe dépend de l'épaisseur sondée. Plus l'épaisseur est petite et plus le peuplement du niveau relais est difficile. Par ailleurs, il est souhaitable en général d'utiliser une intensité pompe aussi faible que possible afin de ne pas introduire d'inhomogénéité spatiale dans le peuplement des atomes (voir remarques précédentes dans 5.3.1).

L'absorption de la pompe, qui est comprise entre 5 et 50% pour des épaisseurs allant de 90 à 450 nm, est relativement importante en cellule ultra mince car nous avons augmenté la pression de vapeur jusqu'à $3.10^{15} \text{ at/cm}^3$ pour une température de 215/255°C. On obtient ainsi une absorption de la sonde comprise entre 2.10^{-5} à 90 nm et 8.10^{-3} à 450 nm, soit un facteur 400 révélateur de la difficulté d'excitation de cette transition aux petites épaisseurs.

5.3.2.3 Résultats expérimentaux

a) Les grandes épaisseurs $\geq 300 \text{ nm}$. Les expériences préliminaires ont été faites sur une cellule en YAG⁸ à de grandes épaisseurs et de faibles températures (approximativement 100°C). La figure 5.8 présente le spectre en absorption (courbe 5.8-a) et la référence d'absorption saturée (courbe 5.8-b) à l'épaisseur de 1100 nm. Rappelons qu'à ces distances entre l'atome de Césium $6D_{3/2}$ et les surfaces en YAG, le déplacement en énergie induit par l'interaction de van der Waals est inférieur au MHz (cf. chapitre 4).

Nous avons conservé sur cette figure le spectre d'absorption saturée (b) à titre de

8. La cellule en YAG est la seule de nos cellules ultra minces à atteindre des épaisseurs de l'ordre du micromètre.

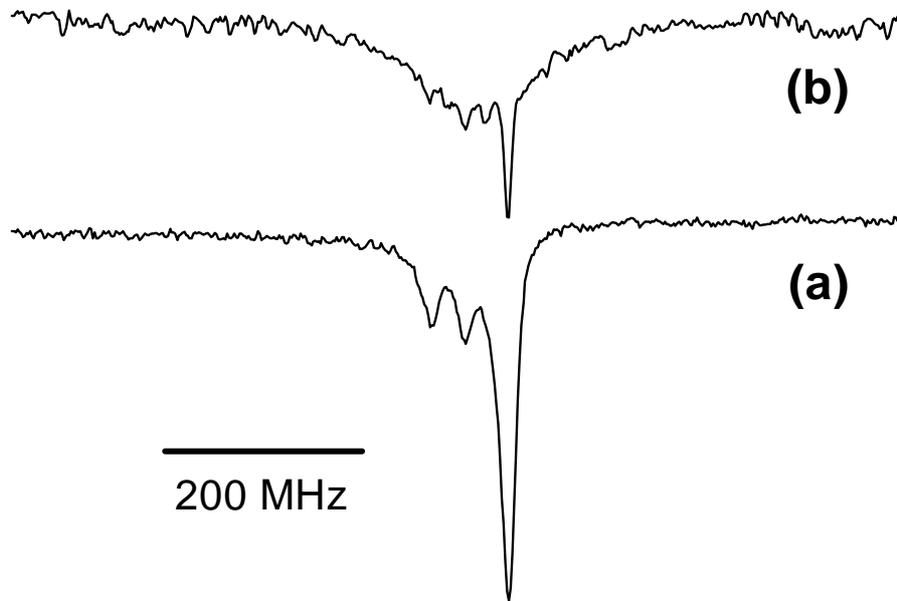


FIG. 5.8 – (a) Transmission en cellule ultra mince en YAG de la transition $6P_{1/2} \rightarrow 6D_{3/2}$ à l'épaisseur 1100 nm. (b) Référence d'absorption saturée.

comparaison avec celui obtenu en cellule mince (a). Mis à part le faible rapport S/B de la référence (pour laquelle nous observons les *cross-over*), le spectre en transmission directe en cellule mince est aussi étroit. C'est-à-dire qu'il est très fortement sub-Doppler et que l'on observe nettement la structure hyperfine du niveau $6D_{3/2}$. En revanche, il est attendu que les *cross-over* ne peuvent pas être observées puisqu'ils n'ont pas le temps d'exister en cellule minces [37].

Il est également important de noter que l'élargissement par pression à partir de températures de l'ordre de 130°C ne permet plus de discerner les différentes composantes hyperfines comme dans les séries des spectres suivants effectuées à de plus petites épaisseurs.

b) $140 \text{ nm} \leq \text{épaisseur} \leq 220 \text{ nm}$. Dans la suite, nous avons utilisé une cellule en saphir qui dispose de plus petites épaisseurs. En diminuant l'épaisseur, le signal chute rapidement et il est nécessaire d'augmenter le nombre d'atomes ainsi que l'efficacité du pompage

en augmentant l'intensité du faisceau pompe (à 894 nm) dans la vapeur. C'est pourquoi nous avons dû doubler l'intensité pompe entre 1100 et 220 nm avec une température un petit peu plus élevée de 105/145°C. Le spectre d'absorption à 220 nm ne permet plus de distinguer les différentes composantes hyperfines et il comporte une asymétrie prononcée vers le bleu. Ce spectre est présenté sur la figure 5.9, où l'on distingue la référence d'absorption saturée qui marque les deux sous-niveaux du $6P_{1/2}$ par effet de re-thermalisation (rappelons que ce niveau est pompé par la transition $6S_{1/2}(F = 4) \rightarrow 6P_{1/2}(F' = 3)$). Il faut alors remarquer que les effets optiques de cellule ultra mince ne sont pas négligeables à l'épaisseur de 220 nm et qu'ils apportent une dispersion certaine dans le spectre (voir chapitre 1-3).

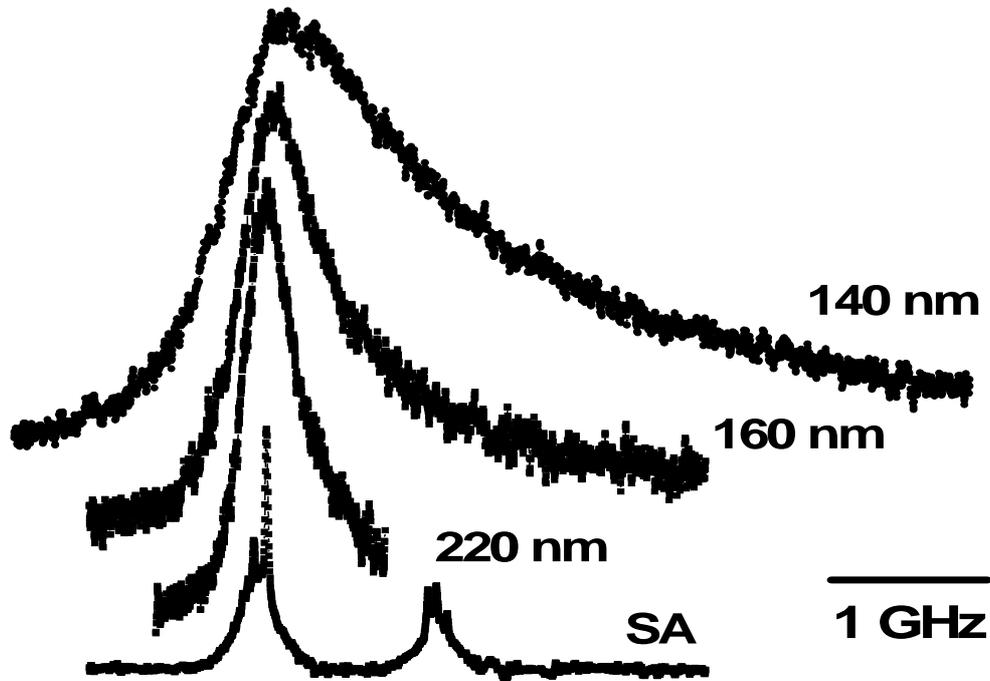


FIG. 5.9 – Transmission en cellule ultra mince en saphir de la transition $6P_{1/2} \rightarrow 6D_{3/2}$ pour les épaisseurs de 220, 160, 140 nm.

En diminuant davantage l'épaisseur, il est nécessaire d'augmenter encore la température jusqu'à 120/160°C. Nous avons représenté en amplitude normalisée les spectres en transmission pour des épaisseurs de 220, 160 et 140 nm. Le passage de l'épaisseur de 220 nm à 160 puis 140 nm marque distinctement un élargissement considérable de

plusieurs GHz vers le bleu. Cette aile bleue ne semble pas pouvoir être expliquée par des effets optiques de propagation en cellule ultra mince comme la dispersion. Elle serait plutôt la signature de la résonance entre les modes de surfaces du saphir et la transition $6D_{3/2} \rightarrow 7P_{1/2}$. Il n'y a cependant pas de grand déplacement bleu comme nous avons pu en observer avec la transition D_1 vers le rouge.

Discutons un point expérimental important. Le niveau relais subit un déplacement vers le rouge lorsqu'il est proche des surfaces. La fréquence pompe accordée sur un montage d'absorption saturée annexe n'est donc plus exactement à la fréquence optimale de pompage. Ainsi, l'absorption du niveau $6D_{3/2}$ dépend de la fréquence de la pompe. Nous avons légèrement décalé la fréquence de la pompe afin de rattraper le déplacement van der Waals du niveau relais. Ainsi, pour l'épaisseur de 140 nm, nous avons observé que l'absorption du faisceau sonde augmente de 15% lorsque l'on déplace la fréquence de la pompe de 20 MHz vers le rouge. La figure 5.10-a présente le spectre d'absorption lorsque la fréquence pompe est à résonance et la figure 5.10-b lorsqu'elle est désaccordée de 20 MHz vers le rouge. Un autre risque essentiel de la transition par étapes est ici la sélection de vitesse effectuée par la pompe qui peut induire un déplacement Doppler si elle n'est pas bien contrôlée.

Il y a, pour l'épaisseur de 140 nm, une absorption maximale du faisceau sonde lorsque la fréquence de la pompe est désaccordée de 30 MHz vers le rouge à l'aide d'un contrôle précis sur la tension d'alimentation de la diode. Cette même absorption de la sonde décroît jusqu'à revenir à la même amplitude pour un désaccord de la fréquence pompe aussi important que 100 MHz vers le rouge. Inversement, si l'on désaccorde la fréquence de la pompe vers le bleu, ne serait-ce que de 20 MHz, l'absorption de la sonde chute brutalement de 30%. Il est à noter que les formes des spectres présentés sur la figure 5.10 ne sont pas homothétiques : on peut observer que l'aile bleue est plus prononcée pour (a) que pour (b). Nous n'avons actuellement pas encore cherché d'explication à ce phénomène.

Tous les effets présentés ci-dessus ont été reproduits pour d'autres épaisseurs.

c) Épaisseurs ≤ 100 nm. Les épaisseurs de 72 et 94 nm ont été atteintes pour les températures élevées de 265/290°C. Les spectres correspondants sont présentés sur la figure 5.11 et nous y voyons un élargissement important de 3 GHz. Nous pensons alors qu'il pouvait être induit par un élargissement collisionnel et c'est pourquoi nous présentons

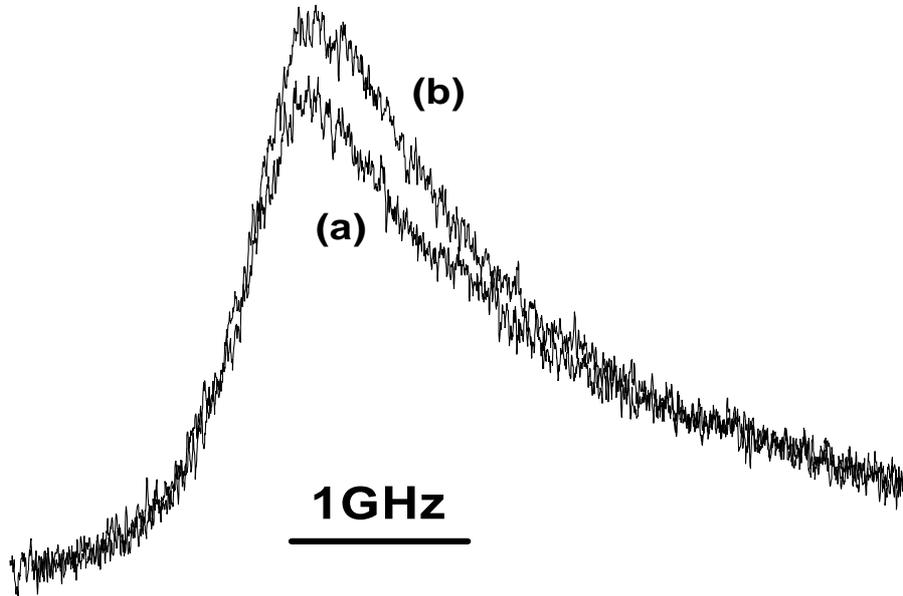


FIG. 5.10 – *Transmission en cellule ultra mince en saphir. (a) fréquence pompe centrée sur le pic d'AS de la transition $6S_{1/2}(F = 4) \rightarrow 6P_{1/2}(F' = 3)$, (b) fréquence pompe décalée vers le rouge de 20 MHz.*

un spectre enregistré à l'épaisseur de 450 nm pour la même température. Nous y voyons deux choses. La première c'est que l'aile bleue a complètement disparu parce que pour cette épaisseur l'interaction van der Waals est négligeable. Le deuxième point marquant, c'est qu'il y a un peuplement du sous-niveau relais $F' = 4$ malgré le pompage sur le sous-niveau $F' = 3$ et qu'il provoque l'apparition d'un pic d'absorption très large sur ce deuxième sous-niveau. Cet effet est lié à la re-thermalisation [Failache thèse] [37] entre sous-niveaux hyperfins lorsque la pression de Césium est importante.

Le point essentiel observé à ces faibles épaisseurs, c'est l'élargissement des spectres. Cet élargissement semble principalement causé par la réduction de la durée de vie du niveau résonnant $6D_{3/2}$. Comme nous l'avons vu au chapitre 4, l'interaction de van der Waals résonnante réduit considérablement la durée de vie du niveau. En revanche, la prédominance de l'aile bleue sur la rouge n'est plus aussi marquée sur ces deux spectres que pour ceux d'épaisseurs supérieures (figure 5.9). Ceci pourrait s'expliquer par des effets

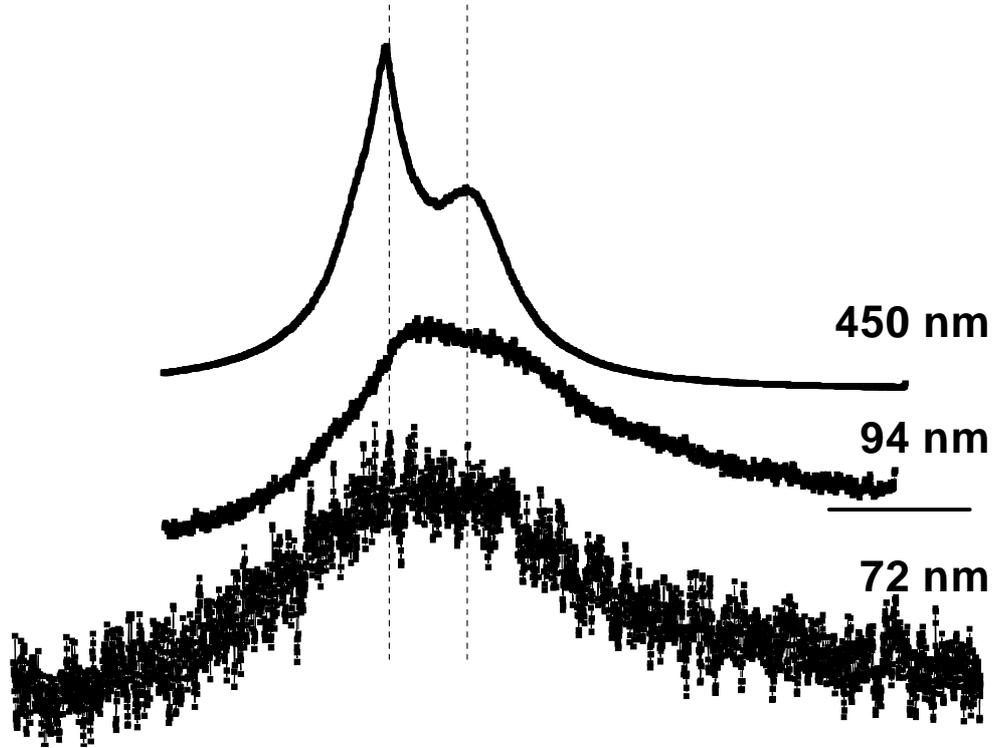


FIG. 5.11 – Transmission en cellule ultra mince en saphir de la transition $6P_{1/2} \rightarrow 6D_{3/2}$. Épaisseur de 94, 72 et 450 nm, pour une température de 265/290°C identique aux trois spectres. Les pointillés indiquent les références d'absorption saturée $F'=3,4$ espacées de 1.17 GHz.

de couplages entre les modes de surface des deux parois, très proche l'une de l'autre, pouvant entraîner un déplaçant de leurs pics de résonance et réduisant ainsi l'efficacité du couplage avec le niveau atomique du Césium.

5.3.2.4 Conclusion

Pour résumer ces expériences de la transition par étapes vers le niveau $6D_{3/2}$, des élargissements considérables ont été observés avec la réduction de l'épaisseur. Dans une gamme d'épaisseur comprise entre 120 nm et 250 nm, une aile bleue est fortement prononcée et semble ne pas pouvoir être expliquée uniquement par les effets dispersifs en

cellule ultra mince. En revanche, pour les épaisseurs inférieures, l'élargissement est autant prononcé vers le bleu que vers le rouge. Le déplacement globalement bleu du pic d'absorption n'a pas été directement observé. Ainsi, au regard de ces résultats, une manifestation directe de la résonance entre le niveau $6D_{3/2}$ du Césium et les fenêtres en saphir c_{\perp} semble avoir été observée par la prédominance d'une aile bleue. Par ailleurs, aux petites épaisseurs et aux grandes pressions, un élargissement global de la transition semble prépondérant sur les effets de résonance qui sont attendus principalement, comme un déplacement spectral vers le bleu.

Ces résultats sont très encourageants quant à la possibilité d'effectuer une transition par étapes à très petites épaisseurs en cellule ultra mince.

5.3.3 Excitation directe à deux photons

5.3.3.1 Introduction

Le passage vers un niveau relais pour atteindre le niveau résonnant $6D_{3/2}$ pose un certain nombre de problèmes (difficulté de connaître la population du niveau intermédiaire, déplacement et élargissement de la transition intermédiaire, *c.f.* 5.3.2) et le principal avantage de la transition à deux photons c'est justement de s'en affranchir totalement. Pour réaliser cette transition, nous avons utilisé les deux mêmes sources laser que précédemment, décalées de quelques GHz du niveau relais $6P_{1/2}$ afin de minimiser l'introduction de trop fortes puissances.

Nous avons rencontré plusieurs problèmes que nous allons détailler, dont le principal est l'effet Stark induit par les champs de nos faisceaux. Nous montrons aussi que la transition à deux photons fonctionne très bien en cellule mince et permet notamment de résoudre la structure hyperfine du niveau $6D_{3/2}$ sans difficulté.

Nous avons réalisé plusieurs montages expérimentaux, au fur et à mesure que nous rencontrions leurs limites expérimentales. La première idée de montage que nous avons eu consiste en la minimisation des effets interférométriques en cellule mince en plaçant les faisceaux à l'angle de Brewster, tels que la somme vectorielle de leurs vecteurs d'onde soit normale à la surface. Puis, des problèmes liés au four de chauffage nous ont amené à une configuration plus classique où les deux faisceaux sont contra-propageants.

Nous commençons par présenter le montage de référence des deux configurations uti-

lisées et nous rappelons ici le principe de la transition à deux photons. Ensuite, nous présentons la configuration des faisceaux à 60° puis contra-propageants.

5.3.3.2 Principe de la transition à deux photons vers le niveau $6D_{3/2}$ et montage de la référence

a) Principe de la transition à deux photons. La probabilité de transition à deux photons d'un niveau $|g\rangle$ vers un niveau $|e\rangle$, désaccordé d'un niveau relais $|j\rangle$ de $\delta\omega = \omega - \omega_0$, s'écrit comme [31]:

$$P_{g \rightarrow e} \propto \left| \frac{\Omega_1 \Omega_2}{(\gamma_{res} + i\Delta_{2ph}) \delta\omega} \right|^2 \quad (5.1)$$

avec Ω_i ($i = 1,2$) la fréquence de Rabi respectivement des transitions $|g\rangle \rightarrow |j\rangle$ et $|j\rangle \rightarrow |e\rangle$, γ_{res} la largeur de la transition à deux photons, Δ_{2ph} le désaccord avec la transition deux photons, ω la fréquence de la source laser et ω_0 la fréquence de la transition résonnante.

