



HAL
open science

Infiltration d'une vapeur diluée dans une opale artificielle Langmuir-Blodgett : études optiques et spectroscopiques

Elias Moufarej

► **To cite this version:**

Elias Moufarej. Infiltration d'une vapeur diluée dans une opale artificielle Langmuir-Blodgett : études optiques et spectroscopiques. Physique [physics]. Université paris 13, 2014. Français. NNT: . tel-01110682

HAL Id: tel-01110682

<https://theses.hal.science/tel-01110682v1>

Submitted on 28 Jan 2015

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

Elias MOUFAREJ

Titre :

**Infiltration d'une vapeur diluée dans une opale artificielle
Langmuir-Blodgett : études optiques et spectroscopiques**

Directeur de thèse

Daniel BLOCH

Soutenue le 19 décembre 2014 devant le jury composé de :

M. Daniel BLOCH

M. Athanasios LALIOTIS

M. Horacio FAILACHE

Mme. Catherine SCHWOB

M. Daniel COMPARAT

M. Jean-Michel HARTMANN

Mme. Martine CHEVROLLIER

M. Frédéric DU BURCK

Directeur de thèse

Encadrant

Rapporteur

Rapporteur

Examineur

Examineur

Examineur

Examineur

Remerciements

Les travaux de thèse présentés dans ce mémoire n'aurait pas été possible sans l'appui d'un grand nombre de personnes, auxquelles je tiens à exprimer ma sincère gratitude. Je tiens également à remercier ici, toutes les personnes qui ont rendu ces années inoubliables et passionnantes.

Je tiens à exprimer toute ma reconnaissance et ma profonde gratitude à Daniel Bloch, mon directeur de thèse. Je tiens à le remercier pour sa constante disponibilité, sa profonde rigueur scientifique et pour toutes les riches idées qu'il a su me transmettre pendant ses années. Je remercie profondément Athanasios Laliotis, mon encadrant et ami, pour son engagement, son aide expérimental et théorique, et pour tous ses moments amicales qui ont rendus ces années plaisantes et inoubliables. Je remercie Isabelle Maurin, mon encadrante, pour son aide et sa présence constante, en particulier dans les moments difficiles. Elle était toujours à l'écoute et capable de me remonter le moral.

Je tiens également à remercier Paolo Pedri et Jacques Baudon, pour leur amitié, les échanges scientifiques et les moments plaisants et inoubliables. Je remercie également mon ami Quentin Ripault pour son aide surtout pendant la rédaction de ce mémoire.

Je remercie tous les membres du Laboratoire de Physique de Lasers. Un grand merci pour tous les membres de l'équipe d'Horacio Failache, en Uruguay, de m'avoir accueilli pendant un mois. S'étaient des moments inoubliables. Je remercie également Serge Ravaine pour les opales qu'il nous a fournies pour réaliser ce projet, ainsi que Florence Thibault pour la fabrication des cellules. Je remercie tous les membres du jury, en particulier Daniel Comparat qui m'a accueilli comme post-doctorant dans son équipe.

Merci à Tous!

Table des matières

| | |
|--|-----------|
| 1. Introduction générale..... | 9 |
| Bibliographie..... | 17 |
| 2. Caractérisation optique des opales..... | 21 |
| 2.1. Structure des opales et techniques de fabrication..... | 22 |
| 2.1.1. Cristal photonique..... | 22 |
| 2.1.2. Structure d'une opale..... | 23 |
| 2.1.3. Fabrication des opales par sédimentation..... | 25 |
| 2.1.4. Fabrication des opales par la méthode de Langmuir-Blodgett..... | 26 |
| 2.1.5. Opales à notre disposition..... | 26 |
| 2.1.6. Imagerie des surfaces des opales..... | 27 |
| a) Microscope optique confocal..... | 27 |
| b) Microscope électronique à balayage..... | 29 |
| 2.2. Diffraction sur des opales..... | 31 |
| 2.2.1. Réseau de Bravais et réseau réciproque..... | 31 |
| 2.2.2. Diffraction sur une opale en incidence normale..... | 33 |
| 2.2.3. Expérience..... | 36 |
| a) Montage expérimental..... | 36 |
| b) Opale en silice..... | 37 |
| c) Opale en polystyrène..... | 37 |
| 2.2.4. Effet de l'angle d'incidence sur l'image de diffraction..... | 38 |
| 2.2.5. Influence de la polarisation du champ en incidence normale sur l'efficacité de la diffraction | 40 |
| 2.3. Réflexion et transmission sur des opales..... | 43 |
| 2.3.1. Montage expérimental..... | 43 |
| a) Laser super continuum..... | 44 |
| b) Spectromètre et détection..... | 45 |

| | |
|---|-----------|
| 2.3.2. Réflexion et transmission sur des opales épaisses (nombre de couches >3)..... | 45 |
| a) Modèle d'indice effectif constant..... | 46 |
| b) Modèle d'indice effectif stratifié..... | 47 |
| c) Résultats expérimentaux et discussion..... | 50 |
| 2.3.3. Réflexion et transmission sur des opales d'une et deux couches de billes..... | 53 |
| a) Modèle d'éléments finis..... | 53 |
| b) Résultats expérimentaux et comparaison avec le modèle d'éléments finis..... | 55 |
| 2.4. Conclusion et perspectives..... | 57 |
| Bibliographie..... | 60 |
| 3. Théorie de la spectroscopie de réflexion sélective en incidence normale et en incidence oblique..... | 63 |
| 3.1. Théorie de l'indice locale..... | 65 |
| 3.1.1. Principe..... | 66 |
| 3.1.2. Effet du mouvement atomique..... | 66 |
| 3.1.3. Limitation à la théorie locale de l'indice..... | 67 |
| 3.2. Théorie du signal de réflexion sélective en incidence normale à l'interface diélectrique-vapeur atomique sous l'effet du mouvement atomique..... | 68 |
| 3.2.1. Calcul du champ réfléchi à l'interface diélectrique-vapeur atomique..... | 68 |
| 3.2.2. Calcul de la polarisation induite par le champ électrique transmis..... | 71 |
| 3.2.3. Calcul du signal de réflexion sélective..... | 74 |
| 3.2.4. Modulation de fréquence..... | 77 |
| a) Technique et intérêt de la modulation de fréquence..... | 77 |
| b) Signal de réflexion sélective en modulation de fréquence..... | 78 |
| 3.3. Spectroscopie de réflexion sélective en incidence oblique sous l'effet du mouvement atomique..... | 79 |
| 3.3.1. Calcul du champ réfléchi en fonction de la polarisation du champ électrique incident..... | 81 |
| a) Calcul du champ électrique réfléchi pour une polarisation incidente TE..... | 81 |

| | | |
|-----------|--|-----------|
| b) | Calcul du champ électrique réfléchi pour une polarisation incidente TM..... | 82 |
| c) | Discussion et interprétation pour le cas de la polarisation TM..... | 83 |
| 3.3.2. | Calcul des coefficients de réflexion pour les deux polarisations principales TE et TM..... | 85 |
| a) | Coefficient de réflexion d'un champ électrique pour une polarisation TE..... | 85 |
| b) | Coefficient de réflexion d'un champ électrique pour une polarisation TM..... | 86 |
| c) | Interprétation..... | 87 |
| 3.4. | Conclusion..... | 89 |
| | Bibliographie..... | 91 |
| 4. | Expériences de réflexion sélective sur des atomes de césium..... | 93 |
| 4.1. | Le césium..... | 94 |
| 4.1.1. | Niveaux hyperfins du césium..... | 94 |
| 4.1.2. | Rapports des probabilités de transitions des niveaux excités de l'atome de césium..... | 96 |
| 4.1.3. | Densité de césium en fonction de la température..... | 97 |
| 4.1.4. | Largeur naturelles et élargissement Doppler des transitions..... | 98 |
| 4.2. | Présentations des cellules et des fours..... | 98 |
| 4.2.1. | Les cellules..... | 99 |
| 4.2.2. | Les fours..... | 101 |
| 4.3. | Référence de fréquence atomique..... | 102 |
| 4.3.1. | Absorption linéaire d'une vapeur atomique diluée..... | 102 |
| 4.3.2. | Absorption saturée pour un système à deux niveaux..... | 104 |
| 4.3.3. | Absorption saturée pour un système à trois niveaux..... | 105 |
| 4.3.4. | Absorption saturée en modulation de fréquence..... | 106 |
| 4.4. | Montage expérimental..... | 107 |
| 4.4.1. | Lasers utilisés et modulations de fréquence..... | 107 |
| a) | Laser $\lambda = 894$ nm..... | 107 |

| | |
|--|------------|
| b) Laser $\lambda = 852$ nm..... | 108 |
| c) Laser $\lambda = 455$ nm..... | 109 |
| d) Mesure de l'excursion de la modulation de fréquence M..... | 110 |
| 4.4.2. Montage optique..... | 111 |
| a) Montage optique de l'expérience d'absorption saturée..... | 112 |
| b) Montage optique de l'expérience de réflexion sélective..... | 112 |
| 4.4.3. Photodiodes et chaîne de détection..... | 114 |
| 4.4.4. Soustraction du bruit de fond..... | 114 |
| 4.5. Expériences de réflexion sélective sur la transition $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$ | 115 |
| 4.5.1. Effets du régime fort d'interaction de van der Waals sur les spectres de réflexion en incidence normale..... | 115 |
| 4.5.2. Atténuation du régime van der Waals fort avec l'effet Doppler résiduel pour des faibles angles d'incidence..... | 117 |
| 4.6. Expérience de réflexion sélective sous incidence oblique importante et effets type de Brewster..... | 119 |
| 4.7. Conclusion..... | 122 |
| Bibliographie..... | 124 |
| 5. Spectroscopie par réflexion d'atomes confinés dans une opale..... | 127 |
| 5.1. Etat de l'art du confinement d'une vapeur atomique dans une opale..... | 128 |
| 5.2. Comparaison des spectres expérimentaux des raies D_1 et D_2 du césium..... | 131 |
| 5.3. Spectroscopie par réflexion sur une opale de dix couches de billes de diamètre 400 nm..... | 135 |
| 5.4. Spectroscopie par réflexion sur le niveau $7P_{3/2}$ d'une vapeur confinée dans une opale..... | 136 |
| 5.4.1. Expériences sur une opale (10 couches) $D=400$ nm..... | 137 |

| | |
|---|------------|
| a) Transmission hors résonance atomique et intensité de saturation..... | 137 |
| b) Comparaison des densités de vapeur dans l'opale et dans le reste de la cellule..... | 137 |
| c) Résultats expérimentaux..... | 139 |
| d) Discussion..... | 140 |
| 5.4.2. Expériences sur une opale (20 couches) $D=1080$ nm..... | 140 |
| 5.4.3. Infiltration d'une vapeur atomique dans le modèle d'indice stratifié..... | 142 |
| 5.5. Expériences avec des opales multizones..... | 144 |
| 5.5.1. Présentation des cellules..... | 145 |
| 5.5.2. Spectroscopie par réflexion sur l'opale de billes de diamètre 1030 nm..... | 145 |
| a) Conditions expérimentales..... | 146 |
| b) Résultats expérimentaux..... | 146 |
| 5.5.3. Spectroscopie par réflexion sur l'opale de billes de diamètre 725 nm..... | 149 |
| 5.5.4. Conclusion..... | 150 |
| 5.6. Conclusion..... | 150 |
| Bibliographie..... | 152 |
| Conclusion générale..... | 153 |

Chapitre 1

Introduction générale

L'avancement des technologies actuelles, notamment des télécommunications, nécessitent des références de fréquences (horloge atomique ou moléculaire), de plus en plus développées et compactes [KNA]. Une référence de fréquence, dans le domaine des radiofréquences et le domaine de l'optique, est obtenue par spectroscopie à partir de la fréquence de résonance d'une transition atomique ou moléculaire. Les dispositifs fonctionnant sur le principe des atomes froids ont intrinsèquement des grandes dimensions et sont encombrants. Ceci renforce l'intérêt de la spectroscopie avec des vapeurs atomiques ou moléculaires confinées, et libres de l'effet Doppler.

Des effets de rétrécissements spectraux, dans le domaine des micro-ondes, ont été démontrés et observés en 1953, par R. Dicke. Ces effets connus sous le nom d'effet Dicke ou aussi rétrécissement Dicke [DIC], consistent à confiner le mouvement des atomes d'un gaz en

3 dimensions en réduisant le libre parcours moyen à des fractions de la longueur d'onde, par des collisions avec un gaz tampon [WIT]. En revanche, dans le domaine de l'optique les longueurs d'onde sont plus faibles, ce qui nécessiterait une densité de gaz tampon beaucoup plus importante. L'augmentation de la densité introduirait un élargissement spectral qui n'a pas permis ces expériences dans le domaine d'optique.

Dans le domaine optique, certaines techniques permettent d'éliminer l'effet Doppler avec des processus non- linéaires, tels que la spectroscopie par absorption saturée, où des techniques linéaires comme la spectroscopie de réflexion sélective en incidence normale [WOE]. Cette spectroscopie linéaire étudie l'intensité du champ réfléchi à l'interface avec un milieu résonnant, ce qui permet d'étudier la réponse d'une vapeur proche d'une interface plane, à une profondeur de l'ordre de $\lambda/2\pi$. Les particules qui arrivent à la fenêtre de la cellule ($v_z < 0$, avec z la direction normale à la surface), sont restées assez de temps dans le champ excitant, pour construire une cohérence optique et être dans un régime permanent d'interaction avec le champ. En revanche, les atomes qui s'éloignent de la surface ($v_z > 0$) sont en régime transitoire d'interaction avec le champ excitant. Il y a donc une asymétrie entre les classes de vitesse $v_z < 0$ et $v_z > 0$, qui se traduit par une structure sub-Doppler, qui peut être mise en évidence avec une technique de détection par modulation de fréquence. La spectroscopie par réflexion sélective est finalement une technique de confinement optique à 1D d'une vapeur diluée. Cette technique a longtemps été utilisée par le groupe pour étudier les interactions de van der Waals entre les atomes et une surface diélectrique.

Une technique assez voisine de la spectroscopie par réflexion sélective consiste à confiner géométriquement une vapeur en 1 dimension dans une cellule mince. En 1996, S. Briaudeau *et. al.* , ont montré des effets de rétrécissement sur les spectres, par transmission et uniquement en incidence normale sur une cellule mince contenant des atomes de césium [BRI]. En effet, les atomes ayant des vitesses non nulles dans la direction de propagation du champ, subissent des collisions avec les fenêtres, les empêchant d'atteindre un régime permanent d'interaction avec le champ excitant. Seuls les atomes en vol quasi-parallèle à la surface sont dans un régime permanent d'interaction avec le champ excitant et leur réponse est privilégiée. Or en incidence normale, ces atomes ont une vitesse quasi nulle dans la direction de propagation du champ excitant, ainsi ils sont libres de l'effet Doppler. Outre cette application, le groupe a exploité ces cellules pour étudier les effets de van der Waals

d'interaction entre les atomes et la surface à des distances de l'ordre de quelques dizaines de nanomètres [FIC].

Des travaux de confinement d'une vapeur atomique ou moléculaire à deux dimensions sont réalisés par certaines équipes, comme l'équipe de F. Benabid qui effectue les confinements d'atomes ou de molécules [BEN05] aux cœurs de fibres creuses micro structurées (diamètres compris entre 10 μm et 20 μm) (figure 1-1), qui se comportent comme des microcellules. Des rétrécissements spectraux sont observés, mais uniquement en spectroscopie non linéaire (spectroscopie d'absorption saturée) [COU] [GOS].

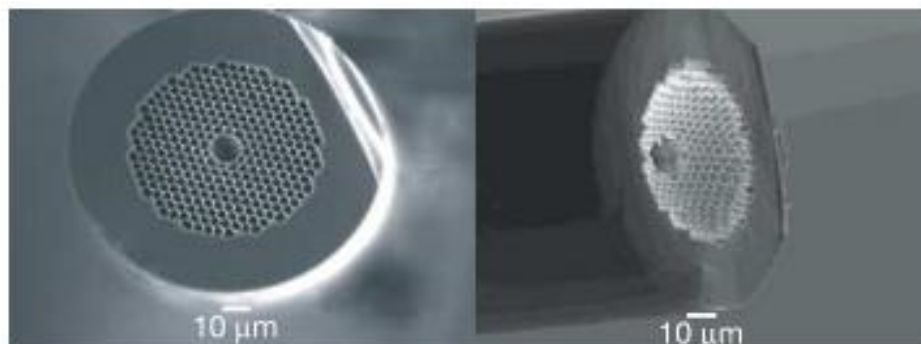


Figure 1-1 : Images issues de [BEN05], montrant les fibres creuses utilisées pour effectuer les confinements en deux dimensions des atomes.

Le confinement d'une vapeur diluée en 3 dimensions n'a, jusqu'à présent, pas fait l'objet de beaucoup d'études. Des études de confinement tridimensionnel ont été réalisées dans le but d'étudier les effets de LIAD [MEU] (Light-induced atom desorption) dans des milieux poreux [BUR]. En 2010, T. Svensson *et. al.* [SVE] a réalisé la spectroscopie de molécules d'oxygène confinées dans des matériaux poreux (ZrO_2 , Al_2O_3 , TiO_2), avec des pores de quelques dizaines de nanomètres (50-100 nm) et de quelques micromètres (3,7 μm). Ces expériences nécessitent des fortes densités de molécules, ce qui introduit des élargissements collisionnels empêchant l'observation ou même la recherche d'un signal sub-Doppler. Une autre étude de confinement tridimensionnel est réalisée par le groupe de H. Failache, qui consiste à confiner une vapeur diluée de rubidium dans les interstices d'un milieu poreux avec des pores d'assez grandes tailles. Ces matériaux sont obtenus à partir de fragments de silice de formes et dimensions aléatoires (50-100 μm) [VIL13]. La spectroscopie sur ces cellules a été réalisée par diffusion. Des rétrécissements spectraux ont été observés, qui sont en fait la signature d'effets non-linéaires analogues aux effets observés

par la spectroscopie non-linéaire d'absorption saturée [VIL14]. Ces effets d'absorption saturée sont liés aux rétrodiffusions par ces milieux poreux.

D'autres expériences infiltrant un gaz dans des nano ou microstructures, ont été réalisées par P. J. Harding. Ces expériences montrent qu'il est possible d'infiltrer une vapeur de césium dans une opale [HAR], qui est un empilement de micro ou nano billes auto-organisé. Dans le groupe, pendant ses travaux de thèse, P. Ballin, a effectué des expériences spectroscopiques sur une vapeur de césium diluée dans une opale en silice. L'empilement d'une opale permet d'obtenir des interstices micro et nanométriques, dans lesquels la vapeur atomique peut s'infiltrer et être confinée en 3 dimensions. Les expériences spectroscopiques sur ces cellules devaient se faire en diffusion, jusqu'à ce qu'on observe qu'une opale peut réfléchir la lumière, d'une façon spéculaire. La détection de la lumière par diffusion étant techniquement plus compliquée, les expériences spectroscopiques ont été réalisées par réflexion (figure 1-2) [BAL12].

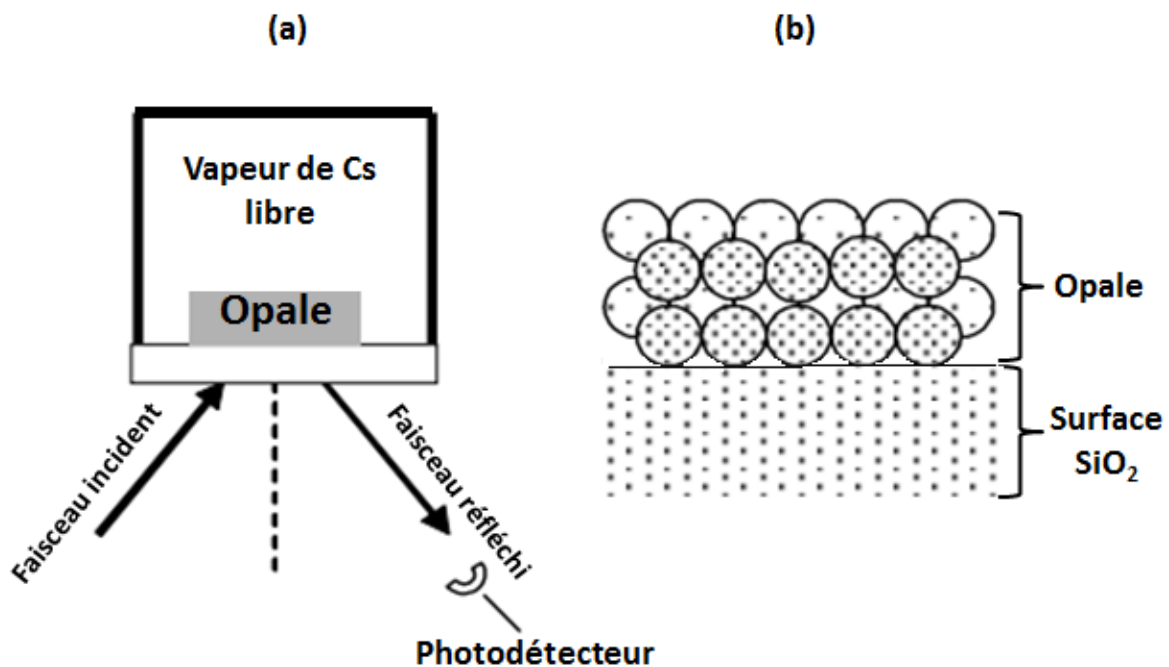


Figure 1-2 : (a) Figure illustrant le principe de la spectroscopie par réflexion sur une cellule contenant une opale mince (quelques couches). (b) Zoom sur l'opale et la surface plane en SiO_2 sur laquelle l'opale est déposée [BAL13a].

L'équipe a pu obtenir diverses opales en silice, fabriquées par l'équipe de S. Ravaine (Université de Bordeaux) avec la technique de déposition par Langmuir-Blodgett. Cette

technique de déposition couche par couche permet de contrôler le nombre de couches déposés [MAS]. Ensuite certaines opales ont été mises en cellule. P. Ballin a effectué les expériences spectroscopiques sur une opale de 10 couches de billes de diamètre 1080 nm. Ce diamètre des billes était choisi parce qu'il correspond à une taille moyenne des interstices comparable à la longueur d'onde des transitions du césium dans l'infrarouge (852 nm et 894 nm). En incidence normale, les formes des raies en réflexion sont antisymétriques et sub-Doppler de largeur d'environ 30 MHz. Ces spectres s'élargissent avec l'angle d'incidence, jusqu'à atteindre la largeur Doppler. A partir d'environ 30° d'incidence une structure sub-Doppler (de largeur inférieure à 30 MHz) apparaît, en régime linéaire, sur ce fond large [BAL13a] [BAL13b]. Cette structure sub-Doppler est plus importante, et différente en forme, en polarisation TM qu'on polarisation TE. La dépendance des formes de raies à l'angle d'incidence, et à la polarisation incidente, suggère que la propagation de la lumière dans une opale est compliquée. Ceci a été confirmé par une dépendance à la longueur d'onde, sensible à des faibles variations.

La figure 1-2 montre qu'il existe une région, derrière l'opale, où la vapeur est libre. Dans le cas où la transmission n'est pas assez atténuée, on a le risque de mélanger la réponse de ces atomes libres avec la réponse des atomes confinés dans l'opale qui nous intéressent. Des expériences similaires ont été effectuées sur une autre cellule contenant une opale de 20 couches de billes du même diamètre (1080 nm) pour atténuer la transmission déjà faible avec 10 couches (à cause des diffusions). Les résultats obtenus sur l'opale de 20 couches de billes sont similaires aux résultats obtenus sur 10 couches de billes. Ceci a permis de conclure qu'avec 10 couches de billes les spectres observés sont les réponses des atomes infiltrés dans les interstices et ne sont pas contaminés par la réponse des atomes libres. En réduisant le nombre de couches ou en variant le rapport entre la longueur d'onde et le diamètre des billes, la transmission peut ne pas être négligeable, ce qui peut varier les formes des raies de résonance et rendre la compréhension des spectres plus compliquée.

Les spectres observés en incidence normale et les élargissements spectraux avec l'angle d'incidence (pour des angles faibles) rappellent la spectroscopie sur les cellules minces, où des spectres sub-Doppler sont observés en incidence normale, et la largeur des spectres augmentent avec l'angle d'incidence. En effet, la région entre le substrat et la première demi-couche n'est pas compacte contrairement au reste de l'opale (cf. figure 1-2 (b)). Ainsi cette région, du point de contact des billes avec le substrat jusqu'au plan équatorial

de la première couche de billes, pourrait former l'équivalent d'une cellule mince. En revanche la structure sub-Doppler qui apparaît pour des angles supérieurs à 30° , n'a pas d'équivalent connu jusqu'à présent (dans un régime linéaire). Son origine physique reste inconnue, mais il est naturel d'associer cette réponse à des atomes situés dans les régions compactes de l'opale déposée sur la fenêtre.

En résumé, à l'issue des travaux de thèse de P. Ballin, nous savons qu'une vapeur de césium peut être infiltrée dans une opale en silice, sans aucune attaque chimique pour des températures inférieures à 200°C . Nous savons aussi qu'une spectroscopie par réflexion en incidence normale sur une opale, permet d'obtenir des spectres sub-Doppler. En incidence oblique il est possible d'obtenir des spectres, en régime linéaire, avec une composante sub-Doppler en confinant une vapeur atomique dans une opale. Les caractéristiques spectrales dépendent de façon compliquée de l'incidence, de la polarisation incidente, et de la longueur d'onde. Ceci fait de ces travaux la première expérience de spectroscopie linéaire sub-Doppler, sous incidence oblique, dans le domaine optique.

L'interprétation de cette technique spectroscopique demeure difficile, puisqu'elle combine plusieurs aspects physiques, qui nécessitent d'explorer :

- i. La propagation de la lumière dans une opale, et l'influence des différents paramètres d'incidence (angle, polarisation, et longueur d'onde) sur la trajectoire de la lumière.
- ii. Les interactions atome-lumière dans les interstices d'une opale, qui peuvent générer des formes de raies assez compliquées, mélangeant des contributions absorptives et dispersives, à cause du mouvement atomique qui introduit une relation non-locale et un régime transitoire d'interaction avec le champ.
- iii. La sommation des différentes contributions atomiques, dans la direction du champ réfléchi qu'on détecte, qui peut dépendre fortement du nombre de couches

Dans ce travail, nous nous sommes intéressé à la propagation du champ dans les opales et à sa dépendance à l'incidence et à la longueur d'onde (ou au rapport entre la

longueur d'onde et le diamètre des billes λ/D). Nous avons entrepris diverses expériences systématiques de réflexion sur une vapeur confinée dans des opales en variant la longueur d'onde et le diamètre des billes. Le choix des longueurs d'onde est cependant limité par les longueurs d'onde des transitions des atomes de césium, et le choix du diamètre des billes est limité par les cellules qui nous ont été fabriquées (la fabrication d'une cellule prend beaucoup de temps entre la fabrication de l'opale, et mise en cellule et remplissage, selon les disponibilités des partenaires). Nous avons donc également effectué des expériences purement optiques (réflexion et transmission) sur diverses opales (sans atomes).

Outre l'exploration de la propagation de la lumière, les expériences optiques (sans atomes), peuvent fournir des informations sur la qualité des opales, fabriquées par la technique Langmuir-Blodgett, qui présentent divers défauts d'organisation et d'empilement. Une grande partie de la lumière incidente est diffusée par une opale. Une partie de cette lumière diffusée peut conserver sa cohérence pour former des figures de diffraction [ROM]. La forme d'une figure de diffraction, sur une monocouche d'opale, et le rendement de la diffraction sont des informations liées à l'organisation de la couche de billes, et qui peuvent aider à déterminer le diamètre des billes. En regardant les figures de diffraction par réflexion sur une opale multicouche nous pouvons connaître l'organisation de la première couche et le diamètre des billes de l'opale.

Pour étudier l'effet du nombre de couches sur la forme de raies, et l'origine des structures sub-Doppler, nous avons fait fabriquer des cellules avec des opales multizones, dont le nombre de couches varie de 0 à 4 couches (avec un pas de 1), selon la position sur la fenêtre. Ces cellules nous permettront de varier le nombre de couches en gardant les mêmes conditions expérimentales. Au cours de ces expériences, nous observons des résultats inattendus, qui montrent des rétrécissements spectraux même sur une couche de billes [MOU], en incidence oblique, alors qu'il ne s'agit plus de la réponse d'atomes confinés en 3 dimensions dans une partie compacte de l'opale. Nous effectuons de même des expériences de réflexion sélective sur la surface plane, dans le but de comparer les spectres avec les spectres sur les différentes couches, car jusqu'à présent aucune expérience de réflexion sélective sur des angles importants n'a été réalisée.

Nous présentons notre travail dans ce mémoire comme suit :

Dans le chapitre 2 nous détaillons la structure d'une opale, monocouche et multicouches, ainsi que les techniques de fabrications de ces matériaux. Nous présentons les opales à notre disposition et les résultats de caractérisations par microscopie optique et électronique que nous avons effectuées sur ces échantillons. Nous présentons, de même les résultats des différentes expériences optiques (diffraction, réflexion et transmission) que nous avons effectuées sur diverses opales en les comparants à des prédictions théoriques.

Le chapitre 3 est dédié à la théorie de la spectroscopie de réflexion sélective. Nous présentons le calcul de la réflexion sélective par la théorie de l'indice locale, qui ne prend pas en compte le mouvement atomique. Nous rappelons ensuite les étapes du calcul de la théorie de la réflexion sélective sous l'effet du mouvement atomique en incidence normale [DUC], et en incidence oblique [NIE], où le signal peut s'annuler dans des conditions particulières.

Dans le chapitre 4 nous décrivons les cellules et le montage expérimental (les lasers, la chaîne de détection, et le montage optique), utilisés au cours de ce projet. Nous décrivons une technique de détection différentielle, que nous avons développée pour s'affranchir du bruit de fond liée à la modulation résiduel d'amplitude. Nous présentons finalement les résultats expérimentaux, qui justifient l'annulation et le changement de signe du signal prédits au chapitre 3.

Dans le chapitre 5, après un rappel des principaux résultats expérimentaux obtenus par P. Ballin, nous présentons et discutons les résultats des expériences spectroscopiques par réflexion sur des opales. Ces expériences sont effectuées pour 2 opales différentes (10 couches $D = 400$ nm et 20 couches $D = 1080$ nm), et avec trois longueurs d'ondes différentes (455 nm, 852 nm et 894 nm). Ensuite nous présentons les expériences effectués sur deux opales multizones (1, 2, 3 et 4 couches avec $D = 1030$ nm ou $D = 725$ nm). Nous discutons finalement des résultats inattendus obtenus sur les monocouches de billes.

Bibliographie :

- [BAL12] Ballin, P. (2012). *Confinement tridimensionnel d'une vapeur de césium dans une opale de nanobilles* (Doctoral dissertation, Université Paris-Nord-Paris XIII).
- [BAL13a] Ballin, P., Moufarej, E., Maurin, I., Laliotis, A., & Bloch, D. (2013, March). Sub-Doppler optical resolution by confining a vapour in a nanostructure. In *Seventeenth International School on Quantum Electronics: Laser Physics and Applications* (pp. 87700J-87700J). International Society for Optics and Photonics.
- [BAL13b] Ballin, P., Moufarej, E., Maurin, I., Laliotis, A., & Bloch, D. (2013). Three-dimensional confinement of vapor in nanostructures for sub-Doppler optical resolution. *Applied Physics Letters*, *102*(23), 231115.
- [BEN05] Benabid, F., Couny, F., Knight, J. C., Birks, T. A., & Russell, P. S. J. (2005). Compact, stable and efficient all-fibre gas cells using hollow-core photonic crystal fibres. *Nature*, *434*(7032), 488-491.
- [BRI] Briaudeau, S., Bloch, D., & Ducloy, M. (1996). Detection of slow atoms in laser spectroscopy of a thin vapor film. *EPL (Europhysics Letters)*, *35*(5), 337.
- [BUR] Burchianti, A., Bogi, A., Marinelli, C., Maibohm, C., Mariotti, E., & Moi, L. (2006). Reversible light-controlled formation and evaporation of rubidium clusters in nanoporous silica. *Physical review letters*, *97*(15), 157404.
- [COU] Couny, F., Light, P. S., Benabid, F., & Russell, P. S. J. (2006). Electromagnetically induced transparency and saturable absorption in all-fiber devices based on $^{12}\text{C}_2\text{H}_2$ -filled hollow-core photonic crystal fiber. *Optics communications*, *263*, 28-31.

- [DIC] Dicke, R. H. (1953). The effect of collisions upon the Doppler width of spectral lines. *Physical Review*, 89(2), 472.
- [DUC] Ducloy, M., & Fichet, M. (1991). General theory of frequency modulated selective reflection. Influence of atom surface interactions. *Journal de Physique II*, 1(12), 1429-1446.
- [FIC] Fichet, M., Dutier, G., Yarovitsky, A., Todorov, P., Hamdi, I., Maurin, I., Saltiel, S., Sarkisyan, D., Gorza, M.-P., D. Bloch, D., & Ducloy, M. (2007). Exploring the van der Waals atom-surface attraction in the nanometric range. *EPL (Europhysics Letters)*, 77(5), 54001.
- [GOS] Ghosh, S., Bhagwat, A. R., Renshaw, C. K., Goh, S., Gaeta, A. L., & Kirby, B. J. (2006). Low-light-level optical interactions with rubidium vapor in a photonic band-gap fiber. *Physical Review Letters*, 97(2), 023603.
- [HAR] Harding, P. J. (2008). *Photonic crystals modified by optically resonant systems* (Doctoral dissertation, University of twente).
- [KNA] Knappe, S., Shah, V., Schwindt, P. D., Hollberg, L., Kitching, J., Liew, L. A., & Moreland, J. (2004). A microfabricated atomic clock. *Applied Physics Letters*, 85(9), 1460-1462.
- [MAS] Massé, P. (2007). *Cristaux photoniques colloïdaux d'architecture contrôlée* (Doctoral dissertation, Université Sciences et Technologies-Bordeaux I).
- [MEU] Meucci, M., Mariotti, E., Bicchi, P., Marinelli, C., & Moi, L. (1994). Light-induced atom desorption. *EPL (Europhysics Letters)*, 25(9), 639.
- [MOU] Moufarej, E., Maurin, I., Zabkov, I., Laliotis, A., Ballin, P., Klimov, V., & Bloch, D. (2014). Infiltrating a thin or single-layer opal with an atomic vapour: Sub-Doppler signals and crystal optics. *EPL (Europhysics Letters)*, 108(1), 17008.

- [NIE] Nienhuis, G., Schuller, F., & Ducloy, M. (1988). Nonlinear selective reflection from an atomic vapor at arbitrary incidence angle. *Physical Review A*, 38(10), 5197.
- [ROM] Romanelli, M., Maurin, I., Todorov, P., Chan, C. H., & Bloch, D. (2007). A 2D nanosphere array for atomic spectroscopy. *Ann. Phys. (Paris)*, 32 (2007) 127.
- [SVE] Svensson, T., Adolfsson, E., Lewander, M., Xu, C. T., & Svanberg, S. (2011). Disordered, strongly scattering porous materials as miniature multipass gas cells. *Physical Review Letters*, 107(14), 143901.
- [VIL13] Villalba, S., Failache, H., Lalotis, A., Lenci, L., Barreiro, S., & Lezama, A. (2013). Rb optical resonance inside a random porous medium. *Optics letters*, 38(2), 193-195.
- [VIL14] Villalba, S., Lalotis, A., Lenci, L., Bloch, D., Lezama, A., & Failache, H. (2014). Sub-Doppler resonances in the backscattered light from random porous media infused with Rb vapor. *Physical Review A*, 89(2), 023422.
- [WIT] Wittke, J. P., & Dicke, R. H. (1956). Redetermination of the hyperfine splitting in the ground state of atomic hydrogen. *Physical Review*, 103(3), 620.
- [WOE] Woerdman, J. P., & Schuurmans, M. F. H. (1975). Spectral narrowing of selective reflection from sodium vapour. *Optics Communications*, 14(2), 248-251.

Chapitre 2

Caractérisations optiques des opales

Une opale est un assemblage de particules sphériques unidimensionnelles, auto-organisées. Selon son organisation, une opale peut présenter des caractéristiques cristallographiques [MCC]. Dans ce chapitre nous expliquons l'organisation de ces matériaux ainsi que deux techniques d'élaboration. La première technique de fabrication que nous présentons est la déposition par sédimentation qui est, jusqu'à présent, la technique de fabrication la plus simple [DAV]. Nous expliquons aussi la technique de fabrication par Langmuir-Blodgett [MAS], qui est la technique avec laquelle nos échantillons sont fabriqués. Nous caractérisons les échantillons à notre disposition par microscopie optique et microscopie électronique à balayage.

Nous effectuons des expériences optiques (sans vapeur atomique) sur nos échantillons, dans le but d'explorer le comportement du champ électromagnétique dans ces milieux ayant des dimensions du même ordre de grandeur ou inférieures à la longueur d'onde. Ces

structures ont une organisation en réseau périodique, nous observons donc des figures de diffraction dont nous explorons la distribution dans l'espace ainsi que le rendement de la diffraction en fonction de l'orientation du réseau. Nous explorons aussi expérimentalement le rendement de la réflexion et de la transmission, par des expériences avec une source blanche (laser super continuum). Nous comparons nos résultats expérimentaux à des modèles permettant d'obtenir des spectres de réflexion et de transmission sur des opales.

2.2 Structure des opales et techniques de fabrication

Une opale peut avoir les caractéristiques d'un cristal photonique, que nous définissons dans cette section. Ensuite nous expliquons la structure d'une opale, ainsi que les techniques de fabrication par sédimentation et par Langmuir-Blodgett. Nous présentons ensuite les opales à notre disposition, et les imageries de surface effectuée sur ces échantillons par microscopie électronique à balayage et par microscopie optique.

2.1.1 Cristal photonique

Un cristal photonique est un matériau diélectrique, qui présente une variation périodique de l'indice de réfraction. Si cette périodicité est de l'ordre de grandeur de la longueur d'onde, la propagation de cette onde est modifiée. Cette modification se traduit par des gammes de fréquences interdites, suivant la direction de propagation de l'onde [SAK]. Ces bandes interdites sont une analogie des bandes interdites des électrons dans un semi-conducteur.

Ces cristaux photoniques sont classés, principalement, selon le nombre de directions de la périodicité de l'indice de réfraction, ce qui définit les dimensions spatiales du cristal (1D, 2D et 3D) (Figure 2-1). Un exemple bien connu de cristal photonique 1D est le miroir de Bragg.

