



HAL
open science

Confinement tridimensionnel d'une vapeur de césium dans une opale de nanobilles

Philippe Ballin

► **To cite this version:**

Philippe Ballin. Confinement tridimensionnel d'une vapeur de césium dans une opale de nanobilles. Optique [physics.optics]. Université Paris-Nord - Paris XIII, 2012. Français. NNT : . tel-00728333

HAL Id: tel-00728333

<https://theses.hal.science/tel-00728333>

Submitted on 5 Sep 2012

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

N° attribué par la bibliothèque

THESE

pour obtenir le grade de

DOCTEUR EN SCIENCE DE L'UNIVERSITE PARIS 13

par

Philippe BALLIN

Titre :

Confinement tridimensionnel d'une vapeur de césium dans une opale de nanobilles

Directeur de thèse

Daniel BLOCH

Soutenue le 14 juin 2012 devant le jury composé de :

M.	Serge RAVAINÉ	Président
Mme	Agnès MAITRE	Rapporteur
M.	Fetah BENABID	Rapporteur
M.	Alexis FISCHER	
Mme	Isabelle MAURIN	
M.	Daniel BLOCH	Directeur de thèse

Remerciements

Je tiens ici à remercier toutes les personnes qui ont contribué, directement ou indirectement, à ce projet.

En premier lieu, je remercie Daniel Bloch, mon directeur de thèse, sans qui rien de cela n'aurait pu être possible. Au cours de ces quatre années, il a toujours été disponible, ne mâchant pas ses efforts pour essayer de me transmettre une partie de son savoir et de sa rigueur scientifique, même si ce n'était pas gagné au départ. Si aujourd'hui je ressors grandi de cette expérience, autant sur le plan scientifique que personnel, c'est en grande partie grâce à lui.

Je ne peux oublier bien évidemment tous les membres (ou ex membres) de l'équipe SAI : Thierry Passerat, encore en thèse à mon arrivée, qui m'a aidé à apprivoiser la salle de manip, Athanasios Laliotis et Marie Pascal Gorza qui ont toujours trouvé du temps pour répondre à mes questions, même les plus basiques et m'ont fait profiter de leur multiples connaissances ainsi qu'Elias Moufarej, qui poursuit actuellement le projet et dont les anecdotes me manqueront certainement. Je voudrais particulièrement remercier Isabelle Maurin, ma co-encadrante, qui m'a énormément apporté, autant par sa présence en salle de manip que par sa bonne humeur quotidienne qui a été d'un profond réconfort dans les moments de doutes.

Je remercie Charles Desfrancois le directeur du LPL, ainsi que toutes les composantes du laboratoire (l'administration, l'atelier de mécanique, d'optique et d'électronique), qui ont tous également une part dans la réussite de ce projet, ainsi que l'ensemble des membres du laboratoire.

Je remercie l'ANR qui a financé la thèse ainsi que ECOS-SUD qui nous a permis d'entretenir une collaboration étroite avec le groupe d'Horacio Failache, dont les conseils avisés qu'ils nous ont donné à chacune de leur visite nous ont été d'une aide précieuse.

Je voudrais remercier Agnès Maitre et Fetah Benabid pour avoir accepté d'être les rapporteurs de cette thèse, et Alexis Fisher et Serge Ravaine de faire partie du jury.

Enfin, sur un plan plus personnel je tiens à remercier du plus profond de mon cœur ma famille et mon amie, sans qui rien n'aurait été possible.

MERCI A TOUS !

Résumé de la thèse :

Ce mémoire rapporte diverses expériences de spectroscopie visant à étudier le comportement d'une vapeur atomique soumise à un confinement tridimensionnel sub-micrométrique. Nous présentons notamment les spectres expérimentaux de réflexion (raies D_1 et D_2) réalisées sur des cellules macroscopiques contenant une vapeur de césium et une opale constituée d'un nombre contrôlé de couches de nano-billes de silice (déposé par la technique Langmuir-Blodgett). En fonction de l'angle incidence du faisceau illuminant l'opale, deux types de signaux sub-Doppler sont observés via une détection par modulation de fréquence : l'un observable à des angles d'incidence faibles, rappelant les formes de raies habituelles d'une réflexion sélective sur une interface plane de verre, et l'autre, superposé à un signal de fond large, pour des angles d'incidence importants. Cette structure, inédite pour des expériences de réflexion sélective, peut être isolée par une expérience pompe-sonde ou une détection $2f$. Elle pourrait être la signature d'un rétrécissement Dicke, conséquence du confinement des atomes sur une distance équivalente à une fraction de longueur d'onde.

Tridimensional confinement of cesium vapour in an opal of glass nanospheres

Abstract :

We report on various experiments in order to study spectroscopy of a sub-micrometric confinement of an atomic vapour. We present experimental reflection spectra obtained on macroscopic cesium vapour cells whose window is covered with an opal of glass microspheres deposited layer-by-layer (Langmuir-Blodgett technique). The spectra are obtained for D_1 and D_2 lines in FM technique. Two regimes yielding sub-Doppler signals can be distinguished, depending on the incidence angle in the opal: under nearly normal incidence, the whole lineshape is sub-Doppler and reminds the usual selective reflection spectra (at a flat interface); for large incident angles, we report a sub-Doppler structure superimposed to a broad structure. This narrow structure can be isolated with improved FM technique ($2f$ detection) or in pump-probe experiments. This narrow structure seems to originate in a Dicke narrowing, observed here in the optical domain, as a consequence of the atomic confinement on a scale smaller than a wavelength.

Mots-clés :

Cristaux photoniques
Confinement 3D d'une vapeur atomique
Spectroscopie sub-Doppler
Rétrécissement Dicke

Nanobilles
Opale
Spectroscopie de réflexion

Table des matières

1 Introduction générale	7
2 Méthodes de fabrication et caractérisation des opales	17
2.1 Méthodes de fabrication des opales.....	17
2.1.1 Les opales : des cristaux photoniques 3D	17
2.1.2 Fabrication des colloïdes sphériques	19
2.1.3 La méthode de sédimentation	21
2.1.4 Dépôt de multicouches de colloïdes sphériques : méthode Langmuir-Blodgett	22
a) Réalisation d'un film de Langmuir : épandage et compression	22
b) Fabrication d'opale de silice.....	23
2.1.5 Caractéristique d'un empilement cristallin compact.....	25
2.2 Caractérisation des opales sans césium.....	28
2.2.1 La diffraction.....	28
2.2.2 Mesures de transmission.....	30
a) Incidence normale.....	31
b) Incidence non nulle.....	32
2.2.3 Mesures de réflexion.....	33
2.2.4 Conclusion.....	37
3 Mise en contact d'une opale et d'une vapeur de césium	39
3.1 Caractéristiques communes aux cellules.....	39
3.1.1 Choix de la vapeur atomique : le césium.....	39
a) Le césium.....	39
b) Niveaux atomiques du césium.....	41
3.1.2 Choix des matériaux.....	42

3.2 Opale par sédimentation et césium.....	43
3.2.1 Description du césium.....	43
3.2.2 Formation d'agrégats.....	45
a) Système de chauffage.....	46
b) Résultats.....	47
c) Inhomogénéités du chauffage.....	48
d) Chauffage à une température supérieure à la limite typique de dégradation du verre avec le césium.....	50
3.2.3 Tests spectroscopiques.....	50
3.3 Opale mince obtenue par déposition Langmuir-Blodgett et vapeur de césium.....	52
3.3.1 Description du problème.....	53
a) Opale Langmuir-Blodgett.....	53
b) Préparation des opales avant la mise en cellule.....	53
c) Fabrication de la cellule.....	55
3.3.2 Obtention d'un régime contrôlant la formation des agrégats.....	56
3.4 Bilan et perspectives.....	57
4 Les méthodes de spectroscopie utilisées.....	60
4.1 Détection par modulation de fréquence.....	60
4.2 L'absorption saturée.....	62
4.2.1 Interaction d'un faisceau avec une vapeur résonnante et saturation.....	62
4.2.2 Absorption saturée.....	66
4.3 La réflexion sélective.....	69
4.3.1 Introduction.....	69
4.3.2 Théorie locale de l'indice.....	70
4.3.3 Effets du mouvement atomique et théorie locale de l'indice.....	71

a) Calcul du champ réfléchi en fonction de la polarisation induite dans le milieu.....	71
b) Calcul de la polarisation induite pour une vapeur thermique résonante...	75
4.3.4 Effets d'une interaction atome-surface.....	78
4.3.5 Influence d'une incidence oblique sur le signal de réflexion sélective.....	79
5 Expérience de réflexion sélective sur les opales.....	82
5.1 Descriptif du montage.....	84
5.1.1 Le montage.....	84
5.1.2 Les lasers.....	85
a) Laser de type DBR (Distributed Bragg Reflector).....	85
b) Laser à cavité étendue.....	85
c) Balayage et modulation de fréquence.....	86
5.1.3 La chaîne de détection.....	87
5.1.4 Chauffage des cellules.....	87
5.2 Expériences de réflexion sélective en incidence normale.....	90
5.2.1 Réflexion sélective sur une opale de 20 couches de billes de diamètre 1 μm	90
5.2.2 Dépendance du signal de réflexion sélective sur l'opale avec la densité de césium.....	91
5.2.3 Intensité lumineuse et saturation.....	93
5.2.4 Tests de la présence d'impuretés et de l'amplitude de modulation FM :	
comparaison des signaux provenant d'une interface de verre et de l'opale....	94
a) Montage et précautions.....	94
b) Comparaison des signaux de réflexion sur le verre et l'opale.....	95

5.2.5	Expérience de réflexion sélective en incidence normale sur des opales de géométrie différente.....	96
a)	Comparaison des spectres de réflexion sélective réalisés sur des opales de 10 et 20 couches de billes de diamètre 1 μm	97
b)	Réflexion sélective en incidence normale réalisée sur une opale de 10 couches de billes de diamètre 0,4 μm	98
5.3	Origine spatiale du signal.....	100
5.3.1	Possibilité d'une réflexion sélective sur l'interface "billes-vapeur".....	101
a)	Position du problème.....	101
b)	Tentative de fit des signaux avec des modèles adaptés au cas d'une réflexion sélective sur une interface plane.....	103
c)	Épaisseur de l'opale et incompatibilité avec un signal "au dessus" de l'opale.....	108
d)	Possibilité d'un décollement localisé des billes.....	109
5.3.2	Inhomogénéités de confinement et d'indice induites par l'opale.....	111
a)	Inhomogénéité spatiale du confinement à l'intérieur de l'opale.....	111
b)	Indice effectif et inhomogénéité.....	112
5.4	Expérience de réflexion sélective avec une incidence oblique.....	116
5.4.1	Evolution angulaire : Observation d'une nouvelle structure sub-Doppler...116	
a)	Montage expérimental.....	116
b)	Elargissement du signal avec l'angle d'incidence du faisceau laser.....	118
c)	Observation d'une nouvelle structure sub-Doppler.....	119
d)	Caractère intrinsèque de la structure sub-Doppler.....	120
5.4.2	Caractérisation de la structure sub-Doppler aux grands angles.....	121

a) Influence de la polarisation sur la forme du signal.....	121
b) Vérification de la linéarité du signal.....	124
c) Evolution de la forme de la structure sub-Doppler avec l'angle d'incidence.....	127
d) Amélioration du contraste des structures : détection de la seconde harmonique.....	128
e) Interprétation, possibilité d'une structure liée à un effet Dicke.....	129
5.5 Effets expérimentaux de la modification du paramètre λ/D en lien avec le rétrécissement Dicke.....	130
5.5.1 Utilisation d'une opale composée de billes de 400 nm.....	131
5.5.2 Comparaison des spectres obtenus pour des longueurs d'onde de 852 et 894 nm.....	133
a) Montage expérimental.....	133
b) Elaboration de spectres de synthèse.....	134
c) Comparaisons entre les spectres expérimentaux et les spectres de synthèse.....	135
d) Origine des dissemblances entre 894 et 852 nm.....	135
5.6 Conclusion.....	137
6 Expériences de réflexion sélective en présence d'un faisceau pompe.....	140
6.1 Description de l'expérience.....	141
6.1.1 Le montage.....	141
6.1.2 Les lasers.....	143
a) Choix de la longueur d'onde des faisceaux sonde et pompe.....	143
b) Puissance et diamètre des faisceaux.....	144
6.1.3 Les modulations.....	145

6.2 Effets du faisceau pompe sur les spectres de réflexion sélective.....	147
6.2.1 Exaltation des composantes sub-Doppler par le faisceau pompe.....	147
6.2.2 Saturation et pompage optique dans l'opale.....	148
6.2.3 Dépendance en polarisation.....	150
a) Influence de la polarisation de la sonde.....	150
b) Influence de la polarisation de la pompe.....	151
6.2.4 Influence de l'intensité de la puissance pompe.....	152
6.2.5 Evolution de la forme des spectres avec l'angle d'incidence des faisceaux..	155
a) Evolution avec l'incidence du faisceau pompe.....	155
b) Evolution avec l'incidence du faisceau sonde.....	156
c) Dépendance avec la fréquence du faisceau pompe.....	157
6.3 Détection d'un processus physique lent.....	162
6.3.1 Détection d'un signal en quadrature.....	162
6.3.2 Evolution du signal avec la fréquence de modulation du faisceau pompe...	163
6.3.3 Absence d'influence de la fréquence optique du faisceau pompe.....	165
6.3.4 Interprétation : analogie avec le LIAD (Light Induced Atomic Desorption)	
.....	166
6.4 Conclusion.....	167
Conclusion générale.....	171
Appendice.....	175

Chapitre 1 :

Introduction générale

Depuis ces trente dernières années, les technologies de télécommunications ont connu un développement sans précédent. Actuellement, ces technologies tendent, notamment grâce au développement des nanotechnologies, à devenir de plus en plus compactes. La conception de références temporelles (horloge atomique), composantes indispensables à ces technologies, de taille réduite devient aujourd'hui un enjeu technologique majeur.

Une des limitations actuelles à la miniaturisation des étalons temporels est l'incapacité technologique à concevoir des cellules de vapeur atomique (ou moléculaire) compactes. En effet, dans une horloge atomique, la fréquence de résonance de la transition atomique étudiée, à partir de laquelle va être effectué le décompte temporel, est déterminée à l'aide d'expériences de spectroscopie sur des cellules macroscopiques contenant une vapeur. Ces vapeurs doivent être peu denses pour limiter les élargissements collisionnels et nécessitent d'être sondées en volume afin d'éviter les déplacements en fréquence liés aux interactions de surface. Dans un tel système, les atomes (ou molécules) se déplacent librement à l'intérieur de la cellule et sont alors soumis à l'effet Doppler ce qui engendre des décalages en fréquence pour la transition étudiée.

Expérimentalement, l'effet Doppler peut être contourné à l'aide de processus non-linéaires. Une alternative à ces méthodes consiste à travailler avec une vapeur confinée sur une distance équivalente à une fraction de longueur d'onde ($\sim\lambda/2$). A cette condition, les atomes, soumis à de multiples collisions, ne peuvent sortir du régime transitoire et deviennent alors insensibles à l'effet Doppler. Ce concept, introduit en 1953 par R. Dicke [DIC] et connu

sous le nom de rétrécissement Dicke, a été vérifié dans le domaine des micro-ondes. Expérimentalement, pour cette gamme de longueur d'onde, le confinement a été engendré par l'introduction d'un gaz tampon de densité suffisamment importante pour limiter le déplacement des atomes de la vapeur à quelques fractions de longueur d'onde [ARD]. Dans le domaine optique, les courtes longueurs d'onde font que le confinement atomique ne peut être réalisé par un gaz tampon et nécessite d'autres technologies de confinement. Les densités nécessaires sont en effet extrêmement importantes et le signal atomique est alors soumis à un fort élargissement collisionnel.

Outre ses possibles applications dans la fabrication de références de fréquence compactes, la physique des gaz «mésoscopiques», pour lesquels le libre parcours atomique dépend des caractéristiques de l'enceinte (macroscopique), représente un domaine particulièrement riche dont la compréhension pourrait avoir de multiples répercussions dans la physique atomique et moléculaire, justifiant les études qui lui sont consacrées dans le groupe depuis plusieurs années.

A une dimension (1D), le confinement atomique a pu être étudié à l'aide de cellules minces. Ces systèmes sont composés de deux fenêtres diélectriques distantes d'une largeur caractéristique L (épaisseur du confinement). Initialement, ces cellules étaient constituées de deux cylindres emboîtés, sur lesquels étaient soudés des fenêtres et permettaient un confinement nettement inférieur au millimètre (jusqu'à $10\mu\text{m}$ [BRI96]). En 2001, D. Sarkisyan réalisa la première cellule ultra-mince (ou nano-cellule) [SAR]. Composée de deux fenêtres séparées par des espaceurs (anneaux ou plots en alumine déposés sur l'une des fenêtres), cette méthode permet d'atteindre des confinements inférieurs au micromètre (cf fig. 1.1.a).

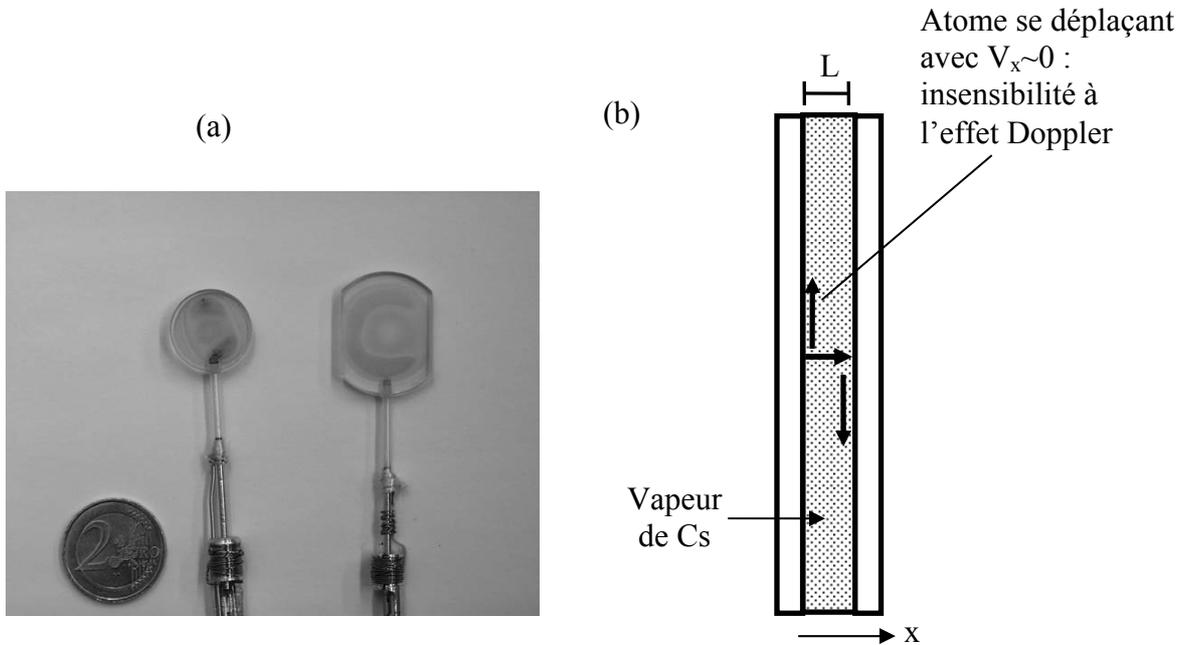


Fig 1.1 : (a) photo issue de [DUT] représentant deux cellules minces, l'une en YAG dont l'espace de confinement est compris entre 300 et 1300, l'autre en saphir (200-600 nm de confinement) d'où les colorations dues aux interférences de réflexion; (b) vue de profil de la cellule mince représentant l'anisotropie du libre parcours moyen atomique dans une cellule d'épaisseur L : les atomes se propageant parallèlement aux fenêtres ont une composante de vitesse très faible dans la direction de propagation du faisceau (pour un faisceau sous incidence normale). Cette anisotropie existe pour les micro-cellules (10 μm -100 μm) avec des faisceaux ayant une largeur en μm .

Ces systèmes ont permis d'étudier plus en détails les interactions atome-surface [DUT07], en offrant notamment la possibilité d'observer l'interaction de van der Waals sur des distances de l'ordre de quelques dizaines de nanomètres (ce qui améliore de plus d'un ordre de grandeur les effets de l'interaction par rapport à la distance de ~ 100 nm typique de la réflexion sélective) mais également de réaliser de la spectroscopie sub-Doppler [DUT03]. L'apparition de structure sub-Doppler dans ce type de système trouve son origine dans deux processus distincts. D'une part, le libre parcours moyen atomique est anisotrope dans une cellule mince (cf fig 1.1.b). Les atomes se déplaçant parallèlement aux parois interagissent plus longtemps avec le champ incident, leur réponse est donc prépondérante dans la réponse atomique globale du système. Ces atomes, ayant une vitesse quasi-nulle dans la direction de propagation du faisceau incident sous une incidence normale, ne sont pas sensibles à l'effet

Doppler, engendrant une réponse sub-Doppler [BRI96]. En particulier, dans des processus avec pompage optique, qui gardent longtemps la mémoire de l'interaction, une épaisseur relativement importante ($<1\text{mm}$) permet d'avoir cette réponse sub-Doppler tant que le diamètre du faisceau est très supérieur à l'épaisseur de la cellule. D'autre part, lorsque cette épaisseur devient de l'ordre d'une fraction de longueur d'onde, les collisions avec les parois engendrent un rétrécissement, de manière analogue à ce qui est observé dans l'expérience de Romer et Dicke réalisée dans le domaine micro-onde [ROM], observable en pur régime linéaire.

Le passage d'un confinement 1D à des confinements supérieurs implique une rupture technologique. En 2005, l'équipe de F. Benabid a présenté une technologie de confinement 2D utilisant des cœurs de fibres creuses micro-structurées (cf fig. 1.2) [BEN]. Remplies de vapeur, celles-ci ont constitué, grâce à une technique de scellement, des cellules parfaitement utilisables pour des expériences de spectroscopie. Ces cellules à fibre creuse ont permis l'observation de signaux sub-Doppler, mais seulement dans une spectroscopie non linéaire analogue à l'absorption saturée dans une cellule macroscopique [GOS]. Cependant, les diamètres minimaux des cœurs de fibres restent compris entre $10\ \mu\text{m}$ et $20\ \mu\text{m}$, et sont trop importants pour engendrer un confinement susceptible de créer des rétrécissements Dicke dans le domaine optique.

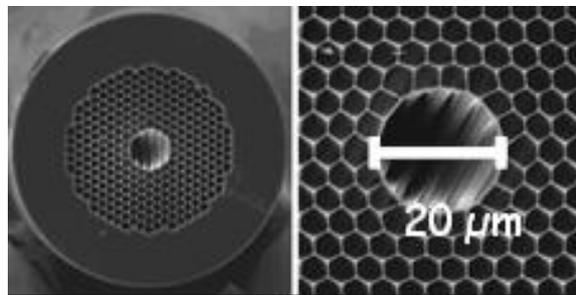


Fig 1.2 : Photo issue de [BEN] du cœur d'une fibre micro structurée utilisée pour confiner la vapeur sur deux dimensions

Actuellement, très peu d'études de vapeurs confinées 3D sont rapportées dans la littérature. Le sujet tend cependant à se développer, notamment grâce aux milieux poreux, matériaux utilisés par extension aux revêtements qui permettent des expériences de désorptions atomiques induite par la lumière (LIAD) [BUR]. Les atomes observés sont cependant ceux qui sont sortis du milieu poreux [FAI]. En 2010, le groupe de T. Svensson a pu réaliser la spectroscopie de molécules d'oxygène piégées dans de l'alumine poreuse [SVE]. Cependant, les fortes densités nécessaires à ce système interdisent toute observation sub-Doppler. Dans une autre étude, en cours de réalisation, le groupe de H. Failache à Montevideo, avec lequel nous avons une coopération suivie, observe des signaux sub-Doppler dans des milieux poreux d'assez grande taille.

Dans le cadre de ce projet, nous avons cherché à étudier le confinement atomique 3D en piégeant des atomes de césium dans les interstices d'une opale. Les opales sont des empilements organisés et compacts de micro ou nano-billes (entre 0,1-2 μ m de diamètre). La structure d'une opale est donc composée de répétitions périodiques de billes et d'interstices, dans lesquels la vapeur peut s'infiltrer (cf fig 1.3). Comparativement à un milieu poreux, ce système offre l'avantage d'avoir des tailles et une répartition d'interstices homogènes dans l'ensemble de son volume. De plus, la géométrie des opales (taille des billes, nombre de couches) peut être contrôlée, ce qui pourrait, à terme, permettre la fabrication de cellules microscopiques de vapeur (avec très peu de billes). Bien que ce ne soit pas à but spectroscopique, un système comparable a été mis en place dans la thèse de P. J. Harding [HAR] au Pays-bas, illustrant la viabilité de ce dispositif.

Dans ce mémoire, nous détaillons les étapes de fabrication de cellules macroscopiques contenant une opale et du césium. Nous aborderons les problèmes engendrés par le confinement, notamment la formation d'agrégats de césium dans les interstices des opales. Ces agrégats, qui se sont révélés être plus ou moins réversibles selon la géométrie des opales

(nombre de couches, taille des billes), semblent liés au faible libre parcours moyen atomique existant dans une opale, faisant de ces objets de véritables pièges à césium.

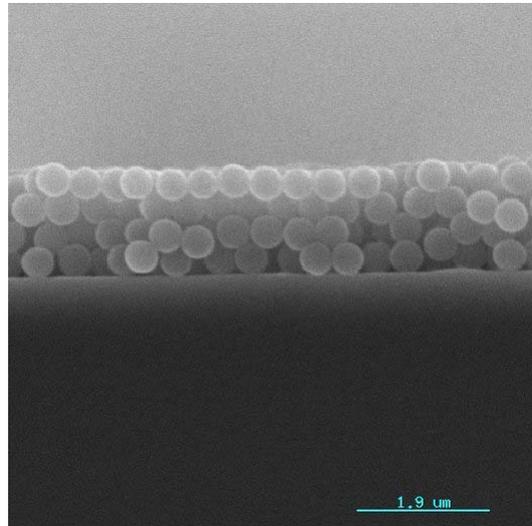


Fig 1.3 : Photographie issue de [MAS] d'une opale fabriquée par la méthode Langmuir-Blodgett (4 couches de billes de silice de 290 nm de diamètre)

Alors que l'équipe avait initialement envisagé d'étudier la diffusion sur l'opale, détection délicate par la difficulté à discerner le signal diffusé de la fluorescence et par les contraintes géométriques pour collecter efficacement la lumière diffusée, la présence de faisceaux réfléchis à l'interface de l'opale a permis de sonder la vapeur par une méthode de réflexion sélective. Régulièrement utilisée par le groupe [ORI] [FAI99], notamment pour mesurer les interactions de van der Waals, cette technique exploite la modification résonante, induite par la réponse des atomes excités, de la réflexion à une interface diélectrique-vapeur en présence d'un faisceau incident.

Nous présentons les résultats de diverses expériences de réflexion sélective effectuées sur des cellules contenant des opales fabriquées par la méthode Langmuir-Blodgett composées de billes de 1 µm de diamètre (voire 0,4 µm pour certaines expériences) pour les raies D1 et D2 du césium (correspondant respectivement à $\lambda=894$ nm et $\lambda=852$ nm) faisant apparaître une structure sub-Doppler aux caractéristiques inhabituelles, notamment une

dépendance du signal avec l'angle et la polarisation du faisceau incident, superposée à un fond large.

Des expériences complémentaires, comparant les spectres de réflexion sélective à des longueurs d'onde différentes (852 nm et 894 nm) dans le but d'établir un lien entre cette structure et le rétrécissement Dicke, sont également décrites.

Enfin, nous discuterons des résultats d'une expérience pompe-sonde visant à créer des inhomogénéités spatiales de la répartition atomique dans l'opale afin d'isoler la structure sub-Doppler.

Pratiquement, le mémoire est découpé de la manière suivante :

Chapitre 2 : Ce chapitre présente brièvement les méthodes de fabrication d'une opale, en se limitant à celles dont sont issues les opales que nous avons utilisées (méthode par sédimentation et méthode Langmuir-Blodgett). Nous y détaillons également les tests optiques réalisés sur les opales Langmuir-Blodgett qui ont mis en évidence l'existence de faisceaux cohérents.

Chapitre 3 : Nous discutons dans ce chapitre de la fabrication des cellules utilisées pour nos expériences. Nous évoquons notamment le problème de la formation d'agrégats à l'intérieur de l'opale, et les solutions apportées pour restreindre ce phénomène.

Chapitre 4 : Cette section présente les différentes méthodes de spectroscopie qui ont été utilisées au cours de ce projet à savoir la détection par modulation de fréquence, la méthode d'absorption saturée et celle de la réflexion sélective.

Chapitre 5 : Ce chapitre présente les résultats des expériences de réflexion sélective obtenues sur des opales composées de billes de verre de $1\ \mu\text{m}$ et $0,4\ \mu\text{m}$ pour les raies D_1 et D_2 césium. Nous discutons de l'origine des signaux observés, de l'influence du substrat soutenant l'opale sur l'inhomogénéité du confinement dans l'opale, ainsi que de la possibilité d'observer un signal de type rétrécissement Dicke.

Chapitre 6 : Ce chapitre décrit les résultats d'une expérience de réflexion sélective pompe ($894\ \text{nm}$) - sonde ($852\ \text{nm}$) réalisée sur l'opale de 20 couches de billes de $1\ \mu\text{m}$. Deux processus sont à distinguer : un phénomène de saturation de certains atomes et la détection de signaux s'apparentant à de la désorption atomique.

Bibliographie :

- [ARD] M. Arditì, T. R. Carver, «Pressure, Light, and Temperature Shifts in Optical Detection of 0-0 Hyperfine Resonance of Alkali Metals», *Phys. Rev* **124**, 800-809 (1961)
- [BEN] F. Benabid, F. Couny, J. C. Knight, T. A. Birks, P. St J. Russel, «Compact, stable and efficient all-fibre gas cells using hollow-core photonic crystal fibres», *Nature* **434**, 488 (2005)
- [BRI96] S. Briaudeau, D. Bloch, M. Ducloy, «Detection of slow atoms in laser spectroscopy of thin vapor films», *Europhys. Lett.* **35**, 337 (1996)
- [BUR] A. Burchianti, A. Bogi, C. Marinelli, C. Maibohm, E. Mariotti, L. Moi, «Reversible light-controlled formation and evaporation of Rubidium Clusters in nanoporous Silica», *Phys. Rev. Lett.* **97**, 157404 (2006)
- [DIC] R. H. Dicke, «The effect of collisions upon the Doppler width of central lines», *Phys. Rev.* **18**, 472 (1953)
- [DUT] G. Dutier, «Cavité nanométrique de vapeur de césium : spectroscopie à haute résolution et interaction de surface de type van der Waals», thèse université Paris 13 (2003) *France* **12**, (2002)
- [DUT03] G. Dutier, A. Yarovitshi, S. Satiel, A. Papoyan, D. Bloch, M. Ducloy, «Collapse and revival of Dicke-type coherent narrowing in a sub-mivron thick vapor cell transmission spectroscopy», *EuroPhys. Lett.* **63**, 15 (2003)
- [DUT07] M. Fichet, G. Dutier, A. Yarovitsky, P. Todorov, I. Hamdi, I. Maurin, S. Saltiel, D. Sarkisyan, M. P. Gorza, D. Bloch, M. Ducloy, «Exploring the van der Waals atom-surface attraction in the nanometric range», *EuroPhys. Lett.* **77**, 54001 (2007)
- [FAI99] H. Failache, S. Saltiel, M. Fichet, D. Bloch, M. Ducloy, «Resonant van der Waals Repulsion between Excited Cs Atoms and Sapphire Surface», *Phys. Rev. Lett.* **83**, 5467 (1999)
- [FAI10] S. Villalba, H. Failache, A. Lezama, «Light-induced atomic desorption and diffusion of Rb from porous alumina», *Phys. Rev. A* **81**, 032901 (2010)
- [GOS] S. Ghosh, A. R. Bhagwat, C. K. Renshaw, S. Goh, A. L. Gaeta, B. J. Kirby, «Low-Light-Level Optical Interactions with Rubidium Vapor in a Photonic Band-Gap Fiber», *Phys. Rev. Lett.* **97**, 023603 (2006)
- [HAR] P. J. Harding, «Photonic crystals modified by optically resonant systems», thèse (université de Twente), (2008)
- [MAS] P. Massé, «Cristaux photoniques colloïdaux d'architecture contrôlée», thèse université Bordeaux 1, (2007)

[ORI] M. Oria, M. Chevrollier, D. Bloch, M. Fichet, M. Ducloy, «Spectral observation of surface induced van der Waals on atomic vapour», *Europhys. Lett.* **14**, 527 (1991)

[ROM] R.H. Romer, R. H. Dicke, «New technique for high resolution microwave spectroscopy» *Phys. Rev.* **99**, 352 (1953)

[SAR] D. Sarkysian, D. Bloch, A. Papoyan, M. Ducloy, «Sub-Doppler spectroscopy by sub-micron thin Cs vapor layer», *Opt. Comm.* **200**, 201 (2001)

[SVE] T. Svensson, E. Adolfsson, M. Lewander, C. T. Xu, S. Svanberg, «Disordered, Strongly Scattering Porous Materials as Miniature Multipass Gas Cells», *Phys. Rev. Lett.* **107**, 143901 (2011)

Chapitre 2

Méthodes de fabrication et caractérisation des opales

Dans ce chapitre, nous nous limiterons à la présentation des techniques de fabrication des opales qui ont été utilisées au cours de ce projet, c'est-à-dire aux méthodes par sédimentation et par dépôt Langmuir-Blodgett. Bien que ces systèmes soient issus de collaborations externes (A. Maitre, INSP Paris 6, pour l'opale par sédimentation et S. Ravaine, CRPP Bordeaux, pour celles fabriquées par Langmuir-Blodgett), et n'aient donc pas été réalisés par le groupe (hormis quelques essais sur des monocouches [ROM]), les méthodes de fabrication utilisées influent sur les propriétés des opales, et leur compréhension s'est donc avérée nécessaire. Outre la fabrication des opales, nous nous intéressons également dans cette section à la recherche et la caractérisation des signaux optiques pouvant être observés sur des opales fabriquées par la méthode Langmuir-Blodgett, opales qui ont constituées notre principal système expérimental.

2.1 Méthodes de fabrication des opales

2.1.1 Les opales : des cristaux photoniques 3D

Un cristal photonique (CP) est un matériau diélectrique présentant une modulation périodique de l'indice de réfraction sur une ou plusieurs dimensions. On parle de dimension

de ces cristaux photoniques (1D, 2D ou 3D) selon la périodicité de ces structures (cf fig 2.1).

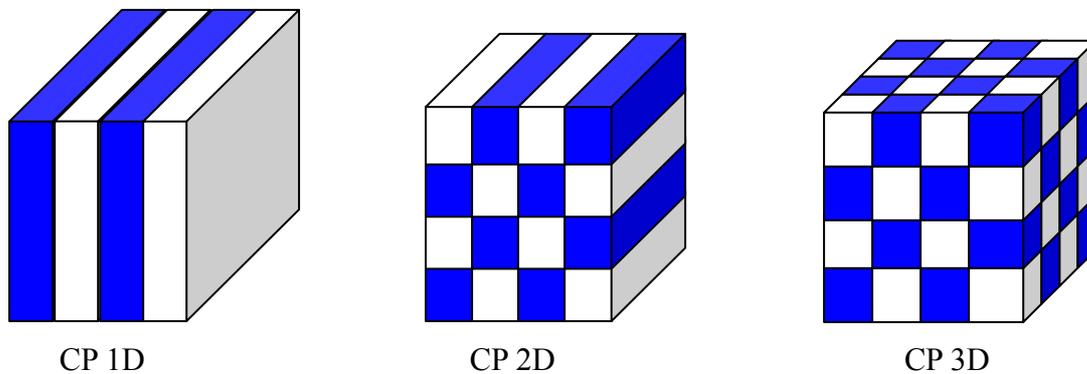


Fig 2.1 Représentation schématique de cristaux photoniques de différentes dimensions (on attribue un indice différent à chaque couleur)

La modulation d'indice, lorsqu'elle a une période de l'ordre de la longueur d'onde optique, modifie la propagation des ondes lumineuses dans le cristal. Suivant la direction de propagation de l'onde considérée (définie par le vecteur d'onde \vec{k}), on observe des gammes de fréquences optiques, appelées bandes interdites pour lesquelles l'onde considérée ne peut se propager à l'intérieur du CP. Ces bandes interdites sont en général calculées numériquement à partir des équations de Maxwell, en tenant compte de la dispersion du champ à l'intérieur du cristal. Les études expérimentales sont effectuées par réflectivité ou transmittance. Les propriétés de ces bandes interdites sont dépendantes des caractéristiques du CP considéré, et notamment du contraste d'indice de la structure. Si celui-ci est important, il est possible d'obtenir des bandes interdites dites "complètes", c'est-à-dire l'existence de fréquences qui ne peuvent se propager dans le cristal quelle que soit la direction de l'onde incidente.

Longtemps restreint à l'étude de structures 1D (miroir de Bragg), voire 2D, le concept de cristal photonique prend véritablement forme en 1987 avec la publication des travaux d'E. Yablonovitch [YAB]. Ceux-ci, qui prédisent l'inhibition de l'émission spontanée à l'intérieur

d'une structure 3D, ouvrent la voie aux études de structures tridimensionnelles. Bien qu'au sens atomique du terme les matériaux photoniques ne soient pas nécessairement des cristaux, leur organisation globale composée d'un agencement périodique de briques diélectriques permet de les catégoriser en tant que cristaux.

Alors que les techniques de fabrication de cristaux photoniques 1D sont très bien maîtrisées (lithographie), l'élaboration de cristaux 3D s'avère plus complexe. C'est dans ce contexte technologique que s'est développé l'intérêt pour les opales. En effet, à l'échelle microscopique, une opale est un assemblage auto-organisé de nano-billes. Fabriquées artificiellement, les opales peuvent permettre d'obtenir, lorsqu'elles sont très bien organisées, un cristal photonique 3D permettant l'observation de bandes interdites [TAR]. Les propriétés de ces CP 3D dépendent pour l'essentiel du diamètre des billes, de la permittivité diélectrique du matériau et de la structure cristalline de l'empilement (NB : pour obtenir un "vrai" CP, avec des bandes interdites complètes, un contraste d'indice fort est nécessaire, dans les opales il est plus courant d'observer des bandes "semi-complètes" [VLA]).

2.1.2 Fabrication de colloïdes sphériques

Les billes utilisées dans la fabrication d'opale sont des particules colloïdales sphériques, c'est-à-dire qu'elles présentent une dimension de l'ordre du μm (diamètre, D , typiquement compris entre $0,1 \mu\text{m}$ et $1 \mu\text{m}$) et sont dispersées dans une solution (l'ensemble "particules-dispersant" étant communément appelé colloïde). Soumises au mouvement brownien, du fait de leur taille relativement faible, elles ont la spécificité de pouvoir s'auto-organiser.

Quelle que soit la méthode choisie pour fabriquer une opale, la qualité des billes utilisées reste le paramètre déterminant pour l'obtention d'un cristal de bonne qualité. En

effet, pour que les billes puissent s'auto-organiser, il est capital que leur distribution en taille soit la plus uniforme possible (monodisperse). La caractérisation d'une distribution de billes est donnée par l'indice de polydispersité ($IP=1-D_w/D_n$) qui mesure le rapport entre le diamètre

moyen "en volume" $D_w = \frac{\sum_1^N n_i x_i^3}{\sum_1^N n_i x_i^4}$ (où n_i est le nombre de billes de diamètre x_i), et le

diamètre moyen dit "en nombre", $D_n = \frac{\sum_1^N n_i x_i}{\sum_1^N n_i}$ [NTE]. Notons que généralement, ces

grandeurs sont directement mesurées à partir de clichés de microscopie. Typiquement, on considérera les billes comme monodisperses si l'IP est <5%, et polydisperses dans le cas contraire, générant alors la création d'un cristal désorganisé et présentant de nombreux défauts d'empilement [REN].

Il existe de nombreuses variétés de colloïdes. Ceux-ci peuvent être classés en deux familles : les colloïdes organiques, dans leur grande majorité constitués de polymère (polystyrène [GOOD], PMMA : poly méthyle méthacrylate, etc.), obtenus par une polymérisation en émulsion, et les colloïdes inorganiques (or, titane, silice, etc.). La méthode de fabrication des particules est naturellement dépendante du matériau choisi. Dans le cas de billes de silice, c'est généralement une méthode sol-gel (de Stöber [FIN]) qui est utilisée. Celle-ci consiste en une hydrolyse d'alkoxyde de silicium, et permet la création de billes monodisperses de silice. La taille des billes formées dépend des paramètres expérimentaux de l'hydrolyse (température, concentration,..), et notamment de l'acidité du milieu, un milieu acide privilégiant la création des billes de grande taille.

Il est intéressant de noter que les billes de silice ainsi fabriquées sont en fait la résultante de l'agrégation de particules de silice créées lors du processus chimique [KAR]. Trois organisations d'agrégation ont pu être identifiées, suivant la taille des billes, par le

groupe de A. Karpov. Les billes peuvent être composées d'un agglomérat de particules de très petites tailles (~10-20nm), d'agrégation de particules de tailles intermédiaires (~100 nm), elles même constituées de petites particules, ou encore être la combinaison des deux types précédents, c'est-à-dire un cœur volumineux autour duquel s'agrège d'autres agrégats (cf fig 2.2). Quelle que soit leur organisation interne, les billes ne sont pas des objets uniques, elles possèdent donc une rugosité et peuvent présenter des défauts.

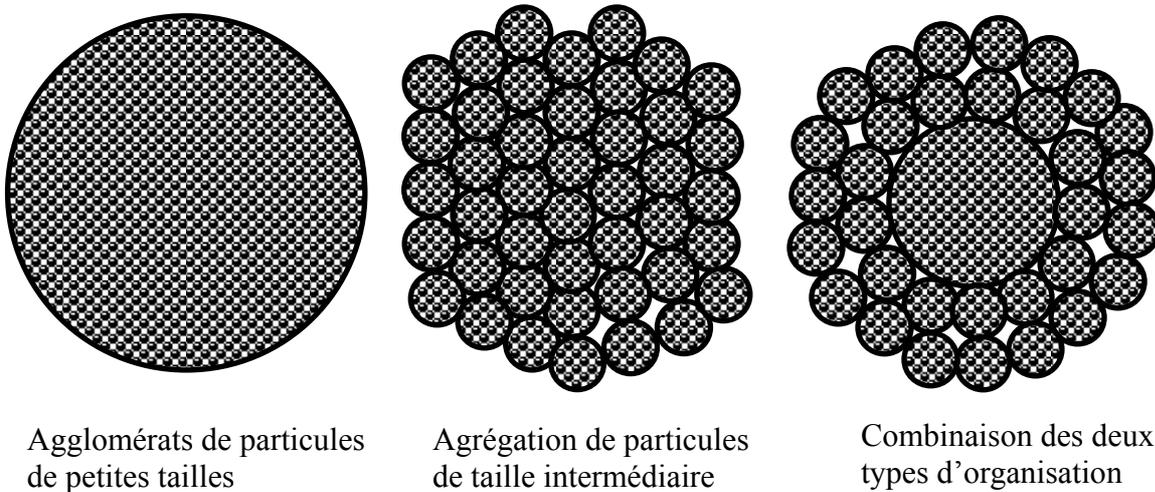


Fig 2.2 Représentation schématique des diverses organisations internes d'une bille de silice fabriquée par une méthode sol-gel (d'après [KAR])

2.1.3 La méthode de sédimentation

De toutes les méthodes utilisées pour créer des cristaux colloïdaux, la technique par sédimentation [DAV] est certainement la plus simple à mettre en oeuvre. Elle consiste à laisser au repos une solution diluée de particules colloïdales. Par gravité, les sphères migrent au fond de la cuve et s'agencent naturellement pour former une structure cristalline. La qualité du cristal formé est donc ici liée au taux de sédimentation des particules, déterminé par la différence de densité entre le solvant et les particules. Pour favoriser une bonne auto-

organisation de l'ensemble, ce taux, qui suit la loi de Stokes, doit en effet être suffisamment important pour permettre la sédimentation, tout en restant inférieur à la vitesse de cristallisation des colloïdes. L'étape de cristallisation achevée, l'opale est séchée par évaporation et subit un traitement thermique afin d'éliminer les dernières traces de solvant.

La fabrication par sédimentation permet d'obtenir des opales de grandes épaisseurs (le nombre de couches exactes ne peut être maîtrisé) et structurellement très bien organisées, hormis la surface des cristaux qui ne peut être contrôlée, mais nécessite des temps de fabrication relativement long (de l'ordre de plusieurs semaines).

2.1.4 Dépôt de multicouches de colloïdes sphériques : méthode Langmuir-Blodgett

Au cours de ce projet, nous avons essentiellement travaillé avec des opales fabriquées par la méthode Langmuir-Blodgett. Dans cette section, nous décrivons brièvement la technique de fabrication utilisée par le groupe de S. Ravaine qui nous a fourni les opales, la méthode étant expliquée de manière plus exhaustive dans la thèse de P. Massé [MAS].

a) Réalisation d'un film de Langmuir : épandage et compression

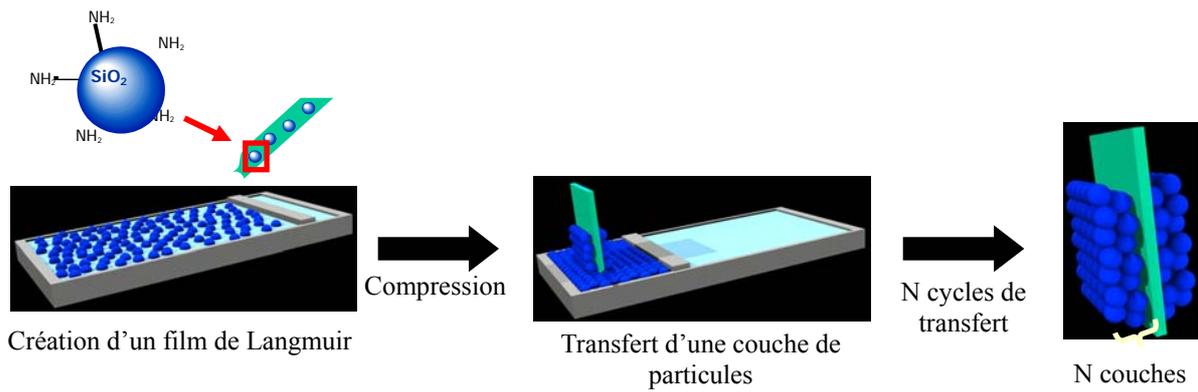
Initialement, la technique Langmuir-Blodgett a été employée pour étudier des molécules amphiphiles, l'objectif étant de créer un film bidimensionnel avec ces molécules (film de Langmuir) à une interface air-liquide. En réussissant à transférer le film sur un substrat, cette méthode a pu être appliquée à la fabrication de cristaux photoniques (CP 2D pour une monocouche, 3D pour un dépôt multicouches). Le point initial de cette technique est donc l'élaboration du film de Langmuir. Pour cela, une solution, contenant des molécules

amphiphiles et un solvant, est déposée sur une interface liquide-air : c'est l'étape d'épandage. La partie hydrophobe des molécules amphiphiles va permettre à la solution de surnager et de rester en surface. Une fois le solvant évaporé, seules les molécules sont présentes à la surface, formant alors un film de Langmuir. A cet instant, ce film n'est pas en phase solide, mais une étape de compression permet de modifier son état de phase : le mouvement d'une barrière mobile comprime les billes et minimise l'espace inter-sphère jusqu'à ce que la monocouche passe dans une phase solide (cf fig 2.3). Comme la présence du film sur le liquide modifie la pression globale, l'état de phase peut être contrôlé par la mesure de la pression du système expérimental.

b) Fabrication d'opale de silice

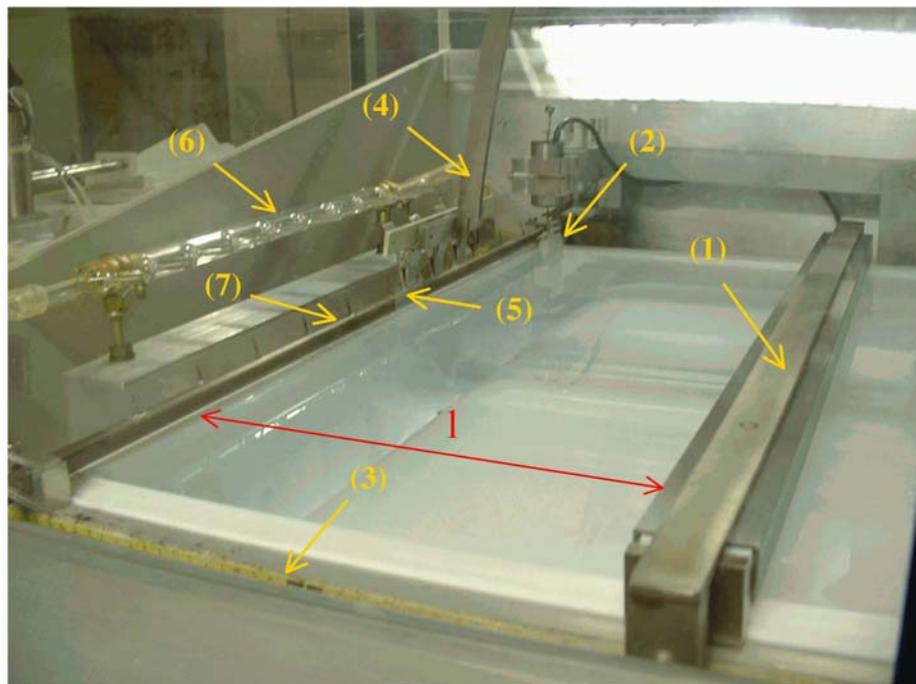
Les sphères de silice n'étant pas amphiphiles, les particules colloïdales sont préalablement traitées chimiquement (fonctionnalisées), afin d'introduire un caractère hydrophobe permettant aux billes de flotter à la surface du liquide et ainsi de réaliser un film de Langmuir en silice. Pour transférer le film sur un substrat, un bras motorisé, sur lequel est attaché une lame de verre, plonge rapidement dans la cuve puis remonte lentement afin de déposer le film sur la lame (cf fig 2.3). Cette étape permet ainsi d'obtenir une monocouche d'opale. L'opération peut être répétée pour empiler les couches et former une opale.

La méthode de fabrication Langmuir-Blodgett permet ainsi la fabrication d'un cristal possédant un nombre de couches maîtrisé et déterminé (au contraire de la technique par sédimentation).



(a) Méthode Langmuir-Blodgett

(b) Cuve de Langmuir



- (1) Barrière mobile
- (2) Capteur de pression (II)
- (3) Règlette (I)
- (4) Bras articulé
- (5) Substrat
- (6) Rampe à N_2
- (7) Système d'aspiration

Fig 2.3 (a) Représentation schématique de la méthode Langmuir-Blodgett, (b) photographie du système expérimental (a et b, images fournies par S. Ravaine, CRPP Bordeaux)

2.1.5 Caractéristiques d'un empilement cristallin compact

Une opale, lorsqu'elle est bien organisée, est un agencement de billes possédant une structure cristalline compacte : l'empilement des sphères est tel qu'il maximise la densité de billes. A 3 dimensions, la compacité est maximale lorsque le cristal possède une structure hexagonale compacte (HC) ou cubique faces centrées compacte (CFC). Ces deux structures présentent une compacité équivalente et ne diffèrent que par l'orientation des couches de billes. Ainsi dans un modèle de sphères dures tangentes, très réaliste pour un empilement de billes en opale, il n'existe que deux orientations pour superposer une seconde couche de façon compacte sur une couche initiale d'orientation A : l'une communément notée B et l'autre C (cf fig 2.4). On définit alors les structure CFC et HC respectivement comme une répétition d'empilement ABCA et ABA.