L'absorption "deux photons" est proportionnelle au produit des intensités des deux faisceaux et inversement proportionnelle au désaccord en fréquence avec le niveau relais, ici $6P_{1/2}$. Il faut donc trouver un désaccord tel que les fréquences soient assez éloignées des ailes Doppler et tel que les puissances utilisées ne soient pas trop importantes. En effet, l'inconvénient majeur de cette technique réside dans l'effet Stark dynamique induit par les forts champs lumineux mis en jeu. Il se traduit par un déplacement en énergie de la transition de :

$$\delta E = \hbar \frac{\Omega_1^2}{2\delta\omega} \quad (5.2)$$

Ce déplacement est donc rouge ou bleu suivant le désaccord choisi. Par exemple sur la figure 5.12, lorsque le désaccord est $\delta\omega_1$ (négatif) le déplacement Stark est rouge et lorsque le désaccord est $\delta\omega_2$ (positif) le déplacement est bleu.

b) Le montage de référence. Ce montage sera utilisé pour toutes les configurations expérimentales suivantes. Il s'agit d'un montage à deux faisceaux contra-propageants pour résoudre la structure hyperfine du niveau $6D_{3/2}$ (contrairement la à configuration de faisceaux co-propageants) dans une cellule centimétrique chauffée à 90°C . Les faisceaux sont focalisés par des lentilles de focale respective de 80 et 95 mm pour les faisceaux à

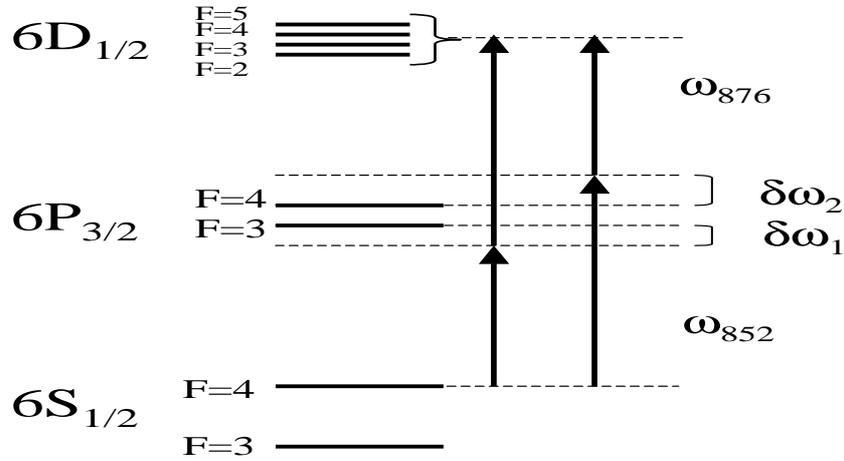


FIG. 5.12 – Deux possibilités de transition à deux photons sont représentées par les doubles flèches pour des désaccords de $\delta\omega_i$.

894 nm et 876 nm afin d'augmenter leur intensité dans la vapeur. Elles sont alors de 10 W/cm^2 pour le faisceau à 894 nm et 3 W/cm^2 pour le faisceau à 876 nm.

Le faisceau à 876 nm est conservé fixe et désaccordé au plus de quelques GHz de la transition résonnante. Son désaccord est mesuré avec un λ -mètre d'une précision de 0.3 GHz. Ce désaccord situe la transition à la limite de l'aile Doppler la plus proche mais son effet est négligeable. De même, ce désaccord nous permet d'obtenir un signal conséquent. Le balayage en fréquence est effectué par le laser DBR à 894 nm que nous appellerons sonde parce qu'il est détecté. Ainsi, la pompe (laser à 876 nm) est modulée en amplitude par une roue dentée à des fréquences comprises entre 1 et 2 kHz. Le signal d'absorption du faisceau sonde est alors démodulé par une détection synchrone.

L'ensemble de ce montage de référence en fréquence permet de résoudre la structure hyperfine du niveau $6D_{3/2}$ et d'obtenir un rapport S/B suffisant pour des désaccords allant jusqu'à 4 GHz. L'élargissement Stark résiduel est inférieur aux largeurs mesurées (sources lasers: 3 MHz, élargissement collisionnel, largeur naturelle de la transition). Ainsi, le déplacement Stark est inférieur à la limite de notre détection.

5.3.3.3 La configuration à deux photons à "60°"

Dans cette partie nous avons utilisé une cellule d'une épaisseur de $8 \mu\text{m}$. La technique a été néanmoins validée sur la cellule ultra mince en YAG sans que l'on puisse continuer les investigations à cause d'un problème du four de chauffage qui ne s'est pas révélé assez fiable.

a) Le montage expérimental. Afin d'éviter les interférences entre les faisceaux transmis et réfléchi dans la cellule ultra mince, il faut par exemple annuler la réflexion à l'interface en orientant les faisceaux incidents à l'angle de Brewster pour la polarisation adaptée. Ainsi, il n'y a plus de réflexion et seuls les faisceaux transmis se propagent dans la cellule. Il faut par ailleurs que la somme des vecteurs d'onde soit normale à la surface pour conserver la sélectivité en vitesse des atomes se propageant parallèlement à celles-ci. Cette configuration est possible si l'on oriente les deux faisceaux au plus proche de leur angle de Brewster mais en sens opposé. Alors le vecteur d'onde résultant est normal aux surfaces comme représenté sur la figure 5.13.

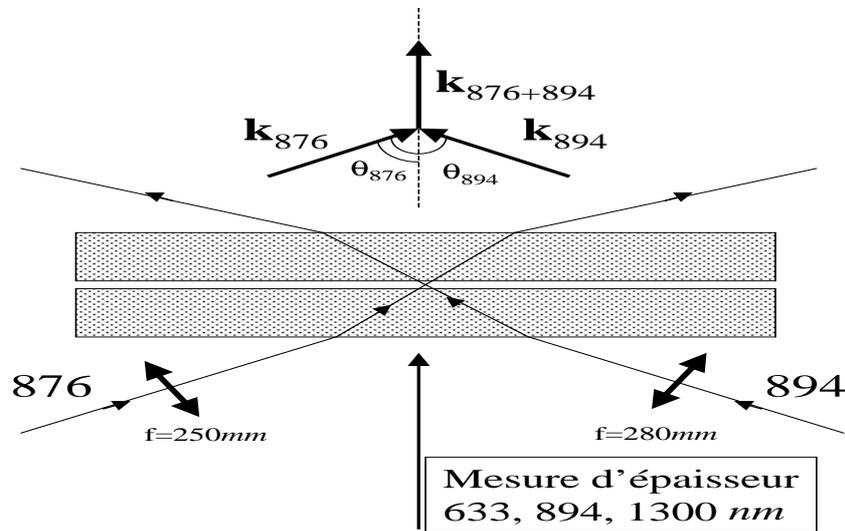


FIG. 5.13 – Schéma de principe du montage à deux photons à l'angle de Brewster.

L'angle de Brewster sur une fenêtre en saphir à la longueur d'onde de 876 nm vérifie :

$$\tan(\Theta_{876}) = n_{\text{saphir}} = 1.82 \quad (5.3)$$

$$\Theta_{876} = 61.2^\circ \quad (5.4)$$

avec Θ_{876} et Θ_{894} définis sur la figure 5.13.

On remarquera que l'angle d'incidence sur la fenêtre externe est conservé sur la deuxième surface interne de la cellule, ce qui correspond à l'orientation recherchée. Par ailleurs, la longueur d'onde des deux faisceaux n'étant pas identique, l'orientation normale à la surface de la somme des vecteurs d'onde implique la relation suivante (voir figure 5.13) :

$$\mathbf{k}_{876} \sin(\Theta_{876}) = \mathbf{k}_{894} \sin(\Theta_{894}) \quad (5.5)$$

$$\Theta_{894} = \Theta_{876} + 2.2^\circ \quad (5.6)$$

où l'on a préféré annuler complètement la réflexion sur le faisceau sonde à 876 nm.

Il est à noter que le montage expérimental permet une mesure des angles d'incidences sur la fenêtre externe avec une précision de 0.5° . Par exemple, en changeant la polarisation incidente, il est possible d'observer le faisceau réfléchi et donc de mesurer l'angle d'incidence avec la précision avancée.

Les fours de chauffage des cellules, de confection Arménienne, comportent uniquement des fenêtres à 90° les unes des autres. Il n'est donc pas possible avec un tel four de réaliser cette configuration à 120° d'autant plus qu'il est préférable d'avoir une fenêtre supplémentaire normale aux surfaces pour la mesure d'épaisseur. Nous avons donc confectionné nous même un four constitué de six fenêtres à 60° chacune suivant le modèle Arménien pour les dimensions et la disposition des fils chauffants. Nous avons choisi l'aluminium comme armature et un isolant thermique souple pour l'extérieur. Les fenêtres sont traitées anti-reflets et des petits orifices pour les sondes thermiques sont prévus afin de connaître la température en toute position du four. Il est à noter que ce four a bien fonctionné dans une gamme de température inférieure à 150°C . En revanche, lorsque nous voulions sonder des épaisseurs plus petites et par conséquent augmenter la température, nous avons eu des problèmes de condensation de Césium sur l'ensemble des surfaces internes de la cellules, c'est-à-dire que la température du queusot était trop proche de celle des fenêtres. Malgré différentes modifications techniques, ce problème persiste (dans une moindre mesure) et il a été impossible d'atteindre des épaisseurs inférieures à 450 nm. Par ailleurs, afin de résorber la condensation de Césium, nous avons augmenté (dans

un autre four) la température des fenêtres jusqu'à près de 600°C pendant une heure. Cette température trop élevée a eu comme conséquence d'augmenter irrémédiablement l'épaisseur de la première cellule ultra mince en YAG d'environ 200 nm sur l'ensemble de sa surface (voir discussion du chapitre 2). C'est pourquoi nous présentons des spectres réalisés avec une cellule commerciale en silice d'une épaisseur de 8 μm .

Un aspect délicat de cette configuration réside dans la mesure de l'épaisseur de la cellule au point exact de la mesure. En effet, les faisceaux pompe et sonde n'ayant a priori pas de réflexion ou une très faible, il est impossible de les utiliser pour mesurer l'épaisseur. La méthode utilisée consiste alors à mesurer l'épaisseur de la même manière que précédemment avec les trois longueurs d'onde (633, 894 et 1300 nm) orientées normalement aux surfaces internes. Puis à l'aide d'une transition par étape - avec le faisceau à 894 nm de la mesure d'épaisseur - le faisceau à 876 nm est amené au maximum de signal par un jeu de miroirs permettant un déplacement global du faisceau sans changement de son angle d'incidence, c'est-à-dire à une superposition optimisée. Enfin, après avoir bloqué les trois faisceaux de la mesure d'épaisseur, le faisceau pompe à 894 nm - de la transition à deux photons recherchée - est amené à son tour par la même technique, sur la position du faisceau sonde à 876 nm qui reste fixe. Ainsi, les deux faisceaux à 124.8° l'un de l'autre sont superposés et l'épaisseur de cellule est connue. Il ne reste alors qu'à adapter les intensités⁹ au fur et à mesure du désaccord en fréquence pour avoir le montage entièrement préparé à l'enregistrement du spectre à deux photons.

Nous avons placé deux lentilles, de focalisation respective 250 et 280 mm, pour les faisceaux à 876 et 894 nm de manière à ce que l'intensité dans la vapeur soit suffisante, c'est-à-dire pouvant atteindre 3000 W/cm².

b) Présentation et discussion des résultats expérimentaux. Sur la figure 5.14-a sont représentés les spectres d'absorption de la référence et de la cellule mince d'épaisseur 8 μm . Nous avons choisi par commodité de balayer le laser à 894 nm. Le laser à 876 nm est alors désaccordé d'une valeur fixe de 1 GHz bleu du niveau $6P_{1/2}(F' = 4)$. La référence résout les quatre composantes hyperfines $F'' = 2,3,4,5$ de la transition $6S_{1/2}(F = 4) \rightarrow$

9. Les intensités sont choisies faibles pour rester en régime linéaire d'interaction pour que le signal soit proportionnel à la surface pour la recherche de la superposition lorsque la fréquence des faisceaux est à résonance.

$6D_{3/2}$. Les intensités utilisées dans la cellule mince sont respectivement de 500 et 600 W/cm^2 pour les faisceaux à 876 et 894 nm.

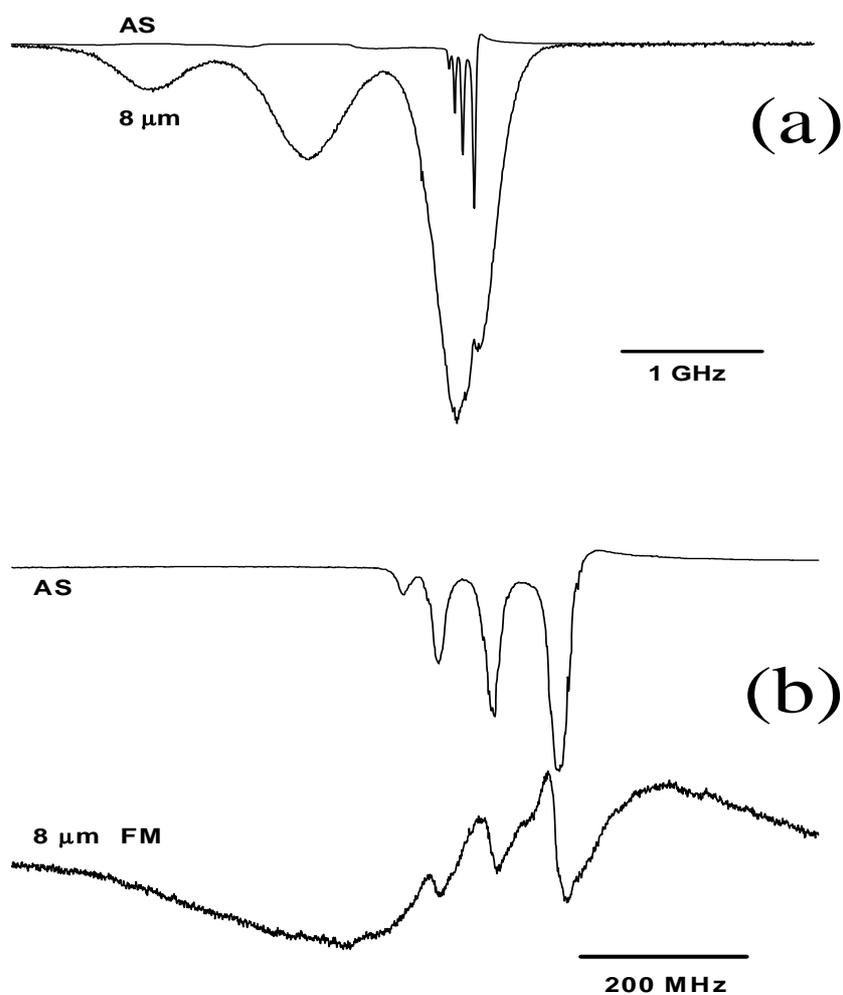


FIG. 5.14 – Spectres 2 photons à "60°" dans une cellule en silice d'une épaisseur de 8 μm à $T=100^\circ C$. Les deux spectres sont enregistrés pour un désaccord de 1 GHz bleu de $6P_{1/2}(F' = 4)$. (a) en transmission directe (b) en FM

Le spectre en cellule mince comporte trois larges pics d'absorption. Le plus intense, au niveau de la référence, correspond à l'absorption à deux photons de l'ordre de 10^{-3} . Il est d'une largeur de l'ordre de 700 MHz qui correspond à l'élargissement Doppler induit par l'angle d'incidence entre les deux photons. Les deux autres pics d'absorption, situés à des

fréquences plus faibles, sont des absorptions résiduelles à 876 nm lorsque la fréquence du faisceau à 894 nm permet le peuplement du niveau $6P_{1/2}$. Cet effet lié à la grande densité atomique n'est pas observable sur la référence de densité moins élevée. Cet effet disparaît lorsque l'on désaccorde d'avantage la fréquence à 876 nm (2 GHz bleu par exemple).

Nous observons aussi des petits décrochements dans l'absorption à deux photons qui correspondent aux différentes composantes hyperfines. C'est pourquoi la technique FM permet ici de résoudre bien plus distinctement cette structure comme présenté sur la figure 5.14-b avec une échelle en fréquence plus appropriée. Nous disposons aussi de la référence en transmission directe où l'on discerne plus aisément qu'en 5.14-a la structure hyperfine car la technique FM fait mieux ressortir les variations rapides.

Sur les spectres enregistrés en cellule ultra mince, nous avons pu remarquer quelques aspects importants. L'absorption est beaucoup plus faible (de l'ordre de $5 \cdot 10^{-5}$) dans les mêmes conditions de pression et d'intensité que dans la cellule d'épaisseur $8 \mu\text{m}$. Il est donc nécessaire d'augmenter le nombre d'atomes et l'élargissement collisionnel, aussi observé dans la cellule $8 \mu\text{m}$, ce qui ne permet plus de résoudre les différentes composantes hyperfines du niveau. L'élargissement Doppler lié à l'angle d'incidence des deux faisceaux est le même en cellule ultra mince, de l'ordre de 700 MHz.

5.3.3.4 Le montage à deux photons contra-propageants

Présentons maintenant le montage à deux photons contra-propageants qui peut être préparé dans le four Arménien, déjà éprouvé quant à sa fiabilité à hautes températures. Nous discutons ici principalement de la limitation lié à l'effet Stark dynamique dans cette configuration. Le montage de référence utilisé est identique à celui présenté ci-dessus.

a) Le montage expérimental. Nous avons choisi de positionner les deux faisceaux contra-propageants avec un angle résiduel négligeable entre eux. Les polarisations des deux faisceaux sont respectivement orientées horizontalement et verticalement de manière à ce que les faisceaux soient séparés par un polariseur de Glan-Taylor. Le faisceau à 876 nm (pompe) est modulé en fréquence à 18 kHz. Le deuxième faisceau à 894 nm (sonde) effectue le balayage en fréquence. Des lentilles de focalisation sont placées sur l'axe des faisceaux afin d'augmenter l'intensité dans la vapeur. Elles sont respectivement de 90 et

77 mm pour les faisceaux pompe et sonde. Elles permettent d'atteindre des intensités maximales de 150 W/cm^2 sur la pompe et 70 W/cm^2 pour la sonde.

Pour ce montage, nous avons utilisé deux cellules différentes dont les fenêtres sont soit en saphir et dont l'épaisseur est comprise entre 70 et 600 nm, soit en YAG pour une épaisseur comprise entre 450 et 1300 nm. La température de la vapeur est changée en fonction de l'épaisseur sondée et du rapport S/B. L'axe des faisceaux est orienté perpendiculairement aux surfaces internes de la cellule et l'épaisseur est mesurée de la même manière que précédemment. Le système de détection utilise une détection synchrone à la fréquence de modulation de la pompe. L'amplitude de la FM est prise de l'ordre de 10 MHz afin de ne pas élargir le spectre de la référence. Nous avons utilisé un désaccord de 1.5 GHz mesuré sur le faisceau pompe avec le $\lambda - \text{mètre}$.

Nous avons placé une lame $\lambda/2$ entre deux polariseurs croisés de manière à pouvoir faire varier les puissances disponibles sans perturber l'axe des faisceaux et donc l'alignement très sensible au niveau de la cellule.

b) Résultats expérimentaux. Nous discutons ici séparément de deux résultats. Le premier met en évidence l'observation de l'effet Stark à l'épaisseur de 450 nm dans une cellule en YAG. Le second montre la faisabilité d'une transition à deux photons à des épaisseurs de l'ordre de 120 nm dans une cellule en saphir.

L'effet Stark. Le déplacement Stark est proportionnel au produit des intensités des deux faisceaux et inversement proportionnel au désaccord en fréquence par rapport à la transition résonnante voisine (5.2). De plus, il change de signe lorsque la transition à deux photons est au dessus ou en dessous de la transition résonnante voisine. Nous avons donc un certain nombre de paramètres ajustables afin de contrôler l'importance de l'effet Stark. A puissance constante, il est aisé de changer uniquement le désaccord avec le niveau résonnant. Cette simple expérience nous a, entre autres, montré que nous avons un déplacement Stark à forte puissance mesurable qui pouvait atteindre jusqu'à 40 MHz (vers le bleu ou vers le rouge suivant la position du désaccord) observable directement sur les spectres de la figure 5.15-a.

L'épaisseur sondée lors ces expériences est de 450 nm pour une température de la cellule de $140/170^\circ\text{C}$ et pour un rapport S/B de l'ordre de 300. Ce rapport diminue rapidement

lorsque l'on diminue les intensités alors qu'il reste toujours un déplacement Stark résiduel. Nous avons alors montré que ce déplacement Stark ne pouvait jamais être rigoureusement contrôlé pour nos conditions expérimentales. Tout d'abord, nous mesurons le désaccord à l'aide d'un $\lambda - m\grave{e}tre$ qui nous assure une précision maximale de 0.3 GHz, précision qui est nettement insuffisante par rapport aux désaccords de quelques GHz pratiqués et qui ne permet pas une assez bonne reproductibilité. Ensuite, la longueur de Rayleigh de nos faisceaux est approximativement d'un demi-millimètre et il est impossible d'obtenir une telle précision absolue sur la position d'une lentille à 80 mm du plan focal.

La figure 5.15 présente deux enregistrements en FM où la position d'une lentille de focalisation a été déplacée d'un demi-millimètre dans l'axe du faisceau pour les mêmes puissances et le même désaccord utilisés. Les quatre composantes hyperfines de ces spectres sont résolues aussi bien sur la référence que dans la cellule ultra mince. Nous observons alors qu'il y a un facteur 2 sur le déplacement Stark entre les deux positions de la lentille ainsi qu'un faible élargissement additionnel. Cet effet est trop incontrôlable pour qu'il soit possible de le prendre en compte de manière systématique. D'autant plus que les déplacements recherchés sont attendus, dans un premier temps pour des épaisseurs supérieures à 200 nm, de l'ordre de la dizaine de MHz. Par la suite, si nous devons atteindre des épaisseurs bien plus petites avec les mêmes intensités, une incertitude d'une vingtaine de MHz serait a priori négligeable devant le déplacement attendu, mais à faible épaisseur l'efficacité de la transition diminue et il est nécessaire d'augmenter les puissances en conséquence.