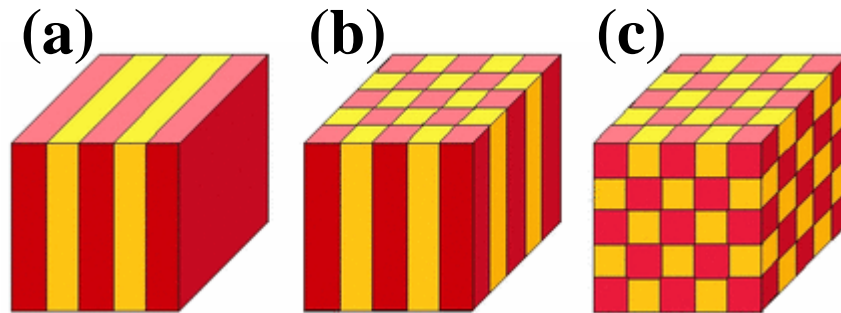


Figure 2-1: Représentation schématique de cristaux photoniques (CP) de différentes dimensions : (a) CP 1D, (b) CP 2D, (c) CP 3D. On attribue à chaque couleur un indice de réfraction [JOA].

2.1.2 Structure d'une opale

Une opale est un assemblage compact auto-organisé de nano-billes [REC]. Le diamètre des billes peut varier de quelques centaines de nanomètres à quelques micromètres. Il existe des opales naturelles (pierres précieuses). En revanche, on fabrique des opales artificielles avec des billes en silice (SiO_2) ou avec des billes en polystyrène. Technologiquement on sait produire des particules sphériques avec ces matériaux. Une bonne organisation de ces billes permet d'obtenir un cristal photonique [MCC]. Si la dispersion du diamètre des billes est supérieure à 5%, elles ne peuvent pas s'organiser pour former un cristal [MAS]. Plusieurs techniques de fabrication d'opale ont été développées au cours de ces dernières années.

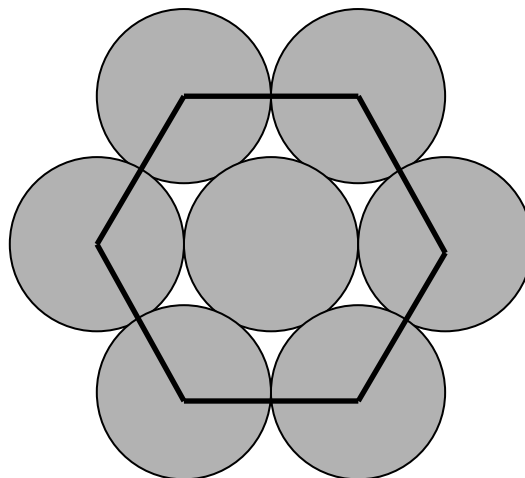
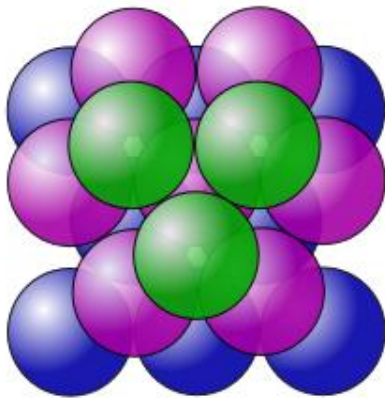


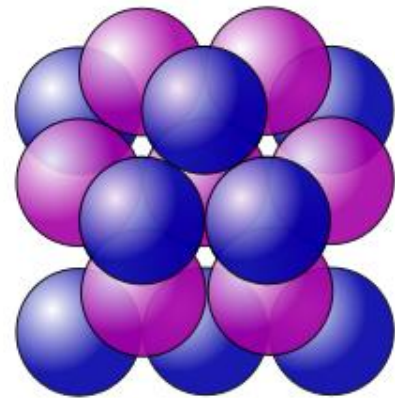
Figure 2-2: organisation hexagonale des billes d'une couche d'opales

Sur un plan, un cercle (coupe équatoriale d'une sphère) peut être entouré, au maximum, de six autres cercles de la même taille. L'organisation d'une opale étant compacte, chaque bille est alors entourée de six billes. Les centres de trois billes en contact forment un triangle équilatéral. On peut ainsi mettre six triangles équilatéraux avec un sommet commun pour former un hexagone régulier (figure 2-2) [BAN]. On en déduit finalement que chaque couche de billes dans une opale a une organisation hexagonale.

Pour comprendre l'organisation de l'opale en volume, on regarde dans un premier temps trois sphères en contact d'un plan A. On peut poser une quatrième bille dans le creux entre les trois billes du plan A. En posant les billes dans les creux du plan A, on forme un autre plan B. Si on ajoute un troisième plan, on peut mettre les billes soit en correspondance avec celle du plan A, soit dans un troisième placement définissant un nouveau plan C (Figure 2-3). Il existe ainsi trois types de plans A, B et C. la superposition A-B-C-A forme une structure cubique face centrée (CFC) compacte, et la superposition A-B-A-B forme une structure hexagonale compacte (HC) [BAN].



Cubique à faces centrées ABC



Hexagonal compact ABA

Figure 2-3: représentation des deux organisations compactes possibles CFC et HC selon la superposition de trois plans. En bleu les plans A, en violet les plans B et en vert le plan C.

Les deux organisations compactes, CFC et HC, présentent un taux de compacité et une distance inter couches identiques. Dans les deux cas le taux de compacité est $C = 0,74$. La distance inter-couches d est la hauteur du tétraèdre régulier formé par trois billes en contact du

plan A et la bille du plan B qui se situe dans le creux entre ces billes. La distance d peut être alors calculée par rapport au diamètre des billes D , avec des simples lois de géométrie, et vaut

$$d = D\sqrt{\frac{2}{3}}.$$

2.1.3 Fabrication des opales par sédimentation

Cette technique est la plus simple pour fabriquer des opales (Figure 2-4). On pose le substrat au fond d'un bécher qui contient une solution liquide (solvant) dont laquelle émergent les billes à déposer. Ensuite on laisse la solution au repos pour une longue durée (quelques semaines). La force de gravité attire les billes vers le substrat et forme le cristal. On récupère l'opale lorsque le solvant s'évapore complètement. L'opale doit subir un traitement thermique afin d'éliminer les molécules de solvant, qui se comportent comme des ponts entre les sphères [DAVI].

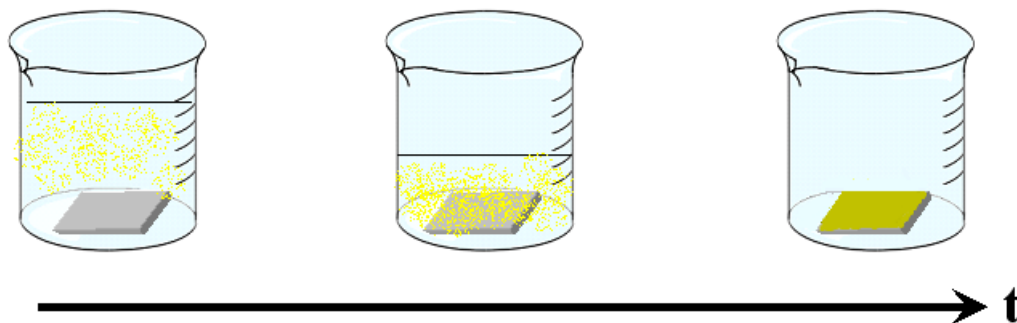


Figure 2-4: Représentation schématique de la formation d'une opale par sédimentation en fonction du temps.

La taille et la densité des sphères jouent un rôle très important dans la réussite de cette technique. Si les sphères sont très petites ou si leur densité dans le solvant est faible, la sédimentation n'aura pas lieu et si les particules sont trop grosses ou leur densité dans le solvant trop importante, leur vitesse de sédimentation sera plus grande que la vitesse de cristallisation et un sédiment désorganisé sera alors obtenu. Si les densités sont optimisées les billes forment une opale ayant une structure cristalline cubique face centrée. En revanche, c'est une technique particulièrement lente (quelques semaines) et le nombre de couches déposées n'est pas du tout maîtrisé.

2.1.4 Fabrication des opales par la méthode de Langmuir-Blodgett

Cette technique est une succession de plusieurs étapes (Figure 2-5). Premièrement on introduit un solvant, de préférence très volatil, à la surface d'une cuve contenant de l'eau. On plonge les billes dans cette solution. Dans une deuxième étape, lorsque le solvant s'évapore complètement, une barrière mobile comprime les billes. Les billes forment un réseau hexagonal compact à l'interface air/eau. Dans une troisième étape un bras motorisé, sur lequel est attaché le substrat, plonge rapidement dans la cuve et remonte lentement, afin de transférer le film sur le substrat. Ces étapes permettent de déposer une couche d'opale. En répétant cette étape on peut empiler les couches déposées, et ainsi former une opale dont le nombre de couches est bien maîtrisé [MAS].

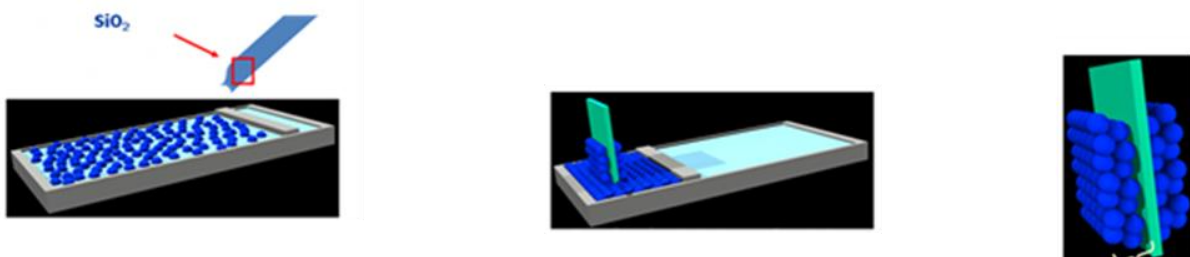


Figure 2-5: Représentation schématique de la méthode Langmuir-Blodgett. Image fournie par S. Ravaine, CRPP Bordeaux.

Les opales fabriquées par la méthode Langmuir-Blodgett présentent une mauvaise organisation cristallographique (un mélange aléatoire de CFC et HC) mais une bonne maîtrise du nombre de couches. Cette maîtrise du nombre de couches est essentielle pour les expériences de confinement d'atomes que nous allons exposer dans les chapitres qui suivent.

2.1.5 Opales à notre disposition

Au début de ses travaux de thèse, Philippe Ballin a effectué des expériences d'infiltration de vapeur atomique dans une opale en SiO_2 épaisse (nombre de couches > 2000) fabriquée par la technique de sédimentation [BAL1]. Cette opale était fournie par l'équipe d'Agnès Maître, à l'Institut des Nanosciences de Paris. Les travaux ont montré que les atomes restent piégés dans l'opale à cause de son épaisseur et forment des agrégats. Pour évaporer tous les atomes de césium piégés dans le volume, il faut chauffer l'opale à environ 200°C

pendant plus que vingt-quatre heures. L'équipe a alors décidé de confiner les atomes dans des opales de faible nombre de couches (≤ 20 couches). Ces opales sont fabriquées par la technique de Langmuir-Blodgett, par l'équipe de Serge Ravaine à l'université de Bordeaux.

Nous avons été fourni par l'équipe de Serge Ravaine en opales de différents diamètres de billes (276 nm, 380 nm, 400 nm, 740 nm, 1 μm) et de différents nombres de couches (de 1 à 20 couches). Cette variété nous permet d'explorer l'effet de ces différents paramètres.

Certaines de nos opales en SiO_2 sont déposées sur un substrat en SiO_2 d'épaisseur 2 mm et de diamètre 5 cm. Ces substrats sont utilisés comme des fenêtres de cellules pour confiner la vapeur de césium. D'autres opales, en SiO_2 et en polystyrène, sont déposées sur une lame de microscope. Ces dernières vont nous servir pour effectuer des expériences de caractérisation en mesurant les champs réfléchis et transmis, dans le but d'explorer la propagation du champ dans ces milieux.

2.1.6 Imagerie des surfaces des opales

Nous allons développer dans cette partie, les différents moyens que nous avons utilisés pour observer la surface de certaines opales. Parmi les moyens à notre disposition nous avons un microscope optique confocal. La résolution des microscopes optiques est limitée par la longueur d'onde de la lumière visible ainsi que par la qualité des lentilles. La résolution du microscope à notre disposition est de l'ordre de 400 nm. Pour une meilleure résolution nous utilisons un microscope électronique à balayage MEB dans certains cas.

a) Microscope optique confocal

Grâce au microscope confocal de la salle blanche de l'université Paris 13, nous observons la surface de nos échantillons. Cette caractérisation, étant optique, n'est pas destructive. Nous observons la surface de quelques opales en SiO_2 et en polystyrène, fabriquées par la technique de Langmuir-Blodgett. Certaines des opales observées sont monocouches et d'autres sont un empilement de plusieurs couches.

La résolution de ce dispositif étant limitée à environ 400 nm, nous observons une vue globale à une grande échelle de l'organisation des billes. La surface des opales monocouche et multicouches en SiO₂ présente des zones hexagonales monodomaine sur des distances inférieures à 20 μm. Nous observons d'ailleurs des agrégats de billes sur certaines zones et des trous sur d'autres.

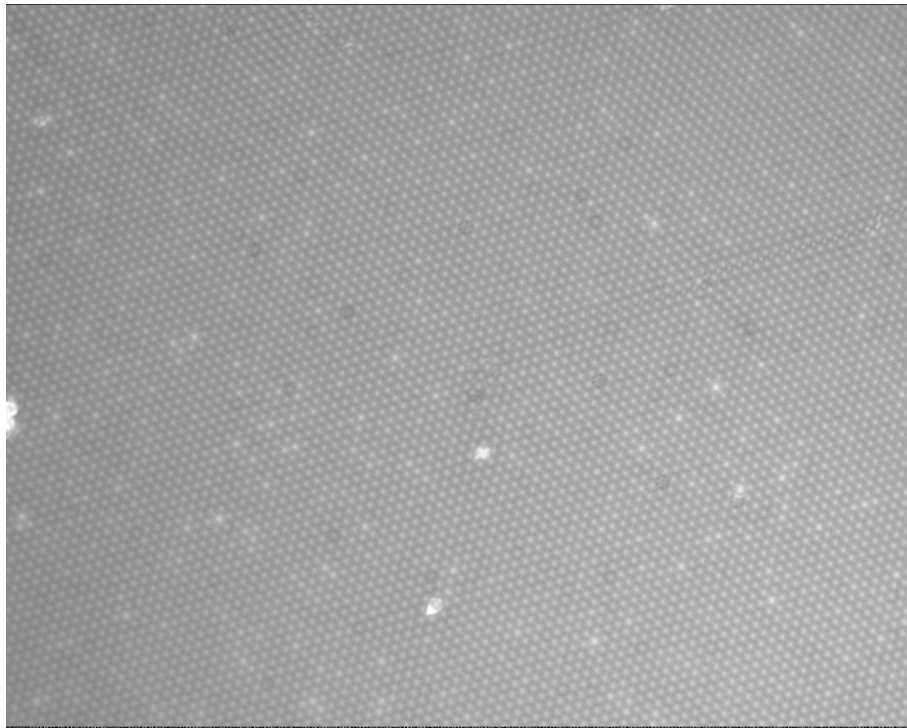


Figure 2-6 : Image par microscope confocal d'une opale monocouche de billes en polystyrène de diamètre 1030 nm. Nous observons une bonne organisation hexagonale sur des distances de l'ordre d'une centaine de micromètres. Le microscope optique confocal à notre disposition ne nous permet pas d'obtenir directement une échelle associée à l'image. Celle-ci est à déduire du diamètre supposé connu des billes

Technologiquement, la fabrication de billes en polystyrène présente une faible dispersion du diamètre des billes, contrairement aux billes de silice (jusqu'à 5%) [MAS]. Ceci permet d'avoir une meilleure organisation cristalline, et donc une opale présentant des régions monodomaines plus grandes. Nous remarquons une bonne organisation des billes sur certaines zones, des zones monodomaines de l'ordre d'une centaine de micromètres (Figure 2-6).

b) Microscope électronique à balayage

D'autres types de microscopie non optique permettent d'observer la topographie des nanostructures. Certains microscopes fonctionnent avec des sondes locales en contact ou à faible distance de l'échantillon, comme le microscope à force atomique AFM [MEY]. La topographie d'une opale présente des variations de centaines de nanomètres. Ces variations peuvent provoquer la destruction de la sonde ou des temps d'imagerie très lents. Ces dispositifs ne sont pas donc adaptés à nos besoins.

Une autre microscopie non optique est la microscopie électronique à balayage (MEB). Ces microscopes sont capables de fournir des images à haute résolution (dizaine de nanomètres), par le principe de l'interaction électron matière. Les électrons sont générés par un filament, en général, en tungstène. Ainsi ils sont conduits par un canon équipé de bobines qui ont le rôle de lentilles magnétiques pour focaliser le faisceau d'électrons. L'interaction entre le faisceau d'électrons et l'échantillon génère des électrons secondaires. Les électrons secondaires sont accélérés vers un détecteur qui amplifie le signal. A chaque point d'impact correspond un signal électrique dont l'intensité dépend à la fois de la topographie de l'échantillon et de la nature de l'échantillon au point d'impact qui détermine le rendement en électrons secondaires. Il est ainsi possible, en balayant le faisceau sur l'échantillon, d'obtenir une cartographie de la zone balayée.

La silice (SiO_2) étant un isolant ($\text{gap} \approx 9\text{eV}$), les électrons primaires ne peuvent pas être conduits et évacués. Les électrons restent alors piégés au point d'impact ce qui provoque la déviation des électrons secondaires, et des images de mauvaise qualité. Pour éviter ces problèmes on dépose en général une couche métallique d'environ 100 nm avant d'effectuer les images [ROM]. Le dépôt d'une couche métallique est alors destructif pour l'échantillon. Nous avons réussi à obtenir des images de bonne qualité, en réduisant la vitesse des électrons à 5 kV.

Nous observons la surface d'une opale de 20 couches de billes de diamètres 276 nm, et des opales monocouches de diamètres de billes 1 μm et 740 nm, sur lesquelles nous effectuons des expériences par la suite. Sur les images des opales monocouches nous observons des zones hexagonales monodomaine sur des distances inférieures à 20 μm . La surface présente certains trous et certaines zones d'agrégats de billes. On observe aussi des

billes de diamètres plus petits, ainsi que des billes jumelées (figure 2-7). Dans le cas d'une opale multicouche ces défauts peuvent introduire des défauts d'organisation de l'opale en volume.

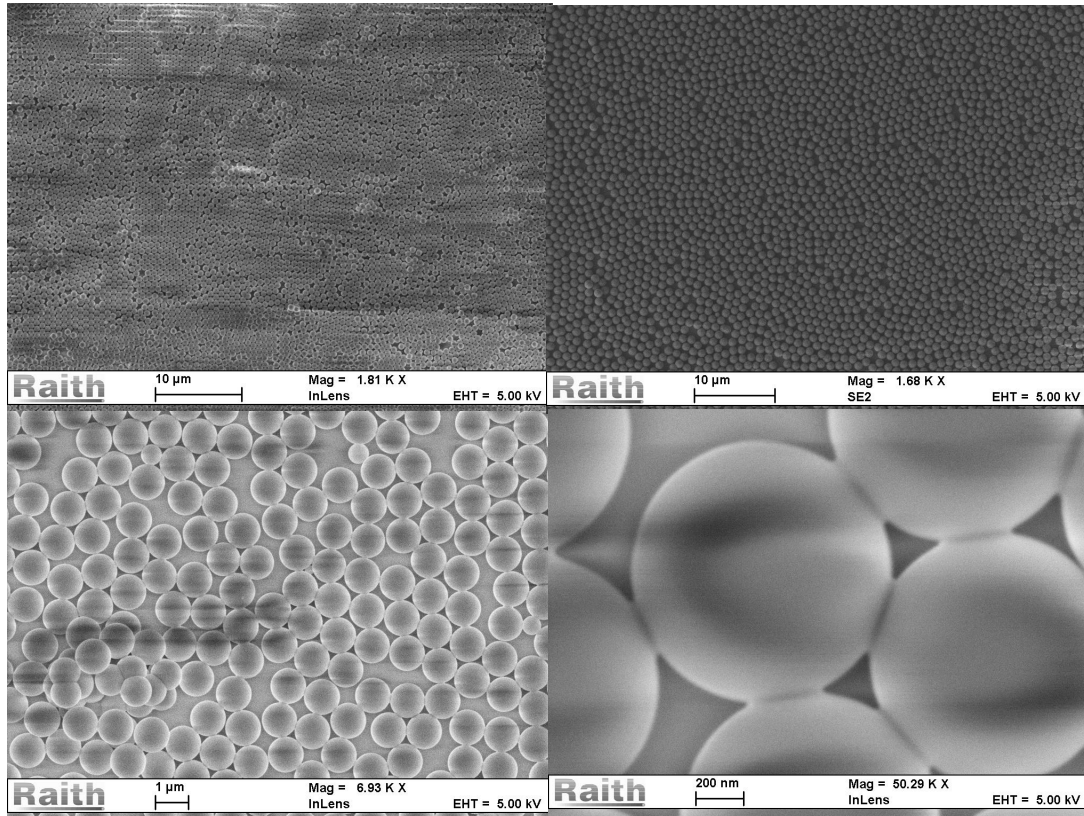


Figure 2-7: Imagerie par microscope électronique à balayage des opales monocouches de billes en SiO_2 de diamètre 740 nm et 1 μm . L'organisation présente des zones hexagonales monodomaines sur des distances inférieures à 20 μm . En zoomant, nous observons les types de défauts qui interdisent la bonne organisation du cristal. Ces défauts se présentent sous forme de billes jumelles, de lacunes et d'agrégats de billes.

Dans le cas d'une opale de 20 couches de billes de diamètres 276 nm (figure 2-8), on observe une mauvaise organisation des dernières couches, qui se traduit par des trous (on arrive à voir sur certains endroits les couches en dessous) et des agrégats de billes sur certaines zones. Par ailleurs il est difficile d'observer une structuration hexagonale. On en conclut finalement que l'organisation en volume d'une opale faite par la technique Langmuir-Blodgett n'est pas suffisamment ordonnée. L'opale perd ses propriétés cristallographiques.

Pour les billes en polystyrène l'utilisation du microscope électronique à balayage est impossible. Le polystyrène est un matériau organique. La tension nécessaire pour provoquer

les interactions électrons-matière est supérieure au maximum que le matériau peut supporter avant la destruction des chaînes polymères.

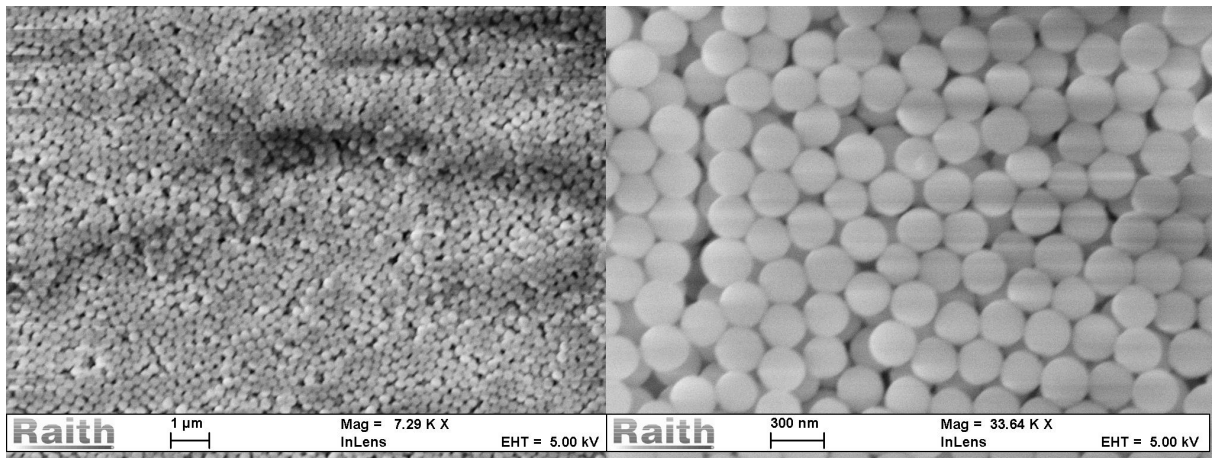


Figure 2-8: Imagerie par microscope électronique à balayage d'une opale de 20 couches de billes en SiO_2 de diamètre 250 nm. On observe des lacunes et des agrégats de billes. La dernière couche ne présente pas d'organisation hexagonale.

2.2 Diffraction sur des opales

Dans cette partie nous étudions la diffraction sur des opales monocouches, fabriquées par la méthode Langmuir-Blodgett, en silice et en polystyrène. Ces études nous permettront de comprendre la structure hexagonale des opales et l'effet de l'orientation de la structure cristallographique. Les angles de diffraction donnent une mesure directe du diamètre des billes de l'opale et de la dispersion de ces diamètres.

2.2.1 Réseau de Bravais et réseau réciproque

Un cristal est un réseau de Bravais, c'est-à-dire un réseau de nœuds obtenus par translation suivant des vecteurs de base à partir d'un nœud principal (figure 2-9). Un nœud peut être une particule élémentaire (atomes ou molécules) ou un ensemble de particules élémentaires. Au final, tout point du réseau peut être localisé par son vecteur position :

$$\vec{R} = \sum_{i=1}^N n_i \vec{a}_i \quad \text{où } N \text{ est la dimension du cristal (exemple : pour un cristal 3D } N=3), \vec{a}_1, \dots, \vec{a}_N$$

sont les vecteurs unitaires du réseau et $n_1 \dots n_N \in \mathbf{Z}$ [ASH].

Pour déterminer la condition de diffraction nous avons besoin de connaître le réseau réciproque. Le réseau réciproque est l'ensemble des vecteurs \vec{G} tels que $e^{i\vec{G}\cdot\vec{R}} = 1$, qui se développe en $\vec{G} = h\vec{b}_1 + k\vec{b}_2 + l\vec{b}_3$, avec \vec{b}_1 , \vec{b}_2 et \vec{b}_3 , les vecteurs unitaires du réseau réciproque et $h, k, l \in \mathbf{Z}$:

$$\vec{b}_1 = 2\pi \frac{\vec{a}_2 \wedge \vec{a}_3}{V} \quad (2.1)$$

$$\vec{b}_2 = 2\pi \frac{\vec{a}_3 \wedge \vec{a}_1}{V} \quad (2.2)$$

$$\vec{b}_3 = 2\pi \frac{\vec{a}_1 \wedge \vec{a}_2}{V} \quad (2.3)$$

où $V = \vec{a}_1 \cdot (\vec{a}_2 \wedge \vec{a}_3) = \vec{a}_2 \cdot (\vec{a}_3 \wedge \vec{a}_1) = \vec{a}_3 \cdot (\vec{a}_1 \wedge \vec{a}_2)$ est le volume d'une maille.

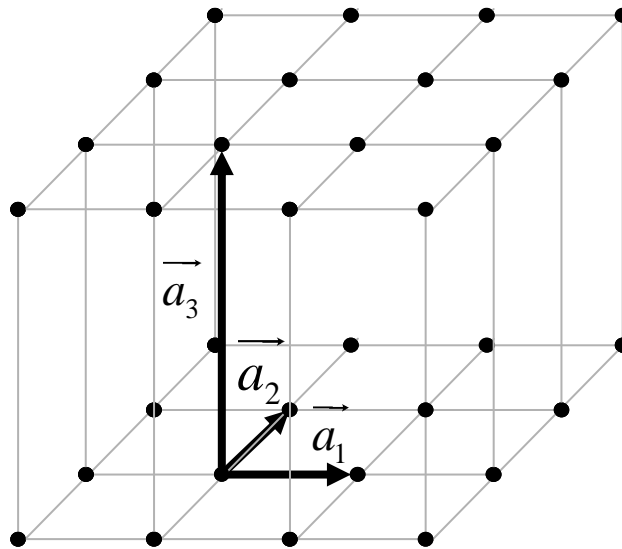


Figure 2-9: Réseau de Bravais 3D. \vec{a}_1 , \vec{a}_2 et \vec{a}_3 sont les trois vecteurs élémentaires du réseau. Chaque point représente un nœud élémentaire.

La condition de diffraction de von Laue d'une onde plane est :

$$\vec{k}' - \vec{k} = \vec{G} \quad (2.4)$$

avec \vec{k} et \vec{k}' respectivement les vecteurs d'onde des ondes planes avant et après diffraction [ASH].

2.2.2 Diffraction sur une opale en incidence normale

Une opale monocouche correspond à un réseau de Bravais 2D. Les nœuds de ce réseau sont les centres des billes. Le vecteur position s'écrit alors $\vec{R} = n_1 \vec{a}_1 + n_2 \vec{a}_2$, où \vec{a}_1 et \vec{a}_2 sont les 2 vecteurs de base. La structure périodique étant hexagonale, l'angle entre les vecteurs de base est 60° (Figure2-10).

Par projection sur les axes de l'opale \vec{x} et \vec{y} (représentés sur la figure 2-6), et en appelant D le diamètre d'une bille, on obtient :

$$\vec{a}_1 = D\vec{x} \quad (2.5)$$

$$\vec{a}_2 = \frac{1}{2} D\vec{x} + \frac{\sqrt{3}}{2} D\vec{y} \quad (2.6)$$

Des équations (2.5) et (2.6), on peut déduire l'expression des vecteurs de base du réseau réciproque :

$$\vec{b}_1 = \frac{4\pi}{D\sqrt{3}} \left(\frac{\sqrt{3}}{2} \vec{x} - \frac{1}{2} \vec{y} \right) \quad (2.7)$$

$$\vec{b}_2 = \frac{4\pi}{D\sqrt{3}} \vec{y} \quad (2.8)$$

Dans notre cas (2D) la condition de diffraction de von Laue (2.4) devient $\vec{k}'_{(xy)} - \vec{k}_{(xy)} = \vec{G}$ avec $\vec{k}_{(xy)}$ et $\vec{k}'_{(xy)}$ respectivement les projections des vecteurs d'onde incident et diffracté dans le plan (xy) de l'opale. En appliquant cette condition de diffraction pour une incidence normale, nous déduisons l'angle de diffraction θ en fonction de la longueur d'onde λ et le diamètre des billes D :

$$\sin \theta = \frac{2\lambda}{D\sqrt{3}} \sqrt{h^2 + k^2 - hk} \quad (2.9)$$

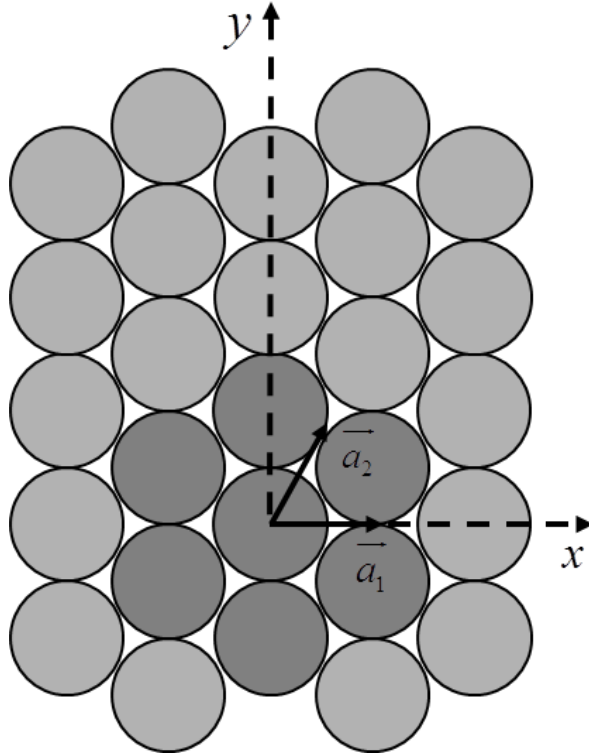


Figure 2-10: Réseau de Bravais 2D d'une opale. \vec{a}_1 et \vec{a}_2 sont les deux vecteurs unitaires du réseau

Nous obtenons une relation liant le diamètre des billes à l'angle de diffraction, dont nous nous servirons par la suite pour déterminer le diamètre des billes de nos opales.

Le champ réfléchi par la première couche a un vecteur d'onde \vec{k}_R . En incidence normale $\vec{k}_R = -\vec{k}$. En répétant ces calculs avec \vec{k}_R au lieu de \vec{k} , on obtient le même résultat pour l'angle de diffraction. On en déduit qu'en incidence normale, on observe la même figure de diffraction en transmission et en réflexion. Ceci nous permettra de caractériser des opales multicouches, en observant l'image de diffraction par réflexion de la première couche.

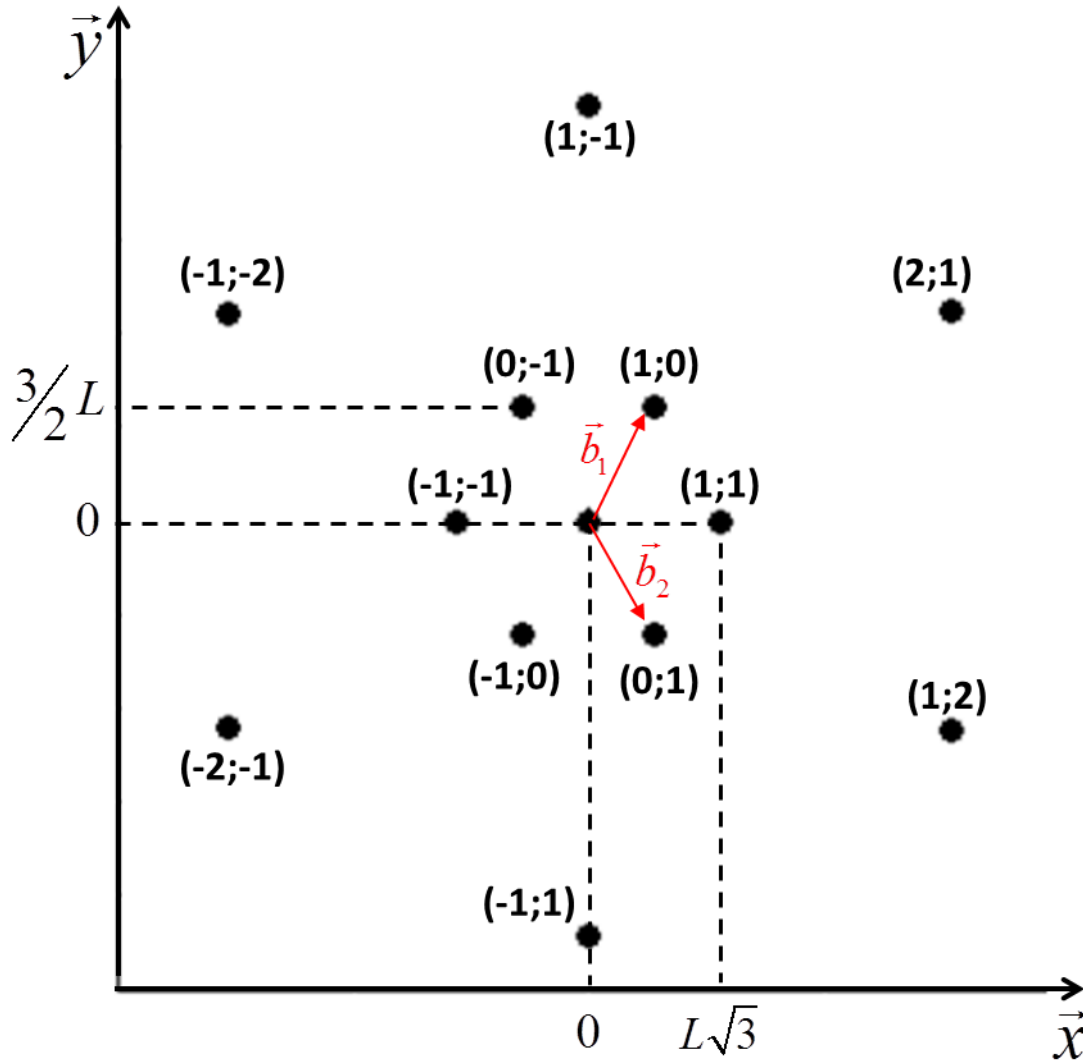


Figure 2-11 : Image de diffraction, en incidence normale, sur une opale monocouche de billes de diamètre 1030 nm, avec une longueur d'onde $\lambda = 455nm$. La distance entre l'écran et l'opale est L . Les spots sont identifiés par le couple $(h ;k)$. L'angle de diffraction du premier ordre est 30° , et celui du deuxième ordre est 52° . \vec{b}_1 et \vec{b}_2 sont les axes élémentaires du réseau réciproque.

L'image de diffraction est la projection du réseau réciproque sur le plan de l'écran où elle est observée. D'après l'expression (2.9), selon les valeurs de h et k on obtient diverses valeurs de l'angle de diffraction θ . Alors pour chaque angle θ plusieurs spots apparaissent. Chaque spot a des coordonnées bien définies en h et k qu'on note par un couple $(h;k)$.

Dans le cas d'une opale (réseau hexagonal), l'image observée a une symétrie hexagonale où les sommets sont les spots diffractés. Au centre de l'image on observe le spot

du faisceau transmis ($h=0$; $k=0$) (figure 2-11). Pour une orientation spatiale donnée du cristal nous obtenons une orientation de la figure de diffraction tournée de 30° par rapport à cette dernière. Dans l'expression (2.9) six couples $(h;k)$ donnent $\sqrt{h^2 + k^2 - hk} = 1$, ce qui définit le premier hexagone observé. Notons qu'une valeur de $\sqrt{h^2 + k^2 - hk}$ ne correspond pas toujours à six combinaisons, par exemple pour $\sqrt{h^2 + k^2 - hk} = \sqrt{7}$, 12 couples $(h;k)$ sont possibles.

2.2.3 Expérience

a) Montage expérimental

L'expression (2.9) nous permet de constater que l'angle de diffraction est inversement proportionnel à la longueur d'onde. Pour une meilleure visibilité de l'image de diffraction des opales de diamètre environ $1 \mu\text{m}$, nous utilisons en premier temps un laser bleu de longueur d'onde 455 nm .

L'opale est montée sur une monture permettant d'effectuer des rotations, autour de l'axe horizontal passant par son centre, dans le but de contrôler l'orientation du réseau. Cette monture permet aussi de contrôler l'angle d'incidence.

Pour obtenir des mesures fiables et correctes il faut que le plan de l'écran, sur lequel les mesures sont prélevées, soit perpendiculaire au faisceau incident. A toute autre position l'image est déformée. Pour effectuer ces réglages, un miroir fin est collé sur l'écran, ainsi le faisceau transmis (centre de l'hexagone) à travers l'opale sera réfléchi par ce miroir sous incidence normale. Connaissant la distance entre l'opale et l'écran, et en mesurant la distance entre le centre et un sommet de l'hexagone, par des relations trigonométriques nous déterminons l'angle de diffraction. Avec la relation (2.9) nous déterminons le diamètre des billes.

Les opales monocouches dont nous disposons, présentent plusieurs domaines, ainsi plusieurs figures de diffraction peuvent se superposer. Nous effectuons ces expériences sur des opales monocouches en polystyrène et d'autres en silice.

b) Opale en polystyrène

Comme nous l'avons observé grâce au microscope confocal (Figure 2-6), les opales monocouches en polystyrène présentent une bonne organisation hexagonale sur des longues distances (quelque dizaines de micromètres). Cette bonne organisation nous permet d'observer des figures de diffraction hexagonales.