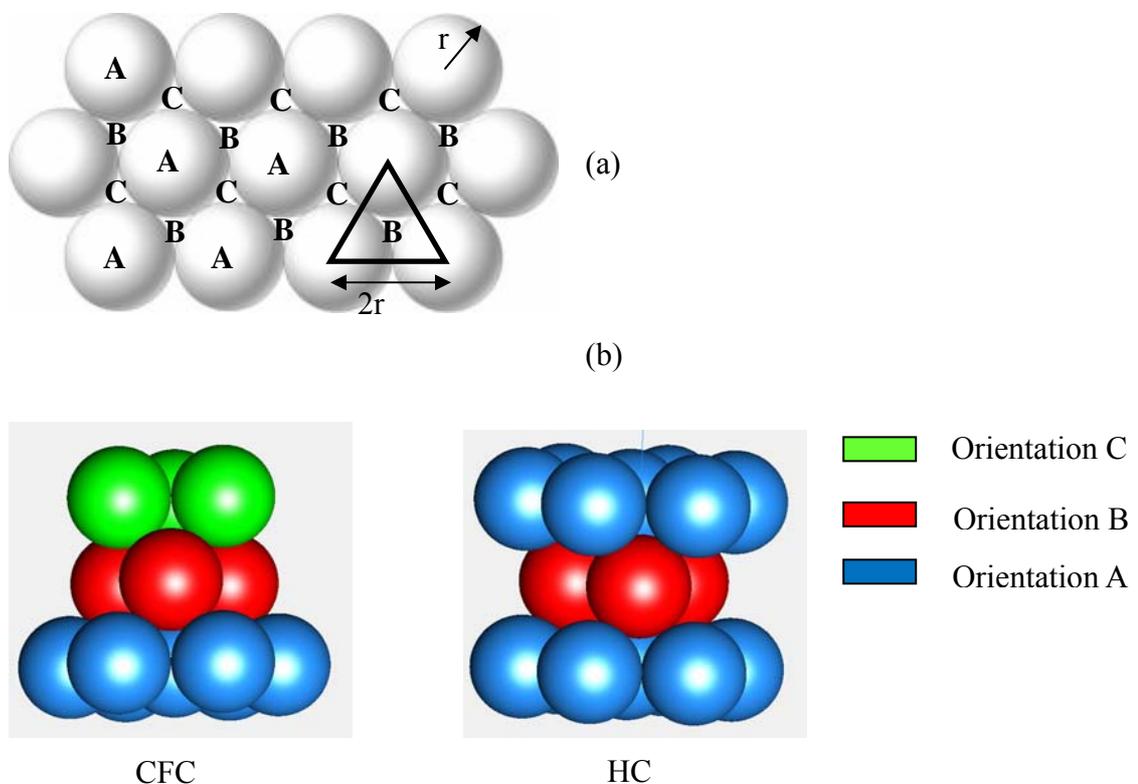


Fig 2.4 (a) *Vue de dessus des sites dans lesquels se positionnent les billes dans le cas où celles-ci appartiennent à une couche orientée B ou C (image issue de [UPS]) ;(b) représentation d'un empilement CFC et HC.*

La symétrie d'une opale est liée à sa méthode de fabrication. Ainsi, les opales fabriquées par sédimentation possèdent une structure cristalline cubique face centrée compacte. Initialement, cette organisation CFC a été imputée au fait que cette configuration minimise l'énergie totale interne de la structure. Cependant, au vu des faibles différences d'énergies mesurées entre une structure CFC et HC [WOOD], cet argument n'était pas totalement satisfaisant. Le groupe de J. Davis a récemment proposé une autre explication : l'orientation de la troisième couche, déterminant si l'on a une structure CFC ou HC, est imposé par le flux du solvant [NOOR], générant ainsi une structure CFC.

Le cas des opales fabriquées par Langmuir-Blodgett est plus complexe. En effet chaque couche déposée est orientée aléatoirement, l'organisation en volume n'est donc pas définie, mais constituée de répétitions aléatoires de couches A, B ou C et il est donc impossible de caractériser ces opales comme étant strictement des structures CFC ou HC. A la rigueur, il est possible de considérer ces opales comme des empilements aléatoires de structure CFC et HC. Bien que n'ayant que peu d'influence sur notre projet, la relative faiblesse de l'organisation cristalline en volume de ces opales constitue le principal défaut de la méthode Langmuir-Blodgett et limite son utilisation pour des études de comportements photoniques.

Bien que structurellement différentes, les organisations compactes présentent un taux de compacité et une distance inter couches identiques. Cette distance peut être directement calculée à partir de la fig 2.4, sur laquelle la distance inter couches correspond à la hauteur du tétraèdre d'arête $a = 2r$, formé par 3 sphères jointes du plan A et d'une sphère du plan B (ou C). Cette hauteur est donc : $2r\sqrt{2/3}$ et ne dépend pas du type d'organisation compacte choisie. La compacité de ces structures, est quant à elle facilement retrouvée en considérant une maille élémentaire d'un réseau cristallin CFC (cf fig 2.5).

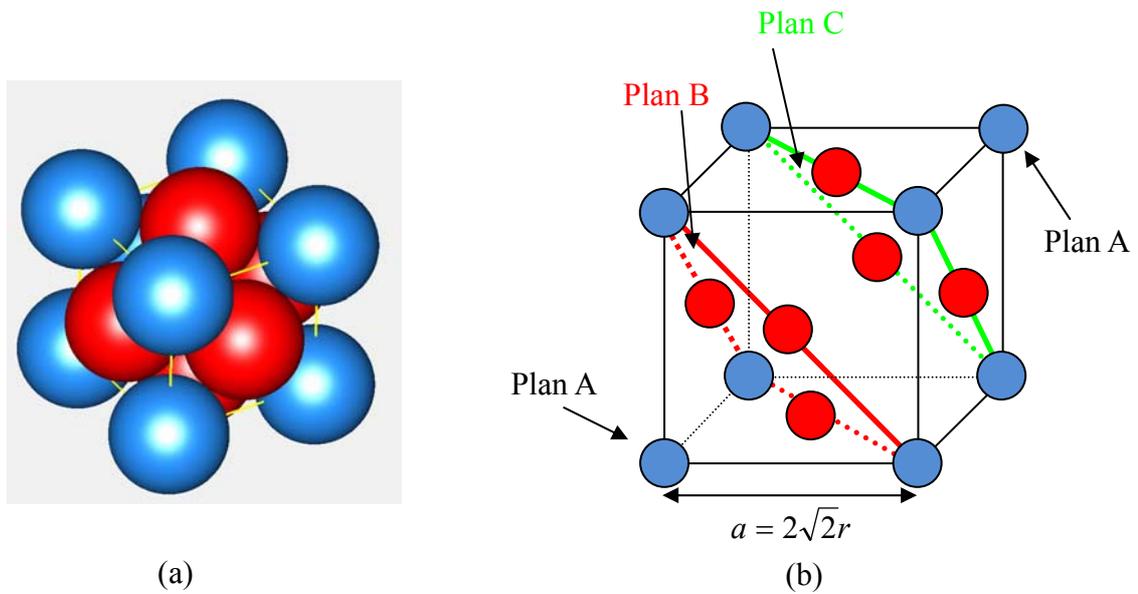


Fig 2.5 (a) *Vue compacte d'une maille cube face centrée*, (b) *vue éclatée d'une maille élémentaire cubique faces centrées* ; les billes situées sur les arêtes du cube (billes bleues) comptent pour 1/8 bille, et celles positionnées sur le centre de chaque face (billes rouges) pour 1/2)

Cette maille contient 4 sphères complètes (8 huitièmes de sphères et 6 demi-sphères) et présente bien une séquence d'empilement ABCA caractéristique des cristaux CFC. La compacité, définie comme le rapport entre le volume de billes de rayon r et le volume de la maille, s'exprime alors par :

$$C = \frac{\text{Volume des sphères}}{\text{Volume de la maille}} = \frac{4 \times (4/3)\pi r^3}{a^3} = 74 \%$$

Notons qu'un raisonnement analogue utilisant la maille élémentaire d'un réseau HC donnerait le même résultat.

Dans une opale, deux types d'interstices coexistent : les interstices tétraédriques et octaédriques, correspondant aux sites interstitiels existant dans la maille. Ceux-ci étant de taille et de forme différentes (cf appendice 1), chaque type d'interstices pourrait induire un confinement spécifique en présence de vapeur atomique. Cependant, l'interconnectivité de ces interstices ne permet pas une répartition du volume libre en zones parfaitement délimitées.

L'évaluation du libre parcours moyen atomique dans une opale, grandeur déterminante pour la recherche d'effet Dicke (cf chap. 1), est donc complexe. Au vu de l'estimation de la taille des interstices, nous considérerons, pour la suite, que le confinement induit par les interstices d'une opale de diamètre D est de $\sim D/2$.

2.2 Caractérisation des opales sans césium

Nous étudions ici les propriétés optiques d'opales fabriquées par la méthode Langmuir-Blodgett, l'objectif étant de déterminer celles pouvant signaler une réponse spectroscopique, et aussi de disposer d'un point de comparaison en cas de modifications liées à la vapeur atomique lors de la mise en cellule de ces opales.

2.2.1 La diffraction

Suivant la méthode de fabrication utilisée, les opales ont une structure plus ou moins bien organisée. Lorsque cette organisation cristalline est bonne, des processus de diffraction doivent pouvoir être observés, et pourraient constituer des signaux intéressants à étudier lors d'une recherche spectroscopique. Des figures de diffraction ont ainsi été antérieurement observées sur des dépôts de monocouches (réalisés par le groupe [ROM]), dont l'organisation a été vérifiée au MEB (microscopie à balayage électronique). Ces figures ont par ailleurs montré l'existence de domaines d'orientations différentes à l'intérieur même de la monocouche (cf fig 2.6).

Des signaux de diffraction devraient être observés sur des opales possédant plusieurs couches fabriquées par la méthode Langmuir-Blodgett, même si le cas est différent de la situation d'une monocouche (chaque couche diffracte l'effet de la couche précédente,

engendrant en principe des figures extrêmement complexes). Or, hormis sur les dépôts monocouche, aucun signe de diffraction n'est observable. Différentes explications peuvent être envisagées pour expliquer cette absence de diffraction. Le caractère diffusant de l'opale peut ainsi fortement limiter l'observation de diffraction. De plus, il est raisonnable de douter de l'organisation de l'opale. En effet, comme nous l'avons précédemment évoqué, la technique Langmuir-Blodgett ne permet pas d'obtenir des cristaux possédant une structure cristalline bien déterminée en volume, or le processus de diffraction est extrêmement sensible à la structure interne de l'opale [VOS]

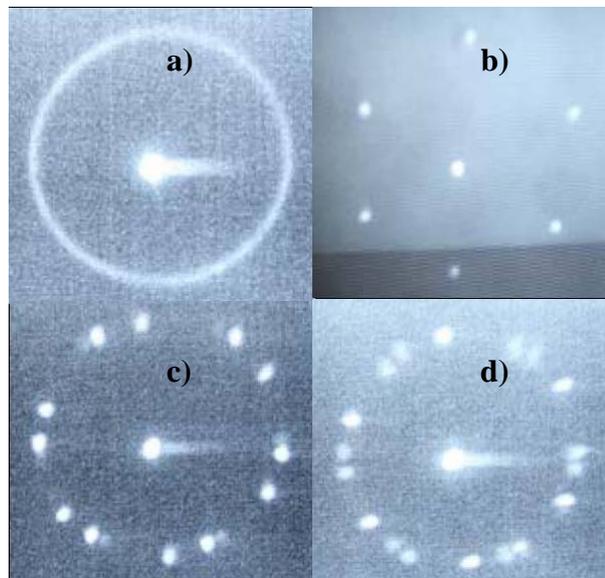


Fig 2.6 Observation de la figure de diffraction obtenue sur une opale monocouche (billes de $0,8 \mu\text{m}$ de diamètre) avec un laser He-Ne (incidence normale) : (a) faisceau laser non focalisé ; faisceau focalisé sur : (b) un domaine unique; (c) deux domaines d'orientations différentes; d) trois domaines d'orientations différentes (figure issue de [ROM]).

Cette désorganisation, confirmée par l'observation au microscope d'une monocouche et d'une opale de 10 couches de billes de SiO_2 fabriquée par Langmuir-Blodgett (cf fig 2.7), ne permet pas d'engendrer des processus de diffraction. De plus, ces clichés montrent également que, même sur une monocouche de billes, le dépôt n'est pas parfait. On observe en

effet la formation d'agrégats localisés se présentant sous la forme d'îlots de billes.

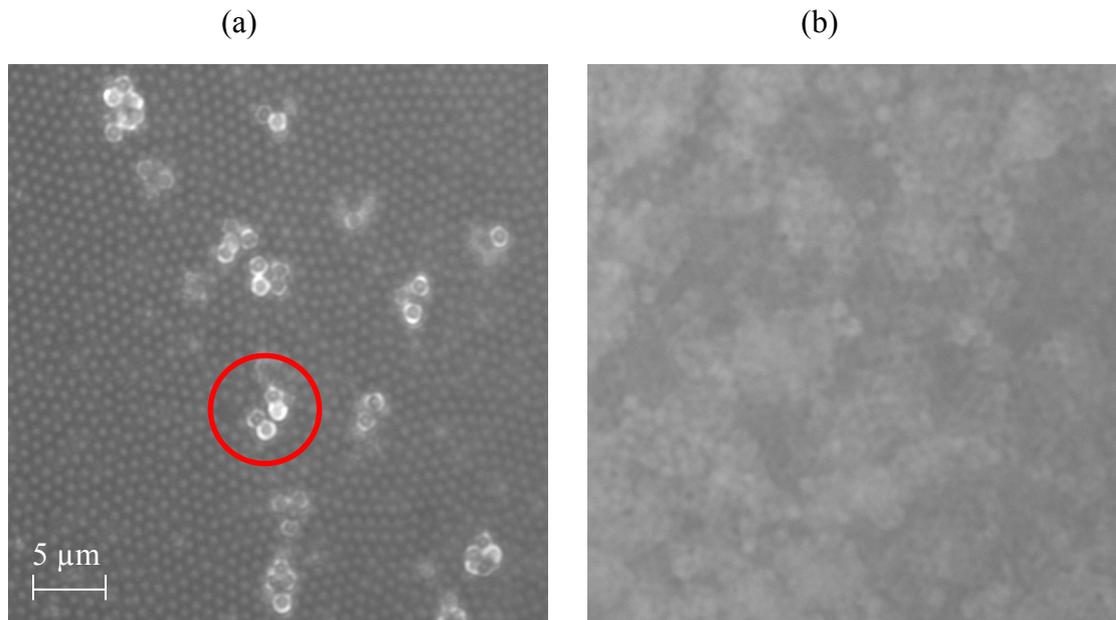


Fig 2.7 Image de l'organisation des billes de SiO_2 ($1 \mu\text{m}$ de diamètre) par microscope confocal : (a) pour une monocouche : observation d'îlots de billes (cercle); (b) pour une opale de 10 couches [images prises par E. Moufarej (LPL et C(PN)², Université Paris 13)]

2.2.2 Mesures de transmission

Pour étudier le taux de transmission et de réflexion à travers les opales, on illumine une région du cristal avec un faisceau laser, et le substrat de l'opale est fixé à une pièce mécanique pouvant effectuer une rotation de 180° (pour une précision de $0,1^\circ$). En plus de l'axe de rotation suivant z , modifiant l'angle, Θ , du faisceau incident, l'opale peut également être tournée sur elle-même (rotation selon un axe perpendiculaire au plan de l'opale, x à la figure 2.8) afin de rechercher une éventuelle orientation du dépôt. Dans le but de tester d'éventuels effets de polarisation, le laser traverse un polariseur avant d'atteindre l'opale. La diffusion des billes étant importante, un diaphragme doit être positionné devant le détecteur. Bien qu'elle ne puisse être totalement ignorée, la détection de diffusion de Mie semble peu

probable au vu de la nature du système expérimental. En effet, ce type de diffusion nécessite la présence de sphères isolées, hypothèse incompatible avec une opale. Pour l'étude en réflexion, un second diaphragme isole le faisceau réfléchi issu de l'opale, afin d'éliminer la réflexion sur la lame de verre.

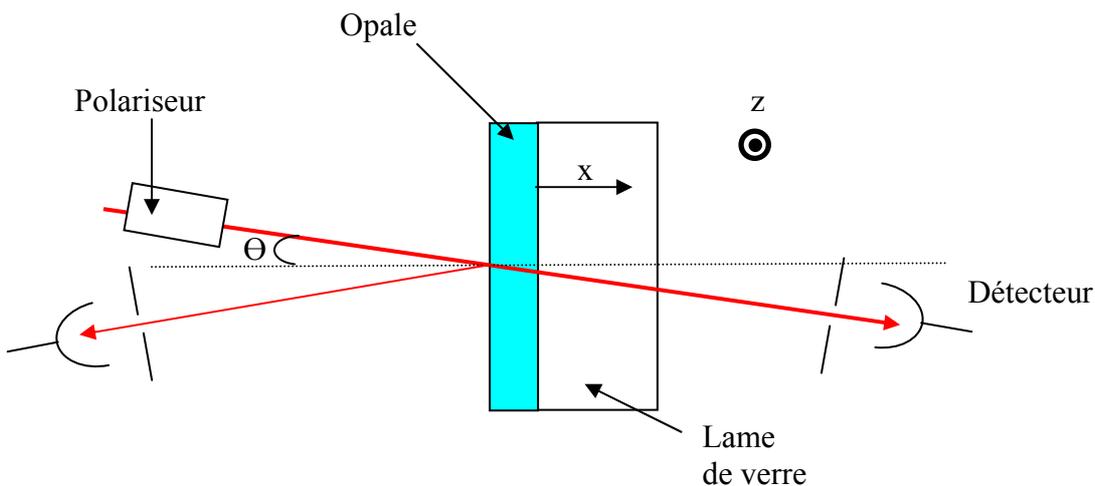


Fig 2.8 Schéma du montage expérience réalisé pour étudier des faisceaux la transmission et la réflexion des opales.

a) Incidence normale

De manière globale, le taux de transmission dépend du rapport λ/D (où D est le diamètre des billes utilisées). Ainsi, si la longueur d'onde du champ incident est très grande en comparaison de la taille des billes, la structure interne de l'opale est négligeable, le matériau peut alors grossièrement être assimilé à du verre avec des lacunes (bulles d'air), engendrant une transmission importante. Au contraire, à la limite où la taille des billes est nettement plus grande que la longueur d'onde, on s'approche de la limite d'optique géométrique d'une ou plusieurs sphères, ce qui se manifeste par une transmission en ligne droite quasi nulle à cause d'une diffusion importante.

De manière prévisible, l'épaisseur de l'opale influe également sur la transmission, un changement de l'épaisseur correspondant à une modification des "pertes" engendrées par diffusion et donc à une variation de la transmission du matériau (cf tabl. 2.9). Il est intéressant de noter que des variations non négligeables ont été constatées sur l'opale de 1 μm (10 couches d'épaisseur) lorsque l'on changeait la région illuminée par le laser. Ces différences s'expliquent par la relative inhomogénéité de la surface de l'opale. Une observation à la loupe binoculaire, plus pratique que le microscope confocal pour étudier des surfaces étendues, a notamment mis en évidence l'existence de défauts (absence de billes), localisés dans la structure, mais pouvant être responsables des fluctuations dans les mesures.

λ (nm) \ D (μm)	633	852	894
0.4	52 %	66 %	50 %
1 10 couches	0	0,15 %	0,33 %
1 20 couches	0	<0,1 %	<0,1 %

Tabl 2.9 *Tableau récapitulatif des expériences de transmission*

b) Incidence non nulle

La figure 2.10.a représente l'évolution de la transmission avec l'incidence du faisceau incident pour des polarisations TE et TM (expérience effectuée à une longueur d'onde de 633 nm sur une opale constituée de billes de 0,4 μm et 10 couches d'épaisseur). On constate que

la transmission décroît de manière monotone avec l'angle d'incidence, devenant quasi nulle au-delà de 60°. De plus, cette figure indique que la transmission ne dépend que très faiblement de la polarisation du champ incident. Par contre, au contraire du cas classique d'une interface plane de verre, la transmission pour une polarisation TM, est plus faible que pour une polarisation TE. Cette différence de comportement trouve certainement son origine dans la différence de propagation des champs qui existe entre ces deux types de structure. Des résultats similaires sont observés pour une longueur d'onde de 780 nm (cf fig 2.10.b), avec une transmission décroissant entre 0° et 60°. Cette transmission à $\lambda = 780$ nm reste supérieure, à toute incidence, à celle mesurée pour $\lambda = 633$ nm, signature de l'effet du rapport λ/D . Notons qu'au cours de ces expériences, la conservation de la polarisation du champ incident a été vérifiée, l'opale n'est donc pas dépolarisante en transmission.

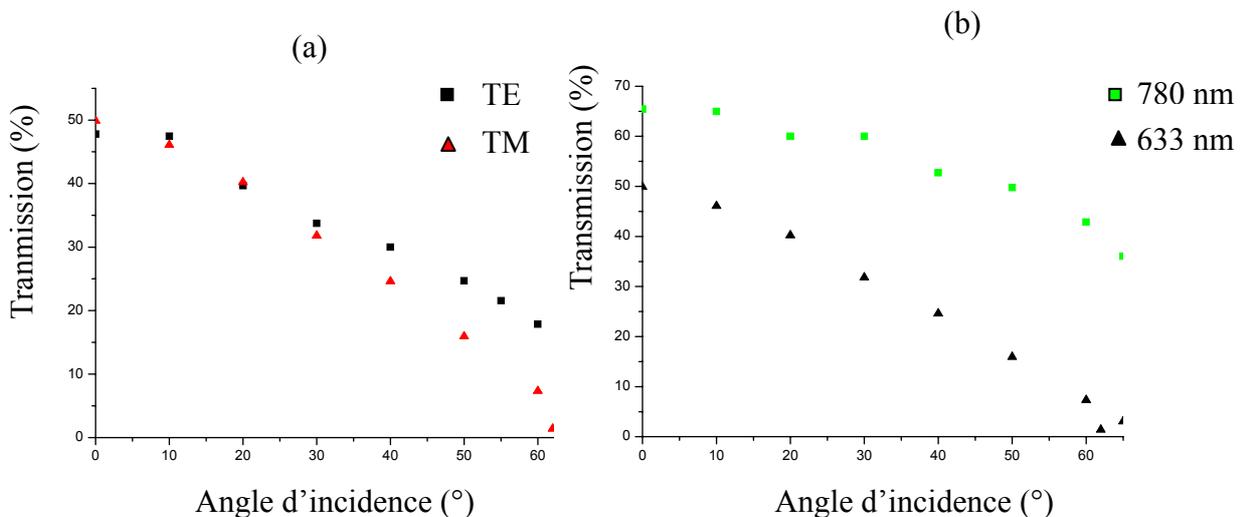


Fig 2.10 Evolution de la transmission avec l'angle d'incidence pour une opale composée de 10 couches de billes de $0,4 \mu\text{m}$: (a) pour $\lambda = 633$ nm polarisé TE et TM ; (b) Comparaison $\lambda = 633$ nm et $\lambda = 780$ nm pour une polarisation TM

2.2.3 Mesures de la réflexion

Pour caractériser les propriétés réfléchives des opales, on utilise le même dispositif expérimental que pour l'étude de la transmission, adapté au cas d'une réflexion.

Contrairement au faisceau transmis, le faisceau réfléchi dépend nettement de la polarisation du champ incident (cf fig 2.11.a). A partir de 20°, pour une polarisation TM, la réflectivité chute progressivement jusqu'à être quasi nulle, de façon analogue au comportement bien connu de l'angle de Brewster sur le verre. En polarisation TE, elle reste constante autour de sa valeur initiale jusqu'à 40°, puis croît avec l'angle. Contrairement à l'étude en transmission, aucune dépendance avec le rapport λ/D ne semble se dessiner (cf fig 2.11.b). Tout comme pour la transmission, la conservation de la polarisation du champ incident a été vérifiée, l'opale n'est donc également pas dépolarisante en réflexion.

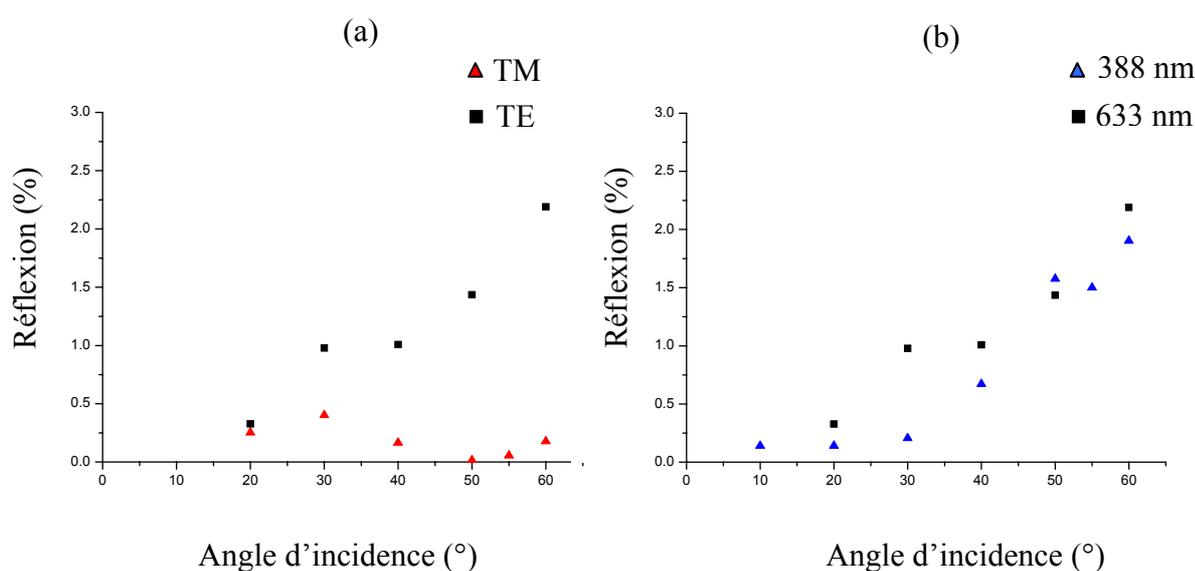


Fig 2.11 Evolution de la réflexion avec l'angle d'incidence pour une opale composée de 10 couches de billes de $0,4 \mu\text{m}$: (a) pour un faisceau à 633 nm polarisé TE et TM ; (b) Comparaison pour des faisceaux à 633 nm et 388 nm (en TE)

Afin de tester l'éventuelle existence de domaines d'orientations différentes dans le cristal (de manière analogue aux observations sur des monocouches), nous comparons les valeurs de réflectivité du milieu si l'on fait tourner l'opale sur elle-même (rotation autour de

l'axe X cf fig 2.9). L'absence totale d'influence de cette action sur les valeurs de réflectivité prouve que la surface ne possède pas d'orientation spécifique sur les dimensions du faisceau laser (<1mm).

L'ensemble des tests précédents a été réalisé pour un faisceau laser traversant les couches de billes, puis la lame de verre supportant l'opale. Dans le cas d'une illumination en sens inverse, c'est-à-dire du substrat puis des billes de silice, les valeurs de réflexion provenant de l'opale sont différentes (cf fig 2.12). Ainsi de 0 à 40° les mesures indiquent une réflectivité variant autour de 4%, soit une valeur voisine de ce qu'on attend pour une interface air-verre classique. De plus, de façon inattendue au regard de leur différence de structure, de fortes interférences sont détectées lorsque les faisceaux issus des deux interfaces ne sont pas parfaitement séparés.

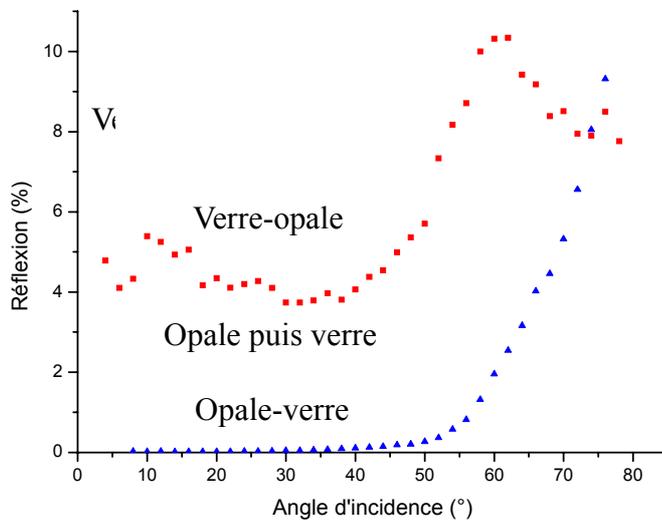


Fig 2.12 Evolution de la réflexion en fonction de l'angle pour une interface air-opale-verre, ou air-verre-opale (conditions expérimentales : $\lambda=894$ nm, opale de 10 couches de billes de 1 μm de diamètre, polarisation TE) [échantillon différent de celui mis en cellule présenté au chap. 5 et 6] (courbe réalisée par E. Moufarej).

Les disparités observées sur les courbes de réflectivité peuvent paraître surprenantes : la différence d'indice entre les deux interfaces devrait en effet favoriser la réflexion sur l'interface air-opale. Afin de mieux comprendre l'action de la lame de verre sur l'indice de

réfraction, on étudie la variation de l'indice effectif de ce système (correspondant à la racine carré de la somme des permittivités du verre et de l'air respectivement pondérés par leur volume relatif), non pas en volume comme il est habituellement usité, mais sur des plans parallèles au substrat (la méthode sera détaillée au chapitre 5.3), à l'intérieur de l'opale. Dans le cas "air-opale", l'indice effectif augmente progressivement, passant de 1 à 1,43 (pour un indice du verre de 1,45) sur l'épaisseur d'une demie bille (cf fig 2.13.a). On comprend aisément que si λ est faible devant cette distance, le contraste d'indice, et par extension la réflexion, le sera également. Ceci tend d'ailleurs à expliquer les différences entre les courbes de réflectivité de la fig 2.11.b. Dans la situation où l'on traverse initialement une lame de verre, on constate une rupture dans la courbe d'indice, correspondant à la région de jonction des billes sur la lame (cf fig 2.13.b). L'indice effectif chute ainsi brutalement de 1,45 (indice du verre) à quasiment l'indice de l'air. On peut alors penser que lorsque λ est suffisamment faible pour distinguer cette discontinuité, la réflexion sur l'interface air-verre-opale est proche de celle sur une lame de verre, expliquant ainsi les résultats précédents.

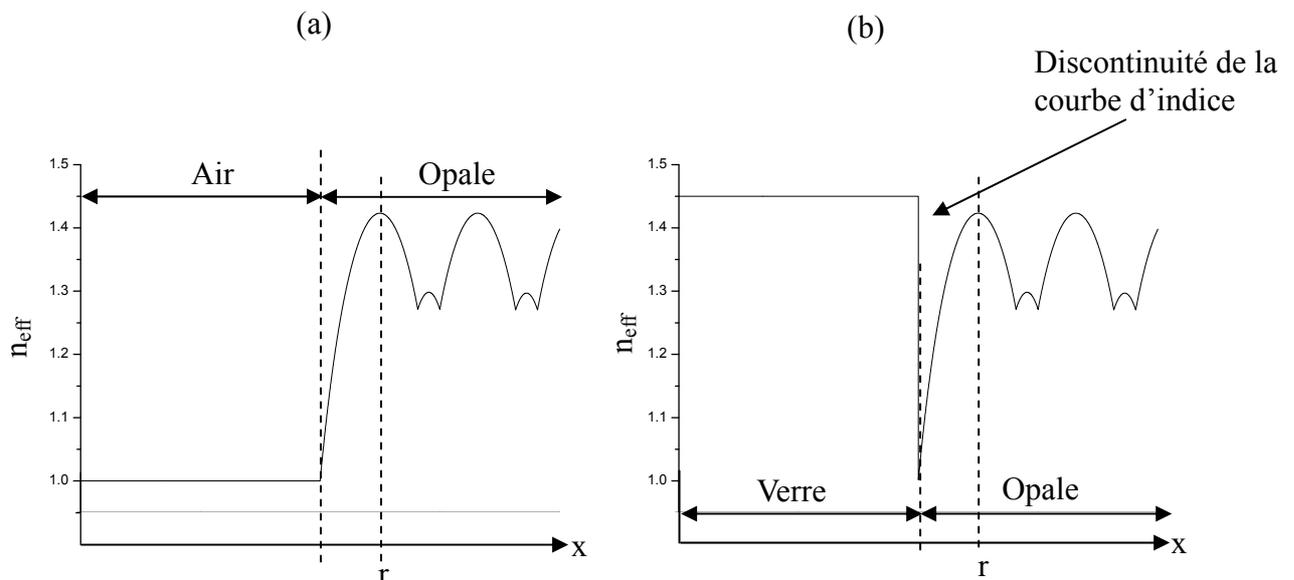


Fig 2.13 Courbe d'indice effectif par plan : (a) pour une interface air-opale ; (b) pour une interface air-verre-opale (l'axe x représente la distance à l'intérieur de l'opale sur l'axe normal au substrat, cf fig 2.8)

Il est important de signaler que, bien qu'instructives, ces mesures ne représentent qu'une

étape préliminaire dans le processus de caractérisation. Des travaux plus complets intégrant une lumière blanche sont en cours de réalisations et devraient permettre de recueillir de plus amples informations sur la structure interne de ces opales. De même, il pourrait être intéressant de confronter nos résultats, notamment les différences de réflectivité suivant le sens de l'illumination, avec les théories relatives aux propriétés optiques des opales [PAV], [GAL].

2.2.4 Conclusion

Comme attendu, l'organisation cristalline d'opales de plusieurs couches fabriquées par Langmuir-Blodgett n'est pas parfaite (absence d'observation de figure de diffraction). Cette relative inorganisation structurelle n'est cependant pas pénalisante dans notre cas, puisque l'on ne cherche pas à étudier les effets photoniques de l'opale (qui demanderaient une organisation parfaite), mais à se servir des interstices du cristal pour confiner les atomes d'une vapeur. Malgré une forte diffusion, les expériences de transmission et de réflexion ont mis en évidence l'existence de faisceaux cohérents (en transmission et en réflexion). L'intensité de ces faisceaux présente ainsi une dépendance avec la polarisation et l'angle d'incidence du champ incident. De plus, l'intensité réfléchie dépend de l'orientation du faisceau qui peut aller dans la direction opale-substrat ou dans la direction substrat-opale. C'est avec ces faisceaux que nous sonderons les propriétés d'une vapeur confinée dans les interstices d'une opale (cf chap 5-6).

Bibliographie :

[DAV] K. E. Davis, W. B. Russel, W. J. Glantschnig, «Settling suspensions of colloidal silica : Observations and x-ray measurements», *Journal of the Chemical Society Faraday Transactions* **87**, 411 (1991)

- [FIN] A. Fink, E. Bohn, W. Stober, «Controlled growth of monodisperse silica spheres in micron size range», *J. Colloid Interface Sci.* **26**, 62 (1968)
- [GAL] J. F. Galisteo-López, C. López, «High-energy optical response of artificial opals», *Phys Rev. B* **70**, 3 (2004)
- [GOO] J. W. Goodwin, R. H. Ottewill, R. Pelton, «Studies on the preparation and characterization of monodisperse polystyrene lattices V : The Preparation of Cationic Lattices», *Colloid Polym. Sci.* **257**, 61 (1979)
- [KAR] I. A. Karpov, N. Samarov, V. M. Masalov, S. I. Bozhko, G. A. Emel'chenko, «The intrinsic structure of spherical particles of opal», *Physics of the Solid State* **47**, 347 (2005)
- [MAS] P. Massé, «Cristaux photoniques colloïdaux d'architecture contrôlée», thèse univ. Bordeaux 1, chap2 (2007)
- [NOR] D. J. Norris, G. Arlinghaus, L. Meng, R. Heiny, L. E. Scriven, «Opaline photonic crystals : how does self assembly work ?», *Advanced Materials* **16**, 16 (2004)
- [NTE] http://nte.enstimac.fr/STP/co/C1_Contentu_02-05.html
- [PAV] E. Pavarini, L. C. Andreani, C. Soci, M. Galli, F. Marabelli, D. Comoretto, «Band structure and optical properties of opal photonic crystals», *Phys. Rev. B* **72**, 4 (2005)
- [REN] R. Rengarajan, D. Mittleman, C. Rich, V. Colvin, «Effect of disorder on the optical properties of colloidal crystals», *Phys. Rev. E* **71**, 016615 (2005)
- [ROM] M. Romanelli, I. Maurin, P. Todorov, P. Chavez de Souza Segundo, C. Chan, D. Bloch, «Un film bidimensionnel de nanosphères pour la spectroscopie atomique», *Coloq* **10**, 63 (2007)
- [TAR] I. I. Tarhan, G. H. Watson, «Photonic band structure of FCC colloidal crystals», *Phys. Rev. Lett.* **76**, 2 (1996)
- [UPS]<http://www.ressources-pedagogiques.ups-tlse.fr/cpm/Webb/Etatdelamatiere/cours1.htm>
- [VLA] Y. A. Vlasov, V. N. Astratov, O. Z. Karimov, A. A. Kaplyanskii, V. N. Bogomolov, A. V. Prokofiev, «Existence of a pseudogap for visible light in synthetic opals», *Phys. Rev. B* **55**, 20 (1997)
- [VOS] W. L. Vos, R. Sprik, «Strong effects of photonic band structures on the diffraction of a colloidal crystals», *Phys. Rev B* **53**, 24 (1996)
- [WOO] L. V. Woodcock, «Entropy difference between the face-centered-cubic and the hexagonal close-packed crystal structures», *Nature* **385**, 141 (1997)
- [YAB] E. Yablonovitch, «Inhibited spontaneous emission in solid-state physics and electronics», *Phys. Rev. Lett.* **58**, 20 (1987)

Chapitre 3

Mise en contact d'une opale et d'une vapeur de césium

Pour utiliser les interstices d'une opale comme milieu confinant, il a fallu développer les techniques appropriées pour infiltrer une vapeur atomique dans une opale. Dans ce chapitre nous détaillons les phases de construction et de test de deux types de cellules : l'une contenant une opale épaisse obtenue par sédimentation, l'autre contenant une opale de quelques couches réalisées par la méthode Langmuir-Blodgett, déposée sur l'une des fenêtres de la cellule. Divers problèmes ont été rencontrés au cours de ces expériences, dont la formation d'agrégats dans les interstices des opales.

3.1 Caractéristiques communes aux cellules

3.1.1 Choix de la vapeur atomique : le césium

a) Le césium

L'équipe a choisi d'utiliser de la vapeur de césium pour infiltrer les interstices des opales. Le césium a été précédemment employé par le groupe dans l'étude des interactions de van der Waals de surface [FAI], et dans la recherche d'effets de confinement de vapeur en cellule mince [DUT]. Métal alcalin, il possède l'avantage de présenter une pression de vapeur, et donc une densité, intéressante même pour la spectroscopie à température ambiante ($1,3 \cdot 10^{-6}$ Torr à 25°C).

Dans une cellule ordinaire (macroscopique), cette pression de vapeur saturante, P (en Torr), évolue en fonction de la température du réservoir de césium, T (en kelvin), suivant [STE] :

$$\log_{10} P = 8,221 - 0,000601T - \frac{4006,048}{T} - 0,196 \log_{10} T \quad (3.1)$$

Dans l'hypothèse d'un gaz parfait, cette pression est directement reliée à la densité atomique N :

$$N = \frac{P}{RT} \quad (3.2)$$

avec N donnée en mol.L⁻¹, P en Torr, T en Kelvin et R en L.Torr.K⁻¹.mol⁻¹.

En cellule, des inhomogénéités contrôlées de température sont nécessaires pour éviter une condensation sur les fenêtres, et la densité atomique est donc régulée par la température du point froid. Cette densité (cf fig 3.1) augmente d'un ordre de grandeur environ tous les 25°-30° (vers 100°C), ce qui assure, pour les expériences de spectroscopie envisagées, des densités suffisamment importantes pour obtenir un signal sur bruit acceptable pour des températures relativement peu élevées. Ainsi, pour nos expériences, avec une température typique de 90°C au queusot, une cellule de césium présente une densité d'environ 1.10¹³ atomes .cm⁻³.

Se présentant sous forme liquide au-dessus de ~28°C, le césium est explosif au contact de l'eau. Cependant, mis en cellule scellée, il ne nécessite plus de précaution particulière d'emploi. Les cellules scellées pouvant avoir une durée de vie de plusieurs années, un inconvénient majeur de ces systèmes est la formation éventuelle d'un dépôt d'atomes de césium sur les fenêtres des cellules. Cette condensation peut en effet modifier les propriétés optiques des fenêtres (réflexion, transmission) et perturber fortement les expériences. Pour limiter ce processus, il faut s'assurer de maintenir le point froid de la cellule (lieu de la condensation) éloigné des fenêtres. Dans le cas d'un dépôt avéré, il suffit le plus souvent de procéder à un chauffage des fenêtres pour les nettoyer.

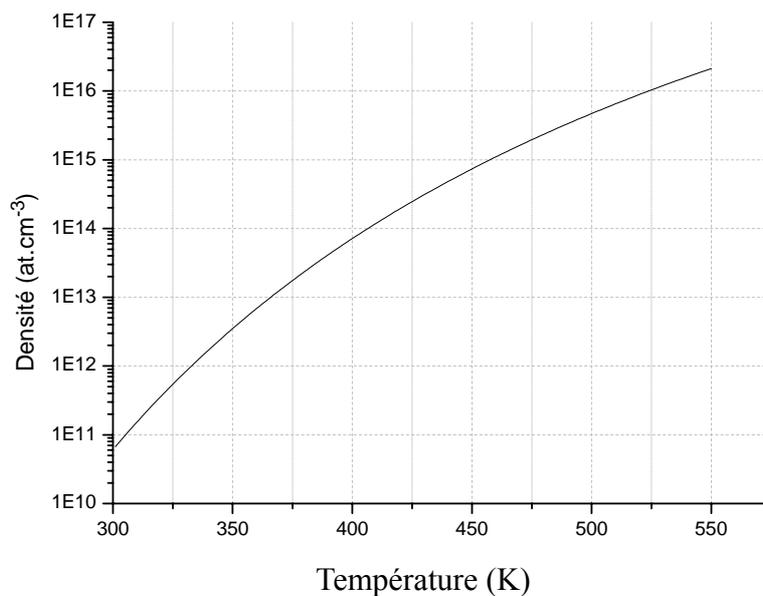


Fig 3.1 *Evolution de la densité atomique du césium avec la température*

b) Niveaux atomiques du césium

Spectroscopiquement, le césium peut être sondé à des longueurs d'onde très différentes (raie de résonance depuis le fondamental dans l'infra-rouge, autres raies de résonance dans le bleu, l'ultraviolet..). Le rapport entre la longueur d'onde optique et la taille des interstices étant essentiel (cf chap 1), le césium offre potentiellement une flexibilité non négligeable pour des expériences futures. Les forces d'oscillateur des transitions du doublet de résonance $6S_{1/2}$ - $6P_{1/2}$ (0,344) et $6S_{1/2}$ - $6P_{3/2}$ (0,715), (respectivement raie D_1 et D_2 du césium) en font les transitions idéales pour débiter une exploration spectroscopique. La figure 3.2 montre la structure hyperfine des niveaux impliqués dans les transitions D_1 et D_2 du césium. Le niveau fondamental $6S_{1/2}$ est composé de deux sous-niveaux ($F=3$ et $F=4$) séparés de 9,19 GHz (transition de l'horloge à césium). Les niveaux excités $6P_{1/2}$ et $6P_{3/2}$, sont accessibles via les longueurs d'onde de 894 et 852 nm, et comprennent respectivement deux et quatre sous-niveaux hyperfins.

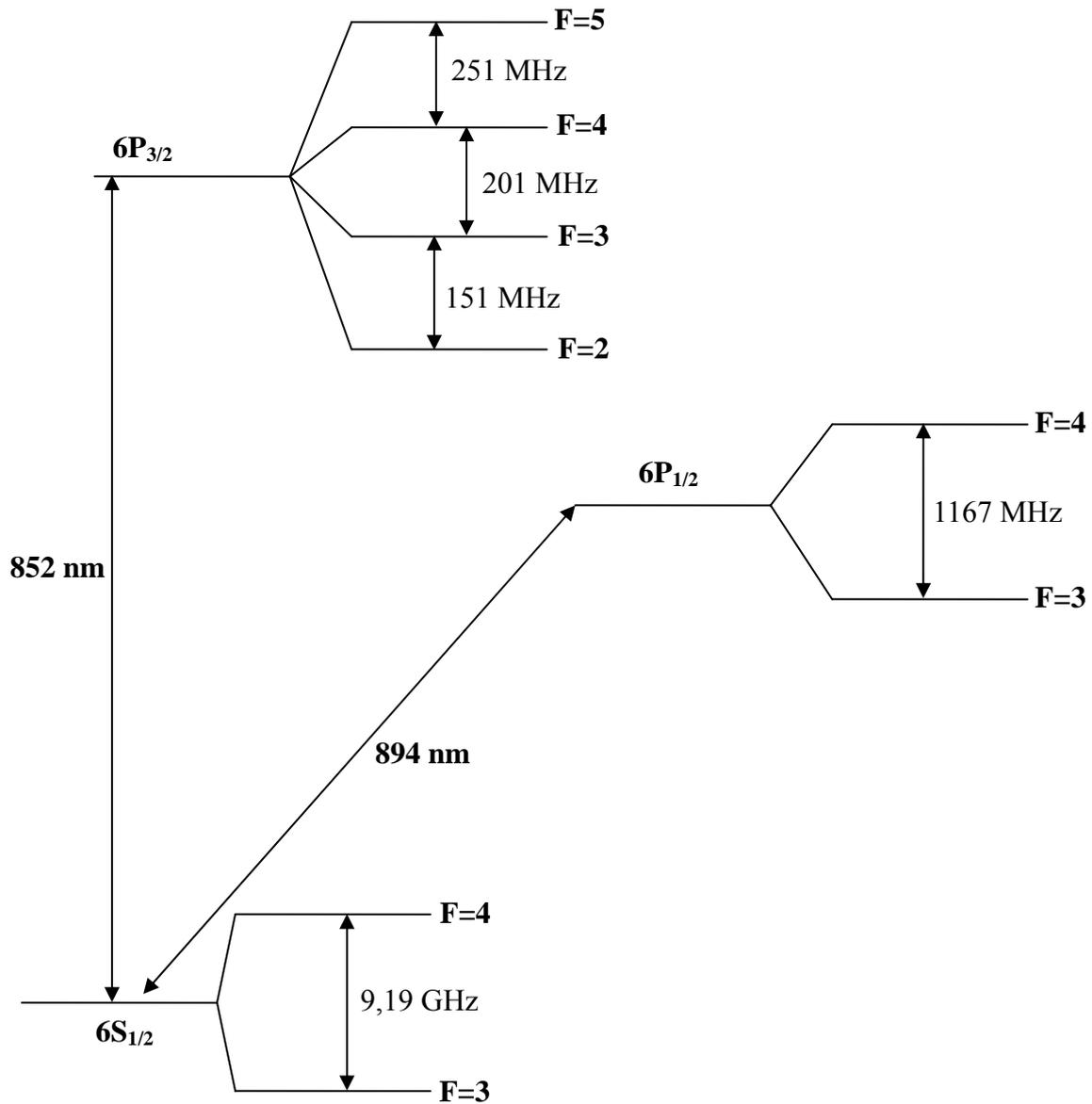


Fig 3.2 Représentation des niveaux hyperfins impliqués dans les transitions D_1 et D_2 du césium

3.1.2 Choix des matériaux

Le choix d'adopter le césium comme vapeur atomique impose des contraintes sur la construction de notre système, et plus particulièrement sur le type d'opale à utiliser. Les opales devront ainsi être composées de billes fabriquées dans un matériau transparent pour les longueurs

d'onde correspondant aux résonances du césium en vue de futures études spectroscopiques. Afin de garantir l'intégrité et la durée de vie des opales, le matériau choisi ne doit pas avoir de réactivité chimique avec le césium. Les matériaux susceptibles de former des nanosphères suffisamment monodisperses pour s'auto-organiser en opales (cf chap. 2) étant peu nombreux, et les alcalins étant incompatibles avec les matériaux organiques, tels notamment que les billes de latex organisées en opale, l'équipe a utilisé des opales composées de billes fabriquées en silice. En effet la silice est absorbante uniquement dans l'ultra violet et l'infra rouge lointain, et n'est que très faiblement réactive avec le césium en dessous d'un certain seuil de température (180°-200°C). Au-delà, le césium tend à réagir avec la silice [JAH], transformant ainsi sa nature chimique (et certainement dans notre cas, les propriétés optiques des opales).

Les corps de cellules sont en verre borosilicate. Ce type de verre supporte en effet les gradients de température inévitables à la construction des cellules et a l'avantage d'être plus facile à travailler que le verre de silice (point de ramollissement < 850°C pour le verre borosilicate contre 1750°C pour le verre de silice [INF]).

3.2 Opale par sédimentation et césium

Suite à différents contacts avec A. Maître (INSP Paris 6), l'équipe a pu acquérir un morceau d'opale en provenance de Russie fabriquée par sédimentation. Composée de billes de 200 nm et mesurant 0,5 cm de largeur et 0,8 cm de longueur pour une épaisseur d'environ 2 mm, cette tranche d'opale a été obtenue par sciage d'un "caillou" d'opale (à l'aide d'un fil de diamant).

3.2.1 Description du système

En vue de sonder les atomes piégés dans les interstices, le signal optique recherché ne doit

pas être perturbé ou dominé par les régions où les atomes seraient libres. Pour cela, l'opale est insérée entre deux fenêtres de tailles différentes, chacune prolongée par un cylindre de verre. Ces cylindres concentriques sont ensuite soudés l'un à l'autre, scellant l'ensemble. L'objectif étant de coincer mécaniquement l'opale afin qu'elle ne puisse pas se déplacer, la tranche d'opale et les fenêtres ont été préalablement polies pour maximiser leur contacts. Le cylindre extérieur est quant à lui percé en un point, où est opérée une jonction avec un tube faisant office de queusot (Fig 3.3).

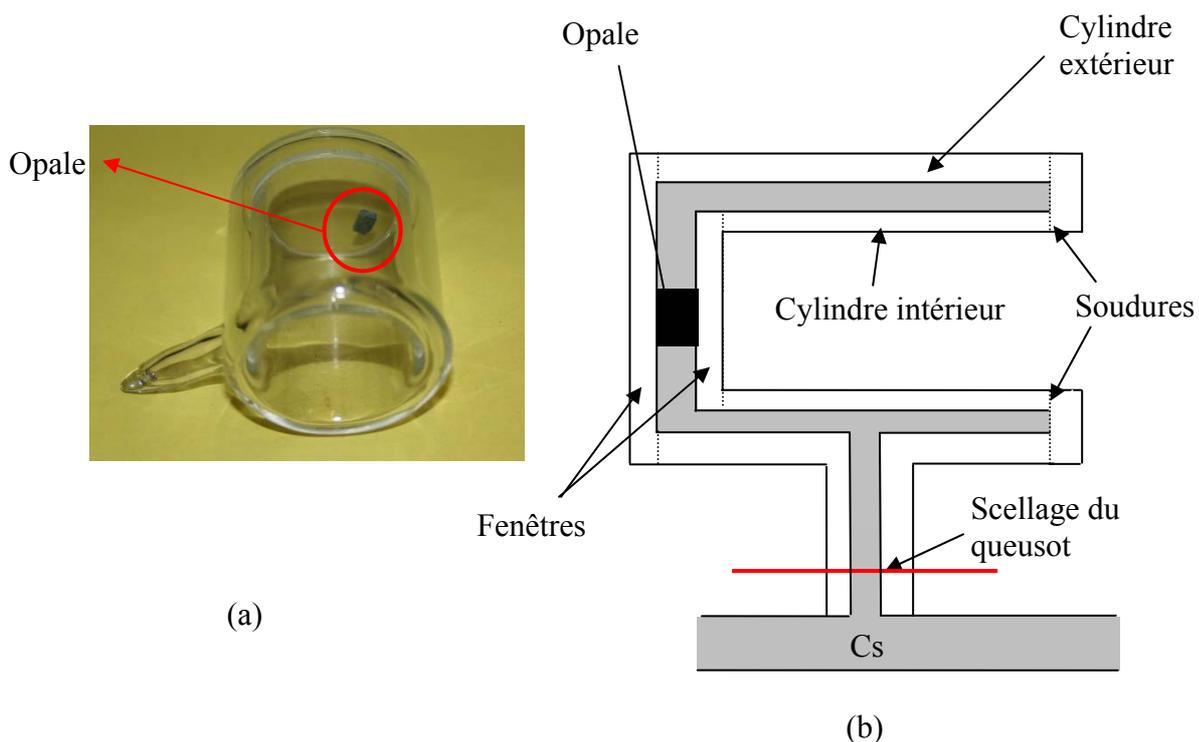


Fig 3.3 (a) *photographie de la cellule*, (b) *schéma de la cellule fabriquée avec une opale par sédimentation*

Afin d'éliminer la présence d'éventuelles impuretés, le système subit dans un premier temps un dégazage par un chauffage de plusieurs heures avec une mise sous vide de quelques jours. Le césium est ensuite introduit via le queusot, lequel est finalement scellé, rendant la cellule hermétique. Toute la partie construction et remplissage a été réalisée par F. Thibout (LKB Paris 6), celle du polissage des fenêtres ainsi que de la tranche d'opale a quant à elle été effectuée par T. Billeton (LPL, université Paris 13).

3.2.2 Formation d'agrégats

Initialement blanche (couleur liée à la diffusion de la lumière par la structure), l'opale a été retrouvée, contre toute attente, totalement noire quelques heures après la phase de remplissage par le césium alors qu'aucun signe précurseur de cette transformation n'était apparu jusqu'alors (fig 3.4).