Dans ce paragraphe nous avons montré qu'il n'était pas possible, avec notre montage expérimental, de contrôler les effets induits par les fortes intensités employées et que la structure hyperfine de la transition à deux photons était résolue à l'épaisseur de 450 nm.

Les faibles épaisseurs. La cellule en YAG ayant changé d'épaisseur après une surchauffe à 600°C, son minimum est actuellement de 450 nm. C'est pourquoi, nous avons utilisé ici la première cellule ultra mince en saphir d'épaisseur comprise entre 70 et 600 nm (ce n'est pas la même cellule que dans la section 5.2 lors de la transition par étapes).

Il s'agit du même dispositif expérimental que précédemment : une forte diffusion en provenance du milieu de la cellule (vapeur ou surfaces) introduit une grande incertitude sur les mesures d'épaisseur de l'ordre de 50 nm. Nous avons pris garde à conserver les intensités

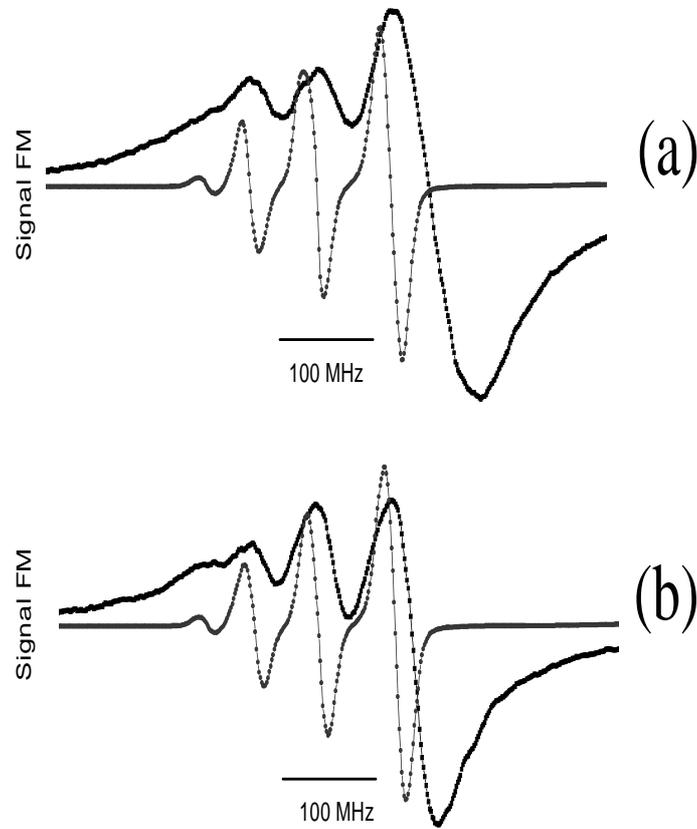


FIG. 5.15 – Sur les deux figures il y a en FM la référence (bien résolue) et le signal en cellule ultra mince à 450 nm en YAG. La position de l'une des deux lentilles de focalisation autour de la cellule mince en (a) est déplacée de 0.5 mm par rapport à (b)

des faisceaux faibles. Cette précaution nous assure un déplacement-élargissement Stark négligeable au prix d'un signal relativement faible. Sur la figure 5.16 sont présentés trois spectres aux épaisseurs respectives de 120, 160 et 320 nm.

La première remarque que nous ferons est relative au spectre à l'épaisseur de 320 nm pour lequel il est possible de discerner trois des quatre composantes hyperfines avec un déplacement en fréquence de la transition négligeable. L'effet Stark est bien diminué au prix d'un rapport S/B de l'ordre de 10. La deuxième remarque est relative aux élargissements des spectres, notamment dans les ailes, ce qui implique que la structure hyperfine n'est plus résolue lorsque l'on diminue l'épaisseur jusqu'à 120 nm. Et le troisième

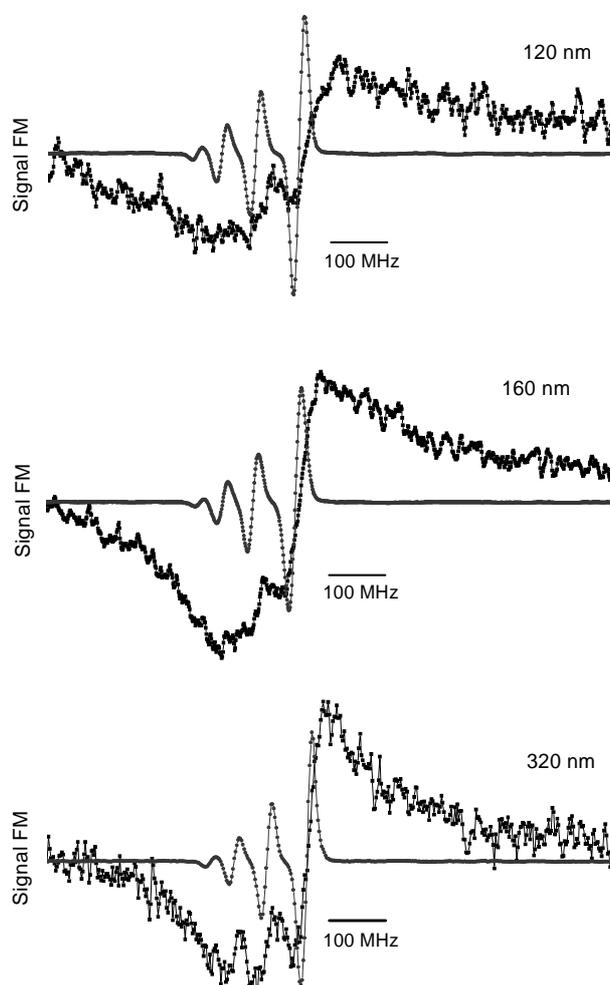


FIG. 5.16 – Spectres 2 photons aux épaisseurs de 120, 160 et 320 nm. Cellule en saphir.

point, c'est qu'il n'y a aucun déplacement vers le bleu de cette transition, notamment à l'épaisseur de 120 nm. En comparant avec les spectres de la section 5.3.2, à cette épaisseur de 120 nm nous attendons une manifestation plus importante de l'interaction van der Waals résonnante de l'ordre de la centaine de MHz vers le bleu pour le déplacement. Il est à relever ici que comme en 5.3.2, nous n'avons jamais observé un tel déplacement vers le bleu de cette transition.

5.3.3.5 Conclusions et perspectives

La spectroscopie à deux photons s'est révélée comme un outil possible d'investigation pour des transitions nécessitant deux *quanta* en cellule ultra mince. L'absorption y est importante comparativement à la transition par étapes vers le même niveau.

Nous avons aussi rencontré des limitations d'ordre purement technique sur le four de chauffage à six fenêtres et des limitations expérimentales concernant l'effet Stark dynamique. Par ailleurs, il a été possible d'obtenir des spectres à des épaisseurs remarquables de 120 nm. La configuration à "60°" en cellule d'épaisseur de 8 μm a validé la méthode et reste un moyen réaliste de s'affranchir des effets interférométriques en cellule ultra mince.

5.4 Conclusion du chapitre

Dans ce chapitre nous avons montré qu'il était possible d'exciter le niveau $6D_{3/2}$ du Césium à des épaisseurs allant jusqu'à 70 nm. Les techniques employées ont été multiples. En utilisant le principe de la transition par étapes, nous avons observé l'apparition d'une aile bleue de plusieurs GHz aux épaisseurs environnant 120 nm puis un élargissement rouge et bleu aux épaisseurs inférieures. Les transitions à deux photons nous ont montré que cette technique permet d'atteindre de petites épaisseurs (jusqu'à 120 nm) en s'affranchissant des problèmes de population du niveau intermédiaire.

Chapitre 6

Croisement de niveaux par répulsion-attraction

6.1 Introduction

Le croisement des potentiels attractif et répulsif des niveaux $6D_{3/2}$ et $6D_{5/2}$ a été discuté théoriquement dans le chapitre 4 et nous présentons ici les expériences menées au laboratoire sur ce sujet depuis l'année 2000.

Le croisement des deux potentiels forme des états liés dont la largeur est estimée par l'inverse de la durée de vie des niveaux entre 1 et 100 GHz. La position du croisement se situe par définition dans les ailes des raies de résonances des niveaux $6D_{3/2}$ et $6D_{5/2}$. Cette expérience nécessite donc un laser capable de balayer au minimum 1.3 THz avec une résolution spectrale de l'ordre du GHz. Les lasers commercialisés balayables dans cette plage de fréquence coûtent très chers. C'est pourquoi le groupe a mis au point en septembre 2000 un système en collaboration avec un chercheur russe (A. Yarovitski).

Nous décrivons pour commencer le fonctionnement de ce laser à cavité étendue entièrement piloté par ordinateur.

La distance de croisement entre les deux potentiels étant de l'ordre de 5 nm, le montage expérimental doit être spécialement conçu pour sonder des atomes très proches de la surface. Cette expérience a débuté par un montage en ondes évanescentes sur une cellule de vapeur centimétrique en saphir. Nous décrivons cette approche ainsi que ses limites

expérimentales et théoriques. C'est alors, deux ans plus tard que nous avons repris cette expérience avec les cellules ultra minces dans de meilleures conditions théoriques (connaissance de ces cellules) et expérimentales (très faibles épaisseurs accessibles, hautes densités atomiques).

6.2 Le laser 917-921 nm

6.2.1 Présentation générale du problème

Cette expérience nécessite un laser balayable sur la gamme 917-921 nm avec une résolution spectrale au minimum de 1 GHz. Or, les lasers commerciaux à balayage continu dans cette gamme de fréquence coûtent très chers. De plus, il n'existe pas de diode commercialisée dans ces longueurs d'onde autour de 920 nm. Le seul endroit où cette longueur d'onde est utilisée en diode laser est un laboratoire russe. C'est pourquoi, le groupe en collaboration avec un chercheur russe, a entièrement construit un système balayable par pas de 0.3 GHz entre 917 et 921 nm avec une cavité étendue.

6.2.2 Principe général de fonctionnement et architecture physique du laser

Le fonctionnement mono-mode de la diode est imposé par le retour optique de la cavité étendue. Une cavité en configuration Littman, présentée sur la figure 6.1, a été choisie afin de conserver l'axe du faisceau de sortie inchangé lors du balayage. L'ordre zéro de diffraction est utilisé sur le réseau et c'est le mouvement de rotation du miroir qui change l'angle de diffraction du réseau et donc la longueur d'onde de la diode sans changer l'axe du faisceau de sortie.

Nous avons besoin d'une plage de balayage de 5 nm à la longueur d'onde de 920 nm, ce qui impose un angle de diffraction pour le réseau utilisé de $5 \cdot 10^{-3}$ rad autour de l'axe de rotation du pivot virtuel (représenté sur la figure 6.1), soit un mouvement du miroir de 150 μm . Pour ce grand déplacement, il a été choisi d'utiliser le *pico-moteur New-focus* d'une sensibilité de déplacement nanométrique. Une tension appliquée à ses bornes permet des déplacements par saut de 10 nm soit 0.4 GHz sur la fréquence de sortie du laser.

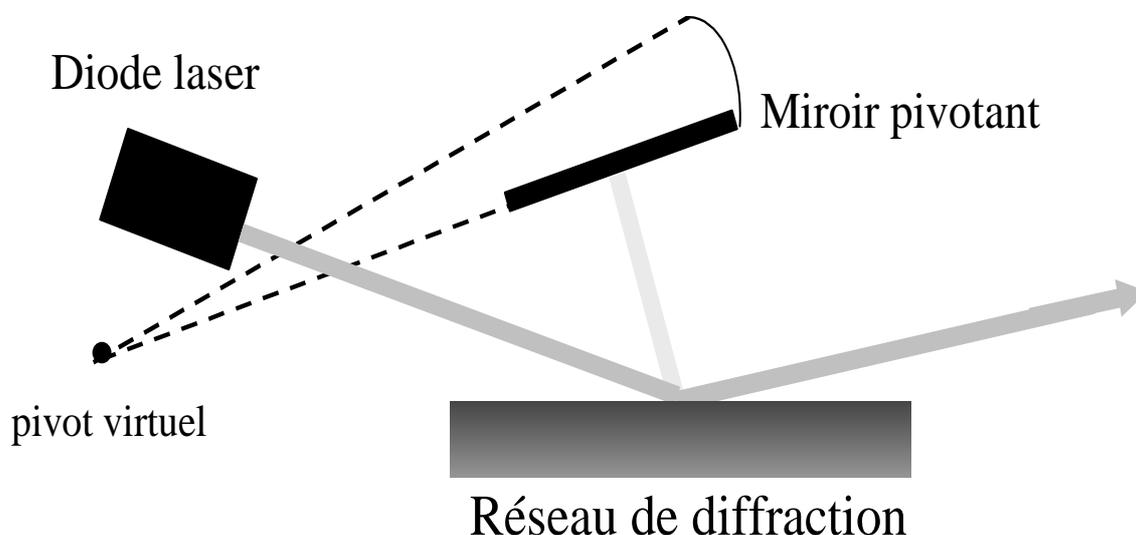


FIG. 6.1 – Configuration Littman d'une diode à cavité étendue.

Lors du déplacement du miroir, la puissance de sortie de la diode, à une tension donnée, change rapidement et son fonctionnement mono-mode est restreint à une plage de l'ordre de 20 GHz puis n'est plus opérationnelle sur une gamme d'environ 100 GHz (c.f. figure 6.2). Ce cycle se répète tant que la diode se trouve dans sa courbe de gain. Afin d'augmenter la plage de balayage, nous pouvons varier soit la tension d'alimentation soit la température de la diode. Le fonctionnement de la diode très proche de son seuil ne permet pas de varier sa tension d'alimentation. En revanche, lorsque le courant d'alimentation est constant, une variation de 20 GHz/K, typique des milieux à gain en GaAs, permet de balayer 100 GHz tous les 5°C (car le seuil est fonction de la température). Ainsi, en faisant varier simultanément la température et l'orientation du miroir, la diode reste mono-mode sur toute cette gamme de fréquence. Il ne s'agit pas pour autant d'un balayage continu mais par saut de 0.4 GHz induit par le mouvement du miroir. Une fois ce balayage en température terminé, il suffit de re-positionner la diode à la température initiale (5° en deçà de la température présente) et la nouvelle position du miroir permet alors de repartir sur un nouveau cycle en température. Il faut une vingtaine de cycles composés de 200 points chacun pour parcourir les 5 nm et l'ensemble de l'opération dure environ 4 heures.

A ce fonctionnement global du balayage, il faut rajouter une difficulté liée au mou-

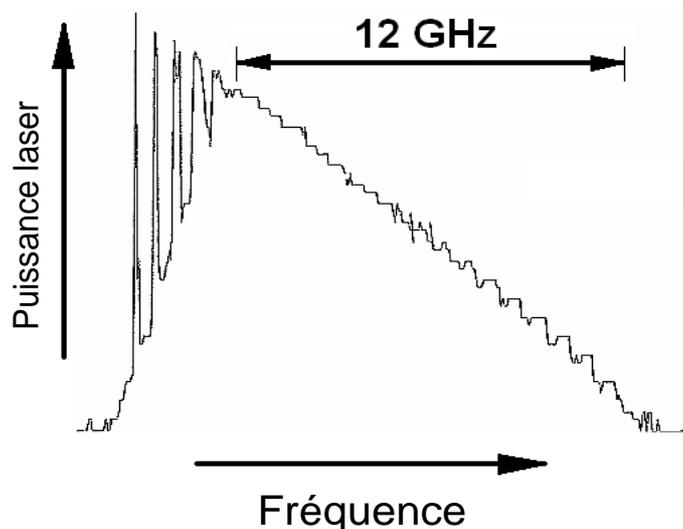


FIG. 6.2 – Puissance de sortie du laser en fonction de la longueur d’onde à courant constant.

vement du miroir. Lorsqu’il effectue un saut avec le *pico-moteur*, le retour optique du faisceau n’est plus nécessairement en phase avec la diode et il faut ajuster la position du miroir de l’ordre de $\lambda/2$ à l’aide d’un piezo. Celui-ci induit un déplacement du miroir dans l’axe du faisceau qui modifie la dimension de la cavité, sans changer la longueur d’onde, et corrige la phase du retour afin d’obtenir le fonctionnement mono-mode. Cette position optimale est obtenue lorsque la transmission dans un Fabry-Perot annexe est maximum, ce qui est caractéristique d’un fonctionnement mono-mode.

6.2.3 Pilotage informatique complet du balayage en fréquence

Le pilotage du laser est basé sur un programme informatique qui permet de contrôler l’ensemble des entrées/sorties du système à l’aide de différents types de cartes. Ce programme a subi des modifications en fonction de son environnement MS-DOS puis Lab-Window. Les différentes entrées/sorties sont successivement la température de la diode (T), le déplacement du *pico-moteur* (PM), l’ajustement du miroir avec le piezo (PZT), la mesure de la puissance de sortie de la diode (Pd1), la mesure de la valeur du pic de transmission du FP (PD), la mesure de la longueur d’onde par le λ – mètre (WM) et la

mesure du signal (Pd2) comme présenté sur la figure 6.3.

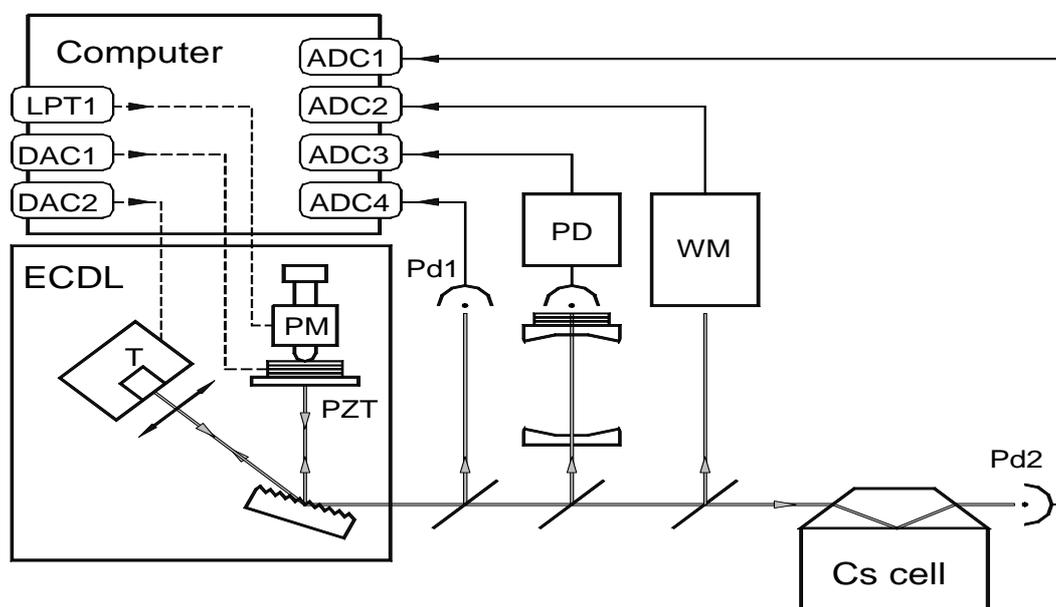


FIG. 6.3 – Schéma de principe de l'interface entre le laser et l'ordinateur.

Le programme se divise en deux boucles imbriquées. La première, après le changement de la température, recherche la position optimale du miroir pour le retour optique. Pour cela, le miroir est déplacé sur toute l'amplitude du piezo et la position optimale correspond à celle qui possède le maximum de transmission du FP. Cependant, l'optimum n'est pas toujours bien distinct car le fonctionnement mono-mode n'est plus tout à fait assuré (température, puissance de sortie trop faible, mauvais alignement). Dans ce cas, le programme recherche à nouveau une position du miroir telle que le fonctionnement du laser soit effectivement mono-mode. La fréquence du laser est ainsi stabilisée puis mesurée par le λ - mètre avant d'être incluse dans le fichier de points. L'acquisition du signal débute à cet instant par une détection synchrone pendant une durée définie par le programme, entre 300 et 700 ms.

La seconde boucle s'occupe du balayage à proprement parlé. Elle synchronise l'amplitude du déplacement du *pico-moteur* avec le changement de la température qui est fixée par avance pour des questions de dissipation thermique. En effet, la température de la diode ne change pas instantanément et, même si l'on commande les variations de

température par paliers, une variation continue de la température de la diode est préférable pour davantage de reproductibilité. C'est pourquoi la durée entre les changements de température doit être le plus identique possible d'une fois sur l'autre mais dépend aussi de la première phase de recherche de l'optimum du retour optique. La synchronisation entre la température et le déplacement du miroir est alors calculée en convertissant la puissance de sortie du laser en un angle de rotation du miroir, nécessaire pour suivre la courbe de gain en puissance du laser (figure 6.2). Le nombre de saut du *pico-moteur* est donc ajusté. Cette étape est capitale car beaucoup de facteurs comme la température de la pièce, l'alignement de la cavité ou la longueur d'onde perturbent le déroulement de la séquence, qui n'est jamais complètement identique d'une fois sur l'autre et doit être ajustée par une amplitude du mouvement du miroir adaptée (avec le *pico-moteur*). Ainsi, la température change régulièrement toutes les une à deux secondes (suivant le temps passé à trouver l'optimum de retour optique) jusqu'à ce qu'elle ait varié des cinq degrés attendus. Elle revient alors au point de départ. Puis, après une pause de deux minutes nécessaire à la thermalisation de l'ensemble, le cycle recommence. L'ensemble du système a balayé entre 1000 et 2000 GHz en 10-15 minutes.

Ce programme est bien entendu capable de commencer à la longueur d'onde souhaitée sur la plage de balayage désirée.