En focalisant le faisceau incident sur quelques dizaines de billes, nous observons une diffraction suivant une seule orientation spatiale du réseau. A partir du premier hexagone de la figure de diffraction et la distance entre l'opale et le plan de l'image on déduit l'angle θ de diffraction. Dans notre cas nous mesurons $\theta = 30,7^\circ \pm 0,1^\circ$. Sachant que $\lambda = 455nm$, à l'aide de l'expression (2.9) on déduit finalement le diamètre des billes qui est 1030 nm, pour des billes dites de diamètre 1 μm .

c) Opale en silice

Dans cette partie nous réaliserons les expériences sur des opales monocouches de billes de silice. Le diamètre des billes est environ 1 μm . Sur les images réalisées par le microscope électronique à balayage (Figure 2-6), nous observons une mauvaise organisation de ces billes (plusieurs domaines). Cette mauvaise organisation ne nous permet pas d'observer une figure de diffraction hexagonale, mais la superposition de plusieurs hexagones. L'image de diffraction est donc un anneau.

Pour mesurer la taille des billes nous mesurerons les angles des cercles internes et externes de cet anneau, et nous déduisons la valeur moyenne de l'angle, qui nous indique le diamètre des billes en utilisant la relation (2.9). La largeur de cet anneau indique la dispersion sur le diamètre des billes. Nous mesurons finalement, un diamètre de billes 1030 nm $\pm 6\%$, pour des billes dites de diamètre 1 μm .

2.2.4 Effet de l'angle d'incidence sur l'image de diffraction

Dans cette partie nous supposons que le champ incident a un angle Ω avec la normale à la surface de l'opale. La projection du vecteur d'onde dans le plan de l'opale s'écrit donc $\vec{k}_{(xy)} = \vec{k} \cdot \sin \Omega$. Ainsi nous écrivons finalement le vecteur d'onde, de l'onde plane incidente dans le plan de l'opale (plan xy) $\vec{k}_{(xy)}$:

$$\vec{k}_{(xy)} = \begin{bmatrix} \frac{2\pi}{\lambda} \sin \Omega \\ 0 \end{bmatrix} \quad (2.10)$$

Le vecteur du réseau réciproque est $\vec{G} = h\vec{b}_1 + k\vec{b}_2$. Les vecteurs unitaires \vec{b}_1 et \vec{b}_2 sont déjà donnés dans les expressions (2.7) et (2.8). En appliquant la condition de diffraction (2.4) nous déduisons le vecteur d'onde de l'onde diffracté:

$$\vec{k}'_{(xy)} = \begin{bmatrix} \frac{\pi\sqrt{3}}{D} h + \frac{2\pi}{\lambda} \sin \Omega \\ \frac{\pi}{D} (2k - h) + \frac{2\pi}{\lambda} \sin \Omega \end{bmatrix} \quad (2.11)$$

La norme du vecteur d'onde de l'onde diffracté est $|\vec{k}'_{(xy)}| = \frac{2\pi}{\lambda} \sin \theta$, avec θ l'angle de diffraction que nous cherchons à calculer. Nous en déduisons finalement l'expression:

$$\sin \theta = \sqrt{\left(\frac{2\lambda}{D\sqrt{3}}\right)^2 (h^2 + k^2 - hk) + \sin^2 \Omega + \frac{2\lambda}{D} h \sin \Omega} \quad (2.12)$$

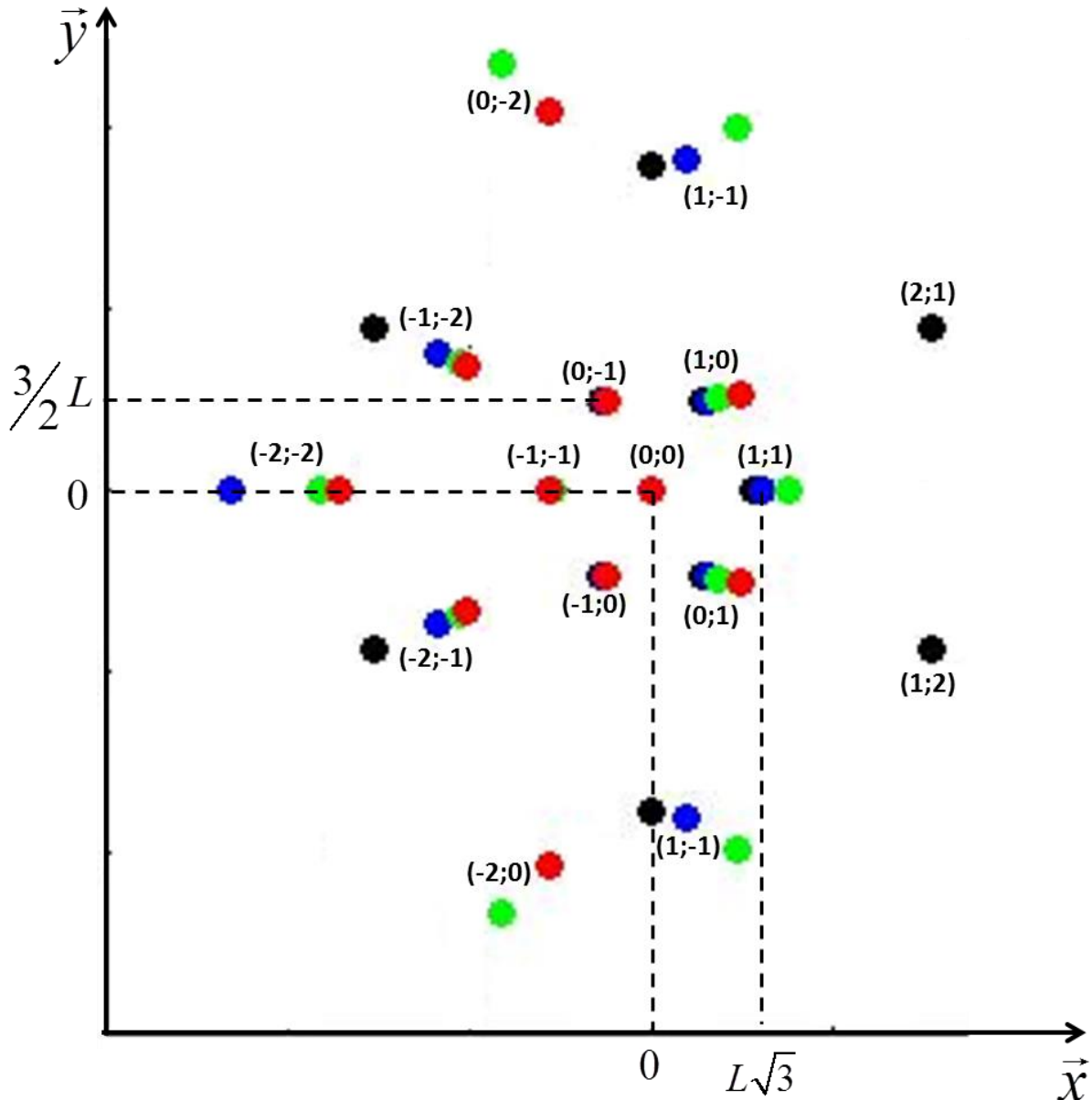


Figure 2-12 : Image de diffraction sur une opale monocouche de billes de diamètre 1030 nm, avec une longueur d'onde $\lambda = 455nm$. En noir $\Omega = 0^\circ$, en bleu $\Omega = 10^\circ$, en vert $\Omega = 20^\circ$, et en rouge $\Omega = 30^\circ$. Les spots sont identifiés par le couple $(h ; k)$. Les axes élémentaires du réseau réciproque sont les mêmes que la figure 2-11.

Pour une incidence oblique, la figure de diffraction n'est plus hexagonale et perd sa symétrie. Nous observons en fonction de l'angle des figures plus complexes où des ordres de diffraction supérieurs commencent à apparaître. Malgré ces complications nous avons la possibilité d'identifier les différents spots et de connaître le couple $(h;k)$ correspondant à chacun grâce à l'expression (2.12)

2.2.5 Influence de la polarisation du champ en incidence normale sur l'efficacité de la diffraction

L'efficacité de la diffraction est liée à la qualité de l'opale. Un calcul théorique par éléments finis effectué par I. Zabkov, dont nous résumons le principe par la suite (paragraphe 2.3.4), permet d'avoir des valeurs quantitatives du champ électrique dans tout l'espace. Ainsi, il est possible d'extraire la valeur du champ électrique dans les directions de diffraction, et d'en déduire l'efficacité de la diffraction dans une direction donnée. En comparant les mesures expérimentales aux valeurs théoriques, nous pouvons en déduire l'homogénéité des domaines de l'opale. Le calcul actuel par éléments finis n'a jusqu'ici pas été finalisé pour déterminer l'efficacité de la diffraction. Il est actuellement limité à l'efficacité de la réflexion et de la transmission.

Nous devons tout d'abord explorer l'efficacité de la diffraction en fonction de la polarisation du champ incident en incidence normale. Les rendements des sommets de chaque axe principal de l'image de la diffraction sont égaux, par symétrie par rapport au centre de l'hexagone. Si la polarisation est rectiligne et parallèle à un des axes principaux, les intensités des sommets de cet axe admettent un extremum (maximum M , minimum m). Dans cette configuration, les rendements des quatre autres sommets sont égaux par symétrie. En tournant la polarisation de 60° , on obtient la même distribution mais pour un autre axe, donc pour d'autres sommets (figure 2-13). Expérimentalement pour des billes d'environ $1\mu\text{m}$, et pour $\lambda = 455\text{nm}$ et $\lambda = 594\text{nm}$ l'extremum pour une telle configuration est un maximum.

Alors le rendement η d'un spot de diffraction dépend de la polarisation du champ électrique incident. Pour déterminer la loi de cette dépendance on considère un champ électrique en incidence normale par rapport à l'opale. On considère deux axes principaux pour la polarisation, dont un est parallèle à un des axes principaux de la figure de diffraction. Le deuxième axe principal de la polarisation est perpendiculaire au premier. On écrit la norme du champ électrique diffracté :

$$\left|E^d\right|^2 = \left|E_{//}^d + E_{\perp}^d\right|^2 = E_{//}^{d2} + E_{\perp}^{d2} + 2E_{//}^d \cdot E_{\perp}^d \quad (2.13)$$

Où E_{\perp}^d et E_{\parallel}^d sont les projections du champ électrique sur les axes principaux de polarisations dans la direction de diffraction.

Les axes principaux de diffractions restent orthogonaux, même si les directions de diffraction sont différentes de la direction incidente. Les chemins des champs électriques dans les billes dépendent de leur polarisation. Cette différence de chemin dans le cristal nous fait penser aux effets de biréfringence dans les cristaux, ce qui transforme la polarisation rectiligne du faisceau incident en une polarisation elliptique à la sortie du cristal. Or dans notre cas les dimensions sont assez faibles pour négliger ces effets, et on considère que la polarisation du faisceau diffracté a les mêmes composantes sur les axes principaux de diffraction, que les composantes du champ incident sur les axes principaux de la polarisation incidente. De ces hypothèses on déduit que E_{\parallel}^d et E_{\perp}^d sont orthogonaux, et le produit scalaire $2E_{\parallel}^d \cdot E_{\perp}^d$ dans l'expression (2.13) est nul.

On écrit les composantes du champ électrique diffracté sur les deux axes principaux de la polarisation :

$$E_{\parallel}^d = \sqrt{M} \cos(\alpha) \quad (2.14)$$

$$E_{\perp}^d = \sqrt{m} \sin(\alpha) \quad (2.15)$$

où α est l'angle de polarisation par rapport à l'axe parallèle à un axe principal de la figure de diffraction.

A partir des équations (2.13), (2.14) et (2.15) on écrit le rendement de polarisation :

$$\eta = M \cos^2 \alpha + m \sin^2 \alpha \quad (2.16)$$

En développant l'expression (2.16) on déduit le rendement des spots de l'un des axes de diffraction:

$$\eta = \frac{M - m}{2} \cos(2\alpha) + \frac{M + m}{2} \quad (2.17)$$

On peut déduire le rendement des deux autres axes tournés de 60° et 120° , en décalant la fonction décrivant le premier axe, respectivement par 60° et 120° .

La puissance du faisceau transmis par l'opale, au centre de l'hexagone ($h=0 ; k=0$), est sensiblement indépendante de la polarisation. Ces expériences ont été effectuées aussi avec un laser vert ($\lambda = 543nm$). Le même effet de l'angle de polarisation est observé sur l'efficacité de la diffraction, mais le contraste entre les extremums est plus faible en vert qu'en bleu (\square 30% à 455 nm et \square 10% à 543 nm). L'effet de la polarisation sur l'efficacité de la diffraction paraît donc diminuer en augmentant la longueur d'onde. Une étude plus systématique serait évidemment intéressante, compte tenu des comportements variant rapidement avec la longueur d'onde que nous observons ci-dessous.

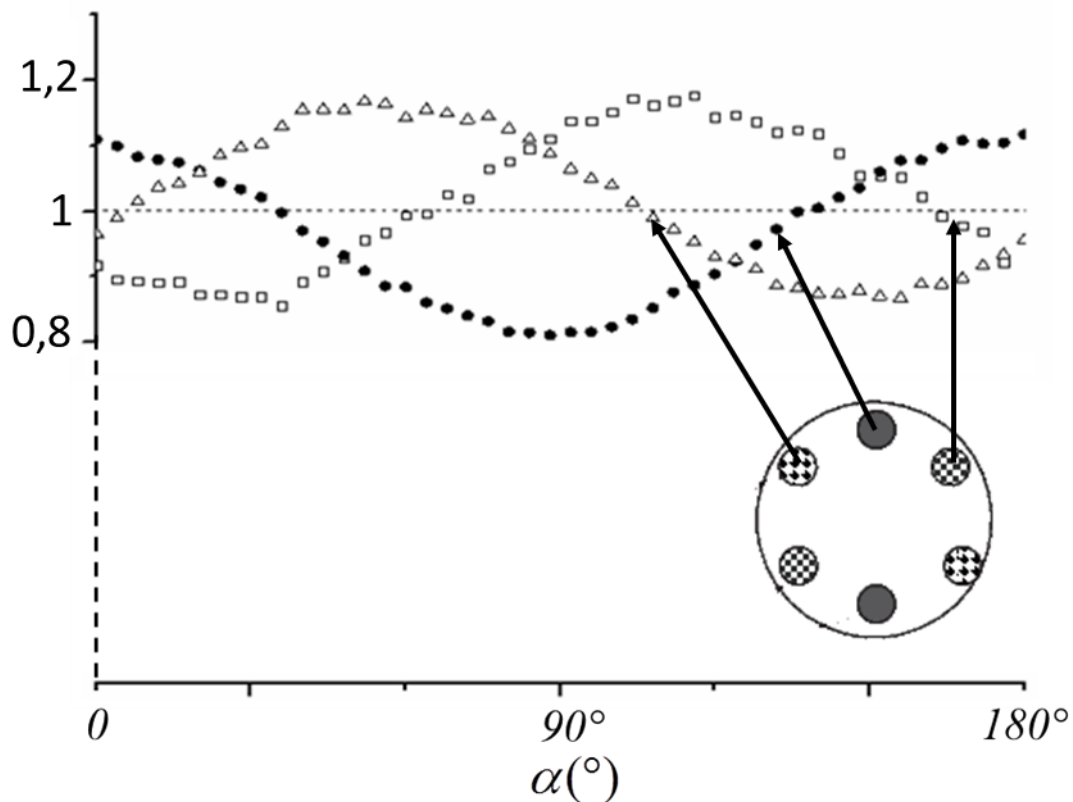


Figure 2-13: Rendement de la diffraction, des paires de spots (égaux par symétrie) de chaque axe principal, en incidence normale sur une opale monocouche (monodomaine) en fonction de l'angle α entre l'axe de la polarisation, et un axe principale de la figure de diffraction.

2.3 Reflexion et transmission sur des opales

Nous utiliserons par la suite les opales comme un système de confinement à trois dimensions pour les atomes de césium. Les réponses des atomes confinés dans ces structures seront extraites par le champ réfléchi. Comme nous l'avons signalé (chapitre 1), et nous le développons par la suite (chapitre 5 section 5-2), la réponse des atomes pour une longueur d'onde 894 nm (raie D1 du césium) est différente de celle d'une longueur d'onde 852 nm (raie D2 du césium). Cette variation pour des longueurs d'onde assez voisines (5% de différence), exige une étude et une bonne compréhension de la propagation du champ électromagnétique dans ces milieux.

La réponse d'un système optique à un champ électrique incident se présente sous trois formes principales, réflexion spéculaire, transmission et diffusion. La diffusion peut être non cohérente, comme les diffusions de Rayleigh, ou conserver sa cohérence [ROT]. Dans le cas des diffusions cohérentes les ondes interfèrent, ce qui donne des images de diffraction que nous avons discutées dans le paragraphe précédent. Dans cette partie nous étudions la réflexion et la transmission des opales. Ces quantités dépendent principalement du rapport entre la longueur d'onde et le diamètre des billes (λ/D). Pour explorer ce rapport nous effectuons des mesures et des calculs sur des opales de différents diamètres de billes. Nous explorons aussi l'effet du nombre de couches, en effectuant des études sur des opales ayant le même diamètre des billes mais un nombre de couches différent.

2.3.1 Montage expérimental

L'échantillon est monté sur un support gradué permettant d'effectuer des rotations, afin de varier et de contrôler l'angle d'incidence. Nous mesurons la réflexion et la transmission d'un faisceau traversant le substrat en verre puis l'opale (air-verre-opale-air), et aussi le sens opposé (air-opale-verre-air). Pour changer le sens nous tournons simplement l'échantillon. Cette variation de sens peut avoir un effet sur la réflexion, mais d'après nos mesures, elle n'a aucun effet sur la transmission

Ces études sont effectuées en fonction de la longueur d'onde avec une source lumineuse qui est un laser blanc (super continuum), pour obtenir un spectre qui couvre toutes les longueurs d'onde du visible. La lumière est collectée avec une fibre optique reliée à un spectromètre optique. Nous mesurons les spectres de réflexion et de transmission en fonction de l'angle d'incidence. Le montage est représenté sur la figure 2-14

Nous comparons finalement nos mesures à deux calculs que nous développerons par la suite.

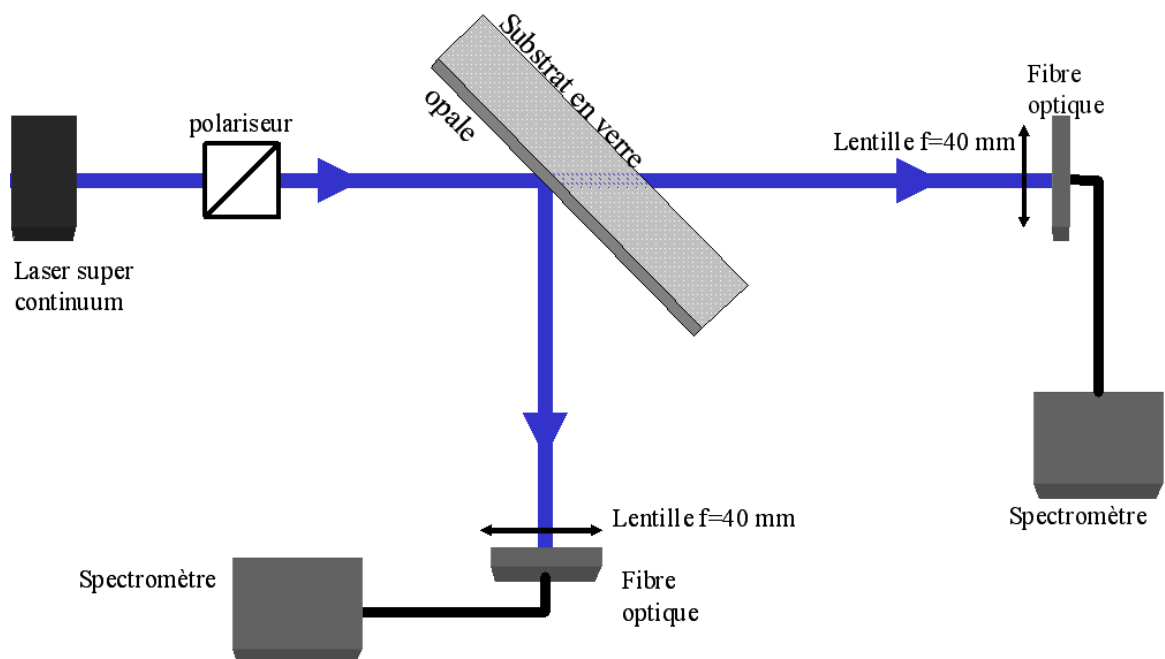


Figure 2-14 : Montage expérimental permettant de mesurer la transmission et la réflexion.

a) Laser super continuum

Nous disposons d'un laser impulsionnel super continuum « Leukos-SM-20-OEM ». Le spectre de ce laser va de 400 nm à 1750 nm. La lumière émise couvre le spectre visible et une partie du proche infrarouge, ce qui nous permet de voir une lumière blanche à sa sortie. La largeur d'une impulsion est inférieure à 1 ns. La fréquence des impulsions est supérieure à 20 kHz, donc la période d'émission des impulsions est inférieure à 50 μ s.

Comme nous l'avons montré précédemment (Figure 2-7), les opales monocouches en silice (sur lesquelles ces expériences sont réalisées), ne présentent pas des monodomains sur

des grandes distances ($<10 \mu\text{m}$). Pour éviter de mesurer sur un monodomaine, ou sur une zone de défauts, nous avons choisi de travailler avec un faisceau de diamètre entre 1mm et 2 mm ainsi nous moyennons sur quelques millions de billes.

b) Spectromètre et détection

Le faisceau réfléchi ou transmis, est envoyé au spectromètre par une fibre optique. Le diamètre de cette fibre est $400\mu\text{m}$. Il faut alors focaliser le faisceau à détecter à l'entrée de la fibre. La lumière à mesurer n'étant pas monochromatique, les faibles longueurs d'onde seront focalisées avec un « waist » plus faible que les grandes longueurs d'onde. Le faisceau focalisé est donc décomposé par aberration chromatique. Nous avons le risque de ne pas collecter toutes les couleurs de la même façon et de modifier le spectre mesuré, si on ne focalise pas correctement la lumière à l'entrée de la fibre. Nous utilisons une lentille de distance focale 40 mm.

La position de la fibre par rapport à la lentille et le faisceau incident doit être bien contrôlée. La fibre est montée sur un support permettant de faire des translations selon trois axes orthogonaux de l'espace, et elle est envoyée à un spectromètre « Ocean Optics USB2000+ ». Le spectre de détection de cette fibre va de 200 nm à 1100 nm. En combinant le spectre d'émission du laser avec celui de détection du spectromètre, on conclut que nous pouvons effectuer des mesures entre 400 nm et 1000 nm. Le spectre du faisceau incident n'étant pas homogène pour toutes les longueurs d'onde, un spectre de référence doit être mesuré avant chaque mesure de transmission ou réflexion. Les spectres de réflexion ou de transmission seront divisés par leurs spectres de référence.

Le spectromètre est relié à l'ordinateur par un câble USB, et piloté par un logiciel « Spectrasuite ». Le logiciel nous permet de contrôler la sensibilité de la détection, pour éviter de saturer les détecteurs.

2.3.2 Réflexion et transmission sur des opales épaisses (nombre de couches ≥ 3)

Les opales épaisses sont définies dans cette partie comme étant des opales ayant un nombre de couches supérieur à trois.

a) Modèle d'indice effectif constant

L'empilement compact d'une opale, faite par la technique Langmuir-Blodgett, est un mélange aléatoire de CFC et HC. Ainsi les plans (1,1,1) sont parallèles et la distance inter couches est identique. Ceci introduit des interférences entre le champ transmis ou réfléchi par ces plans. Notons que, pour des longueurs d'onde correspondant à des fractions de la différence de marche optique nous avons des interférences constructives, qui se traduisent par des pics de Bragg, un pic sur le spectre de la réflexion par rapport à la longueur d'onde, et un creux sur le spectre de transmission en fonction de la longueur d'onde. Ces interférences dépendent du rapport entre la longueur d'onde et la distance inter couches. Alors, à partir de la position de ces pics ou creux (respectivement en réflexion ou transmission) nous pouvons déduire le diamètre des billes.

Un calcul préliminaire peut nous donner une idée du diamètre des billes à utiliser pour observer les interférences dans le spectre visible. Ce calcul consiste à faire la correspondance entre les interférences sur les plans cristallographique des billes et la loi de Bragg. Cette loi décrit les interférences dans un cristal atomique. Il faut noter que dans le cas d'une opale les billes sont jointives, à la différence des noyaux atomiques dans une diffraction sur un réseau atomique. On associe un indice effectif n_{eff} à l'opale, c'est-à-dire que l'on considère l'opale comme une couche mince d'indice optique n_{eff} . On déduit, d'après la différence de marche optique dans le milieu, la loi suivante :

$$l\lambda = 2d\sqrt{n_{eff}^2 - \sin^2 \Omega} \quad (2.18)$$

où Ω est l'angle d'incidence par rapport à la normale à l'échantillon et l l'ordre de l'interférences.

L'indice effectif se calcule par le taux de remplissage d'une opale multicouche (paragraphe 2.1.2). On suppose que l'indice du verre est $n_{verre} = 1,45$, et on néglige les effets de dispersion (n_{verre} indépendant de λ). On peut déduire l'indice effectif :

$$n_{eff} = \sqrt{0,74n_{verre}^2 + 0,26n_{air}^2} \approx 1,35 \quad (2.19)$$

Pour observer un pic de Bragg du premier ordre ($k=1$), en incidence normale, centré autour de $\lambda = 700nm$ on a besoin de billes de diamètres environ 320 nm. Nous choisissons d'effectuer ces mesures sur une opale de 20 couches de billes de diamètre 276 nm.

b) Modèle d'indice effectif stratifié

La modélisation d'une opale par un indice de réfraction effectif constant en fonction de la profondeur n'est pas une modélisation correcte. Elle nous permet, comme nous l'avons indiqué, de déterminer une valeur approximative des longueurs d'onde des interférences entre les couches en les associant à des interférences de Bragg. On modélise l'indice de réfraction comme étant une variable en fonction de la profondeur dans le milieu que nous notons $n_{eff}(z)$ (Figure 2-15(a)), avec l'axe z perpendiculaire aux plans passant par les centres des billes de la même couche de l'opale. Donc dans l'expression (2.19), le taux de remplissage n'est plus une constante (0,74) mais une variable en fonction de la profondeur z qu'on note $f(z)$ (Figure 2-15(b)). On écrit donc l'expression de l'indice effectif :

$$n_{eff}(z) = \sqrt{f(z).n_{verre}^2 + (1-f(z)).n_{air}^2} \quad (2.20)$$

On considère dans un premier temps une opale monocouche. Le plan équatorial d'une couche d'opale est le plan passant par tous les centres des billes de cette couche. L'intersection du plan équatorial avec une bille est un cercle \mathfrak{S} ayant le même centre et diamètre qu'une bille. On utilise l'hexagone régulier \wp dans lequel le cercle \mathfrak{S} est inscrit, comme une maille élémentaire. Le taux de remplissage est finalement, pour chaque valeur de z , le rapport entre la surface du cercle d'intersection d'un plan parallèle au plan équatorial avec une bille, et la surface de la maille élémentaire.

La surface de l'hexagone régulier \wp est $S_{\wp} = \frac{\sqrt{3}}{2} D^2$

La surface du cercle d'intersection est $S_{int} = \pi z(D-z)$

On déduit finalement le taux de remplissage d'une couche d'opale :

$$f_1(z) = \frac{S_{\text{int}}}{S_{\phi}} = \frac{\pi z(D-z)}{\sqrt{3}D^2} \quad (2.21)$$

Cette expression est valable pour $0 \leq z \leq D$. Pour généraliser, on multiplie l'expression (2.21) par une fonction $H(z)$, tel que $H(z) = 1$ pour $0 \leq z \leq D$, et $H(z) = 0$ pour $z \in]D; +\infty[$:

$$f_1(z) = \frac{\pi z(D-z)}{\sqrt{3}D^2} H(z) \quad (2.22)$$

Pour une opale de N couches de billes, présentant un arrangement compact CFC ou HC, le taux de remplissage $f(z)$ est la somme des taux de remplissage calculés pour chaque couche $f_1(z)$ décalée de la distance inter couche. Nous avons déjà calculé la distance inter couches pour un arrangement compact $d = D\sqrt{\frac{2}{3}}$. On déduit finalement l'expression du taux de remplissage :

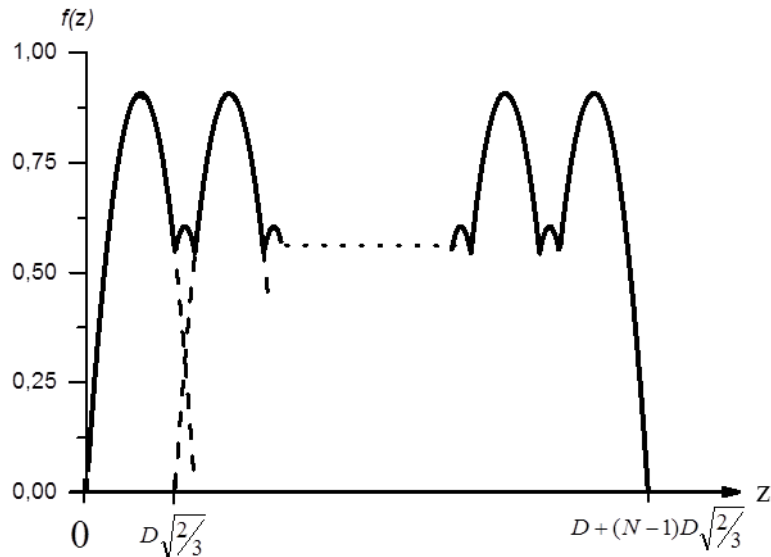
$$f(z) = \sum_{i=1}^N f_1 \left[z - (i-1)D\sqrt{\frac{2}{3}} \right] \quad (2.23)$$

Les allures des deux fonctions, taux de remplissage $f(z)$ et indice effectif $n_{\text{eff}}(z)$, se ressemblent. Entre le premier plan équatorial et le dernier $\left(\frac{D}{2} \leq z \leq \frac{D}{2} + (N-1)D\sqrt{\frac{2}{3}} \right)$, les fonctions sont périodiques, et la période est équivalente à la distance inter couches $d = D\sqrt{\frac{2}{3}}$. Pour $0 \leq z \leq \frac{D}{2}$ et $z \geq \frac{D}{2} + (N-1)D\sqrt{\frac{2}{3}}$ cette périodicité est rompue.

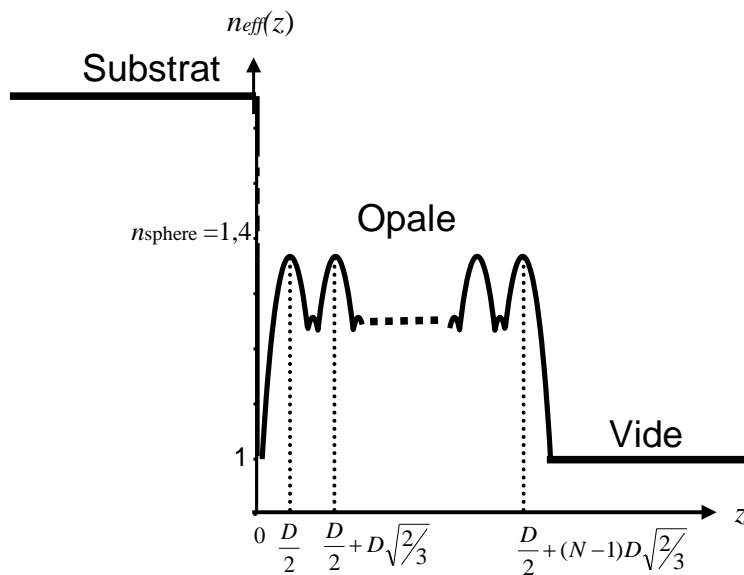
Finalement on définit trois régions principales. La première région est le substrat, pour $z \leq 0$ l'indice de cette zone est l'indice du verre qu'on note n_{sub} . La deuxième région, pour

$0 \leq z \leq D + (N-1)\sqrt{\frac{2}{3}}$, est le milieu stratifié dont nous avons développé l'indice. La dernière

région est le vide (ou l'air) pour $z \geq D + (N-1)\sqrt{\frac{2}{3}}$ où l'indice vaut 1.



(a)



(b)

Figure 2-15 : (a) Taux de remplissage de l'opale en volume. (b) Indice effectif en fonction de z . On suppose que l'indice d'une sphère de SiO_2 est 1.4

Le calcul considère une lumière incidente définie par son champ électrique, en incidence sur ce système avec un angle θ . On peut considérer la lumière incidente du côté substrat-opale-air, comme de l'autre côté air-opale-substrat. On définit de même la polarisation de cette onde, ce qui nous permet par la suite de comparer les résultats pour les deux polarisations principales (TE et TM). Par un calcul matriciel, on calcule les champs électriques réfléchis et transmis par ce système, pour en déduire finalement la réflectivité R et la transmission T de l'opale. Le calcul matriciel détaillé et numérique a été fait dans le groupe par Isabelle Maurin [MAU].

L'opale n'étant pas un milieu transparent, une partie non négligeable du champ incident est diffusée. Cette diffusion peut être cohérente et forme les figures de diffraction que nous avons traitées précédemment, ou même des figures plus complexes dans les cas des opales multicouches. Dans ce calcul nous cherchons à reproduire et comprendre l'allure des spectres R et T, mais aussi nous cherchons à obtenir des valeurs quantitatives de ces deux quantités. Ceci nous oblige à prendre en considération la lumière perdue par diffusion. En introduisant dans le système un facteur d'absorption équivalent pour chaque couche, sous une forme très simpliste par rapport aux diffusions complexes qu'on observe expérimentalement. L'optimisation de l'expression du facteur d'absorption se fait en comparant le spectre théorique de transmission à un spectre de transmission expérimentale effectué pour le même angle et la même polarisation. Ces paramètres optimisés sont indépendants de l'angle d'incidence et la polarisation, ce qui permet d'utiliser pour tous les spectres les mêmes facteurs de pertes.

c) Résultats expérimentaux et discussion

Les expériences et les calculs théoriques sont effectués en variant différents paramètres, notamment l'angle d'incidence θ (de 0° à 65°), la polarisation (TE et TM) et le côté de l'incidence (substrat-opale-air et air-substrat-opale).

Nous représentons tout d'abord le spectre théorique et expérimental en transmission à différents angles d'incidence. Nous remarquons que la transmission augmente avec la longueur d'onde. Sur les spectres de transmission (figure 2-16), nous remarquons un creux qui correspond aux interférences de Bragg entre les différentes couches de l'opale. La position du creux diminue en longueur d'onde en augmentant l'angle d'incidence car la différence de

marque augmente en augmentant l'angle d'incidence. Le facteur de pertes introduit dans le calcul, qui est une modélisation des diffusions de Rayleigh en λ^{-4} , est inférieur au taux de diffusion expérimental de l'opale pour des faibles longueurs d'ondes, et supérieur à celle-ci pour les grandes longueurs d'ondes. Ceci nous permet de conclure que l'origine de la diffusion de la lumière n'est pas la même selon les longueurs d'onde, et expérimentalement ces diffusions sont plus compliquées que cette simple modélisation. Nous remarquons aussi que pour les mêmes angle et polarisation les transmissions d'un faisceau incident du côté du substrat et du côté de l'opale sont les mêmes.

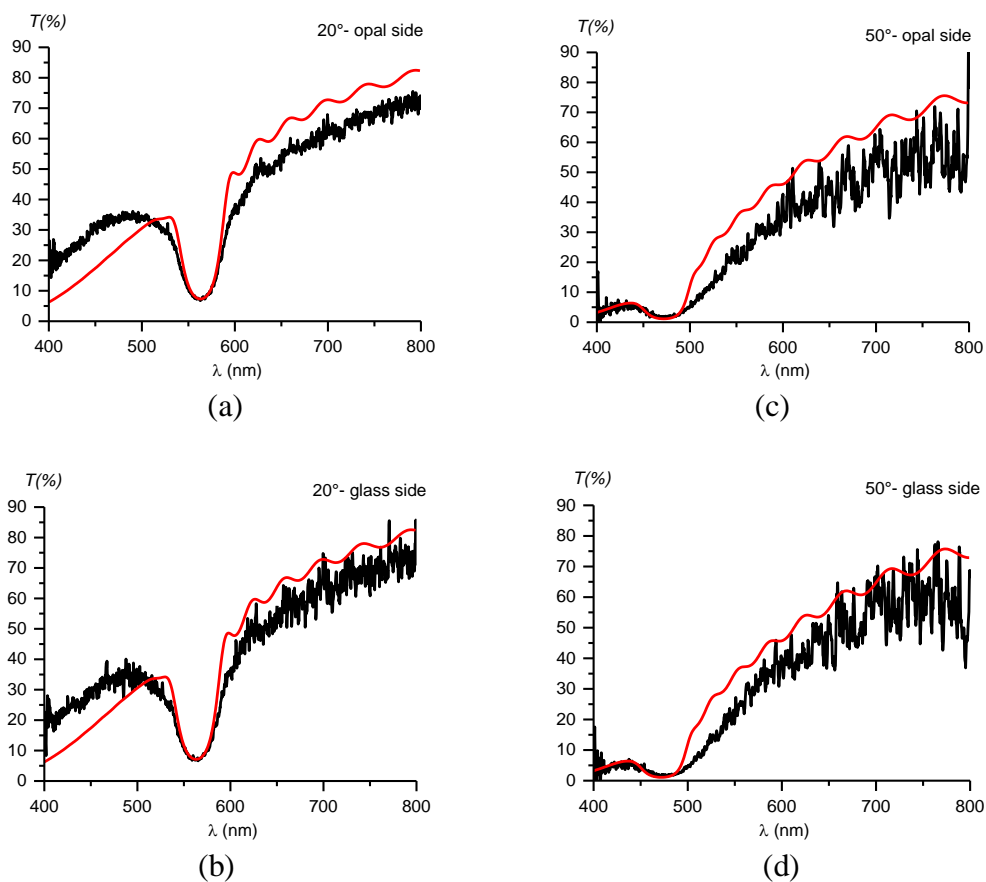


Figure 2-16: spectres de transmission sur une opale de 20 couches de billes de diamètres 276 nm. On montre en noir les spectres expérimentaux et en rouge les spectres théoriques. Pour (a) et (b) l'angle d'incidence est 20° polarisation TM, pour (c) et (d) l'angle d'incidence est 50° polarisation TM. (a) et (c) sont effectués du côté opale, (b) et (d) du côté verre. Tous les spectres théoriques sont effectués avec les mêmes paramètres modélisant les pertes par diffusion.