Fig 3.4 Photographie de l'opale sans chauffage en présence de césium

Diverses hypothèses peuvent être émises sur cette “transformation”. La coloration pourrait provenir d'un dépôt de césium sur les couches extérieures de l'opale, voire sur l'ensemble des billes. En effet lors de la phase de remplissage, et même du scellement, le queusot est chaud. Le point froid du système à cet instant pourrait être l'opale, provoquant la migration du césium vers celle-ci. Même si l'absence de dépôt sur la fenêtre de la cellule laisse penser que le verre n'a pas été endommagé aux températures atteintes, le risque d'une réaction “césium billes” est également à envisager. En effet, les billes en verre de silice sont en fait un assemblage de petites sphères (cf chap. 2), et cette structure particulière peut avoir favorisé une interaction chimique irréversible avec le césium. Nous ne pouvons également pas exclure que des atomes de césium se soient déposés sur

les billes microscopiques, changeant ainsi leur nature optique.

a) Système de chauffage

Comme les dépôts sont souvent réversibles, un système de chauffage est mis en place dans le but d'éclaircir l'opale. Ce système (fig 3.5) est constitué d'un fil chauffant placé à l'intérieur d'un cylindre métallique (diamètre 7 cm). Celui-ci présente une encoche de 8 cm de long. Cette encoche permet de limiter la montée en température pour le queusot, ainsi gardé à l'extérieur. Le fil chauffant est de plus enroulé en spirale afin de concentrer le chauffage sur la zone de l'opale. Enfin des thermocouples sont placés en différents points afin de contrôler la température de la cellule et de l'intérieur du four. Ces précautions nous permettent de nous assurer que l'opale est le point chaud du système, ce qui devrait favoriser l'évaporation du césium s'il s'est déposé dans cette région.

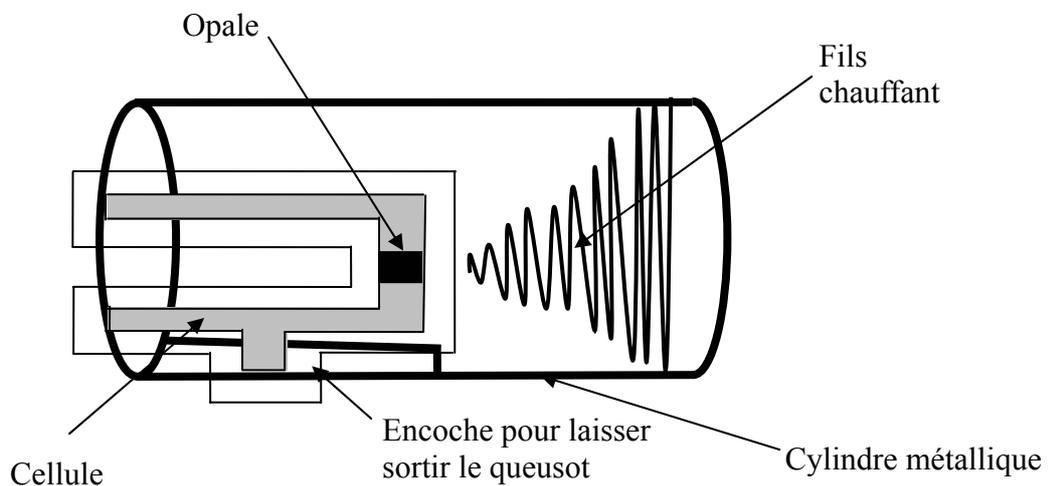


fig 3.5 Schéma du four utilisé pour chasser le Cs

b) Résultats

Dès les premières minutes, un léger halo autour de l'opale, analogue à une métallisation de la fenêtre, se forme, signe de la recondensation sur la fenêtre du césium interne à l'opale qui vient de se vaporiser. Progressivement, l'opale change de couleur sous l'effet du chauffage, révélant la présence de pigmentations bleues et vertes. Cependant, un palier de décoloration apparaît après plusieurs heures au-delà duquel le chauffage ne semble plus avoir d'effet. Devant la stagnation du processus on élève la température (de $T \sim 100^\circ\text{C}$ à $T > 150^\circ\text{C}$), tout en restant en-dessous des températures pouvant entraîner une dégradation irréversible des fenêtres ($T < 200^\circ\text{C}$). La même dynamique semble alors se produire, c'est à dire éclaircissement de l'opale puis stagnation de l'état. L'opale retrouve cependant, à des endroits très localisés, une couleur blanche (fig 3.6). Après arrêt du chauffage, la dynamique s'inverse, l'opale se recoloré progressivement (fig 3.7) et redevient noire.



Fig 3.6 *Décoloration limite de l'opale*

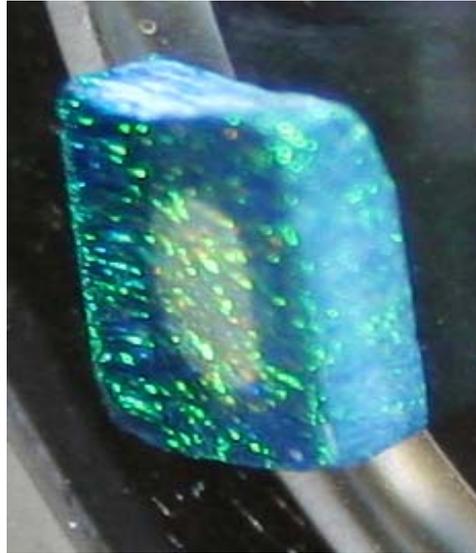


Fig 3.7 Photographie de l'opale quelques heures après l'arrêt du chauffage

Ces différentes expériences laissent penser que des agrégats de césium se sont formés à l'intérieur de l'opale, voire dans la structure interne des billes de silice. Les différentes colorations seraient alors la signature d'agrégats de tailles diverses. La corrélation entre la (dé)coloration de l'opale et le chauffage, ou son arrêt, prouve que ce processus est réversible. Il semblerait donc que le très faible libre parcours atomique moyen, à l'intérieur de l'opale, ait fait de l'opale un piège à césium duquel les atomes ne peuvent plus sortir, favorisant ainsi la formation d'agrégats. Parallèlement, à froid, lorsqu'il y a beaucoup d'agrégats le libre parcours des photons devient lui-même très faible, si bien que la lumière est totalement absorbée avant même de pouvoir sortir de l'opale, ce qui pourrait expliquer la couleur noire de l'opale au lieu d'une apparence métallisée caractéristique d'un dépôt de césium.

c) Inhomogénéité de la température dans le four

Devant la décoloration partielle de l'opale, nous nous interrogeons sur l'homogénéité du chauffage appliqué. Des mesures de températures aux points cardinaux de chaque fenêtre de la cellule mettent en évidence des gradients à tous les niveaux. Ainsi, sur une même face, la

température peut varier de 30°C suivant les régions mesurées, et l'opale n'est en fait pas le point le plus chaud de la fenêtre. Il existe également un gradient entre la face interne et externe de la cellule. Ces gradients ne favorisent pas globalement l'expulsion du césium de l'opale, mais plutôt des migrations internes dans l'opale (vaporisation en un point de l'opale, et repiégeage plus loin). Afin d'améliorer l'homogénéité thermique du système, la conception du four est modifiée. La cellule est introduite complètement dans le cylindre métallique et nous utilisons alors deux fils chauffants, l'un pour la face externe de la cellule, l'autre, introduit dans le tube intérieur, pour la fenêtre interne. L'ensemble est recouvert de papier aluminium afin d'éviter les déperditions et de limiter les mouvements de convection à l'intérieur du four. Après ces réajustements, le gradient de température mesuré est de $\sim 10^\circ\text{C}$, et le point le plus chaud est à présent situé au niveau de l'opale (fig 3.8).

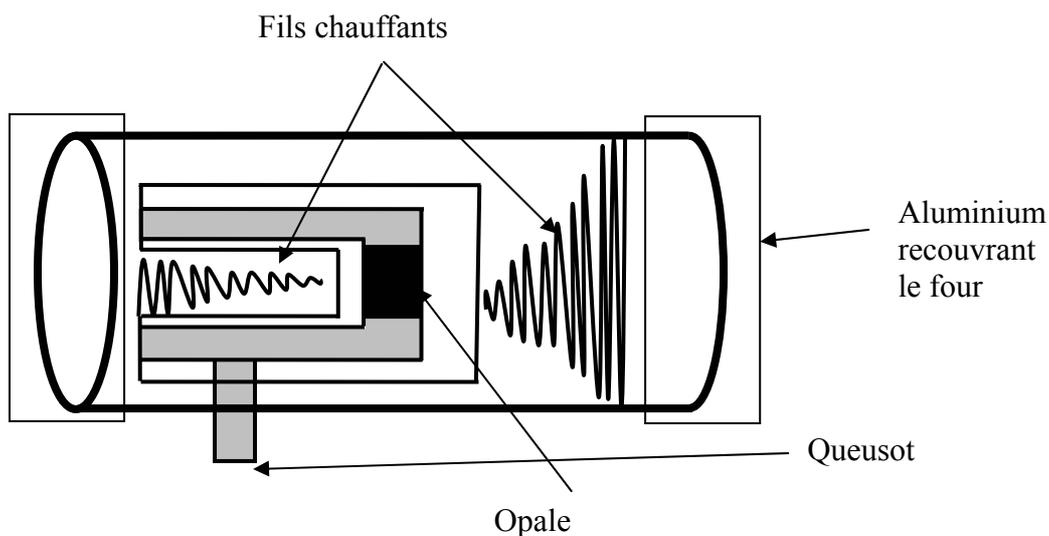


Fig 3.8 Schéma du four plus homogène en température

Ces modifications du chauffage sont sans effet sur l'opale. Ceci prouve que la décoloration inhomogène observée n'est pas induite par une inhomogénéité du chauffage, mais est intrinsèque au système. Le faible libre parcours moyen ne permet apparemment pas la désorption des atomes situés au centre l'opale (ceux qui ont la plus grande distance à parcourir).

d) Chauffage à une température supérieure à la limite typique de dégradation du verre avec le césium

Les agrégats n'ayant pu être complètement éliminés et la cellule étant donc difficilement utilisable pour des expériences, nous décidons de nous affranchir de la limitation de température à 200°C, quitte à risquer des dégradations irréversibles de la cellule. Afin de minimiser la densité de césium pouvant attaquer la fenêtre, le tube du queusot est plongé dans de la glace. Après plusieurs heures, au cours desquelles la température des fenêtres atteint 300°C, la cellule présente toujours des pigmentations colorées, caractéristiques de la présence d'agrégats (la température de césium au niveau de la surface libre de Cs reste < 30°C).

3.2.3 Tests spectroscopiques

Devant notre incapacité à éliminer totalement les agrégats de l'opale, celle-ci est illuminée avec un laser He-Ne afin de déterminer ses propriétés optiques lorsque elle a atteint sa décoloration maximale. Antérieurement à la mise en cellule, l'équipe avait testé l'opale et détecté une réflexion proche de 4%. Après le remplissage, cette réflexion spéculaire a disparu. Paradoxalement cette perte de réflexion pourrait être la preuve de la réussite de la fabrication de la cellule. En effet, ce phénomène semble indiquer qu'un contact optique s'est établi entre l'opale et la fenêtre de verre, empêchant alors la génération d'un signal de réflexion, ce qui induit qu'il n'existe pas d'espace libre entre l'opale et les fenêtres de verre. De plus, l'opale diffuse fortement et présente une transmission nulle, et aucun signal de diffraction n'est observé. Seul la diffusion du laser par l'opale semble donc utilisable spectroscopiquement.

Dans un premier temps nous devons nous assurer qu'il existe toujours du césium sous forme de vapeur dans la cellule. En effet, l'opale semble agir comme une pompe à césium, piégeant les

atomes arrivant à son contact en formant des agrégats, et il se pourrait que l'ensemble du césium ait subi cette transformation chimique. Une région sans opale de la cellule est illuminée avec un laser résonnant avec la vapeur de Cs ($\lambda=852$ nm). Le spectre obtenu, en balayant la fréquence du laser autour de la résonance du Cs, est caractéristique d'une absorption linéaire classique, présentant un élargissement Doppler. Malgré la présence d'agrégats, du césium sous forme de vapeur existe donc toujours dans la cellule, et peut-être également dans l'opale.

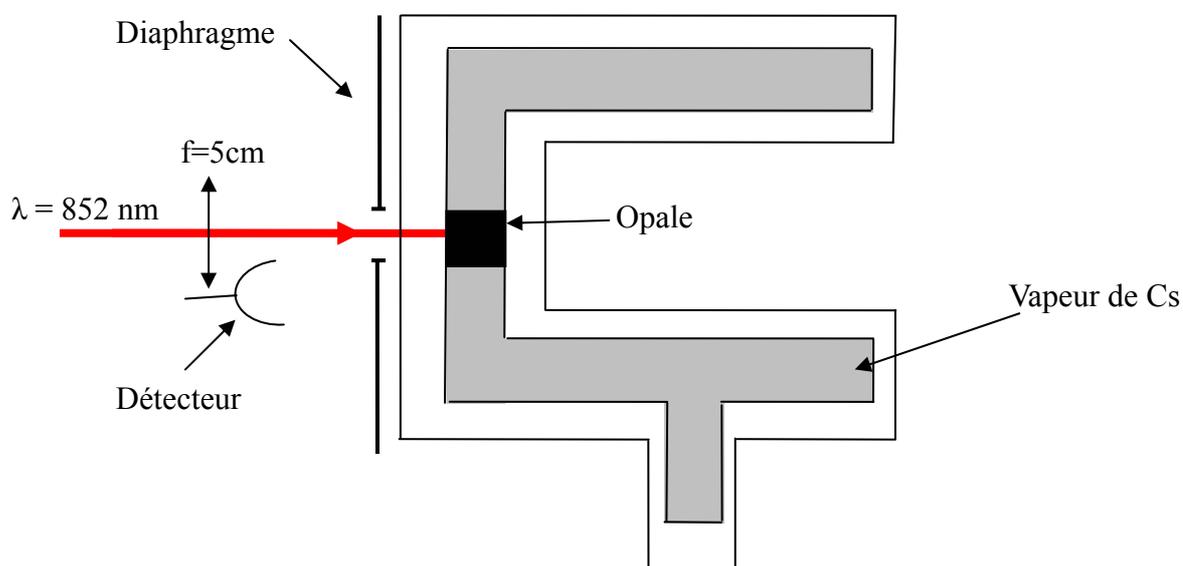


Fig 3.9 Schéma de l'expérience de diffusion

Nous nous intéressons ensuite au signal diffusé par l'opale. Le laser présente une incidence quasi-normale et est focalisé (lentille de 5cm de focale) pour n'illuminer que l'opale. Un diaphragme de grand diamètre extérieur est placé devant la fenêtre de la cellule afin de ne détecter que les photons diffusés par les billes de verre et ainsi éviter la réponse des atomes libres de césium dans le reste de la cellule (fig 3.9). Le signal spectroscopique observé, analogue à une absorption linéaire, n'est pas sensible à la direction de détection. En effet, de petits déplacements du détecteur ne modifie que modérément le signal, assurant que nous observons effectivement un signal diffusé

et non pas une réflexion spéculaire. Ce signal de diffusion augmente avec l'ouverture du diaphragme. En fait, si le diaphragme est presque fermé, le signal chute drastiquement, bien plus qu'une simple diminution proportionnelle à la réduction de la taille de l'ouverture. Malgré les précautions pour ne voir que la région de l'opale (dont la taille reste assez petite, y compris par rapport à l'épaisseur de la cellule et par rapport à la distance au diaphragme), nous pensons donc en fait, que nous observons la fluorescence d'atomes libres à l'intérieur de la cellule, eux-mêmes illuminés par les photons diffusés par l'opale, et non des atomes confinés dans les interstices des billes (éventuellement, la réponse optique des atomes de la vapeur externe pourrait elle-même être rediffusée par l'opale). De plus, il n'est pas exclu que nous détectons également la réponse des atomes situés entre la fenêtre de verre et l'opale. En effet, il s'avère que l'opale n'est pas parfaitement immobilisée à l'intérieur de la cellule, puisque après quelques semaines (correspondant à de nombreux cycles de chauffage et de refroidissement), on parvient à déplacer mécaniquement l'opale dans différentes régions comprises entre les deux fenêtres. L'absence de réflexion, même après avoir constaté la mobilité de l'opale, réfute notre interprétation de l'origine de la disparition du signal de réflexion après la phase de remplissage. Il semblerait donc que la disparition de la réflexion, initialement attribuée à la formation d'un contact optique entre l'opale et la fenêtre de verre, soit en fait liée au remplissage et certainement à la formation des agrégats.

3.3 Opale mince obtenue par déposition Langmuir-Blodgett et vapeur de césium

Initialement, ces cellules, à l'intérieur desquelles est déposée une opale de faible épaisseur, ont été fabriquées dans le but d'étudier le comportement d'une opale infiltrée par le césium, et notamment de déterminer si les paramètres de taille de l'opale permettraient de s'affranchir de la formation d'agrégats. L'emploi d'opales fabriquées par la méthode Langmuir-Blodgett (cf chap. 2)

est également un premier pas vers une cellule utilisable en transmission (cf chap 1). Ces opales ont été réalisées, et déposées sur des fenêtres optiques par l'équipe de S. Ravaine (CRPP Bordeaux).

3.3.1 Description du système :

a) Opale Langmuir-Blodgett

Les opales de type Langmuir-Blodgett sont très différentes de celles fabriquées par sédimentation. En effet, elles sont déposées couche par couche, pour un nombre de couches limité et bien contrôlé (cf chap. 2), sur des lames de verre. Nous disposons de trois opales de diverses dimensions : une composée de billes de $0,4 \mu\text{m}$ de diamètre et de 10 couches d'épaisseur, et deux opales réalisées avec des billes de $1 \mu\text{m}$, de 10 et 20 couches. Celles-ci ne diffèrent que par leur épaisseur, elles proviennent en effet d'une même fabrication de billes, impliquant une dispersion identique.

Le diamètre des billes a l'avantage d'être en adéquation avec notre objectif de confinement proche de $\lambda/2$ (pour les billes de $1 \mu\text{m}$ de diamètre) pour une utilisation avec le proche infra rouge (894 et 852 nm cf chap 2). De plus, par rapport aux problèmes rencontrés pour la cellule contenant l'opale fabriquée par sédimentation, il est probable que l'augmentation du diamètre des billes, ainsi que la forte réduction du nombre de couches, réduisent la capacité de piégeage de l'opale, limitant ainsi la formation d'agrégats.

b) Préparation des opales avant la mise en cellule

Avec le dispositif Langmuir-Blodgett utilisé à Bordeaux, les deux faces de la fenêtre de verre sont initialement recouvertes de billes sur pratiquement toute la surface de la fenêtre (cf chp 2).

Les liaisons entre sphères, et celles entre l'opale et la fenêtre, étant extrêmement fragiles

(réduites à la seule attraction par les forces de van der Waals), les billes s'enlèvent très facilement avec le passage d'un chiffon imbibé d'éthanol, suivi éventuellement d'une finition en grattant avec une lame de rasoir. Ceci permet une mise en forme adaptée à la mise en cellule et aux expériences souhaitées (fig 3.10).

On retire d'abord toutes les billes de l'une des deux faces. De plus, pour que la soudure au chalumeau avec le corps de cellule n'endommage pas (risque de fusion) l'ensemble de l'opale, on nettoie une couronne extérieure de la fenêtre sur une largeur d'environ 1cm. Enfin, une moitié d'opale est retirée à tous nos échantillons pour bénéficier sur chaque cellule d'une région, avec et sans opale, aux fins éventuelles de comparaison.

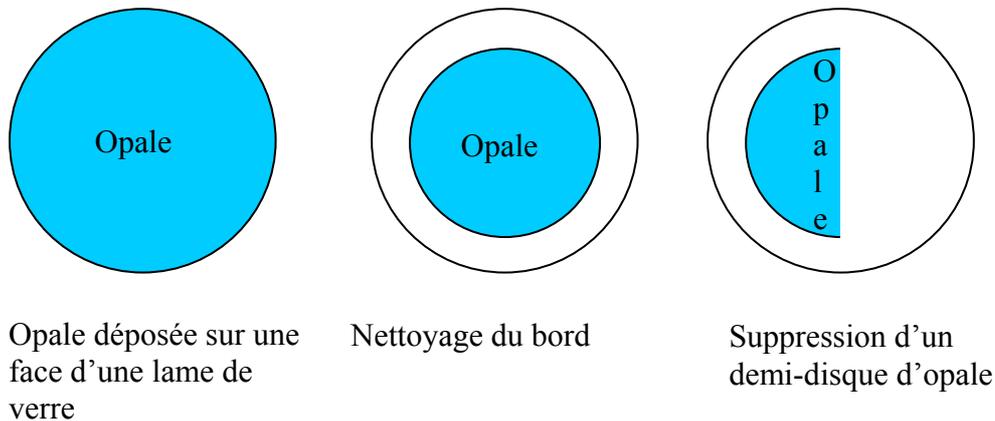


Fig 3.10 *Etapas de la préparation d'une opale en vue de la mise en cellule*

Une fois l'opale préparée dans sa forme finale, elle subit une étape de "frittage", composé d'un recuit à 500°C pendant 3-4 heures. Cette opération, consistant en une quasi-fusion en surface de chaque bille, permet de renforcer la cohésion entre les billes. Cette opération est notamment recommandée pour éviter d'endommager l'opale lors du chauffage provoqué par la soudure au corps de cellule. L'inconvénient de cette technique est que la légère fusion des billes est susceptible de modifier la structure de l'opale [ROM].

c) Fabrication de la cellule

La cellule est cette fois obtenue classiquement en soudant la fenêtre portant l'opale à un corps de verre borosilicate. Comme pour la cellule précédente, une phase de dégazage et de mise sous vide est appliquée avant le remplissage en césium et le scellement du queusot. Celui-ci a été allongé (il mesure 4 cm) pour faciliter la mise en place d'un système chauffant. Ce queusot présente une forme volontairement coudée, et son volume intérieur possède des rétrécissements localisés afin de ralentir la propagation du césium dans la cellule, et de limiter le phénomène de formation d'agrégats, notamment lors du scellement (fig 3.11). De plus au moment du scellement, le queusot est positionné à proximité d'azote liquide afin de créer un point froid dans la cellule et éviter une "pollution" immédiate de l'opale avant même d'effectuer des tests. Après scellement, la cellule est initialement conservée dans un réfrigérateur.

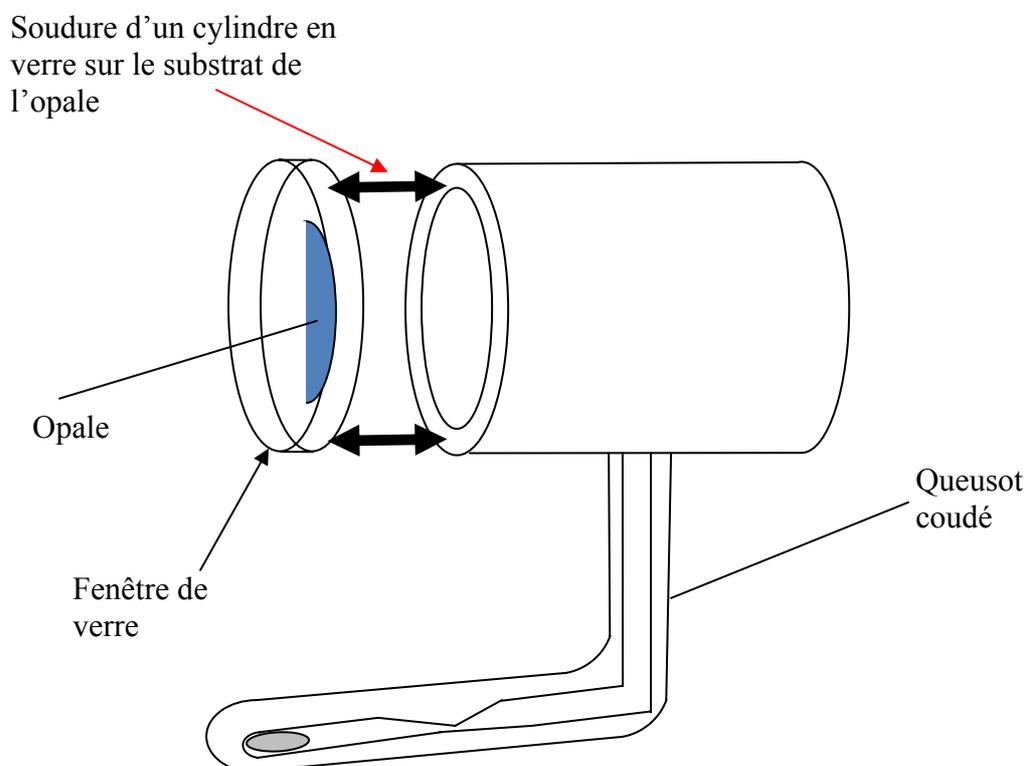


Fig 3.11 Etape de fabrication de la cellule

3.3.2 Obtention d'un régime contrôlant la formation des agrégats

Malgré toutes les précautions prises pour la fabrication et la conservation à basse température de la cellule, les opales se sont colorées après quelques jours. Elles ne sont plus noires comme dans le cas précédent mais violettes, pour les cellules composées de billes de $1\mu\text{m}$, et vert très foncé avec des reflets métallisés pour celle de 400 nm . Malgré un diamètre de billes significativement augmenté, des agrégats se sont à nouveau formés. Pour limiter cette formation d'agrégats, nous mettons donc en place un système de chauffage, analogue à celui utilisé précédemment pour l'opale épaisse.

Au bout d'une vingtaine de minutes de chauffage à 100°C , les opales composées de billes de $1\mu\text{m}$ sont revenues à leur aspect originel (laiteux), c'est-à-dire avant la mise en contact avec le césium. Rapidement ($\sim 1\text{h}$) après l'arrêt du chauffage, les opales se recolorent progressivement jusqu'à retrouver leur état initial.

Le cas de l'opale faite de billes de 400 nm de diamètre est plus complexe. Pour les mêmes conditions de température, une certaine décoloration est visible mais la présence d'agrégats est encore évidente. Au bout d'une journée complète de chauffage, la décoloration stagne et semble atteindre un palier non franchissable bien que l'on ait augmenté la température à 180°C . Augmenter une nouvelle fois la température est une solution envisageable pour blanchir complètement l'opale, mais cela nous rapprocherait de la limite à laquelle les attaques chimiques "Cs-SiO₂" sont possibles.

Comme cette cellule permet d'ores et déjà des études optiques, il est prudent ici de rester dans la limite standard de température et nous essayons une autre stratégie pour éliminer les traces restantes d'agrégats. Pour des dépôts alcalins adhérant fortement sur les fenêtres, il est courant qu'une irradiation avec des impulsions laser, de forte intensité, photo-désorbent les atomes des parois. Espérant ainsi casser les agrégats de césium, nous envoyons des impulsions d'un laser YAG

sur une zone bien localisée de la cellule en augmentant progressivement l'intensité du laser. Aucune décoloration ne se produit ; au contraire, un petit nombre de billes se décolle de la lame de verre, et l'opale est donc endommagée très localement lors des derniers paliers d'intensité. En effet après l'arrêt du laser, nous constatons un petit trou ($<1\text{mm}$ de diamètre) sur l'opale, situé au niveau de la zone d'illumination.

3.4 Bilan et perspectives

A l'aide d'une tranche d'opale fabriquée par sédimentation (billes de 200 nm), nous avons réalisé une première mise en contact entre le césium et une opale qui a mis en évidence le phénomène inattendu de la formation d'agrégats à l'intérieur de l'opale. Malgré un chauffage important nous n'avons jamais atteint un taux de désorption suffisant pour redonner à l'opale son état initial. L'opale révèle ainsi une forte capacité à piéger les atomes. Celle-ci semble liée au libre parcours moyen, extrêmement faible vu la géométrie de l'opale (taille des billes, nombre de couches), qui favorise grandement la fabrication d'agrégats.

Aucun signal optique venant de l'opale, et résonnant avec le césium, n'étant accessible, la cellule ne s'avère utilisable que dans le cadre d'expériences de spectroscopie sur des atomes de Cs libres en présence de l'opale, telles que des expériences de désorption de milieux poreux [MOI].

Le seul point encourageant est le comportement entre les billes de verre et le césium. Nous n'avons ainsi noté aucune transformation, tout du moins visuelle, au cours de nos tests alors que nous sommes montés jusqu'à 300°C , soit au-delà de la limite d'interaction "verre-césium".

Trois autres cellules, où du Cs est en contact avec une opale fine, fabriquée par la méthode Langmuir-Blodgett, ont également été réalisées. Malgré l'augmentation sensible de la taille des billes ($1\ \mu\text{m}$ et $0,4\ \mu\text{m}$) et donc du libre parcours moyen, des agrégats sont aussi observés. Cependant, contrairement au cas de l'opale par sédimentation, le processus devient réversible et peut être maîtrisé à l'aide d'un chauffage adéquat, au moins pour le cas des opales formées de billes

de 1 μm . Il semble donc que la taille des interstices (gouvernée par la taille des billes) soit un paramètre important. Il semble également beaucoup plus facile d'obtenir une évaporation des agrégats depuis le cœur de l'opale, que lorsque l'épaisseur globale de l'opale est importante : les agrégats désorbés, ou atomes tendant à se réassocier en agrégats, doivent encore traverser des milliers de "pièges" avant d'atteindre le demi-espace libre.

De plus, avant l'étape de remplissage avec du césium, les trois fenêtres avec opales présentaient une réflexion observable, voire une transmission pour les billes de 400 nm (cf chap. 2). Ces propriétés optiques s'avèrent conservées même après la mise en contact avec le césium, ce qui permet d'envisager de travailler spectroscopiquement avec ces cellules. Cependant, la construction même de ces cellules interdit de sonder en transmission les atomes piégés dans les interstices de billes. En effet, le signal provenant de la vapeur de césium, contenue dans le reste de la cellule, est nécessairement très dominant par rapport au signal des atomes confinés dans les interstices de l'opale, relativement peu nombreux. Alors que le projet initial consistait à étudier la diffusion engendrée par l'opale, projet plutôt délicat, notamment à cause de la difficulté à distinguer les photons diffusés de ceux émis par fluorescence, l'existence d'un faisceau cohérent permet d'employer une méthode de réflexion sélective (cf chap 4.3), dans laquelle la réponse spectroscopique analysée est celle du faisceau réfléchi.

Bibliographie :

[DUT] G. Dutier, S. Satiel, 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**,793 (2003)

[FAI] H. Failache, S. Satiel, D. Bloch, M. Ducloy, «Resonant van der Waals repulsion between excited Cs atoms and sapphire surface», *Phys. Rev. Lett.* **83**, 5467 (1999)

[INF] <http://www.infovitrail.com/verre/types.php>

[JAH] E. Jahier, J. Guena, P. Jacquier, M. Lintz, M.A. Bouchiat, «Implementation of a sapphire cell with external electrodes for laser excitation of a forbidden atomic transition in a pulsed E-field» *Eur. Phys. J. D* **13**, 221 (2001)

[ROM] M. Romanelli, C. Vion, C. Barthou, P. Bénalloul, J. Frigerio, A. Maître, P. T. Nga, P. T. Cuong, A. Gruzintsev, A. Redkin, «Angle-Resolved Reflectivity and Self-Activated Luminescence of 3D Photonics Crystals», *Journal of the Korean Physical Society* **52**, 5 (2008)

[STE] D. A. Steck, «Cesium D line Data», <http://steck.us/alkalidata/cesiumnumbers.1.6.pdf>

Chapitre 4 :

Les méthodes de spectroscopie utilisées

4.1 Détection par modulation de fréquence

En spectroscopie atomique, il est courant de détecter un signal mêlant plusieurs type de signaux atomiques, notamment lorsque l'on recherche des signatures sub-Doppler, les structures étroites sont souvent superposées à un signal de fond large. Une façon de privilégier l'observation de ces structures étroites est d'utiliser une détection en modulation de fréquence (FM). Cette méthode permet en effet de détecter la dérivée en fréquence du signal, et ainsi d'être plus sensible aux variations des pentes qu'à l'amplitude de ce signal.

Pour réaliser une telle détection, on module la fréquence optique du laser via une source extérieure. Si cette modulation est sinusoïdale, la fréquence optique instantanée s'écrit :

$$\omega(t) = \omega_{opt} + M \cos(\omega_m t) \quad (4.1)$$

où ω_{opt} est la fréquence intrinsèque du laser, M et ω_m respectivement l'amplitude et la fréquence de la modulation appliquée.

Dans l'hypothèse où l'excursion en fréquence est suffisamment faible ($M \ll \frac{\partial S(\omega)}{\partial \omega} / \frac{\partial^2 S(\omega)}{\partial \omega^2}$), la réponse (S) d'un milieu quelconque à un champ modulé en fréquence peut être décomposée grâce à un développement limité :

$$S(\omega(t)) = S(\omega_{op}) + M \cos(\omega_m t) \left(\frac{\partial S(\omega)}{\partial \omega} \right)_{\omega_{op}} + \dots \quad (4.2)$$

A l'aide d'une détection synchrone réalisant les étapes d'amplification et de démodulation, on détecte un signal (S_{FM}) proportionnel au produit de la dérivée première du signal et de l'amplitude de modulation :

$$S(\omega)_{FM} = \langle S(\omega(t)) \cos(\omega_m t + \varphi) \rangle = \frac{1}{T} \int_t^{t+T} S(\omega(t)) \cos(\omega_m t + \varphi) dt = \frac{\cos(\varphi)}{2} M \left(\frac{\partial S(\omega)}{\partial \omega} \right)_{\omega_{op}} \quad (4.3)$$

où φ est le terme de phase de la détection synchrone, T est la période du système.

La détection d'un signal dérivé permet d'être plus sensible aux singularités du spectre et donc de visualiser des structures étroites auparavant peu visibles. Dans l'équation (4.3) seul les termes à la fréquence de référence sont non nuls, les autres termes étant moyennés à zéro par l'intégrale, ce qui réduit considérablement le bruit détecté.

Dans le cas d'un contraste faible entre les structures étroites et larges, il est possible de ne pas détecter la première harmonique mais celle d'ordre supérieur. On ne détecte alors plus à la fréquence de référence f , mais à nf , où n est l'ordre de dérivation choisi. Par exemple, dans le cadre d'une détection en $2f$, on deviendra sensible à la dérivée seconde du signal. En effet, l'équation (4.3) devient :

$$S(\omega)_{FM(2f)} = \langle S(\omega(t)) \cos(2\omega_m t + \varphi) \rangle = \frac{1}{T} \int_t^{t+T} S(\omega(t)) \cos(2\omega_m t + \varphi) dt = \frac{\cos(\varphi)}{2} \frac{M^2}{4} \left(\frac{\partial^2 S(\omega)}{\partial \omega^2} \right)_{\omega_{op}} \quad (4.4)$$

Le signal détecté est alors proportionnel à l'amplitude de la modulation appliquée au carré. Il est important de noter que, quel que soit l'ordre de dérivation choisi, l'excursion en fréquence doit avoir une amplitude (M) inférieure à la largeur du signal attendu, sous peine d'élargir et de déformer celui-ci en cas de modulation trop importante.

Cette méthode de détection sera systématiquement utilisée au cours de nos travaux, aussi bien pour les expériences d'absorption saturée que de réflexion sélective.

4.2 Absorption saturée

En spectroscopie atomique, la résolution d'une transition (largeur de la transition) est limitée par la largeur naturelle de la transition étudiée, Γ , qui est inversement proportionnelle à la durée de vie du niveau excité pour une raie depuis le niveau fondamental. Dans le cas du césium, il est donc impossible d'observer des transitions présentant une largeur inférieure à 5 MHz pour les raies de résonance (valeur de la largeur naturelle). Cependant, pour des atomes en phase vapeur, la résolution des transitions atomiques est d'abord limitée par l'élargissement Doppler, lié à l'agitation thermique des atomes, et la technique d'absorption saturée est une technique commode pour s'affranchir de cet élargissement.

4.2.1 Interaction d'un faisceau avec une vapeur résonnante et saturation

Considérons un système composé d'une cellule contenant une vapeur atomique, traversée par un faisceau laser d'intensité I , de vecteur d'onde k et de fréquence (circulaire) ω_1 , se propageant rectilignement sur l'axe z (cf. fig. 4.1). Pour simplifier, on supposera dans la suite que l'absorption du faisceau dans la cellule reste toujours faible (approximation du milieu optiquement mince), pour que l'intensité du faisceau $I(z)$ soit quasi-constante.

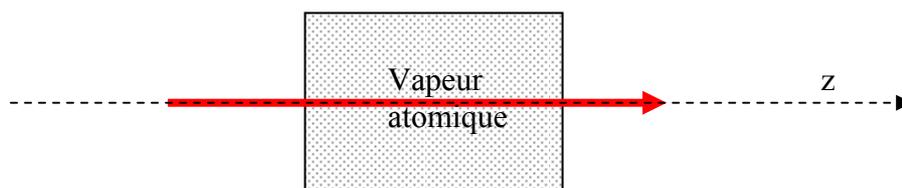


Fig 4.1 Schéma du système expérimental considéré

Les atomes de la vapeur atomique sont décrits par un système à deux niveaux, $|g\rangle$ et $|e\rangle$, représentant respectivement l'état fondamental et l'état excité (cf fig 4.2), d'une énergie $\hbar\omega_0$, et de largeur Γ . Les atomes sont d'abord supposés immobiles, et dans l'état fondamental en l'absence d'excitation.

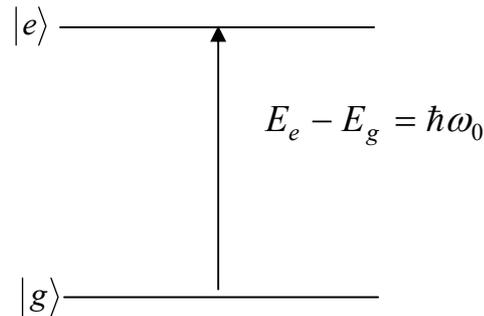


Fig 4.2 Modélisation d'un atome de la vapeur atomique par un système à deux niveaux

En présence du laser, la probabilité qu'un atome se trouve dans l'état excité est donné par une Lorentzienne d'absorption $L(\omega_1, \omega_0)$:

$$L(\omega_1, \omega_0) = \frac{1}{2} \frac{I / I_{sat}}{(1 + I / I_{sat} + 4(\omega_1 - \omega_0)^2 / \Gamma^2)} \quad (4.5)$$

où I_{sat} est l'intensité de saturation définie telle que $I / I_{sat} = 2\Omega^2 / \Gamma^2$ (avec Ω la fréquence de Rabi).

On retrouve dans (4.5) les résultats bien connus, que pour une intensité faible du faisceau ($I \ll I_{sat}$), l'excitation est proportionnelle à l'intensité du faisceau; cependant, si l'intensité est forte ($I \gg I_{sat}$), celle-ci aboutit au plus à une égalisation des populations, jamais à une inversion. Pour le faisceau, une excitation proportionnelle à l'intensité se traduit par une intensité absorbée proportionnelle à l'intensité d'irradiation, c'est à dire un coefficient d'absorption constant. Pour une intensité "saturante" ($I \geq I_{sat}$), le nombre de photons absorbés

croît de façon sub-linéaire avec l'intensité, c'est à dire que le coefficient d'absorption diminue, à cause de la réduction de différence de population; à la limite d'une intensité très forte, et d'une égalisation des populations, une augmentation de l'intensité ne change rien au système (l'absorption est entièrement compensée par l'émission stimulée), et le taux d'absorption tend donc vers zéro. Notons aussi que la forme de raie de la réponse atomique, et donc de l'absorption du faisceau, qui est une Lorentzienne centrée sur la fréquence de la transition atomique, de largeur $\Gamma/2$ pour une irradiation de faible intensité, s'élargit avec la saturation à $\Gamma'/2$, avec :

$$\Gamma' = \Gamma \sqrt{1 + I / I_{sat}} \quad (4.6)$$

Considérons à présent la distribution (thermique) de vitesse des atomes. C'est la composante de vitesse dans la direction de propagation du faisceau (soit ici v_z) qui va déterminer le décalage par effet Doppler de leur fréquence de résonance. Dans le référentiel du laboratoire, la fréquence de résonance pour un atome à vitesse v_z est donc devenue ω'_0 avec :

$$\omega'_0 = \omega_0 \left(1 + \frac{v_z}{c}\right) = \omega_0 + kv_z \quad (4.7)$$

A l'équilibre thermique, la probabilité qu'un atome ait une vitesse (suivant z) comprise entre v_z et v_z+dv_z est donnée par la distribution de Maxwell-Boltzman :

$$f(v_z) = \frac{1}{u\sqrt{\pi}} e^{-\frac{v_z^2}{u^2}} \quad (4.8)$$

où $u = \sqrt{2k_B T / M}$ est la vitesse la plus probable, avec T la température de la vapeur, M la masse d'un atome et k_B la constante de Boltzmann.

Globalement, la forme de raie d'absorption pour le faisceau est donc une convolution entre la Lorentzienne d'absorption pour une vitesse v_z (donc décalée par effet Doppler) et la distribution Maxwellienne $f(v_z)$, c'est-à-dire un profil de Voigt :

$$\Delta I(\omega_1) \propto \int_{-\infty}^{+\infty} L(\omega_1, \omega'_0 = \omega_0 - kv_z) \frac{1}{u\sqrt{\pi}} e^{-\frac{v_z^2}{u^2}} dv_z \quad (4.9)$$

Dans le régime où l'effet Doppler est dominant ($ku \gg \Gamma$), l'absorption est dominée par le terme gaussien. Un point à noter est que le processus d'absorption est inhomogène, c'est-à-dire qu'il n'affecte pas tous les atomes d'une vapeur de manière équivalente, mais est sélectif en vitesse. C'est ce qui est représenté à la figure 4.3, où on voit que c'est seulement autour d'une vitesse $v_z = [(\omega_1 - \omega_0)/k]$ qu'apparaît un 'trou' dans la distribution maxwellienne des vitesses pour les atomes dans l'état fondamental $|g\rangle$ (cf fig 4.3). Notons que même pour $I \ll I_{\text{sat}}$, les populations ont été modifiées, proportionnellement à l'intensité du laser.

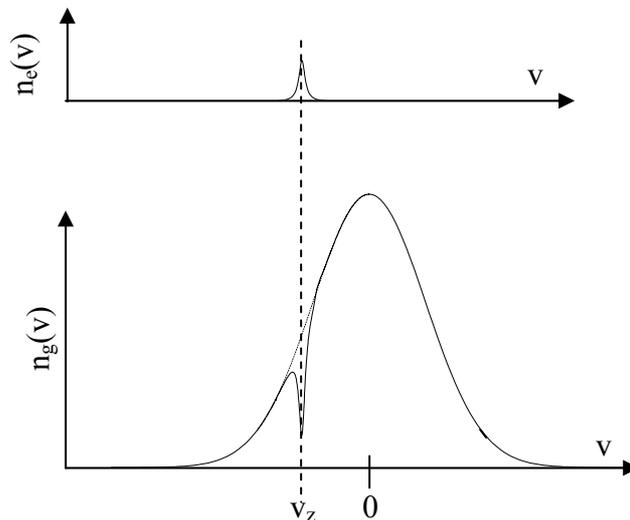


Fig 4.3 Population atomique des niveaux $|g\rangle$ et $|e\rangle$ en fonction de la vitesse, v , des atomes dans la direction de propagation du faisceau incident.

4.2.2 L'absorption saturée

Considérons désormais le cas où l'on introduit un second faisceau (dit "faisceau sonde") dans le montage précédent, de fréquence circulaire ω_2 balayable autour de la résonance de la vapeur atomique. Pour simplifier, on supposera que ce faisceau se propage également selon z , (vecteur d'onde k_2) selon un sens à préciser, et que son intensité I_{sonde} est non saturante ($I_{\text{sonde}} \ll I_{\text{sat}}$). Si on détecte l'absorption sur ce faisceau sonde, on va trouver, en balayant la fréquence ω_2 , une absorption qui sera la convolution de la réponse lorentzienne pour une classe de vitesse v_z , centrée en $(\omega_2 - \omega_0)/k_2$, par la distribution des différences de population $n_g(v_z) - n_e(v_z)$. Tant que $(\omega_1 - k_1 v_z) \neq (\omega_2 - k_2 v_z)$ (inégalité vérifiée à Γ près), le faisceau sonde interagit avec des atomes de vitesse atomique différente de celle des atomes sensibles au faisceau saturant à fréquence ω_1 , et l'absorption du faisceau sonde est insensible à la présence du faisceau saturant.

Au contraire, les faisceaux sonde et saturant sont résonnants avec les mêmes atomes, si :

$$(\omega_1 - k_1 v_z) = (\omega_2 - k_2 v_z) \quad (4.10)$$

et l'absorption du faisceau sonde est diminuée, par rapport à la situation en l'absence de faisceau saturant, ce qui ajoute un "pic" de forme Lorentzienne, centré sur ω_1 , au spectre d'absorption (profil de Voigt) du faisceau sonde.

Sur ce principe général de la spectroscopie de saturation pour un système à 2 niveaux, une expérience "standard" d'absorption saturée consiste à ce que les deux faisceaux soient issus de la même source laser ($\omega_2 = \omega_1$), et soient contrapropageants ($k_2 = -k_1$) (cf fig 4.4).

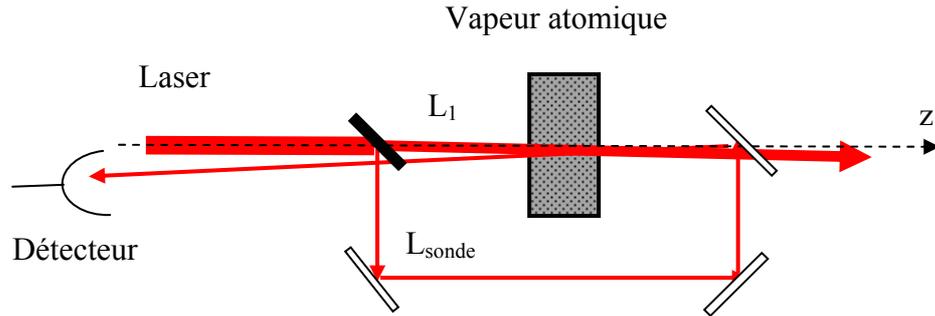


Fig 4.4 Schéma d'une expérience d'absorption saturée. Expérimentalement les faisceaux sont contrapropageants, c'est-à-dire que les angles entre les faisceaux (L_1 et L_2) et l'axe z (direction de propagation du laser) sont négligeables, ils sont ici volontairement exagérés pour favoriser la compréhension.

D'après (4.10), c'est seulement pour les atomes de vitesse nulle ($v_z = 0$), que l'absorption du faisceau sonde est "saturée" par la présence du faisceau sonde, et le "pic" étroit obtenu sur le faisceau sonde est automatiquement centré sur la fréquence propre (sans décalage Doppler) de la résonance atomique. Cette contribution insensible à l'élargissement Doppler est le résultat essentiel de la méthode de spectroscopie d'absorption saturée (cf. fig 4.5)

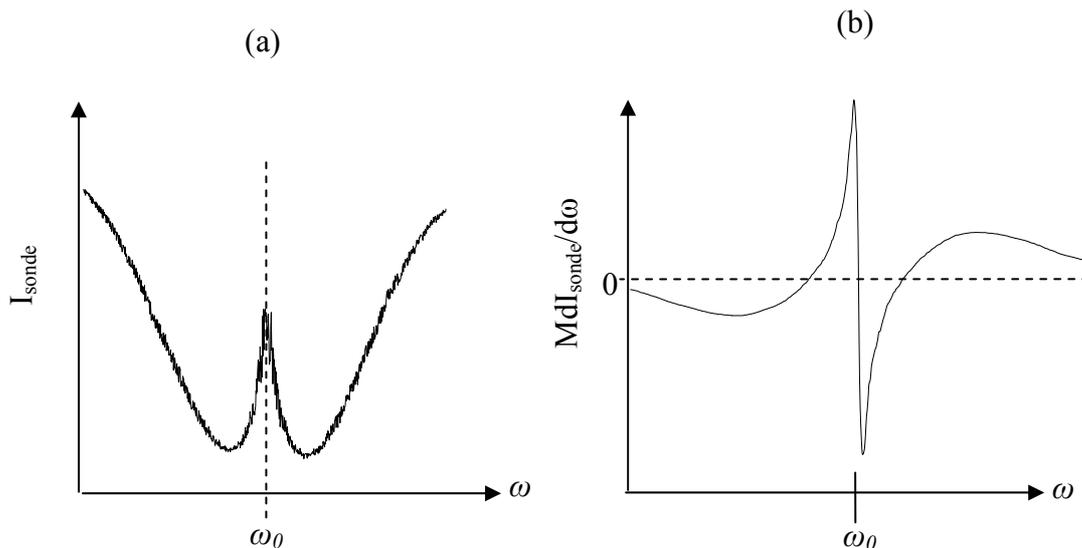


Fig 4.5 Spectres d'absorption saturée de la raie $6S_{1/2}-6P_{1/2}$ du césium : (a) détection directe : observation d'un "pic" sub-Doppler centré sur la résonance (effet du faisceau pompe), superposé sur un fond Doppler (spectre d'absorption en l'absence de faisceau pompe) ; (b) détection FM (à une amplitude modulation M) : exaltation de la composante étroite et diminution importante du signal de fond large

Notons que la largeur de cette transition d'absorption saturée est élargie si l'intensité du faisceau saturant est importante ($I \geq I_{\text{sat}}$). En revanche, si la saturation est faible ($I \ll I_{\text{sat}}$), la modification sur $n_g(v_z=0) - n_e(v_z=0)$ est faible. Il faut donc faire expérimentalement un compromis entre la largeur et le signal sur bruit de la transition suivant le niveau de résolution désiré. De plus, afin d'exalter la composante sub-Doppler, on peut coupler cette méthode avec la détection par modulation de fréquence décrite précédemment (cf fig 4.5 (b) et section 4.1). Il est aussi possible d'imposer une modulation d'amplitude au seul faisceau saturant, et une détection en phase sur le faisceau sonde ne fournit alors que la seule composante étroite.

L'analyse peut être étendue à des systèmes atomiques plus complexes qu'un système à 2 niveaux. Pour un système quelconque à 3 niveaux, si les énergies sont très différentes, des résonances étroites, sélectives en vitesse atomique, et insensibles à l'élargissement Doppler, seront encore obtenues d'après l'équation 4.10, dans des situations où les deux faisceaux doivent être à des fréquences très différentes (montage à deux lasers) si les 3 niveaux atomiques considérés ont des énergies suffisamment différentes. Si dans cette structure à 3 niveaux, 2 niveaux sont très voisins (par exemple des composantes de structure hyperfine), et notamment séparés de moins que la largeur Doppler, on obtient avec un montage à un seul laser (du type de la fig. 4.4) non seulement les différentes composantes hyperfines du spectre d'énergie, mais aussi des structures supplémentaires (cf fig 4.6), ou "résonances de croisement" ("crossover"), sélectives en vitesse v_z , mais obtenues lorsque l'on a simultanément $\omega_1 - k_1 v_z = \omega_0$, et $\omega_2 - k_2 v_z = \omega'_0$ (ici ω'_0 est la fréquence de résonance d'une transition de ce système). Ces résonances supplémentaires sont donc obtenues lorsque le faisceau sonde est résonnant avec les mêmes atomes (même vitesse) que ceux "pompés" par le faisceau saturant, mais sur une transition différente.

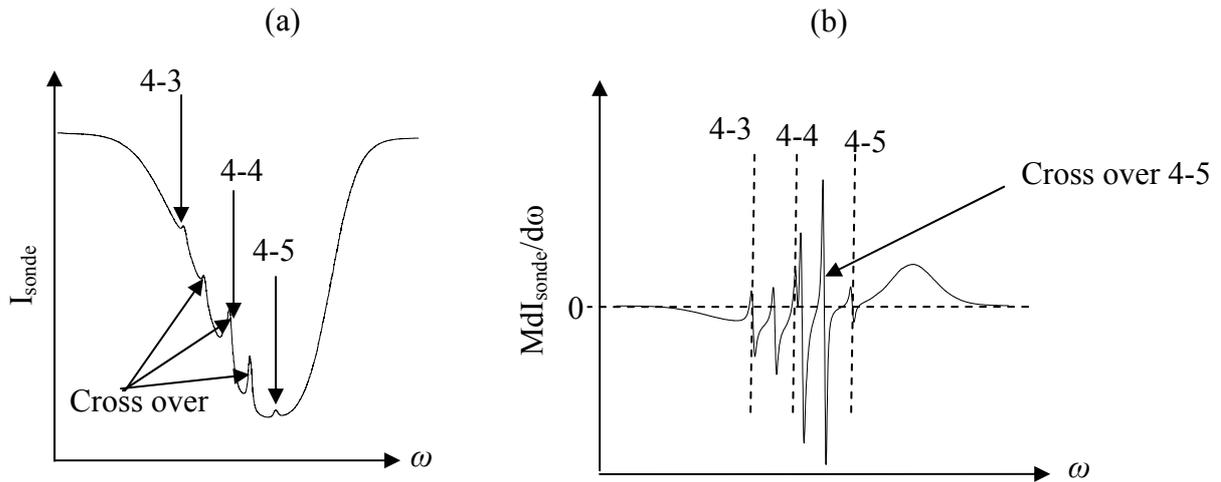


Fig 4.6 Spectres d'absorption saturée réalisés sur la transition $6S_{1/2}-6P_{3/2}$ du césium (3 transitions hyperfines : 4-3, 4-4 et 4-5): (a) détection directe : observation des 'pics' correspondant aux niveaux hyperfins, comme dans le cas à 2 niveaux atomiques, mais également des cross over, tous superposés sur un signal de fond large; (b) détection FM : exaltation des composantes étroites (transitions atomiques et cross over)

4.3 La réflexion sélective

4.3.1 Introduction

La spectroscopie de réflexion sélective consiste à étudier la réponse spectroscopique de l'intensité du faisceau réfléchi à une interface avec un milieu résonnant. Cette technique a été abondamment développée dans le groupe, permettant d'étudier la réponse d'une vapeur proche d'une interface plane, à une distance typique d'une fraction de longueur d'onde [DUC]. Elle a également été utilisée pour mesurer des potentiels d'interaction atome-surface [ORI], et une extension des calculs théoriques a été utilisée pour la spectroscopie de vapeur confinée à une dimension, également développée par le groupe [FIC].