6.2.4 Les limites du système

Il est important de discuter de la manipulation quotidienne d'un tel système et de ses limites expérimentales. La première contrainte réside dans la durée du balayage : il est nécessaire de planifier une journée complète pour un unique spectre entre les résonances à 917 et 921 nm, ce qui limite le nombre de modifications apportées au montage. Ensuite, la précision de la mesure aux pics d'absorption est délicate au vu de l'espacement entre les points de 0.3 GHz au minimum (précision du λ -*mètre*). La détermination de l'absorption ainsi que de la largeur des résonances est empreinte d'une incertitude intrinsèque.

Par ailleurs, l'alignement de la cavité est extrêmement subtile et doit être optimisée avant un balayage. Mais le principal inconvénient réside dans la nécessité d'un nouvel alignement de la cavité pendant le balayage impliquant un contrôle permanent du laser. Ce problème est lié à la monture du miroir qui doit assurer une sensibilité nanométrique

à quelques centimètres de la diode et du réseau. Or, ce système est en permanence en mouvement, tant sur les positions du miroir que par les effets de la dilatation thermique du support de la diode.

La puissance de sortie du laser n'est pas constante et nécessite une normalisation du signal par cette puissance¹. Cette normalisation n'a cependant pas besoin d'être très précise tant que l'absorption est linéaire avec la puissance.

Le dernier inconvénient de ce laser réside dans la génération de points aberrants lorsqu'il ne fonctionne pas parfaitement, ce qui est toujours le cas sur une partie du spectre. Ces points proviennent pour la plupart de la difficulté pour le laser d'être parfaitement mono-mode. La mesure de la longueur d'onde et du signal sont alors fortement perturbés et il n'y a aucun moyen systématique d'éliminer ces points, à moins de disposer d'une cavité parfaitement alignée.

6.3 Montage en ondes évanescentes

6.3.1 Introduction

Dans cette section, nous allons discuter du premier montage expérimental utilisé pour l'observation du croisement de niveau. Ces niveaux sont atteints par les transitions $6S_{1/2} \rightarrow 6P_{3/2}$ à 852 nm puis $6P_{3/2} \rightarrow 6D$ aux longueurs d'onde de 917-921 nm. L'objectif étant de sonder des atomes à une distance de l'ordre de 5 nm de la surface, nous avons mis en place un montage en ondes évanescentes, car la longueur de pénétration des ondes évanescentes est de l'ordre de $\lambda/2\pi$. Ce montage sera détaillé du fait de son aspect inhabituel. Nous discutons ensuite des résultats ainsi que de leurs interprétations qui ont nécessité l'utilisation d'ajustements numériques délicats.

1. Nous attendons un signal linéaire avec l'intensité.

6.3.2 Principe et utilisation des ondes évanescentes

Les ondes évanescentes ont une profondeur de pénétration l dans la vapeur variable suivant leur angle d'incidence que l'on écrit [48]:

$$l = \frac{\lambda}{2\pi} \cdot \frac{1}{\sqrt{(n_1^2 \sin^2(\Theta_i) - 1)}} \quad (6.1)$$

avec λ la longueur d'onde, n_1 l'indice de la fenêtre et Θ_i l'angle d'incidence dans la fenêtre sur la vapeur tel qu'il soit supérieur à l'angle de réflexion totale $\arcsin(1/n_1)$.

Ainsi, pour une fenêtre en saphir ($n_1 = 1.8$), la longueur de pénétration théorique est comprise entre 100 nm en incidence rasante et l'infini lorsque l'angle d'incidence est égal à l'angle de réflexion totale. Cette fonction est rapidement décroissante, et pour un angle d'incidence de l'ordre de 60° , l'épaisseur de vapeur sondée est de 300 nm environ.

La fenêtre en saphir étant à faces parallèles, il est nécessaire de placer un prisme sur celle-ci pour obtenir l'onde évanescente. L'incidence du faisceau à 917-921 nm se fait donc sur le côté du prisme comme représenté sur la figure 6.4. Par ailleurs, le pompage des atomes dans le niveau relais $6P_{3/2}$ par une source laser DBR à 852 nm peut se faire directement en incidence normale si le prisme est tronqué. La configuration adoptée expérimentalement nous permet donc de sonder des atomes à une distance de l'ordre de 300 nm.

6.3.3 Montage expérimental

Dans ce montage, nous avons utilisée une cellule scellée (en volume) en saphir fabriquée en Arménie [37] parce qu'elle résiste à des températures pouvant atteindre 1000°C . Elle est cylindrique de longueur 8 cm et de diamètre 1.3 cm. Les deux fenêtres, d'une épaisseur de 0.6 mm, sont également en saphir et d'axe optique parallèle pour l'une et perpendiculaire pour l'autre. Elle ne comporte pas de queusot mais une capsule en Niobium qui possède un trou pour laisser passer le Césium. Cette capsule est positionnée au milieu du cylindre et cette partie de la cellule doit donc être le point froid afin d'éviter la condensation de Césium sur les fenêtres.

Les fenêtres de cette cellule étant parallèles, il n'est pas possible d'obtenir la réflexion totale sans introduire un prisme sur cette fenêtre. Il nous a alors été nécessaire de coller le

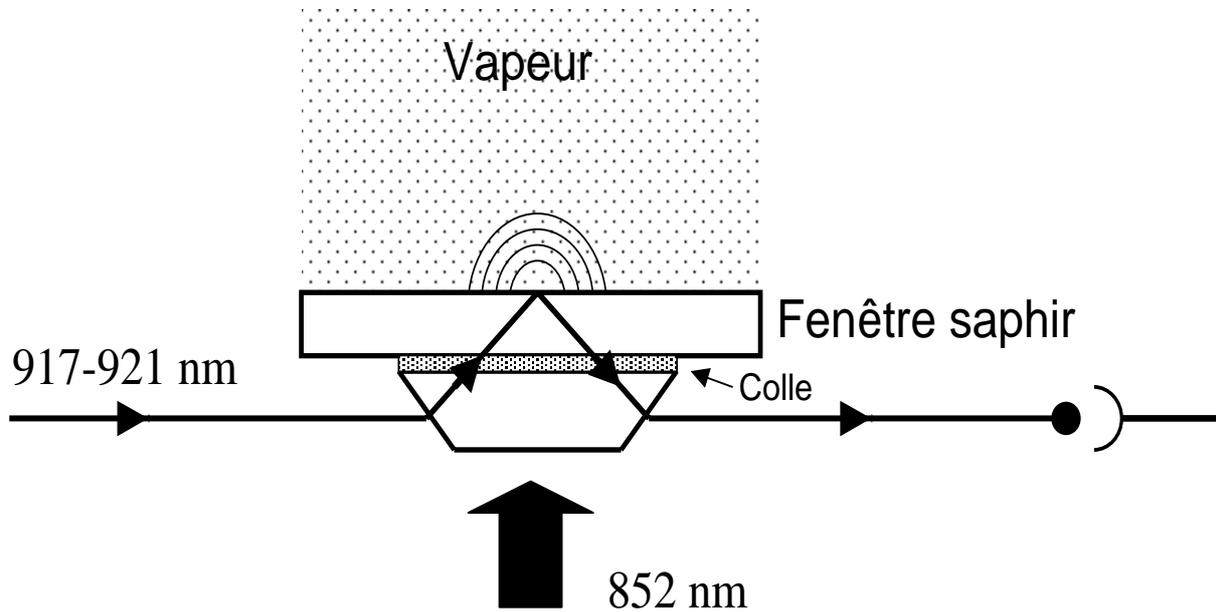


FIG. 6.4 – Configuration expérimentale de la génération d'une onde évanescente dans la vapeur.

prisme sur la fenêtre à l'aide d'une colle transparente. En effet, la colle permet d'introduire un indice de l'ordre de celui de la silice entre le prisme et la fenêtre en saphir. De plus, elle permet d'évacuer l'air (d'indice inférieur) qui aurait pu se loger entre le prisme et la fenêtre s'ils avaient été mis en contact direct. Nous avons alors rencontré une difficulté technologique lié à la faible résistance en température des colles transparentes. En effet, toutes les colles utilisées se dégradent rapidement dès que la température dépasse les 250°C qui deviennent la limite expérimentale.

Comme présenté sur la figure 6.4, le prisme est tronqué de manière à ce que le faisceau pompe puisse atteindre la vapeur directement. Le faisceau à 852 nm est focalisé dans la vapeur afin de peupler au mieux du niveau $6P_{3/2}$. Par conséquent, le faisceau à $917\text{-}921\text{ nm}$ est lui aussi focalisé afin qu'il ait la même taille dans la vapeur que celui à 852 nm . Pour ce faire, il a fallu préparer la forme des faisceaux de manière à ce qu'ils se recouvrent complètement dans la vapeur. En effet, la projection sur un plan orienté d'un angle de l'ordre de 60° d'un faisceau allongé (par exemple suivant l'axe y) et focalisé peut être circulaire s'il est allongée avant focalisation suivant l'axe perpendiculaire (soit ici x). La

taille des faisceaux focalisés est de l'ordre de 100 μm .

Le faisceau pompe à 852 nm est asservi sur la transition hyperfine $6S_{1/2}(F = 4) \rightarrow 6P_{3/2}(F' = 4)$ par un système électronique standard afin d'éviter toute dérive lente de ce laser au cours du balayage de la sonde qui dure 4-5 heures. Ce faisceau pompe est modulé en amplitude par un modulateur acousto-optique à une fréquence de 39 kHz. Le signal de la sonde à 917-921 nm subit les mêmes modulations sur son absorption dans la vapeur et est alors démodulé à l'aide d'une détection synchrone reliée à l'ordinateur.

6.3.4 Résultats et interprétations

La figure 6.5 présente un agrandissement du spectre complet entre 917 et 921 nm de l'absorption des transitions $6P_{3/2} \rightarrow 6D_{5/2}$ et $6P_{3/2} \rightarrow 6D_{3/2}$. L'absorption au pic est de 2.5% et 0.5% respectivement sur les transitions à 917 et 921 nm pour une température de cellule de 180°C. Le bruit est de $5 \cdot 10^{-6}$, ce qui correspond à un contraste dans les ailes de l'ordre de $5 \cdot 10^3$.

Il est alors évident que le signal de croisement est à moins de 10^{-2} de l'absorption. Au delà, il est nécessaire de prendre en compte l'allure même des ailes de raies. En ondes évanescentes, nous pouvons considérer uniquement l'absorption en $1/\delta^2$ autour du pic avec δ le désaccord de fréquence [Simoneau 86] [48]. Puis, il faut prendre en compte les effets dispersifs en $1/\delta$ qui sont prépondérants dans les ailes plus lointaines qui nous intéressent plus particulièrement.

Nous avons donc entamé une série d'ajustements numériques sur les spectres. Ils sont basés sur la minimisation du moindre carré (technique de χ^2 standard). La fonction à ajuster est la somme d'une absorption et d'une (faible) dispersion. Nous avons généralement choisi de rechercher l'ajustement sur un seul pic pour simplifier les opérations et de considérer la distance entre les pics suffisante pour qu'il n'y ait pas d'influence réciproque. Les paramètres ajustables sont les amplitudes de l'absorption et de la dispersion, la largeur de l'absorption et de la dispersion prise identique, le déplacement en amplitude et la position du pic en fréquence (considéré fixe ou non).

Ces calculs ont rencontré plusieurs difficultés de convergence et de reproductibilité. En effet, lorsque l'on change le nombre de points expérimentaux ou leurs poids relatifs, le résultat du calcul peut être complètement différent voire diverger. Ce problème provient

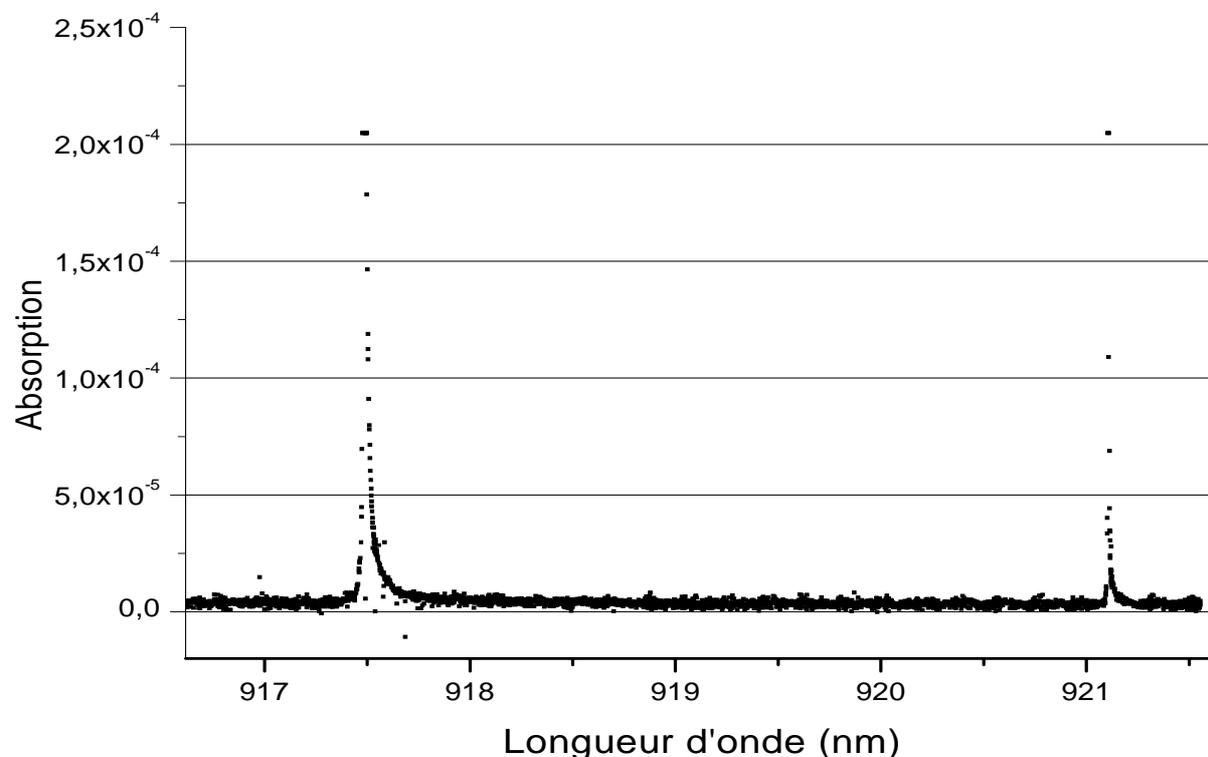


FIG. 6.5 – Agrandissement du spectre expérimental en longueur d'onde des absorptions et des ailes des transitions $6P_{3/2} \rightarrow 6D_{3/2}$ à 921 nm et $6P_{3/2} \rightarrow 6D_{5/2}$ à 917 nm pompées par la transition $6S_{1/2} \rightarrow 6P_{3/2}$ à 852 nm. Les absorptions aux pics sont respectivement de 2.5 et 0.5% à 917 et 921 nm.

principalement du facteur d'échelle conséquent entre le pic et les ailes. Un facteur 10^4 sur les valeurs numériques ajouté à un très petit nombre de points au pic relativement à celui des ailes, de l'ordre 10 points à mi-hauteur et 2000 dans les ailes, ne permet pas d'obtenir simplement la convergence numérique. Il faut alors rétablir le rapport de poids entre le pic et les ailes suivant la partie du spectre (pic ou ailes) que l'on veut ajuster, puis tenter un raccordement pour avoir une évaluation numérique complète.

Nous savons d'après la technique d'enregistrement du spectre qu'il y a une certaine imprécision sur la valeur du signal ainsi que celle de la fréquence. De fait, les quelques points de la partie haute du pic peuvent être négligés devant ceux, plus nombreux, des

ailes plus ou moins lointaines. Avec un tel argument, il est aisé d'attribuer un poids négligeable aux points du pic, voire de les supprimer du calcul. Malgré toutes les modifications que nous avons faites, nous n'avons jamais obtenue la convergence² des résultats. On remarque une certaine convergence mais pour un nombre fixe de points du pic supprimés. Lorsque nous prenons plus ou moins de points dans le pic, alors soit le pic, soit les ailes sont correctement ajustés comme présenté sur la figure 6.6. En 6.6-a, le pic est raisonnablement reproduit alors que dans les ailes en 6.6-b, il y a un faible accord entre les points expérimentaux et l'ajustement numérique. Ce problème est aussi lié à la grande différence de largeur entre la partie haute du pic à quelques GHz et ses ailes dispersives de plusieurs centaines de GHz par rapport à leur différence d'amplitude de l'ordre de 10^3 .

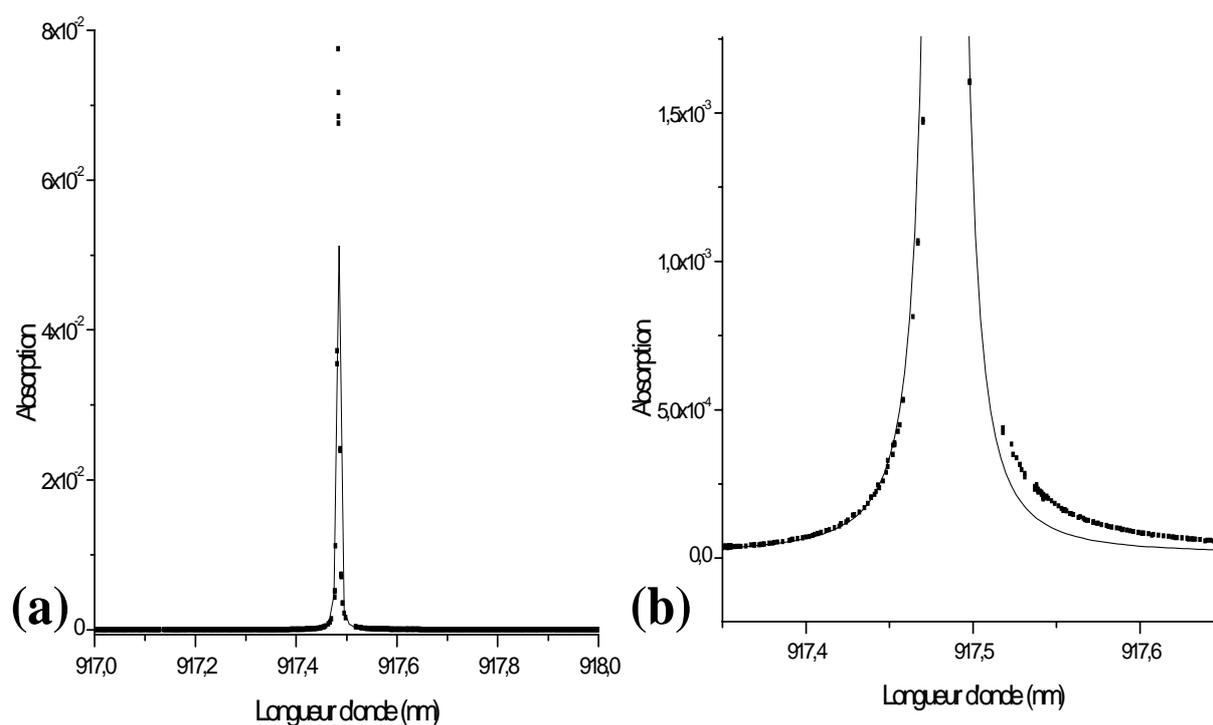


FIG. 6.6 – Ajustement numérique au pic à 917nm. (a) Spectre complet (b) Agrandissement dans les ailes de la raie d'absorption

2. Il y a convergence lorsque le changement d'un paramètre conduit au même résultat.

Dans tous ces spectres, comme prévu en onde évanescente, l'amplitude globale de la dispersion est effectivement faible devant l'absorption (de l'ordre de cent fois). Nous avons montré que les ajustements ne fonctionnaient pas et qu'ils ne nous apportent aucune information utilisable, notamment comme un petit effet additionnel dans les ailes lié au croisement de niveaux. Il faut alors augmenter l'absorption au pic pour accroître le contraste avec les ailes en augmentant la densité atomique. Mais dans ce cas, on ajoute des problèmes de propagations du champ, notamment sur la pompe qui n'est alors plus homogène. L'interprétation en serait plus difficile mais l'expérience peut être fructueuse.

Il faut aussi discuter du faisceau sonde qui peut subir des déplacements spatiaux pour plusieurs raisons. Il existe l'effet Goos-Hänchen qui induit un petit déplacement au sein même de la vapeur. De plus, l'absorption de la sonde dans la vapeur perturbe l'onde évanescente qui subit une petite déviation angulaire en réflexion. Ces effets de moyennage spatiaux perturbent d'une manière inconnue la détection de la sonde sur la photodiode.

6.3.5 Conclusion

Nous avons mis en évidence qu'il était possible d'obtenir un contraste de l'ordre de 5.10^3 entre l'absorption et les ailes de raies des deux niveaux $6D_{3/2}$ et $6D_{5/2}$. Nous avons montré que le signal recherché est inférieur à cette échelle de résolution. En outre, les spectres sont difficilement exploitables par ajustement numériquement, et ce principalement parce qu'il n'existe pas de modèle théorique fiable en ondes évanescentes.

La technique des ondes évanescentes s'avère très difficile d'interprétation car il existe peu de supports théoriques et que les expériences fournissent des résultats difficilement exploitables.

6.4 Cellule ultra mince

6.4.1 Introduction

Contrairement à la colle du prisme, qui ne résistait pas longtemps à des températures de 250°C , la cellule ultra mince est toute indiquée pour supporter des températures aussi élevées. De plus, la possibilité de sonder des épaisseurs variables allant jusqu'à 20 nm

pour la cellule ultra mince ayant des fenêtres en saphir³ est d'un immense intérêt lorsque l'on cherche à sonder des atomes à une distance de 5 nm de la surface.