Les spectres de transmission expérimentaux nous serviront comme une calibration des paramètres du modèle pour modéliser les spectres de réflexion que nous présentons dans ce paragraphe. De même les spectres de réflexion de l'opale sont effectués pour différents angles d'incidence, pour des polarisations TM et TE (Figure 2-17). Deux types d'interférences sont à noter sur ces spectres. Les interférences entre toutes les couches se traduisent par un pic centré autour d'une longueur d'onde qui correspond à la différence de marche optique qui est proportionnelle à la distance inter couche donc au diamètre des billes, ce qui ressemble à des interférences de type Bragg. Les interférences entre le champ réfléchi par la première couche et celui réfléchi par la dernière, se traduisent par un fond de spectre oscillant. La période de ces oscillations augmente avec la longueur d'onde, ce qui ressemble à l'effet Fabry-Perrot sur une couche mince. En comparant, pour les mêmes angles, les spectres effectués en polarisation TM et ceux réalisés en polarisation TE, nous remarquons qu'en polarisation TM la réflexion diminue à partir d'un certain angle jusqu'à ce qu'elle atteigne un minimum, puis elle augmente, contrairement à la réflexion en TE qui augmente en fonction de l'angle. Cet effet ressemble à l'effet Brewster, qu'on peut calculer grâce aux équations de Fresnel pour un champ incident sur une surface plane. Notons aussi que la réflexion, pour un même angle et une même polarisation, est plus faible du côté opale que du côté verre. Cette différence peut s'expliquer par la différence de contraste entre les indices de réfraction entre les deux côtés.

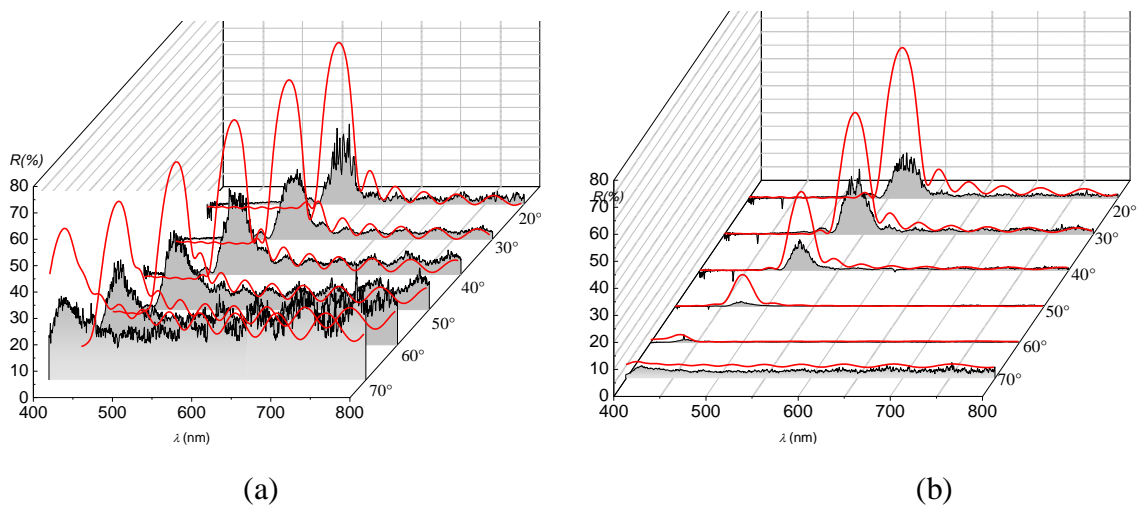


Figure 2-17: spectres de réflexion sur une opale de 20 couches de billes de diamètres 276 nm. On montre en noir les spectres expérimentaux et en rouge les spectres théoriques. En (a) les spectres sont réalisés en polarisation TE et en (b) en polarisation TM.

On remarque un bon accord entre les spectres théoriques et expérimentaux, pour la hauteur du fond oscillant et l'amplitude des oscillations, ainsi que pour la position des pics de Bragg. En revanche, les amplitudes des pics des Bragg théoriques sont supérieures à celles expérimentales. Cette différence peut être expliquée par l'imperfection de nos opales et le désordre des couches en volume. L'imperfection des opales introduit aussi de faibles différences de la taille globale de l'opale, ce qui ne nous permet pas de reproduire les oscillations Fabry-Perot avec la même phase.

2.3.3 Réflexion et transmission sur des opales d'une et deux couches de billes

Dans cette partie nous effectuons les mêmes expériences, sur des opales monocouches et de deux couches de billes. La physique sur des opales monocouches est différente de celles sur des couches épaisses. La singularité de la couche ne nous permet pas de parler d'interférences de type Bragg ou même de type Fabry-Perot que nous avons discutées dans le paragraphe d'avant. Pour comprendre l'effet des billes sur la propagation du champ un modèle théorique a été développé par Ilya Zabkov. Les résultats de nos expériences sont comparés aux résultats de ce modèle.

a) Modèle d'éléments finis

Ce calcul considère une structure hexagonale de billes orientées selon un angle φ , posée sur un substrat en verre (Figure 2-18). La hauteur du substrat est considérée comme grande par rapport à la taille des billes. On considère une onde plane ayant une polarisation rectiligne TE ou TM en incidence, avec un angle θ , sur ce système. La simulation consiste à calculer le champ électrique dans tout l'espace avec les équations de Maxwell. Un traitement informatique supplémentaire est nécessaire pour extraire les valeurs du champ électrique transmis, réfléchi et éventuellement diffracté.

Les résultats de la simulation dépendent de l'orientation de la structure hexagonale (angle φ). Comme nous l'avons montré, sur les images de microscope électronique à balayage, les surfaces de nos échantillons présentent plusieurs orientations hexagonales.

Ainsi, nous devons comparer chaque spectre expérimental à un spectre de simulation moyenné sur plusieurs angles φ . Ce moyennage augmente le temps et la complexité du calcul, ainsi ce calcul devient impossible pour plus de deux couches.

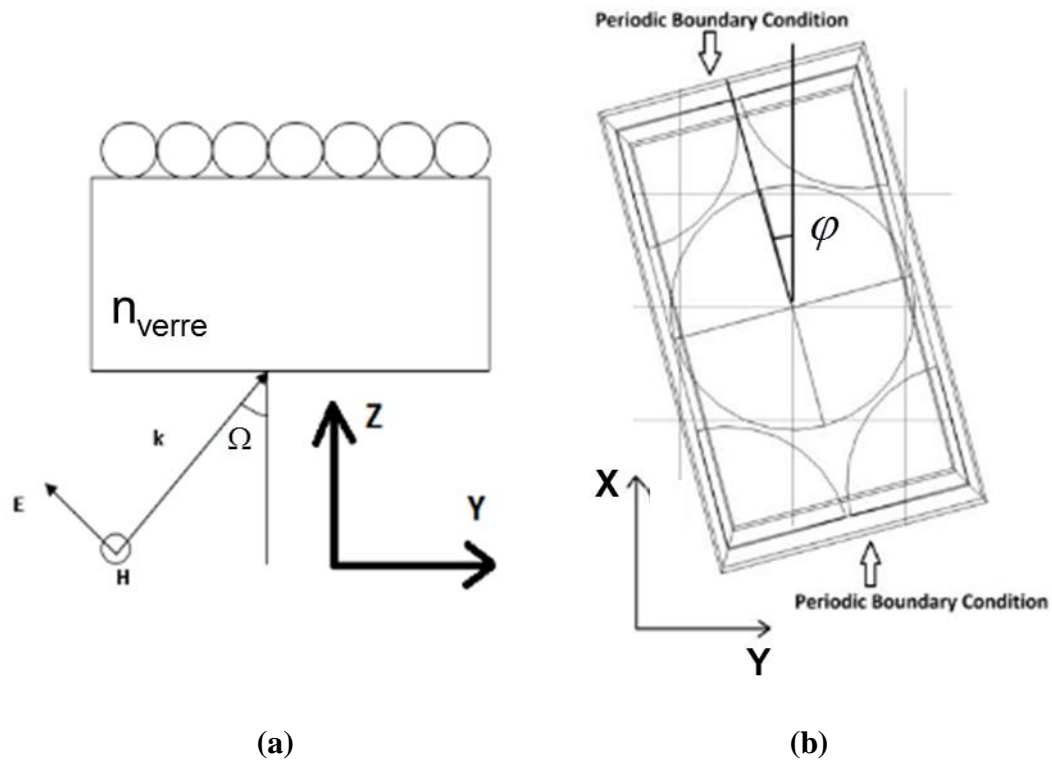


Figure 2-18 : Modélisation de l'échantillon pour le calcul du champ électrique par la théorie des éléments finis. Figure fournie par Ilya Zabkov. L'image (a) montre l'échantillon dans le plan (YZ) pour $\varphi = 0$. L'image (b) présente la maille élémentaire du calcul

Pour un indice de réfraction donné des billes, cette technique de simulation dépend uniquement du rapport entre la longueur d'onde et le diamètre des billes $\left(\frac{\lambda}{D}\right)$. Ainsi, à partir d'un spectre de réflexion ou transmission pour un diamètre de billes, on arrive à reproduire le spectre pour un autre diamètre de billes, pour les mêmes conditions (même polarisation du champ électrique et même angle d'incidence θ).

b) Résultats expérimentaux et comparaison avec le modèle d'éléments finis

Nous représentons tout d'abord les spectres expérimentaux de la réflexion sur une opale monocouche de billes de diamètre 725 nm pour les angles d'incidence dans l'air 0° , 15° et 25° (figure 2-19). Les positions en longueur d'onde sur les spectres des oscillations ne présentent pas de variations importantes en variant l'angle d'incidence. Ce fait ne peut pas être expliqué par un modèle qui considère un indice effectif continu ou stratifié, car dans le cas de ces modèles la variation de la différence de marche, en fonction de l'angle d'incidence, est plus forte. Ainsi la variation de la position des oscillations sur le spectre est plus forte (figure 2-20).

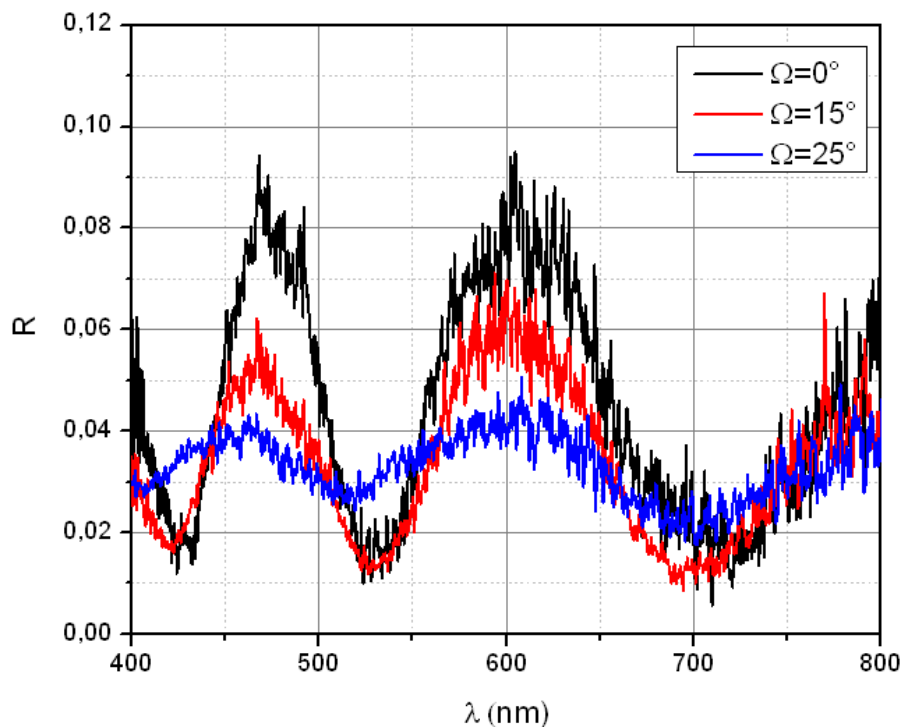


Figure 2-19 : Spectres représentant la réflexion sur une opale monocouche $D = 725$ nm, en fonction de l'angle d'incidence. On remarque que les positions des oscillations ne varient pas en fonction de l'angle d'incidence

Avec le calcul réalisé avec la théorie des éléments finis nous arrivons à reproduire les spectres expérimentaux du taux de réflexion (figure 2-21) et de transmission (figure 2-22). Nous présentons les résultats de cette comparaison pour une opale monocouche de billes de diamètre 725 nm.

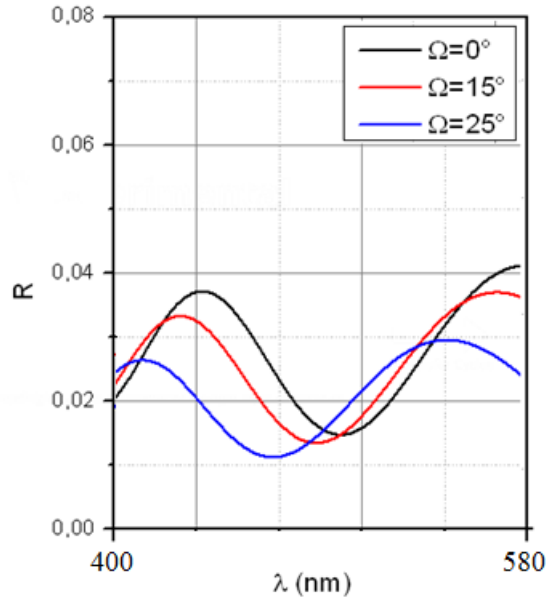


Figure 2-20 : Spectres représentant le taux de réflexion, par le modèle théorique de l'indice effectif stratifié, sur une opale monocouche $D = 725$ nm, en fonction de l'angle d'incidence.

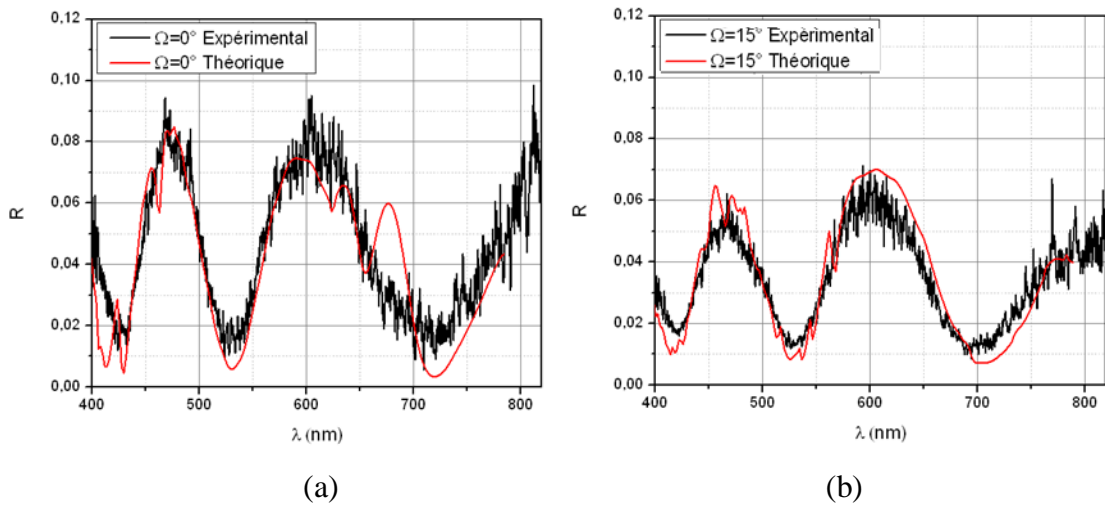


Figure 2-21 : Comparaison des spectres de réflexion expérimentaux avec les spectres de la théorie des éléments finis, sur une opale monocouche $D= 725$ nm. (a) L'angle d'incidence est 0° . (b) L'angle d'incidence est 15° .

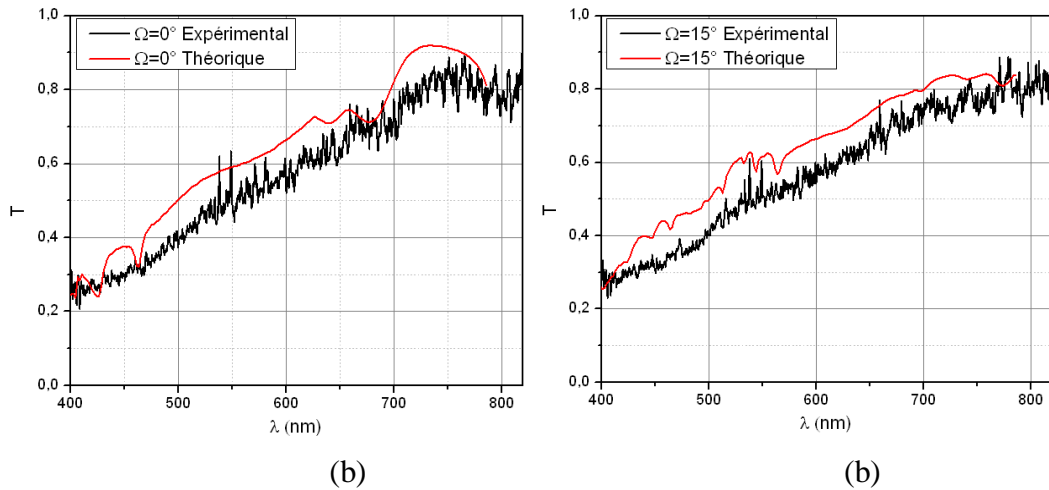


Figure 2-22 : Comparaison des spectres de transmission expérimentaux aux spectres de la théorie des éléments finis, sur une opale monocouche $D=725$ nm. (a) L'angle d'incidence est 0° . (b) L'angle d'incidence est 15° .

2.4 Conclusion et perspectives

Les expériences de spectroscopie d'atomes confinés dans une opale, qui sont les expériences principales de ce projet, nécessitent une compréhension de la structure de ces matériaux nano structurés, et une exploration de la propagation du champ électromagnétique.

Dans ce chapitre nous avons présenté la structure des opales, qui sont un assemblage compact de nano-billes auto-organisé. Chaque couche de billes présente une structure hexagonale. Selon la superposition des couches de billes la structure d'une opale multicouche peut être cubique face centrée ou hexagonal compact. Pour ces deux structures cristallines la distance inter couches et la compacité, sont les mêmes.

Plusieurs techniques d'élaboration de ces matériaux sont développées, dont la technique de fabrication Langmuir-Blodgett. L'avantage de cette technique est qu'on peut maîtriser le nombre de couches de billes déposés. En revanche la structure des opales fabriquées par cette technique est un mélange de cubique face centrée et hexagonal compact. De même ces opales présentent, aussi, des défauts d'organisation au niveau de chaque couche et en volume. Nous observons ces défauts par microscopie optique et par microscopie électronique à balayage.

Une partie du champ incident à l'interface d'une couche d'opale est diffusée. Sachant qu'une couche d'opale a une organisation en réseau hexagonal, une partie de la diffusion peut être cohérente et former des figures de diffraction. Nous avons étudié le réseau cristallin hexagonal d'une monocouche d'opale et nous avons déduit les figures de diffraction que nous obtenons. Si la monocouche d'opale présente une structuration monodomaine, c'est-à-dire une seule orientation du réseau hexagonal, la figure de diffraction, pour une incidence normale, présente une symétrie hexagonale. La mesure de l'angle de diffraction, par rapport à l'axe z perpendiculaire à l'opale, nous permet de déduire le diamètre des billes. Nous observons ces effets expérimentalement uniquement pour des opales en polystyrène. La fabrication des billes en polystyrène permet d'avoir une faible dispersion du diamètre des billes, ainsi elle permet une bonne organisation des billes dans l'opale. Dans le cas des opales en silice, la fabrication des billes permet d'obtenir une dispersion du diamètre des billes rarement meilleure que 5%. L'organisation de la monocouche d'opale présente alors une organisation multidomaine. Dans ces conditions la figure de diffraction est un anneau. L'angle moyen de diffraction de cet anneau nous permet d'obtenir le diamètre moyen des billes. Nous observons ces diffractions par transmission.

Le faisceau réfléchi est aussi diffracté. Nous observons expérimentalement et théoriquement que les figures de diffraction par réflexion sont équivalentes, en forme mais pas en amplitude, aux figures de diffraction par transmission. Cette observation nous permet de connaître le diamètre des billes d'une opale multicouche, en mesurant l'angle de diffraction par réflexion de la première couche. Pour une incidence oblique la figure de diffraction est déformée, et des ordres supérieurs commencent à apparaître.

Nous avons observé aussi que le rendement de la diffraction dépend de l'angle α entre la polarisation du faisceau incident et l'orientation du réseau hexagonal de l'opale. Ce rendement présente une symétrie par rapport à α de 60° , et varie selon une loi en $\cos 2\alpha$. Expérimentalement, le rendement de la diffraction varie de 30% en fonction de la polarisation pour $\lambda = 455nm$, et de 10% pour $\lambda = 543nm$. L'effet de la polarisation sur le rendement de la diffraction paraît donc diminuer en augmentant la longueur d'onde. Ceci nécessite une étude expérimentale plus systématique, de même qu'une exploration théorique par la modélisation par éléments finis.

Nous avons exposé de même les résultats de mesure des spectres de réflexion et transmission des opales, en variant les paramètres d'incidence (l'angle d'incidence, la polarisation), pour divers opales multicouches. Nous avons comparé nos résultats expérimentaux à un calcul par indice stratifié. La comparaison nous a permis de comprendre différentes caractéristiques des spectres, par exemple le pic de Bragg et le fond présentant des oscillations de type Fabry-Perot. Le modèle d'indice stratifié permet de reproduire les spectres expérimentaux effectués sur des opales multicouches. Nous comparons donc les spectres effectués sur des opales monocouches à des calculs théoriques par éléments finis effectués par I. Zabkov qui permettent d'obtenir des valeurs quantitatives du champ électrique dans tout l'espace. Nous avons donc la possibilité d'extraire les valeurs des champs réfléchis et transmis. Ce type de calcul dépend de l'orientation du réseau hexagonal de la couche d'opale, or nos opales en silice sont multidomaines. Ceci nécessite un moyennage des spectres théoriques sur plusieurs orientations, ce qui augmente le temps de calcul.

Bibliographie :

- [ASH] Ashcroft, N. W., & Mermin, N. D. (1976). *Solid State Physics* Holt-Saunders. New York, 4.
- [BAL1] Ballin, P. (2012). *Confinement tridimensionnel d'une vapeur de césium dans une opale de nanobilles* (Doctoral dissertation, Université Paris-Nord-Paris XIII).
- [BAL2] Ballin, P., Moufarej, E., Maurin, I., Lalot, A., & Bloch, D. (2013). Three-dimensional confinement of vapor in nanostructures for sub-Doppler optical resolution. *Applied Physics Letters*, 102(23), 231115.
- [BAN] Bannai, E. (1999). *Sphere packings, lattices and groups* (Vol. 290). Springer.
- [DAV] Davis, K. E., Russel, W. B., & Glantschnig, W. J. (1991). Settling suspensions of colloidal silica: observations and X-ray measurements. *J. Chem. Soc., Faraday Trans.*, 87(3), 411-424.
- [JOA] Joannopoulos, J. D., Johnson, S. G., Winn, J. N., & Meade, R. D. (2011). *Photonic crystals: molding the flow of light*. Princeton university press.
- [MAS] Massé, P. (2007). *Cristaux photoniques colloïdaux d'architecture contrôlée* (Doctoral dissertation, Université Sciences et Technologies-Bordeaux I).
- [MAU] Maurin, I., Moufarej, E., Lalot, A., & Bloch, D. (2014). The optical interface of a photonic crystal: Modeling an opal with a stratified effective index. *arXiv preprint arXiv:1407.5777*.
- [MCC] McComb, D. W., Treble, B. M., Smith, C. J., De La Rue, R. M., & Johnson, N. P. (2001). Synthesis and characterisation of photonic crystals. *Journal of material chemistry*, 11(1), 142-148.

- [MEYE] Meyer, E. (1992). Atomic force microscopy. *Progress in surface science*, 41(1), 3-49.
- [REC] Reculosa, S., & Ravaine, S. (2003). Synthesis of colloidal crystals of controllable thickness through the Langmuir-Blodgett technique. *Chemistry of materials*, 15(2), 598-605.
- [ROM] Romanelli, M., Maurin, I., Todorov, P., Chan, C. H., & Bloch, D. (2007). A 2D nanosphere array for atomic spectroscopy. *Ann. Phys. (Paris)*, 32 (2007) 127.
- [ROT] Rother, T., & Kahnert, M. (2009). *Electromagnetic wave scattering on nonspherical particles*. Springer Berlin/Heidelberg.
- [SAK] Sakoda, K. (2005). *Optical properties of photonic crystals* (Vol. 80). Springer.

Chapitre 3

Théorie de la spectroscopie de réflexion sélective en incidence normale et en incidence oblique

Le but de la thèse est d'effectuer la spectroscopie d'une vapeur atomique confinée dans une opale. Au début des expériences l'équipe a remarqué que ces nano et micro structures peuvent réfléchir une partie de la lumière. Après cette découverte l'équipe a décidé de mener ces études spectroscopiques en réflexion. Cette décision était inspirée par la spectroscopie de réflexion sélective, utilisée depuis une vingtaine d'années par l'équipe [CHE91] [CHE92] [DUC91] [DUC93] [ORI]. Au cours de ce projet nous avons effectué des expériences de réflexion sélective notamment en incidence normale, dans le but de vérifier la qualité des cellules et du montage, ou même dans le but de maîtriser au mieux la densité des atomes dans une cellule. En comparant les spectres de réflexion sélective pour les

polarisations TM et TE pour des incidences obliques, des différences très importantes ont été observées.

Dans ce chapitre nous présentons la théorie de la réflexion sélective. Cette spectroscopie linéaire étudie l'intensité du champ réfléchi à l'interface avec un milieu résonnant. Cette technique permet d'étudier la réponse d'une vapeur proche d'une interface plane, à une profondeur de l'ordre de $\lambda/2\pi$. La réponse spectroscopique se traduit par des variations de la réflectivité autour de la fréquence de résonance. Dans un premier temps, nous présentons la théorie de l'indice local, qui considère comme immobiles les atomes de la vapeur. Dans ce cas, la réponse atomique est calculée simplement à partir des équations de *Fresnel*. En revanche, à cause de l'agitation thermique, les atomes ont une distribution de vitesses, ce qui modifie la polarisation induite dans la vapeur par le champ électrique excitateur. Si le champ électrique est en incidence normale à l'interface diélectrique-vapeur atomique, le calcul de la polarisation induite se fait en fonction de la projection de la vitesse sur un seul axe z, confondu avec l'axe de propagation du champ excitant. Dans le cas où le faisceau est en incidence oblique à l'interface de séparation, le calcul devient plus compliqué car la polarisation induite se calcule en fonction des projections de la vitesse sur l'axe z et aussi sur l'axe y perpendiculaire à z.

En 1988 G. Nienhuis *et al.* publient leurs travaux de recherches théoriques calculant le signal de réflexion sélective en incidence oblique [NIE]. Ces calculs prévoyaient, pour un champ en polarisation TM, une annulation du signal de réflexion sélective pour l'angle d'incidence dans l'air 45° et pour l'angle de Brewster. Implicitement le calcul prévoyait une inversion du signe du signal entre ces deux zéros. Nous rapporterons au chapitre 4 l'observation expérimentale de cette prédiction, qui n'avait, jusqu'à présent, pas été recherchée.

3.1 Théorie de l'indice local

3.1.1 Principe

On considère une onde plane de vecteur d'onde \vec{k}_0 de fréquence ω , incidente avec un angle θ_0 sur une interface entre un milieu d'indice n (fenêtre d'une cellule) dans le plan (xy) (Figure 3-2), et une vapeur atomique d'indice $n_v(\omega)$. On définit les variables suivantes :

$$\begin{aligned} a &= \sin \theta_0 \\ b &= \cos \theta_0 \\ \alpha &= na \\ \beta &= \sqrt{1 - \alpha^2} \end{aligned} \quad (2.24)$$

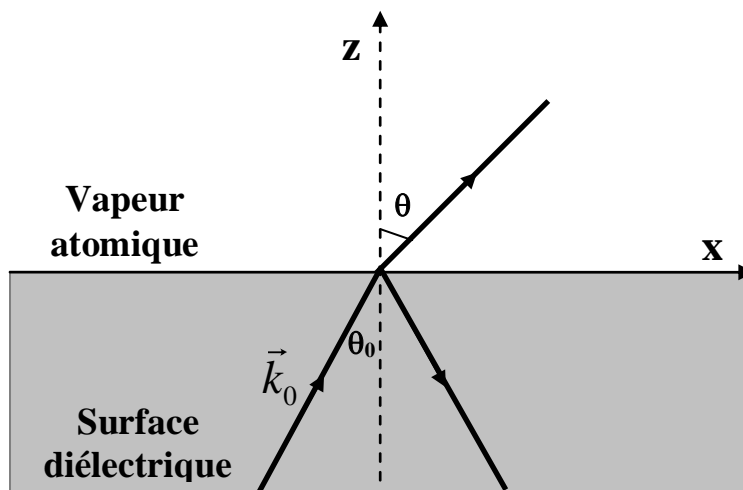


Figure 3-1 : Présentation du champ incident de vecteur d'onde \vec{k}_0 dans le plan d'incidence (xz). L'angle d'incidence dans la surface diélectrique est θ_0 , et l'angle de réfraction dans la vapeur est θ .

La réflectivité pour une polarisation TM R_{TM} et la réflectivité en polarisation TE R_{TE} sont données par les formules de Fresnel :

$$R_{TM} = \left| \frac{n\beta - n_v(\omega)b}{n\beta + n_v(\omega)b} \right|^2 \quad (2.25)$$

$$R_{TE} = \left| \frac{nb - n_v(\omega)\beta}{nb + n_v(\omega)\beta} \right|^2$$

La vapeur atomique étant diluée, on peut considérer que $n_v(\omega) \approx 1 + \delta n_v(\omega)$, avec $\delta n_v(\omega) \ll 1$ où $\delta n_v(\omega)$ est la variation de l'indice de la vapeur atomique autour de la fréquence de résonance. Les réflectivités, après un développement limité du premier ordre, deviennent :

$$R_{TM} = \left(\frac{n\beta - b}{n\beta + b} \right)^2 - \frac{4\beta nb(n\beta - b)}{(n\beta + b)^3} \Re(\delta n_v(\omega)) \quad (2.26)$$

$$R_{TE} = \left(\frac{nb - \beta}{nb + \beta} \right)^2 - \frac{4\beta nb(nb - \beta)}{(nb + \beta)^3} \Re(\delta n_v(\omega))$$

Dans l'expression (2.26) on remarque deux termes. Le premier terme est non résonnant, qui est simplement le coefficient de réflexion de Fresnel à l'interface entre le milieu diélectrique d'indice n et le vide. Le deuxième terme est résonnant et dépend de la partie réelle (dispersive) de $\delta n_v(\omega)$. Alors, aux alentours de la fréquence de résonance de la vapeur atomique ω_0 , la réponse du signal réfléchi apparaît comme une réponse dispersive résonnante de la vapeur atomique sur un fond non résonnant de Fresnel à l'interface entre la fenêtre et le vide.

3.1.2 Effet du mouvement atomique

Dans un gaz, les atomes ont une distribution de vitesses qui a la forme d'une Gaussienne, selon la direction de la propagation du champ excitant :

$$W(v_k) = \frac{1}{u\sqrt{\pi}} e^{-\frac{v_k^2}{u^2}} \quad (2.27)$$

où v_k est la projection des vitesses sur la direction de la propagation du champ excitant et u la vitesse la plus probable définie par :

$$u = \sqrt{\frac{2k_B T}{m}} \quad (2.28)$$

où k_B est la constante de Boltzmann, m la masse d'un atome et T la température de la vapeur.

Ces vitesses non nulles, dans la direction de la lumière, vont décaler les fréquences d'absorption atomique de la fréquence propre de la transition ω_0 par effet Doppler. La nouvelle fréquence d'absorption devient alors :

$$\omega' = \omega_0 \left(1 + \frac{v_k}{c} \right) \quad (2.29)$$

où c est la célérité de la lumière dans le vide.

A cause de l'effet Doppler, à chaque classe de vitesse correspond des variations dispersives (réelles) de de l'indice de la vapeur $\delta n_v(\omega, v_k)$. Le signal atomique (variation de la réflectivité autour de la fréquence de résonance $\Delta R(\omega)$) est donc la convolution de la réponse de chaque classe de vitesse avec la distribution de vitesse. La réponse de chaque classe de vitesse est une Lorentzienne de largeur γ , qui est la largeur naturelle de la transition atomique (l'inverse du temps de vie moyen d'un niveau). Si la largeur Doppler est beaucoup plus grande que γ , $\Delta R(\omega)$ a une forme dispersive de largeur Doppler (profil de Voigt).

3.1.3 Limitation à la théorie locale de l'indice

En 1954 J.L.Cojan [COJ] a observé, en spectroscopie de réflexion sélective une structure sub-Doppler à la fréquence de résonance atomique. En 1975, grâce aux lasers accordables en fréquence, Schuurmans a mis en évidence cette structure sub-Doppler [SCH]. L'origine de cette structure étroite est la discontinuité de la réponse des atomes qui arrivent

vers la surface ($v_z < 0$) et ceux qui partent ($v_z > 0$). Lors d'une collision contre une surface un atome se désexcite vers le niveau fondamental. Les atomes quittent alors la paroi dans l'état fondamental, et suivent un régime transitoire d'interaction avec le champ avant d'atteindre le régime stationnaire d'interaction. En revanche, les atomes qui arrivent vers la surface sont restés assez longtemps dans le champ et ont déjà construit leur cohérence optique pour atteindre le régime stationnaire d'interaction avec le champ. Cette discontinuité établit une relation non-locale entre le champ exciteur et la vapeur atomique, car un tel régime transitoire dépend du champ exciteur dans les lieux que l'atome a traversés.

3.2 Théorie du signal de réflexion sélective en incidence normale à l'interface diélectrique-vapeur atomique sous l'effet du mouvement atomique

Dans ce paragraphe nous rappelons les étapes principales des calculs de la variation de la réflectivité et du champ électrique réfléchi à l'interface entre une surface diélectrique et une vapeur atomique résonante, en incidence normale [DUC91]. Pour effectuer ce calcul nous sommes amenés à calculer la polarisation de la vapeur atomique induite par le champ transmis. Cette polarisation est sensible à l'effet Doppler. Dans le cas d'un champ électrique en incidence normale la distribution de vitesses atomiques conduit à une intégrale simple suivant la projection des vitesses sur l'axe z . Lorsque le champ est en incidence oblique, le calcul devient plus compliqué, car cette pondération s'effectue par une double intégrale en fonction de v_z et v_x . Nous commençons donc par le calcul le plus simple, c'est-à-dire pour un champ en incidence normale.

3.2.1 Calcul du champ réfléchi à l'interface diélectrique-vapeur atomique

On considère une interface entre une vapeur atomique diluée et une surface diélectrique plane d'indice de réfraction n . Soit E_i une onde plane en incidence normale à cette interface depuis le côté du milieu diélectrique. Une onde plane E_t sera donc transmise dans la vapeur, et une onde plane E_r réfléchie dans le milieu diélectrique. Les expressions de ces ondes s'écrivent :

$$E_i = E_{0i} e^{i(nkz - \omega t)} + c.c \quad (2.30)$$

$$E_t = E_{0t} e^{i(kz - \omega t)} + c.c \quad (2.31)$$

$$E_r = E_{0r} e^{i(nkz + \omega t)} + c.c \quad (2.32)$$

A l'interface ($z = 0$) les conditions de continuité des champs électrique et magnétique impliquent :

$$E_{0i} + E_{0r} = E_{0t}(z = 0) \quad (2.33)$$

$$ink(E_{0i} - E_{0r}) = ik(z = 0) + \frac{\partial E_{0t}}{\partial z}(z = 0) \quad (2.34)$$

Ceci nous permet d'écrire :

$$E_{0r} = \frac{n-1}{n+1} E_{0i} - \frac{1}{ik(n+1)} \frac{\partial E_{0t}}{\partial z}(z = 0) \quad (2.35)$$

D'après les expressions (2.32) et (2.35), nous déduisons que le champ réfléchi E_r se présente sous forme d'une somme de deux termes. Le premier terme est la réflexion entre le milieu diélectrique d'indice n et le vide. Ce terme est indépendant de la résonance atomique :

$$E_{0r}^{NR} = \frac{n-1}{n+1} E_{0i} \quad (2.36)$$

Le deuxième terme est le terme résonnant et s'écrit :

$$\Delta E_{0R}(\omega) = -\frac{1}{ik(n+1)} \frac{\partial E_{0t}}{\partial z}(z = 0) \quad (2.37)$$

Le champ électrique transmis dans la vapeur E_t est en effet modifié par la polarisation induite dans la vapeur, qui s'écrit :

$$P(z) = p(z)e^{i(kz - \omega t)} + cc \quad (2.38)$$

En considérant cette polarisation induite (2.38) comme une source dans l'équation d'onde de Maxwell nous obtenons :

$$\nabla^2 E - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} = \frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial^2 P}{\partial t^2} \quad (2.39)$$

d'où :

$$\frac{\partial^2 E_{0t}}{\partial z^2} + 2ik \frac{\partial E_{0t}}{\partial z} = -4\pi k^2 p(z) \quad (2.40)$$

Cette équation est une équation différentielle inhomogène du second degré. Nous écrivons sa solution générale :

$$\frac{\partial E_{0t}}{\partial z}(z) = \frac{\partial E_{0t}}{\partial z}(z_0) e^{-2ik(z-z_0)} - 4\pi k^2 e^{-2ikz} \int_{z_0}^z p(z') e^{2ikz'} dz' \quad (2.41)$$

A cause de l'absorption du faisceau par la vapeur on obtient la condition $E_{0t} \rightarrow 0$ pour $z_0 \rightarrow +\infty$. Sachant que le champ est homogène loin de la surface, on obtient une deuxième condition $\frac{\partial E_{0t}}{\partial z} \rightarrow 0$ pour $z_0 \rightarrow +\infty$. En appliquant ces deux conditions, et en combinant les expressions (2.35) et (2.41) on obtient l'expression du terme résonnant du champ électrique réfléchi, qui dépend de la polarisation induite à la vapeur atomique par le champ électrique transmis :

$$\Delta E_{0r}(\omega) = \frac{4ik\pi}{(n+1)} \int_0^{+\infty} p(z) e^{2ikz} dz \quad (2.42)$$

3.2.2 Calcul de la polarisation induite par le champ électrique transmis

Pour effectuer le calcul de la polarisation induite $p(z)$ dans la vapeur atomique par le champ électrique transmis, on considère la vapeur comme un ensemble à deux niveaux, le niveau fondamental $|g\rangle$, et le niveau excité $|e\rangle$. Ainsi nous définissons la matrice densité de ce système :

$$\begin{pmatrix} \sigma_{ee} & \sigma_{eg} \\ \sigma_{ge} & \sigma_{gg} \end{pmatrix}$$

Les termes diagonaux de la matrice densité σ_{ee} et σ_{gg} sont associés respectivement aux populations des niveaux atomiques $|e\rangle$ et $|g\rangle$ donc $\sigma_{gg} + \sigma_{ee} = 1$. Les termes non diagonaux σ_{eg} et σ_{ge} sont associés à la cohérence optique entre les niveaux atomiques $|e\rangle$ et $|g\rangle$, et peuvent être déduits avec le moment dipolaire électrique moyen des atomes.