Nous rappelons ici les résultats essentiels de ces travaux, parce que certaines des études de vapeur confinée dans une opale, présentées au chapitre 5, s'en inspirent, et que nous

y confrontons même directement des résultats en opale, avec une modélisation à une interface plane. Nous rappelons d'abord les résultats élémentaires d'une théorie d'indice, puis prenons en compte l'effet du mouvement atomique qui interdit une théorie locale de l'indice et permet de comprendre l'apparition d'une structure sub-Doppler pour une irradiation sous incidence normale. Nous décrivons les résultats essentiels en présence d'un potentiel d'interaction van der Waals, dont nous rappelons l'origine, qui sont utilisés dans diverses modélisations, et discutons l'extension de ces résultats à une incidence proche de la normale.

4.3.2 Théorie locale de l'indice

On considère l'irradiation par un faisceau lumineux, à fréquence ω , d'une interface constituée d'un milieu homogène d'indice n (fenêtre optique) et d'une vapeur atomique, suffisamment diluée pour que son indice optique s'écrive $n_v(\omega) = 1 + \delta n(\omega)$, avec $\delta n(\omega) \ll 1$, où $\delta n(\omega)$ est la contribution quasi-résonnante de l'indice, et où $|\omega - \omega_0| \ll \omega$, avec ω_0 est la fréquence de résonance de la vapeur.

Le coefficient de réflexion à l'interface dépend, d'après les formules de Fresnel, du rapport $n_v(\omega)/n$, et est donc sensible à la dispersion de la vapeur. Si cette vapeur a une résonance simple autour de ω_0 , la réponse du signal réfléchi apparaîtra comme une réponse de dispersion résonnante sur le fond non résonnant de la réflexion de Fresnel à une interface entre fenêtre d'indice n et vide (indice 1). Dans une théorie complexe de l'indice, où $\delta n(\omega)$ est complexe et inclut dispersion (partie réelle) et absorption (par la partie imaginaire), on montre que sous la condition $|\delta n(\omega)| \ll 1$, le signal spectroscopique n'est sensible qu'à la dispersion tant que l'angle d'incidence est sub-critique, c'est à dire tant qu'il y a propagation dans la vapeur [BOR]; en revanche, pour une onde qui deviendrait évanescente dans la vapeur, le signal de réflexion "totale" (c-à-d sans transmission) devient atténué.

4.3.3 Effets du mouvement atomique et théorie locale de l'indice

La théorie locale de l'indice est à l'origine même de la spectroscopie de réflexion sélective, inventée il y a plus d'un siècle [WOO], et qui a permis d'interpréter les ailes de dispersion de milieux denses, et les phénomènes collisionnels associés. On s'attendrait pour une spectroscopie suffisamment résolue en fréquence, à obtenir une dispersion élargie par effet Doppler. Il a été observé depuis fort longtemps qu'une structure sub-Doppler était observable en spectroscopie (linéaire) de réflexion sélective [COJ]. Pour interpréter de telles observations, il a été nécessaire d'abandonner la théorie de l'indice local, afin de traiter en détail l'interaction entre les atomes de la vapeur et le champ résonnant. Le point essentiel à introduire est que lors d'une collision contre la paroi, l'atome se désexcite entièrement, et que les atomes qui quittent la paroi sont dans l'état fondamental, construisant alors leur interaction avec le champ lumineux [DUC2]. Un tel régime transitoire de l'interaction atome/champ signifie que la réponse d'un atome n'est pas locale, mais dépend du champ lumineux dans les lieux qu'il vient de traverser [SHU].

Nous rappelons ici les étapes générales utilisées pour calculer le champ réfléchi, faisant spécifiquement apparaître la réponse du milieu dans l'intensité réfléchie (un traitement plus détaillé est rapporté dans [DUC1]). Nous prenons une description générale, mais pour simplifier les notations, nous considérons sauf exception un faisceau se propageant sous incidence normale, et tous les vecteurs d'onde sont donc parallèles à la normale à l'interface O_z .

a) Calcul du champ réfléchi en fonction de la polarisation induite dans le milieu

Soit une onde plane $E(r,t)$ de fréquence ω et de vecteur d'onde k traversant une interface composée d'une fenêtre diélectrique d'indice n et d'une vapeur atomique.

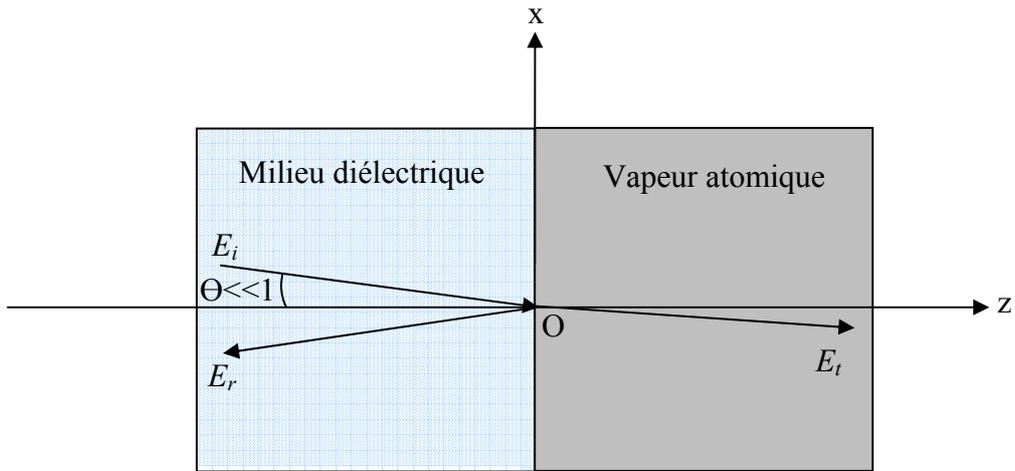


Fig 4.7 Représentation de la propagation du champ électrique pour une incidence normale

Les champs incidents E_i , transmis E_t et réfléchi E_r s'écrivent respectivement :

$$E_i = E_{0i} e^{i(nkz - \omega t)} + cc \quad (4.11)$$

$$E_t = E_{0t} e^{i(kz - \omega t)} + cc \quad (4.12)$$

$$E_r = E_{0r} e^{i(nkz + \omega t)} + cc \quad (4.13)$$

L'onde transmise induit dans la vapeur une polarisation dans la vapeur :

$$P(z, t) = p(z) e^{i(kz - \omega t)} + cc \quad (4.14)$$

Pour simplifier, le traitement effectué est ici scalaire, et ne tient pas compte de la polarisation du champ lumineux. A cause de l'équation d'onde de Maxwell, cette polarisation du milieu engendre la réémission d'un champ, qui modifie le champ réfléchi, et donc la réflexion :

$$\nabla^2 E - \frac{1}{c^2} \cdot \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} = \frac{4\pi}{c^2} \cdot \frac{\partial^2 P}{\partial t^2} \quad (4.15)$$

En éliminant la dépendance en $\exp i(kz - \omega t)$ introduite dans (4.12), et dans le régime permanent ($\partial E / \partial t = 0$) qui nous intéresse, nous obtenons :

$$\frac{\partial^2 E_{0t}}{\partial z^2} + 2ik \frac{\partial E_{0t}}{\partial z} = -4\pi k^2 p(z) \quad (4.16)$$

Avec le changement de variable du type $Y = \frac{\partial E_{0t}}{\partial z}$, l'expression précédente revient à une équation différentielle inhomogène du 1^{er} ordre, admettant pour solution générale :

$$\frac{\partial E_{0t}}{\partial z}(z) = \frac{\partial E_{0t}}{\partial z}(z_0) e^{-2ik(z-z_0)} - 4\pi k^2 e^{-2ikz} \int_{z_0}^z p(z') e^{2ikz'} dz' \quad (4.17)$$

Loin de l'interface, l'amplitude du champ transmis est spatialement homogène, c'est-à-dire que

pour $z_0 \rightarrow +\infty$, on a $\frac{\partial E_{0t}}{\partial z} \rightarrow 0$

d'où :

$$\frac{\partial E_{0t}}{\partial z}(z=0) = -4\pi k^2 \int_0^{+\infty} p(z) e^{2ikz} dz \quad (4.18)$$

A l'interface, les conditions de continuité des champs électriques et magnétiques entraînent :

$$ink(E_{0i} - E_{0r}) = ikE_{0t(z=0)} + \frac{\partial E_{0t(z=0)}}{\partial z} \quad (4.19)$$

$$E_{0i} + E_{0r} = E_{0t(z=0)}$$

d'où

$$E_{0r} = \frac{n-1}{n+1} E_{0i} - \frac{1}{ik(n+1)} \cdot \frac{\partial E_{0t(z=0)}}{\partial z} = E_{0r}^{NR} + \Delta E_{0r}(\omega) \quad (4.20)$$

Le champ réfléchi se décompose donc en deux termes, le premier représentant la réflexion de Fresnel (non résonnante) à une interface avec le vide dépendant uniquement du champ

incident : $E_{0r}^{NR} = \frac{n-1}{n+1} E_{0i}$ et le second $\Delta E_{0r}(\omega) = -\frac{1}{ik(n+1)} \frac{\partial E_{0t(z=0)}}{\partial z}$, exprimant la

partie résonnante associée à la réémission atomique, d'où, d'après (4.18) :

$$\Delta E_{0r}(\omega) = \frac{4ik\pi}{(n+1)} \int_0^{+\infty} p(z) e^{2ikz} dz \quad (4.21)$$

Pour une vapeur diluée, on a $\Delta E_{0r}(\omega) \ll E_{0r}^{NR}$, d'où on déduit pour la modification résonnante de réflectivité $\Delta R(\omega)$:

$$\Delta R(\omega) = 2E_{0r}^{NR} \Re[\Delta E_{0r}(\omega)] \quad (4.22)$$

Les équations 4.21 et 4.22 fournissent la réponse en réflexion, si l'on sait calculer la polarisation induite $p(z)$. Le terme e^{2ikz} est d'une grande signification : physiquement, il correspond à la somme du déphasage e^{ikz} du champ exciteur, depuis la fenêtre (en $z = 0$) jusqu'à la tranche considérée qui fournit la polarisation $p(z)$, et du déphasage e^{ikz} lié à la propagation retour du champ réémis localement en z , jusqu'à la fenêtre en $z = 0$.

Si la réponse atomique est spatialement homogène, comme on l'attendrait pour un milieu atomique homogène avec atomes immobiles, $p(z) = p_0$, l'intégrale dans 4.21 vaut $p_0(\omega)/2ik$ si l'on admet que pour $z \rightarrow \infty$ le champ s'est atténué suffisamment (diffraction, diffusion, ou traitement élémentaire par une absorption résiduelle). En régime permanent, pour une transition à 2 niveaux, la polarisation est induite selon une résonance lorentzienne, et on trouve $p_0 \propto E_{0t} \gamma / (\delta + i \gamma)$ (avec γ la largeur de la transition, et δ le désaccord entre la source et la résonance atomique), d'où on retrouve la réponse dispersive annoncée. En revanche, si $p(z)$ n'est pas constant sous les effets du régime transitoire, ou parce que l'interaction de surface modifie les résonances, seules les variations de $p(z)$ rapides par rapport à $1/2ik$ seront importantes dans 4.21. C'est ce qui fait que la réflexion sélective est principalement sensible à la réponse atomique à une longueur d'onde (λ) près, voire à $\lambda/2$ (= $\lambda/2\pi$) près.

b) Calcul de la polarisation induite pour une vapeur thermique résonnante

Nous nous sommes attachés précédemment à exprimer le champ réfléchi en fonction de la polarisation de la vapeur. Il nous faut désormais expliciter cette dernière. Nous considérons le cas où la vapeur est modélisée par un système à deux niveaux : fondamental $|g\rangle$ et excité $|e\rangle$. L'évolution d'un tel système peut être décrit par une matrice densité gouvernée par les équations de Bloch optiques [NIE]. C'est le terme de cohérence optique σ_{eg} (défini dans le référentiel tournant) qui permet de définir la polarisation induite :

$$p(z) = N\mu \int_{-\infty}^{+\infty} W(v_z) \sigma_{eg}(z, v_z) dv_z \quad (4.23)$$

où μ est le moment dipolaire de la transition $|g\rangle \rightarrow |e\rangle$, N la densité atomique, et $W(v_z)$ la distribution de vitesse des atomes dans la vapeur pour tenir compte du fait que les atomes à vitesse v_z voient leur fréquence de résonance décalée (d'une quantité $+kv_z$).

Si la réponse des atomes était spatialement homogène, c-à-d $\sigma_{eg}(z, v_z) = \sigma_{eg}(v_z)$, l'équation (4.21) aboutirait à une convolution de la réponse pour des atomes de vitesse v_z , qui est une Lorentzienne complexe, centrée en $\omega_0 + kv_z$, dont seule la dispersion est finalement prise en compte par 4.21, compte tenu du terme en Re, par la distribution de vitesses (a priori Maxwellienne).

En fait, on doit distinguer la réponse des atomes qui arrivent vers la fenêtre ($v_z < 0$), qui sont effectivement en régime permanent d'interaction avec le champ exciteur, et les atomes qui partent de la paroi, en régime transitoire, avec un temps d'interaction en z simplement donnée par z/v_z . Nous ne détaillons pas ici les calculs faits dans [DUC1]. Sous une hypothèse de régime linéaire (amplitude non saturante du champ exciteur), il est possible de montrer que la réponse spectroscopique des atomes qui partent de la paroi, et qui expérimentent un régime transitoire, est en fait identique à celle de ceux qui arrivent (en régime permanent, cette réponse serait la symétrique par rapport à $\omega - \omega_0$). Ceci permet de se limiter aux seuls atomes qui arrivent en régime permanent, et le spectre attendu est la convolution d'une Lorentzienne de dispersion par une demi-gaussienne. La singularité de la demi-gaussienne, pour les faibles $|v_z|$ entraîne que la forme de raie globale n'est pas entièrement antisymétrique, mais comporte une singularité plus étroite sub-Doppler : la forme de raie (*cf.* fig.4.8.a) est celle d'une forme antisymétrique de dispersion élargie par effet Doppler, à laquelle s'ajoute une contribution, symétrique et plus étroite, associée à cette réponse des atomes de faible vitesse v_z .

La spectroscopie de réflexion sélective peut devenir une technique sans élargissement Doppler, lorsqu'est appliquée une modulation de fréquence (FM), et une détection limitée à la

partie modulée (amplitude de modulation faible par rapport à la largeur homogène de la résonance). C'est ce que montre la figure 4.8, où sont présentés des spectres théoriques de réflexion sélective, en observation directe (S_{RS}) et en FM ($S_{RS(FM)}$). La contribution la plus étroite est amplifiée en technique FM, et la forme sub-Doppler symétrique devient une pure Lorentzienne de dispersion, dont la largeur est la largeur homogène dans la limite dite "largeur Doppler infinie" [AKU]. Cette réponse sans effet Doppler est essentiellement due aux atomes de vitesse "nulle" (c-à-d dont le décalage Doppler est inférieur à la largeur homogène), alors qu'en observant directement la réflexion, la réponse dispersive de chaque classe de vitesse a des ailes si larges (décroissance lente d'une aile de dispersion Lorentzienne) qu'une réponse à une fréquence donnée ne peut être décrite comme la réponse d'une seule classe de vitesse.

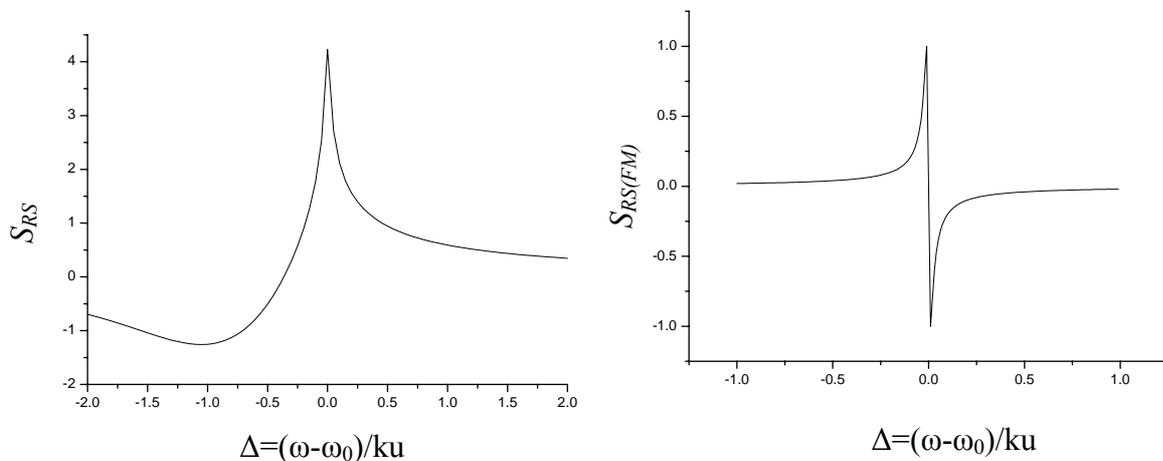


Fig 4.8 Figures issues de la thèse d'H. Failache représentant : (a) un spectre de réflexion sélective, $S_{RS}(\Gamma, \Delta)$; (b) un spectre de réflexion sélective FM, $S_{RS(FM)}(\Gamma, \Delta)$; pour un paramètre commun $\Gamma = 0,01$. Γ et Δ sont les paramètres réduits tels que $\Gamma = \gamma/2ku$ et $\Delta = (\omega - \omega_0)/ku$ (cf [FAI])

4.3.4 Effets d'une interaction atome-surface

En présence d'une interaction atome-surface, les résonances atomiques deviennent spatialement inhomogènes, et les atomes subissent des modifications de la fréquence, et éventuellement de la largeur de leurs transitions. Ceci modifie bien sûr la polarisation induite $p(z)$ apparaissant dans les équations (4.21) (4.22). Pour des actions entre systèmes neutres, l'interaction van der Waals de type dipôle-dipôle entre fluctuations dipolaires de l'atome, et fluctuations de l'image induite, est l'interaction dominante, qui a été abondamment étudiée par le groupe [CHE1]. La nature dipôle-dipôle de ce couplage entraîne que la résonance atomique prend la forme [LEN], [CAS] :

$$\omega_0 \rightarrow \omega_0(z) = \omega_0 - \frac{C_3}{z^3} \quad (4.24)$$

où C_3 est le coefficient d'interaction van der Waals, et où il est le plus souvent acceptable de considérer que la largeur de la transition n'a pas été affectée.

Dès que le mouvement atomique est pris en compte, tous les atomes de la vapeur évoluent en régime transitoire d'interaction, puisque le désaccord entre fréquence d'excitation, et fréquence propre, évolue au cours du mouvement atomique. Le calcul du signal de réflexion sélective devient particulièrement compliqué. Cependant, dans les régimes courants où le déplacement van der Waals (évalué en $z = \lambda/2\pi$) reste faible par rapport à la largeur Doppler, elle-même très large par rapport à la largeur homogène de la transition, il est possible, dans le cadre de la technique FM, d'arriver à des formes de raie définies par une intégrale simple. Comme en spectroscopie de réflexion sélective FM sans interaction de surface, la réponse des atomes de vitesse faible ($v_z \sim 0$) est alors prédominante. Ceci permet de constituer un "catalogue" universel de formes de raie avec interaction van der Waals, en fonction d'un paramètre sans dimension $A = 2C_3k^3/\gamma$, où γ est la largeur homogène de la

transition, qui exprime la force de l'interaction van der Waals dans une échelle réduite (déplacement van der Waals mesuré à $\lambda/2\pi$, en échelle $\gamma/2$). Un extrait de ce "catalogue" de courbes est donné à la figure 4.9. Dans de nombreuses expériences de spectroscopie de réflexion sélective FM menées par le groupe, les formes de raie ont pu être analysées par comparaison avec ce catalogue de courbes [CHE2], où l'unique paramètre contrôle à la fois un déplacement global, et une déformation des formes de raie.

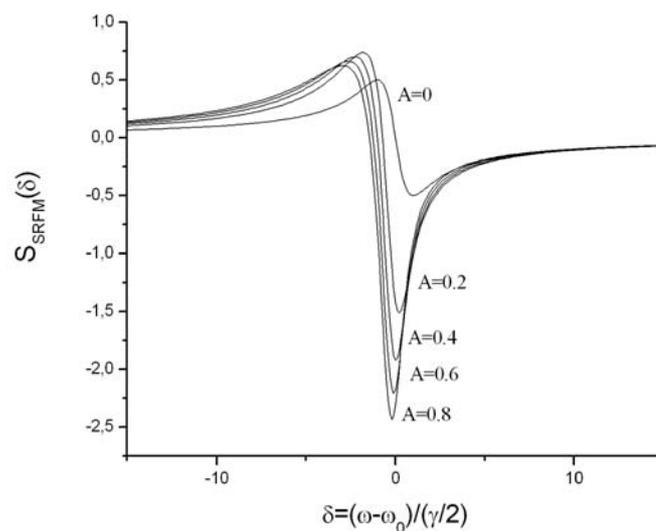


Fig 4.9 Evolution de la forme des spectres de réflexion sélective FM avec différentes valeurs de A (figure issue de [PAS])

4.3.5 Influence d'une incidence oblique sur le signal de réflexion sélective

Jusqu'ici, nous avons, pour simplifier, traité le problème en considérant que le faisceau incident était normal à l'interface (dès les équations 4.11, et la section 4.3.3). Dès que les atomes ne sont pas considérés comme immobiles, le fait que l'incidence soit oblique

oblige à effectuer une intégrale double sur la distribution de vitesse, en v_x et v_z (xOz est le plan d'incidence). Le point délicat est alors que l'axe sur lequel est compté le décalage Doppler n'est plus identique à la normale à la fenêtre. Or c'est par rapport à la normale que l'on compte si les atomes arrivent vers la paroi, ou s'en éloignent depuis un évènement de type "désorption" (où l'atome quitte la paroi dans l'état fondamental).

En général, le problème, devenu plus complexe par une étape supplémentaire d'intégration, ne peut être traité que numériquement. Cependant, si l'angle d'incidence θ est suffisamment faible ($\theta \ll 1$), l'élargissement Doppler correspondant à cette incidence non strictement normale reste très faible par rapport à la structure Doppler globale, et peut être évalué à $ku_{th}\theta$, où u_{th} est la vitesse thermique la plus probable (ku_{th} caractérise l'élargissement Doppler standard). On distingue alors deux régimes types dans cette limite $\theta \ll 1$:

(i) si $ku_{th}\theta \ll \gamma$, l'élargissement Doppler résiduel reste faible même par rapport à la largeur homogène, et tous les résultats pour $\theta = 0$ sont applicables.

(ii) si $ku_{th}\theta \geq \gamma$, l'élargissement Doppler résiduel, quoique faible ($\theta \ll 1$), domine la largeur naturelle, et doit sensiblement remplacer celle-ci, tant dans le calcul d'une forme de raie insensible à une interaction de surface, que pour le cas d'une interaction de type van der Waals.

Bibliographie :

[AKU] A. Akul'shin, L. Velichanskii, A. S. Libro, V. V. Nikitin, V. A. Sautenkov, E. K. Yurkin, N. V. Senkov, «Collisional broadening on intra-Doppler resonance of selective reflection on the D_2 line of cesium», *JEPT Lett.* **36**, 303 (1982)

[BOR] M. Born, E. Wolf, «Principles of optics», Pergamon press. sixième édition – Oxford (1980)

[CAS] H. B. Casimir, D. Polder, «The influence of retardation on the London-van der Waals forces», *Phys. Rev.* **73**, 360 (1948)

- [CHE1] M. Chevrollier, D. Bloch, G. Rahmat, M. Ducloy, «van der Waals-induced spectral distortions in selective reflection spectroscopy of Cs vapor: the strong atom-surface interaction regime», *Opt. Lett.* **16**, 23 (1991)
- [CHE2] M. Chevrollier, M. Fichet, M. Oria, G. Rahmat, D. Bloch, M. Ducloy, « High resolution selective reflection spectroscopy as a probe of long-range surface interaction: measurement of the surface van der Waals attraction exerted on excited Cs atoms», *J. Phys. II France* **2**, 23 (1992)
- [COJ] J.L. Cojan, «Contribution à l'étude de la réflexion sélective sur les vapeurs de mercure de la radiation de résonance de mercure», *Ann. Phys.* **9**, 185 (1954)
- [DUC1] M. Ducloy, M. Fichet, «General theory of frequency modulated selective reflection. Influence of atom surface interactions», *J. Phys. II France* **1**, 1429 (1991)
- [DUC2] M. Ducloy, «Influence of atom-surface collisional processes in FM selective reflection spectroscopy», *Opt. Commun.* **99**, 336-339 (1993)
- [FAI] Thèse d'H. Failache : Etude spectroscopique des résonances dans l'interaction de van der Waals entre un atome et une surface diélectrique, univ. Paris 13 (1999)
- [FIC] M. Fichet, G. Dutier, A. Yarovitsky, P. Todorov, I. Hamdi, I. Maurin, S. Saltiel, D. Sarkisyan, M.-P. Gorza, D. Bloch, M. Ducloy, «Exploring the van der Waals atom-surface attraction in the nanometric range», *Europhys. Lett.* **77**, 54001 (2007)
- [LEN] J. E. Lennard-Jones, «Processes of adsorption and diffusion on solid surfaces», *Trans. Faraday Soc.* **28**, 334 (1932)
- [NIE] G. Nienhuis, F. Schuller, M. Ducloy, « Nonlinear selective reflection from an atomic vapor at arbitrary incidence angle», *Phys. rev.* **A38**, 5197 (1988)
- [ORI] M. Oria, M. Chevrollier, D. Bloch, M. Fichet, M. Ducloy, «Spectral observation of surface induced van der Waals on atomic vapour», *Europhys. Lett.* **14**, 527 (1991)
- [PAS] Thèse de T. Passerat : Interaction atome-surface : interaction de van der Waals entre un atome excité et une surface diélectrique thermiquement émissive; oscillation de Bloch pour un atome adsorbé, univ. Paris 13 (2009)
- [SHU] M.H.F. Shuurmans, «Spectral narrowing of selective reflection», *J. Phys. France* **37**, 469 (1976)
- [WOO] R.W. Wood, «The selective reflection of monochromatic light by mercury vapor», *Phil. Mag.* **18**, 187 (1909)

Chapitre 5

Expérience de réflexion sélective sur les opales

Nous présentons ici les résultats obtenus dans diverses expériences de réflexion sélective sur une cellule contenant une opale, fabriquée par la méthode Langmuir-Blodgett, et de la vapeur de césium. Dans un premier temps, nous détaillerons les résultats d'expériences de réflexion sélective pour un angle d'incidence faible. Ceux-ci mettent en évidence un signal sub-Doppler qui n'est pas modélisable par les modèles habituels de réflexion sélective sur une interface plane, ce qui nous fait discuter de la localisation spatiale de la réflexion spéculaire à l'origine du signal observé. En passant à une incidence oblique, la réflexion sélective sur l'opale permet de détecter une nouvelle structure sub-Doppler aux caractéristiques inhabituelles (linéarité, dépendance en polarisation, angles d'observation élevés), dont l'origine semble différente de celle du signal observé pour des angles d'incidences faibles. Cette structure pourrait en effet être la réponse des atomes confinés dans le domaine interstitiel de l'opale, et correspondre à un processus de type rétrécissement Dicke, dépendant du rapport entre la longueur d'onde du champ incident et la distance de confinement (cf chap 1 [DICKE]).

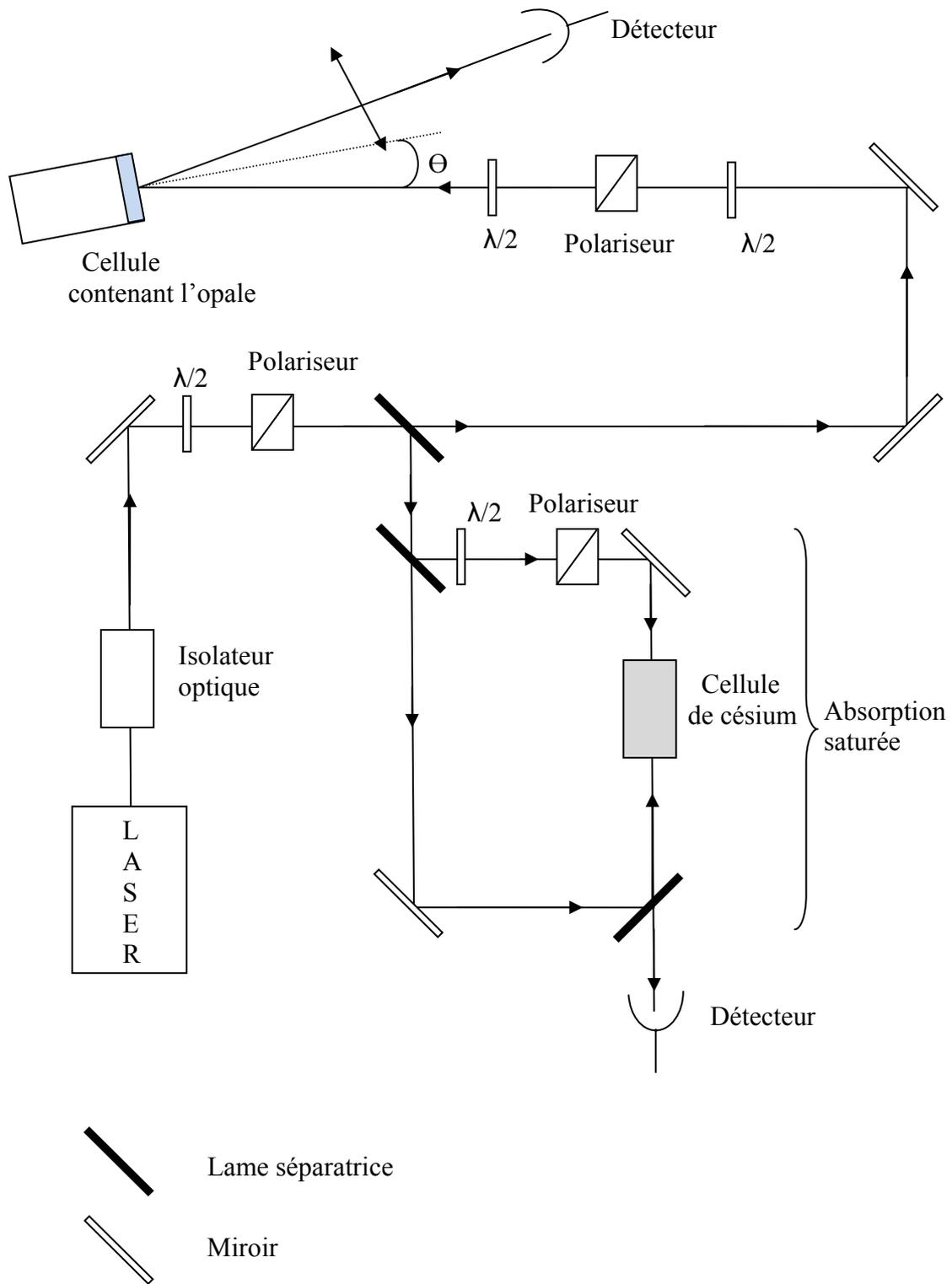


Fig 5.1 *Montage expérimental*

5.1 Descriptif du montage

5.1.1 Le montage

Nous réalisons une expérience classique de réflexion sélective sur l'opale, avec un faisceau laser balayé en fréquence autour de la résonance atomique dirigé vers l'interface à étudier (Fig 5.1). La réflexion de ce faisceau est envoyée sur un détecteur. Un isolateur optique, placé juste après la source laser, évite les éventuels retours optiques sur la diode. La polarisation est fixée par un premier polariseur, réglé en position verticale, c'est-à-dire perpendiculairement au plan de propagation du faisceau laser (polarisation TE), disposé après l'isolateur. De plus, des ensembles “ $\lambda/2$ et polariseur” sont installés à différents points du trajet du laser afin de pouvoir modifier l'intensité ainsi que la polarisation lumineuse sans changer la trajectoire du faisceau laser.

Pour repérer les transitions atomiques, on utilise un montage auxiliaire de spectroscopie fournissant une référence de fréquence. Cette expérience auxiliaire, également utilisée pour évaluer l'excursion du balayage, est obtenue soit par une absorption saturée (cf fig 5.1), soit par une seconde réflexion sélective réalisée sur une partie sans opale de la cellule.

5.1.2 Les lasers

Les diverses expériences présentées ont été effectuées sur les raies D_1 et D_2 du césium (894 et 852 nm), pour lesquelles deux types de lasers ont été utilisés.

a) Laser de type DBR (Distributed Bragg Reflector)

Les lasers DBR sont des lasers monomodes à semi-conducteur GaAlAs, sans cavité externe. Le semi-conducteur, possédant une structure multicouche, est constitué de trois parties distinctes : une région centrale faisant office de milieu amplificateur, et de deux parties latérales contenant un réseau de Bragg, servant de miroirs. Ainsi l'onde générée dans le milieu amplificateur est guidée vers les miroirs, lesquels redistribue l'onde dans le milieu amplificateur. La réflectivité des miroirs étant dépendante de la longueur d'onde de l'onde incidente, ceux-ci ont également un rôle de filtres fréquentiels. La fréquence d'émission est ainsi contrôlée par le courant d'injection (celui-ci modifie l'indice des miroirs, changeant leur réflectivité) et la température de la diode. Celle-ci est contrôlée par un système d'asservissement qui permet, par une électronique externe, de limiter les variations de température au mK. La diode laser se présente sous la forme d'un boîtier intégrant la partie laser et l'ensemble des éléments de contrôle de température (Peltier, thermistance). Pour éviter tous risques de surchauffe de la diode, notamment par l'élément Peltier qui dissipe la chaleur pour réguler la température de la diode, le boîtier est fixé sur un radiateur dissipant le surplus de chaleur. Pour chacune des raies (D_1 et D_2) du césium, correspondant respectivement à une longueur d'onde de 894 et 852 nm, nous disposons d'un laser DBR possédant une largeur spectrale d'environ 3 MHz et émettant en sortie une puissance de 40 mW.

b) Laser à cavité étendue

Au cours de nos expériences avec le laser DBR 852 nm, des problèmes récurrents de reproductibilité ont mis en évidence une incapacité à asservir correctement la température de

fonctionnement de la diode. Celle-ci a donc été finalement remplacée par un laser 852 nm à cavité étendue de type Littman (le choix de changer de type de laser étant seulement lié au matériel disponible). Contrairement au cas précédent, la cavité n'est plus partie intégrante du semi-conducteur mais externe. Elle est composée d'un miroir et d'un élément discriminateur de fréquence, en l'occurrence un réseau. Dans cette configuration, l'accordabilité de la source peut s'effectuer en modifiant la longueur de la cavité par le déplacement du miroir via un système piezoélectrique. Ces lasers permettent ainsi de gagner en précision sur la largeur spectrale d'émission (< 1 MHz) et d'avoir une plus grande flexibilité sur le choix de la fréquence. La stabilité de la température de la diode restant un impératif, ce laser comporte également un asservissement de température.

c) Balayage et modulation de fréquence

Les lasers DBR ne possédant pas d'élément piezoélectrique, le contrôle des variations de fréquence des lasers de ce type est effectué sur le courant. La fréquence d'émission laser varie ainsi de 1,62 GHz/mA. Pour des raisons de stabilité nous nous limitons à des balayages de 2-3 GHz. La fréquence de modulation, générée par un signal sinusoïdale issu d'un générateur de fonction, est choisie à 5 kHz, et l'amplitude est typiquement de 10 MHz pic à pic. Afin de gagner en signal sur bruit, cette modulation est parfois montée à 20 MHz pour certaines expériences, ce qui augmente éventuellement la largeur du signal FM détecté.

Pour le laser à cavité étendue, la fréquence est contrôlée via le piezo en vue d'obtenir une modulation et un balayage optimum. Ainsi à l'aide d'un double sommateur, la tension envoyée au piezo contient la tension utilisée pour le balayage (459 MHz/Volt) et celle de la modulation. En général, nous travaillons avec un balayage d'environ 2 GHz et une modulation à 1 kHz de fréquence et de 10 MHz d'amplitude pic-à-pic. Par rapport à la diode

DBR, la fréquence de modulation doit en effet être réduite, car le piezo ne peut fonctionner à la fréquence de 5 kHz.

5.1.3 La chaîne de détection

Les différents signaux (réflexion sélective, absorption saturée) sont détectés par l'intermédiaire de photo-détecteurs à diode silicium [New Focus 2001 et 2051] possédant tous les deux un gain ajustable jusqu'à $1,1 \cdot 10^4$ V/mW (les deux modèles diffèrent dans leur capacité à détecter des signaux à hautes fréquences). Ces photo-détecteurs sont reliés à des détecteurs synchrones [Stanford Research model SR830], qui fournissent les signaux en phase et en quadrature après démodulation. L'ensemble des appareils de détection est connecté à un DAQ (data acquisition system) convertissant les signaux analogiques en signaux digitaux afin de traiter les données informatiquement. Le logiciel d'acquisition enregistrant 1 point environ toutes les 100 ms, la constante de temps des détecteurs synchrones est le plus souvent fixée à 300 ms. Un balayage moyen assurera une résolution meilleure que 3 MHz. Par exemple, une excursion de 1 GHz sera constituée d'environ 1000 points, garantissant ainsi une résolution acceptable au vu de la nature des signaux envisagés (~10 MHz pour un signal de réflexion sélective sur une interface de verre).

5.1.4 Chauffage des cellules

Précédemment, nous nous sommes attachés à décrire les spécificités des cellules et avons déjà évoqué les différents problèmes liés à l'introduction du césium (chap. 3). Nous discutons ici plus en détail divers aspects pratiques de l'utilisation de ces cellules.

Afin d'éviter des dépôts de césium sur les opales, et empêcher la formation réversible d'agrégats, le corps des cellules est chauffé grâce à un four. Celui-ci est composé d'une boîte métallique dans laquelle a été introduit un fil chauffant (Thermocoax). Ce dernier est une résistance, il est ainsi constitué d'un fil résistant comprimé par un isolant et recouvert d'une gaine métallique. Ce fil résistant est enroulé sur lui-même de telle manière que l'ensemble ne crée pratiquement pas de champ magnétique parasite (pas d'effet Zeeman). Le four présente des ouvertures circulaires au niveau de chaque fenêtre de la cellule pour permettre aux faisceaux lasers de se propager. Afin de favoriser l'homogénéité thermique du système, des lames de verre fixées directement sur le four referment ces ouvertures, puis le four est emmaillotté avec de la laine de verre.

Pour contrôler la densité de césium à l'intérieur de la cellule, le queusot, servant de réservoir à césium, est chauffé grâce à un second four. Un radiateur, disposé entre les deux fours, favorise l'indépendance thermique de chaque unité. Une conduction est tout de même autorisée entre les différentes parties du système, évitant ainsi la création d'un point froid au niveau du radiateur qui correspondrait à l'apparition d'un réservoir de césium secondaire.

Enfin, un thermocouple inséré à l'intérieur de chaque four donne une estimation des températures atteintes lors des différentes expériences. Cependant, des gradients ($\sim 15^\circ \text{C}$) ont été constatés suivant la disposition du thermocouple dans les fours. Ces derniers étant ouverts et démontés régulièrement pour changer de cellule, il est malcommode de maintenir les thermocouples dans une position stable, ce qui rend les mesures de températures peu précises.

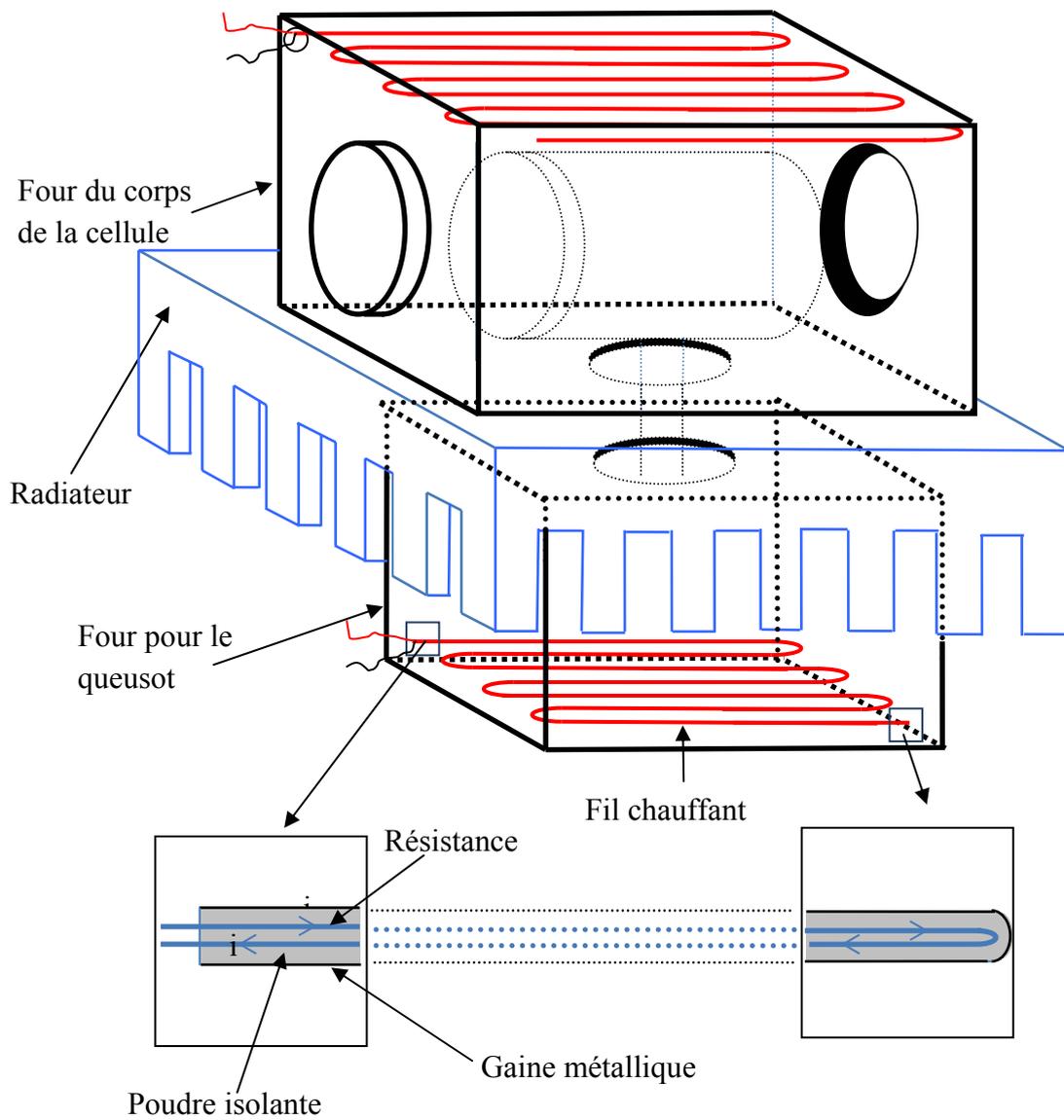


fig 5.2 Schéma du four du système

5.2 Expériences de réflexion sélective en incidence normale

5.2.1 Réflexion sélective sur une opale de 20 couches de billes de diamètre 1 μm

Dans un premier temps, nous travaillons avec la cellule contenant l'opale de 20 couches avec des billes de 1 μm et un laser 852 nm de type DBR. Une expérience de réflexion sélective est ainsi réalisée avec un angle d'incidence du faisceau laser très proche de la normale ($\Theta < 2\text{mrad}$). Le signal atomique étant relativement faible, il est impossible de discerner la partie résonnante du signal de réflexion sans utilisation d'une modulation et détection FM (cf fig 5.3).

En utilisant une méthode de détection par modulation de fréquence, un signal atomique, sub-Doppler et caractéristique de la raie D_2 du césium, est observé, et permet de résoudre les trois composantes hyperfines 4-5, 4-4, 4-3 (cf fig 5.3). Les transitions ont une forme dispersive mais montrent une asymétrie importante. Ces transitions ont une largeur d'environ 30 MHz (de manière arbitraire, la largeur est mesurée pic à pic, c'est à dire qu'elle représente l'écart entre les extrémums de chaque transitions) supérieure à la largeur naturelle théorique (5 MHz), et même aux largeurs habituellement observées en réflexion sélective sur une interface plane pour les mêmes conditions expérimentales ($\sim 10\text{MHz}$ cf chap 4.3). Il faut donc déterminer si cette largeur est un caractère intrinsèque du signal ou bien si elle est liée aux conditions expérimentales. En effet, les causes d'élargissement peuvent être multiples : ainsi une densité, une intensité lumineuse, ou encore une modulation de fréquence trop élevée, pourrait engendrer de tels effets. De même la présence d'impuretés lors du remplissage pourrait également être un facteur d'élargissement.

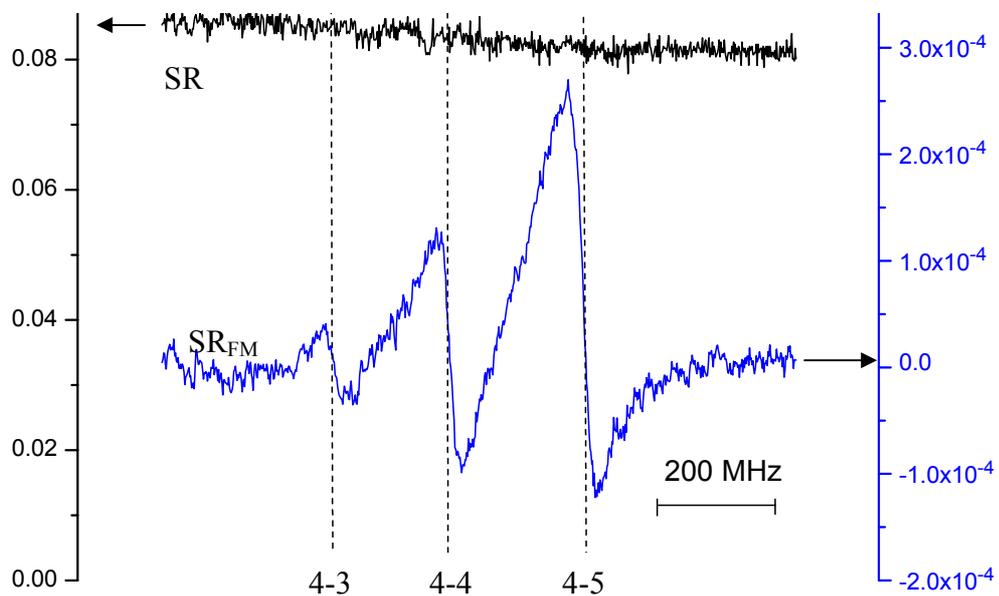


Fig 5.3 Spectres de réflexion sélective sur une opale de 20 couches, billes de $1\mu\text{m}$ avec un laser 852 nm ($T_{\text{queusot}}=90^\circ$), signal direct (SR) et FM, notée SR_{FM} (24 MHz d'amplitude de modulation pic-pic).

5.2.2 Dépendance du signal de réflexion sélective sur l'opale avec la densité de césium

Il est bien connu en spectroscopie atomique qu'une densité élevée peut entraîner un élargissement collisionnel des signaux. Vu la largeur inhabituelle des raies observées, ce processus doit être envisagé. Nous étudions donc l'évolution de la largeur des spectres avec la variation de densité de vapeur de césium en changeant la température du queusot.

La figure 5.4 montre que le signal évolue de façon monotone avec la densité de césium. On observe ainsi une augmentation du signal quasi linéaire avec la densité (jusqu'à

10^{13} at/cm³), puis le signal s'élargit avec une amplitude qui décroît de façon sub-linéaire. Par contre, au cours de cette exploration, même pour des densités relativement basses, aucun signal présentant une largeur inférieure aux 30 MHz évalués précédemment n'a pu être observé, montrant ainsi que cette largeur n'est pas la conséquence d'une densité atomique trop importante.

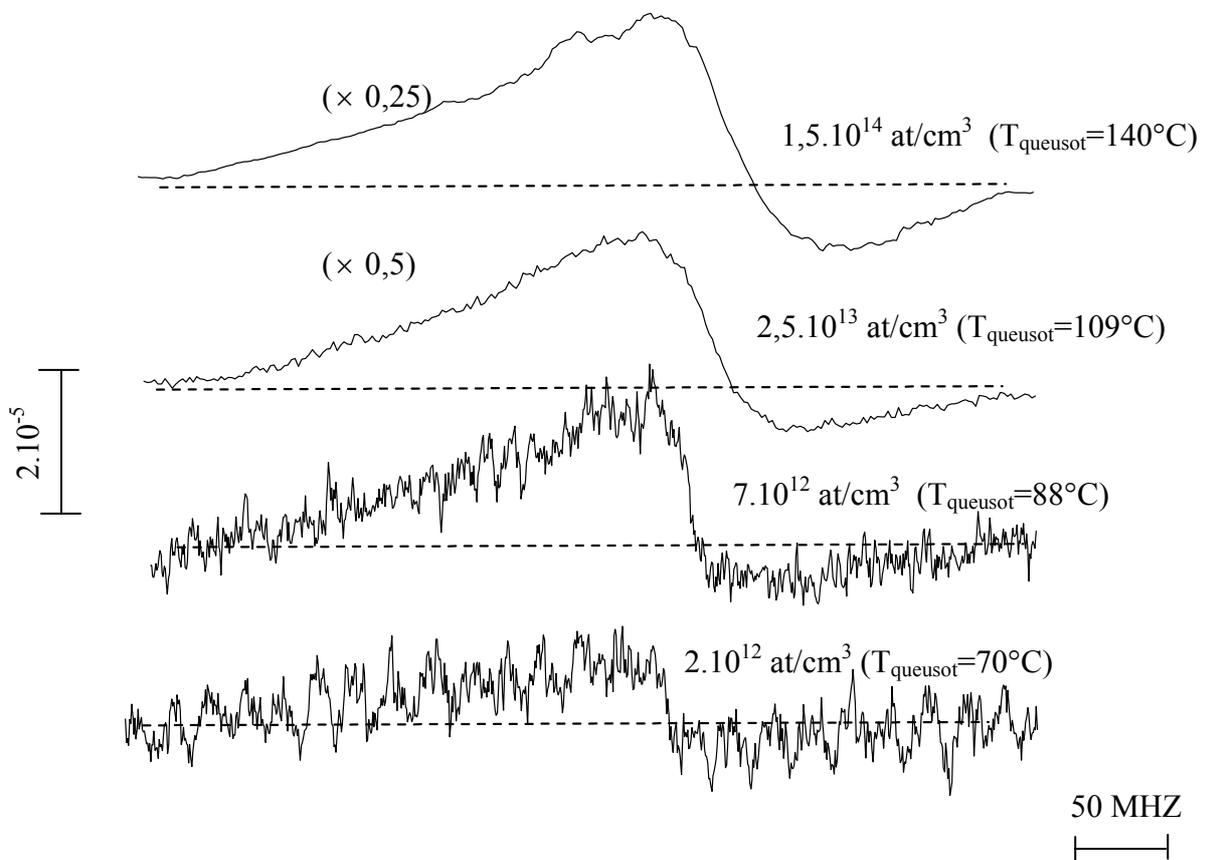


Fig 5.4 Evolution de la forme d'un spectre de réflexion sélective (SR_{FM}/I_R) avec la densité atomique (transition 4-5 de la raie D_2 , incidence nulle détectée en FM, 3 MHz d'amplitude de modulation, 30 μW de puissance incidente)

5.2.3 Intensité lumineuse et saturation

Une intensité lumineuse trop importante peut élargir les transitions atomiques. Il faut donc s'assurer que nous ne sommes pas dans un régime de saturation optique. La figure 5.5 montre une série de spectres de réflexion sélective sur l'opale en fonction de l'intensité incidente. Au-delà de $\sim 30 \mu\text{W}$ (pour un diamètre de faisceau $\sim 0,4 \text{ mm}$), un régime non linéaire, caractéristique de la saturation laser, est observé. On constate en effet, pour cette gamme d'intensité, un élargissement et une diminution de l'amplitude relative du signal atomique (cf fig 5.5). Cependant, les spectres réalisés dans des conditions de linéarité ($< 30 \mu\text{W}$) présentent une largeur minimale de 30 MHz. Cette largeur n'est donc pas liée à l'intensité lumineuse incidente. Il est intéressant de noter qu'expérimentalement, l'intensité à partir de laquelle on observe une saturation sur le spectre à l'interface avec l'opale est de $\sim 25 \text{ mW/cm}^2$, valeur très supérieure à l'intensité de saturation théorique du césium pour cette transition ($\sim 1,1 \text{ mW/cm}^2$ [STE]).