L'utilisation de la cellule ultra mince est donc d'un intérêt incontestable par rapport au montage en ondes évanescentes. De plus, un perfectionnement dans la technique d'acquisition des points (remplacement d'un système analogique par un système numérique), nous a conduits à remonter cette expérience presque deux ans après la première.

Ce montage expérimental permet également d'observer les ailes de raie dans les cellules ultra minces.

6.4.2 Montage expérimental

Les différents niveaux pompe (à 852 nm) et sonde (à 917-921 nm) sont les mêmes que pour le montage en ondes évanescentes. Le montage expérimental est identique (aux longueurs d'onde près) à celui utilisé au cours de l'excitation par étape pour atteindre le niveau $6D_{3/2}$ au chapitre 5. Les faisceaux sont normaux aux fenêtres de la cellule et contra-propageants. Il est aussi constitué du dispositif de mesure d'épaisseur, mais cette fois-ci le faisceau à 852 nm remplace le faisceau à 894 nm. Les températures sont de l'ordre de 300°C, soit une densité 15 fois plus importante qu'à la section 6.3.

6.4.3 Résultats et interprétations

Nous avons commencé par tester la superposition des faisceaux, la température ainsi que les puissances à une épaisseur assez grande de $\lambda/2 = 460$ nm (où λ est la longueur d'onde de la sonde à 920 nm). Cette épaisseur est intéressante car elle est exempte de toute dispersion, contrairement à toutes les autres épaisseurs accessibles (les épaisseurs de la cellule sont inférieures à $3\lambda/2$). En effet, la dispersion dans les ailes à plusieurs ordres de grandeur du pic est présente dès que l'on sonde à quelques nm de $\lambda/2$. Même entre les deux pics séparés de 5 nm nous pouvons noter plus ou moins de dispersion sur les ailes de l'un ou de l'autre des pics. Le spectre représenté sur la figure 6.7 est réalisé à la température de 300°C et l'absorption de la transition $6P_{3/2} \rightarrow 6D_{5/2}$ à 917 nm est de 50% contre 15% sur la transition $6P_{3/2} \rightarrow 6D_{3/2}$ à 921 nm. Ces grandes absorptions

3. Il s'agit de la cellule de fenêtres en saphir que nous avons utilisée au chapitre 5 dans le montage où nous avons traité de l'excitation par étape vers le niveau $6D_{3/2}$.

additionnées d'un bruit à 10^{-6} permettent d'obtenir un contraste de $5 \cdot 10^5$ du pic aux ailes, contrairement à $5 \cdot 10^3$ en ondes évanescentes soit deux ordres de grandeur de mieux.

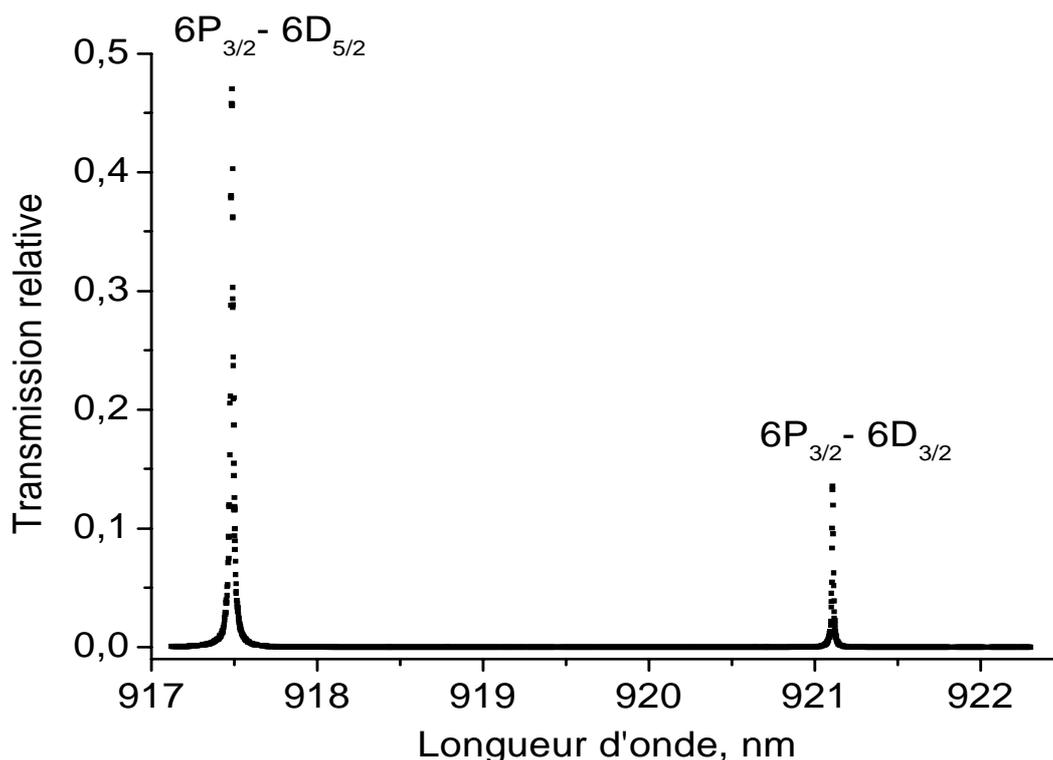
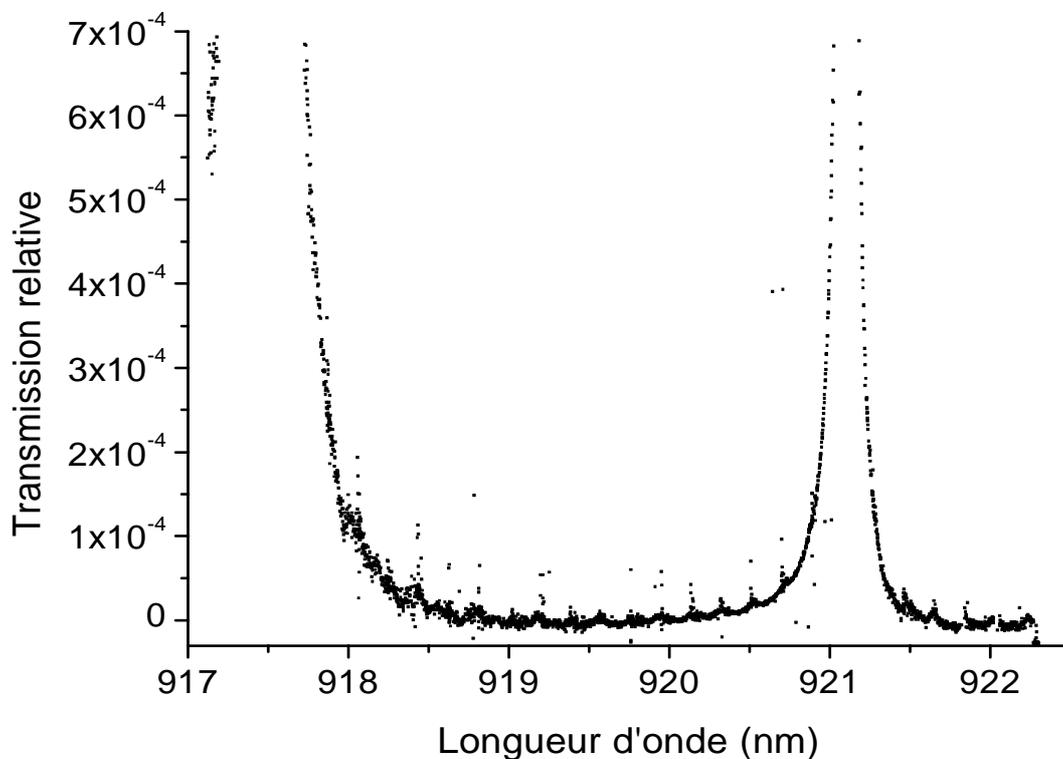


FIG. 6.7 – Spectre expérimental en cellule ultra mince à l'épaisseur de $\lambda/2$. Balayage du laser entre 917 et 921 nm.

La figure 6.8 est un agrandissement de la figure 6.7 où l'on peut observer qu'il n'y a pratiquement pas de dispersion dans les ailes. Lorsque l'on se place à quelques nm de $\lambda/2$ les effets dispersifs élargissent et asymétrisent les ailes des raies.

Un autre avantage de l'expérience en cellule ultra mince par rapport aux ondes évanescentes réside dans la parfaite interprétation de l'absorption-dispersion quelle que soit l'épaisseur sondée. Il est donc possible de faire des ajustements numériques. Ceux-ci sont d'une meilleure qualité que ceux présentés en 6.3 même pour d'aussi grandes absorptions. En effet, le modèle décrit au chapitre 1 suppose une faible absorption vite obtenue dans

FIG. 6.8 – *Agrandissement du spectre expérimental de la figure 6.7.*

les ailes.

Ces ajustements tiennent compte de la variation progressive de la longueur d'onde dans la cellule à épaisseur donnée. En effet, si l'on sonde à l'épaisseur de $\lambda/2$ pour la résonance à 917 nm, alors la deuxième résonance à 921 nm est déplacée de 5 nm de son épaisseur propre à $\lambda/2$. Les ajustements numériques doivent prendre en compte cet effet pour obtenir des résultats satisfaisants.

6.4.4 Conclusion

Nous avons montré que la spectroscopie dans les ailes des niveaux $6D$ du Césium en cellule ultra mince est réalisable avec un contraste supérieur à cinq ordres de grandeur. Les ajustements numériques de ces spectres donnent des résultats satisfaisants. Nous n'avons pas observé d'effets que nous pourrions interpréter comme la manifestation d'un état lié

dans un puits de potentiel résultant du croisement évité des potentiels. Mais la poursuite de cette expérience notamment sur la recherche d'un optimum entre une petite épaisseur et suffisamment d'absorption sonde aux environs de 100 nm devrait permettre d'obtenir des courbes expérimentales d'un grand contraste. Ces courbes pourront alors être ajusté théoriquement au mieux afin d'en extraire peut-être le signal de croisement.

6.5 Conclusion du chapitre

Ce chapitre a décrit les deux grandes expériences menées au sujet du croisement de potentiels en ondes évanescentes et cellule ultra mince. Le montage en ondes évanescentes est moins approprié pour cette expérience même si l'interaction sondée est uniquement entre les atomes et une surface unique. Par ailleurs, la configuration en cellule ultra mince nous a permis de valider la faisabilité de l'expérience et révéler son excellent contraste.

L'investigation des très petites épaisseurs sur la transition $6P_{3/2} \rightarrow 6D_{5/2}$ non résonnante permet l'étude de l'interaction de van der Waals à ces épaisseurs jamais atteintes dans un cadre théorique déjà éprouvé sur la transition D_1 . La comparaison entre différentes cellules ultra minces de fenêtres différentes (YAG ou saphir) à des épaisseurs identiques est d'un grand intérêt pour l'étude de l'interaction atome-surface.

Conclusion générale

Nous avons commencé par montrer la faisabilité d'expériences de spectroscopie dans les cellules ultra minces d'épaisseur comprise entre 30 et 1300 nm. Nous avons ensuite définie une technique de mesure d'épaisseur purement optique capable de mesurer précisément celle-ci à quelques nanomètres près dans une région quelconque. Cette détermination précise de l'épaisseur a été le point de départ d'une étude systématique de la réponse optique de la transition D_1 du Césium en fonction de l'épaisseur de la cellule. Les formes de raies caractéristiques obtenues alors nous ont conduit à revoir les modèles théoriques existants.

Notre modèle théorique fait intervenir les réflexions multiples entre les deux parois de la cellule. Cette approche reprend en partie des développements antérieurs en réflexion sélective et en transmission dans une cellule mince. Nous avons alors démontré en parallèle avec l'expérience que la réponse en cellule ultra mince est un mélange complexe d'absorption dispersion entre la transmission et la réflexion. Nous retrouvons notamment le rétrécissement Dicke cohérent à l'épaisseur de $\lambda/2$ et il a été possible pour la première fois d'observer sa renaissance à une épaisseur proche de $3\lambda/2$.

Cette épaisseur de $\lambda/2$ est une épaisseur privilégiée car elle ne présente aucune dispersion et est naturellement étroite. Elle nous a permis d'effectuer une expérience parallèle sur l'élargissement déplacement des quatre composantes hyperfines de la transition D_1 du Césium. Les dépouillements préliminaires semblent montrer pour la première fois des disparités entre composantes hyperfines. Il serait alors envisageable d'explorer le même type d'effet sur le Rubidium entre cellule mince. Ces différences sont encore inexpliquées mais ouvrent la voie à des études sur les collisions interatomiques en cavité. Cette épaisseur de $\lambda/2$ en cellule mince peut aussi avoir un intérêt pour obtenir des spectres linéaires naturellement plus étroits que la largeur Doppler d'un ordre de grandeur en utilisant la

technique de modulation de fréquence.

Le deuxième volet de ce mémoire est consacré à l'étude de l'interaction de van der Waals. La majeure partie a consisté à déterminer si les cellules ultra minces étaient de bons outils de mesure de l'interaction de van der Waals. Nous avons montré sur la transition non résonnante D_1 du Césium avec des parois en saphir qu'il était possible d'observer l'interaction attractive à des épaisseurs de 50 nm, soit à une distance atome surface toujours inférieure à 25 nm. A cette distance de la paroi et pour ce niveau atomique, l'interaction déplace le spectre de l'ordre de 250 MHz. Nous avons aussi relevé les spectres à différentes épaisseurs, comprises entre 50 et 200 nm (au-delà l'interaction est négligeable).

A ces résultats expérimentaux ne correspondait aucune théorie. Nous avons alors développé un modèle théorique en tenant compte des effets strictement optiques de cellule mince et un modèle d'interaction de van der Waals à deux parois. Ce dernier prend notamment en compte les réflexions multiples du dipôle atomique fluctuant entre les deux parois. Ses résultats sont en bon accord avec les résultats expérimentaux. Ces résultats encourageants devraient permettre de poursuivre ces investigations pour caractériser complètement l'interaction de van der Waals atome-surfaces à des distances jamais atteintes auparavant. Il est à noter que ces expériences restent délicates d'interprétation par la présence même d'atomes dans tout le volume de la vapeur et donc à toutes les distances possibles, contrairement à des jets atomiques où la distance est contrôlée. A l'inverse, l'avantage d'une vapeur réside dans la possibilité d'atteindre des niveaux à durée de vie beaucoup plus courte par l'utilisation de techniques spectroscopiques.

Ce mémoire présente aussi plusieurs expériences sur le niveau $6D_{3/2}$ du Césium. Celui-ci présente l'avantage d'être un niveau fortement résonnant avec les surfaces de YAG et de saphir. Cette résonance nous permet d'étudier l'interaction de van der Waals dans des circonstances inhabituelles. Mais avant d'explorer ces interactions, nous avons dû montrer qu'en cellule ultra mince la technique d'excitation par étape était réalisable. En effet, le peuplement du niveau intermédiaire pour une quantité suffisante d'atomes en cellule ultra mince devait être prouvé. Nous avons donc montré que ce peuplement à des épaisseurs de l'ordre de 100 nm était réalisable à une température de l'ordre de 300°C. Pour des épaisseurs plus petites, ce peuplement chute rapidement mais reste réalisable.

Ces questions liées au peuplement du niveau intermédiaire nous ont naturellement

conduit à la transition à deux photons directe qui s'affranchi de ce niveau. Nous avons montré que ces transitions à deux photons sont relativement facile à obtenir en cellule ultra mince même si nous avons relevé des problèmes d'effets Stark dynamiques résiduels.

Le niveau $6D_{3/2}$ résonnant avec une surface de YAG ou de saphir induit une répulsion de son potentiel à l'approche de la paroi. Cet effet a été démontré dans le groupe par l'utilisation de la technique de réflexion sélective sur une cellule en volume. La technique de la transition à deux photons directe que nous avons employée n'a montré aucun déplacement spectral jusqu'à des épaisseurs de 140 nm et l'excitation par étapes nous a permis d'observer de grandes ailes bleues aux épaisseurs avoisinant 140 nm. L'interprétation de ces résultats est encore délicate. Le modèle théorique à une paroi indique qu'à ces épaisseurs, nous pouvons attendre un déplacement bleu de plusieurs centaines de MHz. Nous avons observé une aile bleue de plusieurs GHz qui nous laisse penser qu'il pourrait s'agir d'une manifestation de cette résonance. Il est aussi à noter qu'avec la transition à deux photons, nous n'avons pas observé cette aile bleue pour la même épaisseur de cellule. Cette différence nous confirme que l'état de surface des cellules ultra minces et le couplage des modes de surface entre les parois sont d'une grande importance dans la manifestation des phénomènes résonnants.

Le dernier volet de cette thèse consiste en l'étude du croisement des potentiels attractifs (niveau non résonnant) et répulsif (niveau résonnant) à une petite distance de la surface de saphir estimée à 5 nm. Cette expérience a nécessité la prise en main et l'amélioration d'un système laser à cavité étendue capable de balayer 1.3 THz par saut de 0.3 GHz. Ce laser est l'outil de base d'une spectroscopie dans les ailes des raies de résonance de ces deux niveaux ($6D_{3/2}$ et $6D_{5/2}$). Nous avons montré qu'une expérience en ondes évanescentes, capable de sonder des atomes dans une épaisseur de l'ordre de 300 nm, ne pouvait pas fournir de résultats satisfaisants mais indiquait que le signal recherché était à moins de 10^{-3} de l'absorption. L'utilisation de la cellule mince dans les mêmes conditions s'est alors imposée comme une grande avancée tant sur l'interprétation des résultats avec le modèle optique des cellules ultra minces que sur le contraste de 5.10^5 à une épaisseur de 450 nm. Il a donc été montré que la manifestation de ce croisement était inférieure à 2.10^{-6} à l'épaisseur de 450 nm. Ce montage expérimental nous permet actuellement d'explorer chacun de ces niveaux individuellement à des épaisseurs inférieures à 100 nm. A ces échelles de distance atome-surface, pour ces niveaux excités, les déplacements van

der Waals sont de l'ordre de plusieurs GHz. Il est donc possible de suivre une interaction de surface forte, résonnante et non résonnante, à des épaisseurs jamais explorées. A terme, il est possible d'imaginer un contrôle spatial des atomes proche de la surface ou piégés entre deux parois.

Annexe A

Article J. Opt. Soc. Am. B

vol. 20, No. 5, May 2003, 793-800.

Revisiting optical spectroscopy in a thin vapor cell: mixing of reflection and transmission as a Fabry–Perot microcavity effect

Gabriel Dutier, Solomon Saliel, Daniel Bloch, and Martial Ducloy

Laboratoire de Physique des Lasers, Unité Mixte de Recherche 7538 du Centre National de la Recherche Scientifique, Université Paris 13, 99 Av J.-B. Clément, 93430 Villetaneuse, France

Received August 31, 2002; revised manuscript received December 12, 2002

Transmission spectroscopy in an ultrathin vapor cell, which has been recently demonstrated as a new method of sub-Doppler spectroscopy in the optical domain, is revisited. We show that, because of an unavoidable Fabry–Perot effect, the observed signal—in transmission spectroscopy and selective reflection spectroscopy as well—is actually an interferometric mixture of the optical responses as provided in transmission and in reflection by a long macroscopic cell. After the derivation of a very general solution, we restrict ourselves to the case of a linear interaction with the resonant laser. We finally discuss the application to a two-level atom for which analytical expressions are given, in the large Doppler limit, for FM transmission and reflection signals.

© 2003 Optical Society of America

OCIS codes: 300.6360, 120.2230, 020.1670, 020.3690.

1. INTRODUCTION

It has been recognized for some time that when selective reflection (SR) spectroscopy is performed under normal incidence at the interface between a transparent window and a resonant vapor, a sub-Doppler contribution is added to the usual dispersive spectrum.¹ The essential origin of this narrower response lies in the fact that, in spite of a resonant optical excitation, the atoms leave the surface of the window in the ground state and experience a transient interaction regime, so that only the slower atoms can reach the steady-state regime in the spatial region probed in SR spectroscopy. In optical transmission spectroscopy, a counterpart of this enhanced contribution of atoms with slow normal velocity can be found as long as the cell length is short enough,^{2–11} and the vapor dilute enough, so that atoms essentially fly wall to wall, their initial direction not being randomized by interatomic collisions. It is only recently that experimental evidence of this narrow contribution has been established with vapor cells whose minimal thickness ($\sim 10 \mu\text{m}$) was at least an order of magnitude larger than the optical wavelength.^{6–10} At the same time, theoretical models^{5,7} had also explained an enhanced contribution of slow atoms in transmission, along with the prediction of an interferometric behavior connected with the phase matching of the coherent buildup of the atomic response. In the experiments, an imperfect cell technology had hindered any possibility of observing interference effects^{7–9} that were, moreover, expected to be small for the relatively thick cells that were used. The further experimental development of cells whose thickness compares with the wavelength¹¹ implies that the window parallelism becomes intrinsically excellent, so that the multiple optical interference effects can no longer be neglected. For sake of simplicity, all of the previous models had also neglected the back reflection of the output window. It is the pur-

pose of this paper to provide an insight on the connection between the atomic absorption–dispersion response, and the monitored resonant line shapes at the transmission–reflection port of a Fabry–Perot (FP) type microcavity vapor cell.