Avec les équations de Bloch optiques, on écrit les termes de la matrice densité pour chaque vitesse v_z , en prenant en compte la largeur naturelle γ de la transition $|g\rangle \rightarrow |e\rangle$, et l'effet Doppler dû à l'agitation thermique de la vapeur atomique présentée par le terme kv_z :

$$\frac{d\sigma_{ee}}{dt} = -\frac{d\sigma_{gg}}{dt} = i\Omega(\sigma_{ge} - \sigma_{eg}) - \gamma\sigma_{ee} \quad (2.43)$$

$$\frac{d\sigma_{eg}}{dt} = -\left(\frac{\gamma}{2} - i(\omega - \omega_0 - kv_z)\right)\sigma_{eg} + i\frac{\Omega}{2}(\sigma_{gg} - \sigma_{ee}) \quad (2.44)$$

$$\frac{d\sigma_{ge}}{dt} = -\left(\frac{\gamma}{2} + i(\omega - \omega_0 - kv_z)\right)\sigma_{ge} + i\frac{\Omega}{2}(\sigma_{ee} - \sigma_{gg}) \quad (2.45)$$

où ω_0 est la fréquence de la transition atomique et $\Omega = \frac{2\mu E_{0t}}{\hbar}$ la fréquence de Rabi où μ est le moment dipolaire électrique de la transition $|g\rangle \rightarrow |e\rangle$.

La polarisation dipolaire oscillante d'un atome immobile à deux niveaux, en valeur moyenne, est $\mu\sigma_{eg}$. En revanche, dans une vapeur atomique libre les atomes ont une distribution de vitesses $W(v_z)$, due à l'agitation thermique. On doit donc pondérer le moment dipolaire par la fonction de distribution de vitesses. Nous écrivons finalement la polarisation macroscopique :

$$p(z) = N\mu \int_{-\infty}^{+\infty} W(v_z) \cdot \sigma_{eg}(z, v_z) \cdot dv_z \quad (2.46)$$

où N est la densité atomique,

Pour calculer la polarisation macroscopique, on doit donc calculer les termes de la matrice densité, dont les évolutions sont données dans les équations (2.43) et (2.44). On considère que l'amplitude du champ exciteur tend vers zéro. Dans cette approximation toute la population est dans le niveau $|g\rangle$ donc $\sigma_{gg} = 1$ et $\sigma_{ee} = 0$. L'équation (2.44), devient :

$$\frac{d\sigma_{eg}(t, v_z)}{dt} = -\left(\frac{\gamma}{2} - i(\omega - \omega_0 - kv_z)\right)\sigma_{eg} + i\frac{\Omega}{2} \quad (2.47)$$

On décompose la dérivée totale de $\sigma_{eg}(t, v_z)$ en dérivées partielles en fonction de t et z :

$$\frac{d\sigma_{eg}(t, v_z)}{dz} = \frac{\partial\sigma_{eg}}{\partial t} + \frac{\partial\sigma_{eg}}{\partial z} \frac{\partial z}{\partial t} = \frac{\partial\sigma_{eg}}{\partial t} + v_z \frac{\partial\sigma_{eg}}{\partial z} \quad (2.48)$$

Le champ excitateur étant continu, la cohérence optique entre les niveaux est en régime stationnaire, donc $\frac{\partial \sigma_{eg}}{\partial t} = 0$. L'équation (2.47) devient une équation différentielle du premier ordre, qui s'écrit :

$$v_z \frac{\partial \sigma_{eg}(v_z, z)}{\partial z} = - \left(\frac{\gamma}{2} - i(\omega - \omega_0 - kv_z) \right) \sigma_{eg} + i \frac{\Omega}{2} \quad (2.49)$$

La solution générale de l'équation (2.49) s'écrit :

$$\sigma_{eg}(z) = \frac{\frac{\Omega}{2}}{kv_z - i \frac{\gamma}{2} + \omega_0 - \omega} + C e^{\frac{-iz \left(kv_z - i \frac{\gamma}{2} + \omega_0 - \omega \right)}{v_z}} \quad (2.50)$$

où C est une constante qu'on détermine avec la condition initiale $z = z_0$. On déduit donc $C = \sigma_{eg}(z = z_0)$. L'équation (2.50) s'écrit finalement :

$$\sigma_{eg}(z) = \frac{\frac{\Omega}{2}}{kv_z - i \frac{\gamma}{2} + \omega_0 - \omega} + \sigma_{eg}(z = z_0) e^{\frac{-iz \left(kv_z - i \frac{\gamma}{2} + \omega_0 - \omega \right)}{v_z}} \quad (2.51)$$

Les conditions initiales dépendent des classes de vitesses des atomes. Pour les atomes qui arrivent à la surface $v_z < 0$, l'interaction avec le champ électrique évolue depuis $z_0 = +\infty$. Les atomes sont en régime stationnaire d'interaction avec le champ, c'est-à-dire σ_{eg} ne dépend pas de la position de l'atome z . Dans ce cas l'équation (2.51) s'écrit :

$$\sigma_{eg(-)}(z) = \frac{\frac{\Omega}{2}}{kv_z - i \frac{\gamma}{2} + \omega_0 - \omega} \quad (2.52)$$

Ce qui correspond à $\sigma_{eg}(z_0 \rightarrow \infty) = 0$

On combine l'équation (2.46) avec l'équation (2.52), pour écrire la polarisation macroscopique induite pour $v_z < 0$:

$$p_{(-)}(z) = \frac{\Omega N \mu}{2} \int_{-\infty}^0 W(v_z) \frac{1}{kv_z - i\frac{\gamma}{2} + \omega_0 - \omega} dv_z \quad (2.53)$$

Après une collision avec la surface, un atome perd sa cohérence optique avec le champ électrique exciteur. Ainsi les atomes qui repartent de la surface, $v_z > 0$, n'ont pas encore reconstruit leur cohérence avec le champ à $z_0 = 0$. On peut donc écrire $\sigma_{eg}(z_0 = 0) = 0$, et on en déduit la cohérence optique pour $v_z > 0$:

$$\sigma_{eg(+)}(z) = \frac{\frac{\Omega}{2}}{kv_z - i\frac{\gamma}{2} + \omega_0 - \omega} \left(1 - e^{\frac{-iz(kv_z - i\frac{\gamma}{2} + \omega_0 - \omega)}{v_z}} \right) \quad (2.54)$$

La polarisation pour les atomes de la classe de vitesse $v_z > 0$, s'écrit alors :

$$p_{(+)}(z) = \frac{\Omega N \mu}{2} \int_0^{+\infty} W(v_z) \frac{1 - e^{\frac{-iz(kv_z - i\frac{\gamma}{2} + \omega_0 - \omega)}{v_z}}}{kv_z - i\frac{\gamma}{2} + \omega_0 - \omega} dv_z \quad (2.55)$$

3.2.3 Calcul du signal de réflexion sélective

Expérimentalement nous détectons l'intensité du champ électrique réfléchi I_r . Cette intensité est le carré du champ réfléchi d'après les équations (2.35), (2.36) et (2.37) :

$$I_r(\omega) = (E_{0r})^2 = (E_{0r}^{NR} + \Delta E_{0r})(E_{0r}^{*NR} + \Delta E_{0r}^*) \quad (2.56)$$

Où E_{0r}^{*NR} et ΔE_{0r}^* sont respectivement les conjugués de E_{0r}^{NR} et ΔE_{0r} .

On développe l'expression (2.56) et on prend en considération que $\Delta E_{0r} \ll E_{0r}^{NR}$. On en déduit que l'intensité réfléchie est la somme de deux termes, un terme non résonant et un terme résonant. Le terme résonant est la réponse des atomes au champ exciteur, S_{RS} , qui se traduit par une variation du champ réfléchi dont la fréquence est voisine de la fréquence de résonance atomique ω_0 . Nous nous intéressons à la réflexion à l'interface entre un milieu diélectrique et la vapeur atomique. De ce fait, la réponse des atomes est la partie réelle de ΔE_{0r} . Notons que si nous remplaçons le milieu diélectrique homogène par une couche métallique, le signal atomique serait un mélange de partie réelle et imaginaire de ΔE_{0r} [CHE01]. On écrit le signal de réflexion sélective :

$$S_{RS}(\omega) = 2E_{0r} \Re[\Delta E_{0r}(\omega)] \quad (2.57)$$

D'après les expressions (2.42), (2.53), (2.55) et (2.57) on peut exprimer les signaux de réflexion sélective pour les deux classes de vitesses $v_z < 0$ et $v_z > 0$ qu'on note respectivement $S_{RS(-)}$ et $S_{RS(+)}$. Le signal de réflexion sélective est la somme des contributions des deux classes de vitesses :

$$S_{RS} = S_{RS(+)} + S_{RS(-)} \quad (2.58)$$

En calculant le signal de réflexion sélective pour les atomes qui s'éloignent de la surface $S_{RS(+)}$, un changement de variable dans l'intégration ($v_z \rightarrow -v_z$) permet de constater que cette quantité est égale au signal de réflexion sélective pour les atomes qui s'approchent de la surface $S_{RS(-)}$. Ainsi le calcul peut se limiter seulement à la réponse spectroscopique des atomes qui s'approchent de la surface [DUC91], et le signal de réflexion sélective peut s'écrire :

$$S_{RS} = -\frac{2\eta}{k} \int_0^{+\infty} W(v_z) \frac{(\omega - \omega_0 + kv_z)}{\left(\frac{\gamma}{2}\right)^2 + (\omega - \omega_0 + kv_z)^2} dv_z \quad (2.59)$$

avec $\eta = -\frac{4\pi\mu k N \Omega E_{0r}}{(n+1)}$

On pose $\Delta = \frac{\omega - \omega_0}{ku}$, $\Lambda = \frac{kv_z}{ku}$ et $\Gamma = \frac{\gamma}{2ku}$, qui sont des quantités qui font apparaître la largeur Doppler. L'expression (2.59) devient :

$$S_{RS}(\Delta) \propto \int_0^{+\infty} W(\Lambda) \frac{(\Delta + \Lambda)}{\Gamma^2 + (\Delta + \Lambda)^2} d\Lambda \quad (2.60)$$

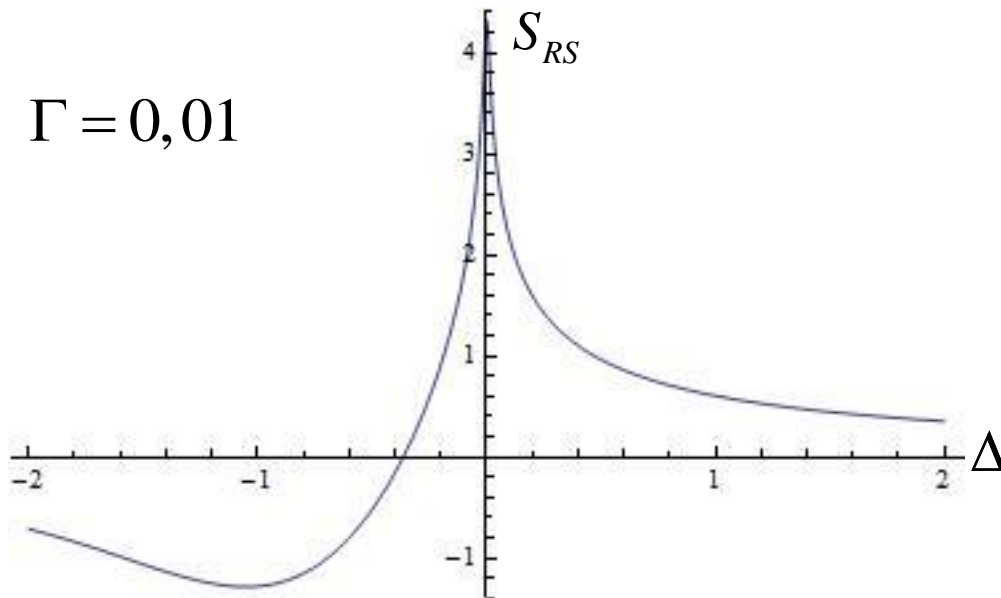


Figure 3-2 : Spectre théorique de réflexion sélective pour $\Gamma = 0,01$

L'équation 3.37 montre que le spectre de réflexion sélective est la convolution d'une Lorentzienne de dispersion par une demi-gaussienne. Ceci se traduit par un fond antisymétrique dispersif élargi par effet Doppler, sur lequel se présente une singularité logarithmique, sub-Doppler, symétrique autour de la fréquence de résonance (figure 3-2).

Cette singularité est logarithmique car $\frac{(\Delta + \Lambda)}{\Gamma^2 + (\Delta + \Lambda)^2} = \frac{1}{2} \frac{d \ln(\Gamma^2 + (\Delta + \Lambda)^2)}{d\Delta}$. Dans (2.60), il

est indispensable de considérer la distribution gaussienne $W(\Lambda)$, car la fonction

$\frac{(\Delta + \Lambda)}{\Gamma^2 + (\Delta + \Lambda)^2}$ n'est pas intégrable, même si elle est une fonction de largeur $\Gamma \ll ku$ autour de $\Lambda = -\Delta$.

3.2.4 Modulation de fréquence

a) Technique et intérêt de la modulation de fréquence

En spectroscopie, la technique de modulation de fréquence consiste à moduler la fréquence du laser, et à détecter uniquement la modulation induite sur le signal de spectroscopie.

On module la fréquence optique du laser ω_{opt} via un générateur de basse fréquence. Si cette modulation est sinusoïdale, la fréquence optique instantanée s'écrit :

$$\omega(t) = \omega_{opt} + M \cos(\omega_m t) \quad (2.61)$$

où M et ω_m sont respectivement, l'amplitude et la fréquence de la modulation appliquée.

Pour éviter les élargissements spectraux l'amplitude de modulation M doit être faible par rapport aux largeurs de spectres attendues. Dans ces cas, la réponse d'un milieu quelconque à un champ modulé, s'écrit grâce à un développement limité :

$$S(\omega(t)) = S(\omega_{opt}) + M \cos(\omega_m t) \left(\frac{\partial S(\omega)}{\partial \omega} \right)_{\omega_{opt}} + \dots \quad (2.62)$$

Le signal est envoyé vers une détection synchrone pour effectuer une démodulation. Nous observons finalement le signal démodulé (S_{FM}), proportionnel à la dérivée première du signal et à l'amplitude de modulation :

$$S_{FM}(\omega) = \langle S(\omega(t)) \cos(\omega_m t) \rangle = \frac{1}{T} \int_t^{t+T} S(\omega(t)) \cos(\omega_m t) dt = \frac{\cos(\varphi)}{2} M \left(\frac{\partial S(\omega)}{\partial \omega} \right)_{\omega_{opt}} \quad (2.63)$$

où φ est la phase de la détection synchrone et T la période du système.

D'après (2.63), le signal modulé correspond à la dérivée du signal direct par rapport à la fréquence. Cette détection met alors en évidence la pente de signaux et non pas leur amplitude, ce qui privilégie l'observation de structures étroites noyées dans un fond large. La détection synchrone permet aussi de s'affranchir des bruits d'environnement, alors on n'observe que la réponse au champ modulé.

b) Signal de réflexion sélective en modulation de fréquence

Pour mettre en évidence la singularité sub-Doppler présente sur le spectre de réflexion sélective, on utilise la technique de détection par modulation de fréquence. Pour un régime de modulation non élargissant, c'est-à-dire pour une amplitude de la modulation M relativement faible par rapport aux largeurs de spectres attendu, le spectre de la réflexion sélective en modulation de fréquence (figure 3-1) est la dérivée du spectre calculé précédemment S_{RS} en fonction de Δ :

$$S_{RSFM}(\Delta) = \frac{\partial S_{RS}}{\partial \Delta} \propto - \int_0^{+\infty} W(\Lambda) \frac{\Gamma^2 - (\Delta + \Lambda)^2}{(\Gamma^2 + (\Delta + \Lambda)^2)^2} d\Lambda \quad (2.64)$$

Dans le cas où $\gamma \ll ku$, c'est-à-dire $\Gamma \ll 1$, l'équation (2.64) devient :

$$S_{RSFM}(\Delta) \propto - \int_0^{+\infty} \frac{\Gamma^2 - (\Delta + \Lambda)^2}{(\Gamma^2 + (\Delta + \Lambda)^2)^2} d\Lambda = - \int_{\Delta}^{+\infty} \frac{\Gamma^2 - y^2}{(\Gamma^2 + y^2)^2} dy = - \int_{\Delta}^{+\infty} \frac{d}{dy} \left(\frac{y}{\Gamma^2 + y^2} \right) = \frac{\Delta}{\Delta^2 + \Gamma^2} \quad (2.65)$$

Le signal de réflexion sélective sans modulation de fréquence présente une singularité logarithmique sub-Doppler. En revanche, d'après l'équation (2.65), le signal de réflexion sélective en modulation de fréquence est finalement une Lorentzienne dispersive de largeur Γ , donc libre de l'effet Doppler. La technique de modulation de fréquence permet donc de passer d'une singularité logarithmique sub-Doppler à une Lorentzienne dispersive, de

largeur γ , qui réalise donc une sélection des vitesses faibles ($kv_z \leq \gamma$). Cette classe de vitesses correspond aux atomes en vol parallèle à la surface.

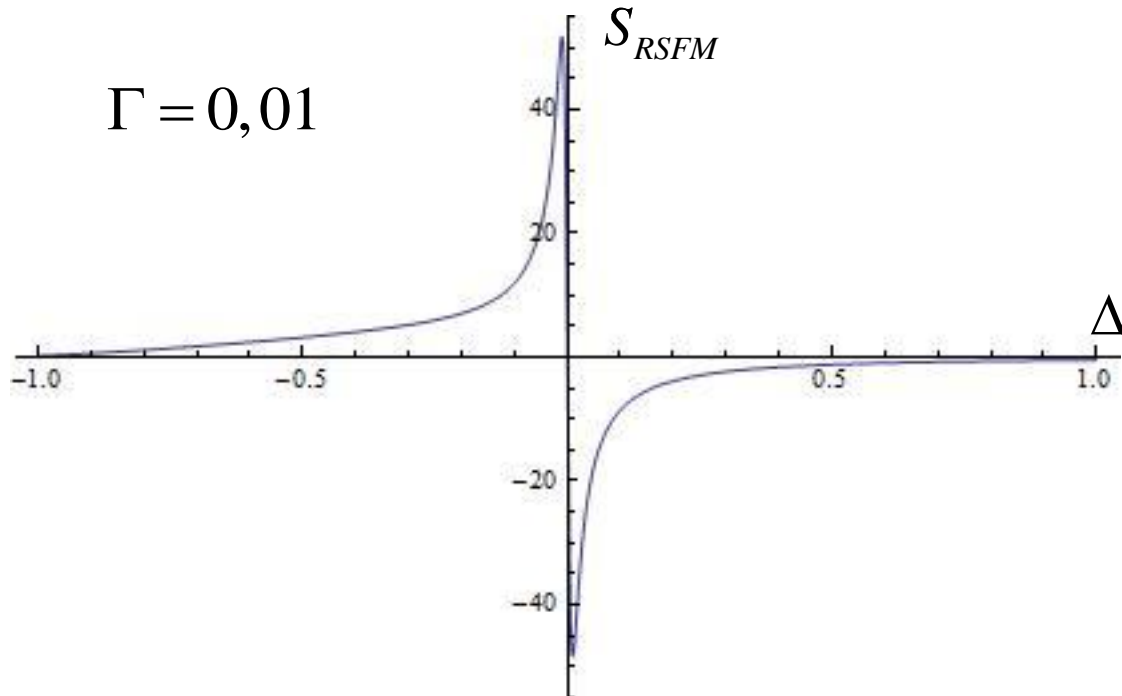


Figure 3-3 : Spectres de réflexion sélective en modulation de fréquence S_{RSFM} . Ce spectre est proportionnel à la dérivée du spectre de la figure 3-2 en fonction de la fréquence.

3.3 Spectroscopie de Réflexion sélective en incidence oblique sous l'effet du mouvement atomique

En 1988 *G. Nienhuis et al.* publient leurs calculs théoriques [NIE] du coefficient de réflexion pour un champ électrique en incidence oblique sur une interface entre une surface diélectrique d'indice n et une vapeur atomique à la résonance atomique. Contrairement au calcul que nous avons présenté et discuté dans la section 3.1, ce calcul tient compte du mouvement atomique. Ainsi ce calcul est une généralisation du cas particulier d'incidence normale que nous avons présenté dans la section 3.2. L'introduction d'un angle d'incidence introduit des élargissements spectraux et une modification radicale de la forme des raies. Pour un angle d'incidence oblique, la polarisation de la lumière joue un rôle important. Ces calculs montrent qu'il faut décomposer, le cas où la polarisation du champ électrique est rectiligne

perpendiculaire au plan d'incidence TE, du cas où la polarisation est rectiligne parallèle au plan d'incidence TM.

Pour effectuer ce calcul nous nous mettons dans les mêmes conditions de la figure 3-1, où nous considérons une surface diélectrique d'indice n dans le plan (xy) , et une onde plane de vecteur d'onde \vec{k}_0 incidente, avec un angle θ_0 dans le plan d'incidence (xz) (Figure 3-1). Dans ces conditions le vecteur d'onde du champ incident s'écrit :

$$\vec{k}_0 = k_0 (a\vec{x} + b\vec{y}) \quad (2.66)$$

où $k_0 = nk = n\frac{\omega}{c}$, et a et b les paramètres définis dans (2.24)

Une partie du champ incident est réfractée dans la vapeur. Comme dans le cas d'une incidence normale (2.38), ce champ transmis induit une polarisation dans la vapeur. La polarisation induite par un champ en incidence normale a une composante selon l'axe x uniquement. Or dans le cas d'une incidence oblique la polarisation induite a des composantes suivant les axes x et z . Donc la polarisation induite dépend de l'angle d'incidence et s'écrit:

$$\vec{P}(\vec{r}) = \vec{P}_0(z) \exp(i\alpha kx) \quad (2.67)$$

où \vec{r} est un vecteur normal à la direction de propagation de l'onde, et $\vec{P}_0(z)$ la polarisation induite dans la vapeur suivant l'axe z .

Le champ électrique réfléchi E_r est la somme du champ électrique non résonnant à l'interface entre la surface diélectrique et la vapeur, et du champ électrique émis par la vapeur à cause de la polarisation induite. Pour calculer la réponse de la vapeur atomique on considère cette dernière comme une somme de couches d'épaisseurs infiniment petites, parallèles au plan (xy) , qui est une généralisation de (3.19) (avec $e^{i2kz} \rightarrow e^{i2\beta kz}$). C'est-à-dire que l'on intègre les réponses des atomes à la hauteur z . Chaque couche contribue au champ réfléchi avec un champ dont le vecteur d'onde s'écrit:

$$\vec{k} = k(\alpha\vec{x} - \beta\vec{z}) \quad (2.68)$$

Le champ électrique résonnant est calculé alors en intégrant la contribution de toutes ces couches pour $0 < z < \infty$:

$$\vec{E}^R(\vec{r}) = \frac{1}{2\beta\epsilon_0 k} \exp(i\vec{k}_r \cdot \vec{r}) \int_0^\infty k^2 (\alpha^2 - \beta^2) \vec{P}_0(z) \exp(i\beta kz) dz \quad (2.69)$$

Dans l'expression (2.69), le champ électrique réfléchi dépend de l'angle d'incidence et de la polarisation induite dans la vapeur. La polarisation induite dépend à son tour de la polarisation du champ électrique incident (TE ou TM). Ceci nécessite alors un traitement de l'expression du champ réfléchi en fonction de la polarisation du champ électrique incident.

3.3.1 Calcul du champ réfléchi en fonction de la polarisation du champ électrique incident

Dans cette partie nous calculons le champ électrique réfléchi à l'interface surface diélectrique / vapeur atomique pour les deux polarisations principales TE et TM.

a) Calcul du champ électrique réfléchi pour une polarisation incidente TE

Pour le cas où la polarisation du champ électrique incident \vec{E}_i est TE, la polarisation dipolaire induite \vec{P}_0 est perpendiculaire au plan d'incidence (xz), c'est-à-dire parallèle à l'axe y. Le champ électrique réfléchi \vec{E}_r à cette interface conserve la polarisation incidente. On écrit donc :

$$\begin{aligned} \vec{E}_i &= E_i \vec{y} \\ \vec{P}_0 &= P_0 \vec{y} \\ \vec{E}_{rTE} &= E_{rTE} \vec{y} \end{aligned} \quad (2.70)$$

Autour de la fréquence de résonance ω_0 , le champ électrique réfléchi est la somme d'une contribution non résonnante E_{rTE}^{NR} et d'une contribution résonnante E_{rTE}^R :

$$E_{rTE} = E_{rTE}^{NR} + E_{rTE}^R \quad (2.71)$$

La contribution non résonnante E_{rTE}^{NR} se calcule à partir des coefficients de Fresnel pour une réflexion à l'interface diélectrique d'indice n / vide, en utilisant les projections définies dans l'expression (2.24) :

$$E_{rTE}^{NR} = \frac{nb - \beta}{nb + \beta} E_i \quad (2.72)$$

La contribution résonnante est la partie du champ électrique émis par les atomes (2.69) et réfracté dans le milieu diélectrique. Avec les équations de Fresnel la contribution résonnante s'écrit donc :

$$E_{rTE}^R = \frac{S}{nb + \beta} \quad (2.73)$$

Avec

$$S = \frac{ik}{\epsilon_0} \int_0^\infty dz \exp(i\beta kz) P_0(z) \quad (2.74)$$

b) Calcul du champ électrique réfléchi pour une polarisation incidente TM

Pour une polarisation du champ électrique incident TM, on écrit la composition des vecteurs des champs incident et réfléchi et de la polarisation dipolaire induite suivant les axes du plan (xz) :

$$\begin{aligned} \vec{E}_i &= E_i (-b\vec{x} + a\vec{z}) \\ \vec{P}_0(z) &= P_0(z) (-\beta\vec{x} + \alpha\vec{z}) \\ \vec{E}_{rTM} &= E_{rTM} (-b\vec{x} - a\vec{z}) \end{aligned} \quad (2.75)$$

Dans ce cas aussi le champ électrique réfléchi est la somme d'une contribution non résonnante E_{rTM}^{NR} avec une contribution résonnante E_{rTM}^R . On écrit :

$$E_{rTM} = E_{rTM}^{NR} + E_{rTM}^R \quad (2.76)$$

D'après les lois de Fresnel, nous calculons la contribution non résonnante pour cette polarisation :

$$E_{rTM}^{NR} = \frac{n\beta - b}{n\beta + b} E_i \quad (2.77)$$

Pour déterminer la contribution résonnante, nous remplaçons la polarisation dipolaire induite de l'expression (2.75) dans l'expression du champ émis par les atomes (2.69). Une partie de ce champ est réfractée dans le milieu diélectrique. On obtient :

$$E_{rTM}^R = \frac{\beta^2 - \alpha^2}{n\beta + b} S \quad (2.78)$$

Avec S défini dans l'expression (2.74). S dépend de la polarisation induite à la vapeur, et se calcule à partir des équations de Bloch optiques que nous avons décrites dans le cas d'une incidence normale (2.43), (2.44) et (2.45), en remplaçant le terme kv_z par $\vec{k} \cdot \vec{v}$. Pour une incidence oblique la polarisation induite dans la vapeur par le champ électrique transmis se calcule par une double intégrale suivant les deux axes du plan d'incidence x et z . Lorsque l'angle de réfraction dans la vapeur θ , est faible, les variations des termes à intégrer par rapport à l'axe x restent faibles. Dans cette situation on peut parler d'élargissement spectral résiduel, et la forme de raie est élargie par rapport au spectre en incidence normale par $ku\theta$, et son amplitude (en modulation de fréquence) diminue. Pour un angle θ important, le calcul devient plus compliqué, et les formes des raies deviennent totalement différentes et demandent un traitement plus difficile.

c) Discussion et interprétation pour le cas de la polarisation TM

Dans ce calcul nous observons un résultat remarquable. La contribution atomique pour un champ incident polarisé parallèle au plan d'incidence (2.78), s'annule lorsque $\alpha = \beta$. Or

d'après (2.24) $\alpha^2 + \beta^2 = 1$. On en conclut que cette contribution s'annule lorsque $\alpha = \beta = \frac{1}{\sqrt{2}}$, c'est-à-dire lorsque l'angle de réfraction du faisceau transmis dans la vapeur $\theta = 45^\circ$. On remarque de même que le signe du signal atomique pour $\theta > 45^\circ$ est inversé par rapport à son signe pour $\theta < 45^\circ$.

Il existe un angle d'incidence critique, dit angle de Brewster, pour lequel la réflexion d'un champ incident en polarisation TM est nulle. Cet angle est celui pour lequel le faisceau réfracté est perpendiculaire au faisceau réfléchi, ainsi l'intensité de ce dernier est nulle (en polarisation TM à cause de la transversalité du champ). Pour une interface entre un milieu d'indice n_1 et un milieu d'indice n_2 , l'angle de Brewster s'écrit $\theta_{Brewster} = \arctan\left(\frac{n_2}{n_1}\right)$. Pour $n_1 < n_2$ on a $\theta_{Brewster} > 45^\circ$.

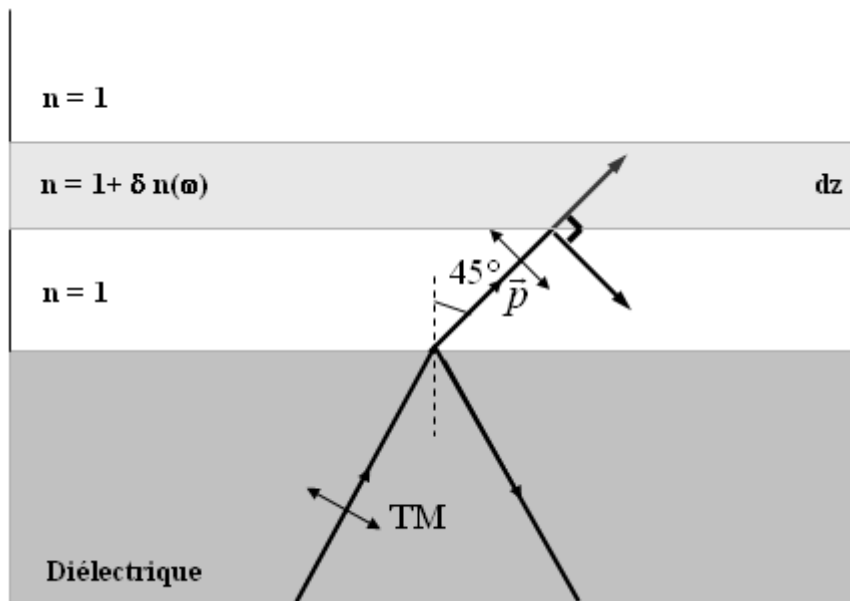


Figure 3-3 : Représentation du faisceau transmis, en polarisation TM, dans la vapeur atomique libre. La vapeur atomique est découpée en tranches de largeur dz d'indice $n = 1 + \delta n(\omega) \ll 1$. Le faisceau réfracté dans la vapeur vaut 45° . Pour cet angle le faisceau réfléchi par un plan est perpendiculaire au faisceau transmis, donc cet angle correspond à l'angle de Brewster entre le vide et la vapeur, ainsi aucun faisceau n'est réfléchi par ces plans.

La réponse atomique est alors nulle.

Dans notre cas la vapeur est composée de plans d'indice $n = 1 + \delta n(\omega, z) \ll 1$. Pour une vapeur diluée, l'angle de réfraction est égal à l'angle d'incidence à l'interface avec chacun de ces plans. Lorsque ce dernier vaut 45° le faisceau transmis dans chaque plan est perpendiculaire à celui réfléchi. L'angle dans la vapeur $\theta = 45^\circ$ est finalement un angle de Brewster entre chaque deux tranches consécutives d'indices $n_1 = 1 + \delta n_1(\omega, z_1) \ll 1$ et $n_2 = 1 + \delta n_2(\omega, z_2) \ll 1$. Pour simplifier on considère cet angle un angle de Brewster entre le vide ($n = 1$) et chaque tranche de la vapeur ($n = 1 + \delta n(\omega) \ll 1$) (figure 3-3). Ainsi l'amplitude du faisceau réfléchi par les plans, qui contient le signal atomique, est nulle.

3.3.2 Calcul des coefficients de réflexion pour les deux polarisations principales TE et TM

A partir des amplitudes des champs calculés dans la partie précédente nous calculons les coefficients de réflexion pour les deux polarisations principales TE et TM.

a) Coefficient de réflexion d'un champ électrique pour une polarisation TE

Pour un champ électrique en polarisation TE, le coefficient de réflexion se présente sous la forme d'une somme de deux termes. Le premier terme est non résonnant, et correspond au coefficient de Fresnel de la réflexion d'un champ électrique en polarisation TE en incidence avec un angle θ_0 sur une interface entre un milieu d'indice n et le vide :

$$R_{TE}^{NR}(\theta_0) = \left(\frac{nb - \beta}{nb + \beta} \right)^2 \quad (2.79)$$

Le deuxième terme est le terme résonnant et dépend du champ électrique transmis dans la vapeur, qui induit une polarisation dans la vapeur. La polarisation induite modifie le champ électrique réfléchi, comme pour le calcul de réflexion sélective en incidence normale que nous avons présenté précédemment. On écrit finalement ce coefficient de réflexion :

$$R_{TE} = \left(\frac{nb - \beta}{nb + \beta} \right)^2 + \frac{4nb(nb - \beta)}{(nb + \beta)^3} \Re e T \quad (2.80)$$

Avec :

$$T = \frac{S}{E_t} \quad (2.81)$$

Où E_t est le champ électrique transmis dans la vapeur, et responsable de la polarisation induite dans cette dernière.

Le terme contenant la contribution atomique s'écrit :

$$R_{TE}^R = \frac{4nb(nb - \beta)}{(nb + \beta)^3} \Re e T \quad (2.82)$$

b) Coefficient de réflexion d'un champ électrique pour une polarisation TM

Le coefficient de réflexion pour un champ électrique en polarisation TM se présente aussi sous la forme d'une somme du coefficient de Fresnel non résonnant

$R_{TM}^{NR}(\theta_0) = \left(\frac{n\beta - b}{n\beta + b} \right)^2$ et d'un terme résonnant $R_{TM}^R(\theta_0)$:

$$R_{TM} = \left(\frac{n\beta - b}{n\beta + b} \right)^2 + (\beta^2 - \alpha^2) \frac{4nb(n\beta - b)}{(n\beta + b)^3} \Re e T \quad (2.83)$$

Le terme contenant la contribution atomique s'écrit :

$$R_{TM}^R = (\beta^2 - \alpha^2) \frac{4nb(n\beta - b)}{(n\beta + b)^3} \Re e T \quad (2.84)$$

c) Interprétation

Les formes des raies de résonance sont définies par la partie réelle de T . L'amplitude de cette quantité diminue en fonction de l'angle dû aux élargissements spectraux par effets Doppler résiduel. A partir d'un angle où la largeur des raies de résonance atteint la largeur Doppler, l'amplitude de la partie réelle de T ne présente pas des variations remarquables en fonction de l'angle d'incidence. Les variations des amplitudes des termes résonants de la réflectivité, pour une incidence entre 30° et 70° , sont donc surtout caractérisées par les fonctions :

$$f_{TE}(\theta) = \frac{4nb(nb - \beta)}{(nb + \beta)^3} \quad (2.85)$$

et

$$f_{TM}(\theta) = (\beta^2 - \alpha^2) \frac{4nb(n\beta - b)}{(n\beta + b)^3} \quad (2.86)$$

D'après l'expression (2.85) on remarque que pour, une polarisation TE, la contribution atomique ne s'annule jamais et son signe ne change pas en fonction de θ . De plus l'amplitude de cette contribution augmente en fonction de θ , de même que la contribution non résonnante (figure 3-4).

Pour une polarisation TM, d'après l'expression (2.86) on remarque que la contribution atomique s'annule pour deux cas. Le premier cas est celui traité précédemment pour un angle de réfraction dans la vapeur $\theta = 45^\circ$. Le deuxième cas est lorsque le facteur $n\beta - b = 0$. Cette équation admet une solution unique $\theta_0 = \arctan\left(\frac{1}{n}\right)$. Cet angle est l'angle de Brewster à l'interface diélectrique vapeur atomique, et pour $n = 1,5$ vaut $\theta_0 = 33,69^\circ$, ce qui correspond à un angle de réfraction dans la vapeur $\theta = 56,11^\circ$. On remarque de même que le signe du signal atomique pour $\theta < \theta_{Brewster}$ est inversé par rapport à son signe pour $\theta > \theta_{Brewster}$ (figure 3-4).

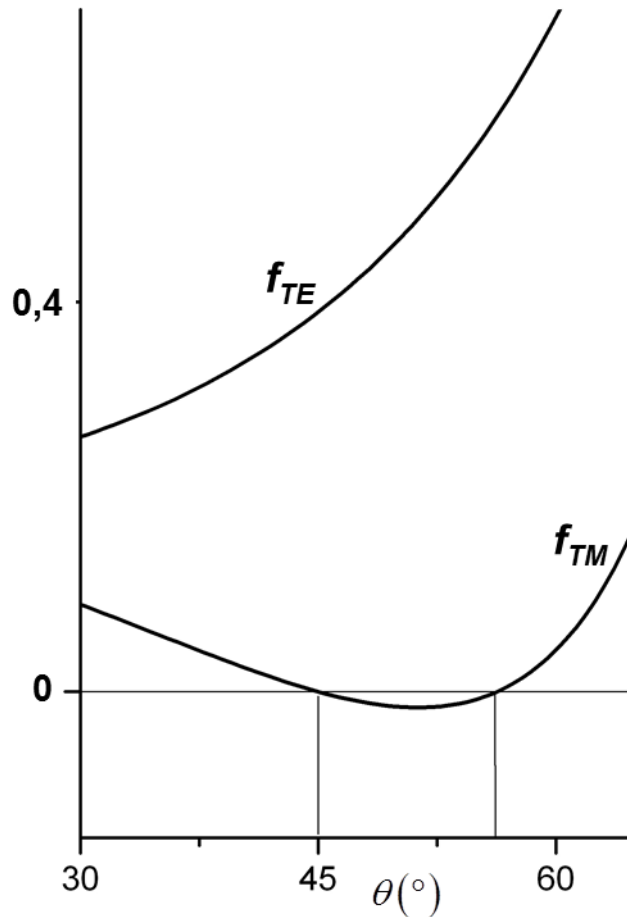


Figure 3-4 : variation de l'amplitude du signal de réflexion sélective en fonction de l'angle de réfraction dans la vapeur atomique, pour une polarisation incidente TE (f_{TE}), et une polarisation incidente TM (f_{TM}). Ces courbes théoriques sont obtenues pour un indice optique du milieu diélectrique $n = 1,5$.