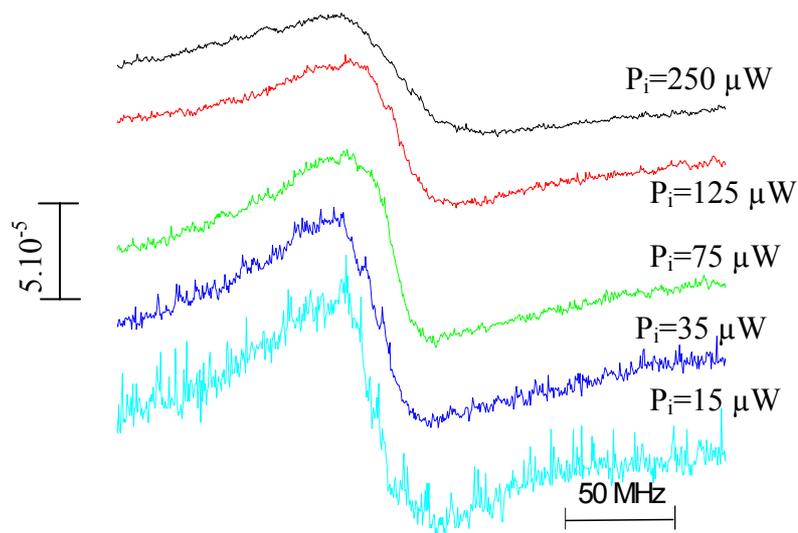


Fig 5.5 Evolution du spectre de réflexion sélective (SR_{FM}/I_R) sur l'opale (20 couches $1 \mu\text{m}$ de diamètre) avec la puissance incidente (diamètre de faisceau $\sim 0,4 \text{ mm}$; 10 MHz d'amplitude de modulation FM), transition 4-5 de la raie D_2 ($T_{\text{queusoi}}=90^\circ\text{C}$)

5.2.4 Tests de la présence d'impuretés et de l'amplitude de modulation FM : comparaison des signaux provenant d'une interface de verre et de l'opale

Afin de tester la qualité du système expérimental, et comme une partie de la fenêtre de la cellule n'est pas recouverte d'opale, on compare les signaux de réflexion sélective, réalisées sur l'opale, dont l'étude caractéristique fait l'objet de ce chapitre, et sur le verre où les caractéristiques sont bien connues (cf chap. 4).

a) Montage et précautions

Pour s'assurer de travailler dans des conditions expérimentales identiques, les spectres de réflexion sélective, sur la fenêtre de verre et sur l'opale, sont enregistrés simultanément (fig 5.6). L'opale, se comportant comme un piège à césium (cf chap 3), on pourrait craindre que la densité atomique à sa proximité ne soit différente de celle du reste de la cellule. Nous avons en fait préalablement vérifié l'homogénéité de la densité atomique en comparant la réflexion sélective depuis la zone sans opale de la fenêtre sur laquelle le dépôt a été effectué, et la réflexion sélective de la fenêtre opposée.

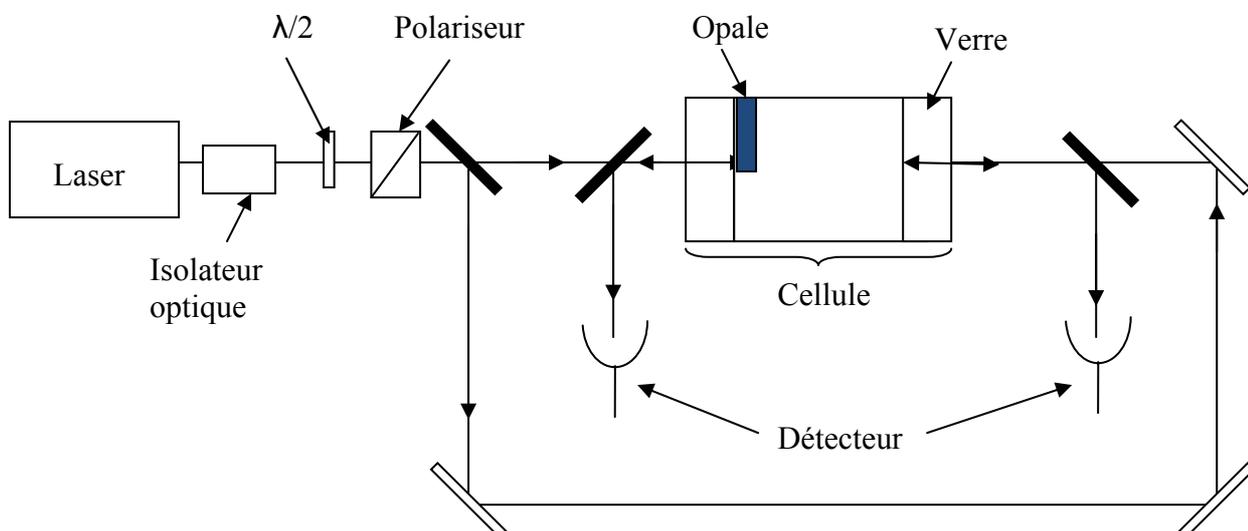


Fig 5.6 Montage de réflexion sélective sur l'opale et sur le verre en simultanément

b) Comparaison des signaux de réflexion sur le verre et l'opale

Les deux signaux sur le verre et sur l'opale (cf fig 5.7) présentent une allure globale assez proche : ils ont tous deux une forme dispersive et leur signe est identique. Cependant, des différences fondamentales existent entre les deux spectres. Celui venant de l'opale présente en effet une forte asymétrie qui n'est que peu visible sur le spectre correspondant à la RS réalisée sur le verre. Cette asymétrie, faible dans le cas d'une réflexion sélective sur une fenêtre plane, est d'ailleurs bien connue, et attribuée à l'attraction de van der Waals (cf chap. 4). Les largeurs ainsi que les amplitudes des transitions sont également très différentes. En effet, le signal provenant de l'interface de verre est 3 fois plus étroit, respectivement 10-12 MHz contre 30 MHz, et présente une amplitude 5 à 6 fois supérieure à celle du signal de réflexion sélective sur l'opale. Notons qu'une partie de cet écart d'amplitude se justifie simplement par l'utilisation de la FM qui fournit la dérivée du signal et favorise les structures étroites (plus le signal est étroit, plus la dérivée est importante). Ainsi en terme de signal atomique, cette différence d'amplitude se réduit à un facteur de ~ 2 .

Cette comparaison exclut donc la possibilité d'observer un signal sur l'opale élargi à cause du choix des conditions expérimentales : en effet, les données enregistrées pour le verre ont une largeur tout à fait acceptable, permettant notamment d'écarter la présence d'impuretés liée à un mauvais remplissage (cf chap.3). De plus les deux spectres sont obtenus simultanément avec la même source laser, celle-ci, y compris en tenant compte de la modulation de fréquence appliquée, ne peut donc pas être à l'origine de l'élargissement observé.

Signalons ici qu'un élargissement par une intensité laser saturante n'aurait pas pu être écarté par cette comparaison. En effet la propagation lumineuse dans ces deux matériaux étant différente, les intensités de saturation peuvent ne pas être identiques. De même, il n'est pas

certain que la densité de césium à l'intérieur de l'opale soit identique à celle du césium libre dans la cellule, ce qui justifie les études spécifiques précédentes.

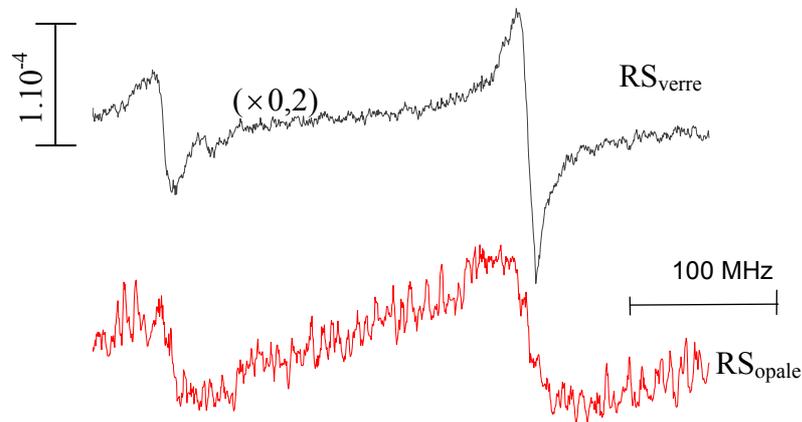


Fig 5.7 Comparaison des spectres de réflexion sur le verre et sur l'opale (SR_{FM}/I_R), enregistrés simultanément (transition D_2 $F=4$ composantes 4-4 et 4-5) en FM (10 MHz d'amplitude), en incidence normale.

5.2.5 Expérience de réflexion sélective en incidence normale sur des opales de géométrie différente

Ayant conclu que les caractéristiques du signal observé lors d'expériences de réflexion sélective sur l'opale composée de 20 couches de billes de $1 \mu\text{m}$ de diamètre étaient propres à la réflexion sélective sur l'opale, il est intéressant de voir comment ce signal est modifié si l'on change la géométrie de l'opale. Nous réalisons ainsi des expériences de réflexion sélective sur les autres cellules, contenant respectivement une opale composée de 10 couches de billes de $1 \mu\text{m}$ et une opale de 10 couches de $0,4 \mu\text{m}$. Notons que des expériences similaires sur des opales de tailles différentes contenues dans une même cellule (utilisation

d'échantillon possédant différentes épaisseurs) devraient prochainement être menées dans le groupe.

a) Comparaison des spectres de réflexion sélective réalisés sur des opales de 10 et 20 couches de billes de diamètre 1 μm

Les spectres obtenus sur l'opale de 10 couches de billes de 1 μm sont très similaires à ceux correspondant aux expériences sur l'opale de 20 couches. En effet ces spectres sont quasiment superposables (fig 5.8). La similarité des conditions expérimentales, notamment de densité atomique, a été vérifiée préalablement en comparant les spectres de réflexion sélective réalisés sur des régions sans opale de chaque cellule. De plus, ces opales sont issues de la même série de fabrication, ce qui assure une dispersion de taille des billes commune aux deux dépôts. Ces opales sont donc rigoureusement identiques hormis leur nombre de couches.

Les conditions de comparaison étant optimales, cette similitude entre les signaux laisse penser que la réflexion à l'origine de ces réponses atomiques n'a pas été modifiée de manière importante par le changement du nombre de couches.

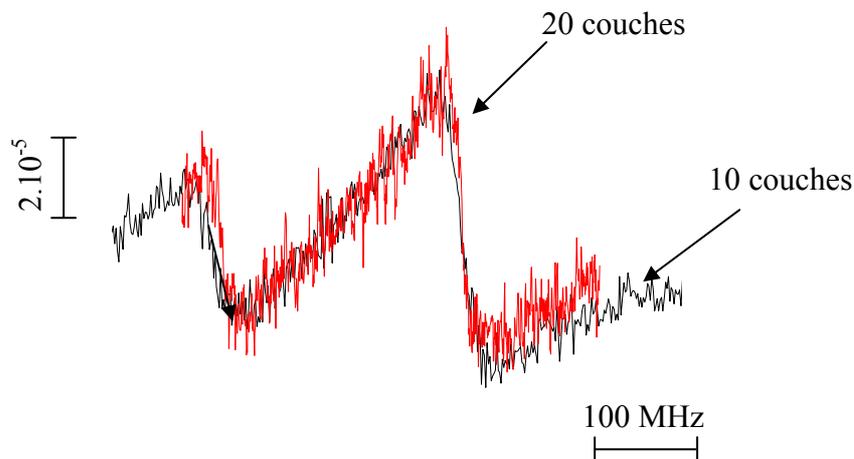


Fig 5.8 Spectres des signaux de réflexion sélective (SR_{FM}/I_R), pour des opales de 10 et 20 couches de 1 μm et un laser 852 nm en incidence normale (transition 4-5), détectés en FM (6 MHz d'amplitude)

b) Réflexion sélective en incidence normale réalisée sur une opale de 10 couches de billes de diamètre 0,4 μm

Comme nous l'avons vu précédemment (cf chap 3.3) le confinement important lié à l'utilisation de billes de diamètre $D = 0,4 \mu\text{m}$ est favorable à la présence des agrégats de césium dans l'opale. De plus, la condition $\lambda > D$ favorise la transmission du faisceau incident : ainsi pour un laser à $\lambda = 852 \text{ nm}$, la cellule présente un taux de transmission de 15% après remplissage, malgré l'absorption éventuelle par les agrégats.

La figure 5.9 présente des spectres correspondant aux expériences de réflexion sélective réalisées sur cette cellule pour une incidence faible (pour la raie D_2). Tout comme dans le cas d'une opale composée de billes de $1 \mu\text{m}$ de diamètre, ces signaux sont sub-Doppler. Cependant, ceux-ci diffèrent de manière importante des spectres obtenus sur les opales de billes de $1 \mu\text{m}$ de diamètre pour les mêmes conditions expérimentales. En effet, l'asymétrie est très différente. Il est cependant difficile d'analyser l'évolution de la forme des spectres avec la taille des billes, l'influence des agrégats et de la transmission sur la réponse atomique n'étant pas déterminée. Surtout, des changements de forme importants sont observés sur les signaux, suivant la zone de l'opale illuminée. Cette dépendance spatiale du signal s'explique certainement par une inhomogénéité dans la structure de l'opale, celle-ci pouvant avoir de multiples causes (défaut intrinsèque au dépôt d'opale, répartition inhomogène des agrégats, attaque chimique du césium, etc...). Malgré ces problèmes de reproductibilité, il est très intéressant de retrouver un signal sub-Doppler en incidence normale sur l'opale de billes de 400 nm .

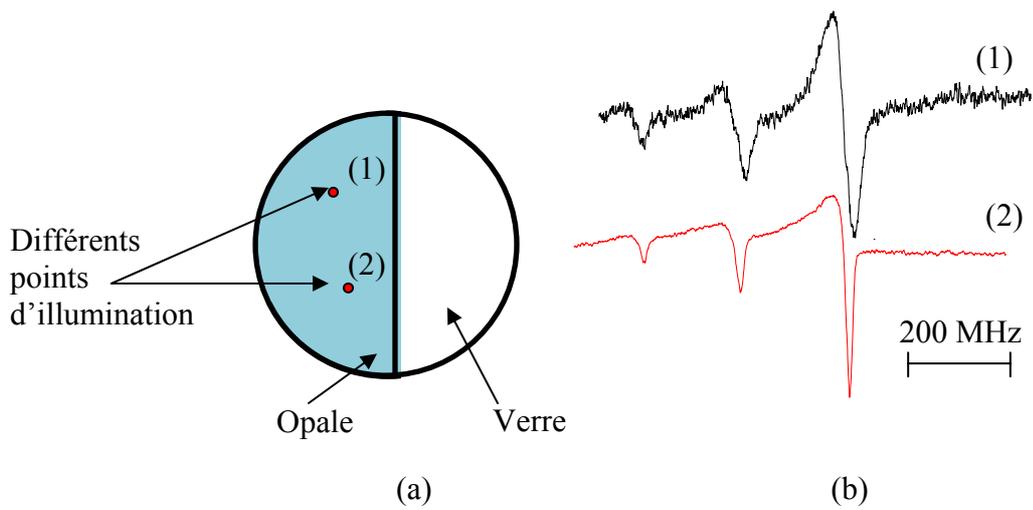


Fig 5.9 (a) Illumination de différents points de l'opale, (b) Spectres de réflexion sélective correspondant aux points d'illumination (1) et (2) de l'opale composée de 10 couches de billes de 400 nm, pour une incidence normale et $\lambda=852$ nm ($F=4$).

5.3 Origine spatiale du signal

Bien que le seul fait de pouvoir observer un signal sub-Doppler sur un milieu tel qu'une opale soit déjà une bonne avancée, la question de la localisation exacte de la réflexion détectée reste entièrement posée et s'avère cruciale pour comprendre la physique responsable des signaux observés.

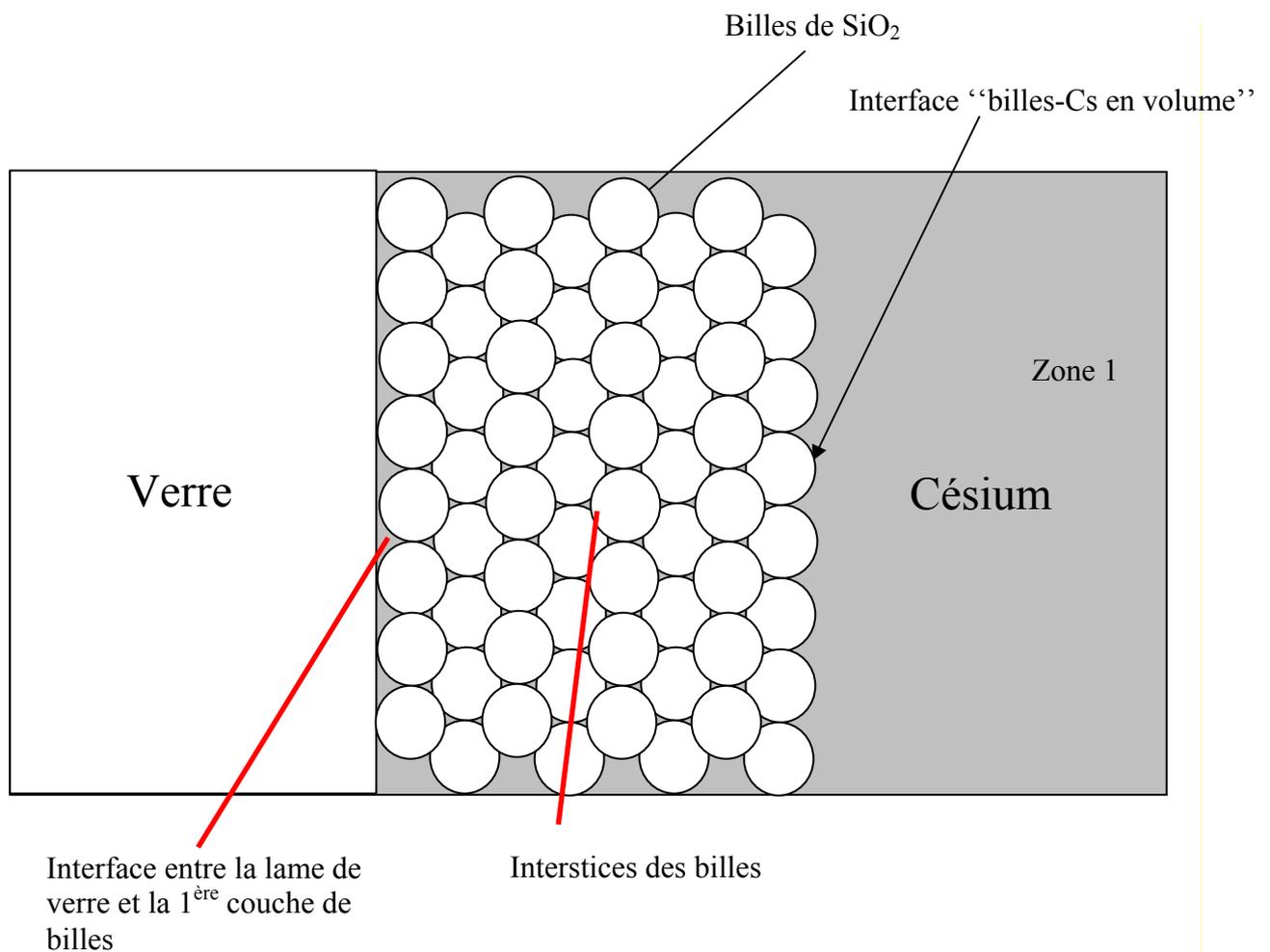


Fig 5.10 *Illustration schématique des différents types de confinement du césium dans le système*

Lorsque l'on regarde en détail le système "opale-césium" il est possible de distinguer trois origines spatiales différentes à la réflexion, chacune correspondant à un type spécifique de confinement de la vapeur (fig 5.10). Ainsi le signal de réflexion peut être associé à l'interface composée de la dernière couche de billes et de la vapeur de césium, aux interstices entre billes, ou encore à l'espace libre compris entre la lame de verre et la première couche de billes.

5.3.1 Possibilité d'une réflexion sélective sur l'interface "billes-vapeur"

a) Position du problème

Une explication à la largeur inhabituelle des spectres détectés pourrait être que les atomes sondés sont des atomes libres. Le signal observé proviendrait alors de la réflexion à l'interface représentée par la dernière couche de billes et la vapeur de césium (fig 5.11). Nous détecterions une réflexion sélective sur une interface vallonnée, ce qui, bien qu'intéressant et inexploré, nous éloignerait de la notion d'atomes confinés. Seul un confinement optique, engendré par la méthode de détection (réflexion sélective), affecterait ces atomes.

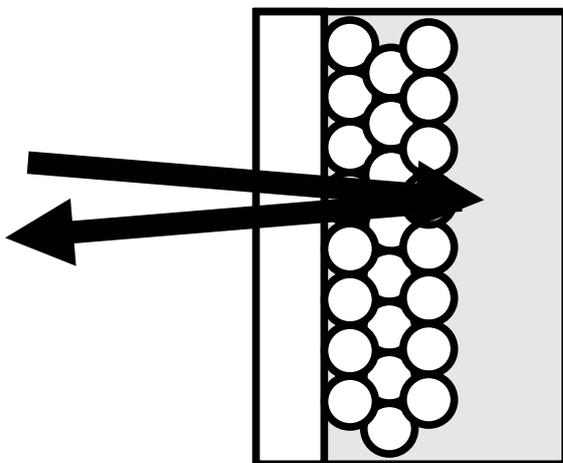


Fig 5.11 Réflexion sélective sur les atomes situés après la dernière couche de billes

Comme nous l'avons vu précédemment (cf chap 4.2), dans une réflexion sélective FM sur une interface plane en incidence normale, les atomes se déplaçant en vol quasi parallèle à l'interface sont détectés préférentiellement, engendrant le caractère sub-Doppler des spectres. Dans le cas où l'angle d'incidence n'est plus négligeable, la sélection de vitesse s'élargit, provoquant en FM, une diminution de l'amplitude du signal sub-Doppler (cf 4.3.6). Nous nous demandons alors s'il ne serait pas envisageable que nous ne sondions pas les atomes confinés dans les interstices mais ceux présents de l'autre côté de l'opale, c'est-à-dire que nous effectuerions une réflexion sélective sur une interface non plane d'atomes non confinés géométriquement. Ainsi la non-planéité de l'interface pourrait rendre délicate la notion d'atomes "en vol quasi parallèle à la paroi" (fig 5.12 b). De même, le caractère (optiquement) diffusif de l'opale pourrait élargir la distribution des vecteurs d'onde du faisceau se propageant dans la vapeur (fig 5.12 c). Par analogie avec la configuration d'une réflexion sélective en incidence oblique (pour une interface plane), ces deux situations pourraient être responsables d'un élargissement.

Dans le but d'approfondir l'idée selon laquelle le signal observé serait la résultante d'une réflexion sélective sur une interface rugueuse, nous avons comparé les résultats issus d'une réflexion sélective sur l'opale à des spectres de réflexion sélective élargis par une incidence sous angle non nul.

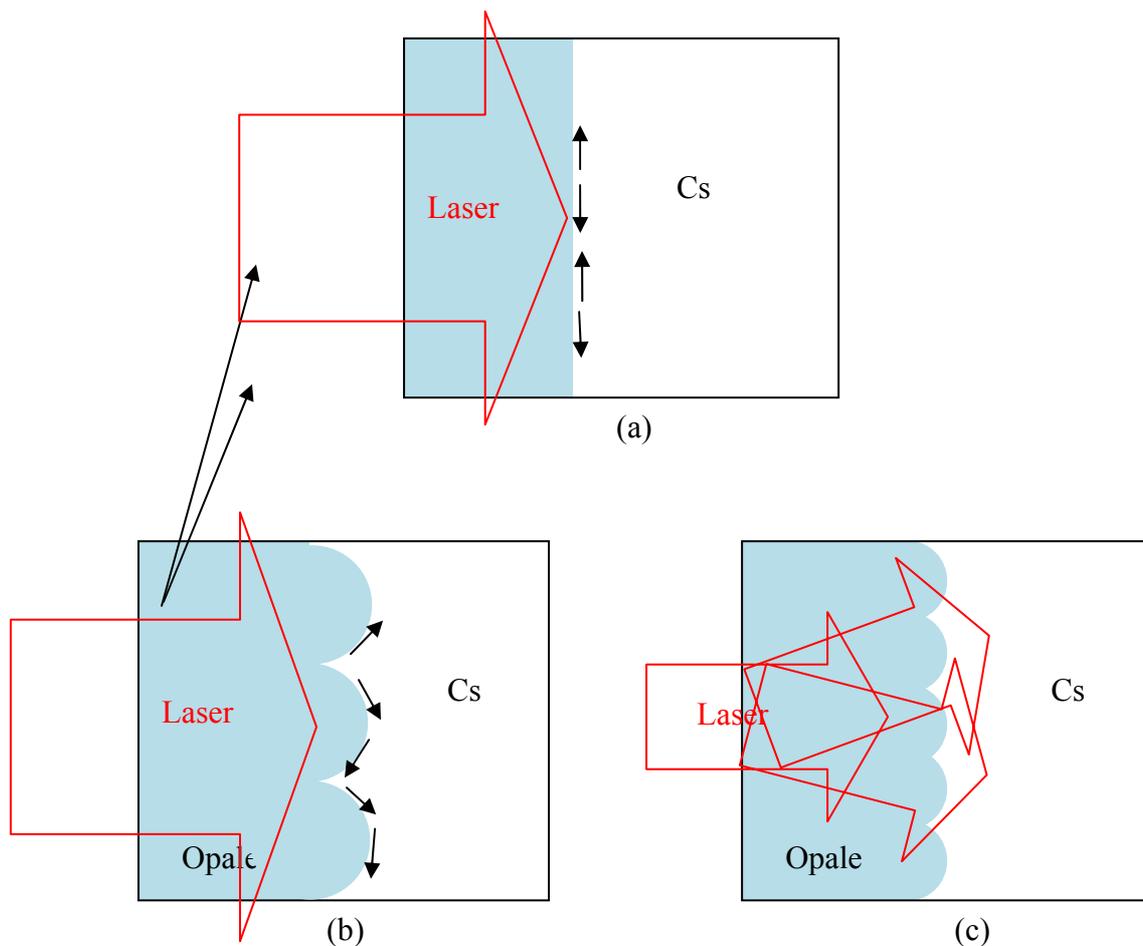


fig 5.12 : Représentation schématique des effets de surface sur la distribution de vitesse atomique : (a) dans le cas d’une interface plane, (b) dans le cas d’une interface vallonnée, (c) effets d’une interface vallonnée sur le laser

b) Tentative de fit des signaux avec des modèles adaptés au cas d’une réflexion sélective sur une interface plane

La propagation des champs incidents ou réfléchis dans une opale est extrêmement complexe (des collaborations sont en cours avec l’équipe de V. Klimov afin de mieux comprendre cette propagation), rendant impossible la création d’un programme modélisant notre système. Pour tenter de simuler les spectres expérimentaux, nous utilisons un programme de “fit” pour accorder l’expérience à des spectres théoriques de réflexion sélective sur une interface plane, mais pour une incidence oblique.

Le programme fonctionne en trois étapes distinctes. Dans un premier temps, il simule un spectre théorique élargi par l'angle d'incidence choisi à partir d'une bibliothèque de courbes théoriques pour différentes valeurs du paramètre $A = \frac{2C_3 k^3}{\gamma}$ (cf chap. 4.3). Nous devons cependant limiter l'exploration aux petits angles ($<10^\circ$), le signal de réflexion sélective pour des valeurs angulaires supérieures n'étant plus numériquement calculable par une intégrale simple (cf 4.3.6 [DUC]).

La seconde étape consiste à créer un spectre de synthèse correspondant à la transition étudiée à partir du spectre élargi (nombre de niveaux hyperfins, probabilité de transitions, etc..). En effet, travaillant à partir du niveau fondamental $F=4$ de la raie D_2 du césium (852 nm), nous détectons les composantes hyperfines 4-3, 4-4, 4-5, distantes les unes des autres respectivement de 201 MHz et 251 MHz. Le programme additionne donc trois courbes décalées en fréquence et multipliées par les rapports théoriques d'amplitude correspondants (respectivement $7/72$, $7/24$, $11/18$ [STECK]), simulant ainsi un spectre depuis le niveau $6 S_{1/2}$ ($F=4$) élargi par l'angle désiré.

Enfin, ce spectre de synthèse subit des homothéties d'amplitude et des translations de fréquence afin de correspondre à la courbe expérimentale. La position des composantes étant imposée par la référence de l'expérience (absorption saturée ou réflexion sur le verre), les modifications sur l'échelle de fréquence sont limitées à des faibles variations de la largeur des transitions. Le programme génère ainsi un premier spectre simulant grossièrement la courbe expérimentale. Les paramètres de modifications sont ensuite soumis à une méthode des moindres carré (cycle d'itération visant à minimiser une valeur d'erreur). Au final nous disposons donc de la courbe optimisée ainsi que des paramètres les plus adaptés.

Dans un premier temps, les essais de "fit" sont limités à la composante 4-5 de la transition $6S_{1/2} - 6P_{3/2}$. A titre préliminaire, un test consistant à simuler le signal obtenu sur le verre pour une incidence normale a été réalisé. Pour un paramètre de l'interaction de van der

Waals $A=0,05$ (cf chap 4.3), la courbe générée par le programme coïncide parfaitement avec le spectre expérimental (fig 5.13); ceci est en accord avec les résultats antérieurs du groupe et montre que la cellule a un comportement tout à fait “normal” pour la partie “verre” de la fenêtre

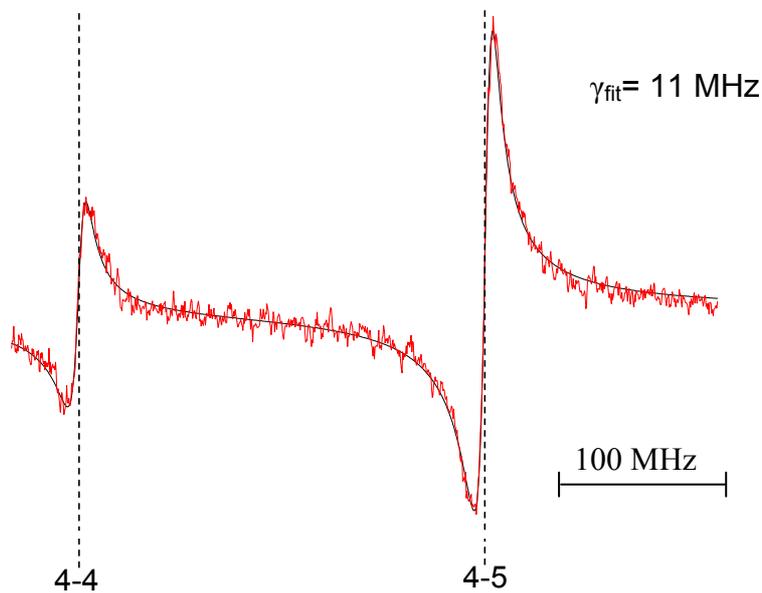


Fig 5.13 *Spectre de la réflexion sélective sur le verre de la transition 4-5 en incidence normale et fit effectué avec un paramètre $A=0.05$ pour une incidence normale.*

Les paramètres optimaux pour le verre et l’opale sont différents, mais il est apparemment possible de trouver un spectre théorique se rapprochant de l’expérience (fig 5.14). Les plus grandes incompatibilités entre les deux courbes sont situées au niveau des ailes, et il faut donc tenir compte de l’influence des transitions environnantes. Pour éclaircir ce point nous effectuons des enregistrements avec des balayages en fréquence plus grands contenant les trois structures hyperfines. Ainsi, quand on se limite à la partie centrale du spectre, la comparaison entre le spectre simulé et le spectre expérimental est acceptable, au

prix cependant d'une largeur $\gamma_{\text{fit}}=45$ MHz qu'il faudrait justifier par une moindre sélectivité des vitesses atomiques. Au contraire, pour des spectres contenant l'ensemble de la structure hyperfine de la transition, les discordances entre les deux courbes sont manifestes (Fig 5.15.a). En particulier, les positions en fréquence des raies données par le fit ne peuvent correspondre à un cas réaliste.

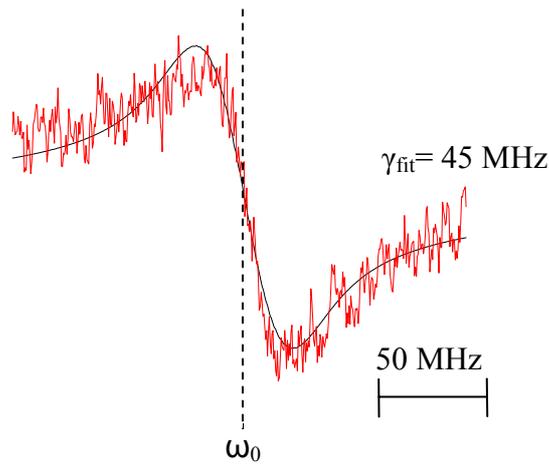


Fig 5.14 *Spectre de la réflexion sélective sur l'opale de la transition 4-5 en incidence normale et fit effectué avec un paramètre $A=0,05$ et $\Theta_{\text{fit}}=4,5^\circ$.*

Malgré de nombreuses tentatives avec des choix de paramètres différents, aucune simulation ne coïncide avec la courbe expérimentale. Nous essayons alors non plus d'utiliser les courbes théoriques d'un unique spectre élargi par effet Doppler résiduel, mais un moyennage de plusieurs spectres associant différents angles. En effet, si l'on adopte le concept d'un faisceau légèrement diffusé par l'opale, celui-ci est alors composé d'une multitude de directions autour d'une position initiale. Dans ce cas, la réponse atomique pourrait être la moyenne des réponses de chacune des directions. Cependant, cette approche s'avère également inefficace. En effet, une augmentation de l'angle d'incidence provoque un élargissement de la transition et une diminution de l'amplitude des spectres de réflexion

sélective (cf fig 5.15 b), mais n'introduit pas d'asymétrie. Or, c'est cette asymétrie que le programme n'arrive pas à simuler.

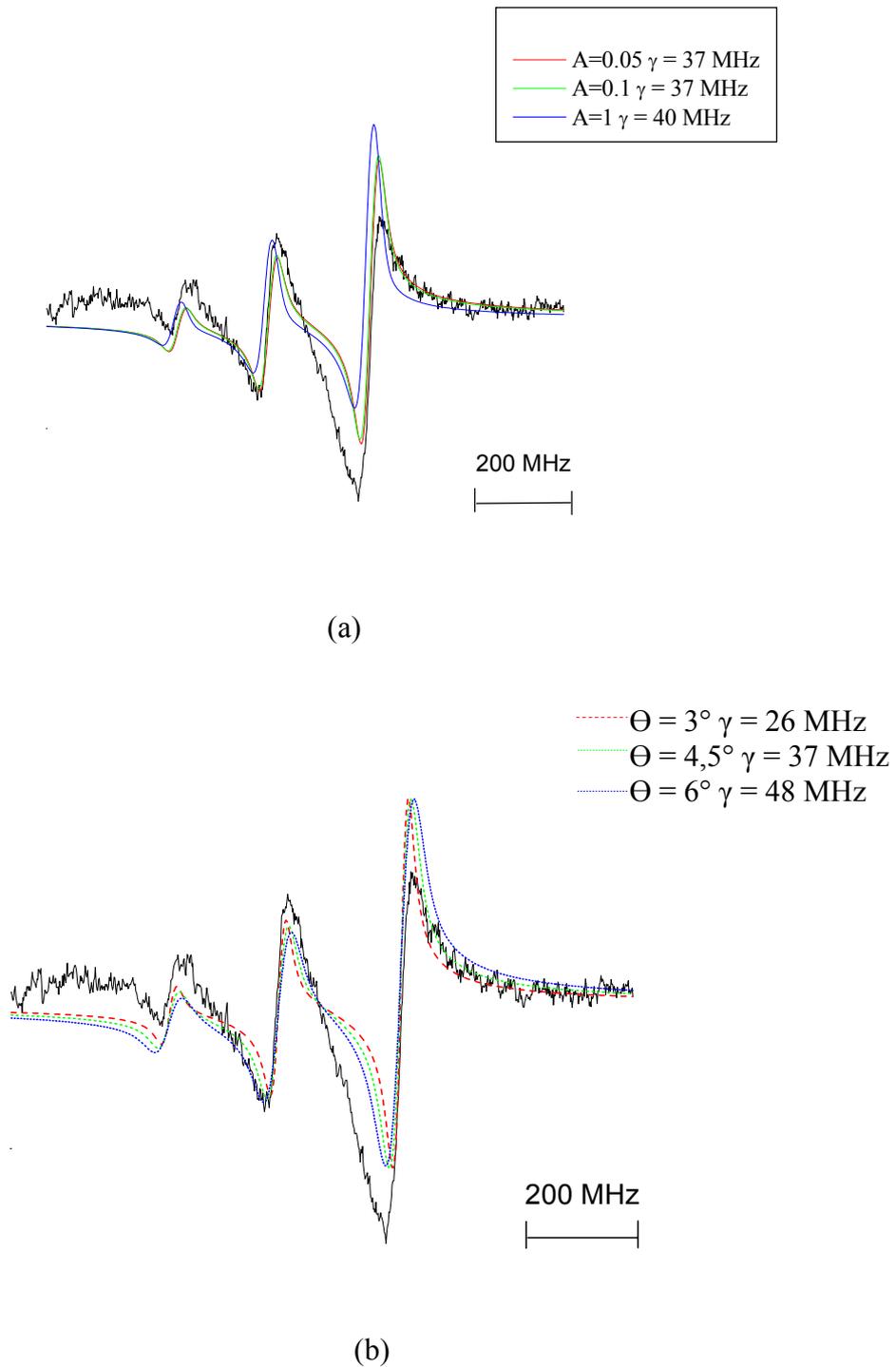


Fig 5.15 Spectre de la réflexion sélective sur l'opale de la raie D_2 ($F=4$) en incidence normale et fits d'un spectre de réflexion sélective : (a) pour différents paramètres de van der Waals A (pour $\Theta_{fi}=4,5^\circ$) (b) pour différents angles d'incidence (pour $A=0,05$).

Ce dernier test se révélant également non satisfaisant, nous concluons qu'aucune modélisation des spectres expérimentaux ne peut être obtenue avec le modèle théorique de génération de courbe utilisé. Cependant, cela ne réfute pas pour autant l'explication de l'élargissement par une réflexion sélective sur une interface vallonnée. En effet comme il a été mentionné précédemment, le logiciel fonctionne avec une bibliothèque de courbes déduite de la théorie de la réflexion sélective sur une interface plane, rendant notre modèle de "fit" inadapté pour valider ou invalider cette idée. Pour obtenir des comparaisons significatives, il faudrait reproduire les conditions de rugosité de l'interface, et donc complexifier le modèle, en y incluant une modification de la distribution de vitesse des atomes autour de l'interface et prendre en compte un possible effet de diffusion sur le faisceau incident.

c) Epaisseur de l'opale et incompatibilité avec un signal "au dessus" de l'opale

Dès les premiers signaux sub-Doppler observés sur l'opale, nous avons en fait recherché à nous assurer que ces signaux ne venaient pas de l'interface opale-vapeur, et c'est pourquoi nous avons entrepris les comparaisons à des "fits" décrites ci-dessus. Des arguments plus quantitatifs, sur la taille même des différents signaux de réflexion vont dans ce sens.

Nous avons ainsi vu (cf 5.2.3) que les signaux de réflexion sur l'opale ne sont pas beaucoup plus petits que ceux plus étroits, sur une interface plane, alors que la transmission d'un laser 852 nm dans le verre est de 96% et qu'elle n'est que de 0,2% dans une opale de 10 couches.

Ce raisonnement est confirmé en comparant les opales de 10 et 20 couches d'épaisseur de billes de 1 μm , correspondant à des situations expérimentales encore plus proches. Les réflexions après un aller-retour sur 10 ou 20 couches devraient être nettement différentes en

amplitude au vu de leur taux respectif de transmission (écart supérieur à un ordre de grandeur de différence) dans le cadre d'une expérience de réflexion sélective sur l'interface "billes- Cs en volume". Or ces spectres, pour des conditions expérimentales identiques, sont très similaires (cf 5.2.3.a).

Même si les valeurs de transmission indiquées pourraient être nuancées par le fait qu'elles correspondent à des mesures en champ lointain, et que la situation pourrait être différente en champ proche (avec des résultats voisins pour des opales de 10 ou 20 couches), l'ensemble des observations expérimentales paraît donc exclure la possibilité d'une détection de réflexion sélective à l'interface formée par la dernière couche de billes de l'opale.

d) Possibilité d'un décollement localisé des billes

Les expériences de réflexion sélective sur l'opale en incidence normale ont mis en évidence une relative similitude entre la réflexion détectée hors résonance et celle provenant de la lame de verre sur laquelle sont disposées les billes. Ainsi, les réflectivités mesurées sont très proches, de fortes interférences ayant même été constatées lorsque les deux faisceaux n'étaient pas parfaitement séparés. Ces observations, courantes lorsque l'on étudie une unique lame de verre (avec 2 interfaces air/verre), mais inattendues dans la configuration d'une réflexion sur une opale et une lame de verre, font envisager la possibilité d'un décollement localisé des billes (NB : les mesures détaillées du chapitre 2 sont en partie postérieures aux premiers résultats obtenus en cellule que nous décrivons ici. Dans un modèle d'opale à "indice effectif" la réflexion attendue à l'interface verre-opale devrait être très faible). En effet lors de la fabrication des cellules, les bords de la fenêtre faisant office de support pour l'opale doivent être soudés au corps de la cellule. Cette opération entraîne des contraintes thermiques et mécaniques, potentiellement responsables d'une altération de l'opale, voire d'un

décollement localisé des sphères de silice. De même, nous ne pouvons exclure que l'opale présente de manière intrinsèque ce type de défauts. Dans cette situation, nous effectuerions alors une réflexion sélective sur une zone mince située entre la lame de verre et les billes dans laquelle les atomes ne seraient pas soumis à un confinement 3D (fig 5.16). Cette situation expliquerait alors la similitude entre les signaux de réflexion sélective obtenus sur les opales de 10 et 20 couches de billes de 1 μm .

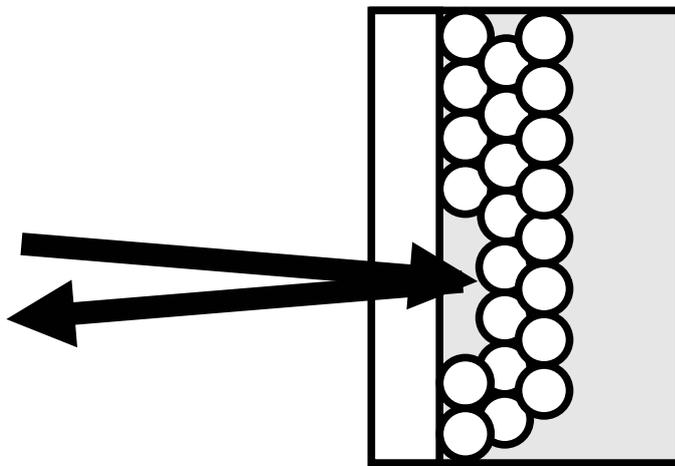


Fig 5.16 Représentation d'une réflexion sélective dans le cas d'un décollement localisé des billes

Afin de mettre en évidence l'éventuelle absence de billes sur certaines zones de l'interface "lame de verre-première première couche de billes", nous déplaçons le point d'illumination du laser sur différentes régions de l'opale. De plus, pour augmenter la résolution des régions étudiées, le laser est focalisé (200 μm de diamètre).

Pour divers déplacements (compris entre 0,5 cm et 1cm), les spectres sont parfaitement identiques (fig 5.17). La reproductibilité des enregistrements sur différentes régions de l'opale, ainsi que sur des cellules différentes (10 et 20 couches), tend à prouver que nos opales n'ont pas souffert lors de la période de chauffage. Un décollement généralisé des billes, et pour les deux cellules, semble donc inenvisageable.

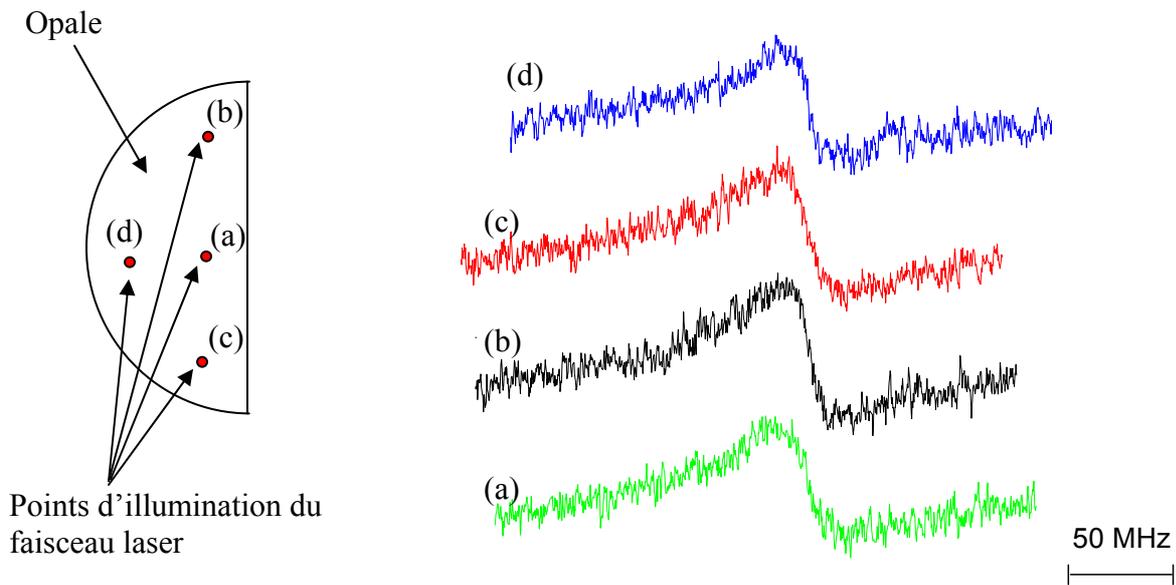


Fig 5.17 Spectres de réflexion sélective, obtenus sur différentes régions de l’opale (10 couches $1\mu\text{m}$ de diamètre), transition 4-5 de la raie D_2 pour un angle d’incidence.

L’ensemble des tests réalisés, que ce soit la comparaison réalisée sur des opales d’épaisseur différente ou la confirmation de l’homogénéité du dépôt de billes sur la lame de verre, indique donc que le signal observé n’est pas la réponse d’atomes se déplaçant librement, mais des atomes présents à l’intérieur du système “lame de verre+opale”.

5.3.2 Inhomogénéités de confinement et d’indice induites par l’opale

a) Inhomogénéité spatiale du confinement à l’intérieur de l’opale

Les résultats précédents montrent que le signal détecté est induit par la réponse des atomes confinés dans l’opale. Cependant, le confinement au sein même du système “lame de

verre+opale'' n'est pas homogène. En effet, deux types de confinement peuvent être discernés : celui correspondant à la portion comprise entre la lame de verre et la première couche de billes, et celui correspondant aux interstices de l'opale. Selon la zone à considérer, le confinement est complètement différent.

Afin de mieux appréhender l'inhomogénéité du confinement dans notre système expérimental, considérons deux coupes de cette opale, l'une très proche de la fenêtre de verre, l'autre éloignée d'environ un rayon de bille (fig 5.18). On constate que dans la première tranche le libre parcours moyen est fortement anisotrope : dans ces régions le confinement atomique semble plus proche d'être 1D que 3D (cas de la fig 5.18.a, lorsque $z \ll r$). Au contraire pour $z = r$ les conditions structurales sont plus propices à un véritable confinement 3D des atomes (5.18 b). Pour une troisième coupe au-delà de $z = 2r\sqrt{2/3}$, le confinement reste 3D du fait de la présence de la deuxième couche de billes (fig 5.18.b et .c). Par symétrie, ce confinement est identique jusqu'à l'avant dernière couche de l'opale considérée. L'inhomogénéité du confinement est ainsi limitée à la zone de contact des billes sur la lame de verre. Bien que simpliste, cette première approche illustre l'existence d'une inhomogénéité du confinement et révèle la dépendance spatiale de cette inhomogénéité.

b) Indice effectif et inhomogénéité

Régulièrement utilisée lors de l'introduction de dopants, dans le domaine des fibres optiques ou pour des cristaux colloïdaux [MAS], la notion "d'indice effectif" permet de calculer l'indice moyen d'un milieu contenant diverses inclusions.

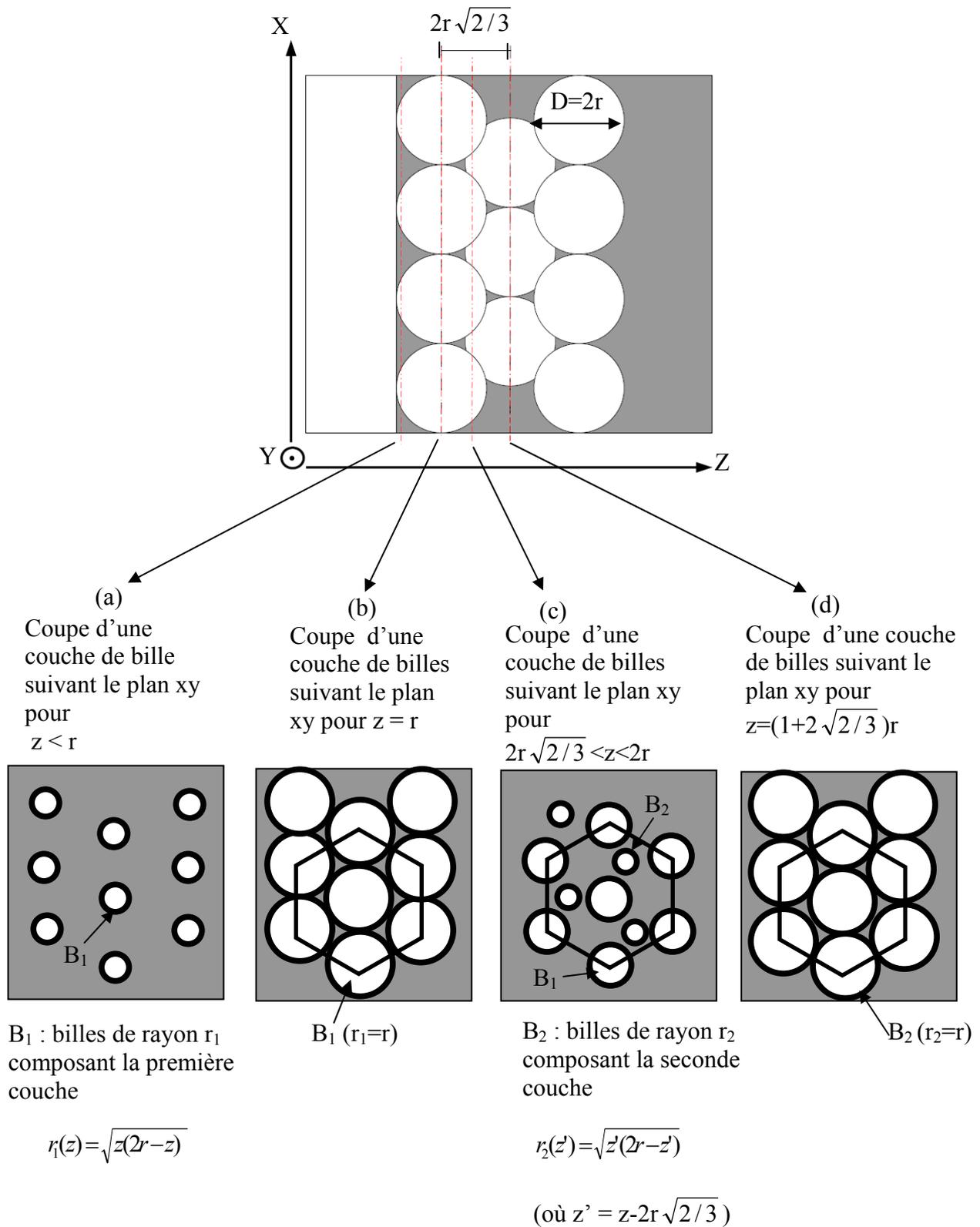


Fig 5.18 Représentation de trois plans de coupe de l'opale, (a) coupe de la fenêtre de verre), (b) coupe au niveau du centre de la première couche de billes, (c) coupe pour $z \sim 2r\sqrt{2/3}$

Dans la situation où seulement deux espèces sont considérées, par exemple un milieu avec des impuretés, il s'exprime par :

$$n_{eff} = \sqrt{f\varepsilon + (1 - f)\varepsilon_1} \quad (5.1)$$

où f est le facteur de remplissage, c'est-à-dire le volume occupé par la première espèce, ε et ε_1 les permittivités respectives de la 1^{ère} et 2^{ème} espèce. Cette méthode d'indice effectif n'a de fondement que dans le cas où les dimensions caractéristiques des inclusions sont faibles comparativement à la longueur d'onde, et paraît en principe difficilement applicable à notre système, même si divers travaux d'optique avec des opales utilisent le concept d'indice effectif [MAS].