Section 2 of the paper is very general and does not assume the slowly varying envelope approximation. It shows that the FP effect mixes, in a simple manner, the responses ordinarily connected with both transmission spectroscopy and SR spectroscopy. The derivation relies only on optical field propagation and is based simply upon the boundary conditions of the Maxwell equation. The derived solution does not make any assumption regarding the microscopic atomic response, which is supposed to be obtained independently. In subsequent parts, we go into more explicit expressions, discussing common approximations such as the optically thin medium (Section 3) and the linear regime of interaction with the driving field (Section 4) that make tractable the intrinsically coupled Maxwell–Schrödinger problem, mixing propagation and microscopic equations. We finally discuss an application of the derived calculations to the elementary case of a two-level atomic system that builds up coherently (Section 5), and give in Section 6 the corresponding analytical results in a FM spectroscopy approach.

2. REFLECTION AND TRANSMISSION OF A THIN FABRY–PEROT CELL FILLED WITH INHOMOGENEOUS, POLARIZED, DILUTED GAS

The problem that we consider is a pure one-dimensional problem, with diffraction and polarization effects neglected: A thin layer (thickness L) of an (resonant) atomic medium is sandwiched between two parallel dielectric windows assumed to be transparent (i.e., no ab-

sorptive or scattering losses) whose indices are n_1 for $z < 0$ and n_2 for $z > L$ (see Fig. 1). The medium is excited under normal incidence by an incident field $\mathbf{E}_{\text{in}}(z, t)$ propagating in the positive direction in the first window (n_1):

$$\mathbf{E}_{\text{in}}(z, t) = \frac{1}{2}E_{\text{in}} \exp[-i(\omega t - kn_1z)] + \text{c.c.} \quad (1)$$

In Eq. (1), ω is the circular frequency and k verifies $k = \omega/c$.

The purpose of the calculation is to determine the amplitude of the field transmitted through the second window:

$$\mathbf{E}_t(z, t) = \frac{1}{2}E_t \exp[-i(\omega t - kn_2z + \phi)] + \text{c.c.}, \quad (2)$$

[for convenience, one chooses $\phi = k(n_2 - 1)L$], and the amplitude of the reflected field that propagates back in the first window:

$$\mathbf{E}_r(z, t) = \frac{1}{2}E_r \exp[-i(\omega t + kn_1z)] + \text{c.c.} \quad (3)$$

Note that in Eqs. (1)–(3), E_{in} is assumed for simplicity to be real, while E_r and E_t are constant (propagation of a plane wave through a transparent window), but not necessarily real. Also, one may wish to calculate the resonant modifications E_t'' (with $E_t' = E_t - E_t'$) and E_r'' (with $E_r' = E_r - E_r'$) imposed on the transmitted and reflected field, respectively, with E_t' and E_r' the respective field amplitudes when the atomic medium is transparent (i.e., nonresonant). Let us recall that finding E_t' and E_r' is nothing other than solving the elementary problem of an empty FP cell.

To solve the problem, the two continuity equations for the electromagnetic fields at each interface are to be completed by the Maxwell equation for the propagation through the resonant medium. We describe in a formal manner the field inside the atomic medium by

$$\mathbf{E}_o(z, t) = \frac{1}{2}E_o(z) \exp[-i(\omega t - kz)] + \text{c.c.}, \quad (4)$$

and in a similar manner we take the polarization in the form

$$\mathbf{P}_o(z, t) = \frac{1}{2}P_o(z) \exp[-i(\omega t - kz)] + \text{c.c.} \quad (5)$$

Note that to deal with the possibility of a major inhomogeneity (along the z -direction) of the atomic response that may originate notably in the effects of nonlinear response (saturation, etc.), long-range atom–surface interaction, or transient effects associated with the atomic mo-

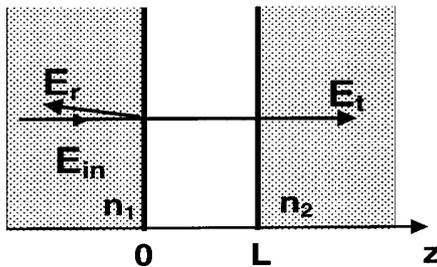


Fig. 1. Thin layer (thickness L) of a (resonant) atomic medium sandwiched between two parallel, transparent, dielectric windows with index of refraction n_1 for $z < 0$, and n_2 for $z > L$.

tion, we make no special assumption for the field structure inside the medium, i.e., for $E_o(z)$. Let us emphasize that we do not use here the slowly varying envelope—known to be inadequate to deal with SR problems^{12,13}—nor a local description with a complex index, as usual in thin-film optics.

Hence, we get from the electromagnetic continuity at the $z = 0$ boundary

$$E_{\text{in}} + E_r = E_o(0), \quad (6)$$

$$in_1k(E_{\text{in}} - E_r) = ikE_o(0) + \frac{\partial E_o}{\partial z}(0), \quad (7)$$

and at the $z = L$ boundary, we have

$$E_o(L) = E_t, \quad (8)$$

$$\left[ikE_o(L) + \frac{\partial E_o}{\partial z}(L) \right] = in_2kE_t. \quad (9)$$

Inside the resonant medium, the field must obey the Maxwell propagation equation, which simplifies to Eq. (10) under the assumptions that we neglect the conductivity losses in the media and that the excitation is stationary (cw excitation):

$$\frac{\partial^2 E_o(z)}{\partial z^2} + 2ik \frac{\partial E_o(z)}{\partial z} = -(k^2/\epsilon_o)P_o(z). \quad (10)$$

Eq. (10) can be converted to the equivalent form

$$\frac{\partial}{\partial z} \left[\exp(2ikz) \frac{\partial E_o(z)}{\partial z} \right] = -(k^2/\epsilon_o)P_o(z) \exp(2ikz). \quad (11)$$

Assuming the local atomic response $P_o(z)$ to be known (see Section 5 for a calculation in the case of a two-level dilute atomic system), the integration of Eqs. (10) and (11) from $z = 0$ to L provides the necessary coupling between the boundary equations (6), (7) and (8), (9). Indeed, one obtains

$$\frac{\partial E_o}{\partial z}(L) - \frac{\partial E_o}{\partial z}(0) + 2ik[E_o(L) - E_o(0)] = 2ikI_f, \quad (12)$$

$$\frac{\partial E_o}{\partial z}(L) \exp(2ikL) - \frac{\partial E_o}{\partial z}(0) = 2ikI_b. \quad (13)$$

In Eqs. (12) and (13), we have defined

$$I_f = ik/2\epsilon_o \int_0^L P_o(z) dz, \quad (14)$$

$$I_b = ik/2\epsilon_o \int_0^L P_o(z) \exp(2ikz) dz. \quad (15)$$

The solution of the linear system of six equations [(6)–(9) and (12), (13)] with respect to E_t and E_r is straightforward and naturally discriminates between the empty-FP solution E_t' and E_r' (as obtained with $P_o = 0$, i.e., $I_f = I_b = 0$) and the resonant contributions E_t'' and E_r'' , respectively. One gets

$$E'_t = t_{02}t_{10}E_{\text{in}}/F, \quad (16)$$

$$E'_r = [r_1 - r_2 \exp(2ikL)]E_{\text{in}}/F, \quad (17)$$

$$E''_t = t_{02}(I_f - r_1I_b)/F, \quad (18)$$

$$E''_r = t_{01}[I_b - r_2I_f \exp(i2kL)]/F. \quad (19)$$

In Eqs. (16)–(19), the following notations are used:

$$r_1 = \frac{n_1 - 1}{n_1 + 1}, \quad r_2 = \frac{n_2 - 1}{n_2 + 1},$$

$$t_{10} = \frac{2n_1}{n_1 + 1}, \quad t_{01} = \frac{2}{n_1 + 1},$$

$$t_{02} = \frac{2}{n_2 + 1},$$

and $F = 1 - r_1r_2 \exp(2ikL)$.

Equations (18) and (19) represent the major result of the present work. Indeed, the integrals I_f and I_b are known to be associated, respectively, with standard transmission spectroscopy and SR spectroscopy,^{1,12} in the limit of a long cell ($L \rightarrow \infty$). What is shown here is that the backward response E_b , even with an antireflection coating on the second window (in our model, this may be approached with $n_2 \rightarrow 1$, leading to $r_2 \rightarrow 0$ —for the extension to a multilayer window, see Ref. 14). The I_b contribution would vanish only for an antireflection-coated first window, a situation in which no reflection signal could be considered.¹⁵ In a very similar manner, in a reflection experiment, the forward response—usually associated with transmission—is always present (it cancels only for $r_2 = 0$), although it is modulated with a phase factor. Also, as a general result and from an optical point of view, the FP nature of the cell appears fully taken into account by the F factor, with no multiple interference between I_f and I_b . An additional but independent FP effect may have to be considered, however, in a detailed evaluation of the atomic response I_f and I_b : It relates to the spatial oscillation of the driving field $E_o(z)$, whose amplitude governs the medium response $P_o(z)$.

Note that in most approaches, the I_b contribution appearing in Eq. (18) has usually been neglected, and this is justified because, as opposed to the intrinsically phase-matched I_f response, the I_b response has a coherence length limited to an (reduced) optical wavelength [see Eq. (15)]: As long as the cell length significantly exceeds a wavelength, the I_b term is indeed much smaller than the I_f term. This I_b contribution has been mentioned only briefly in Ref. 5 [notably in its Eq. (9)], with no mention of the consequences for the line-shape symmetry. Conversely, with phase-matching arguments, one sees from Eq. (19) that, for relatively long cells of a dilute medium, I_f may even dominate the expected backward response I_b , provided the second window is not antireflection coated. This actually corroborates early experimental data.⁹

In many usual cases, the dilute character of the vapor implies $E''_r \ll E'_r$ and $E''_t \ll E'_t$. Hence, the respective resonant transmission and reflection contributions given

by $S_t = |E_t|^2 - |E'_t|^2$ and $S_r = |E_r|^2 - |E'_r|^2$ can be interpreted as a homodyne beating with the transmitted (reflected) field of an empty FP cell. One gets the simple expressions

$$S_t \approx 2t_{10}t_{02}^2E_{\text{in}} \text{Re}(I_f - r_1I_b)/|F|^2, \quad (20)$$

$$S_r \approx 2t_{01}E_{\text{in}} \text{Re}\{[r_1 - r_2 \exp(-2ikL)] \times [I_b - r_2I_f \exp(2ikL)]\}/|F|^2. \quad (21)$$

Note that for identical windows (i.e., $n_1 = n_2$ and $r_1 = r_2 = r$), the reflection signal from the empty FP cell vanishes ($E'_r = 0$; see Eq. 17) with a periodicity $\lambda/2$ when $L = m\lambda/2$ (with m =integer). In this special case, the measured reflected signal consists of the intensity of the signal re-emitted from the vapor only. The reflected signal, hence proportional to $|E''_r|^2$, is expected to exhibit much smaller amplitude along with line-shape peculiarities following

$$S_r = \frac{|I_b - rI_f|^2}{(1+r)^2}. \quad (22)$$

3. DILUTE VAPOR AND THE OPTICALLY THIN-MEDIUM APPROXIMATION

The above general derivation leads to tractable calculation only when I_f and I_b can be evaluated.¹⁶ In the limit of a very dilute medium, which can be characterized by $E''_t \ll E'_t$, the field $E_o(z)$ that drives the polarization $P_o(z)$ in the medium is essentially the field $E'_o(z)$ of an empty FP [with $E_o(z) = E'_o(z) + E''_o(z)$ and the respective components $E'_o(z)$ and $E''_o(z)$ defined in the same manner as in Section 2 for the reflected and transmitted fields].

One has

$$E'_o(z) = E_{\text{in}}t_{10}\{1 - r_2 \exp[-2ik(z - L)]\}/F. \quad (23)$$

From Eq. (23), with the total E_o field given by Eq. (4), we see that E'_o always exhibits a node at the second window ($z = L$), while the partly standing-wave nature has the expected $\lambda/2$ FP periodicity. A specific feature of the thin vapor cell is that the contrast between nodes and antinodes rises to $(1 + r_2)/(1 - r_2) = n_2$, or to n_2^2 in intensity, and so can be rather large (e.g., several units). However, it usually remains a low-finesse FP, so that in spite of the local minima of $|E'_o(z)|$, the condition $|E''_o(z)| \ll |E'_o(z)|$ can usually be fulfilled throughout the cell as long as the assumption $E''_t \ll E'_t$ is valid. This spatial modulation is expected to imply heavy consequences on the structure of the dipole polarization induced in the medium, especially when combined with a spatially inhomogeneous response. Among examples sustained by present investigations in our laboratory, one may consider nonlinear processes such as a two-photon excitation, or processes possibly driven by auxiliary pump fields: Combined with the additional effect of the FP field structure affecting the pump fields, one may expect quick spatial variations for the induced polarization $P_o(z)$ and the corresponding field $E''_o(z)$. Also, when considering the influence of long-range van der Waals atom–surface interaction on the optical properties of the cell (a complete

analysis will be deferred to a subsequent publication), one predicts a smaller influence of the second window than would be expected without an analysis of the FP structure. Conversely, the driving field is maximized close to the first window when the cell length is an odd multiple of $\lambda/4$, and the sensitivity to atom–interaction with the first surface may be enhanced. It should be added that these effects, related to the spatial inhomogeneity of the driving field $E'_o(z)$, will usually be reduced when the atomic motion is considered to be the result of a spatial averaging.

4. LINEAR REGIME OF INTERACTION

As long as the resonant medium response behaves linearly with respect to the driving field, and as long as the optically thin-medium approximation is satisfied (see Section 3), one may write

$$E'_o = \frac{1}{2}E_o^{+'} \exp[-i(\omega t - kz)] + \frac{1}{2}E_o^{-'} \exp[-i(\omega t + kz)] + \text{c.c.}, \quad (24)$$

$$P_o = \frac{1}{2}P_o^+(z) \exp[-i(\omega t - kz)] + \frac{1}{2}P_o^-(z) \exp[-i(\omega t + kz)] + \text{c.c.}, \quad (25)$$

with $P_o^+(z)$ and $P_o^-(z)$ driven only by the respective forward and backward field amplitudes $E_o^{+'}$ and $E_o^{-'}$. In Eq. (24), we have taken, according to Eqs. (23) and (4),

$$E_o^{+'} = E_{\text{in}t_{10}}/F \quad (26)$$

$$E_o^{-'} = -E_{\text{in}t_{10}}r_2 \exp(2ikL)/F = -r_2 \exp(2ikL)E_o^{+'}, \quad (27)$$

and one gets from Eq. (5)

$$P_o(z) = P_o^+(z) + P_o^-(z) \exp(-2ikz). \quad (28)$$

Within the approximation of an interaction that is linear with the driving field, such an expression permits us to use the numerous studies (see, e.g., Refs. 2–9, 12, 13, 17–23) that assume a traveling-wave excitation with a constant amplitude (i.e. optically thin medium), as can be found in the literature devoted to transmission spectroscopy and SR spectroscopy. Moreover, with some assumptions of symmetry between the two windows that are quite common (notably, the symmetry of the velocity distribution, an identical surface interaction exerted by the two windows, and a spatial homogeneity—or a symmetry—of the extra-pumping effects when they are allowed by the model), one finds that

$$\frac{P_o^-(L-z)}{E_o^{-'}} = \frac{P_o^+(z)}{E_o^{+'}}. \quad (29)$$

Combining Eqs (26) and (27) with (14) and (15), one can express the resonant contribution to the transmitted and reflected fields [Eqs. (18) and (19)] as a combination of the common transmission and SR signals,²⁴ as calculated with only one traveling-wave excitation and neglecting internal reflections inside the cell. These transmission and reflection signals are known to be governed, respectively,

$$I_T^{\text{lin}} = ik/2\varepsilon_o \int_0^L P_o^+(z) dz, \quad (30)$$

$$I_{\text{SR}}^{\text{lin}} = ik/2\varepsilon_o \int_0^L P_o^+(z) \exp(2ikz) dz. \quad (31)$$

Then Eqs. (14) and (15) can be written [using Eqs. (27)–(31)]

$$I_f = I_T^{\text{lin}} - r_2 I_{\text{SR}}^{\text{lin}}, \quad (32)$$

$$I_b = I_{\text{SR}}^{\text{lin}} - r_2 \exp(2ikL) I_T^{\text{lin}}. \quad (33)$$

The thin-cell transmission depends on [Eqs. (18) and (19)]

$$I_T = I_f - r_1 I_b = [1 + r_1 r_2 \exp(2ikL)] I_T^{\text{lin}} - [r_1 + r_2] I_{\text{SR}}^{\text{lin}}, \quad (34)$$

while the thin-cell reflection depends on

$$I_{\text{SR}} = I_b - r_2 I_f \exp(2ikL) = [1 + r_2^2 \exp(2ikL)] I_{\text{SR}}^{\text{lin}} - 2[r_2 \exp(2ikL)] I_T^{\text{lin}}. \quad (35)$$

In spite of the few simplifying assumptions that we have made, we have obtained with Eqs. (34) and (35) the expressions showing how thin-cell spectroscopy combines interferometrically responses and line shapes that are known otherwise. In Section 5, these results are illustrated in the elementary case of a Doppler-broadened, two-level medium for which extensive solutions have been already given in Refs. 4, 5, and 7, and in Refs. 8 and 9 in the case of the FM regime at the large-Doppler limit.

5. DILUTE TWO-LEVEL MEDIUM IN THE LINEAR REGIME

The case of a resonant Doppler-broadened, two-level medium has been considered extensively.^{4,5,7} Under the following assumptions:

1. The vapor is dilute enough that only atom–surface collisions are to be considered,
2. atoms leave the wall in the ground state,
3. the incident laser beam diameter largely exceeds the cell thickness,

one derives the following line shape from a spatial integration of the transient atomic response:

$$I_T^{\text{lin}} = C \int_{-\infty}^{+\infty} W(v) g(\omega - \omega_o, v, L) dv, \quad (36)$$

$$I_{\text{SR}}^{\text{lin}} = C \int_{-\infty}^{+\infty} W(v) h(\omega - \omega_o, v, L) dv, \quad (37)$$

with⁷

$$g(\omega - \omega_o, v, L) = -\frac{k}{\Lambda_+} \left\{ L - \frac{|v|}{\Lambda_+} \times \left[1 - \exp\left(-\frac{\Lambda_+ L}{|v|} \right) \right] \right\}, \quad (38)$$

$$\Lambda_{\pm} = \gamma - i(\omega - \omega_o) \pm ikv, \quad (39)$$

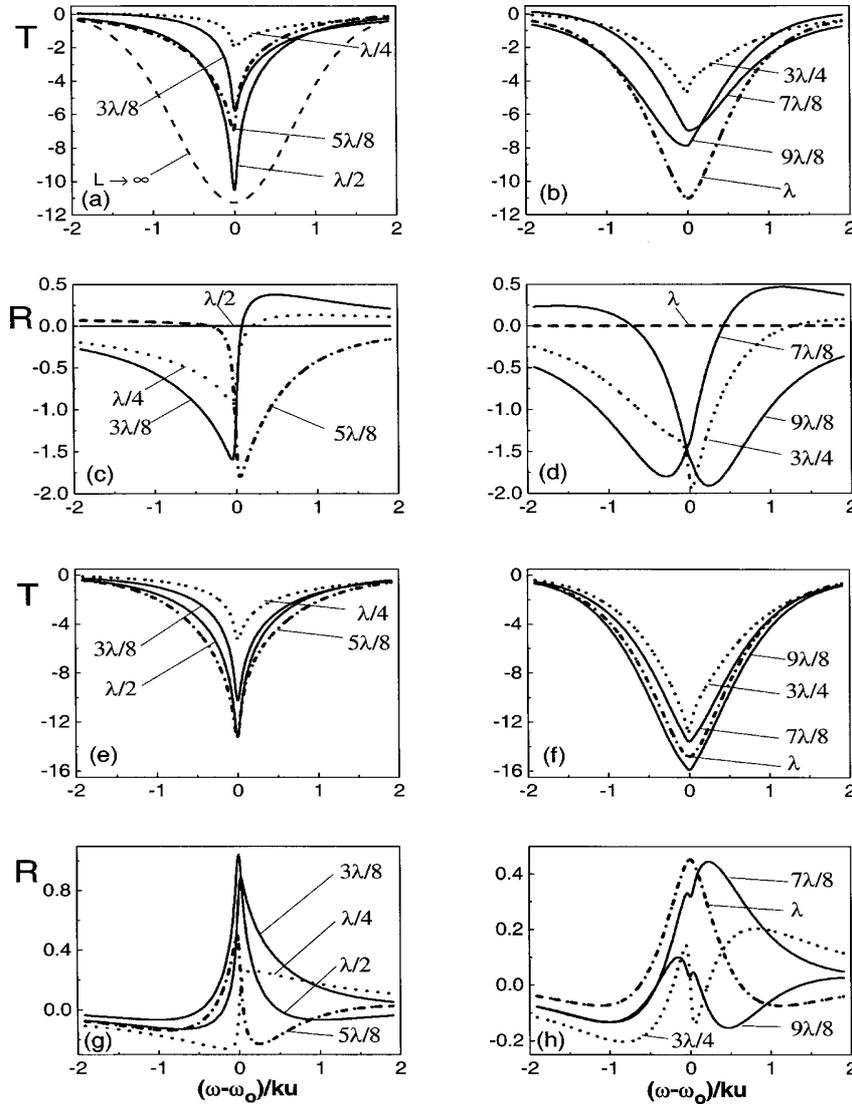


Fig. 2. Theoretical line shapes for a two-level system in the linear regime as evaluated for various cell lengths (as indicated): the T values for (a), (b), (e), (f) and R values for (c), (d), (g), (h) correspond to the respective resonant modifications of the transmitted amplitude and of the reflected amplitude. These values naturally account for the FP resonance through the F factor appearing in Eqs. (20) and (21) and coefficient C . For purposes of comparison, a single vertical scale (in arbitrary units) has been used. The various line shapes permit one to compare, respectively, a cell with two identical windows [(a)–(d) with $r_1 = r_2 = 0.29$] and a cell whose output window has an antireflection coating [(e)–(h) with $r_1 = 0.29$, $r_2 = 0$]. The spectra are calculated with $\gamma/ku = 0.025$. It is recalled that in a macroscopic cell, the transmission linewidth is an absorption Voigt profile that can be approximated, as long as $\gamma \ll ku$, by the Gaussian line shape represented in (a) by the dashed curve for $L \rightarrow \infty$ (arbitrary vertical scale, half-width at $1/e : ku$).

$$\begin{aligned}
 h(\omega - \omega_0, v, L) &= h_{\pm}(\omega - \omega_0, v, L) \\
 &= \frac{1}{2i} \left[\frac{1}{\Lambda_{\mp}} - \frac{\exp(2ikL)}{\Lambda_{\pm}} \right] \\
 &\quad - \frac{k|v|}{\Lambda_+ \Lambda_-} \exp\left(-\frac{\Lambda_{\mp} L}{|v|}\right). \quad (40)
 \end{aligned}$$

In Eqs. (36)–(40), we have used the following notations: ω_0 and γ define the atom transition frequency and optical

width, respectively; k is the wave vector modulus; $W(v)$ stands for the normalized distribution of the normal velocity component; $h_{\pm}(v)$ are chosen, respectively, for $v > 0$ and $v < 0$ in Eq. (40), and C is a constant depending on the atomic density N and the transition dipole moment μ , where

$$C = \frac{N\mu^2 t_{10} E_{\text{in}}}{4\hbar F \varepsilon_0}. \quad (41)$$

With the standard assumption of a Maxwellian velocity distribution $W(v) = (u\sqrt{\pi})^{-1} \exp(-v^2/u^2)$, with $u \equiv$ the thermal velocity, I_T^{lin} and $I_{\text{SR}}^{\text{lin}}$ exhibit some special symmetry properties depending on the cell length L (modulo the wavelength λ), along with a sub-Doppler structure superimposed on Doppler-broadened wings. A discussion of these symmetry properties of $I_{\text{SR}}^{\text{lin}}$ and I_T^{lin} was given in Ref. 5, although the range of L values considered there was too limited to cover the full range of the pseudo-period λ of the atomic response.