Finalement on conclut que pour un champ électrique en polarisation TM le signal de réflexion sélective s'annule lorsque l'angle de réfraction dans la vapeur est équivalent à $\theta = 45^{\circ}$, et pour $\theta_0 = \theta_{Brewster}$. Entre ces deux zéros le signal de réflexion sélective ne change pas de signe, tandis que pour un champ en polarisation TE le signe du signal est toujours le même.

Ces annulations du signal atomique et l'inversion de signe entre les deux zéros n'avaient jusqu'à présent jamais été observées. Nous explorons expérimentalement ces prédictions théoriques au chapitre 4. Dans le cas expérimental, le milieu diélectrique est la fenêtre d'une cellule contenant la vapeur atomique. L'angle que nous contrôlons donc est l'angle d'incidence à l'interface air / diélectrique qu'on note θ_{ext} . Lorsque l'angle de réfraction

dans la vapeur $\theta = 45^\circ$, on a $\theta_{ext} = 45^\circ$ aussi. Lorsque θ_0 est équivalent à l'angle de Brewster entre la fenêtre et le vide, l'angle externe est $\theta_{ext} = \arctan(n)$ correspondant à l'angle de Brewster à l'interface air-diélectrique. Pour $n = 1,5$ on obtient $\theta_{ext} = 56,11^\circ$.

3.4 Conclusion

Dans ce chapitre nous avons développé la théorie de la spectroscopie de réflexion sélective. Cette technique de spectroscopie linéaire étudie la réponse atomique sur l'intensité du faisceau réfléchi. La réflectivité à l'interface entre un milieu solide et une vapeur atomique diluée est modifiée autour de la fréquence de résonance atomique.

En incidence normale cette spectroscopie présente une singularité logarithmique sub-Doppler sur un fond élargi par effet Doppler. La singularité sub-Doppler est due au mouvement atomique. En effet, les atomes qui s'approchent de la surface diélectrique $v_z < 0$ sont restés assez longtemps dans le champ résonnant pour construire leur résonance et sont dans un régime permanent d'interaction avec ce dernier. Après les collisions avec la surface diélectrique, les atomes qui partent de la surface $v_z > 0$ perdent leur cohérence et sont dans un régime transitoire d'interaction avec le champ excitant. Pour calculer la réponse atomique nous calculons la polarisation induite à la vapeur atomique par le champ électrique transmis. La modulation de la fréquence du champ excitant nous obtenons les dérivées des spectres. Cette technique nous permet de passer d'une singularité logarithmique à une Lorentzienne dispersive de largeur équivalente à la largeur naturelle de la transition atomique sondée.

Pour une faible incidence, les spectres sont élargis par effet Doppler résiduel, et leur largeur est donnée par $ku\theta$, avec θ l'angle de réfraction dans la vapeur. Pour un angle θ important, la forme de raie devient totalement différente et demande un traitement plus complexe.

Lorsque la polarisation incidente est TM, le signal atomique s'annule pour un angle de réfraction équivalent à 45° . Cette annulation est due au fait que l'angle 45° est l'angle de Brewster entre le vide (d'indice optique $n = 1$) et la vapeur atomique $n = 1 + \delta n(\omega) \ll 1$. Le signal s'annule de même à l'angle de Brewster entre la surface diélectrique et la vapeur

atomique. Entre ces deux zéros le signal de réflexion sélective change de signe. Lorsque la polarisation est TE le signal ne s'annule jamais et ne change pas de signe.

Dans le chapitre 4 nous développerons le montage expérimental qui nous avons développé pour observer ces prédictions théoriques. Nous exposerons et interprétons les résultats expérimentaux obtenus.

Bibliographie :

- [COJ] Cojan, J. L. (1954). *Contribution a l'etude de la reflexion selective sur la vapeur de mercure de la radiation de resonance du mercure* (Doctoral dissertation, Paris.).
- [CHE91] Chevrollier, M., Bloch, D., Rahmat, G., & Ducloy, M. (1991). Van der Waals-induced spectral distortions in selective-reflection spectroscopy of Cs vapor: the strong atom–surface interaction regime. *Optics letters*, 16(23), 1879-1881.
- [CHE92] Chevrollier, M., Fichet, M., Oria, M., Rahmat, G., Bloch, D., & Ducloy, M. (1992). 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. *Journal de Physique II*, 2(4), 631-657.
- [CHE01] Chevrollier, M., Oria, M., De Souza, J. G., Bloch, D., Fichet, M., & Ducloy, M. (2001). Selective reflection spectroscopy of a resonant vapor at the interface with a metallic layer. *Physical Review E*, 63(4), 046610.
- [DUC91] Ducloy, M., & Fichet, M. (1991). General theory of frequency modulated selective reflection. Influence of atom surface interactions. *Journal de Physique II*, 1(12), 1429-1446.
- [DUC93] Ducloy, M. (1993). Influence of atom-surface collisional processes in FM selective reflection spectroscopy. *Optics communications*, 99(5), 336-339.
- [NIE] Nienhuis, G., Schuller, F., & Ducloy, M. (1988). Nonlinear selective reflection from an atomic vapor at arbitrary incidence angle. *Physical Review A*, 38(10), 5197.
- [ORI] Oria, M., Chevrollier, M., Bloch, D., Fichet, M., & Ducloy, M. (1991). Spectral observation of surface-induced van der Waals attraction on atomic vapour. *EPL (Europhysics Letters)*, 14(6), 527.

[SCH] Schuurmans, M. F. H. (1976). Spectral narrowing of selective reflection. *Journal de Physique*, 37(5), 469-485.

Chapitre 4

Expériences de Réflexion Sélective sur des atomes de césium

Dans ce chapitre nous effectuons des expériences de réflexion sélective sur des atomes de césium, à la recherche des prédictions théoriques que nous avons développées dans le chapitre 3.

Nous commençons par une description des transitions atomiques et des caractéristiques de l'atome de césium. Ces expériences spectroscopiques nécessitent une référence de fréquence optique, donc un montage auxiliaire d'absorption saturée est effectué dans ce but, dont nous décrivons la théorie et le montage expérimental. Nous développerons par la suite le montage optique utilisé au cours de ces expériences. Nous décrivons ensuite les lasers et la chaîne de détection utilisés. Finalement nous exposons et nous discutons les

résultats expérimentaux en les comparant aux prédictions théoriques exposées dans le chapitre 3.

4.1 Le césium

Nous effectuons tous nos travaux sur des atomes de césium, dont nous devons connaître les transitions atomiques et leurs fréquences (ou longueur d'onde). En effet, le césium est un alcalin, qui présente des transitions atomiques dont l'énergie correspond à des longueurs d'ondes facilement accessibles dans le visible et l'infrarouge.

4.1.1 Niveaux hyperfins du césium

Le niveau fondamental de l'atome de césium est $6S_{1/2}$. Nous nous intéressons aux transitions entre le niveau fondamental et les niveaux excités $6P_{1/2}$, $6P_{3/2}$ et $7P_{3/2}$. Nous présentons dans cette partie les niveaux hyperfins de chacun des niveaux ainsi que la longueur d'onde de chaque transition.

Le moment angulaire total \vec{F} , dont le nombre quantique F définit les composants hyperfins, est la somme du moment angulaire total électronique \vec{J} avec le moment angulaire total nucléaire \vec{I} [STE].

$$\vec{F} = \vec{J} + \vec{I} \quad (2.87)$$

Le nombre quantique I est intrinsèque au noyau de l'atome. Dans le cas de l'atome de césium ^{133}Cs $I = 7/2$. Le moment angulaire total électronique \vec{J} est la somme du moment angulaire de spin total \vec{S} avec le moment angulaire orbital total \vec{L} .

$$\vec{J} = \vec{L} + \vec{S} \quad (2.88)$$

Pour un alcalin le moment de spin total $S = +\frac{1}{2}$. Pour un niveau S le moment cinétique orbital vaut $L = 0$. On en déduit donc que le niveau fondamental $6S_{1/2}$ est composé de deux niveaux hyperfins $F = 3$ et $F = 4$. Ces deux sous niveaux sont séparés de 9,19 GHz.

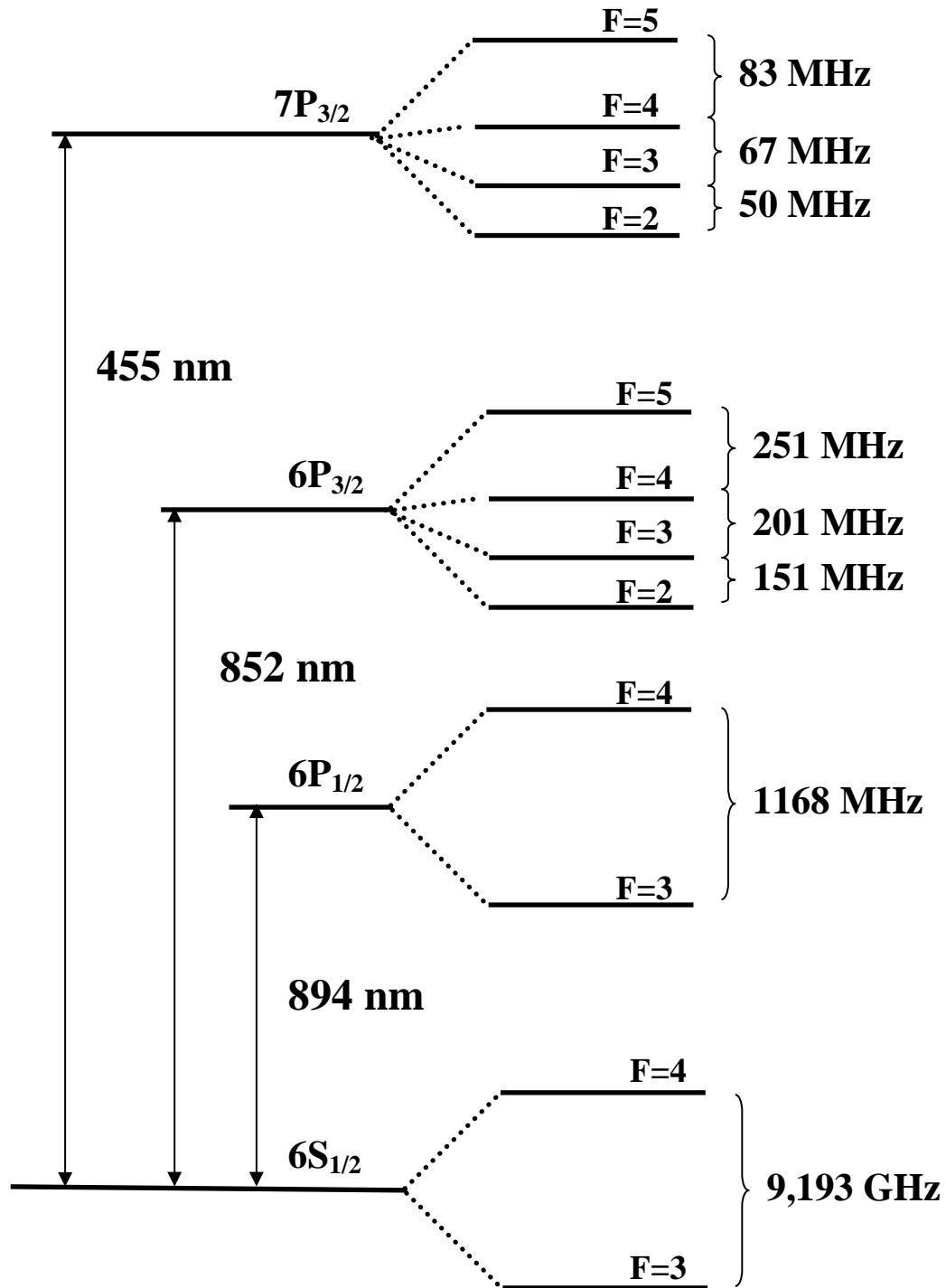


Figure 4-1 : Représentations du niveau fondamental et des niveaux excités du césium qui nous intéressent.

Pour un niveau P, le moment angulaire total électronique J admet deux valeurs, $J = 1/2$ et $J = 3/2$, qui définissent donc les deux niveaux excités. Pour le niveau $6P_{1/2}$, $J = 1/2$, le niveau se décompose aussi en deux niveaux hyperfins $F = 3$ et $F = 4$. Pour les niveaux $6P_{3/2}$ et $7P_{3/2}$ $J = 3/2$, et chacun de ces deux niveaux est composé de quatre niveaux hyperfins $F = 2$, $F = 3$, $F = 4$ et $F = 5$. L'écart en fréquence entre les niveaux hyperfins est donné par la figure 4-1.

La transition $6S_{1/2} \rightarrow 6P_{1/2}$ est appelée la raie D_1 du césium. La longueur d'onde de cette transition est $\lambda = 894nm$ (Figure 4-1). D'après les règles de sélection ($\Delta F = -1; 0; 1$), toutes les transitions hyperfines entre le niveau fondamental et le niveau excité sont autorisées. Ainsi quatre transitions sont possibles. La transition $6S_{1/2} \rightarrow 6P_{3/2}$ est la raie D_2 du césium. La longueur d'onde de cette transition est $\lambda = 852nm$. La longueur d'onde correspondant à la transition $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$ est $\lambda = 455nm$. D'après les règles de sélection, pour la transition $S_{1/2} \rightarrow P_{3/2}$, trois transitions sont autorisées vers chaque niveau hyperfin fondamental. Pour le niveau fondamental $F=3$, les transitions se font vers et depuis les niveaux hyperfins $F=2$, $F=3$ et $F=4$. Pour le niveau fondamental $F=4$, les transitions se font vers et depuis les niveaux hyperfins $F=3$, $F=4$ et $F=5$.

4.1.2 Rapports des probabilités de transitions des niveaux excités de l'atome de césium

La force d'oscillateur de la raie D_2 est environ deux fois plus forte que la force d'oscillateur de la raie D_1 . La force d'oscillateur de la transition $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$ est environ dix fois plus faible que la force d'oscillateur de la raie D_2 . Une spectroscopie linéaire de la transition $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$ nécessite donc une densité d'atomes dix fois plus forte que dans le cas du premier niveau excité.

| | | | | |
|--|-------------------|-------|-------------------|-------|
| $6S_{1/2} \rightarrow 6P_{3/2}$ $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$ | $4 \rightarrow 5$ | 11/18 | $3 \rightarrow 4$ | 15/56 |
| | $4 \rightarrow 4$ | 7/24 | $3 \rightarrow 3$ | 3/8 |
| | $4 \rightarrow 3$ | 7/72 | $3 \rightarrow 2$ | 5/14 |
| $6S_{1/2} \rightarrow 6P_{1/2}$ | $4 \rightarrow 4$ | 5/12 | $3 \rightarrow 4$ | 3/4 |
| | $4 \rightarrow 3$ | 7/12 | $3 \rightarrow 3$ | 1/4 |

Tableau 4-1 : Probabilités de transition relatives.

Les rapports des probabilités des transitions entre les différents niveaux hyperfins sont donnés par le tableau 4-1. Ces rapports sont équivalents pour la raie D_2 $6S_{1/2} \rightarrow 6P_{3/2}$ et pour la raie $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$ [STE].

4.1.3 Densité du césium en fonction de la température

En général une cellule utilisée pour la spectroscopie atomique est composée de deux parties principales. La première partie est le corps de la cellule dans lequel les atomes se trouvent dans l'état gazeux. La deuxième partie est un réservoir. Dans le cas des atomes de césium, à partir de 29°C les atomes dans le réservoir changent d'état, de l'état solide à l'état liquide (figure 4-2).

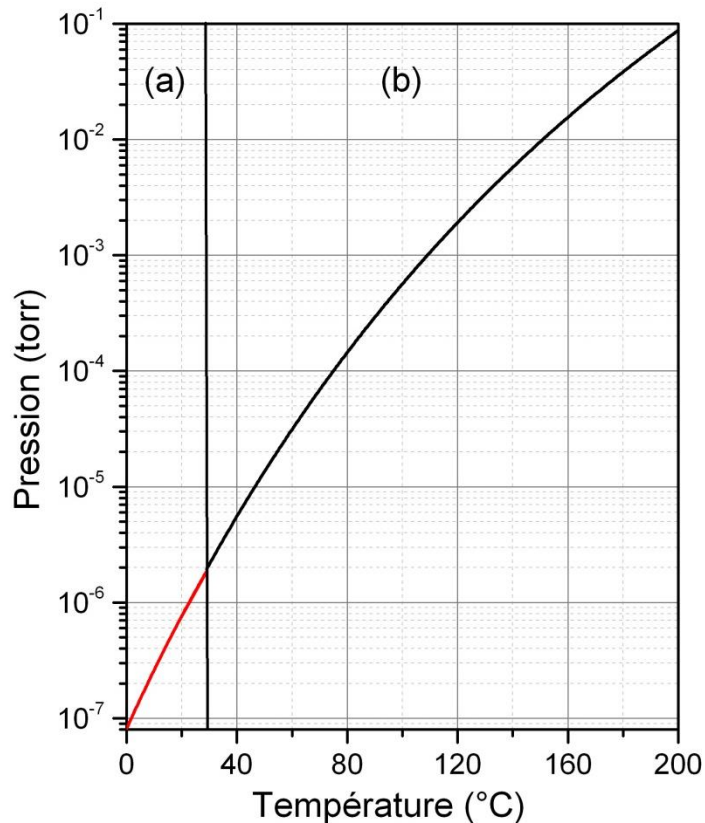


Figure 4-2 : Evolution de l'état et de la pression d'une vapeur de césium en fonction de la température du queusot. A partir de 29°C le césium passe de l'état solide (a) à l'état liquide ou gazeux (b).

La pression du gaz, et donc la densité atomique dans la cellule augmente avec la température de chauffage du réservoir. D'après la figure 4-2, à partir de 100°C, pour augmenter la densité du gaz d'un ordre de grandeur, il faut augmenter la température d'environ 40°C. Pour des faibles températures la densité de la vapeur augmente encore plus rapidement.

4.1.4 Largeur naturelle et élargissement Doppler des transitions

Nous caractérisons la largeur Doppler des transitions par la quantité ku où u est la vitesse la plus probable. Dans le tableau 4-2 nous décrivons la largeur naturelle et les élargissements Doppler de chaque sous niveau excité à température ambiante $T = 300K$. A cette température la vitesse la plus probable, pour le césium ^{133}Cs , est $u = 193\text{m.s}^{-1}$.

| | $6S_{\frac{1}{2}} \rightarrow 6P_{\frac{1}{2}}$ | $6S_{\frac{1}{2}} \rightarrow 6P_{\frac{3}{2}}$ | $6S_{\frac{1}{2}} \rightarrow 7P_{\frac{3}{2}}$ |
|-----------------|---|---|---|
| Longueur d'onde | 894 nm | 852 nm | 455 nm |
| γ | 5,4 MHz | 5,2 MHz | 1,3 MHz |
| ku | 216 MHz | 227 MHz | 424 MHz |

Tableau 4-2 : Tableau montrant les longueurs d'ondes, les largeurs naturelles et les élargissements par effet Doppler à température ambiante pour les transitions atomiques du césium qui nous intéressent.

4.2 Présentation des cellules et des fours

Les cellules à notre disposition sont faites en verre, et composées de deux parties principales. La première partie est le queusot contenant le césium. La deuxième partie est le corps de la cellule. Cette dernière est cylindrique et une des faces est la fenêtre en SiO₂. Une opale en SiO₂ déposée par la technique Langmuir-Blodgett, par l'équipe de Serge Ravaine (Université de Bordeaux), couvre la moitié de chaque fenêtre. La moitié vide de la fenêtre nous permet d'effectuer des expériences de réflexion sélective. Les cellules sont fabriquées par Florence Thibout (laboratoire Kastler Brossel).

4.2.1 Les cellules

La préparation de la fenêtre avant la mise en cellule se fait en trois étapes. Premièrement nous grattons une partie de l'opale de la fenêtre, ensuite nous effectuons un recuit à une haute température, et nous terminons par une vérification de ses propriétés optiques avec des expériences de réflexion que nous avons décrit dans le chapitre 2.

Lors de la mise en cellule, la fenêtre est soudée sur le corps cylindrique de la cellule. Une partie de l'opale (environ 1 cm autour du bord de la fenêtre) doit être grattée et enlevée pour réussir le soudage. Préalablement à cette étape, la fenêtre doit être chauffée pour rendre l'opale plus solide. En effet, avant le chauffage les billes tiennent les unes sur les autres uniquement avec les forces de van der Waals. Le chauffage de l'opale permet d'obtenir une

forme de soudage des billes entre elles, ce qui rend ce matériau mécaniquement plus stable et plus rigide. Le chauffage s'effectue dans un four à 500°C, pendant trois heures. Après ces trois heures la température décroît linéairement pendant environ une heure, car une diminution rapide de la température peut introduire un choc thermique.

L'étape de recuit peut détruire l'organisation cristallographique de l'opale. Pour connaître les effets de cette étape, des expériences de réflexion avec le laser super continuum que nous avons expliquées dans le chapitre 2 paragraphe 2.3.1.a), sont effectuées sur ces opales avant et après cuisson, dans le but de les comparer. Nous avons observé un faible décalage des spectres vers les petites longueurs d'ondes (figure 4-3).

Après ces étapes de préparation les fenêtres sont envoyées au laboratoire Kastler Brossel, où elles seront mises en cellule et remplies de césium par Florence Thibout. La mise en cellule est présentée par la figure 4-4.

Nous disposons d'une cellule avec une opale de dix couches de billes de diamètres 1080 nm, ainsi qu'une cellule de vingt couches de billes du même diamètre. Nous disposons de même d'une cellule de dix couches de billes de diamètres 400 nm.

Nous disposons aussi de cellules avec des opales multizones où le nombre de couches varie de 1 à 4 couches sur la même fenêtre. Ces cellules seront décrites dans le chapitre 5.

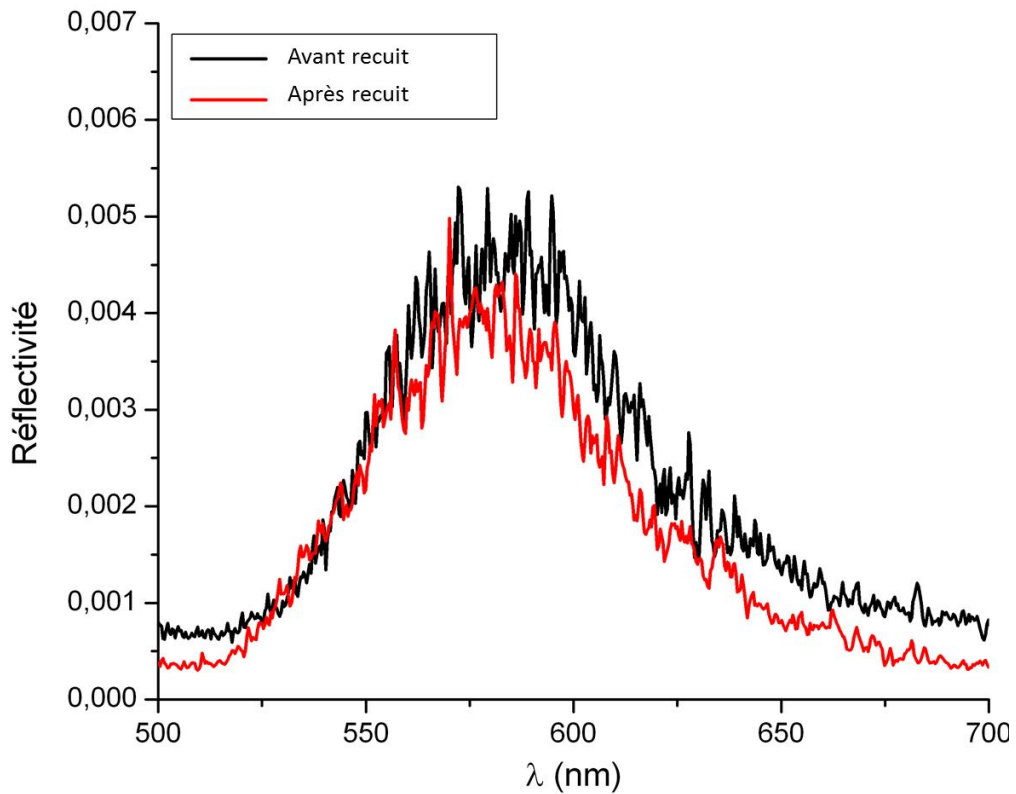


Figure 4-3 : Spectres de réflexion sur une opale de quatre couches de billes de diamètre 1030 nm, avant et après cuisson. Ces spectres sont effectués avec un champ en polarisation TM pour un angle d'incidence de 62° .

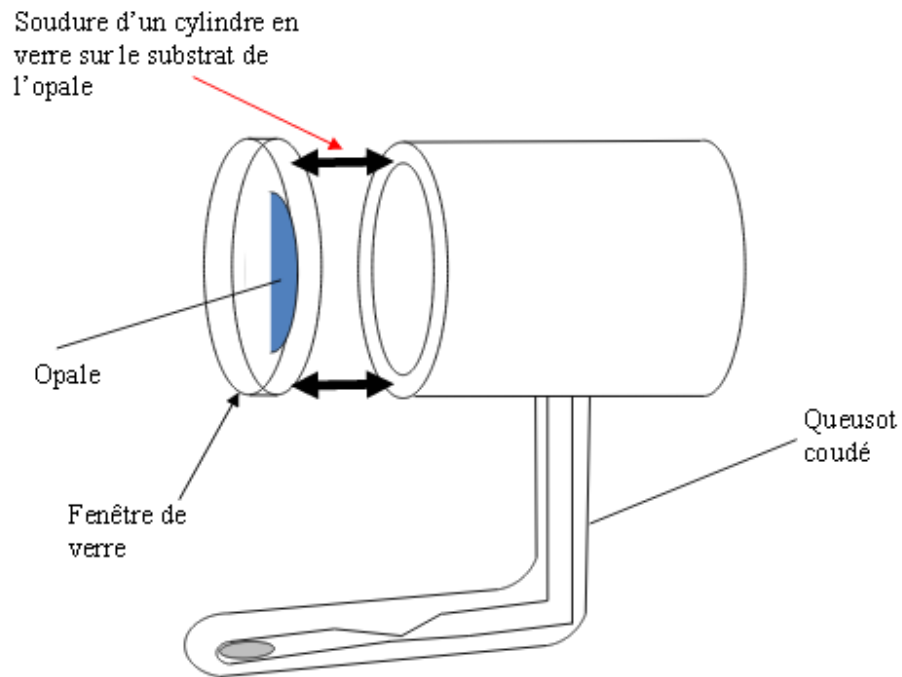


Figure 4-4 : Schéma de la mise en cellule de l'opale. Schéma provenant de la thèse de P. Ballin [BAL]

4.2.2 Les fours

Le four où la cellule est positionnée est composé de deux parties (figure 4-5), parce que la température de la fenêtre doit être contrôlée séparément de celle du queusot. Les fils chauffants sont des thermocoax, pour éviter de générer des champs magnétiques pouvant déplacer les transitions par effet Zeeman. Les deux parties principales du four sont séparées par un radiateur pour éviter au mieux la conduction de la chaleur d'une région à une autre.

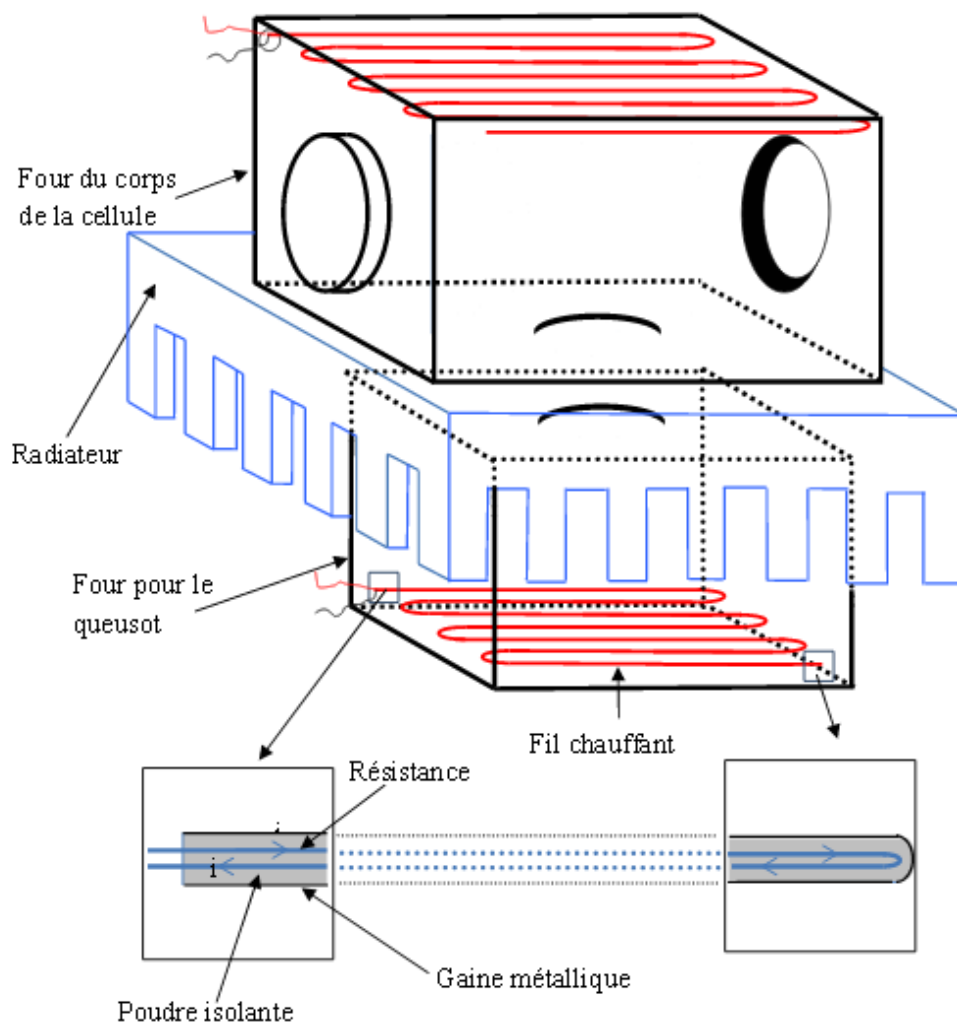


Figure 4-5 : Schéma du four utilisé pour chauffer la cellule. Schéma provenant de la thèse de P. Ballin [BAL]

Pour effectuer des expériences sur le premier niveau excité du césium (raie D_1 et D_2), la température de chauffage du queusot que nous appliquons est environ 100°C . La

température de la fenêtre doit être supérieure à celle du queusot pour qu'elle ne devienne pas le point le plus froid de la cellule et que les atomes se déposent dessus. Cette température ne doit pas dépasser 200°C, car à partir de cette température critique le césium attaque chimiquement le SiO₂ ainsi l'opale et la cellule seront détruites.

Pour effectuer des expériences sur le deuxième niveau excité, nous avons besoin d'une densité de vapeur environ dix fois plus forte, donc nous chauffons le queusot à des températures d'environ 140°C. Dans ces conditions nous chauffons la fenêtre à la température limite qui est 180°C.

4.3 Référence de fréquence optique

Les expériences spectroscopiques que nous effectuons nécessitent une référence de fréquence optique pour repérer la fréquence des transitions atomiques. Nous utilisons un montage auxiliaire d'absorption saturée dans ce but. Dans cette partie nous développons la théorie de cette technique de spectroscopie non linéaire.

4.3.1 Absorption linéaire d'une vapeur atomique diluée

On considère un faisceau de fréquence ω traversant une cellule contenant une vapeur atomique et d'intensité I_0 . Si ω est autour d'une fréquence de résonance des atomes de la vapeur, l'intensité du faisceau transmis par la cellule est donnée par la loi de Beer-Lambert :

$$I(z) = I_0 e^{-\kappa(\omega)z} \quad (2.89)$$

où z est la position par rapport à un axe parallèle au faisceau, et $\kappa(\omega)$ le coefficient d'absorption de la vapeur atomique.

Pour simplifier on considère toujours le cas d'une cellule où l'absorption est faible, ce qui est le cas d'une vapeur atomique suffisamment diluée. Dans ces conditions l'équation (2.89) devient :

$$I(z) = I_0 - I_0 \kappa(\omega) z \quad (2.90)$$

et la variation relative de l'intensité en fonction de z :

$$\frac{\Delta I(z)}{I_0} = \frac{I(z) - I_0}{I_0} = -\kappa(\omega) z \quad (2.91)$$

Dans le cas où l'intensité du faisceau est non saturante ($I \ll I_{\text{saturation}}$), c'est-à-dire si le faisceau laisse la majorité de la population dans l'état fondamental, le coefficient d'absorption s'écrit :

$$\kappa(\omega) = N \delta(\omega) \quad (2.92)$$

avec N la densité atomique et $\delta(\omega)$ la section efficace de l'absorption, c'est-à-dire, pour un système constitué de deux niveaux $|e\rangle$ et $|g\rangle$, la réponse d'un atome dans l'état fondamental au champ excitant. Cette section efficace est proportionnelle à une Lorentzienne de largeur γ .

Dans ces conditions l'équation (2.91) devient :

$$\frac{\Delta I(z)}{I_0} = -N \delta(\omega) z \quad (2.93)$$

En réalité les atomes de la vapeur dans une cellule longue ne sont pas immobiles à cause de l'agitation thermique. La distribution de vitesses dans la cellule $W(v_z)$ est donnée par l'équation (3.4). Le profil de cette distribution est une gaussienne caractérisé par la vitesse la plus probable u (3.5). La variation relative de l'intensité, dans ces conditions, est alors la convolution d'une Lorentzienne de largeur γ avec la distribution de vitesses. Si la largeur naturelle γ est négligeable par rapport à la largeur de la distribution de vitesses, le spectre peut être considéré comme une Gaussienne de largeur ku à e^{-1} , et centrée autour de ω_0 .

4.3.2 Absorption saturée pour un système à deux niveaux

Pour le système constitué de deux niveaux décrit dans le paragraphe 4.3.1 couplés par une transition de fréquence ω_0 (Figure 4-6). L'énergie de cette transition est $E_e - E_g = h\omega_0$.

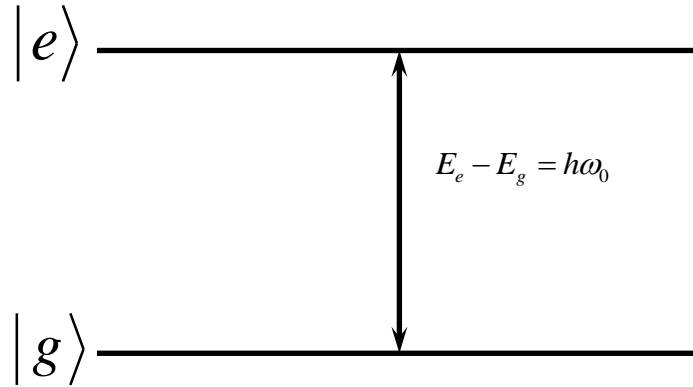


Figure 4-6 : Modélisation d'un atome par un système à deux niveaux, et énergie de la transition entre ces deux niveaux.

On excite cette transition par un faisceau, que nous appelons « pompe ». Ce faisceau est monochromatique de fréquence ω_p et de vecteur d'onde $\vec{k}_p = k\vec{e}_z$ avec \vec{e}_z le vecteur unitaire de l'axe z parallèle au faisceau. Cette excitation crée un trou dans la population de l'état fondamental des atomes résonants ayant une vitesse selon l'axe z :

$$v_{zp} = \frac{(\omega_p - \omega_0)}{k_p} \quad (2.94)$$

On envoie un faisceau « sonde » de fréquence $\omega_s = \omega_p$. Ce faisceau est contre-propageant par rapport au faisceau « pompe », ainsi son vecteur d'onde $\vec{k}_s = -k\vec{e}_z$. L'intensité de ce faisceau est non saturante ($I \ll I_{Saturation}$). Les atomes qui vont interagir avec ce faisceau ont une vitesse suivant l'axe z.

$$v_{zs} = \frac{(\omega_s - \omega_0)}{k_s} \quad (2.95)$$

Les atomes résonnants avec la sonde sont les mêmes que ceux résonnants avec la pompe alors dans les expressions (2.94) et (2.95) les vitesses sont les mêmes. Ce système admet finalement une solution unique telle que $v_{zs} = v_{zp} = 0$ pour $\omega_s = \omega_p = \omega_0$.

L'absorption de la sonde sera « saturée » par la pompe à la fréquence ω_0 , car un certain nombre d'atomes sont déjà excités par la pompe avant de voir la sonde, et n'absorbent pas les photons venant de la sonde. Une seule classe de vitesse ($v_z = 0$) est sélectionnée pour ce système, et sur le spectre de l'absorption de la sonde apparaît une résonance sub-Doppler centrée en ω_0 , de largeur équivalente à la largeur naturelle de la transition γ .

4.3.3 Absorption saturée pour un système à trois niveaux

Supposons la même expérience, avec les mêmes conditions, pour un système à trois niveaux (Figure 4-7).

Dans ces conditions nous distinguons deux cas différents :

a. Les deux faisceaux, pompe et sonde, sont résonnants avec la même transition (ω_1 ou ω_2). C'est le cas déjà traité pour un système à deux niveaux.

b. Chaque faisceau est résonnant avec une transition différente, pour les mêmes atomes. Pour que l'absorption de la sonde soit saturée par les trous de population créés par la pompe, on a deux situations :

i. Le faisceau pompe est résonnant avec la transition ω_1 , les populations des atomes

de vitesse $v_{zp} = \frac{(\omega_p - \omega_1)}{k_p}$ sont perturbées. Le faisceau sonde est résonnant

avec la transition ω_2 , les populations des atomes de vitesse $v_{zs} = \frac{(\omega_s - \omega_2)}{k_s}$

sont perturbées. Sachant que ce sont les mêmes atomes, donc $\nu_{zs} = \nu_{zp}$. Ce système admet une unique solution pour $\omega_s = \omega_p = \frac{\omega_1 + \omega_2}{2}$

- ii. Le deuxième cas est lorsque la pompe est résonnante avec la transition ω_2 , et la sonde avec la transition ω_1 . En effectuant le même raisonnement on obtient le même résultat.

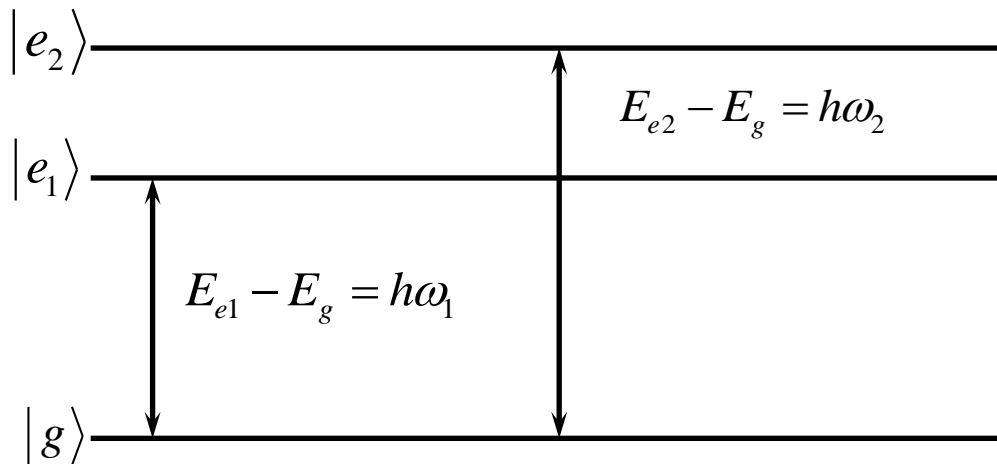


Figure 4-7 : Modélisation d'un atome par un système à trois niveaux. $|g\rangle$ Représente le niveau fondamental, $|e_1\rangle$ et $|e_2\rangle$ représentent les deux niveaux excités.