Pour contourner ce problème, l'équipe a développé une méthode calculant l'indice effectif non pas sur le volume total de l'opale mais sur des plans parallèles à la fenêtre, $n_{eff}(z)$, en tenant compte d'un facteur de remplissage par plan.

$$n_{eff}(z) = \sqrt{f(z)\varepsilon_{SiO_2} + (1 - f(z))\varepsilon_{air}} \quad (5.2)$$

Le facteur de remplissage pour une tranche d'opale s'écrit comme le rapport de la surface de silice, $S(z)$, contenue dans une maille sur la surface de celle-ci. En considérant une maille hexagonale du réseau contenant l'équivalent de 3 billes par couche, telle que sur les figures 5.18 (b-d), on trouve pour l'opale de la fig 5.18 : $S(z) = 3\pi r_1^2(z)$ dans le cas où la tranche considérée ne contient qu'une couche d'opales (cas de fig 5.18 b), et $S(z) = 3\pi r_2^2(z) + 3\pi r_1^2(z)$, si la tranche contient deux couches d'opales (cas de fig 5.18 c).

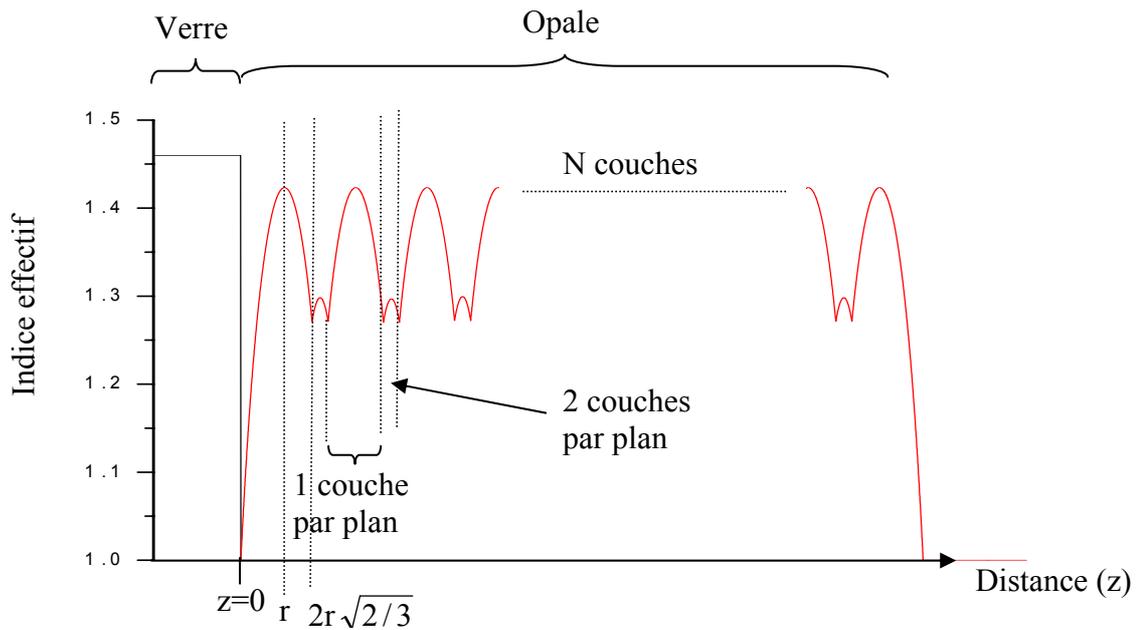


Fig 5.19 Evolution de l'indice effectif suivant la localisation dans le système "lame de verre+opale".

La fig 5.19 représente $n_{\text{eff}}(z)$ et illustre l'inhomogénéité spatiale de l'indice. Ainsi à proximité du verre, on observe un saut important dans la courbe d'indice. Au-delà de $z=r$, l'empilement des couches crée une structure périodique qui se répète jusqu'à la dernière couche de billes. Dans cette structure périodique, l'indice varie plus modérément. La réflectivité étant liée à l'indice du matériau, on peut penser que cette discontinuité à l'interface "fenêtre-opale" favorise la réflexion à ce niveau, et privilégie donc la détection de la réponse des atomes situés dans cette région, c'est-à-dire ceux qui ne sont pas véritablement confinés en 3D.

Dans la suite de nos travaux, (section 5.4 et chap. 6), nous retrouverons à plusieurs reprises cette discussion sur l'origine principale du signal de réflexion, pour déterminer si nos observations sont associées à un signal de l'interface "fenêtre-opale", ou s'il correspond à un signal venant plus profondément des régions interstitielles du volume de l'opale.

5.4 Expérience de réflexion sélective avec une incidence oblique

Nous présentons dans cette section les résultats de réflexion sélective obtenus sur une opale pour une incidence oblique. Ceux-ci mettent en évidence la dépendance du signal avec l'angle d'incidence, mais également avec la polarisation du faisceau laser, et semblent montrer que pour certaines conditions expérimentales bien définies il est possible d'observer un signal s'apparentant à un rétrécissement Dicke.

5.4.1 Evolution angulaire : Observation d'une nouvelle structure sub-Doppler

a) Montage expérimental

Pour varier l'angle d'incidence, on installe un dispositif permettant de déplacer le four contenant la cellule. Ce four est ainsi fixé à un support mécanique tournant librement. Pour maximiser l'excursion angulaire, la cellule est rapprochée au maximum de la fenêtre du four tout en maintenant un espace suffisant pour ne pas engendrer de points de contact avec les parois. Même si les résultats pour une incidence normale sont indépendants du point d'illumination de l'opale (cf 5.3.2), il est souhaitable de toujours éclairer la même région quel que soit l'angle d'incidence afin de pouvoir comparer les enregistrements. La cellule doit donc être positionnée de telle sorte que l'opale soit située sur l'axe de rotation du four, et le laser est orienté de façon à illuminer une zone située sur cet axe. L'ensemble des

réajustements apporté au système permet d'observer des réflexions jusqu'à une incidence de $|\Theta| < 60^\circ$. Au-delà, les faisceaux ne rentrent pas ou ne sortent plus en totalité du four.

Afin de garantir la reproductibilité des expériences et d'avoir une résolution suffisante, il est nécessaire de pouvoir déterminer avec précision l'angle d'incidence du faisceau laser. Ces angles sont ainsi mesurés géométriquement, à partir du triangle composé du faisceau incident et de sa réflexion (cf fig 5.20). Pour cela, deux diaphragmes sont disposés sur les chemins des faisceaux incident et réfléchi afin de servir de points de repère. La mesure des segments AB et BC (mesurant respectivement typiquement 20 cm et entre 20 cm et 40cm), représentant respectivement les distances entre le faisceau incident et réfléchi et la cellule, s'effectue dans le plan de la table optique. La position de la cellule est ainsi projetée sur la table, puis l'on mesure la distance entre ce point et les supports de chaque diaphragme avec une erreur de $\sim 0,8$ cm. L'importance de cette valeur s'explique par la difficulté d'évaluer avec précision la position de la fenêtre à l'intérieur du four. Le segment [AC] (distance entre les ouvertures de chaque diaphragme) est quant à lui mesuré avec une erreur de $\sim 0,3$ cm. Le calcul de l'incertitude totale permet d'estimer l'erreur sur la mesure à $\sim 0,7^\circ$. De plus, la valeur obtenue est comparée à la valeur graduée indiquée par la pièce tournante à chaque expérience, assurant ainsi une mesure de contrôle.

Il est enfin important de signaler ici que les valeurs d'angles données sont directement celles mesurées par rapport à la réflexion sur l'interface air-verre de la cellule, et ne sont donc pas les angles réels d'incidence sur l'opale (pas de réajustement lié à la réfraction du verre).

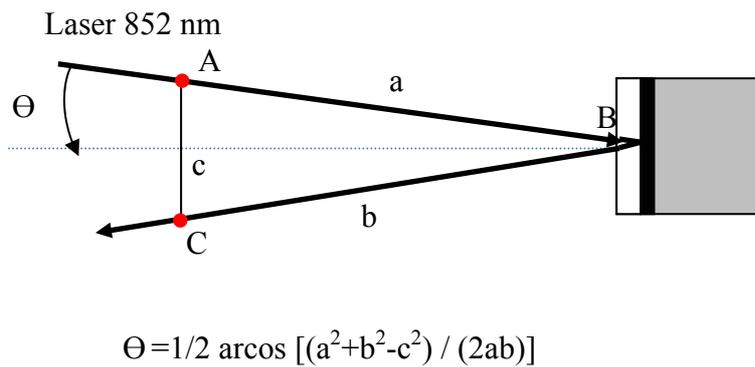


Fig 5.20 *Mesure géométrique de l'angle d'incidence*

b) Elargissement du signal avec l'angle d'incidence du faisceau laser

La figure 5.21 présente l'évolution des spectres de réflexion sélective sur la raie D₂ avec l'angle d'incidence, pour l'opale composée de 10 couches de billes de 1 μm de diamètre. Pour une excursion angulaire allant de 0° à 30°, on observe un élargissement important du signal, allant de la diminution de la résolution des composantes hyperfines jusqu'à la perte du caractère sub-Doppler du signal, ainsi qu'une diminution non négligeable de l'amplitude des transitions. Bien que plus progressive, cette dépendance des spectres avec l'angle d'incidence rappelle le comportement des signaux de la réflexion sélective sur une interface plane pour une incidence non nulle [AKU]. De plus, la forme intrinsèque des transitions est modifiée par l'angle d'incidence, la forme dispersive à incidence nulle évoluant vers une forme absorptive aux grands angles.

Aux grands angles d'incidence, l'élargissement très important du signal empêche d'étudier avec précision l'évolution de la forme des transitions de la raie D₂. En effet, aux alentours de 30°, l'élargissement est tel que les transitions se recouvrent totalement.

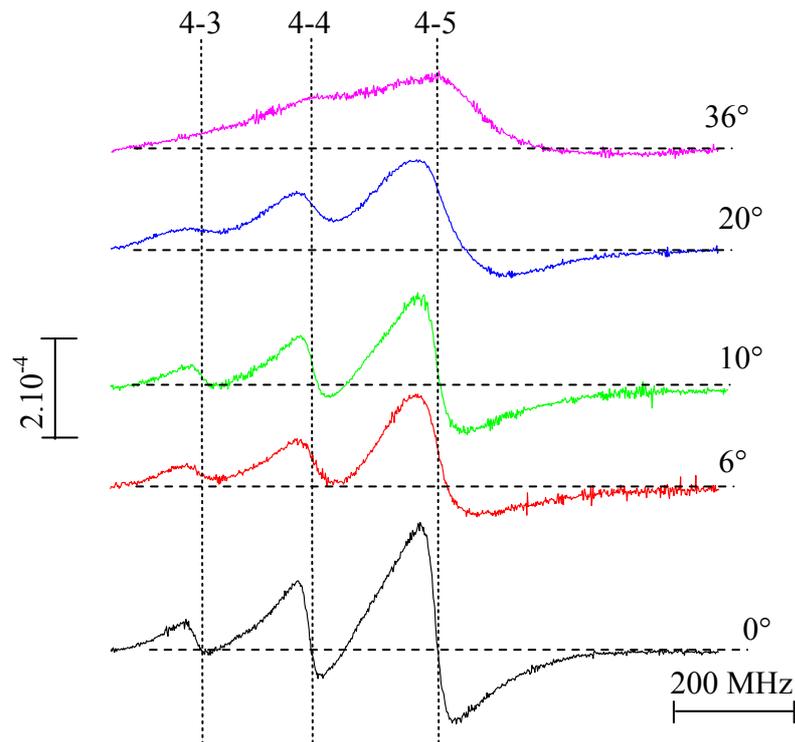


Fig 5.21 *Elargissement du spectre de réflexion sélective sur l'opale (SR_{FM/I_R} , 10 couches $1 \mu\text{m}$ de diamètre) avec l'angle d'incidence (transition $F=4$ de la raie D_2 du césium, 12 MHz de FM, polarisation TE).*

c) Observation d'une nouvelle structure sub-Doppler

Un comportement analogue à celui rapporté dans 5.4.1.b est observable sur la raie D_1 , qui a l'avantage de posséder des sous niveaux distants de plus de 1 GHz évitant les problèmes de recouvrement, ce qui permet ainsi de mesurer l'élargissement de la raie avec l'angle d'incidence avec plus de précision. On note cependant, aux alentours de 40° , une discontinuité sur la partie supérieure des enregistrements (cf fig 5.22). Cette discontinuité, dont l'effet ressemble à une simple non-linéarité de balayage, s'avère être tout à fait reproductible. Remarquablement, lorsque l'on compare les enregistrements de réflexion sélective et d'absorption saturée, on constate que cette discontinuité est positionnée au niveau de la résonance atomique.

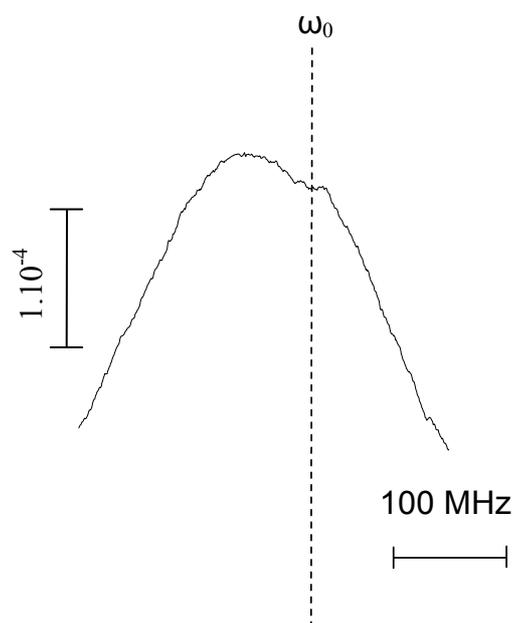


Fig 5.22 *Spectre de réflexion sélective (SR_{FM}/I_R) pour $\lambda = 894 \text{ nm}$ et $\Theta = 40^\circ$, sur une opale de 10 couches de billes de $1 \mu\text{m}$ (transition 3-4 de la raie D_1 du césium en polarisation TE).*

Les angles d'incidences nécessaires à l'observation de cette structure la rendent particulièrement intéressante. En effet, elle pourrait être la signature d'un signal engendré par effet Dicke [DICKE]. Cependant, il est nécessaire de s'assurer que ce signal est intrinsèque à l'opale, avant de caractériser plus en détail cette structure étroite sans équivalent.

d) Caractère intrinsèque de la structure sub-Doppler

Dans la crainte de détecter d'une manière quelconque une fraction parasite du signal de l'absorption saturée (par un retour sur le détecteur, voire par une contamination électronique des voies d'enregistrements du DAQ), nous avons vérifié que cette partie du montage peut être coupée optiquement, sans que ceci n'affecte la présence de la structure.

Nous avons également envisagé la possibilité d'une réflexion parasite plus intrinsèque liée à la géométrie même de l'opale ou du système "cellule-four". Nous avons alors remplacé l'opale de 10 couches par celle de 20 couches. Ces deux opales étant sur des corps de cellule de diamètres différents, la géométrie interne à l'intérieur du four a dû être modifiée. Cette inversion n'affecte pas la présence de la structure sub-Doppler, celle-ci étant également présente et identique sur les spectres obtenus sur la cellule de 20 couches.

Ces explorations préliminaires nous indiquent donc que le signal observé est intrinsèque à l'opale.

5.4.2 Caractérisation de la structure sub-Doppler aux grands angles

a) Influence de la polarisation sur la forme du signal

Lorsque l'on travaille à faible angle d'incidence, l'influence de la direction de polarisation est à priori faible. Cependant, la structure a été détectée aux alentours de 40° en polarisation TE, et à cet angle, les réflexions et propagations des champs sont différentes selon la polarisation, ce qui peut donc influencer les résultats. Ce phénomène, connu pour une interface plane homogène (formules de Fresnel et angle de Brewster cf fig 5.23), se reproduit également sur les opales (cf chap 2).

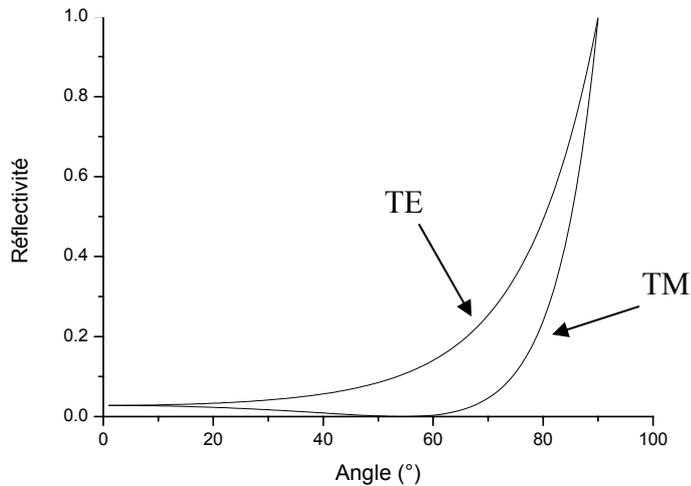


Fig 5.23 Coefficient de réflexion pour des polarisations TE et TM en fonction de l'angle d'incidence, sur une interface de verre d'après les formules de Fresnel pour $n=1.45$

Pour un angle d'incidence de 40° , où est apparue une rupture de la pente du signal de fond en TE, l'allure des courbes est fortement modifiée avec la polarisation TM, et on distingue nettement une structure d'environ 30 MHz de largeur se superposant à un signal de fond large (cf fig 5.24.a). Indépendamment de la présence de la structure étroite, les deux signaux larges TE et TM paraissent décalés en fréquence (près de 100 MHz entre les deux pics), mais cette apparence est surtout liée à une différence marquante de symétrie avec une résonance en TE quasi absorptive, alors que le signal TM paraît plus fortement intégrer une composante dispersive. La position en fréquence des structures étroites, par contre, est indépendante de la polarisation, celles-ci restent ainsi toujours situées au niveau de la résonance atomique. Notons également que l'amplitude des signaux normalisés est peu sensible au changement de la polarisation, alors que la réflexion hors résonance est diminuée de ~ 1 ordre de grandeur (lors du passage de TE à TM).

A 23° , le signal est déjà sensible à l'orientation de la polarisation du faisceau incident. On constate ainsi des différences dans l'asymétrie de la forme des spectres (Fig 5.24 b),

analogues mais de façon moins marquées à celles que nous venons de mentionner pour le signal large à 40° . Des modifications de ce type, c'est-à-dire mélange d'absorption-dispersion de la forme de raie, ont été antérieurement observées par le groupe lors d'expérience de réflexion sélective [CHE]. Ces modifications étaient liées à la distance entre les atomes sondés et l'interface. Par analogie, les différences de forme du signal de fond observées sur l'opale, que ce soit à 23° ou à 40° , pourraient indiquer que l'on observe des réponses atomiques provenant de régions différentes de l'opale, conséquence d'une propagation du champ incident différant selon la polarisation.

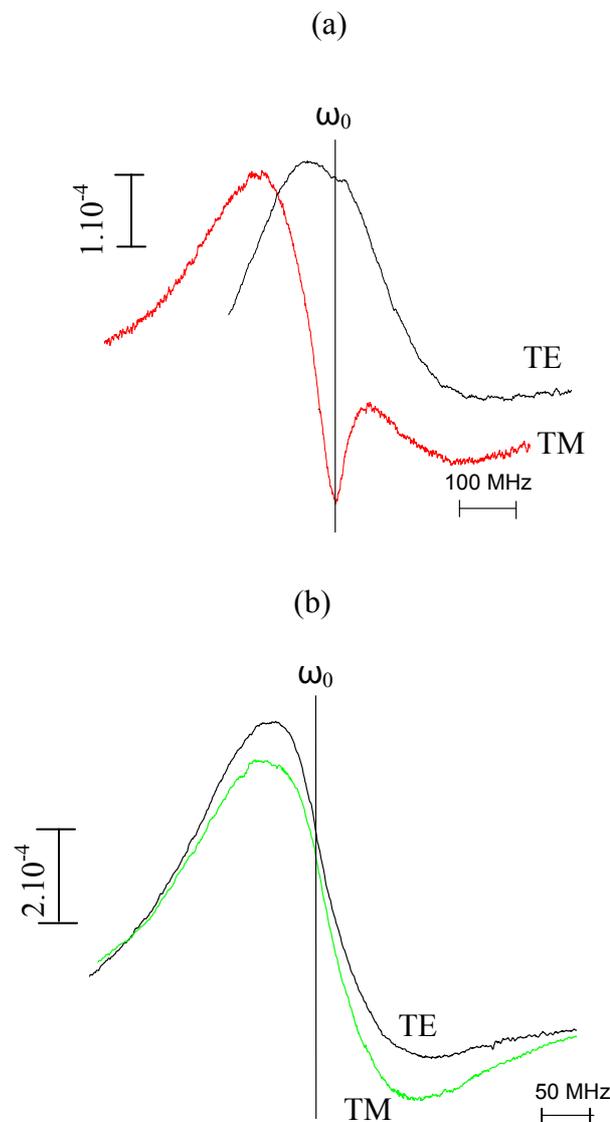


Fig 5.24 Signal de réflexion sélective pour les polarisations TE et TM pour un angle d'incidence de : (a) 40° , (b) 23° ; (intensité incidente non saturante, signaux normalisés : SR_{FM}/I_R)

b) Vérification de la linéarité du signal

La possibilité de détecter un processus non linéaire interne à l'opale doit être envisagée. En effet, il est assez banal d'obtenir des signaux sub-Doppler dans des processus non linéaires tel que l'absorption saturée. Si la contribution sub-Doppler que nous détectons était de nature non-linéaire, celle-ci devrait dépendre fortement de l'intensité lumineuse et de la fréquence de modulation appliquée.

-Fréquence de modulation

Afin de tester l'influence de la fréquence de modulation sur le signal, nous faisons varier cette fréquence de 500 Hz à 50 kHz. Ces variations sur deux ordres de grandeur de la fréquence de modulation ne modifient ni la forme ni l'amplitude de la structure sub-Doppler (cf fig 5.25). Celle-ci est donc insensible à la fréquence de modulation du laser contrairement aux processus non linéaires.

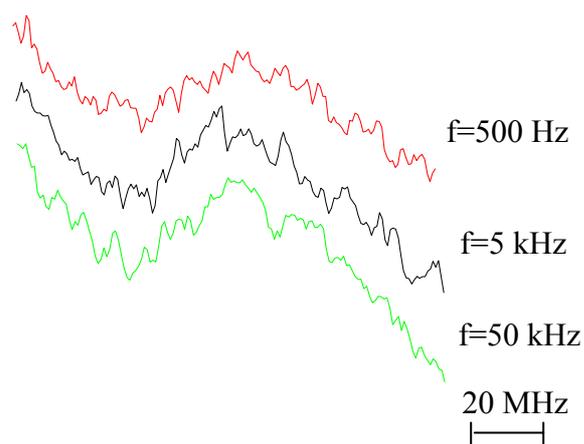


Fig 5.25 Evolution du spectre de réflexion sélective avec la fréquence de modulation, opale de 20 couches de billes de $1 \mu\text{m}$ de diamètre, pour une incidence de 40° .

- Intensité lumineuse

Nous testons aussi la linéarité de l'amplitude du signal avec l'intensité incidente. Bien qu'une première étude (5.2.3) ait montré une apparente linéarité du signal avec l'intensité pour le signal sub-Doppler en incidence quasi-normale, nous cherchons à reprendre cette expérience dans les conditions d'incidence où une structure sub-Doppler apparaît sur un fond large. De plus, nous décidons de diminuer au maximum l'intensité incidente : en effet, lors d'expériences menées par le groupe sur une cellule mince [BRIAUI.], un effet intrinsèquement non linéaire (régime transitoire pour la saturation) montrait une dépendance quasi-linéaire avec l'intensité dès qu'un régime suffisant d'intensité était atteint, et c'est seulement à très faible intensité que la dépendance non linéaire du signal apparaissait (cf fig 5.26).

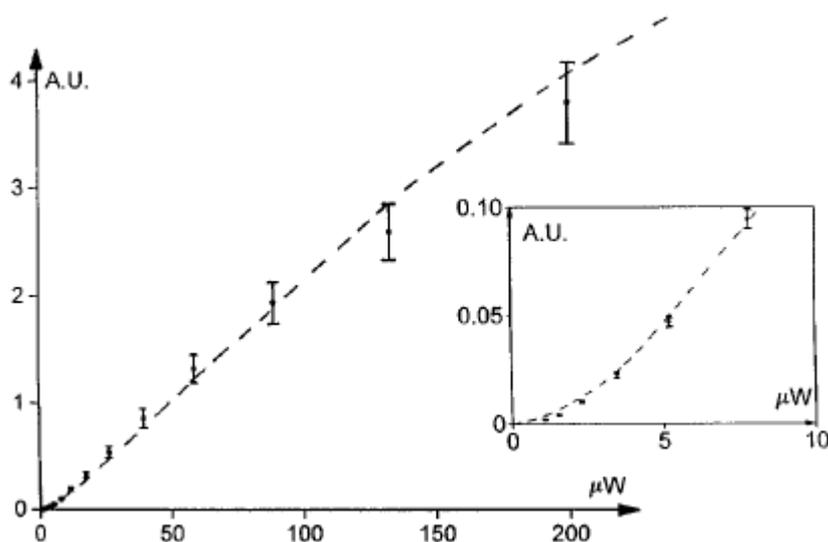


Fig 5.26 *Reproduction de la figure numéro 5 de [BRIAUI] : observation d'une non linéarité à très faible puissance : évolution de l'amplitude du pic 4-4 de la raie D_2 du césium le cadre d'une expérience de transmission dans une cellule mince. La saturation de l'effet non-linéaire dès $5 \mu W$ (pour un diamètre de 4 mm) fait que la réponse associée à un phénomène intrinsèquement non-linéaire paraît évoluer linéairement avec l'intensité*

Expérimentalement, nous avons pu varier la puissance incidente de 1 mW à 200 nW. En parallèle, nous pouvons augmenter la taille du faisceau de 0,7 à 1,4mm de diamètre,

diminuant encore l'intensité lumineuse. Pour des puissances inférieures à $10\mu\text{W}$, nous moyennons plusieurs enregistrements consécutifs dans le but d'améliorer le signal sur bruit. La structure sub-Doppler reste dans un régime linéaire sur une gamme d'intensité allant de $0,13\mu\text{W}/\text{cm}^2$ à $2600\mu\text{W}/\text{cm}^2$: la linéarité est conservée sur 4 ordres de grandeur (Fig 5.27).

Le signal sub-Doppler étant insensible à la fréquence de modulation et linéaire avec l'intensité lumineuse incidente, il est donc engendré par un processus physique linéaire.

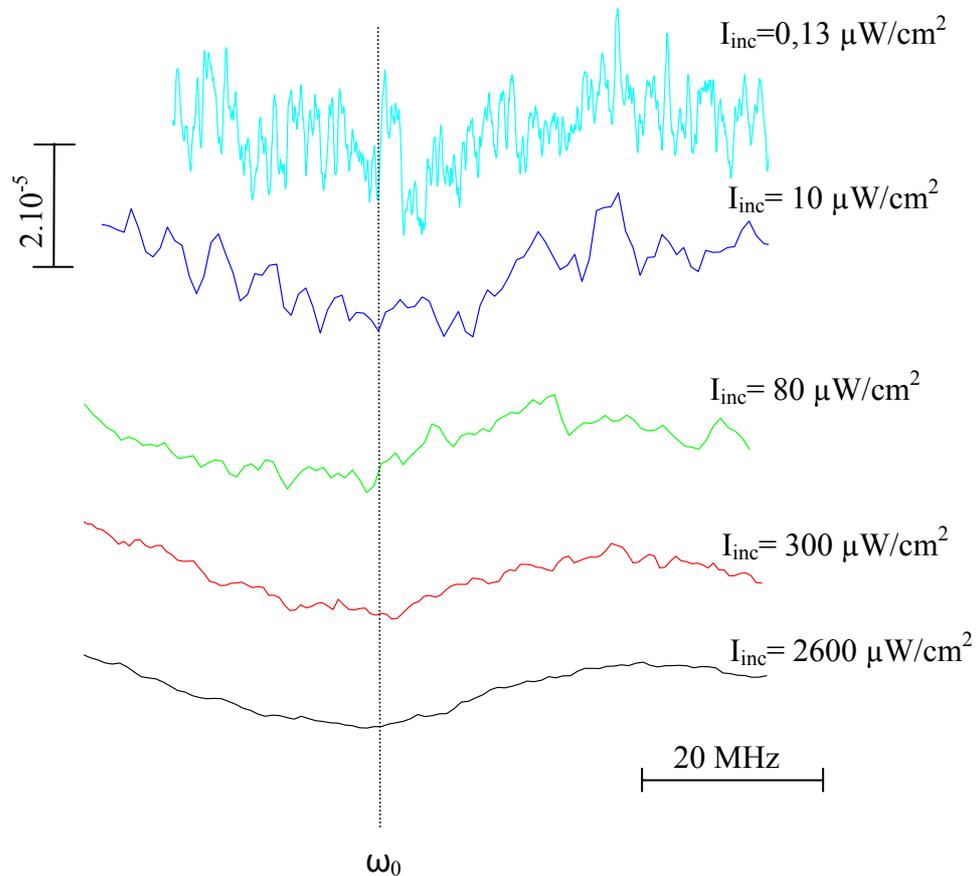


Fig 5.27 : Observation de la structure sub-Doppler (SR_{FM}/I_R) pour différentes intensités du faisceau incident, opale composée de billes de $1\mu\text{m}$ de diamètre et de 20 couches d'épaisseur (transition 3-4 de la raie D_1 du césium, polarisation TM , pour une incidence de 40°).

c) Evolution de la forme de la structure sub-Doppler avec l'angle d'incidence

La figure 5.28 montre l'évolution de la structure sub-Doppler en fonction de l'angle d'incidence. Entre 30° et 45° la discontinuité gagne en amplitude, puis décroît au-delà, jusqu'à ne plus être visible aux alentours de 60° . La forme même de la discontinuité, ou de la structure sub-Doppler varie avec l'incidence. Il est intéressant de noter que cette zone d'observation (de 30° à 60°) correspond à la région où la réflectivité sur l'opale est la plus faible (analogie avec l'angle de Brewster sur le verre).

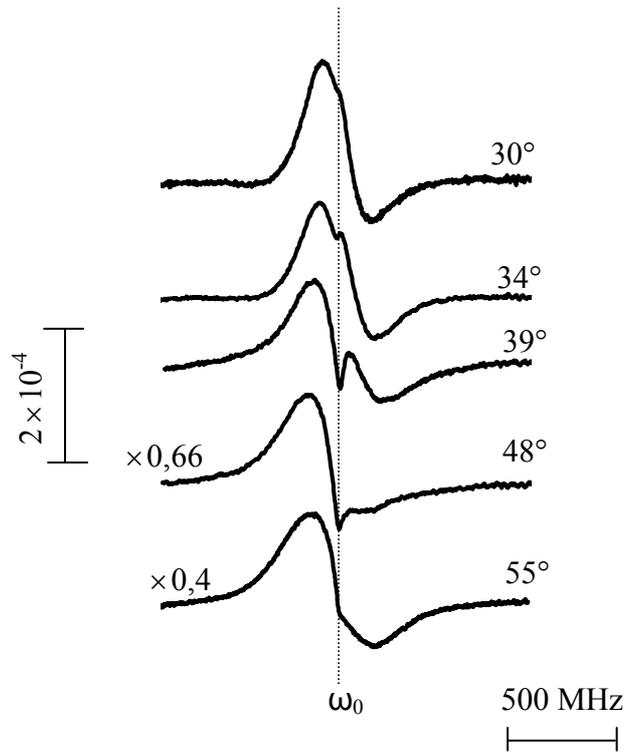


Fig 5.28 Evolution de la structure sub-Doppler en fonction de l'angle d'incidence du laser pour une expérience de réflexion sélective (SR_{FM}/I_R) réalisée sur l'opale composée de billes de $1\mu\text{m}$ et d'une épaisseur de 10 couches (transition 3-4 raie D_1).

d) Amélioration du contraste des structures : détection de la seconde harmonique

Il est possible d'améliorer le contraste de la structure sub-Doppler en utilisant la méthode de détection en $2f$ (cf chap 4.1), c'est-à-dire en détectant les signaux à une fréquence égale au double de la fréquence de modulation appliquée (f). Ainsi jusqu'à présent, les signaux étaient détectés à la fréquence de modulation, nous observions ainsi la dérivée en fréquence du signal multipliée par l'amplitude de modulation. Détecter en $2f$ revient à visualiser la dérivée seconde du signal, multipliée par le carré de la modulation.

Avec cette méthode de détection, nous observons l'exaltation de la structure sub-Doppler et la disparition quasi-totale du signal de fond, très élargi dans le cas d'une polarisation TM (cf fig 5.29).

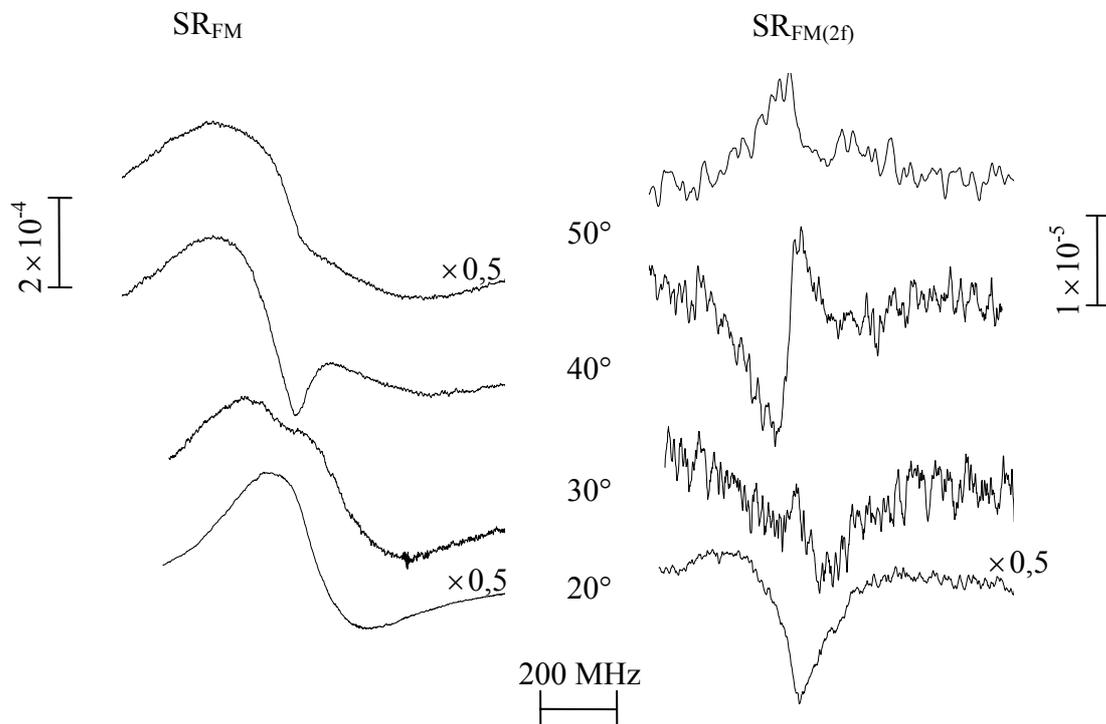


Fig 5.29 Spectres de réflexion sélective détectés en f et $2f$ pour une polarisation TM pour différents angles d'incidence

En polarisation TE (cf fig 5.30), l'effet est moins spectaculaire. Bien qu'on distingue mieux la structure sub-Doppler, le signal de fond reste dominant. Notons qu'afin de conserver un signal sur bruit convenable, l'emploi de la détection en $2f$, très efficace pour isoler la contribution sub-Doppler, a nécessité d'augmenter l'amplitude de modulation de 10 à 20 MHz. La largeur des signaux étant évaluée à 30 MHz, cette modulation plus forte est encore acceptable dans notre situation (mais on observe en revanche un élargissement visible sur les spectres de référence de fréquence (cf fig 5.30)).

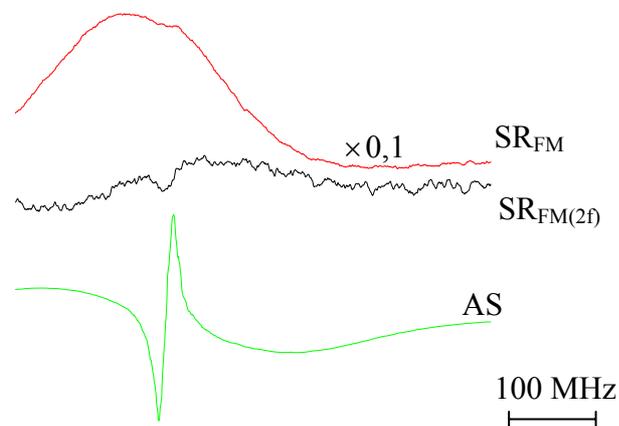


Fig 5.30 Spectres de réflexion sélective (angle d'incidence de 40°) détectés en f et $2f$, et de l'absorption saturée pour une polarisation TE.

e) Interprétation, possibilité d'une structure liée à un effet Dicke

Les diverses expériences réalisées en incidence oblique ont mis en évidence une structure sub-Doppler centrée sur la résonance, superposée à un signal de fond large. Les caractéristiques de cette structures sub-Doppler, notamment sa linéarité et son existence à grand angle d'incidence, sont compatibles avec un processus de type effet Dicke, lié au confinement induit par les interstices de l'opale. En effet, le critère essentiel pour

l'observation d'une élimination de l'effet Doppler par un rétrécissement Dicke est le rapport entre la longueur d'onde λ du champ incident et la longueur de confinement. Celui-ci doit être typiquement inférieur à $\lambda/2$ (cas des expériences précédentes). Pour une opale, la longueur de confinement est déterminée par la taille des domaines interstitiels et estimée à $\sim D/2$ (cf chap2). Par la suite, nous cherchons à comparer les signaux obtenus pour différents rapports λ/D , afin de déterminer si la modification de ce rapport influence la réponse atomique.

5.5 Effets expérimentaux de la modification du paramètre λ/D en lien avec le rétrécissement Dicke

Nous avons utilisé la cellule contenant l'opale de billes de 400 nm, permettant ainsi d'avoir un confinement de l'ordre de $\lambda/4$ pour des expériences toujours effectuées sur les raies D_1 et D_2 du césium. N'ayant à notre disposition que deux possibilités de diamètre de billes (0,4 μm et 1 μm), nous avons complété cette étude par la comparaison des spectres obtenus sur les raies D_1 et D_2 du césium. En effet, dans le cas d'un signal lié à un effet Dicke, un changement de longueur d'onde, même s'il est minime, devrait être observable. Notons qu'une partie de ces expériences a été réalisée par E. Moufarej. Signalons enfin, que l'équipe a depuis acquis une source laser émettant à 455 nm dans le but de pouvoir sonder la transition $6S_{1/2}-7P_{3/2}$ du césium. Bien que cette transition ait une force d'oscillateur plus faible que celles des transitions D_1 ou D_2 , cette nouvelle source permettra de modifier réellement le rapport λ/D , et notamment de comparer le cas où le confinement supposé est de l'ordre de $\lambda/2$ (opale de billes de 400nm) et le cas d'un confinement limité à λ .

5.5.1 Utilisation d'une opale composée de billes de 400 nm

La figure 5.31 présente les spectres de réflexion sélective de la raie D_2 obtenus sur la cellule contenant l'opale composée de 10 couches de billes de $0,4 \mu\text{m}$, pour des angles d'incidence faibles. Même si on observe un comportement général voisin de celui observé avec les billes de $1 \mu\text{m}$, à savoir un élargissement et une diminution d'amplitude des transitions, l'évolution de la forme des raies paraît un peu erratique, sans doute perturbée par les problèmes intrinsèques de cette opale (présence d'agrégats, cf chap 3.3 et 5.1.3) voire par la transmission. On retrouve également aux grands angles, les caractéristiques observées sur l'opale composée de billes de $1 \mu\text{m}$, c'est-à-dire un signal s'élargissant fortement, puis l'apparition d'une structure sub-Doppler sur un signal de fond malgré le confinement poussé à $\lambda/4$ (cf fig 5.32). L'observation d'une structure sub-Doppler à grands angles d'incidence pour un confinement à $\sim\lambda/4$ est en elle-même une confirmation capitale des possibilités sub-Doppler associées aux opales et une nouvelle information intéressante car associée à un confinement plus fort. Cependant, la variabilité assez aléatoire de la forme de raie pour la cellule avec l'opale de billes de 400 nm ne nous a pas permis une comparaison détaillée avec les résultats obtenus avec les cellules de $1 \mu\text{m}$.

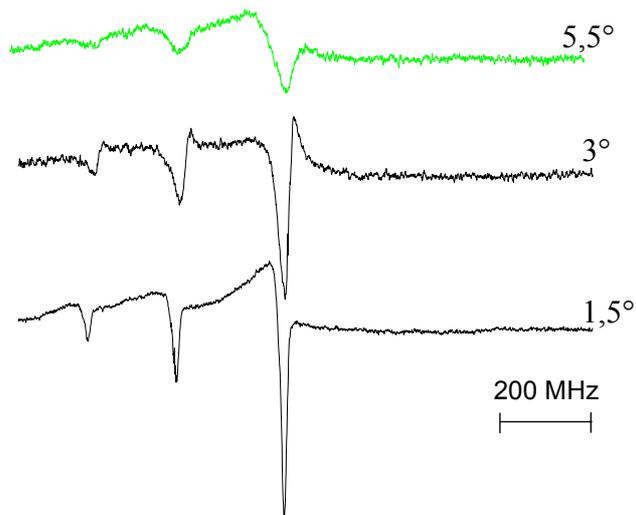


Fig 5.31 Spectre de réflexion sélective pour de faibles angles d'incidence sur une opale composée de 10 couches de billes de 400 nm pour $\lambda=852$ nm ($F=4$)

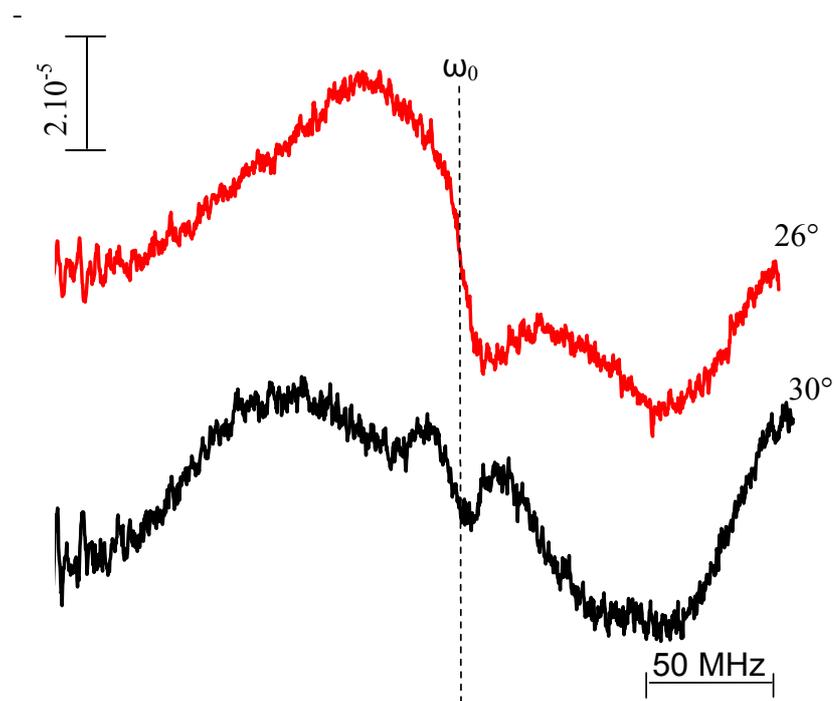


Fig 5.32 Spectre de réflexion sélective (SR_{FM}/I_R) pour des angles d'incidence importants sur une opale composée de 10 couches de billes de 400 nm pour $\lambda=894$ nm

5.5.2 Comparaison des spectres obtenus pour des longueurs d'onde de 852 et 894 nm

a) Montage expérimental

Afin de pouvoir comparer au mieux les spectres pour différentes longueurs d'onde, les faisceaux à 852 et 894 nm sont superposés (fig 5.33) et utilisés alternativement, permettant de minimiser le délai entre deux enregistrements, et de travailler dans des conditions expérimentales identiques. Pour pouvoir changer à volonté la polarisation, une lame demi-onde ($\lambda/2$) est placée juste devant la cellule. Absorption saturée 852 nm

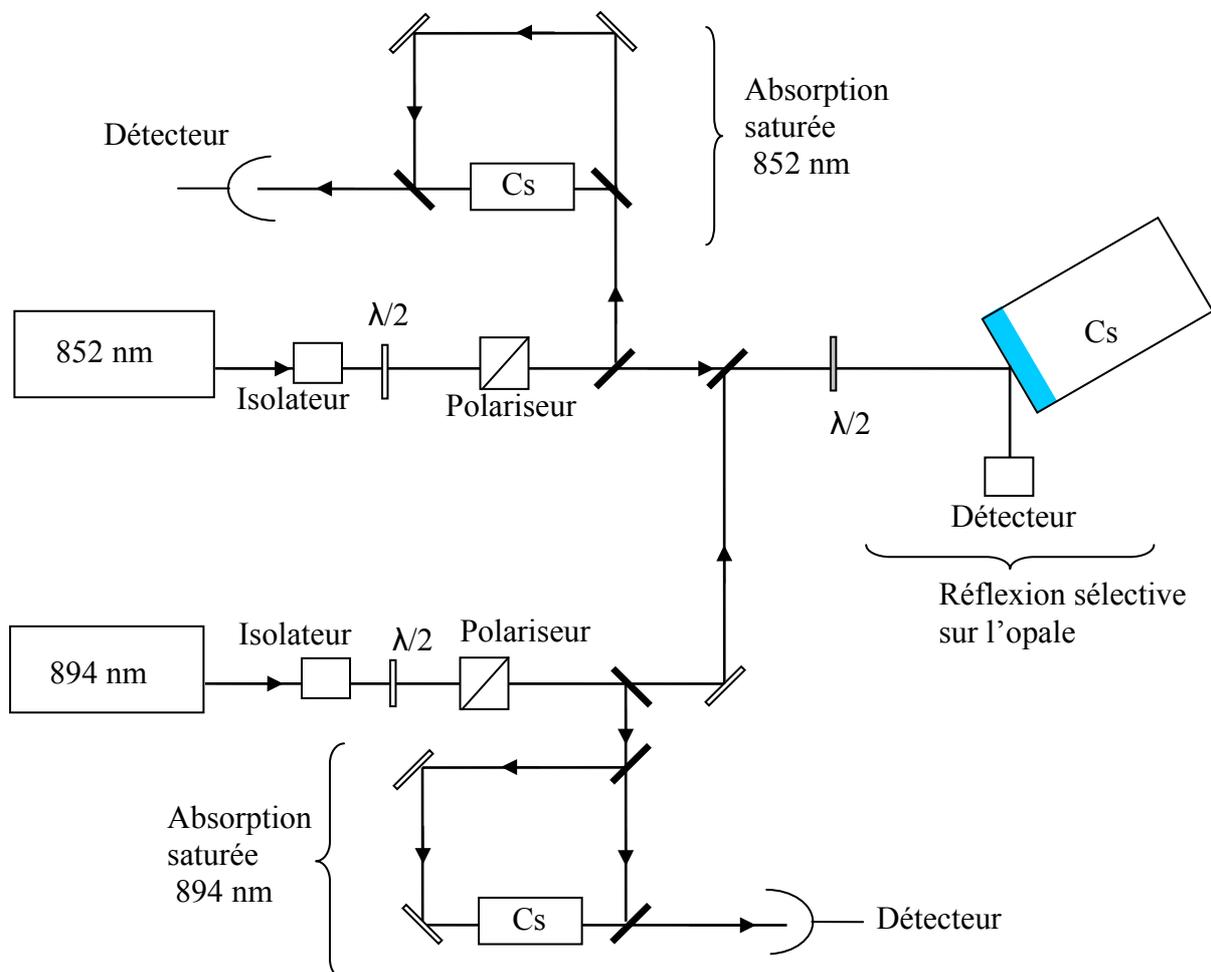


Fig 5.33 Schéma du montage permettant la réflexion sélective avec des longueurs d'onde de 894 et 852 nm

b) Elaboration de spectres de synthèse

Nous avons vu dans les essais de simulation (cf section 5.3.1), l'effet non négligeable de la proximité des composantes hyperfines des résonances étudiées. Or les raies D_1 et D_2 du césium n'ont pas la même structure hyperfine. En effet, pour la raie D_1 les deux sous-niveaux hyperfins de l'état excité sont éloignés de 1,184 GHz, et la superposition des composantes est donc négligeable au vu de la largeur de nos signaux ; au contraire, pour la raie D_2 , les transitions sont séparées au maximum de 251 MHz (pour une transition depuis le sous-niveau $F=4$ du fondamental), valeur comparable aux largeurs observées à grand angle. Afin de tenir compte des phénomènes de recouvrement, nous introduisons dans nos comparaisons des spectres synthétisés de manière similaire à ceux générés par le programme de "fit" (cf section 5.3.1). Ainsi, à partir d'une unique raie 894 nm (transition 4-3), dont l'amplitude a été

réajustée par le rapport des probabilités de transitions $\frac{P_{D_1}(4 \rightarrow 3)}{P_{D_2}(4 \rightarrow 3)}$ (soit 6), on modélise un

spectre à trois composantes (les positions en fréquence de chaque composante étant imposées). Les amplitudes des composantes les unes par rapport aux autres sont fixées quant à

elle par les rapports entre les probabilités des transitions : $\frac{P_{D_2}(4 \rightarrow 3)}{P_{D_2}(4 \rightarrow 4)}$ et

$\frac{P_{D_2}(4 \rightarrow 3)}{P_{D_2}(4 \rightarrow 5)}$ (respectivement 1/3 et 7/44).

Enfin, comme la différence entre les longueurs d'onde engendre une différence sur l'élargissement Doppler d'environ 5% (mais pas a priori sur les structures sub-Doppler), nous appliquons éventuellement l'homothétie correspondante (par exemple par un changement fictif de la forme D_1 utilisée pour synthétiser un spectre D_2).

c) Comparaisons entre les spectres expérimentaux et les spectres de synthèse

Les différentes expériences menées sur l'opale ont permis de distinguer différents régimes pour l'angle d'incidence du faisceau laser.

Pour le régime où seul un élargissement du signal Doppler, lié à l'augmentation de l'angle d'incidence, est observé, typiquement entre 0° et 25° , les spectres réalisés à 852 nm et à 894 nm sont (après synthèse) très similaires (cf fig 5.34.a). L'effet discuté plus haut, d'une homothétie en largeur dans le rapport des largeurs Doppler s'avère négligeable. Dans cette gamme d'angle la différence λ_1/D et λ_2/D ne semble donc pas se faire ressentir.

Au contraire, pour des angles d'incidence plus importants, plus précisément lorsque le signal sub-Doppler devient visible, il devient impossible de comparer les spectres de synthèse et expérimentaux. Des distorsions importantes apparaissent en effet entre les deux courbes (cf fig 5.34.b).

d) Origine des dissemblances entre 894 et 852 nm

Ces expériences montrent un comportement différent pour la structure sub-Doppler et le signal de fond : le signal sub-Doppler paraît dépendre du rapport λ/D . Si la structure sub-Doppler est la réponse des atomes confinés dans les interstices, sensible à un rétrécissement Dicke, cette dépendance de forme avec le rapport λ/D est apparemment acceptable. Cependant, la variation paraît très forte par rapport au faible changement de longueur d'onde. Surtout, les mesures hors résonance sur l'opale à 852 nm et 894 nm montrent également des différences de réflectivité importantes aux forts angles d'incidence, qui paraissent indiquer que c'est la propagation même des faisceaux incidents qui varie fortement avec λ , et non la physique de la réponse d'atomes confinés dans les interstices.