Figure 2 illustrates the theoretically predicted transmission [Fig. 2(a) and (b) and Fig. 2(e) and (f)] and reflection [Fig. 2(c) and (d) and Fig. 2(g) and (h)] spectra as determined by applying Eqs. (36) and (37) to Eqs. (34) and (35) and exporting them to Eqs. (20) and (21), corresponding to a realistic ultrathin cell. As is known from Eqs. (36) and (37), and as a major interest of thin-cell spectroscopy, the spectra clearly exhibit sub-Doppler components related to the enhanced contribution of atoms undergoing a long interaction time. Different cell lengths are considered, and the results permit a comparison between a symmetric ultrathin cell [assuming $r_1 = r_2 = 0.29$, a typical value for a YAG window; see Figs. 2(a)–2(d)] and a cell with $r_1 = 0.29$ and $r_2 = 0$ [see Figs. 2(e)–2(h)] whose output window would ideally be antireflection coated as in Refs. 4 and 5, hence eliminating the FP structure of the driving field. In all cases, the overall spectra exhibit sub-Doppler features that are specially marked when the thickness is close to $\lambda/2, 3\lambda/2, \dots$, and this enhancement of the sub-Doppler structure is a transient coherent response property of the interaction buildup between walls, as first noted in Ref. 25. One also notices in all cases that the transmission spectrum is no longer a simple absorption spectrum, nor a symmetric spectrum solely connected with absorption properties, as was predicted when internal reflection on the input window was neglected (i.e., $r_1 = 0$).^{4,5} Rather, it includes a dispersive contribution related to the mixing between absorption-spectrum line shape and selective reflection line shape as given by

$I_T = I_T^{\text{lin}} - r_1 I_{\text{SR}}^{\text{lin}}$. As far as the SR spectrum is concerned, one first notes that in all cases, it becomes hard to reproduce the familiar dispersion-like properties of the selective reflection in a long cell.²⁶ With an antireflection coating on the output window, the SR spectra [Fig. 2(g)–(h)], depending only on the SR term $I_{\text{SR}} = I_{\text{SR}}^{\text{lin}}$, actually reproduce the spectra reported in Refs. 4 and 5 with its occasional symmetry properties (symmetric line shape for $L = m\lambda/2$, antisymmetric ones for $L = (2m + 1)\lambda/4$, $m \equiv$ integer). For a cell with identical windows, the spectra no longer exhibit any recognizable symmetry, and the differences with an antireflection-coated cell get stronger with increasing cell length, as the contribution of the essentially absorption-like I_T gets relatively larger. Note also that the resonant reflection signal for $L = \lambda/2, \lambda, 3\lambda/2, 2\lambda, \dots$, is too small to be seen, as expected with a symmetric FP [see discussion in Section 2 and see Eq. (22)]. In a similar manner, the increase in the transmitted field apparently predicted in the far wings of the spectra [see, e.g., the red wing for $L = 7\lambda/8$ and the blue wing for $L = 9\lambda/8$ in Fig. 2(b)] simply relates to a shift in the FP resonance induced by the vapor dispersion that dominates in the wings of the resonance.

6. FREQUENCY-MODULATED SPECTROSCOPY WITH A TWO-LEVEL SYSTEM

It can also be convenient to consider the FM version of thin-cell spectroscopy, because in the Doppler limit, and for a two-level system in the linear regime as considered in Section 5, the FM spectrum—obtained as the frequency derivative of the spectrum assuming a low-index modulation—can be evaluated through an analytical velocity integration.^{8,17,27} In particular, while it is known that the analytical evaluation of I_T^{lin} and of $I_{\text{SR}}^{\text{lin}}$ leads, in the Doppler limit, to a logarithmic divergence of a sub-Doppler structure associated with the enhanced transient

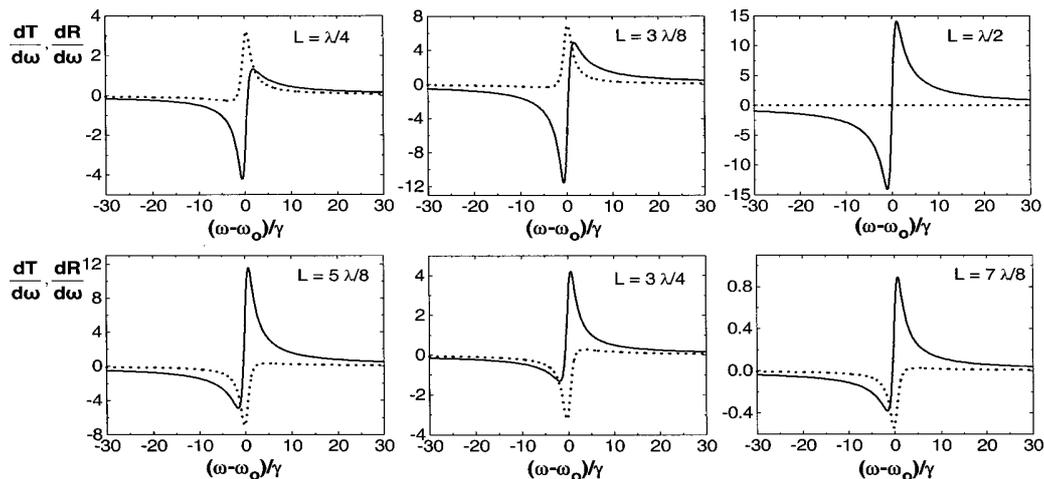


Fig. 3. Theoretical transmission $dT/d\omega$ (solid curve) and reflection $dR/d\omega$ (dashed curve) spectra in the FM regime for different cell lengths as indicated, assuming two identical windows ($r_1 = r_2 = 0.29$). A single vertical scale has been used, and the signal amplitudes account for the FP resonance through the F factor appearing in Eqs. (47) and (48) and coefficient C.

contribution of slow atoms, the corresponding FM line shapes are purely Doppler-free, as is well known in SR spectroscopy in a macroscopic cell.^{17,27} The FM approach also corresponds to experimental situations of major interest as being due to a notable enhancement of the narrow structure.^{6–10,27}

Extending the calculation described in Ref. 17 that starts from standard Bloch equations to the case of a cell of a finite length, one gets, assuming that the cell is short enough ($L \ll u/\gamma$), the (FM) local induced polarization after a velocity integration in the Doppler limit (i.e., $ku \gg \gamma$):

$$\frac{dP_o^+}{d\omega}(z) = 2\varepsilon_o C \frac{[\exp(ikL - ikz) - \exp(-ikz)]}{[\gamma - i(\omega - \omega_o)]ku\sqrt{\pi}}, \quad (42)$$

with C defined in Eq. (41). From this simple Lorentzian shape of the (FM) induced polarization as calculated with a single traveling wave, one easily deduces with Eqs. (30) and (31)

$$\frac{dI_T^{\text{lin}}}{d\omega} = -\frac{4i}{ku\sqrt{\pi}} C \frac{\sin^2(kL/2)}{\gamma - i(\omega - \omega_o)}, \quad (43)$$

$$\frac{dI_{\text{SR}}^{\text{lin}}}{d\omega} = \frac{dI_T^{\text{lin}}}{d\omega} \exp(ikL). \quad (44)$$

Exporting Eqs. (43) and (44) into Eqs. (34) and (35) that account for the FP effects, and considering for simplicity the symmetric cell with $r_1 = r_2 = r$, one obtains

$$\begin{aligned} \frac{dI_T}{d\omega} &= -\frac{4i}{ku\sqrt{\pi}} C [1 - r \exp(ikL)]^2 \\ &\times \frac{\sin^2(kL/2)}{\gamma - i(\omega - \omega_o)}, \end{aligned} \quad (45)$$

along with a relation analogous to Eq. (44):

$$\frac{dI_{\text{SR}}}{d\omega} = \frac{dI_T}{d\omega} \exp(ikL). \quad (46)$$

It should be noted that this general result shows that, inside the vapor, the FM amplitude governing the transmission signal is equal (in modulus) to that relevant for the SR signal. This is obtained whatever the reflection coefficient of the windows, although the measured transmission and SR signals have a different size depending on r , notably through the F factor. Note also that Eqs. (45) and (46) imply a simultaneous periodic vanishing of the FM signals for $L = m\lambda$, corroborating the disappearance of the narrow sub-Doppler contribution appearing in Fig. 2 for these cell thicknesses.

Finally, the respective FM signals (with the interference taken into account) in forward and backward directions are given by the simple expressions:

$$\frac{dS_t}{d\omega} = \frac{2(1-r)(1-r^2)E_{\text{in}}}{|F|^2} \text{Re}\left(\frac{dI_T}{d\omega}\right), \quad (47)$$

$$\frac{dS_r}{d\omega} = -\frac{4(1-r)rE_{\text{in}}\sin(kL)}{|F|^2} \text{Im}\left(\frac{dI_T}{d\omega}\right). \quad (48)$$

Figure 3 illustrates the results of Eqs. (47) and (48). The FM technique that eliminates the Doppler wings finally yields, for both signals, a complex admixture of absorptive and dispersive Lorentzians. Note also that in the limit of two antireflection windows ($r_1 = r_2 = r \rightarrow 0$), Eq. (47) generalizes the line shape and length dependence that has been mentioned previously (see footnote 18 in Ref. 8).

7. CONCLUSION

In conclusion, we have shown that for very thin vapor cells, and especially when the cell thickness L is smaller than the optical wavelength or comparable with it, the measured transmission and reflection are strongly dependent on the intrinsic FP nature of the thin cell. In this dependence, we have distinguished, in the general approach considered here, the effects related to the partly standing-wave nature of the irradiating field and the effects associated with the details of the propagation (forward, but also backward) of the field resulting from the induced dipole polarization. In the case of a two-level system in the linear regime, experiments have recently been performed in our group, notably on the cesium D_1 line, and will be reported elsewhere.²⁸ The correct analysis of the various effects associated with the FP nature of the thin cell is of high importance in any attempt to extract information on the atom–surface interaction potential from extremely thin-cell spectroscopy. Such an atom–surface interaction is presently observed in experiments in progress that are based on a nonlinear spectroscopy scheme for transitions between excited states, and the interaction appears to induce huge shifts for subwavelength cell thickness. Finally, we should mention that the general theoretical method used in the present paper should be of interest in extending the treatment to a vapor located between two prisms, where total reflection can undergo a frequency-dependent frustration.

ACKNOWLEDGMENT

Work was partially supported in the frame of the FAST-Net programme (European contract HPRN-CT-2002-00304).

S. Saltiel's permanent address is University of Sofia, Department of Physics, Sofia, Bulgaria; e-mail saltiel@phys.uni-sofia.bg.

The e-mail address of D. Bloch (corresponding author) is bloch@lpl.univ-paris13.fr.

REFERENCES AND NOTES

1. M. F. H. Schuurmans, "Spectral narrowing of selective reflection," *J. Phys. (Paris)* **37**, 469–485 (1976).
2. A. Ch. Izmailov, "On the possibility of sub-Doppler structure of spectral lines of gas particles by a single travelling monochromatic wave," *Laser Phys.* **2**, 762–763 (1992).
3. A. Ch. Izmailov, "Manifestations of sub-Doppler structure of the spectral lines of gas particles in the radiation of a travelling monochromatic pump wave," *Opt. Spektrosk.* **74**, 41–48 (1993) [*Opt. Spectrosc.* **74**, 25–29 (1993)].
4. T. A. Vartanyan and D. L. Lin, "Enhanced selective reflection from a thin layer of a dilute gaseous medium," *Phys. Rev. A* **51**, 1959–1964 (1995).

5. B. Zambon and G. Nienhuis, "Reflection and transmission of light by thin vapor layers," *Opt. Commun.* **143**, 308–314 (1997).
6. S. Briaudeau, D. Bloch, and M. Ducloy, "Detection of slow atoms in laser spectroscopy of a thin vapor film," *Europhys. Lett.* **35**, 337–342 (1996).
7. S. Briaudeau, S. Saltiel, G. Nienhuis, D. Bloch, and M. Ducloy, "Coherent Doppler narrowing in a thin vapor cell: Observation of the Dicke regime in the optical domain," *Phys. Rev. A* **57**, R3169–3172 (1998).
8. S. Briaudeau, D. Bloch, and M. Ducloy, "Sub-Doppler spectroscopy in a thin film of resonant vapor," *Phys. Rev. A* **59**, 3723–3735 (1999).
9. S. Briaudeau, "Spectroscopie à haute résolution en vapeur confinée," thèse de doctorat, Laboratoire de Physique des Lasers, Université Paris 13 (1998) (unpublished).
10. S. Briaudeau, S. Saltiel, J. R. R. Leite, M. Oria, A. Bramati, A. Weis, D. Bloch, and M. Ducloy, "Recent developments in sub-Doppler spectroscopy in a thin cell," *J. Phys. IV* **10**, Pr. 8, 145–146 (2000).
11. D. Sarkisyan, D. Bloch, A. Papoyan, and M. Ducloy, "Sub-Doppler spectroscopy by sub-micron thin Cs-vapor layer," *Opt. Commun.* **200**, 201–208 (2001).
12. G. Nienhuis, F. Schuller, and M. Ducloy, "Nonlinear selective reflection from an atomic vapor at arbitrary incidence angle," *Phys. Rev. A* **38**, 5197–5205 (1988).
13. F. Schuller, G. Nienhuis, and M. Ducloy, "Selective reflection from an atomic vapor in a pump-probe scheme," *Phys. Rev. A* **43**, 443–454 (1991).
14. M. Chevrollier, M. Oria, J. G. De Souza, D. Bloch, M. Fichet, and M. Ducloy, "Selective reflection spectroscopy of a resonant vapor at the interface with a metallic layer," *Phys. Rev. E* **63**, 046610 (2001).
15. Note that r_1 is an amplitude reflection coefficient usually not much smaller than unity; in recent experiments (see Ref. 11) performed with a narrow cell with yttrium aluminum garnet (YAG) windows, one has $n_1 = 1.82$, i.e., $r_1 = 0.29$. Note also that even with an antireflection coating, one usually has $r_{1,2} \geq 0.1$.
16. The difficulties typical of the optically thick medium in comparable problems have been analysed in the appendix of Ref. 1 and in T. Vartanyan, D. Bloch, and M. Ducloy, "Blue shift paradox in selective reflection," in *Spectral Line Shapes*, A. D. May, J. R. Drummond, eds., AIP Conference Proceedings **328** (American Institute of Physics, New York, 1995), pp. 249–250.
17. M. Ducloy and M. Fichet, "General theory of frequency modulated selective reflection. Influence of atom surface interactions," *J. Phys. II* **1**, 1429–1446 (1991).
18. F. Schuller, O. Gorceix, and M. Ducloy, "Nonlinear selective reflection in cascade three-level atomic systems," *Phys. Rev. A* **47**, 519–528 (1993).
19. G. Nienhuis and F. Schuller, "Selective reflection from a vapor of three-level atoms," *Phys. Rev. A* **50**, 1586–1592 (1994).
20. M. Gorris-Neveux, P. Monnot, S. Saltiel, R. Barbé, J. C. Keller, and M. Ducloy, "Two-photon selective reflection," *Phys. Rev. A* **54**, 3386–3393 (1996).
21. F. Schuller, A. Amy-Klein, and S. Saltiel, "Saturation effects in three-level selective reflection," *Phys. Rev. A* **53**, 3647–3651 (1996).
22. H. van Kampen, V. A. Sautenkov, E. R. Eliel, and J. P. Woerdman, "Probing the spatial dispersion in a dense atomic vapor near a dielectric interface," *Phys. Rev. A* **58**, 4473–4478 (1998).
23. D. Petrosyan and Yu. P. Malakyan, "Electromagnetically induced transparency in a thin vapor film," *Phys. Rev. A* **61**, 053820 (2000).
24. Note that the restriction to a finite cell length may introduce some additional changes relative to most common SR theories, as elaborated for various atomic models.
25. R. H. Romer and R. H. Dicke, "New technique of high-resolution microwave spectroscopy," *Phys. Rev.* **99**, 532–536 (1955).
26. The essential dispersive response of SR spectroscopy in a long cell results only from the SR spatial averaging, which washes out the atomic response close to the (remote) second window. It should be recalled also that because of the symmetry breakdown occurring between arriving and departing atoms, and because of the atom–surface interaction, SR spectra in a long cell commonly include, in the vicinity of line center, a mixture of absorptive and dispersive responses—see notably the discussions in M. Chevrollier, M. Fichet, M. Oria, G. Rahmat, D. Bloch, and M. Ducloy, "High resolution selective reflection spectroscopy as a probe of long-range surface interaction: measurement of the surface van der Waals attraction exerted on excited Cs atoms," *J. Phys. II* **2**, 631–657 (1992); conversely, and as noted in Section 3 herein, the transmission through a relatively long cell exhibits simply absorption-like properties as long as the medium remains optically thin.
27. A. M. Akul'shin, V. L. Velichanskii, A. S. Zibrov, V. V. Nikitin, V. A. Sautenkov, E. K. Yurkin, and N. V. Senkov, "Collisional broadening of intra-Doppler resonances of selective reflection of the D_2 of cesium," *JETP Lett.* **36**, 303–306 (1982).
28. G. Dutier, A. Yarovitski, S. Saltiel, A. Papoyan, D. Sarkisyan, D. Bloch, and M. Ducloy, "Collapse and revival of a Dicke-type coherent narrowing in a sub-micron thick vapor cell transmission spectroscopy," *Europhys. Lett.* (to be published).

Annexe B

Les effets de moyennage sur l'épaisseur locale.

A épaisseur constante, les faisceaux peuvent avoir un grand diamètre sans que la mesure en soit affectée. En revanche, lorsque l'épaisseur de la cellule varie rapidement (pour un angle de $3 \cdot 10^{-4}$ rad, soit $1 \mu\text{m}$ pour 4 mm), comme sur les bords de certaines cellules, un faisceau de diamètre $100 \mu\text{m}$ recouvrira une gamme de 30 nm autour de l'épaisseur nominale en considérant une variation linéaire de l'épaisseur de la cellule. Ces 30 nm définissent alors une incertitude autour de l'épaisseur moyenne. En effet, la valeur mesurée est le résultat d'une somme sur toute une gamme d'épaisseurs non négligeable. Comme nous pouvons le voir sur la figure B.1, la somme des réponses locales (la valeur mesurée : trait pointillé (b)) n'est pas égale à la moyenne arithmétique (trait pointillé (a)). Le trait (a) est simplement la moyenne entre les épaisseurs atteintes alors que le trait (b) est le report sur l'axe des épaisseurs de la somme de toutes les contributions locales pour les épaisseurs comprises entre ici entre 440 et 470 nm . Cette somme donne une épaisseur mesurée de 458 nm au lieu de 455 nm . Par ailleurs, un faisceau parfaitement circulaire aura ici tendance à minimiser cet effet de déplacement de la moyenne de l'épaisseur mesurée.