Cette résonance supplémentaire sur le spectre d'absorption saturée est appelée « raie de croisement » ou « cross-over », et ne correspond à aucune fréquence de transition. Elle est alors centrée entre deux transitions.

4.3.4 Absorption saturée en modulation de fréquence

Pour un système à deux niveaux, dans les conditions présentées dans le paragraphe 4.3.1, le spectre d'absorption linéaire se présente sous forme d'une gaussienne, centrée autour de la fréquence de la transition ω_0 de largeur Doppler. L'effet de la pompe se présente sous forme d'un pic étroit à la fréquence ω_0 . La détection par modulation de fréquence (chapitre 3 ; paragraphe 3.2.4.a) nous fournit la dérivée en fréquence du signal. Sur le spectre dérivé la structure étroite est mise en évidence par rapport au fond de largeur Doppler.

Toutes les expériences réalisées dans cette thèse sont accompagnées d'une expérience auxiliaire d'absorption saturée détectée en modulation de fréquence.

4.4 Montage expérimental

4.4.1 Lasers utilisés et modulation de fréquence

Comme nous l'avons indiqué (section 4.1), les longueurs d'onde des transitions atomiques qui nous intéressent sont $\lambda = 894nm$ (Raie D_1), $\lambda = 852nm$ (Raie D_2) et $\lambda = 455nm$ (deuxième niveau excité transition $6S_{\frac{1}{2}} \rightarrow 7P_{\frac{3}{2}}$). Les lasers à notre disposition, correspondant à ces trois longueurs d'onde, sont de types différents. Nous décrivons séparément chacun de ces lasers.

Pour obtenir des spectres, la fréquence optique des lasers est balayée autour de la résonance. Pour effectuer des détections FM, nous modulons la fréquence optique des lasers avec un générateur externe. Les faisceaux contenant les informations atomiques sont envoyés vers des photodiodes reliées à des acquisitions synchrones. Ces dernières démodulent le signal, et renvoient à leurs sorties les dérivées des signaux. A la fin ces signaux dérivés sont numérisés, pour être stockés et affichés sur l'ordinateur.

a) Laser $\lambda = 894 nm$

Pour effectuer des expériences de spectroscopie sur la raie D_1 du premier niveau excité du césium ($\lambda = 894nm$), nous avons à notre disposition un laser DBR (Distributed Bragg Reflector) [SUE]. Une diode laser avec une architecture DBR est constituée d'un milieu amplificateur dans une structure de réseau de Bragg ayant le rôle d'un guide d'onde. La structuration du réseau impose une émission monomode. Les caractéristiques du réseau sont adaptées à la longueur d'onde d'émission. Il est possible de varier la longueur d'onde en modifiant la valeur du courant d'injection appliqué à la diode. Ceci nous permet d'effectuer des expériences de spectroscopie, ou encore de moduler la fréquence optique d'émission. Il est également possible d'accorder le laser en variant la température. Il est donc nécessaire

d'asservir le système en température par une électronique externe permettant de limiter les variations au mK près.

Nous effectuons le balayage de fréquence d'émission de notre diode laser DBR sur le courant d'injection. La fréquence d'émission varie de 1,62 MHz/mA. Pour des raisons de stabilité nous nous limitons à des balayages d'environ 2 GHz. Cette plage de fréquence est suffisante pour observer les spectres associés à deux transitions à partir du même niveau fondamental séparé de 1,167 GHz. La fréquence d'émission est modulée par un générateur de basse fréquence. La modulation que nous avons choisie est sinusoïdale et de fréquence 5 kHz. L'amplitude de la modulation choisie est en général $M=10$ MHz pic à pic, ce qui est inférieur aux largeurs de spectres recherchés. D'après l'équation (3.41) le signal démodulé est proportionnel à M , donc si on augmente l'amplitude de modulation, le rapport signal sur bruit est amélioré. Ceci est possible lorsqu'on cherche des signaux larges comme dans le cas des expériences de réflexion sélective en incidence oblique. La puissance de sortie est environ 40 mW. La largeur spectrale est 3MHz, ce qui est inférieur à la largeur naturelle $\gamma = 5\text{MHz}$ des transitions atomiques du césium.

b) Laser $\lambda = 852$ nm

Pour effectuer des spectres sur la raie D_2 du césium (852 nm), nous avons à notre disposition un laser à cavité étendue. Contrairement aux lasers DBR, la cavité de cette configuration n'est pas intégrée au milieu amplificateur mais externe. La cavité d'un miroir et un réseau permettant de sélectionner une longueur d'onde, donc une émission monomode. Le réseau est disposé sur un système piézoélectrique.

Le balayage et la modulation de fréquence peuvent être appliqués sur le courant d'injection, mais aussi sur la tension appliquée au piézoélectrique. La variation de la tension appliquée au piézoélectrique permet de changer la position du réseau. Il en résulte une variation de la longueur d'onde d'émission.

Nous appliquons la plupart du temps le balayage et la modulation de fréquence sur la tension appliqué au piézoélectrique. La fréquence d'émission varie de 459 MHz/V. Comme précédemment, pour des raisons de stabilité nous nous limitons à des balayages d'environ 2

GHz. La modulation que nous avons choisie est sinusoïdale et de fréquence 1 kHz, car le piézoélectrique ne supporte pas des variations plus rapides. L'amplitude de la modulation est choisie comme dans le cas décrit précédemment. La puissance d'émission est environ 20 mW, et la largeur spectrale est inférieure à 1 MHz.

c) Laser $\lambda = 455 \text{ nm}$

Dans cette partie nous expliquons le fonctionnement et les caractéristiques du laser bleu utilisé pour sonder la transition $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$, de longueur d'onde $\lambda = 455 \text{ nm}$.

Ce laser est une diode laser à cavité externe de la marque Toptica du type Photonics DL 100 Pro Design. Le réseau est collé à un piézoélectrique. La variation de la position du réseau permet de varier la longueur d'onde d'émission. La largeur spectrale d'émission de ce laser est environ 1 MHz. Son seuil d'émission est 30 mA pour une température de 25°C

Le courant et la température appliqués à la diode sont commandés et stabilisés par une alimentation externe de la marque Toptica du type Photonics DC 110. Cette alimentation permet d'effectuer une modulation ou un balayage de la fréquence du laser en appliquant les signaux directement sur le courant. Un autre moyen pour effectuer le balayage ou la modulation de fréquence, est de les appliquer sur la tension du piézoélectrique. La variation de cette tension dilate ou contracte le piézoélectrique, ce qui va modifier la position du réseau, et donc la longueur d'onde d'émission. Nous effectuons la modulation de fréquence sur le courant et le balayage de la fréquence sur le piézoélectrique.

L'émission de notre laser n'est pas toujours monomode. Nous utilisons donc une cavité Fabry-Perot pour contrôler le mode d'émission du laser, pendant le balayage et l'enregistrement des spectres. En modifiant le courant ou la température appliquée à la diode, nous avons la possibilité d'effectuer des balayages de l'ordre de 2 GHz sans avoir de sauts de modes.

d) Mesure de l'excursion de la modulation de fréquence M

En spectroscopie linéaire, l'amplitude d'un signal modulé en fréquence est proportionnelle à l'excursion de la modulation de fréquence, appelée aussi l'amplitude de la modulation de fréquence M (3.40). Pour comparer l'amplitude des spectres nous devons donc mesurer l'excursion de la modulation appliquée à chaque laser. L'excursion de la modulation de fréquence appliquée à chaque laser doit être inférieure à la largeur des spectres attendue. Autrement, nous avons le risque d'élargir et modifier la forme des raies. La mesure de M s'effectue en deux étapes principales. Pour effectuer ces mesures nous avons besoin d'un discriminateur de fréquence. En général nous utilisons un flanc d'une absorption linéaire comme discriminateur de fréquence. Dans un premier temps nous calibrons l'axe des fréquences. Ensuite nous nous plaçons au centre du flanc de l'absorption linéaire et nous appliquons le signal de modulation de fréquence, pour mesurer son excursion.

Pour la première étape, la fréquence du laser est balayée par une rampe de tension (lente pour des raisons de stabilité). Les différences en fréquence entre les transitions $\Delta\nu$ étant bien connues, correspondent expérimentalement à un décalage temporel proportionnel au temps de balayage Δt . Nous avons donc la possibilité d'obtenir un calibrage qu'on note C pour transformer l'axe des temps en un axe de fréquence, tel que :

$$C = \frac{\Delta\nu}{\Delta t} \quad (2.96)$$

Sur une zone centrale, en un point qu'on note ω_0 , un flanc descendant ou montant d'un signal d'absorption peut être considéré comme linéaire (figure 4-8(a)) ayant une pente qu'on peut mesurer P_t en Volt/s. Grâce au facteur de calibration C on transforme cette pente en P_f en Volt/MHz :

$$P_f = \frac{P_t}{C} \quad (2.97)$$

Nous arrêtons ensuite le balayage de la fréquence et nous positionnons la fréquence des lasers au centre de la pente, et nous appliquons le signal sinusoïdal de modulation de fréquence. Si l'excursion est faible, on visualise sur l'oscilloscope des oscillations (figure 4-8

(b)) dont l'amplitude pic à pic correspond à la valeur de l'excursion, en Volt, qu'on note S .
 Connaissant la valeur de la pente en Volt/ MHz, on transforme cette excursion en MHz :

$$M = \frac{S}{P_f} \quad (2.98)$$

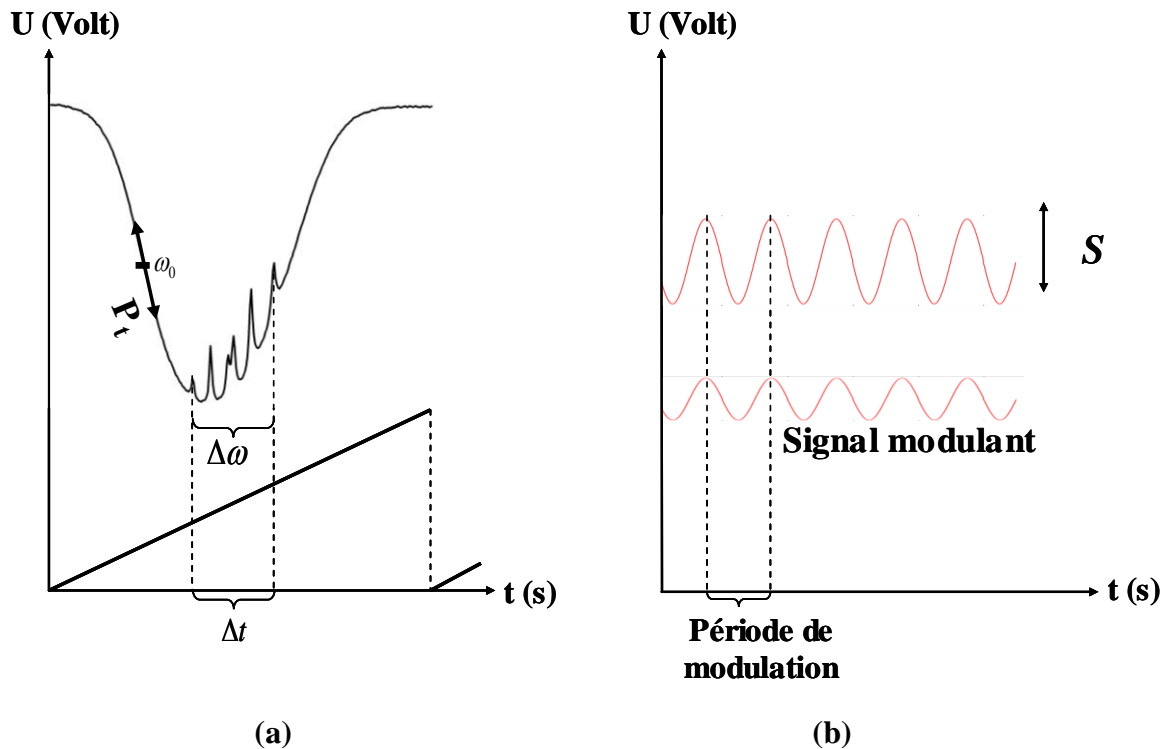


Figure 4-8 : Mesure de l'excursion de la modulation à l'aide d'un montage d'absorption saturée. L'étape (a) consiste à balayer le laser autour de la résonance (balayage long permettant d'observer toute l'absorption linéaire), pour calibrer l'axe du temps en un axe de fréquence, et mesurer la pente d'un flanc de l'absorption linéaire. L'étape (b) consiste à arrêter le balayage et à se placer à une fréquence fixe au centre du flanc, et à appliquer le signal modulant. L'amplitude du signal détecté pendant cette étape nous permet de déduire l'excursion de la modulation de fréquence M .

4.4.2 Montage optique

Le montage optique est représenté à la figure 4-9. A la sortie du laser, le faisceau traverse un isolateur optique, pour éviter toute instabilité en fréquence due au retour optique.

Le faisceau est ensuite divisé en deux bras par une lame séparatrice. Le premier bras effectue l'expérience d'absorption saturée. Le deuxième bras effectue l'expérience de réflexion sélective.

a) Montage optique de l'expérience d'absorption saturée

Le montage de l'expérience d'absorption saturée est un montage en anneau. Les faisceaux pompe et sonde traversent la cellule contenant le césium en configuration contre-propageant (figure 4-9). Pour éviter de saturer les transitions optiques, chaque faisceau traverse un ensemble lame demi-onde et polariseur, qui permet de contrôler l'intensité optique des faisceaux et se comporte donc comme un atténuateur optique réglable. Dans le cas où les deux faisceaux sonde et pompe ne sont pas contre-propageants, et présentent un angle $\varphi \neq 0$, le spectre d'absorption saturée serait élargi par effet Doppler résiduel et sa largeur devient $ku \sin \varphi$. Le faisceau sonde est détecté via la chaîne de détection que nous décrivons par la suite.

b) Montage optique de l'expérience de réflexion sélective

Le faisceau dédié à l'expérience de réflexion sélective est atténué de la même façon, avec l'ensemble lame demi-onde et polariseur. Le polariseur, ici, joue un autre rôle important qui est de contrôler la polarisation du faisceau incident. Il est donc toujours fixé pour définir une polarisation incidente TM. Pour tourner la polarisation de TM à TE, nous insérons après le polariseur une lame demi-onde réglée pour définir une polarisation TE. La cellule de réflexion sélective est montée dans un four permettant de contrôler la densité d'atomes, ainsi que la température de la fenêtre pour éviter que celle-ci ne devienne pas le point le plus froid de la surface, et que le césium ne se dépose dessus. Le four est monté sur un support rotatif permettant de contrôler l'angle d'incidence au dixième de degré près.

Une lame séparatrice est placée avant la fenêtre de la cellule sur le trajet du faisceau. Avec l'acquisition synchrone nous effectuons la soustraction de l'intensité du faisceau réfléchi par la lame et celui réfléchi par la cellule. Nous développerons par la suite (paragraphe 4-4-4) cette technique que nous avons mise en place dans le but de s'affranchir d'un bruit lié à la modulation de fréquence.

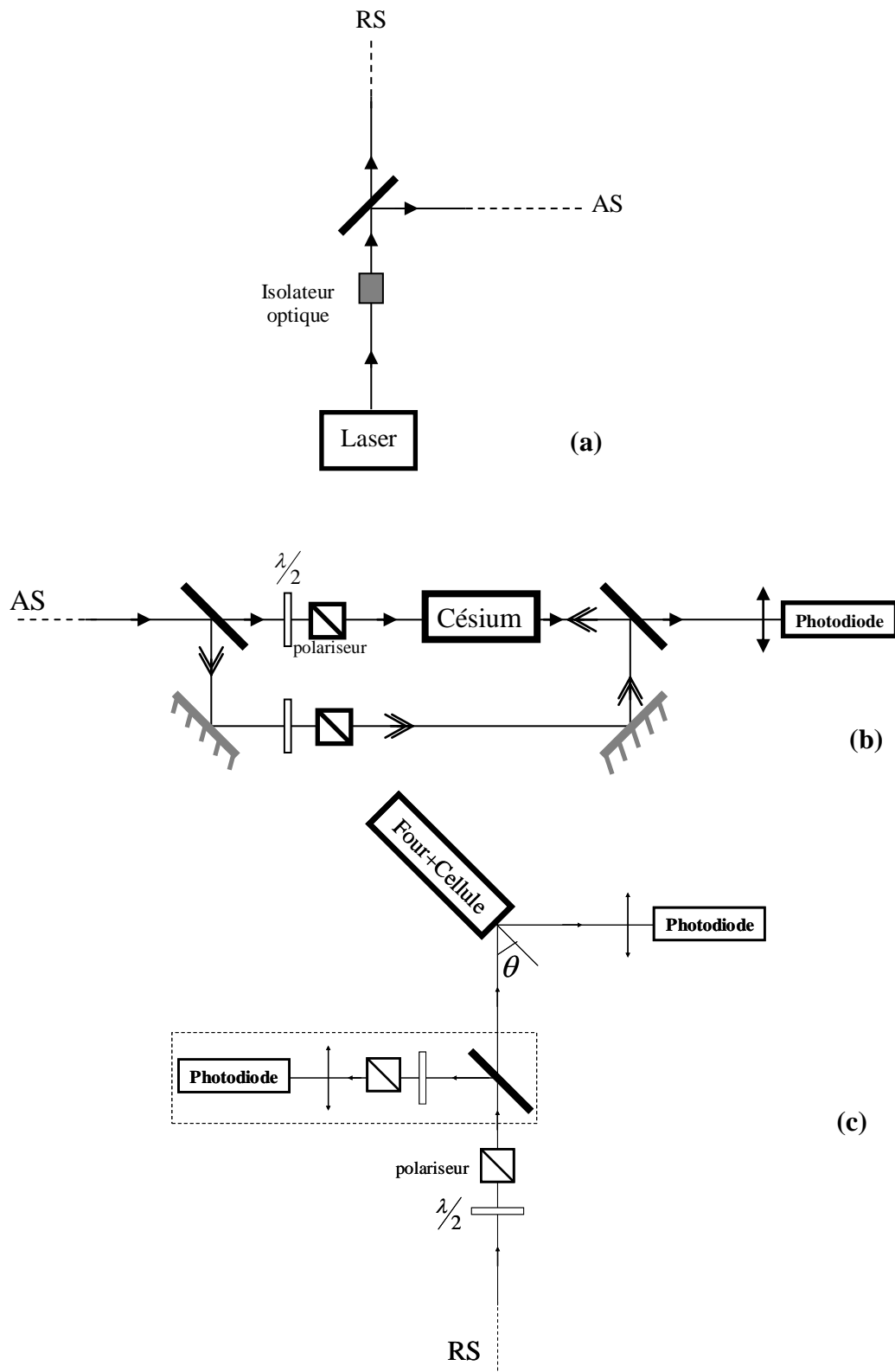


Figure 4-9 : (a) A la sortie du laser le faisceau est divisé en 2 parties : (b) Montage expérimental de la référence de fréquence AS. (c) Montage expérimental de la réflexion sélective RS. La partie du montage encadrée en pointillé, est un montage supplémentaire permettant de supprimer la modulation résiduelle d'amplitude et le bruit qui en résulte.

4.4.3 Photodiodes et chaîne de détection

Les faisceaux de réflexion sélective et d'absorption saturée sont détectés par des photodiodes à silicium New Focus 2001 et 2051. Les photodiodes sont reliées par des câbles coaxiaux à des acquisitions synchrones (Stanford Research model SR830), à la fréquence de modulation. Le rôle de ces acquisitions synchrones est de démoduler les signaux détectés. Les sorties des acquisitions synchrones sont reliées à un DAQ (data acquisition system) qui a le rôle de numériser les signaux. Le logiciel de détection permet de régler le temps d'enregistrement des points. Nous enregistrons en général 1 point toutes les 100 ms.

4.4.4 Soustraction du bruit de fond

La modulation de fréquence introduit une modulation résiduelle d'amplitude du laser. Sur le spectre expérimental, la modulation résiduelle d'amplitude se traduit par une pente qui s'ajoute au signal avant démodulation. Après la démodulation du signal, nous obtenons sa dérivée, et cette pente devient alors un offset qui s'ajoute au signal. Si l'amplitude du laser n'est pas stable ou présente des variations notamment au cours du balayage de fréquence, elles se traduisent par un bruit sur l'offset et donc un bruit de fond sur le signal. Dans le cas du laser bleu, l'amplitude de ce bruit de fond est, dans certains cas, plus élevée que l'amplitude du signal. Ceci nous empêchait d'observer les spectres que nous recherchons.

Pour s'affranchir de ce bruit de fond nous avons développé une technique qui consiste à effectuer une soustraction entre le signal atomique et un faisceau, insensible aux transitions atomiques. Avant la fenêtre de la cellule nous introduisons sur le chemin du faisceau laser une lame séparatrice. Le faisceau de référence réfléchi par cette lame contient à son tour ce bruit de fond, donc en effectuant la soustraction avec le signal atomique, on s'affranchit de ce bruit. Le faisceau de référence est détecté par le même type de détecteur que le signal atomique, et avec les mêmes gains. La puissance du faisceau référence doit être égale à celle du faisceau atomique, c'est pourquoi nous ajoutons un couple lame demi onde – polariseur sur son trajet.

4.5 Expériences de réflexion sélective sur la transition $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$

Pendant ses travaux de thèse, vers 1990, M. Chevrollier a exploré théoriquement et expérimentalement la transition $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$ [CHE1]. Ces expériences étaient effectuées avec un laser bleu à colorant. Technologiquement ces lasers présentaient des instabilités importantes.

Dans le chapitre 5 nous effectuons des expériences de spectroscopie sur une vapeur atomique confinée dans des opales avec le laser bleu. Nous effectuons alors des expériences de réflexion sélective sur ces cellules pour plusieurs raisons. En premier temps ces expériences nous permettent de contrôler la qualité des cellules sachant qu'elles contiennent des opales. La présence d'une opale dans la cellule peut introduire des impuretés. Les impuretés introduisent, à leur tour, des élargissements spectraux par collisions avec les atomes de la vapeur. Un autre intérêt de ces expériences est de comparer les spectres de réflexion sélective sur une surface plane aux spectres de réflexion sur une opale. La comparaison des tailles relatives des signaux permet de comparer la densité de la vapeur dans une opale à la densité de la vapeur dans le reste de la cellule.

Nous effectuons principalement ces expériences en incidence normale, où nous observons les effets du fort régime d'interaction de van der Waals entre un atome et une surface. Nous effectuons aussi des expériences de réflexion sélective pour de faibles angles d'incidence où les spectres sont élargis par effet Doppler résiduel.

4.5.1 Effets du régime fort d'interaction de van der Waals sur les spectres de réflexion sélective en incidence normale

Dans le calcul théorique, effectué dans le chapitre 3, nous ne prenons pas en considération les effets d'interaction entre les atomes et la surface. Près de la surface, l'atome est soumis à des interactions de van der Waals. Dans ces conditions la largeur naturelle de la transition γ et la fréquence de résonance ω_0 , deviennent des fonctions de la distance z entre

la surface et l'atome [DUC], ce qui modifie la forme de raie. La nouvelle fréquence de résonance s'écrit :

$$\omega_0(z) = \omega_0 - \frac{C_3}{z^3} \quad (2.99)$$

où C_3 est le coefficient d'interaction de van der Waals.

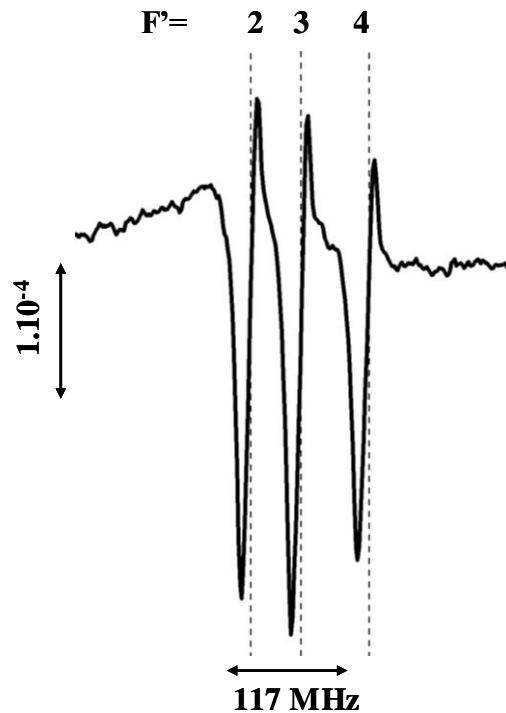


Figure 4-10 : Spectres de réflexion sélective FM sur la transition $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$ en incidence normale sur une surface plane à partir de $F=3$. L'échelle verticale représente

l'amplitude du signal FM, normalisé par la réflectivité, c'est-à-dire $\frac{M}{R} \frac{d\Delta R}{d\omega}$, avec $M = 8\text{MHz}$

. Température du queusot $T=140^\circ\text{C}$

Pour le deuxième niveau excité du césium, le potentiel des interactions de van der Waals est très élevé par rapport à celui du premier niveau excité. D'après l'équation (2.99), ce potentiel est proportionnel à $\frac{1}{z^3}$; comme en réflexion sélective nous sondons les atomes à une épaisseur d'environ $\frac{\lambda}{2\pi}$, nous sondons des atomes plus proches de la surface dans le

cas du deuxième niveau excité que dans le cas du premier niveau excité. Ceci est donc une deuxième raison pour laquelle l'effet du potentiel d'interaction de van der Waals est plus élevé en bleu qu'en infrarouge. Pour la transition $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$, nous sommes donc dans un régime fort d'interaction de van der Waals. Ces interactions introduisent des déplacements et des distorsions des formes de raies (qui peuvent ressembler à une apparente inversion, par rapport au signal de réflexion sélective théorique sans interaction de van der Waals que nous avons montré dans le chapitre 3 figure 3-3) accompagnées d'un déplacement de la fréquence de résonance [CHE2] (figure 4-10). Ces effets d'interaction ne sont pas observables dans les mêmes conditions expérimentales en infrarouge (raie D₁ et D₂).

4.5.2 Atténuation du régime van der Waals fort avec l'effet Doppler résiduel pour des faibles angles d'incidence

Pour un faible angle d'incidence θ , nous observons un élargissement spectral qui correspond à l'élargissement par effet Doppler résiduel $ku\theta$ (figure 4-11) (cf. chapitre 3 paragraphe 3.2.1.a)). Or pour le deuxième niveau excité la largeur Doppler ku est plus grande que pour le premier niveau excité (tableau 4-2), l'élargissement résiduel est alors plus important pour la transition bleue que dans le cas des transitions infrarouges. Ces spectres n'avaient pas été observés précédemment pour des raisons technologiques et de stabilité des lasers, et à cause de la faible probabilité de cette transition qui nécessite donc un rapport signal sur bruit assez maîtrisé.

En augmentant l'angle d'incidence, la largeur des spectres augmente, et leurs amplitudes s'atténuent. Ainsi les transitions sont moins résolues. Cette mauvaise résolution ne permet plus de bien distinguer les déplacements des raies dus aux interactions de van der Waals, qui sont sensibles à l'angle d'incidence. Pour ces raisons, les mesures du potentiel de van der Waals entre un atome et une surface en réflexion sélective sont en général effectuées sous incidence normale [FAI].

L'atténuation des amplitudes des signaux ne nous permet pas d'effectuer des expériences de réflexion sélective sous des incidences fortement obliques, pour observer les prédictions théoriques présentées dans le chapitre 3. Nous effectuons donc ces expériences sur la raie D₁ du césium ($\lambda = 894nm$).

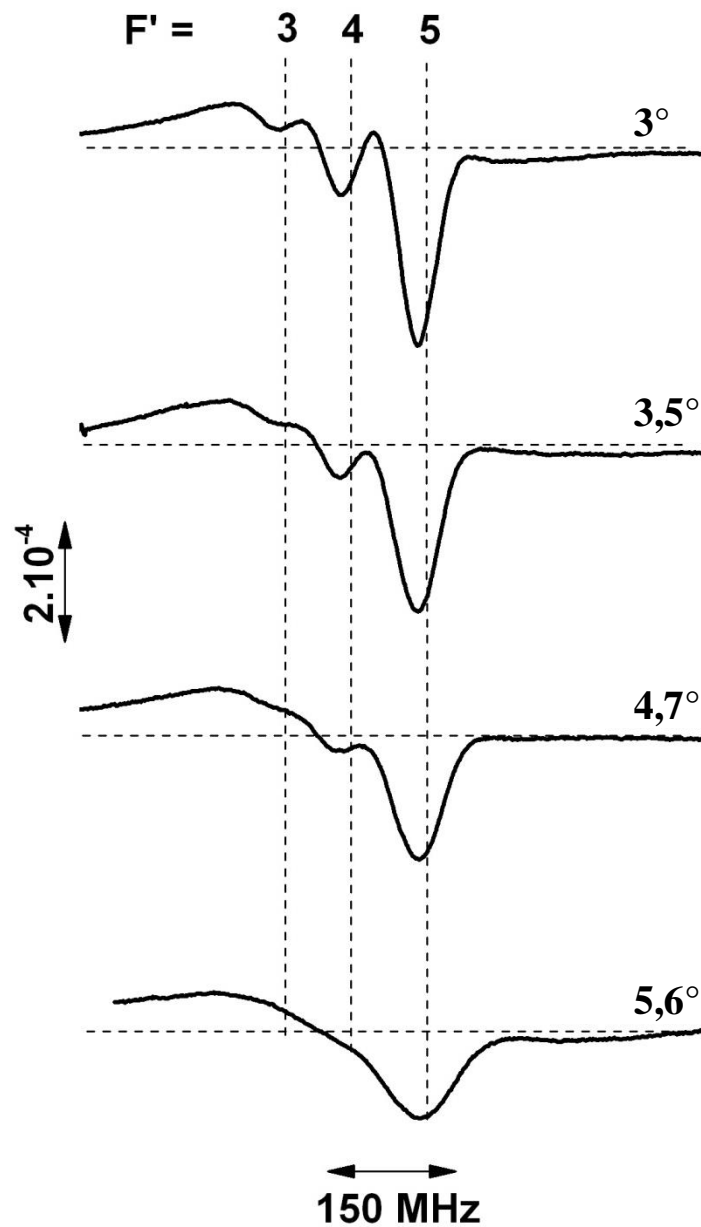


Figure 4-11 : Spectres de réflexion sélective sur la transition $6S_{\frac{1}{2}} \rightarrow 7P_{\frac{3}{2}}$ à partir de $F=4$, pour des angles faibles (3° , $3,5^\circ$, $4,7^\circ$ et $5,6^\circ$). L'échelle verticale représente l'amplitude du signal FM, normalisée par la réflectivité, c'est-à-dire $\frac{M}{R} \frac{d\Delta R}{d\omega}$, avec $M = 8\text{MHz}$, et une température du queusot $T=140^\circ\text{C}$. Les pointillés verticaux sont des marqueurs de fréquence (expérience auxiliaire d'absorption saturée).

4.6 Expériences de réflexion sélective sous une incidence oblique importante et effets type Brewster

Dans le chapitre 3 nous avons étudié la réflexion sélective en incidence oblique. Le calcul effectué montre qu'en polarisation TE et en polarisation TM la forme des raies est comparable. Or en polarisation TM nous avons prévu une annulation du signal de réflexion sélective pour un angle de réfraction de 45° dans la vapeur, et pour l'angle de Brewster à l'interface diélectrique-vapeur atomique. Entre ces deux zéros le signe du signal est inversé. Pour un champ incident avec une polarisation TE nous ne prévoyons aucune annulation du signal, et l'amplitude de ce dernier ne présente pas de variations remarquables pour tous les angles d'incidence.

Nous avons effectué des expériences de réflexion sélective sur la transition $6S_{1/2} \rightarrow 6P_{1/2}$ à la recherche de ces prédictions théoriques qui n'ont, jusqu'à présent, pas été explorées.

Nous remarquons que pour un même angle d'incidence les formes de raies pour les deux polarisations TE et TM sont sensiblement les mêmes pour ces deux polarisations (figure 4-12), ce qui donne un sens à une comparaison des amplitudes. Près de l'angle de Brewster, le signal en TM devient légèrement moins dispersif que celui en TE (figure 4-12 (b)). En réalité pour calculer l'intensité du champ électrique réfléchi dans le chapitre 3 paragraphe 3.2.3, nous avons considéré que dans l'expression du champ électrique réfléchi E_{0r} , le terme résonnant ΔE_{0r} est négligeable par rapport au terme non résonnant E_{0r}^{NR} . Cette approximation n'est plus correcte en polarisation TM aux alentours de l'angle de Brewster où le terme non résonnant devient lui-même faible, voire nul. Cette différence explique la différence de forme de raies entre les spectres effectués en polarisation TM et ceux effectués en polarisation TE.

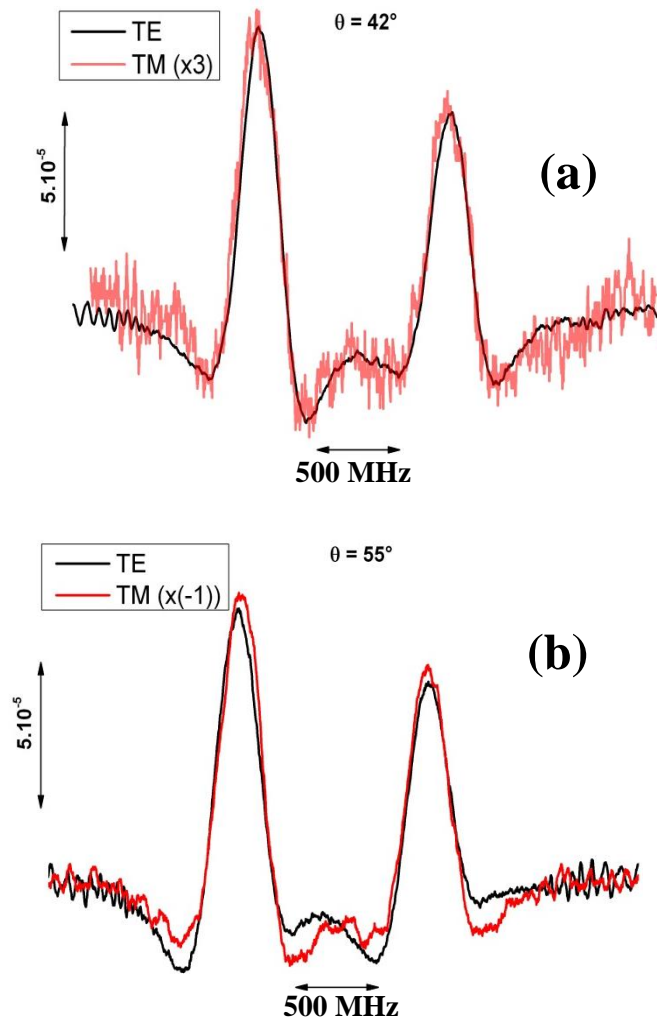


Figure 4-12 : Comparaisons entre les spectres FM de réflexion sélective normalisés par la réflectivité, pour une polarisation TM et une polarisation TE. L'angle d'incidence à l'interface air-surface diélectrique est de 42° (a) et 55° (b). Les transitions sont réalisées sur la raie D_1 à partir du niveau fondamental $F=4$. A remarquer que l'échelle pour TM à 55° est $(x-1)$. L'excursion de la modulation de fréquence vaut $M=16$ MHz. La température du queusot est 100°C

A la figure 4-13 nous présentons les spectres de réflexion sélective entre 37° et 59° en polarisation TM (figure 4-13(a)) et TE (figure 4-13(b)). Pour des angles d'incidence inférieurs à 45° le signe des spectres de réflexion sélective en modulation de fréquence, pour une polarisation TM et une polarisation TE, est le même. En revanche l'amplitude des signaux pour une polarisation TM diminue avec l'angle d'incidence jusqu'à une annulation à 45° . Notons qu'un angle d'incidence 45° sur l'interface air-surface diélectrique correspond à un angle de réfraction de 45° dans la vapeur. Ceci est conforme alors avec nos prédictions théoriques. A partir de 45° le signe du signal, pour une polarisation TM, est inversé et

augmente en valeur absolue, à cause de l'augmentation du signal atomique prédit théoriquement. A l'angle de Brewster, environ 56° à l'interface air-surface diélectrique, nous observons la deuxième inversion du signe du signal, pour une polarisation TM, mais la variation de l'amplitude du signal est différente de celle observé autour de 45° . Cette différence s'explique par le fait qu'à l'angle de Brewster la réflectivité R s'annule plus rapidement que le signal atomique, l'amplitude du signal $\Delta R/R$ devient alors infiniment grande (figure 4-14). Dans le cas de la polarisation TE, nous n'observons aucune annulation ni changement du signe du signal de réflexion sélective. De même, l'amplitude ne présente pas de variations importantes, mais une faible diminution avec l'angle d'incidence. Cette diminution est due au fait que l'amplitude du signal normalisée par la réflectivité diminue légèrement, parce que cette dernière augmente en fonction de l'angle.

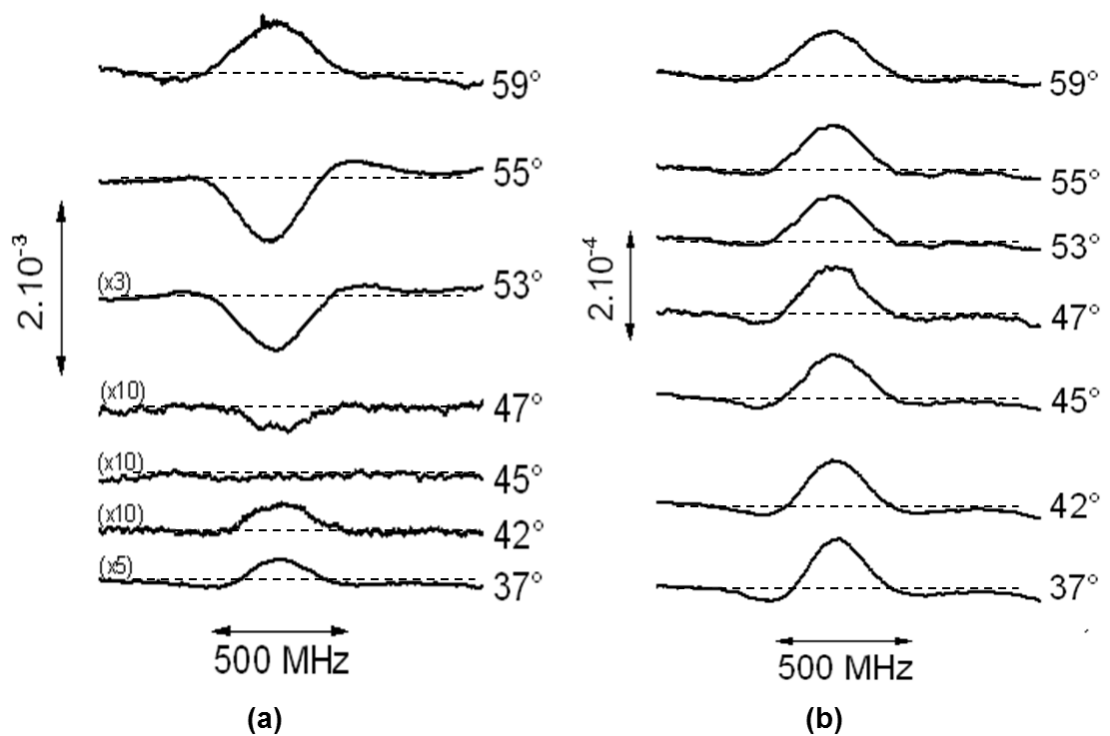


Figure 4-13 : Spectres de réflexion sélective FM (raie D_1 $F=4 \rightarrow F=3$) en polarisation TM (a) et TE (b) pour différents angles d'incidence. L'excursion de la modulation de fréquence vaut $M=16$ MHz. La température du queusot est 100°C Les spectres sont tous normalisés par la réflectivité hors résonance.