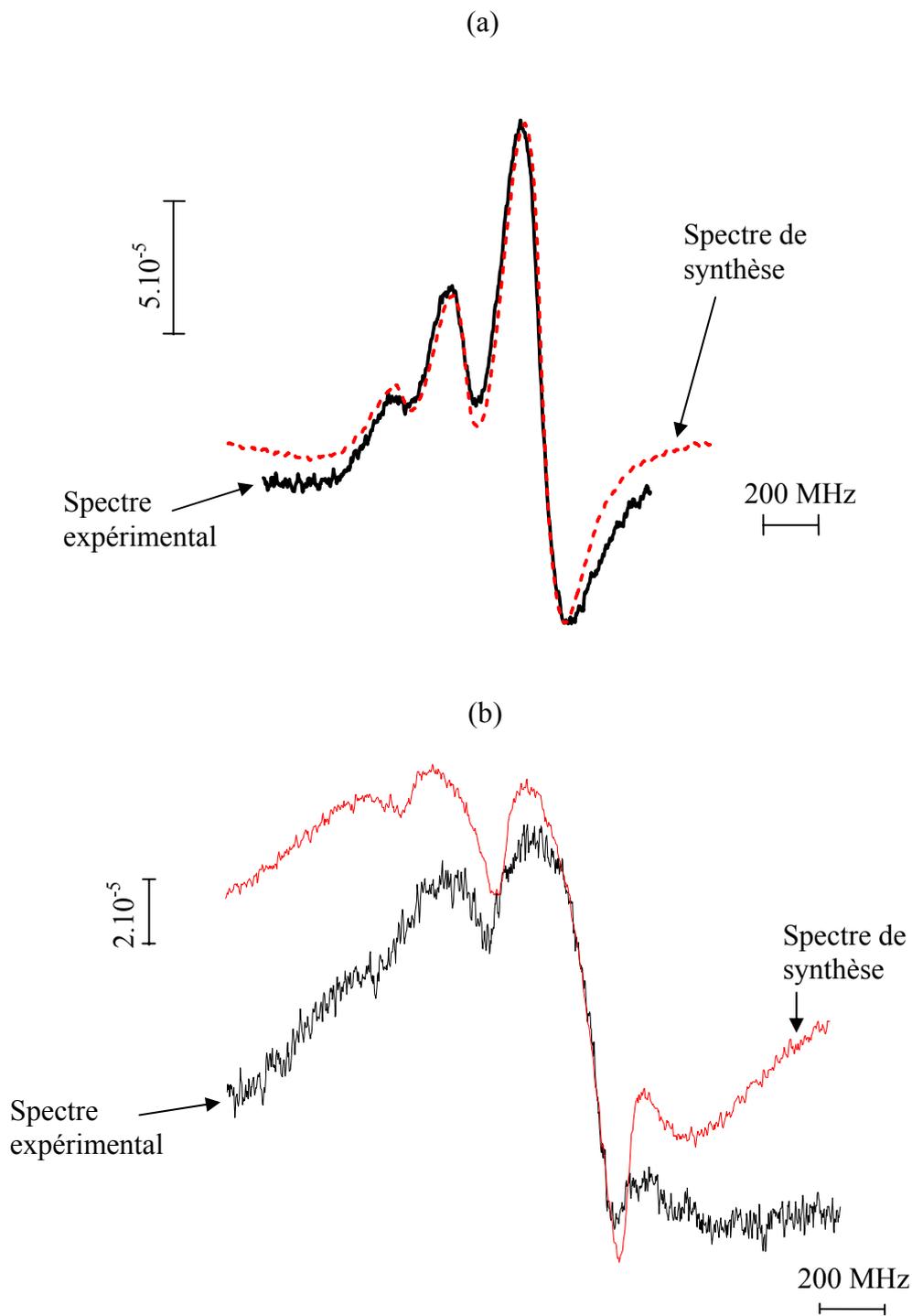


Fig 5.34 Comparaison entre les spectres expérimentaux ($SR_{FM/IR}$), 852 nm, et de synthèse, 894nm; a) pour un angle d'incidence de 20° ; b) pour un angle d'incidence de 40° .

5.6 Conclusion

Au cours de ce chapitre, nous avons présenté divers résultats obtenus dans des expériences de réflexion sélective sur une opale. En incidence normale, nous avons ainsi observé en technique FM, mieux adaptée que la simple mesure de la variation de la réflexion, un signal sub-Doppler présentant une largeur d'environ 30MHz. Pour une incidence non nulle, le signal s'élargit et perd en amplitude, rappelant en plus large le comportement angulaire d'une réflexion sélective sur une interface plane. Remarquablement, sur une plage angulaire s'étendant de 30° à 60° (angle externe), nous constatons sur ce signal élargi, l'apparition d'une structure sub-Doppler présentant également une largeur d'environ 30 MHz. Bien qu'aucune interprétation définitive ne puisse être émise actuellement, nous avons poursuivi des expériences pour comprendre l'origine des processus physiques observés.

En comparant le cas d'une interface plane, et celui d'une interface avec des opales de 10 et 20 couches, dont la transmission est très différente, nous avons exclu l'éventualité que nous sondions les atomes en volume, et conclu que le signal détecté était induit par la réponse atomique de la vapeur contenue entre la lame de verre et l'ensemble de l'opale et non de la vapeur libre située au dessus de l'opale. La localisation précise des atomes contribuant au signal résonnant n'a pu être déterminée. Il est cependant raisonnable de distinguer 2 types de localisation à l'origine de la réponse atomique. Pour une réponse provenant des interstices entre billes (que l'on peut traiter comme ayant une orientation isotrope), le signal atomique ne devrait pas présenter de dépendance angulaire, et le confinement sub-longueur d'onde peut induire un rétrécissement sub-Doppler de type Dicke. Au contraire, pour les atomes situés entre la fenêtre de verre et l'opale, ceux ayant une vitesse parallèle à l'interface, permettant de plus long temps d'interaction avec le faisceau, pourraient avoir une contribution dominante qui subit un élargissement Doppler partiel avec l'angle d'incidence.

Les expériences mettent en évidence différents régimes selon l'angle d'incidence : un signal purement sub-Doppler sous incidence normale, mais qui s'élargit avec l'angle d'incidence. A partir de 30° nous voyons émerger une nouvelle structure sub-Doppler, centrée sur la transition atomique, sur un fond Doppler. Ces observations permettent d'envisager le signal détecté comme un mélange des réponses atomiques de régions différentes. Le signal propre aux régions interstitielles se manifesterait comme une réponse sub-Doppler apparaissant à des incidences non normales et qui sont sans équivalent connu pour d'autres géométries de spectroscopie linéaire.

Suivant la propagation des champs dans notre système, la proportion des réponses des différentes régions de l'opale serait plus ou moins importante. La dépendance de la forme des signaux avec la polarisation incidente est visiblement liée à une propagation différente du champ à l'intérieur de l'opale. Même lorsqu'il n'y a pas une signature manifeste d'effets sub-Doppler (régime des angles intermédiaires), la forme de raie change selon la polarisation, avec une réponse plus ou moins dispersive ou absorptive (typique de la spectroscopie de réflexion), manifestant des différences dans la propagation.

La comparaison des spectres réalisés pour un système expérimental identique, mais avec des longueurs d'onde différentes, initialement entreprise pour analyser le rétrécissement Dicke, confirme l'importance des effets de propagation dans l'opale, qui déterminent finalement la région sondée.

Plus généralement, ces pistes d'interprétations devraient d'abord être complétées par une analyse plus détaillée de la propagation hors résonance dans l'opale, et l'hypothèse d'une détection d'un rétrécissement Dicke devrait être confirmée par une exploration plus systématique des effets du rapport λ/D . Pour étudier plus sélectivement certaines zones spatiales de l'opale, nous avons entrepris des expériences de type pompe-sonde, qui sont décrites dans le chapitre suivant.

Bibliographie :

[AKU] A. M. Akul'shin, V. L. Velichanskiĭ, A. I. Zherdev, A. S. Zibrov, V. I. Malakhova, V. V. Nikitin, V. A. Sautenkov, G. G. Kharisov, «Selective reflection from a glass–gas interface at high angles of incidence of light», *Soviet J. Quantum Electron* **19**, 416 (1989)

[BRIAU] S. Briaudeau, D. Bloch, M. Ducloy, «Detection of slow atom in laser spectroscopy of a thin vapor film», *Europhys. Lett.* **35**, 5 (1996)

[CHE] 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**, 046610 (2001)

[DICKE] R. H. Dicke, «The effect of collisions upon the Doppler width of central lines» *Phys. Rev.* **18**, 472 (1953).

[DUC] M. Ducloy, M. Fichet, «General theory of frequency modulated selective reflection; Influence of atom surface interactions», *J. Phys II France* **1**, 1429 (1991)

[MAS] P. Massé, «Cristaux photoniques colloïdaux d'architecture contrôlée», thèse univ. Bordeaux 1, chap2, (2007)

[STECK] Daniel A. Steck «Cesium D line Data»,

<http://steck.us/alkalidata/cesiumnumbers.1.6.pdf>

Chapitre 6 :

Expériences de réflexion sélective en présence d'un faisceau pompe

Au cours des diverses expériences de réflexion sélective décrites au chapitre précédent (cf chap.5), un signal sub-Doppler a été observé pour un angle d'incidence proche de la normale. Tout comme dans le cas d'une réflexion sélective sur une interface plane, ce signal s'élargit avec l'augmentation de l'angle d'incidence. A partir de 30° , un nouveau type de structures sub-Doppler apparaît sur le signal de fond, devenu, quant à lui, de largeur Doppler. Ceci laisse à penser que le signal détecté mélange les réponses d'atomes situés dans différentes régions spatiales de l'opale.

Afin d'explorer cette hypothèse, une expérience pompe-sonde à deux lasers est mise en place pour centrer l'étude sur ces structures sub-Doppler inhabituelles. L'objectif est de réaliser un pompage inhomogène pour créer une sélectivité spatiale des atomes. Nous visons, de cette façon, à identifier les régions atomiques à l'origine des structures sub-Doppler observées aux angles d'incidence importants. L'insertion d'un second laser va également introduire une plus grande flexibilité dans le choix des paramètres expérimentaux, l'angle et la polarisation du faisceau pompe offrant de nouvelles combinaisons à étudier.

Au cours de ce chapitre, nous détaillerons diverses expériences illustrant la réponse atomique du système en présence d'un faisceau pompe. Nous discuterons en particulier des effets d'un processus de saturation optique sur les structures sub-Doppler détectées précédemment, mais également d'un processus physique plus lent, qui pourrait s'apparenter à du LIAD (Light Induced Atomic Desorption).

6.1 Description de l'expérience

6.1.1 Le montage

De manière standard dans le cadre d'une expérience pompe-sonde, le faisceau pompe est modulé en amplitude afin de pouvoir détecter la différence avec et sans le faisceau pompe. Pour engendrer les faisceaux pompe et sonde, utiliser une unique longueur d'onde pourrait être techniquement envisageable. Cependant, l'objectif étant de saturer une partie des atomes, le laser pompe doit avoir une intensité élevée. Or, l'opale est extrêmement diffusante (pour ces expériences nous utilisons celle composée de 20 couches de billes de 1 μm de diamètre), l'intensité pompe diffusée est importante et peut perturber la chaîne de détection (bruit important, offset...). L'emploi de deux lasers présentant des longueurs d'onde bien distinctes a donc été privilégié (852 nm pour la sonde et 894 nm pour la pompe), afin de permettre un filtrage des photons détectés par la photodiode. Pour éliminer la diffusion du laser pompe, un filtre, présentant une extinction quasi-totale ($T < 5 \cdot 10^{-6}$) à 894 nm et un taux de transmission de 60% à 852 nm, est disposé devant la photodiode détectant le faisceau sonde afin d'éliminer l'éventuelle diffusion du faisceau pompe.

Expérimentalement, la partie sonde est réalisée par le montage utilisé précédemment (cf chap.5). Il est composé d'une expérience de réflexion sélective et d'une expérience d'absorption saturée. Un second laser, illuminant la même zone de l'opale, y est introduit afin de jouer le rôle de faisceau pompe résonnant. De manière analogue au premier montage, un isolateur optique est placé juste après la sortie de ce laser, dont la polarisation peut être modifiée à l'aide d'une lame demi-onde (cf fig 6.1).

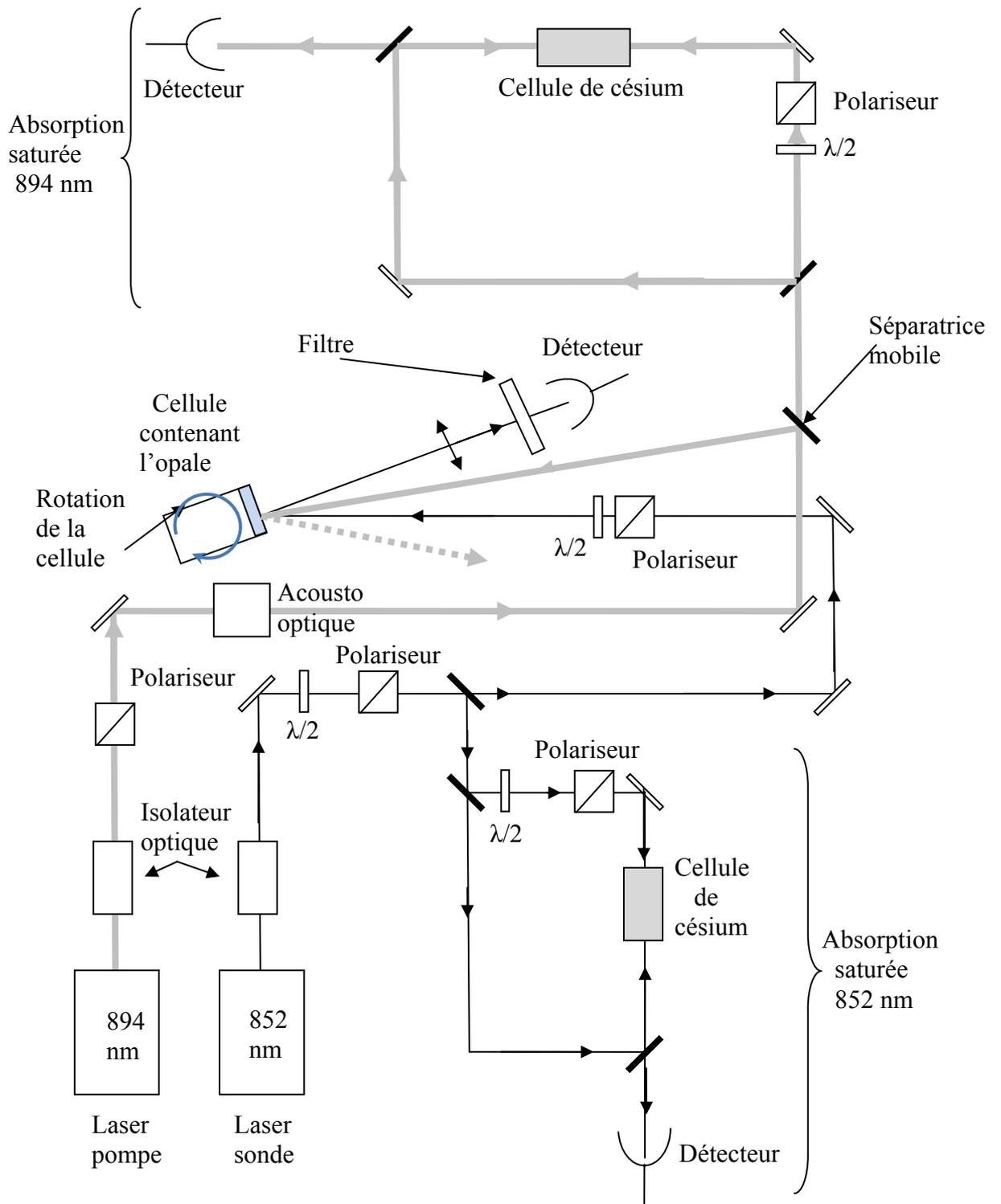


Fig 6.1 Schéma de l'expérience pompe-sonde de réflexion sélective.

Pour certaines expériences, la fréquence optique du laser pompe est décalée par rapport à la résonance de la raie D_1 , une absorption saturée (détectée en FM) est donc également réalisée avec le laser pompe afin de contrôler ce décalage.

Les angles d'incidence des différents faisceaux lasers sont mesurés de manière similaire à l'expérience de réflexion sélective décrite précédemment (cf chap 5.1). Notons simplement que l'angle du faisceau sonde (Θ_s) est fixé en tournant la cellule (cf fig 6.1) alors que celui du faisceau pompe (Θ_p) est ajusté en déplaçant le faisceau laser à l'aide de deux miroirs. Excepté lors d'expériences spécifiques, les angles des deux faisceaux seront généralement de signe opposé (cf fig 6.2), afin d'éloigner la réflexion du faisceau pompe, minimisant ainsi l'intensité diffusée arrivant sur la chaîne de détection.

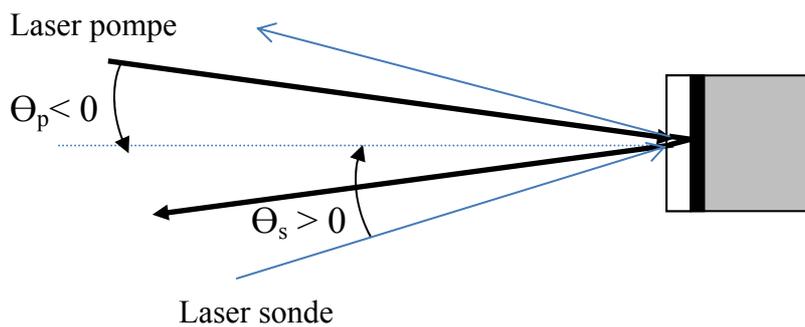


Fig 6.2 Inversion du signe des angles d'incidence des faisceaux pompe et sonde.

6.1.2 Les lasers

a) Choix de la longueur d'onde des faisceaux sonde et pompe

Les lasers utilisés dans cette expérience sont identiques à ceux employés précédemment. Le laser 852 nm à cavité étendue est utilisé pour le faisceau sonde et le laser DBR 894 nm (cf chap. 5.1) pour le faisceau pompe. Le laser pompe 894 nm étant relativement stable au cours d'un

enregistrement (la dérive en fréquence n'excédant pas 10 MHz), il n'est pas asservi en fréquence, la fréquence du faisceau pompe est ainsi simplement fixée sur un point de l'absorption saturée.

Hormis le fait que le laser 894 nm présente une puissance en sortie d'isolateur deux fois supérieure au laser à cavité étendue, le choix de la longueur d'onde attribuée aux faisceaux pompe et sonde est motivé expérimentalement par la flexibilité offerte par la transition $6S_{1/2}-6P_{3/2}$. Sonder avec le laser 852 nm présente en effet l'avantage de pouvoir changer les niveaux hyperfins explorés. La répartition du poids des transitions différant selon le sous-niveau du fondamental choisi, l'observation peut ainsi être privilégiée sur une forte transition ($F=4$) ou bien répartie sur trois transitions de manière équilibrée ($F=3$). Cette flexibilité importante n'existe pas dans la situation où le laser 894 nm serait le faisceau sonde.

Même si l'utilisation d'un faisceau sonde à la longueur d'onde de 894 nm présente l'avantage de pouvoir sonder une seule transition hyperfine, ce qui pourrait simplifier l'interprétation des résultats, la proximité des niveaux hyperfins pour la transition de pompage compliquerait le choix de la fréquence pompe.

b) Puissance et diamètre des faisceaux

Le faisceau pompe présente un diamètre de 1 mm pour une puissance de 10 mW, nous disposons ainsi d'une intensité incidente de $1,3 \text{ W/cm}^2$, valeur très largement supérieure à l'intensité de saturation théorique des atomes de césium libre ($\sim 2 \text{ mW/cm}^2$ pour la raie D_1 [STE]). Le faisceau sonde, quant à lui, a un diamètre de 0,7 mm et une puissance de 0,3 mW. Ces paramètres ont été déterminés afin de trouver un compromis entre l'intensité de la pompe et le niveau de signal/bruit.

L'intensité du faisceau pompe est choisie pour être suffisante pour saturer la transition (le faisceau sonde au contraire doit être non saturant). Pour cela, la saturation est testée avec des expériences de réflexion sélective à un seul faisceau pour chacune des longueurs d'onde. L'intensité

du faisceau sonde peut paraître à première vue extrêmement importante. Cependant, expérimentalement, elle est bien non saturante. Cette différence notable entre les intensités de saturation théorique et expérimentale peut s'expliquer par la géométrie du système. En effet, il est probable que la saturation d'atomes confinés nécessite une intensité plus importante, la "mémoire d'excitation" de ces atomes se perdant rapidement lors des nombreuses collisions avec les parois, au contraire de la situation où les atomes sont libres. De plus, l'origine du signal détecté n'est pas totalement identifiée, il n'est donc pas certain que l'intensité du champ incident soit celle du champ induisant la réponse atomique (pertes par diffusion). Notons par ailleurs, que ces tests préliminaires ne donnent des informations que sur la réflexion. Or, il est probable que le faisceau pompe agisse plus en transmission, voire en diffusion, qu'en réflexion. Tester la saturation du faisceau pompe avec certitude s'avère donc impossible, la détection en transmission étant irréalisable (diffusion trop importante, géométrie de la cellule inadaptée).

Le diamètre du faisceau sonde est délibérément choisi inférieur à celui de la pompe. De cette façon, le risque de sonder des atomes non saturés, source de bruit sur le signal, est limité. Une solution, pour améliorer le niveau de signal, serait d'augmenter la focalisation du faisceau pompe. Cependant, cela impliquerait une diminution du diamètre du faisceau sonde et donc, afin de ne pas saturer la transition, de la puissance sonde incidente. Ces diamètres, relativement importants, facilitent le recouvrement des faisceaux. L'ajustement de ce recouvrement s'effectue en deux étapes. Dans un premier temps, les points d'impact des deux faisceaux sont visualisés à l'aide d'une caméra infra-rouge et minutieusement superposés, et le recouvrement est finalement optimisé par la maximisation des valeurs de sortie de la chaîne de détection.

6.1.3 Les modulations

Dans cette expérience, le faisceau pompe est modulé en amplitude, permettant ainsi d'observer

l'effet du pompage sur le système. Afin d'améliorer le contraste des structures spectrales étroites, le laser sonde est modulé en fréquence de la même manière que pour la réflexion sélective à un faisceau (1 kHz, fréquence maximale acceptée par le piezo, pour une amplitude d'environ 15 MHz). La détection est donc constituée d'un système de double démodulation (AM-FM), le spectre enregistré en sortie représente alors la dérivée en fréquence de l'effet de la pompe.

La sortie du détecteur, recevant le signal de réflexion sélective, est reliée à un système de détections synchrones en cascade. L'ordre des diverses démodulations est fixé par la valeur des fréquences de modulation appliquées. Il faut démoduler la fréquence la plus importante (f_1), puis celle plus faible (f_2), pour éviter que la constante de temps de la première démodulation liée à la fréquence de la seconde démodulation ne coupe une partie du signal modulé à plus haute fréquence. Les constantes de temps τ_1 et τ_2 des diverses démodulations doivent donc être fixées avec précaution, et respecter l'inégalité :

$$\frac{1}{2\pi f_1} \ll \tau_1 \ll \frac{1}{2\pi f_2} \ll \tau_2 \quad (6.1)$$

Le choix de la fréquence de la modulation d'amplitude pompe détermine, quant à lui, le type de physique détecté. En effet, des expériences préliminaires, réalisées avec une fréquence de modulation d'amplitude basse (~ 130 Hz), effectuée par une roue dentée, ont mis en évidence des spectres caractéristiques d'un processus physique lent, incompatible avec de la saturation ou du pompage optique (ces résultats seront discutés plus en détail dans la section 6.3).

Pour éviter la détection de ce processus, la modulation d'amplitude du faisceau pompe est effectuée à 50 kHz grâce à un acousto-optique. Ce type de modulateur offre l'avantage de pouvoir atteindre des fréquences de modulation très importantes, inaccessibles à une roue dentée, mais, il diffracte, de manière analogue à un réseau de Bragg, la lumière incidente sur plusieurs ordres,

engendrant une perte de la puissance incidente (à l'ordre 1, le faisceau incident a perdu 40 % de son intensité initiale). Cette fréquence permet de diminuer la constante de temps de la démodulation pompe ($\tau_1 = 10 \mu\text{s}$ contre $\tau_1 = 3 \text{ ms}$ dans le cas d'une modulation d'amplitude à une fréquence de 130 Hz), et ainsi de favoriser la détection des processus rapides.

6.2 Effets du faisceau pompe sur les spectres de réflexion sélective

6.2.1 Exaltation des composantes sub-Doppler par le faisceau pompe

La figure 6.3 présente les résultats obtenus avec une expérience de réflexion sélective en présence d'un faisceau pompe résonant avec la transition D_1 ($F=3$) du césium. Le faisceau sonde est polarisé en TM et présente un angle d'incidence de $+47^\circ$, ce qui correspond aux conditions favorables à l'observation des structures sub-Doppler (cf chap 5.4). Les spectres observés correspondent à la transition $6S_{1/2}-6P_{3/2}$ du césium ($F=3$). Ils sont constitués de trois structures sub-Doppler, présentant des largeurs de 30 MHz, espacées les une des autres de 200 et 150 MHz, et centrées sur l'absorption saturée. Comparativement aux spectres sans le faisceau pompe (cf fig 6.3), les structures sub-Doppler sont plus importantes et mieux résolues. Il semble donc que la présence du faisceau pompe exalte les structures sub-Doppler qui ont été observées lors de l'expérience à un seul faisceau. De plus, le signe du signal détecté est opposé à celui du signal sans le faisceau pompe. Quantitativement, dans ces conditions de pompage, le signal détecté après la double démodulation correspond à 12 % du signal sans le faisceau pompe. Ceci montre que sous l'effet du pompage, le nombre d'atomes dont la réponse participe au signal est diminué d'environ 12%, tendant à prouver

que nous observons bien un processus de saturation optique.

Lorsque la pompe est hors résonance, il n'y a pas de réponse détectée après la double démodulation. Ceci montre qu'il existe une dépendance entre le signal et la résonance du faisceau, assurant que le signal détecté est bien la réponse du système soumis à la présence de la pompe.

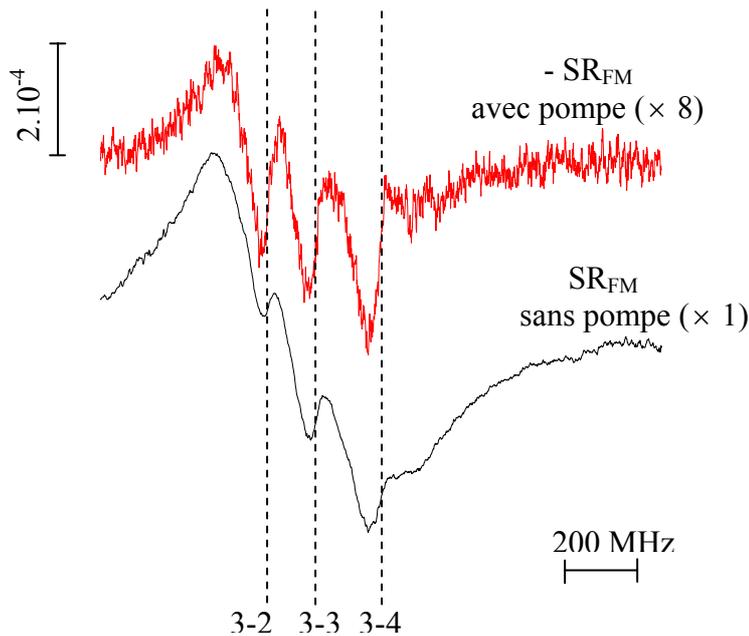


Figure 6.3 Spectres de réflexion sélective, avec (afin de faciliter la comparaison des spectres c'est l'inverse du signal qui est représenté) et sans le faisceau pompe pour une intensité du faisceau pompe de $1,3W/cm^2$, $\Theta_s=47^\circ$, le faisceau pompe est également polarisé en *TM*, et son incidence est faible ($-1,5^\circ$).

6.2.2 Saturation et pompage optique dans l'opale

Dans l'expérience précédente, les faisceaux sonde et pompe excitaient et dépeuplaient les atomes du même sous-niveau fondamental ($F=3$), mettant ainsi en évidence l'effet d'un régime de saturation optique sur les structures sub-Doppler. Une autre possibilité serait de se placer dans le

cadre d'un régime de pompage optique, c'est-à-dire de sonder et pomper des sous-niveaux fondamentaux différents. Par exemple, un faisceau sonde en résonance avec le sous-niveau $F=4$ et un faisceau pompe excitant le sous-niveau $F=3$. Dans ce cas, le nombre d'atomes disponibles pour le faisceau sonde pourrait devenir plus important. En effet, une partie des atomes du niveau fondamental $F=3$, excitée par le faisceau pompe, peuplerait le niveau fondamental $F=4$ après leur désexcitation, augmentant ainsi la densité atomique initiale (cf fig 6.4).

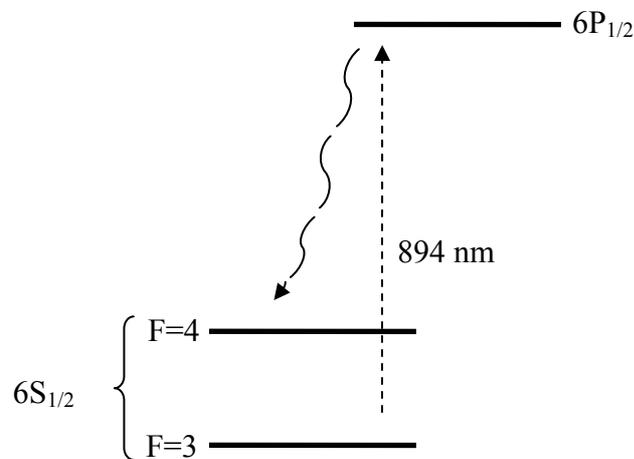


Fig 6.4 Schéma du processus de pompage optique.

Expérimentalement le processus de pompage optique n'a pu être étudié, le signal étant trop faible pour pouvoir être pleinement exploité. En effet, au contraire de la saturation qui est instantanée, dans un régime de pompage optique, les atomes excités par la pompe doivent avoir le temps de se désexciter ($\sim 30 \text{ ns}$) et de peupler les différents sous-niveaux fondamentaux. Or, pour des billes de $1 \mu\text{m}$ de diamètre, la taille des interstices est évaluée à $\sim 0,5 \mu\text{m}$, et la vitesse des atomes étant d'environ 200 m/s , le temps entre deux collisions sur les billes est estimé à $2,5 \text{ ns}$. La durée de vie dans l'opale est donc trop faible pour autoriser un processus de pompage optique.

Il est en revanche possible de changer de sous-niveau fondamental (pour la pompe et la sonde)

et donc d'explorer les structures hyperfines 4-3, 4-4 et 4-5 de la transition $6 S_{1/2} - 6 P_{3/2}$. Les résultats obtenus présentent les mêmes caractéristiques que pour $F=4$, avec une répartition des probabilités de transitions plus homogène, rendant l'observation des structures sub-Doppler visible sur chaque sous-niveau (cf fig 6.5).

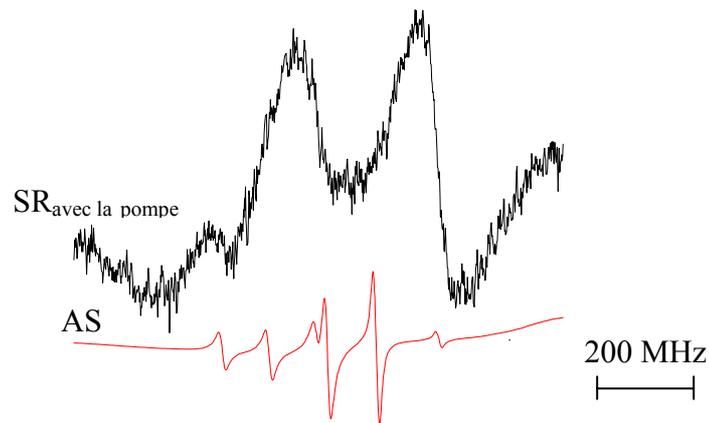


Figure 6.5 Spectres de réflexion sélective en présence d'une saturation du sous-niveau fondamental $F=4$ et d'absorption saturée (sonde et pompe polarisées en TM avec $\square_s = +47^\circ$ et $\square_p = -9^\circ$).

6.2.3 Dépendance en polarisation

a) Influence de la polarisation de la sonde

Le laser sonde 852 nm étant détecté en réflexion, des effets de polarisation, comparables à l'expérience à un seul laser (cf chap 5.4), peuvent être envisagés. La figure 6.6 présente le signal observé pour le faisceau sonde polarisé en TE, polarisation pour laquelle l'observation des structures sub-Doppler était particulièrement difficile dans l'expérience de réflexion sélective à un seul

faisceau.

Tout comme dans le cas d'une polarisation TM, le signal présente 3 structures centrées sur l'absorption saturée correspondant à la raie D₂ du césium. Nous constatons bien une exaltation des structures sub-Doppler, mais celle-ci est moindre en comparaison de l'effet constaté pour une polarisation TM.

La polarisation du faisceau sonde reste donc un paramètre important dans la forme du signal, renvoyant à une situation analogue à l'expérience de réflexion sélective à un faisceau.

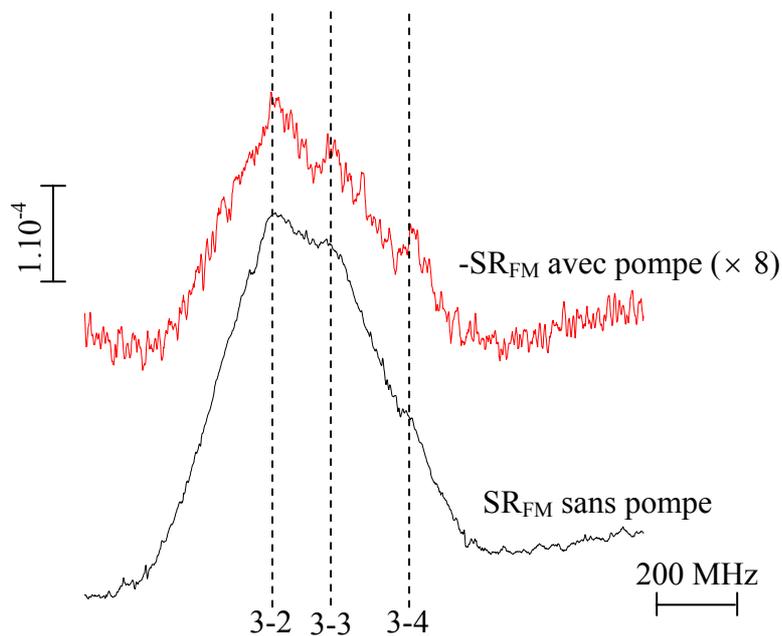


Fig 6.6 Spectres de réflexion sélective avec et sans le faisceau pompe, pour une polarisation de la sonde TE ($\square_s = +47^\circ$ et $\square_p = -1,5^\circ$).

b) Influence de la polarisation de la pompe

Initialement la polarisation du faisceau pompe était fixée par défaut en TM. Afin de comprendre l'éventuelle influence de la polarisation du faisceau pompe sur le signal, le laser 894 nm est polarisé en TE, pour un faisceau sonde polarisée en TM. Le changement de polarisation du faisceau pompe affecte peu la forme et l'amplitude du signal (cf fig 6.7), ceci, quel que soit son angle

d'incidence.

Ces résultats sont compatibles avec un faisceau pompe agissant en transmission, au contraire du faisceau sonde, détecté en réflexion. En effet, il est connu, que pour une interface plane, les coefficients de réflexion sont très différents selon la polarisation du faisceau incident, et des résultats similaires ont été observés sur l'opale (cf chap 2). Au contraire, les coefficients de transmission ne sont, quant à eux, que peu affectés par un changement de polarisation. Ici, l'interface est non plane et la propagation dans une opale est extrêmement complexe. Cependant, il est vraisemblable que de manière analogue au cas d'une interface plane, la propagation de l'intensité pertinente pour la saturation soit peu sensible à la polarisation.

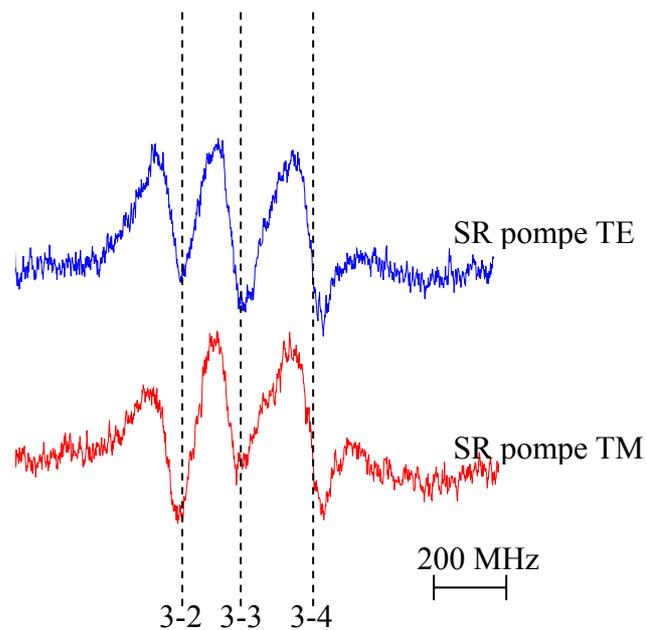


Figure 6.7 Spectres de réflexion sélective, en présence d'un faisceau pompe polarisé TE ou TM (faisceau sonde polarisé TM, $\theta_s = 47^\circ$ et $\theta_p = -9^\circ$).

6.2.4 Influence de l'intensité de la puissance pompe

L'objectif de l'expérience est de réaliser un pompage créant des inhomogénéités spatiales. L'intensité doit donc être suffisamment importante pour saturer une partie des atomes du système

sans pour autant saturer l'ensemble des atomes responsables du signal atomique. La forme des spectres observés permet cependant d'écarter l'hypothèse d'un pompage homogène. En effet, une saturation globale des atomes serait équivalente à diminuer la densité atomique, le signal observé serait donc dans ce cas identique au signal sans le faisceau pompe. Or, les spectres, avec et sans la présence du faisceau pompe, montrent des différences semblant compatibles avec la réponse d'un pompage inhomogène spatialement, probablement créé par la diffusion de l'intensité liée à la géométrie de l'opale.

A la figure 6.8, nous montrons les effets d'une variation de la puissance pompe incidente de 10 mW à 1 mW tout en conservant le diamètre du faisceau pompe ($\sim 1\text{mm}$). Le niveau de signal se dégradant progressivement, nous ne pouvons descendre en dessous de 1 mW. En effet, le signal atomique sur l'opale est faible, et pour une intensité incidente diminuée d'un facteur 10 seulement 1% de ce signal est détecté par la méthode pompe-sonde (cf 6.2.2).

De manière générale, la modification de la puissance pompe ne change pas la forme du signal détecté, seule une certaine non-linéarité est observée, notamment sur la transition 3-2. Ainsi la forme du spectre, correspondant à une intensité expérimentale du faisceau pompe de 130 mW/cm^2 , est identique à celle du spectre expérimental réalisé à une intensité de $1,3\text{ W/cm}^2$, une fois divisée par 5 plutôt que par 10 (cf fig 6.9). Notons que la saturation induite par la pompe peut bien expliquer la non-linéarité observée, celle-ci pouvant rester spatialement homogène tant que les effets d'absorption ou de propagation sur la pompe restent négligeables.

La conservation de la forme du signal indique donc que les inhomogénéités créées par le faisceau pompe sont préservées par un changement modéré de l'intensité pompe.

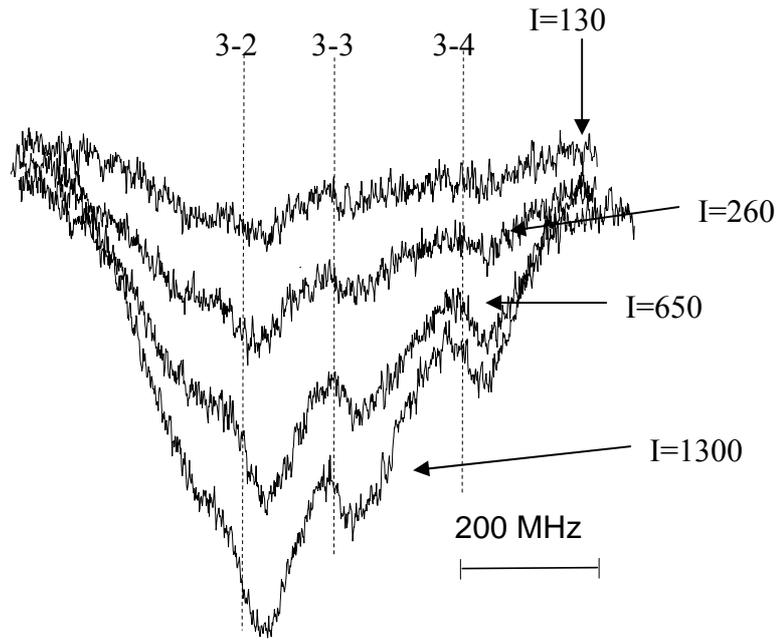


Figure 6.8 Signaux de réflexion sélective pour une polarisation TE du faisceau sonde ($\Theta_s = +47^\circ$ et $\Theta_p = -9^\circ$; sous niveau $F=3$ du niveau fondamental) comparaison entre les signaux réalisés à diverses intensités (mW/cm^2).

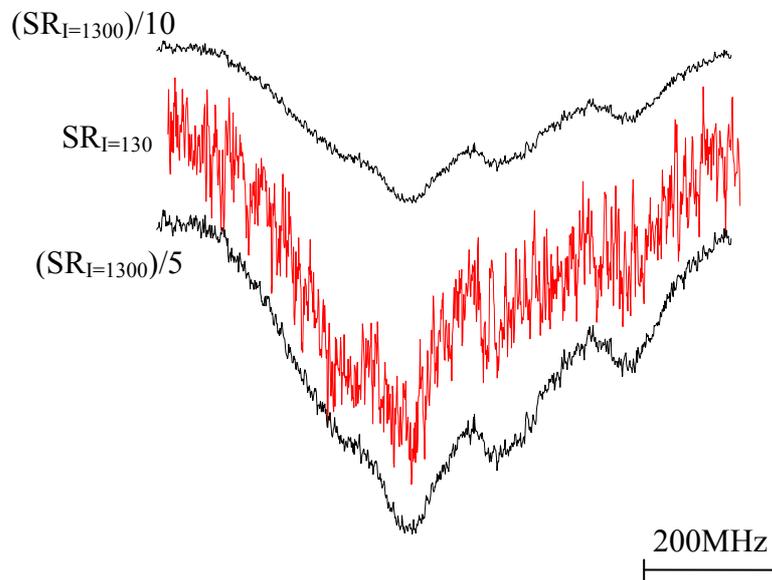


Fig 6.9 Observation de la non-linéarité de la pompe : comparaison du signal réalisé avec une intensité pompe de $130 mW/cm^2$, et du signal avec une intensité pompe de $1300 mW/cm^2$.

6.2.5 Evolution de la forme des spectres avec l'angle d'incidence des faisceaux

a) Evolution avec l'incidence du faisceau pompe

Afin de tester l'influence de l'angle d'incidence du faisceau pompe, des expériences de réflexion sélective, dans lesquelles l'incidence du faisceau pompe est modifiée alors que celle de la sonde reste fixe, sont réalisées. Au cours de ces diverses expériences, l'hypothétique dépendance de la réponse atomique avec l'incidence du faisceau pompe est étudiée pour les trois régimes caractéristiques d'incidence de la sonde (cf chap 5.4), c'est-à-dire pour une incidence sonde comprise entre 0° et 10° (signal sub-Doppler), 10° et 30° (signal élargi) et $30^\circ - 60^\circ$ (signal élargi et présence de structures sub-Doppler).

Quel que soit le régime du faisceau sonde étudié, la forme des spectres ne semble pas évoluer avec l'incidence de la pompe (cf fig 6.10 pour une incidence sonde à 58°). Tout comme la polarisation, l'incidence du faisceau pompe n'est donc pas un paramètre qui influe sur la forme du signal.

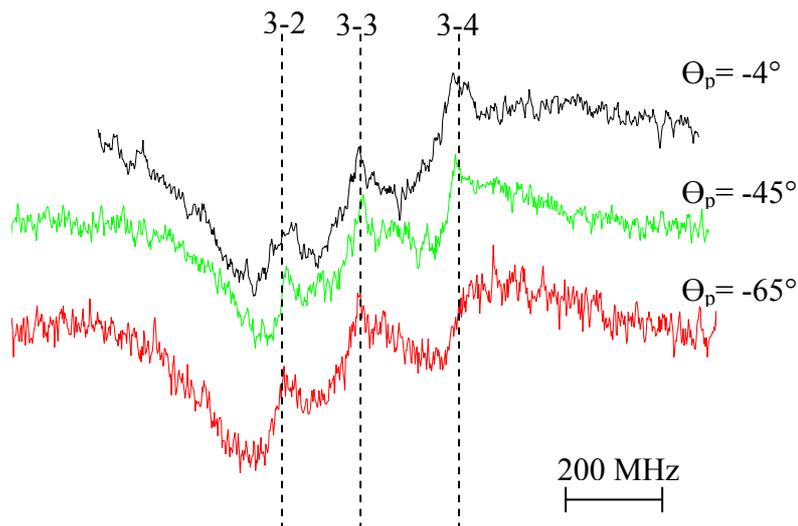


Figure 6.10 Absence d'évolution des signaux de réflexion sélective pour différents angles de pompe (faisceau sonde polarisé en TM, $\Theta_s=58^\circ$, sous niveau $F=3$ du niveau fondamental).

b) Evolution avec l'incidence du faisceau sonde

Les expériences menées au chapitre précédent (cf chap 5.3) ont permis de discuter l'existence d'un confinement inhomogène spatialement des atomes de césium, ceux-ci pouvant ainsi être confinés 1D ou 3 D suivant leur localisation dans l'opale. Cette inhomogénéité pourrait justifier la dépendance observée entre l'apparition de structures sub-Doppler et l'angle d'incidence du faisceau sonde (cf chap 5.4), celui-ci modifiant la propagation du champ incident dans l'opale. Afin de tester l'influence d'un faisceau saturant sur cette dépendance angulaire, notamment le domaine d'incidence où de telles structures sont visibles, nous faisons varier l'angle d'incidence du faisceau sonde.

Tout comme dans l'expérience de réflexion sélective à un faisceau, l'angle d'incidence de la sonde est modifié par la rotation de la cellule. Cette rotation engendre également un changement de l'incidence de la pompe. Cependant, l'absence d'influence de l'angle d'incidence du faisceau pompe sur la forme des spectres, fait que lors de cette étude, nous ne réajustons pas l'incidence de la pompe à chaque modification de l'incidence du faisceau sonde.

Quel que soit l'angle d'incidence du faisceau sonde, le signal détecté présente des transitions mieux résolues qu'en l'absence de faisceau pompe, ceci, même pour des petits angles, pour lesquels le signal sans la pompe est totalement sub-Doppler. Par ailleurs, l'efficacité de la saturation diminue avec l'angle d'incidence. Ainsi, pour des conditions de pompage identiques, le nombre d'atomes saturés pour une incidence du faisceau sonde de 5° est respectivement 2 et 5 fois supérieur au cas où l'incidence est de 47° et 58° .

Même si la largeur des transitions reste similaire à celles observées dans des expériences à un seul faisceau (~ 30 MHz), la modification de la résolution des transitions est très importante. Ainsi la gamme angulaire d'optimisation n'existe plus, les transitions sub-Doppler étant parfaitement visibles entre 30° et 60° . La figure 6.11, représentant les spectres avec et sans la pompe, pour une incidence

de 32° et 58° , illustre ce dernier point. Ainsi, en présence du faisceau pompe, le fond Doppler observé précédemment a disparu, et les 3 niveaux hyperfins de la transition $6S_{1/2}-6P_{3/2}$ sont à présent quasiment résolus alors que l'incidence de la sonde correspond à des angles d'incidence peu favorables à l'observation des structures sub-Doppler (cf chap 5).

La modification de la répartition atomique, engendrée par le faisceau pompe influe donc de manière spectaculaire sur la forme des spectres, notamment à grands angles d'incidence, où le fond Doppler est en grande partie éliminé par la détection pompe-sonde.

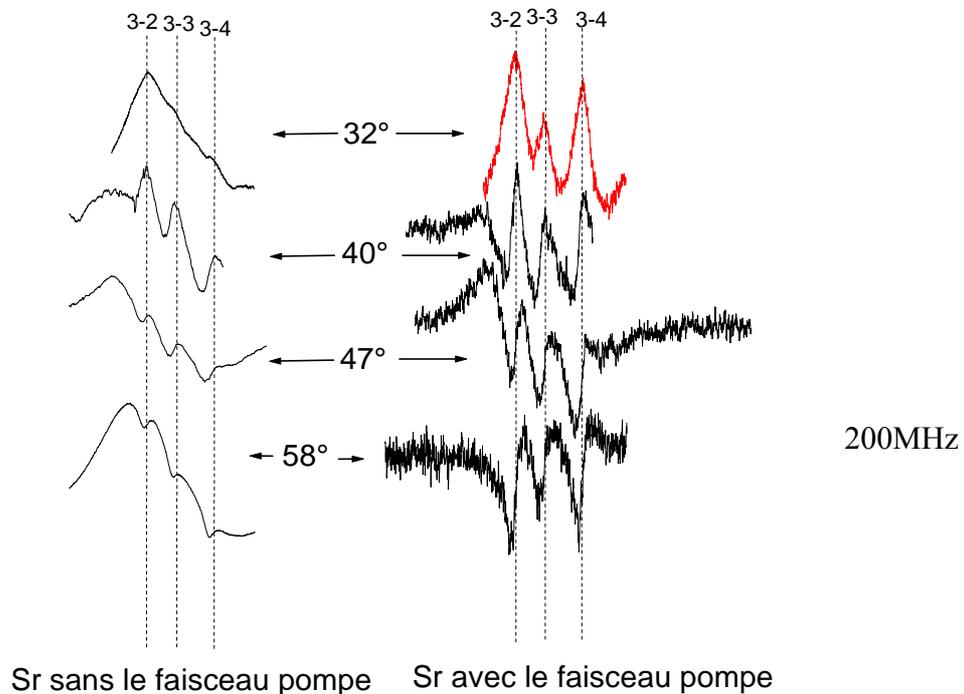


Figure 6.11 *Spectres de réflexion sélective avec et sans le faisceau pompe : pour un angle d'incidence du faisceau sonde de 32° , 40° , 47° , et 58° ($F=3$).*

c) Dépendance avec la fréquence du faisceau pompe

Les diverses expériences réalisées illustrent la réponse du système aux inhomogénéités créées par le faisceau pompe. La problématique de la nature de ces inhomogénéités reste cependant ouverte.

En effet, l'hypothèse d'inhomogénéités engendrant une sélectivité des atomes en vitesse plutôt que spatiale, ne peut être exclue. Ce processus est cependant à différencier de la notion de sélectivité de classe de vitesse dans une cellule macroscopique. Celle-ci est en effet définie par la projection des vitesses atomiques (quantité vectorielle), sur l'axe de propagation du champ incident, or, dans une opale, la direction de propagation du champ incident est complexe, notamment à cause de la forte diffusion, et probablement multidirectionnelle. Plutôt que de classes de vitesse, il paraît plus approprié de parler de sélectivité en vitesse, elle-même, beaucoup plus complexe que celle simplement associée à un décalage Doppler selon la direction de propagation (cas habituel d'une cellule macroscopique), mais suffisante pour que les spectres de réflexion sélective en présence de la pompe, ou en son absence, soient différents.

Afin d'identifier la nature de ces inhomogénéités, la fréquence optique du laser pompe est modifiée. En effet, en présence d'une inhomogénéité spatiale, modifier la fréquence de la pompe ne doit pas avoir d'impact sur la forme des spectres, seule une diminution de l'amplitude des transitions détectées, liée à un pompage globalement moins efficace, est éventuellement attendue. Au contraire, dans le cas d'une sélectivité en vitesse, la modification de la fréquence doit influencer sur les vitesses privilégiées, changeant alors la forme des spectres.