Les zones fortement affectées par ce phénomène sont principalement les extremums. Par exemple à un minimum de réflexion, nous voyons sur la figure B.1 qu'il n'est pas possible d'atteindre l'extinction totale car la somme des réponses locales des différentes épaisseurs n'est pas nulle. Or expérimentalement à cette position, le minimum suffit pour avoir la certitude que le faisceau soit centré sur $\lambda/2$, $3\lambda/2$, etc..., et la précision sur la

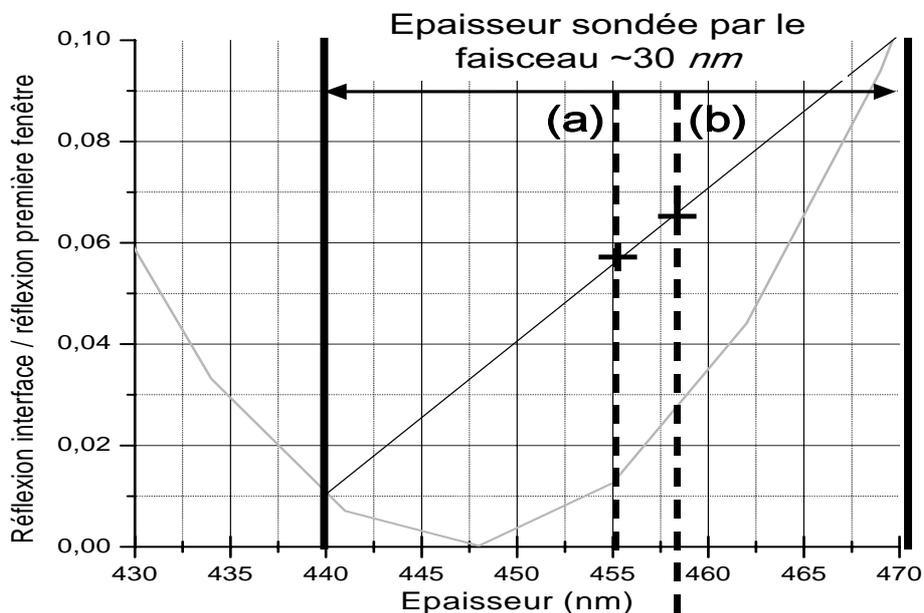


FIG. B.1 – L'épaisseur sondée par la faisceau peut atteindre 30 nm et l'épaisseur mesurée par réflexion (b) n'est pas nécessairement la moyenne des épaisseurs (a).

mesure n'est pas nécessaire.

Dans ces zones de forte pente, la mesure de l'épaisseur n'est pratiquement pas affectée par la taille du faisceau (quelques nanomètres tout au plus) contrairement aux atomes sondés qui sont compris entre plusieurs épaisseurs. En première approximation, nous pouvons dire qu'il y a un moyennage des réponses atomique autour de l'épaisseur centrale mais la contribution atomique n'est pas nécessairement totalement symétrique. Une focalisation adaptée est alors primordiale pour des mesures exploitables.

Annexe C

Calcul du coefficient C_3

En reprenant le résultat précédent de l'équation (4.8), on définit le coefficient de proportionnalité C_3^a qui est indépendant de la distance entre l'atome et la surface (dans la limite du régime non-retardé) pour un niveau $|a\rangle$ donné quelconque comme :

$$V_a(z) = -\frac{C_3^a}{z^3} \quad (\text{C.1})$$

A partir de (4.8), ce coefficient peut alors s'écrire :

$$C_3^a = \sum_{n'} \left[\frac{2J_{>} + 1}{2J_a + 1} \right] \cdot \frac{A_{a \rightarrow n'} \lambda_{an'}^3 r(\omega_{an'})}{256\pi^4} \quad (\text{C.2})$$

avec $A_{a \rightarrow n'}$ la probabilité d'émission spontanée entre les niveaux $|a\rangle$ et $|n'\rangle$:

$$A_{a \rightarrow n'} = \frac{4}{3\hbar} \cdot \frac{k_{an'}^3}{(2J_a + 1)} |\langle n_a J_a || \mu || n_{n'} J_{n'} \rangle|^2 \quad \text{pour} \quad E_a > E_{n'} \quad (\text{C.3})$$

avec $|\mu|$ la valeur absolue du moment dipolaire atomique, n le nombre quantique principal, J_i le moment cinétique du niveau i , λ la longueur d'onde de la transition considérée, $r(\omega)$ le coefficient d'image diélectrique défini plus haut et $J_{>}$ correspondant à la valeur de J pour le niveau $|a\rangle$ ou $|n'\rangle$ ayant l'énergie la plus grande.

Annexe D

Calcul de la susceptibilité du champ

La polarisabilité étant supposée connue, nous devons déterminer la susceptibilité du champ $G_{\alpha\beta}^R(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_0; i\xi)$ au niveau de l'atome. Pour cela, nous définirons pour plus de simplicité d_1 , d_2 et les fenêtres numéro 1 et numéro 2 (néanmoins identiques) comme indiqué sur la figure D.1.

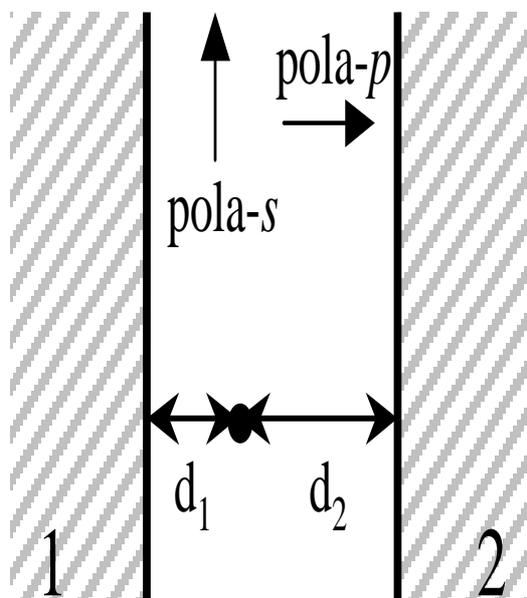


FIG. D.1 – Définition de d_1 et d_2

Les notations seront conformes à [8, 46]. Dans ce type de calcul, il est nécessaire d'introduire les polarisations du champ σ et π (définis sur la figure D.1). Ainsi, le tenseur susceptibilité s'écrit comme l'intégrale spatiale de toutes les composantes du champ pondérées par les coefficients de réflexions de Fresnel associés. Dans le cas des fenêtres parallèles, il s'agit d'une somme infinie convergente. Par définition, les vecteurs unitaires $\hat{\mathbf{s}}$, $\hat{\mathbf{p}}_0^+$ et $\hat{\mathbf{p}}_0^-$ déterminent les directions respectives des champs polarisés s dans le plan (x,y) , $\hat{\mathbf{p}}_0^+$ dans la direction du vecteur d'onde réfléchi \mathbf{k}_0^+ et $\hat{\mathbf{p}}_0^-$ dans la direction du vecteur d'onde incident \mathbf{k}_0^- avec l'indice 0 pour indiquer "dans le vide" :

$$\hat{\mathbf{s}} = \hat{\mathbf{K}} \times \hat{\mathbf{z}} \quad (\text{D.1})$$

$$\hat{\mathbf{p}}_0^\pm = (\mp W_0 \hat{\mathbf{K}} + K \hat{\mathbf{z}}) k_0^{-1} \quad (\text{D.2})$$

$$\hat{\mathbf{K}} = \mathbf{K} / K \quad (\text{D.3})$$

avec \mathbf{K} la projection du vecteur d'onde k_0 sur la surface (x,y) et $W_0 = \sqrt{k_0^2 - K^2}$. Le champ total se décompose alors suivant cinq projecteurs :

- $\hat{\mathbf{s}}\hat{\mathbf{s}}$ pour la polarisation parallèle,
- $\hat{\mathbf{p}}_0^+\hat{\mathbf{p}}_0^-$ pour le champ se propageant vers 1 et réfléchi vers 2,
- $\hat{\mathbf{p}}_0^-\hat{\mathbf{p}}_0^+$ pour le champ se propageant vers 2 et réfléchi vers 1,
- $\hat{\mathbf{p}}_0^+\hat{\mathbf{p}}_0^+$ pour le champ se propageant vers 1 de l'atome puis de 2,
- $\hat{\mathbf{p}}_0^-\hat{\mathbf{p}}_0^-$ pour le champ se propageant vers 2 de l'atome puis de 1.

De plus, à chaque réflexion il faut rajouter un facteur de phase $\exp(2iW_0d_1)$ pour la réflexion sur la face 1 et $\exp(2iW_0d_2)$ pour la réflexion sur la face 2. Ainsi on peut écrire la susceptibilité tensorielle totale tenant compte de toutes les réflexions multiples et en intégrant sur tous les vecteurs $\hat{\mathbf{K}}$ (soit une intégration spatiale sur les coordonnées polaires ρ et φ) [Nha & Jhe 1996][46] :

$$\begin{aligned} \mathbf{G}^R(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_0; \omega) = & \frac{i\varpi_0^2}{2\pi} \int \int \frac{\rho d\rho d\varphi}{W_0} \left[C_{ss} \hat{\mathbf{s}}\hat{\mathbf{s}} + C_{p^+p^-} \hat{\mathbf{p}}_0^+ \hat{\mathbf{p}}_0^- + \right. \\ & \left. + C_{p^-p^+} \hat{\mathbf{p}}_0^- \hat{\mathbf{p}}_0^+ + C_{p^+p^+} \hat{\mathbf{p}}_0^+ \hat{\mathbf{p}}_0^+ + C_{p^-p^-} \hat{\mathbf{p}}_0^- \hat{\mathbf{p}}_0^- \right] \end{aligned} \quad (\text{D.4})$$

avec $\varpi = \omega/c$ et

$$C_{ss} = [R_s \exp(-2\rho d_1) + R_s \exp(-2\rho d_2) + 2y_s] \sum_{m=0}^{+\infty} (y_s)^m \quad (\text{D.5})$$

$$C_{p^+p^-} = [R_p \exp(-2\rho d_1)] \sum_{m=0}^{+\infty} (y_p)^m \quad (\text{D.6})$$

$$C_{p^-p^+} = [R_p \exp(-2\rho d_2)] \sum_{m=0}^{+\infty} (y_p)^m \quad (\text{D.7})$$

$$C_{p^+p^+} = C_{p^-p^-} = y_p \sum_{m=0}^{+\infty} (y_p)^m \quad (\text{D.8})$$

$$y_{s,p} = R_{s,p} \exp(-2\rho(d_1 + d_2)) \quad (\text{D.9})$$

avec R_s et R_p les coefficients de réflexions pour les polarisations respectivement s et p . Dans le cas de la limite électrostatique (ou régime non retardé) ces coefficients deviennent [46] :

$$R_s = 0, \quad \text{et} \quad R_p = \frac{\epsilon_s - 1}{\epsilon_s + 1} \quad (\text{D.10})$$

Ainsi, les termes liés à la polarisation s s'annulent tous. Par ailleurs, les développements ultérieurs font intervenir des arguments de symétrie dans un milieu isotrope et au final, seules les composantes diagonales du tenseur susceptibilité restent non nulles. Après intégration spatiale (sur ρ et φ), nous obtenons :

$$G_{xx}^R(x, \omega) = G_{yy}^R(x, \omega) = \frac{1}{8d^3} \sum_{m=0}^{+\infty} \left(\frac{R_p^{2m+1}}{(1-x+2m)^3} + \frac{R_p^{2m+1}}{(1+x+2m)^3} + \frac{2R_p^{2m+2}}{(2m+2)^3} \right) \quad (\text{D.11})$$

$$G_{zz}^R(x, \omega) = \frac{1}{4d^3} \sum_{m=0}^{+\infty} \left(\frac{R_p^{2m+1}}{(1-x+2m)^3} + \frac{R_p^{2m+1}}{(1+x+2m)^3} + \frac{2R_p^{2m+2}}{(2m+2)^3} \right) \quad (\text{D.12})$$

où x est relié à d_1 et d_2 par $x = d_1/d - 1$ et $x = 1 - d_2/d$. Ces sommes infinies appelées fonctions *Tri Logarithmique* restent convergentes tant que le coefficient de réflexion est inférieur à 1.

Afin de nous assurer de la validité de ce résultat, nous pouvons le comparer au calcul de [Nha & Jhe 96][46] qui regardent la valeur de la susceptibilité juste au milieu des deux fenêtres. En substituant $x = 0$ dans les équations (D.11) et (D.12), nous obtenons :

$$G_{xx}^R(x=0, \omega) = G_{yy}^R(x=0, \omega) = -\frac{1}{4d^3} \sum_{m=1}^{+\infty} \frac{1}{m^3} \left(\frac{1-\epsilon}{1+\epsilon} \right)^m \quad (\text{D.13})$$

et

$$G_{zz}^R(x=0, \omega) = \frac{1}{2d^3} \sum_{m=1}^{+\infty} \frac{1}{m^3} \left(\frac{\epsilon-1}{\epsilon+1} \right)^m \quad (\text{D.14})$$

Bibliographie

- [1] J.E. Lennard-Jones, *Trans. Faraday Soc.* **28** (1932) 333
- [2] E.M. Lifshitz "The theory of molecular attractive forces between solids", *Soviet Phys.* **2** (1956) 73
- [3] A.D. McLachlan "Retarded dispersion forces in dielectrics at finite temperatures" *Proc. Royal Soc. A* **274** (1963) 80
- [4] C. Mavroyannis "The interaction of neutral molecules with dielectric surfaces" *Mol. Phys.* **6** (1963) 593
- [5] J.M. Wylie & J.E. Sipe "Quantum electrodynamics near an interface" *Phys. Rev. A* **30** (1984) 1185
- [6] J.M. Wylie & J.E. Sipe "Quantum electrodynamics near an interface II" *Phys. Rev. A* **32** (1985) 2030
- [7] M. Fichet, F. Schuller, D. Bloch & M. Ducloy. "van der Waals interactions between excited-state atoms and dispersive dielectric surfaces". *Phys. Rev A* **51** (1995) 1553
- [8] M.P. Gorza, S. Saltiel, H. Failache & M. Ducloy "Quantum theory of van der Waals interaction between excited atoms and birefringent dielectric surfaces" *Eur. Phys. J. D* **15** (2001) 113
- [9] H. Failache, S. Saltiel, M. Fichet, D. Bloch & M. Ducloy "resonant van der Waals repulsion between excited Cs atoms and sapphire surface" *Phys. Rev. Letters* **83** (1999) 5467
- [10] H. Failache, S. Saltiel, A. Fischer, D. Bloch & M. Ducloy "Resonant quenching of gas-phase Cs atoms induced by surface polaritons" *Phys. Rev. Letters* **88** (2002) 243603

- [11] H. Failache, S. Saltiel, M. Fichet, D. Bloch & M. Ducloy "Resonant coupling in the van der Waals interaction between an excited alkali atom and a dielectric surface: an experimental study via stepwis selective reflection spectroscopy" *Eur. Phys. J. D* **23** (2003) 237
- [12] E. A. Hinds & V. Sandoghdar "Cavity QED level shifts of simple atoms" *Phys. Rev A* **43** (1991) 398
- [13] V. Sandoghdar, C.I. Sukenik, E.A. Hinds & S. Haroche "Direct measurement of the van der Waals interaction between an atom and its images in a micron-sized cavity" *Phys. Rev. Letters* **23** (1992) 3432
- [14] V. Sandoghdar, C.I. Sukenik, S. Haroche & E.A. Hinds "Spectroscopy of atoms confined to the single node of a standing wave in a parallel-plate cavity" *Phys. Rev. A* **53** (1996) 1919
- [15] M. Oria, M. Chevrollier, D. Bloch, M. Fichet & M. Ducloy "Spectral observation of surface-induced van der Waals attraction on atomic vapor", *Europhys. Letters* **14** (1991) 527
- [16] M. Chevrollier, D. Bloch, G. Rahmat & M. Ducloy "Van der Waals-induced spectral distortions in selctive reflection spectroscopy of Cs vapor: the strong atom-surface interaction regime" *Opt. Lett.* **16** (1991) 23
- [17] S. Briaudeau, D. Bloch & M. Ducloy "detection of slow atoms in laser spectroscopy of thin vapor films", *Europhys. Lett.* **35** (1996) 337
- [18] S.Briaudeau, S. Saltiel, G. Nienhuis, D. Bloch, M. Ducloy, "Coherent Doppler narrowing in a thin vapor cell: Observation of the Dicke regime in the optical domain", *Phys. Rev A* **57**, R3169 (1998)
- [19] B. Zambon & G. Nienhuis, "Reflection and transmission of light by thin vapor layers", *Opt. Comm.* **143**, 308 (1997)
- [20] S.Briaudeau, D. Bloch, M. Ducloy, "Sub-Doppler spectroscopy in a thin film of resonant vapor", *Phys. Rev A* **57**, 3723 (1999)
- [21] S. Briaudau Thèse de l'Université Paris XIII (1998)
- [22] R. H. Romer & R. H. Dicke, "New technique of hight-resolution microwave spectroscopy", *Phys. Rev.* **99**, 532 (1955)

- [23] M. Ducloy & M. Fichet "General theory of frequency modulated selective reflection; Influence of atom surface interaction" *J. Phys. II France* **1** (1991) 1429
- [24] R.W. Wood "The selective reflection of monochromatic light by Mercury vapor" *Phil. Mag.* **18** (1909) 187
- [25] T.A. Vartanyan, F. Träger "Lineshape of resonances recorded in selective reflection : influence of antireflection coating" *Opt. Comm.* **99** (1994) 336
- [26] G. Dutier, S. Saltiel, D. Bloch & M. Ducloy "Revisiting optical spectroscopy in a thin vapor cell: mixing of reflection and transmission as a Fabry-Perot microcavity effect" *J. Opt. Soc. Am. B* **20** (2003) 793
- [27] M. Chevrollier, M. Oria, J.G. de Souza, D. Bloch, M. Fichet & M. Ducloy "Selective reflection spectroscopy of a resonant vapor at the interface with a metallic layer" *Phys. Rev. E* **63** (2001) 046610
- [28] T.A. Vartanyan & D.L. Lin "Enhanced selective reflection from a thin layer of dilute gaseous medium" *Phys. Rev. A* **51** (1995) 1959
- [29] D. Sarkisyan, D. Bloch, A. Papoyan & M. Ducloy "Sub-Doppler spectroscopy by sub-micron thin Cs vapor layer" *Opt. Comm.* **200** (2001) 201
- [30] Daniel A. Steck, Cesium D Line Data, (1998)
- [31] G. Grynberg, A. Aspect, C. Fabre, *Introduction aux lasers et à l'optique quantique*, Ed. ellipses, 1997
- [32] G. Barton, Van der Waals shifts in an atom near absorptive dielectric mirrors, *Proc. Soc. Lond. A*, 1997, 453, 2461-2495
- [33] M. Chevrollier, M. Fichet, M. Oria, G. Rahmat, D. Bloch, M. Ducloy, "Hight resolution selective reflection spectroscopy as a probe of long-range surface interaction : measurement of the surface van der Waals attraction exerted on excited Cs atoms", *J. Phys. II France* **2** 631-657 (1992)
- [34] G. Dutier, A. Yarovitshi, S. Saltiel, A. Papoyan, D. Sarkisyan, D. Bloch & M. Ducloy "Collapse and revival of Dicke-type coherent narrowing in a sub-micron thick vapor cell transmission spectroscopy" *Eur; Phys. Letters* **63** (2003) 35
- [35] G. Dutier, S. Saltiel, D. Bloch, M. Ducloy, A. Papoyan, D. Sarkisyan "Observation de l'interaction entre atome et surface en cellule de vapeur submicrométrique" *J. Phys. IV France* **12** (2002) Pr5-155

- [36] Born & Wolf, "Principles of Optics", Pergamon Press, 4th ed. 1970
- [37] H. Failache Thèse de l'Université Paris XIII (1999)
- [38] V. Vuletic, V.A. Sautenkov, C. Zimmermann & T.W. Hänsch, "Measurement of cesium resonance line self-broadening and shift with doppler-free reflection spectroscopy", *Optics Comm.* **99** (1993) 185-190
- [39] R. Müller & A. Weis, "Laser frequency stabilization using selective reflection spectroscopy", *Appl. Phys. B* **66**, 323-326 (1998)
- [40] E.D. Palik "Handbook of optical constants"
- [41] J.D. Jackson, "Classical electrodynamics" 2nd ed. (Wiley, NY, 1975) pp. 147-149
- [42] D. Meschede, W Jhe & E.A. Hinds "Radiative properties of atoms near a conducting plane: an old problem in a new light" *Phys. Rev. A* **41** (1990) 1587
- [43] J. Dalibard, J. Dupont-Roc & C. Cohen-Tannoudji "Vacuum fluctuation and radiation reaction: identification of their respective contributions" *J. Physique* **43** (1982) 1617
- [44] W. Lukosz & R.E. Kunz "Light emission by magnetic electric dipoles close to a plane interface I Total radiated power" *J. Opt. Soc. Am* **67** (1977) 1607
- [45] H.B.G. Casimir & D. Polder "The influence of retardation on the London-van der Waals forces" *Phys. Rev.* **73** (1948) 360
- [46] H. Nha & W. Jhe "Cavity quantum electrodynamics between parallel dielectric surfaces" *Phys. Rev. A* **54** (1996) 3505
- [47] C.I. Sukenik, M.G. Boshier, D. Cho, V. Sandoghdar & E.A. Hinds "Measurement of the Casimir-Polder force" *Phys. Rev. Letters* **70** (1993) 560
- [48] P. Simoneau, S. le Boiteaux, Cid B. de Araujo, D. Bloch, J.R. Rios Leite & M. Ducloy "Doppler-free evanescent wave spectroscopy" *Opt. Comm.* **59** (1986) 103
- [49] K. Niemax, M. Movre & G/ Pichler, *J. Phys. B* **12** (1979) 3503
- [50] C.L. Chen & A.V. Phelps, *Phys. Rev.* **173** (1968) 62
- [51] M. Movre & G. Pichler, *J. Phys. B* **10** (1977) 2631
- [52] Vdovin & Dobrodeev 1969