Plusieurs enregistrements successifs, dans lesquels, seule la fréquence du faisceau pompe est modifiée, sont donc réalisés. Afin d'assurer la reproductibilité des conditions expérimentales, la fréquence du laser pompe est fixée sur des points caractéristiques du spectre d'absorption saturée du laser 894 nm. Ce spectre, détecté en FM, résulte de la compétition entre deux processus physiques : l'absorption linéaire et saturée. Il est ainsi composé d'un signal de fond large, correspondant à la dérivée de la gaussienne caractéristique de l'absorption linéaire, sur lequel se superpose la dérivée d'une lorentzienne, représentatif du processus d'absorption saturée. 3 points, S_1 , S_2 et S_3 , parfaitement identifiables et reproductibles expérimentalement, peuvent alors être identifiés (cf fig 6.12). S_1 correspond ainsi à la résonance atomique, c'est-à-dire au centre de la dérivée de la lorentzienne, S_2

représente le point où le signal d'AS devient prédominant par rapport au signal d'absorption linéaire, et S_3 est identifié par le minimum de la dérivée de la gaussienne de l'absorption linéaire (cf fig 6.12). Notons que les points S_1 et S_2 dépendent des paramètres expérimentaux de l'absorption saturée, notamment de la puissance du faisceau pompe. Afin de ne pas fausser les conditions de reproductibilité, ces paramètres restent constants au cours des diverses expériences.

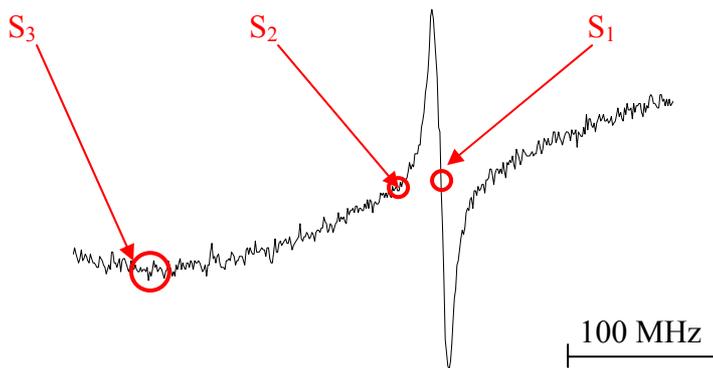


Figure 6.12 *Fréquences caractéristiques de l'absorption saturée du faisceau pompe utilisées pour déplacer la fréquence.*

Pour un angle d'incidence du faisceau pompe important, la variation de la fréquence optique du laser pompe ne semble pas modifier la forme générale des spectres (cf fig 6.13). Seule l'amplitude des structures sub-Doppler varie, diminuant quand on s'éloigne de la fréquence de résonance (complicant la comparaison des formes de raie), ce qui indiquerait donc que les inhomogénéités créées par le pompage sont de nature spatiale. Cependant, la comparaison entre les spectres de réflexion sélective et d'absorption saturée montre une dépendance en fréquence des signaux avec la fréquence optique du faisceau pompe : un décalage de la fréquence pompe vers le bleu crée par exemple un déplacement du spectre entier dans le bleu. Pour de forts décalages, les fréquences des transitions hyperfines observées ne coïncident plus du tout avec la référence d'absorption saturée (cf fig 6.13). De plus, lorsque la propagation pompe est inversée ($+\square_p$ au lieu

de $-\Delta_p$), le décalage des résonances a lieu en sens inverse. Cette dépendance du spectre relativement à la fréquence optique de la pompe semble caractéristique d'une sélection de vitesses.

De manière prévisible au vu de la symétrie du signal avec le signe de l'angle d'incidence de la pompe, on n'observe pas cette dépendance avec la fréquence optique du faisceau pompe pour une incidence du faisceau pompe faible (-2°). Dans ce cas, le changement de la fréquence pompe n'influe plus sur la position des transitions, seule leur amplitude est modifiée (cf fig 6.14).

Cette expérience, réalisée dans le but de déterminer la nature des sélectivités engendrées par le pompage, illustre la dépendance de ces sélectivités avec l'angle d'incidence du faisceau pompe. Ainsi, une incidence importante favoriserait un processus de sélection des atomes en vitesse, sensible au décalage fréquentiel, au contraire, pour une incidence faible, c'est une sélection spatiale qui dominerait le processus de sélectivité atomique, le spectre devenant alors insensible aux effets de décalage en fréquence.

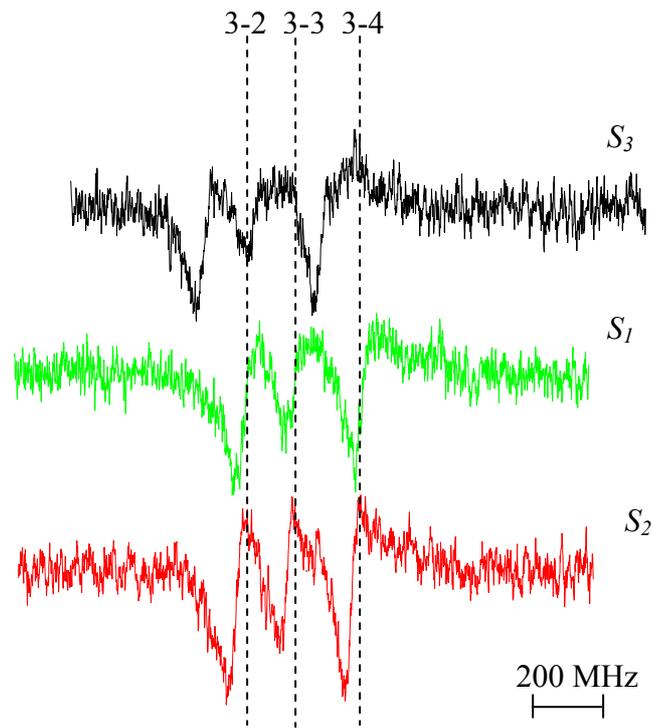


Figure 6. 13 *Décalage en fréquence des signaux de réflexion sélective pour une fréquence pompe en S_1 ; S_2 ; et S_3 et une incidence pompe de -58° (faisceau sonde polarisé en TM et présentant une incidence de $+58^\circ$).*

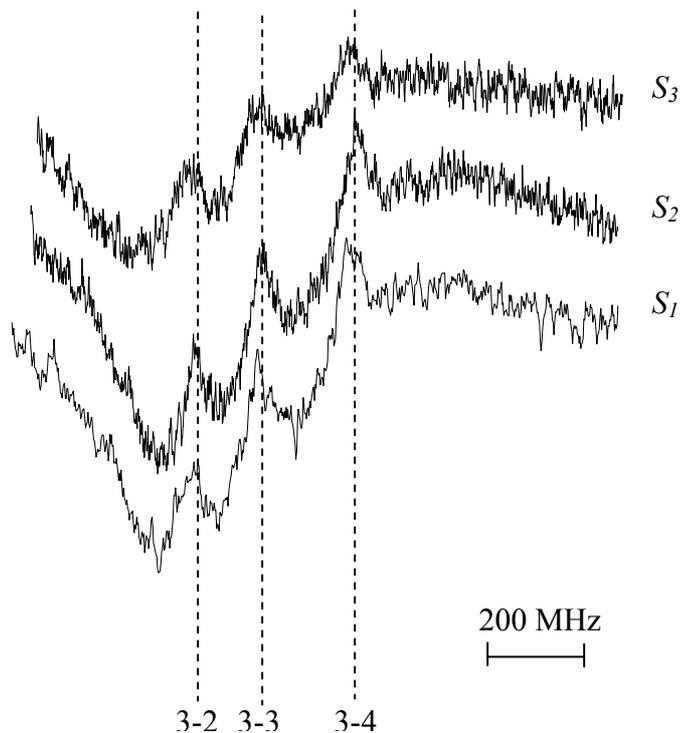


Figure 6.14 *Absence de décalage en fréquence des signaux de réflexion sélective pour une fréquence pompe en S_1 ; S_2 ; et S_3 et une incidence pompe de -2° (faisceau sonde polarisé en TM et présentant une incidence de $+58^\circ$).*

6.3 Détection d'un processus physique lent

Au cours des expériences de réflexion sélective avec un faisceau pompe, un autre type de phénomène physique, plus lent que la saturation ou le pompage optique, a été observé lorsque la fréquence de modulation d'amplitude du faisceau pompe est faible. Les différentes caractéristiques de ce signal, qui font apparaître qu'il correspond à une physique éloignée de l'objectif initial de l'expérience, sont discutées ici.

6.3.1 Détection d'un signal en quadrature

La figure 6.15 présente le signal observé lors d'une expérience de réflexion sélective avec un faisceau pompe. La différence expérimentale avec les spectres précédents est la fréquence de modulation d'amplitude du faisceau pompe. Celle-ci a été choisie par défaut à 130 Hz, ce qui est relativement lent par rapport aux processus habituels de saturation ou de pompage optique.

Pour ces paramètres expérimentaux particuliers, un signal présentant trois structures sub-Doppler centrées sur l'absorption saturée est observé. Contrairement au cas d'une modulation d'amplitude rapide, l'essentiel du signal est détecté en quadrature. Celui-ci a, de plus, une forme différente du signal en phase, ressemblant fortement au signal sans le faisceau pompe. Notons que de manière analogue aux signaux précédents, la réponse ne représente quantitativement qu'un faible pourcentage du signal sans le faisceau pompe (~2%).

La détection d'un signal en quadrature de forme différente de celle du signal en phase (cf fig 6.15) indique que le processus physique observé est lent et qu'il n'est pas entièrement détecté à cause d'une modulation d'amplitude trop "rapide". Une étude avec une fréquence de modulation d'amplitude plus faible est donc nécessaire.

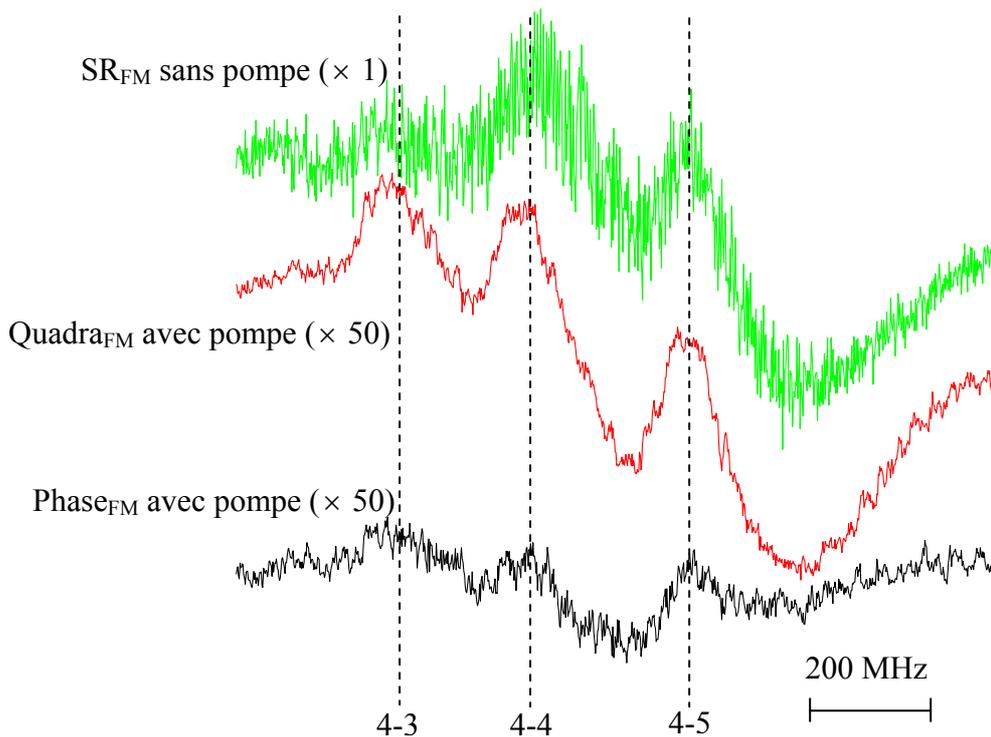


Fig 6.15 Spectres de réflexion sélective (852 nm fondamental $F=4$) avec et sans le faisceau pompe pour une fréquence de modulation d'amplitude de 130 Hz ($\Theta_s = +40^\circ$ et $\Theta_p = -40^\circ$, sous niveau sondé $F=4$).

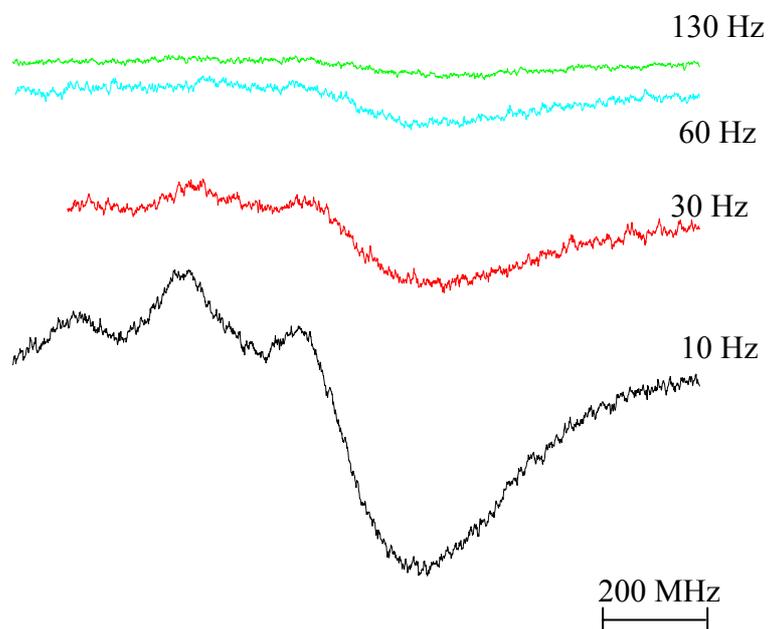
6.3.2 Evolution du signal avec la fréquence de modulation du faisceau pompe

Afin d'étudier un processus physique lent, la fréquence de la modulation d'amplitude du faisceau pompe est diminuée. Pour bien séparer le signal en phase et en quadrature, la phase de référence est directement déterminée à partir du faisceau pompe. La modulation étant effectuée par une roue dentée, la forme de la modulation d'amplitude est préalablement visualisée avec un oscilloscope afin de s'assurer que la taille du faisceau pompe n'est pas trop importante par rapport aux intervalles de la roue, ce qui pourrait fausser le calibrage de la référence de phase.

La figure 6.16 représente l'évolution des signaux en phase et en quadrature détectés pour une modulation de fréquence du faisceau pompe variant de 130 Hz à 10 Hz. L'amplitude du signal en

phase dépend fortement de la fréquence de modulation, et augmente de façon monotone avec ce paramètre, confirmant l'hypothèse d'un processus lent.

Concernant le signal en quadrature, aucune corrélation avec la fréquence de modulation ne peut être déterminée avec cette expérience. En effet, sa forme et même son amplitude évoluent de manière aléatoire avec la fréquence. Cependant, sur la gamme de fréquence appliquée, le signal en quadrature est persistant, et conserve une forme différente du signal en phase (fig 6.16), semblant indiquer que le processus physique mis en jeu s'effectue toujours sur un laps de temps supérieur à l'inverse de la fréquence de détection, voire que le signal est constitué d'un processus possédant plusieurs constantes de temps.



(a)

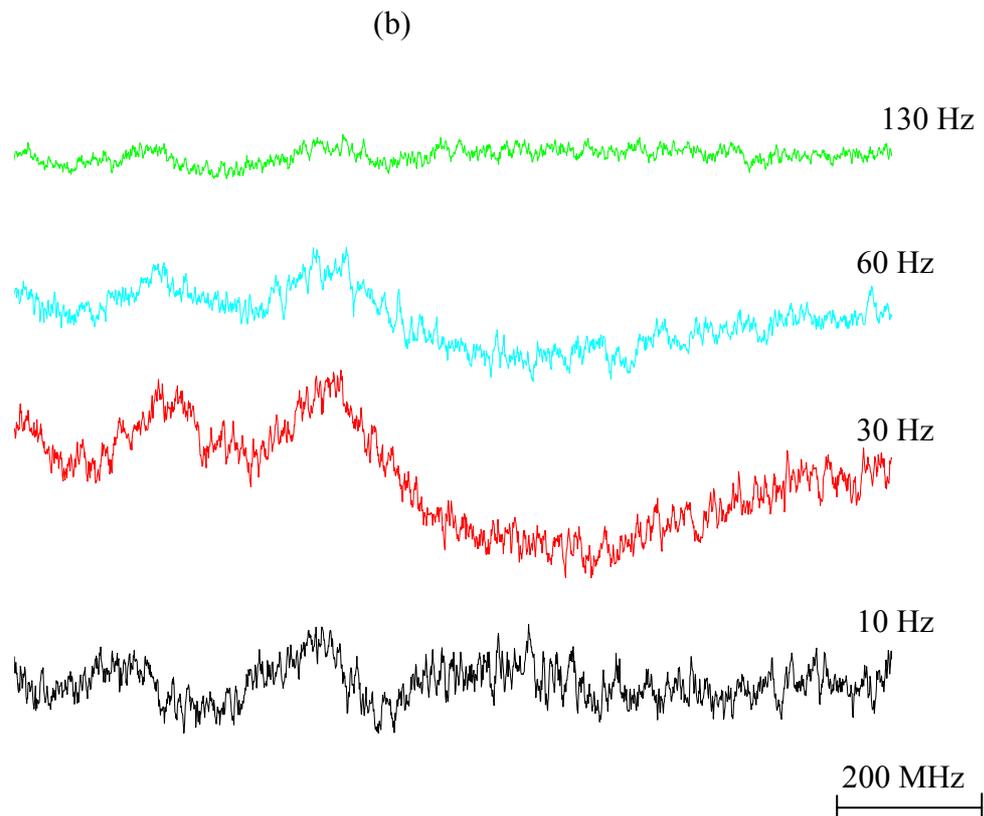


Fig 6.16 Evolution de la forme et de l'amplitude des spectres avec la fréquence de modulation du faisceau pompe; (a) signaux en phase; (b) signaux en quadrature (transition du fondamental $F=4$ de la raie D_2).

6.3.3 Absence d'influence de la fréquence optique du faisceau pompe

La détection d'un signal en quadrature, de forme analogue au signal sans le faisceau pompe, force à s'interroger pour savoir si le signal détecté est bien la réponse du système à la présence du faisceau pompe. Étonnamment, la modification de la fréquence optique du faisceau pompe n'entraîne aucun changement sur la forme ou l'amplitude du spectre observé. Même dans la situation extrême où la fréquence est très éloignée de la résonance (plusieurs GHz, fig 6.17), un signal, quasi-similaire au cas où le faisceau pompe est résonnant, est observé. Pourtant, en l'absence de faisceau pompe (laser 894 nm coupé) aucun signal n'est détecté, prouvant que le spectre est bien un résultat lié au faisceau pompe et non à une éventuelle contamination électronique.

Cette expérience exclut définitivement la possibilité de détecter un processus physique de type saturation ou pompage optique, la réponse des atomes étant indépendante de la fréquence du faisceau pompe même en l'absence de résonance.

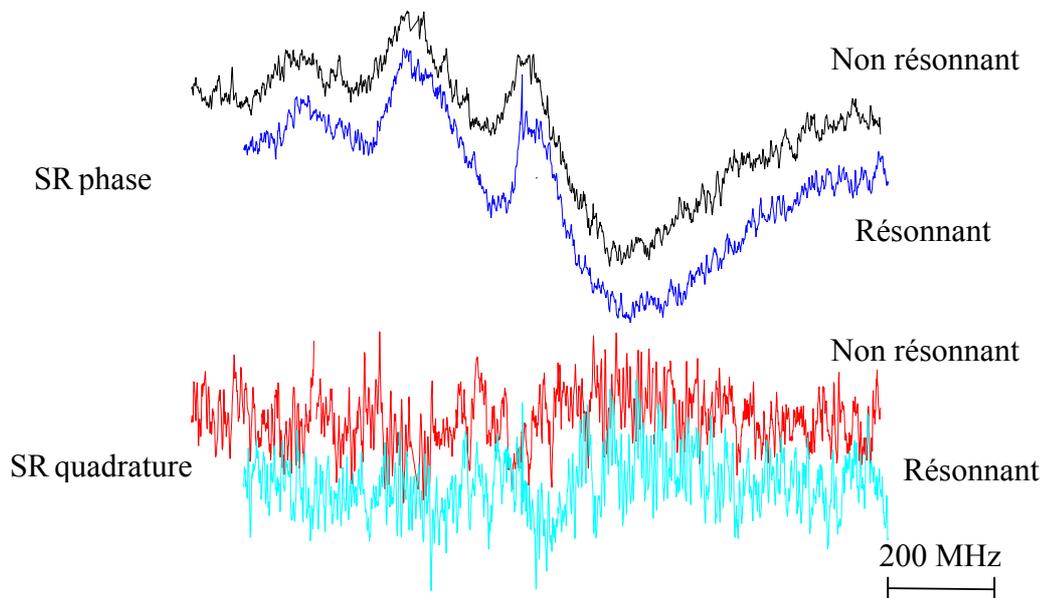


Fig 6.17 Absence de dépendance des signaux en phase et quadrature avec la résonance du faisceau pompe, $\Theta_s = +40^\circ$ $\Theta_p = 40^\circ$, et une fréquence de modulation d'amplitude de 9 Hz.

6.3.4 Interprétation : analogie avec le LIAD (Light Induced Atomic Desorption)

Les caractéristiques du signal détecté pour une modulation d'amplitude lente du faisceau pompe (<130 Hz) laissent à penser qu'il pourrait s'apparenter à un processus physique de type désorption atomique induite par laser (LIAD). Observé pour la première fois en 1993 par A. Gozzini lors d'une expérience sur une couche organique déposée dans une cellule fermée [GOZ], il a depuis été observé avec de nombreux matériaux, dont la silice [BUR]. Le LIAD est défini par la désorption, provoquée par une illumination, d'atomes fixés à la surface d'une paroi poreuse,

augmentant ainsi la densité de vapeur du milieu. Le LIAD n'est donc pas un processus thermique ou résonnant. Pour ces effets de désorption, on sait que les constantes de temps sont généralement macroscopiques (typiquement des minutes voire des dizaines de minutes [ATU]), et les explorations nécessitent plutôt une étude de la dynamique de montée et descente plutôt qu'une modulation harmonique ou en créneau.

La taille des interstices de l'opale, très différente de celles des pores des couches organiques, peut inciter à explorer une gamme de temps différente de celle habituellement observée. Plus encore que le piégeage des atomes dans les interstices, la structure microscopique des billes de silice (cf chap 2), poreuse en surface, pourrait justifier ces comportements régulièrement observés dans les milieux poreux. Ainsi, le faisceau pompe ne saturerait pas, mais décollerait les atomes présents à la surface (complexe) des sphères de l'opale, et nous détecterions alors sur le faisceau sonde la présence de ces atomes supplémentaires.

6.4 Conclusion

Afin d'explorer l'hypothèse d'un signal dépendant de l'origine spatiale des atomes sondés (cf chap 5), diverses expériences de réflexion sélective pompe-sonde ont été réalisées dans l'objectif de changer le nombre d'atomes de notre système de façon non homogène. Les résultats obtenus ont mis en évidence l'existence de deux processus physiques différents : un effet lent, similaire à du LIAD habituellement observé sur des milieux poreux, et un effet rapide, réponse de la saturation des atomes par le faisceau pompe.

Cette saturation, observée pour une modulation d'amplitude rapide (50 kHz), se manifeste par un signal présentant des transitions exaltées (comparativement à l'expérience à un faisceau) et dépendant de l'incidence ainsi que de la polarisation du faisceau sonde. Ainsi, pour une incidence du

faisceau sonde faible, l'efficacité de la saturation est plus importante qu'aux fortes incidences. Ceci pourrait prouver la dépendance entre l'angle d'incidence du faisceau sonde et la localisation des atomes participant à la réponse atomique. Au contraire d'une incidence importante, où le signal deviendrait sensible aux atomes plus éloignés dans l'opale, pour une incidence faible, on peut penser que le signal est plus sensible à la réponse des atomes localisés dans les premières couches, pompés plus efficacement, expliquant la différence quantitative observée avec l'angle d'incidence du faisceau sonde.

Les caractéristiques du régime aux grands angles d'incidence de la sonde sont modifiées dans le cadre d'une expérience pompe-sonde. Entre 30 et 60°, le signal de fond Doppler, sur lequel se superposait des structures sub-Doppler a ainsi quasiment disparu. Sachant que l'on détecte la différence des signaux avec et sans le faisceau pompe, l'absence d'observation de signal de fond Doppler indique que les atomes à l'origine de ce processus ne sont pas saturés par le faisceau pompe. Il est alors possible d'imaginer une propagation du champ incident telle que seuls les atomes localisés dans les couches profondes de l'opale seraient en interaction simultanée avec les faisceaux sonde et pompe, et donc sensible à cette méthode pompe-sonde. Nous privilégierions ainsi la détection d'atomes confinés en 3D, justifiant ainsi l'observation d'une réponse sub-Doppler à grands angles d'incidence.

La difficulté majeure d'interprétation de cette expérience réside dans le fait que nous ne sommes jamais sûrs que la saturation optique réalisée soit homogène vis-à-vis des vitesses atomiques. En effet, les expériences menées sur l'influence de l'angle d'incidence du faisceau pompe ont mis en évidence une dépendance avec la fréquence optique de la pompe, caractéristique d'un processus de sélection en vitesse. Introduire un pompage sous un angle d'incidence nul semble cependant limiter cette sélectivité de vitesse, et restreindre la nature du pompage à une inhomogénéité spatiale des atomes.

En vue d'expériences futures, il faudra imaginer un système pouvant saturer de façon

homogène les vitesses atomiques. L'application d'une modulation de fréquence large bande au laser pompe semble être, à court terme, une des solutions privilégiée pour éviter toute sélectivité sur la distribution de vitesse dans une expérience où on cherche précisément à comprendre un effet sub-Doppler associé à une distribution thermiques d'atomes confinés. Il faudra cependant faire attention au fait que ce dispositif s'avèrera inadapté au cas spécifique d'une réponse atomique de type Dicke (la réponse étroite imposant alors une certaine sélectivité).

Bibliographie :

[ATU] S. N. Atutov, V. Biancalana, P. Bicchi, C. Marinelli, E. Mariotti, M. Meucci, A. Nagel, K. A. Nasyrov, S. Rachini, L. Moi, «Light-induced diffusion and desorption of alkali metals in a siloxane film: theory and experiment», *Phys. Rev. A* **60**, 4693 (1999)

[BUR] A. Burchianti, A. Bogi, C. Marinelli, C. Maibohm, E. Mariotti, L. Moi, «Reversible light-controlled formation and evaporation of Rubidium clusters in nanoporous silica », *Phys. Rev. Lett.* **97**, 157404 (2006)

[GOZ] A. Gozzini, F. Mango, J. H. Xu, G. Alzetta, F. Maccarrone, R. A. Bernheim, «Light-induced ejection of alkali atoms in polysiloxane coated cells », *Nuovo Cimento* **15 D**, 709 (1993)

[STE] Daniel A. Steck, «Cesium D lineData», <http://steck.us/alkalidata/cesiumnumbers.1.6.pdf>

Conclusion générale

La première partie de ce projet a été consacrée au développement de cellules macroscopiques contenant une opale et du césium. Une difficulté est que le confinement des atomes par les interstices d'une opale tend à engendrer la formation d'agrégats de césium, transformant les opales en pièges à césium. Ce processus, réversible et dépendant du libre parcours moyen atomique, a pu être maîtrisé à l'aide d'un chauffage adéquat et d'opales de géométrie bien spécifique (nombre de couches, taille des billes).

A l'aide de ces cellules, diverses expériences de réflexion sélective ont pu être réalisées sur des opales composées de billes de $1\ \mu\text{m}$ de diamètre (voire $0,4\ \mu\text{m}$ pour certaines expériences) pour les raies D1 et D2 du césium. Ces expériences ont mis en avant l'existence de plusieurs régimes de signaux sub-Doppler dépendant de la propagation du champ à l'intérieur de l'opale. Pour des angles d'incidence relativement faibles, on a observé un signal sub-Doppler présentant une largeur de $\sim 30\ \text{MHz}$. Celui-ci s'élargit avec l'angle d'incidence jusqu'à perdre la résolution hyperfine (dans le cas des travaux sur la raie D₂). Au delà d'un certain angle d'incidence ($\sim 30^\circ$), une nouvelle structure, centrée sur la résonance atomique, apparaît sur le signal large précédent. Cette structure, sub-Doppler ($\sim 30\ \text{MHz}$), linéaire, et présentant une forte dépendance avec la polarisation, semble être la réponse d'atomes localisés dans des régions différentes (c-à-d soumis à un confinement différent) de celles qui contiennent les atomes engendrant le signal sub-Doppler pour des angles d'incidences faibles. Cette inhomogénéité spatiale de la réponse atomique est induite par la présence de la lame de verre sur laquelle est déposée l'opale, la zone de jonction des billes sur la lame de verre formant des volumes libres nettement supérieurs aux volumes engendrés par les interstices. A

la vue de ces caractéristiques inhabituelles, la structure sub-Doppler apparaissant aux grands angles d'incidence pourrait être la signature d'un rétrécissement Dicke 3D.

Afin de tester cette hypothèse, des expériences complémentaires, cherchant à comparer les spectres de réflexion sélective à des longueurs d'onde différentes (852 nm et 894 nm), ont été réalisées. Celles-ci révèlent de fortes discordances entre les deux longueurs d'onde en présence de la structure étroite sub-Doppler. Ces discordances paraissent cependant trop importantes pour n'être corrélées qu'à une modification du rapport longueur d'onde/taille du confinement gouvernant l'effet Dicke. Elles illustrent certainement une différence de la propagation des champs dans l'opale pour cette gamme angulaire.

Dans le but d'isoler la contribution sub-Doppler, une expérience pompe-sonde (894/852 nm) a été mise en place afin de créer des inhomogénéités spatiales dans la répartition atomique de l'opale, et notamment de saturer les atomes compris entre la lame de verre et la première couche de billes, région soupçonnée d'être à l'origine du signal de fond large. Cette expérience a mis en évidence la possibilité d'exalter les structures sub-Doppler observées aux grands angles en saturant une partie des atomes du système, appuyant l'hypothèse d'une réponse atomique dépendante de la région de l'opale sondée.

Ces résultats inédits révèlent le potentiel des opales dans l'étude des gaz mésoscopiques et constituent un premier pas dans la compréhension des effets d'un confinement 3D sur une vapeur. Bien que nous proposons des pistes pour interpréter les processus observés, celles-ci doivent encore être confirmées et nécessitent des explorations approfondies, aussi bien expérimentales que théoriques.

Afin de mieux comprendre la dépendance du signal avec la propagation des champs dans une opale, une étude théorique de cette propagation devra être réalisée aussi bien avec que sans la présence de vapeur. Contrairement aux travaux existants actuellement qui traitent l'opale comme un cristal photonique "infini", celle-ci devra considérer le système dans son

ensemble, c'est-à-dire en tenant compte des modifications induites par la présence du substrat de l'opale.

D'un point de vue expérimental, il est nécessaire de pouvoir comparer les réponses atomiques issues de confinements significativement différents et donc de modifier radicalement le rapport λ/D de nos expériences. Obtenir des opales composées de billes de diamètre nettement supérieur à $1\ \mu\text{m}$ s'avérant difficile, l'équipe va très prochainement sonder la transition $6S_{1/2}-7P_{3/2}$ du césium ($\lambda=455\ \text{nm}$) permettant ainsi de changer d'un facteur 2 le confinement actuel. Combinée à des opales de $1\ \mu\text{m}$ et $0,4\ \mu\text{m}$ de diamètre, cette expérience devrait permettre de tester l'appartenance du signal à un processus de type rétrécissement Dicke. Cette transition atomique étant plus sensible à l'interaction de van der Waals que les transitions D_1 et D_2 césium, il est fort probable que des effets de surface, notamment des décalages de fréquences de résonances, puissent être observés lors d'expériences sur l'opale constituée de billes de $0,4\ \mu\text{m}$, c'est-à-dire pour des distances atome-surface évoluant en moyenne autour de $\sim 100\text{nm}$.

Outre la complexité de la propagation d'un champ dans une opale, l'influence manifeste du substrat sur la réponse atomique complique l'interprétation des processus étudiés. Afin de s'affranchir de cet effet, il est nécessaire de modifier le système expérimental. A court terme, l'équipe envisage de revenir au projet initial et de s'intéresser aux signaux diffusés. Ceci permettrait de détecter en priorité la réponse des atomes présents dans le cœur de l'opale et donc de limiter les inhomogénéités induites par la première couche. De plus, la diffusion a l'avantage d'être une méthode a priori insensible à l'angle d'incidence.

A plus long terme, on peut envisager d'éliminer l'influence du substrat en utilisant non plus les interstices d'une opale, mais ceux d'une opale inverse. Les interstices de l'opale seront alors uniformes, éliminant les inhomogénéités dans le confinement des atomes. Un tel

système constituerait une première étape vers un système compact, composé d'un interstice unique.

Appendice 1 : Taille des interstices dans une opale Langmuir-Blodgett

Dans une structure cristalline compacte modélisée par des sphères dures et tangentes (cas d'une opale), une sphère possède 12 points de contacts avec ses plus proches voisins. Nous considérons le cas d'un empilement cubique faces centrées (CFC). Les points de contacts définissent entre eux des surfaces (triangles ou quadrilatères), représentant les surfaces de contact des interstices avec la sphère, et permettent de cartographier la répartition des interstices sur une sphère (cf fig A.1).

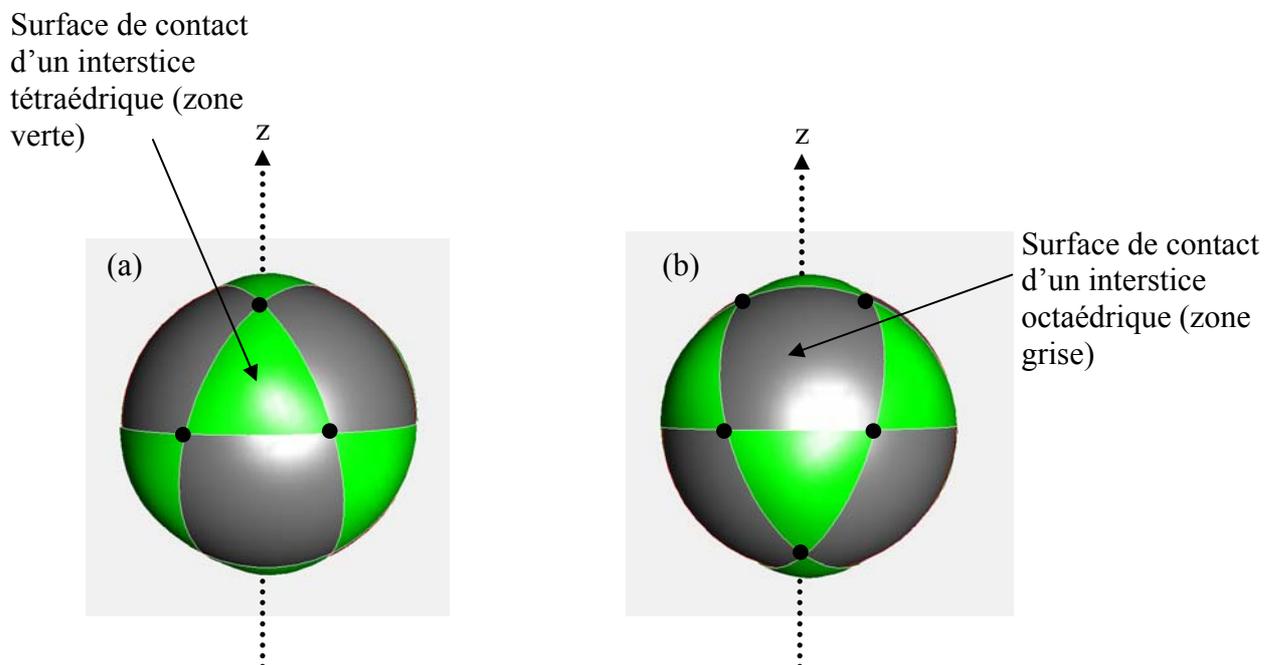


Fig A.1 (a) : Représentation des surfaces de contact des interstices, correspondant aux sites interstitiels tétraédriques et octaédriques, d'une bille appartenant à une structure cristalline compacte CFC ; (b) : rotation de 60° autour de (z) de la figure (a).

Cette cartographie est en rapport avec l'existence de deux types d'interstices pour une structure CFC : les sites interstitiels octaédriques et tétraédriques (cf fig A.2). Ainsi, une sphère est en contact avec 8 interstices tétraédriques et 6 interstices octaédriques.

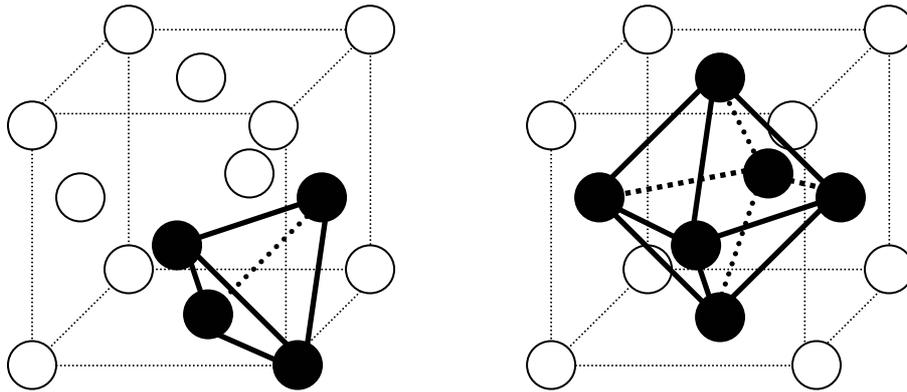


Fig A.2 Représentation des interstices correspondant aux sites tétraédriques et octaédriques d'une maille CFC cubique.

Afin d'estimer le confinement imposé aux atomes de césium lorsqu'ils sont insérés dans une opale, il est nécessaire de déterminer la taille respective de ces interstices.

Un interstice tétraédrique est constitué d'un tétraèdre régulier (à faces planes) d'arête $a=2r$, de volume $V_{T_{\text{plan}}} = \frac{2\sqrt{2}}{3}r^3$, délimité par 4 billes de rayon r , auquel il faut soustraire les fractions volumiques des billes. Le volume libre, V_T , dans un interstice tétraédrique pour une opale est donc donné par la relation :

$$V_T = V_{T_{\text{plan}}} - 4V_{BT} \quad (\text{A.1})$$

où V_{BT} est la section volumique d'une bille comprise dans ce tétraèdre.

Pour une sphère :

$$\frac{V_{BT}}{V} = \frac{S'}{S} \quad (\text{A.2})$$

avec V le volume d'une bille, S la surface d'une bille et S' la surface découpée par un interstice tétraédrique.

S'/S est donc (à 4π près) l'angle solide σ , sous lequel est vue la surface délimitant l'interstice, sous-tendue par le tétraèdre régulier d'arête r , composé du centre d'une bille et de trois points de contact formant la surface d'intersection d'une bille avec un interstice tétraédrique (cf fig A.3), d'où :

$$S' = \sigma r^2 \quad (\text{A.3})$$

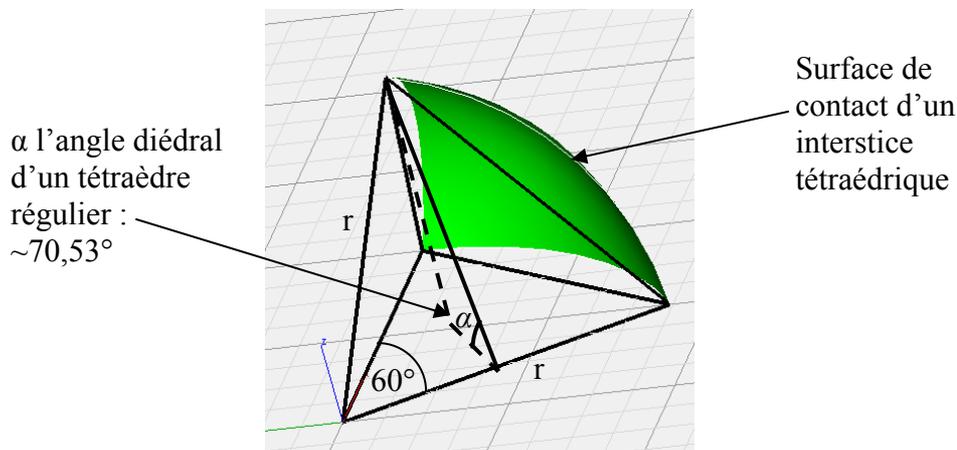


Fig A.3 Représentation du tétraèdre régulier formé par le centre d'une bille et 3 points de contact formant une surface d'intersection avec un interstice tétraédrique

A partir de l'angle solide d'un tétraèdre régulier qui vaut, d'après la géométrie des solides de Platon [PLA], $\sigma = 3\alpha - \pi$ (où α est l'angle diédral du tétraèdre régulier cf fig A.3), on trouve que :

$$V_{BT} = \frac{1}{2\pi} \tan^{-1} \left(\frac{\sqrt{2}}{5} \right) V \quad (\text{A.4})$$

Le volume d'un interstice tétraédrique est donc :

$$V_T = \left(\frac{\sqrt{2}}{2\pi} - \frac{2 \tan^{-1}(\sqrt{2}/5)}{\pi} \right) V \approx 0,05V \quad (\text{A.5})$$

De manière équivalente au cas des interstices tétraédriques, le volume libre, V_O , d'un interstice octaédrique correspond au volume d'un octaèdre constitué de faces planes auquel on soustrait une fraction volumique de billes :

$$V_O = V_{O_{\text{plan}}} - 6V_{BO} \quad (\text{A.6})$$

où $V_{O_{\text{plan}}} = \frac{8\sqrt{2}}{3}r^3$, est le volume d'un octaèdre régulier, d'arête $a=2r$, formé par 6 billes, et

V_{BO} est la section volumique d'une bille comprise dans cet octaèdre.

La surface d'une bille étant partagée entre 8 interstices tétraédriques et 6 interstices octaédriques, S'' (la surface de contact entre une bille et un interstice octaédrique) peut être exprimé en fonction de S' et par extension d'après la relation A.2 :

$$V_{BO} = \left(\frac{1}{6} - \frac{2 \tan^{-1}(\sqrt{2}/5)}{3\pi} \right) V \quad (\text{A.7})$$

Le volume d'un interstice octaédrique est donc [cf équations (A.6) et (A.7)]:

$$V_O = \left(\frac{2\sqrt{2} + 4 \tan^{-1}(\sqrt{2}/5)}{\pi} - 1 \right) V \approx 0,25V \quad (\text{A.8})$$

Les interstices octaédriques sont environ 5 fois plus volumineux que ceux tétraédriques. Dans une modélisation très grossière de sphères équivalentes, c-à-d en considérant les interstices comme des sphères, V_O et V_T sont respectivement équivalents à des sphères de rayon $0,63 r$ et $0,37 r$ (où r est le rayon d'une bille de l'opale).

Cette brève étude semble indiquer que les atomes de la vapeur peuvent être sujets à des confinements différents, dépendant de leur localisation dans l'opale. Cependant, ceci doit être nuancé par l'inter-connectivité des interstices. En effet le découpage des interstices en régions bornées par des plans amenant aux interstices tétraédriques et octaédriques est arbitraire. En réalité, tous ces interstices sont connectés entre eux (cf fig A.4).

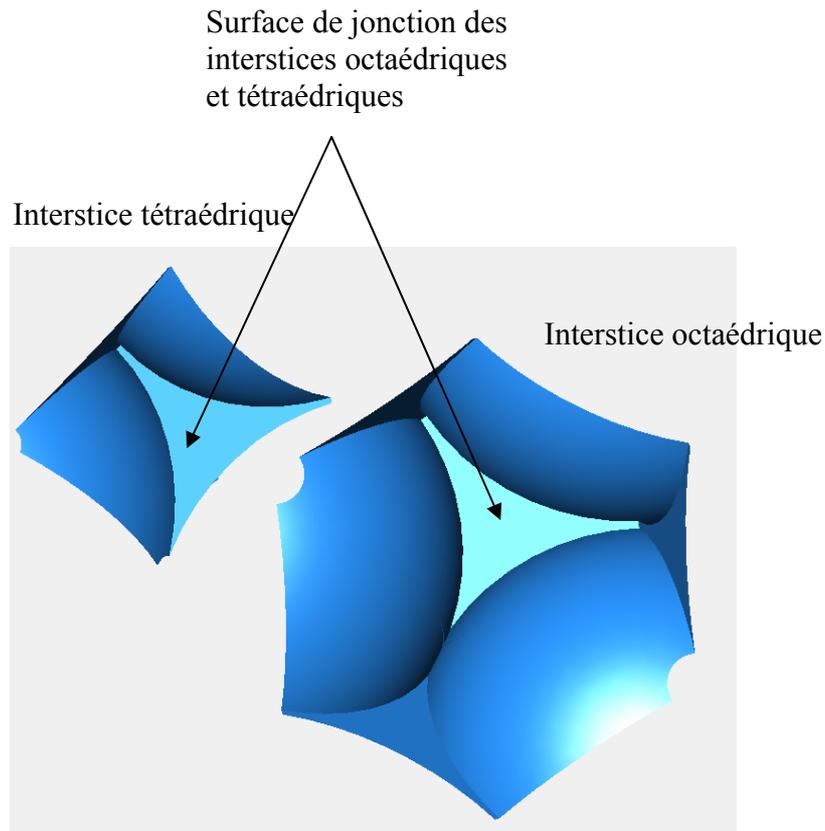


Fig A.4 Représentation de la surface de connexion entre un interstice octaédrique et tétraédrique

La répartition des interstices n'est en fait pas la même selon l'organisation de la structure cristalline. Ainsi, la cartographie d'une sphère insérée dans un système hexagonal compact (HC) met en évidence 3 types d'interstices (contre 2 pour une structure CFC) correspondant à la superposition des interstices octaédriques et tétraédriques (cf fig A.5). Dans un cristal HC la superposition spécifique de ces interstices engendre des volumes libres de grandes tailles autorisant dans certaines directions des temps de vols atomiques extrêmement longs : un atome peut théoriquement traverser l'ensemble du cristal sans aucune collision (cf A.6). Cette particularité des empilements HC n'est cependant que peu pénalisante dans notre système expérimental car elle ne concerne qu'un nombre très restreint d'atomes. De plus, l'empilement couche par couche obtenue par le dépôt Langmuir-Blodgett n'est jamais un cristal strictement HC ou CFC mais un mixte de ces deux types d'organisation.

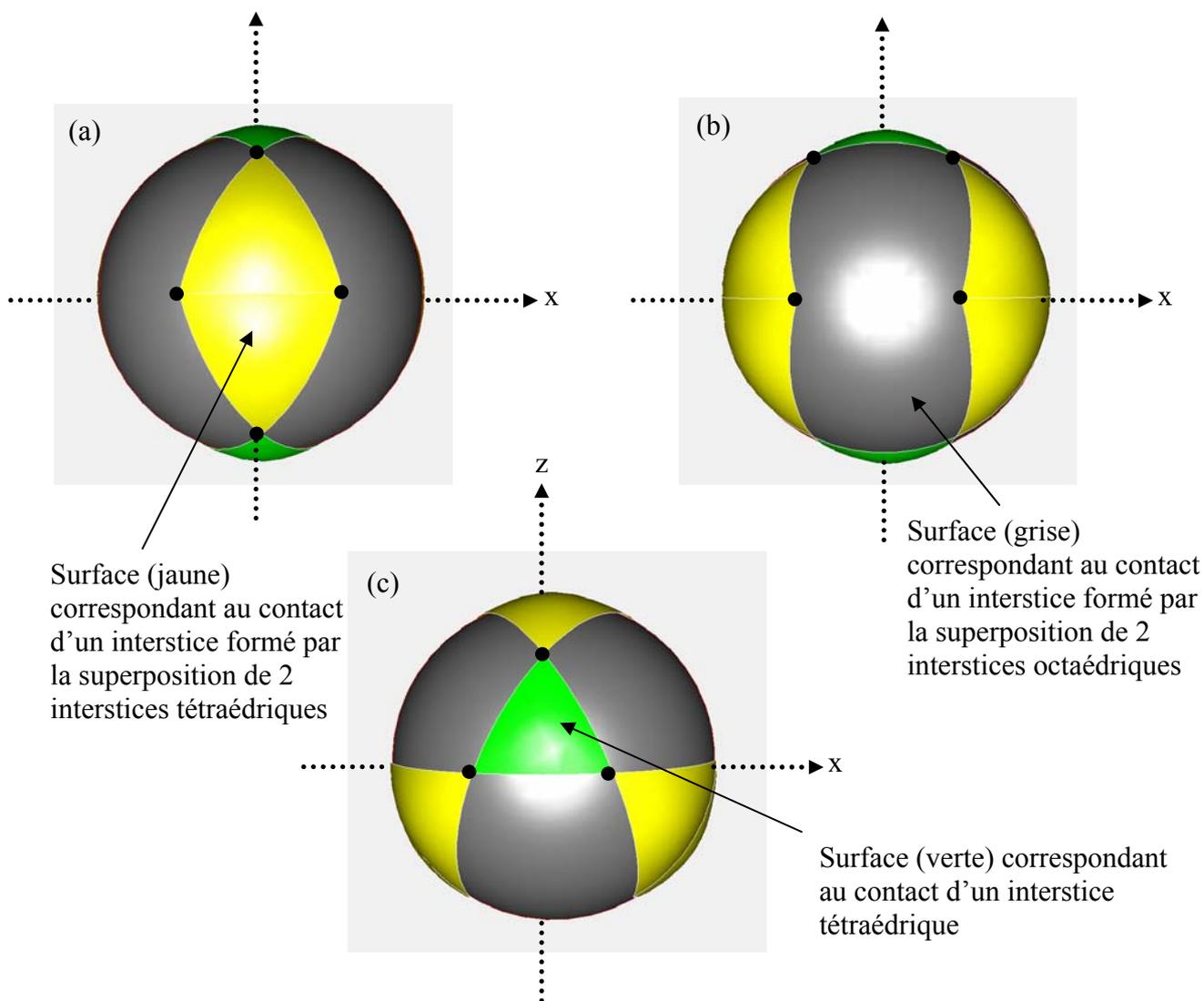


Fig A.5 (a) : Représentation des surfaces de contact des interstices, correspondant aux sites interstitiels tétraédriques et octaédriques, d'une bille appartenant à une structure cristalline compacte HC; (b) : rotation de 60° autour de (z) de la figure (a); (c) : rotation de 60° autour de (x) de la figure (b)

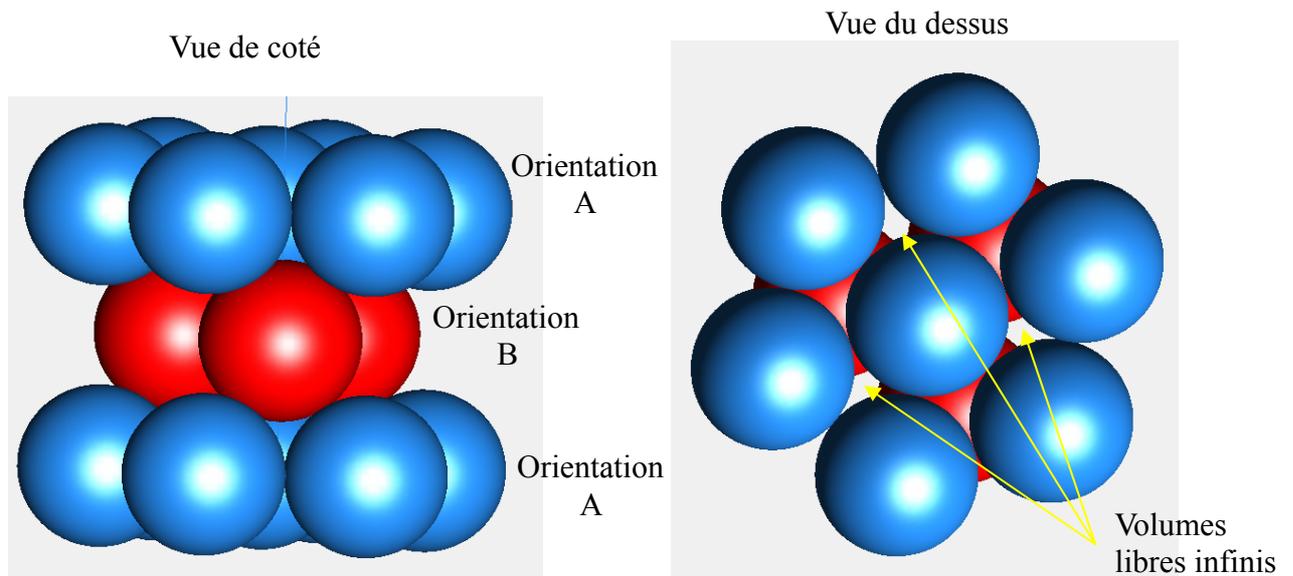


Fig A.6 Représentation des volumes libres infinis dans une structure hexagonale compacte pour des directions bien définies

Bibliographie :

[PLA] http://fr.wikipedia.org/wiki/Solide_de_Platon