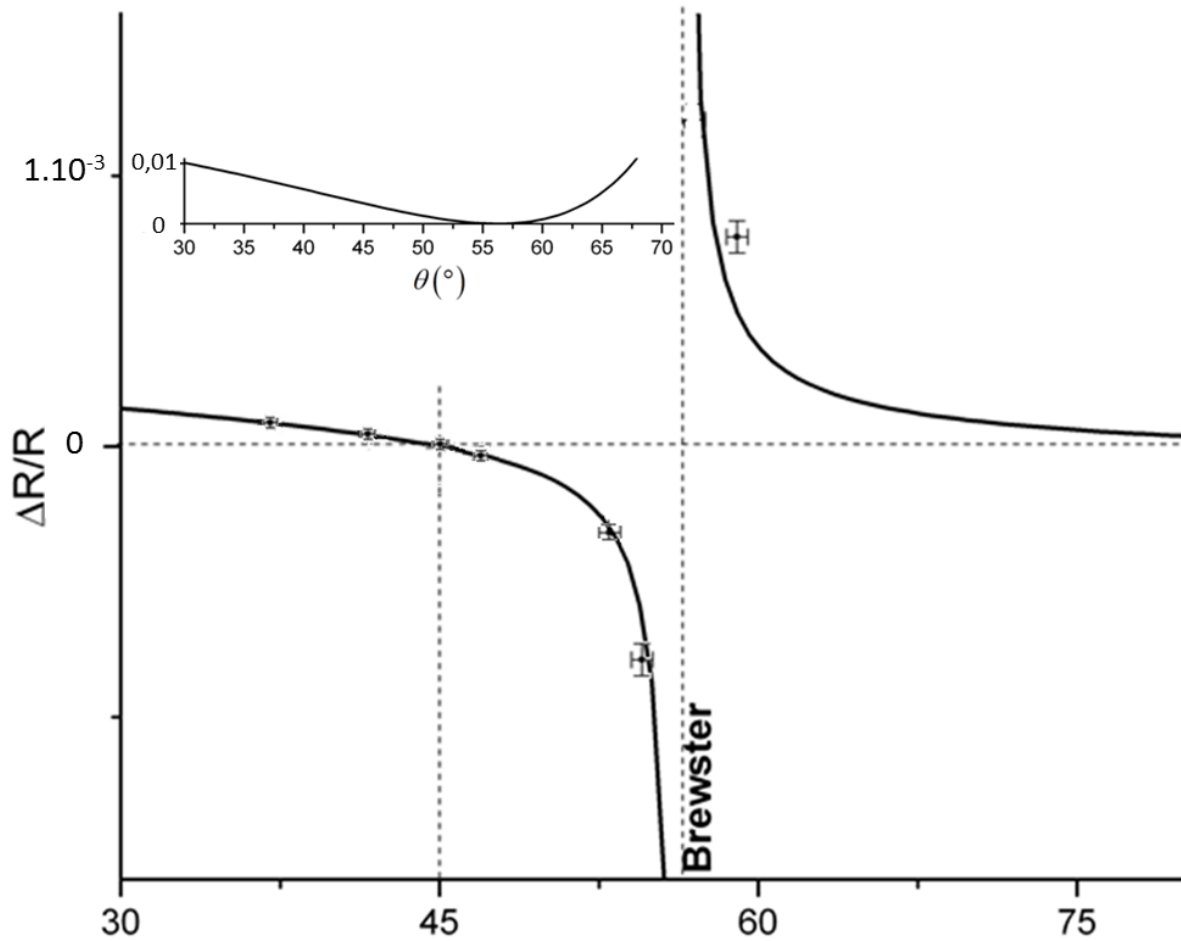


Figure 4-14 : Comparaison entre la prédiction théorique et les valeurs expérimentales, de la variation de $\Delta R/R$ en fonction de l'angle d'incidence, pour une polarisation TM. La courbe théorique est réalisée pour un indice de la surface $n=1,5$. Expérimentalement l'indice de la surface en verre n'a pas été mesuré, ce qui peut introduire une marge d'erreur sur la valeur de l'angle de Brewster, donc un décalage (faible) de la courbe théorique.

4.7 Conclusion

Dans ce chapitre nous avons effectué des expériences de réflexion sélective sur des atomes de césium. Ces expériences auxiliaires avaient d'abord pour but de vérifier la qualité des cellules, contenant des opales, qui peuvent être une source d'impuretés.

Dans un premier temps nous avons effectué des expériences de réflexion sélective sur la transition $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$. L'instabilité du laser bleue, et la faible force d'oscillateur de cette transition, rendent ces expériences plus compliquées que les expériences similaires sur les

raies infrarouges du césium. Nous avons observé, en incidence normale, les effets du régime fort d'interaction de van der Waals, qui se traduit par des déplacements et des distorsions des formes de raies qui ressemblent à des inversions du signe du signal de réflexion sélective. En augmentant l'angle d'incidence nous observons des élargissements spectraux par effet Doppler résiduel, et une atténuation des signaux. Dans ces conditions, les effets d'interaction de van der Waals deviennent moins remarquables. L'atténuation des amplitudes des signaux avec l'angle nous empêche de voir les prédictions théoriques que nous avons présentées dans le chapitre 3, pour une réflexion sélective en incidence oblique. Nous avons effectué les expériences de réflexion sélective en incidence oblique sur la raie D_1 du césium.

En incidence oblique sur la raie D_1 du césium, pour une polarisation TM, le signal de réflexion sélective s'annule à 45° , et son signe s'inverse entre cet angle et l'angle de Brewster. En revanche à l'angle de Brewster le signal spectroscopique ne s'annule pas mais devient infiniment grand en valeur relative. Cette variation s'explique par le fait qu'à l'angle de Brewster la réflectivité R tend vers 0 plus rapidement que ΔR , ainsi l'amplitude des signaux $\frac{\Delta R}{R}$ tend vers l'infini. Nous comparons la forme des raies pour une polarisation TM et une polarisation TE. Les spectres ne présentent pas de différence de forme de raie (sauf marginalement autour de l'angle de Brewster) mais des différences d'amplitudes.

Bibliographie :

- [BAL] Ballin, P. (2012). *Confinement tridimensionnel d'une vapeur de césium dans une opale de nanobilles* (Doctoral dissertation, Université Paris-Nord-Paris XIII).
- [CHE1] Chevrollier, M. *Spectroscopie de réflexion sélective à une interface diélectrique/vapeur de Cs; observation de l'attraction van der Waals de surface* (Doctoral dissertation).
- [CHE2] Chevrollier, M., Bloch, D., Rahmat, G., & Ducloy, M. (1991). Van der Waals-induced spectral distortions in selective-reflection spectroscopy of Cs vapor: the strong atom–surface interaction regime. *Optics letters*, 16(23), 1879-1881.
- [DUC] Ducloy, M., & Fichet, M. (1991). General theory of frequency modulated selective reflection. Influence of atom surface interactions. *Journal de Physique II*, 1(12), 1429-1446.
- [FAI] Failache, H. (1999). *Etude spectroscopique des couplages résonnants dans l'interaction de van der Waals entre un atome et une surface diélectrique* (Doctoral dissertation).
- [STE] Steck, D. A. (1998). Cesium D Line Data.
- [SUE] Suematsu, Y., & Adams, A. R. (1994). *Handbook of semiconductor lasers and photonic integrated circuits*. Chapman and Hall.

Chapitre 5

Spectroscopie par réflexion d'atomes confinés dans une opale

Pendant ces travaux de thèse P. Ballin [BAL12], a montré un rétrécissement spectral lorsque les atomes sont confinés dans une opale, pour une gamme d'angles d'incidence obliques. Ce rétrécissement ressemble au rétrécissement Dicke [DIC] dans le domaine des micro-ondes, où on réduit le libre parcours moyen des atomes par des collisions avec un gaz tampon. La réduction du libre parcours moyen des atomes réduit ou élimine l'effet Doppler. Or dans notre cas le libre parcours moyen est lié directement au diamètre des billes. Ainsi, ce confinement dépend donc du rapport entre la longueur d'onde utilisée et le diamètre des billes (λ/D) .

Dans ce chapitre nous présentons d'abord les principaux résultats obtenus par P. Ballin, sur des opales de 20 et 10 couches de billes de diamètre 1080 nm, sur les raies D_1 et D_2 du césium. Nous avons effectué une comparaison de la forme de raie expérimentale, pour

les raies D_1 et D_2 . Pour une certaine gamme d'angles nous observons une différence de la forme de raie assez importante. Une telle différence, pour des longueurs d'onde assez voisines (seulement 5% de différence), montre qu'il est nécessaire d'explorer expérimentalement l'effet du rapport λ/D sur le confinement, en variant le diamètre des billes et la longueur d'onde. Le choix du diamètre des billes est limité par les opales qui nous ont été fournies par nos collaborateurs de l'Université de Bordeaux. Le choix de la longueur d'onde est limité par les longueurs d'onde des transitions du césium. Nous effectuons des expériences avec les trois lasers que nous avons décrits dans le chapitre 4 (paragraphe 4-4), et avec les cellules utilisées par P. Ballin (les 10 et 20 couches de billes de diamètre 1080 nm), et avec une cellule de 10 couches de billes de diamètre 400 nm.

En variant le rapport λ/D , nous continuons à observer des signatures sub-Doppler. Pour connaître l'effet du nombre de couches, et à quel niveau le signal se construit nous avons fabriqué des cellules multizones avec des opales de différentes épaisseurs, c'est-à-dire que le nombre de couches de billes varie en fonction de la position sur la fenêtre. Ceci nous permet de comparer les spectres expérimentaux en fonction du nombre de couches de billes, sous les mêmes conditions expérimentales. Ces cellules n'ont malheureusement été fabriquées que tardivement, pour des raisons techniques, notamment liées au déménagement du Laboratoire Kastler Brussel, puis à un défaut du four utilisé pour fabriquer ces cellules.

Les expériences présentées dans ce chapitre sont effectuées avec le montage expérimental, les lasers et la chaîne de détection, présentés dans le chapitre 4. Nous observons tous les spectres en modulation de fréquence (dérivée en fréquence des spectres directs).

5.1 Etat de l'art du confinement d'une vapeur atomique dans une opale

Pendant ces travaux de thèse P. Ballin [BAL12] a effectué la spectroscopie d'une vapeur de césium confinée dans une opale de 10 couches de billes de diamètres 1080 nm sur les raies D_1 et D_2 du césium. Ces expériences ont montré qu'en incidence normale le spectre est étroit et s'élargit en fonction de l'angle d'incidence. Vers 30° une structure sub-Doppler

(de largeur 30 MHz) commence à apparaître, à la fréquence de résonance (ω_0), sur le fond large (de largeur Doppler).

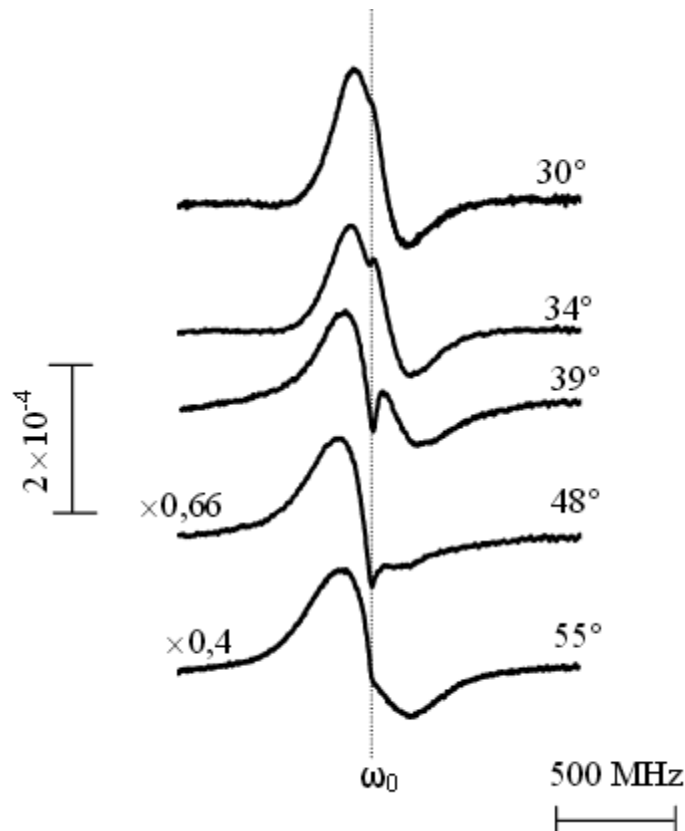


Figure 5-1 : Spectres en FM de réflexion sur une opale de dix couches de billes de diamètre 1080 nm, sur la raie D_1 du césium. Ces spectres montrent l'évolution de la structure sub-Doppler en fonction de l'angle d'incidence, pour un champ incident en polarisation TM. L'échelle verticale représente l'amplitude du signal FM, normalisé par la réflectivité, c'est-à-

dire $M \frac{d\Delta R}{d\omega}$, avec $M = 16\text{MHz}$. Expériences et figures réalisées par P. Ballin.

L'amplitude de cette structure augmente avec l'angle jusqu'à 40° où elle change de forme et son amplitude diminue jusqu'à 60° (figure 5-1). Ces expériences ont montré aussi une différence importante de la forme de raie en fonction de la polarisation, ainsi la structure sub-Doppler est plus remarquable pour un champ incident en polarisation TM que pour un champ incident en polarisation TE (figure 5-2). Les mêmes expériences ont été réalisées sur une opale de 20 couches de billes de diamètre 1080 nm. Aucune différence n'a été observée entre ces deux séries d'expériences. Ceci peut être expliqué par le fait que pour 10 couches

(ou 20 couches), pour ce diamètre de billes et pour $\lambda = 894\text{nm}$ ou $\lambda = 852\text{nm}$, l'intensité du champ transmis est négligeable, ainsi nous ne détectons pas la réponse des atomes confinés dans l'opale entre les couches supérieures à dix.

Il est important de contrôler l'intensité du champ incident, car une intensité importante peut saturer les transitions optiques, ce qui introduit des élargissements spectraux. Plusieurs tests de saturation ont été établis dans le but de s'assurer de ne pas être dans un régime non-linéaire de saturation optique. Ces tests effectués par P. Ballin montre qu'on est dans un régime non-linéaire de saturation pour des intensités supérieures à 25 mW/cm^2 [BAL13], pour des opales de 20 et 10 couches de billes de diamètre 1080 nm, et avec les raies D_1 et D_2 . L'intensité de saturation, dans ce cas, est largement supérieure à l'intensité de saturation optique dans le cas de la réflexion sélective ($1,1\text{ mW/cm}^2$ [STE]). Ceci est dû au faible libre parcours des atomes confinés par les billes d'une opale, qui cause une désexcitation rapide. Notons que les spectres montrés dans cette partie sont effectués dans un régime linéaire, c'est-à-dire à des intensités inférieures à l'intensité de saturation des transitions atomiques.

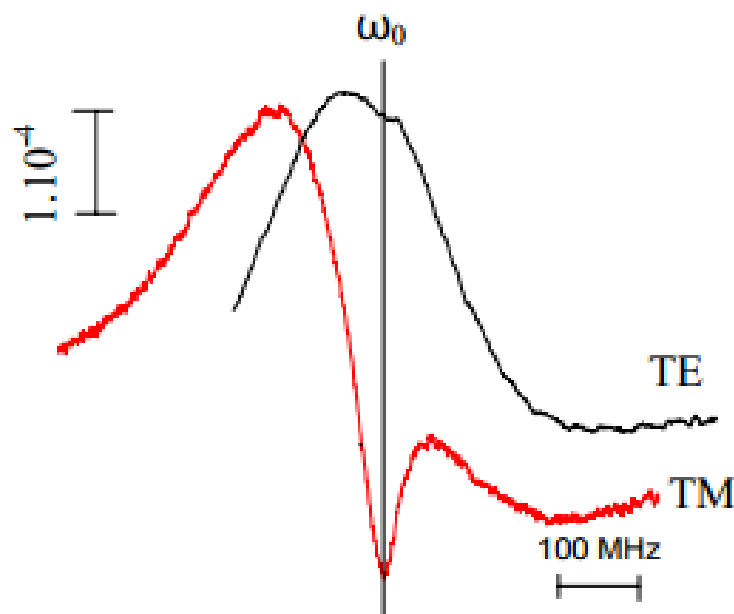


Figure 5-2 : Spectres en FM de réflexion sur une opale de dix couches de billes de diamètre 1080 nm, sur la raie D_1 du césium. Ces spectres sont réalisés pour un angle d'incidence dans l'air $\theta = 39^\circ$, pour une polarisation TE (en noir) et une polarisation TM (en rouge). Expériences et figures réalisées par P. Ballin.

Par comparaison, dans les chapitres 3 et 4, nous avons montré que la spectroscopie de réflexion sélective sur une surface plane, sous incidence oblique, est une spectroscopie dominée par l'effet Doppler, ainsi à partir d'un certain angle d'incidence les spectres atteignent la largeur Doppler, et les structures hyperfines sont mal résolues (paragraphe 3-3 et paragraphe 4-9). Nous avons de même montré que les formes de raie pour les polarisations TE et TM sont sensiblement les mêmes (sauf marginalement autour de l'angle de Brewster entre le vide et une surface diélectrique).

La comparaison des résultats obtenus par P. Ballin avec la spectroscopie de réflexion sélective sur une surface plane, nous permet de conclure que la structure sub-Doppler est une signature des atomes confinés dans l'opale, qui ressemble à l'effet Dicke.

A l'issue de ces résultats, on se demande premièrement quelle est l'origine spatiale dans l'opale des atomes responsables du fond large du spectre, et de ceux responsables de la structure sub-Doppler. On se demande aussi pourquoi nous observons la structure sur cette gamme d'angle et plutôt en polarisation TM. Finalement, on veut connaître l'effet du rapport λ/D , et les caractéristiques associées de spectroscopie.

5.2 Comparaison des spectres expérimentaux des raies D₁ et D₂ du césium

Pour explorer l'effet du rapport λ/D nous effectuons une comparaison entre les spectres expérimentaux des raies D₁ et D₂ du césium. A partir de chaque niveau fondamental, le spectre de la raie D₁ comporte deux transitions éloignées de 1,168 GHz. Cet écart en fréquence est supérieur à la largeur Doppler, et le spectre expérimental sur la raie D₁ se compose de transitions isolées dont on vérifie qu'elles ont toutes une forme de raie identique. Pour la raie D₂, à partir de chaque niveau fondamental, il existe trois transitions. L'écart entre ces trois transitions est inférieur à la largeur Doppler. Les trois transitions sont partiellement superposées, et chaque spectre sur la raie D₂ est un mélange de trois transitions (chapitre 4 section 4-1).

La spectroscopie par réflexion étant une spectroscopie linéaire, on peut reproduire le spectre de la raie D_2 à partir de celui de la raie D_1 . Pour ce but, on doit ajouter trois fois le spectre de la raie D_1 comme trois composantes, avec l'écart en fréquence correspondant à l'écart entre les composantes de la raie D_2 (figure 5-3). Chaque composante doit être normalisée par les forces d'oscillateurs et la probabilité de la transition qu'elle simule.

Pour ces deux longueurs d'onde voisines (5% de différence) la largeur Doppler est différente de 5%. Pour prendre en considération cet effet, qui peut être important pour les composantes du spectre sensibles à l'effet Doppler, nous modifions éventuellement l'échelle horizontale du spectre de simulation par le rapport $\frac{852}{894}$.

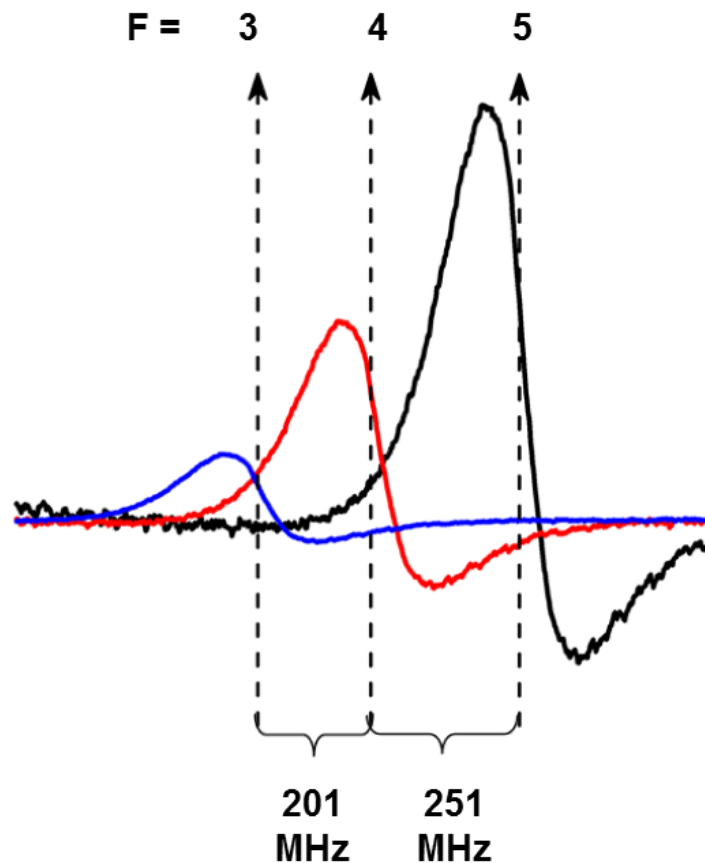


Figure 5-3 : Spectres montrant les trois spectres de la raie D_1 dédiés à la reproduction du spectre de la raie D_2 , avant leur somme, normalisés par les probabilités des transitions.

Spectre effectué pour $\theta = 20^\circ$, et une polarisation incidente TM. Les transitions sont effectuées à partir du niveau fondamental $F=4$.

Pour pouvoir effectuer une comparaison entre le spectre de la raie D_2 et le spectre simulé à partir de la raie D_1 , les deux expériences doivent être effectuées sur la même cellule et simultanément, pour s'assurer qu'ils sont effectuées sur la même densité de vapeur. Les faisceaux des deux lasers suivent le même trajet pour s'assurer d'effectuer les deux mesures avec le même angle d'incidence.

Nous cherchons à comparer la forme des raies mais aussi l'amplitude des spectres. La modulation de fréquence de chaque laser (raie D_1 ou raie D_2) est caractérisée par une amplitude de modulation M qui dépend du laser. Donc on doit normaliser chaque spectre par l'amplitude M . Pour nous assurer de la fiabilité de cette technique nous avons effectué des comparaisons pour les spectres de réflexion sélective sur une surface plane, pour différents angles d'incidence et pour les polarisations TE et TM, avant de comparer les spectres sur une opale.

Finalement nous présentons les résultats des comparaisons pour les incidences 20° , 33° et 45° , pour une polarisation TM. On remarque que pour l'angle d'incidence 20° , c'est-à-dire avant l'apparition de la structure sub-Doppler, on arrive sensiblement à reproduire le spectre de la raie D_2 à partir de celui de la raie D_1 . Pour les angles où la structure commence à apparaître cette comparaison n'est plus valable. En augmentant l'angle d'incidence les spectres deviennent de plus en plus différents (figure 5-4).

Cette comparaison nous permet de conclure que la propagation du champ excitant dans une opale, dépend fortement de la longueur d'onde. Il a suffi donc de varier le rapport λ/D de seulement 5%, pour modifier fortement les propriétés du spectre sub-Doppler. Les expériences de réflexion et de transmission sur les opales sans atomes, que nous avons présentées dans le chapitre 2, sont en accord avec ces observations. Ceci nécessite une exploration du rapport λ/D . Pour explorer ce rapport nous avons changé le diamètre des billes de 1080 nm à 400 nm, et dans un deuxième temps, nous avons changé la longueur d'onde pour atteindre le deuxième niveau excité.

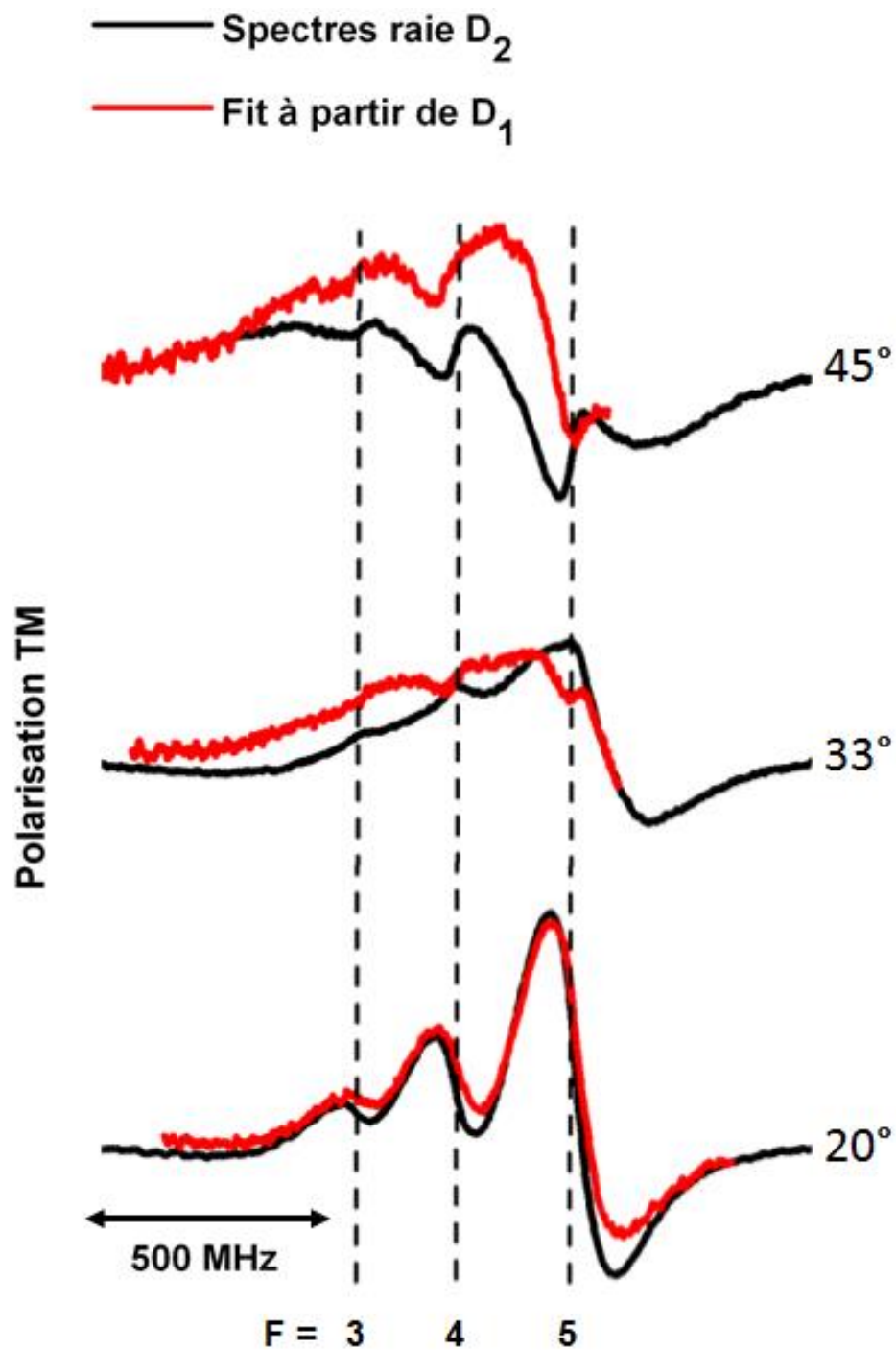


Figure 5-4 : Comparaison entre les spectres de la raie D_2 et la reproduction de ces spectres à partir des spectres de la raie D_1 , pour les angles d'incidence 20° , 33° et 45° , en polarisation TM. Les pointillés correspondent aux fréquences des transitions, obtenus par une expérience auxiliaire d'absorption saturée.

5.3 Spectroscopie par réflexion sur une opale de dix couches de billes de diamètre 400 nm

Nous avons à notre disposition une cellule contenant une opale de 10 couches de billes de diamètre 400 nm. Les dimensions des interstices sont très faibles, ce qui constitue un piège pour les atomes de césium. Lorsque ces atomes entrent dans les interstices ayant ces dimensions, ils restent piégés et se déposent en formant des agrégats. Ceci introduit une inhomogénéité spatiale de l'opale. En chauffant à la même température de fenêtre que celle utilisée pour la cellule avec des billes de diamètre 1080 nm, P. Ballin a obtenu des spectres peu reproductibles à cause de cette inhomogénéité. En chauffant l'opale jusqu'à la limite, c'est-à-dire 200°C, nous avons réussi à diminuer la densité d'agrégats et à obtenir des spectres plus reproductibles.

Comme on l'a vu au chapitre 2, la réduction du diamètre des billes augmente la transmission à travers l'opale. Pour une opale de 10 couches de billes de diamètres 400 nm la transmission en incidence normale est d'environ 22% pour $\lambda = 894\text{nm}$. Il existe donc une possibilité de sonder aussi la vapeur atomique qui est libre dans la région derrière l'opale. Cependant, nous cherchons surtout à tester un comportement à 400 nm qui ressemble à un comportement à ≈ 1000 nm.

Nous présentons les résultats expérimentaux de la réflexion sur cette opale pour les angles d'incidences 26° et 30°, en polarisation TM. Nous observons des structures étroites (sub-Doppler) (figure 5-5) sur un fond large. Ces expériences sont effectuées avec la même intensité lumineuse (non saturante) que celle utilisée dans le cas des expériences sur l'opale de billes de diamètre 1080 nm.

Pour cette cellule nous n'arrivons jamais à reproduire le spectre de la raie D₂ à partir de celui de la raie D₁ (section 5.2). La comparaison, pour tous les angles d'incidences obliques, montre une différence importante. Cette observation est compréhensible sachant que le diamètre des billes dans ce cas est 2,7 fois plus faible que le cas précédent, ce qui modifie plus la propagation du champ, ainsi que les caractéristiques du confinement.

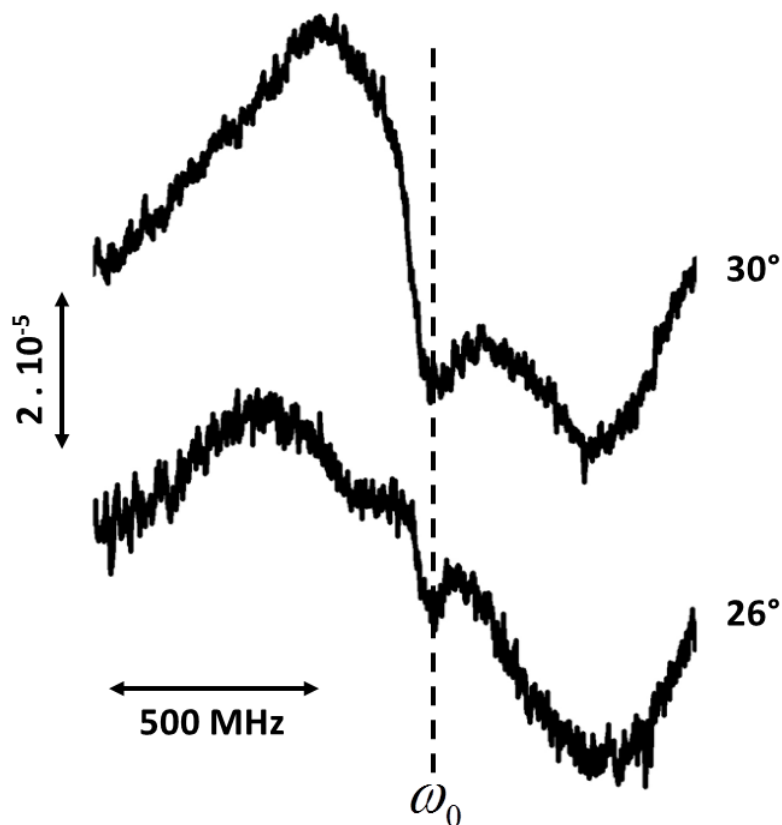


Figure 5-5 : Spectres par réflexion de la raie D_1 du césium, sur une opale de 10 couches de billes de diamètre 400 nm, pour les angles d'incidences 26° et 30° en polarisation TM. ω_0 est la fréquence de résonance. L'amplitude de la modulation $M = 16\text{MHz}$.

5.4 Spectroscopie par réflexion sur le niveau $7P_{3/2}$ d'une vapeur confinée dans une opale ($\lambda = 455\text{ nm}$)

Les mêmes expériences ont été réalisées, avec un laser bleu $\lambda = 455\text{nm}$, pour sonder la transition $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$, sur les 2 cellules (10 couches $D=400\text{ nm}$ et 20 couches $D=1080\text{ nm}$). Les températures de chauffage sont les mêmes températures que celles utilisées pour réaliser des expériences de réflexion sélective (chapitre 4 section 4.2).

5.4.1 Expériences sur une opale (10 couches) D=400 nm

a) Transmission hors résonance atomique et intensité de saturation

Les expériences dans cette partie sont réalisées avec une intensité lumineuse $I = 20mW/cm^2$. Avec une intensité deux fois plus faible ($I = 10mW/cm^2$), nous obtenons la même forme et la même amplitude des signaux (en $\Delta R/R$). Nous en concluons que l'intensité lumineuse que nous utilisons est inférieure à l'intensité lumineuse de saturation, et nous sommes donc dans un régime purement linéaire.

La transmission de l'opale de 10 couches de billes de diamètre 400 nm avec $\lambda = 455nm$, hors résonance atomique, n'est pas suffisamment atténuée et vaut environ 12% (en incidence normale). Il est donc envisageable que nous détections aussi la réponse des atomes libres (dans la région derrière l'opale), contrairement aux expériences réalisées par P. Ballin.

b) Comparaisons des densités de vapeur dans l'opale et dans le reste de la cellule

A cause de sa porosité (intrinsèque, et de la porosité individuelle des billes [KAR]), une opale risque de former un piège pour les atomes de césium, qui seront adsorbés par les surfaces des billes. De ce fait, la densité de la vapeur atomique dans l'opale peut être plus élevée que dans le reste de la cellule. Dans ces conditions, les interstices de l'opale peuvent être considérés comme un réservoir secondaire de césium, et la densité ne dépendrait plus de l'équilibre thermodynamique au niveau du queusot. Il est donc nécessaire de comparer les amplitudes des spectres obtenus sur l'opale à ceux obtenus par réflexion sélective sur la surface plane, pour un angle où la largeur des raies est comparable.

Dans cette partie nous comparons les expériences réalisées sur l'opale (10 couches $D=400$ nm), en incidence normale et pour des incidences faibles, aux résultats expérimentaux de la réflexion sélective sur la surface plane. Les spectres comparés sont effectués simultanément pour s'assurer d'être dans les mêmes conditions, c'est-à-dire la même densité de vapeur atomique et même température de chauffage de la fenêtre. Pour déplacer le faisceau laser sur la fenêtre, de l'opale à la surface plane ou inversement, nous déplaçons l'opale

parallèlement au plan d'incidence grâce à des réglages fins, ce qui nous permet de garder le même angle d'incidence. Pour s'assurer que l'angle n'a pas changé pendant cette opération, deux diaphragmes sont placés sur le trajet de faisceau réfléchi.

Cette comparaison montre une différence importante de la forme de raie des atomes confinés, par rapport aux atomes de la vapeur libre (figure 5-6). En revanche la largeur des spectres, sur l'opale et sur la surface plane, est sensiblement comparable, ce qui donne un sens à une comparaison d'amplitude.

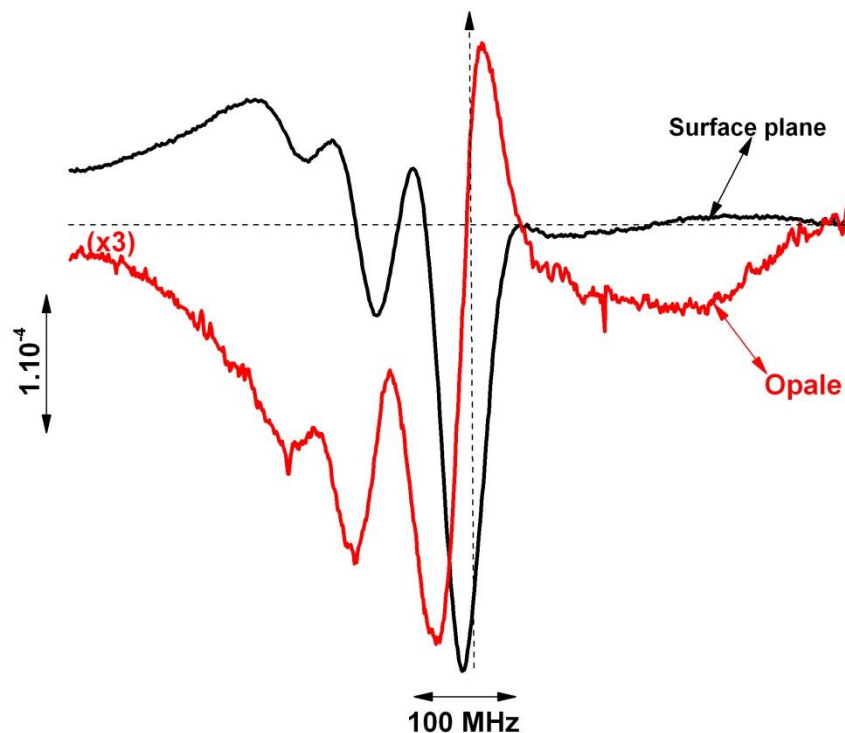


Figure 5-6 : comparaison entre le spectre par réflexion sélective sur une surface plane et le spectre par réflexion sur une opale pour un angle d'incidence de 50 mrad. La transition sondée est $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$, à partir de $F=4$.

L'amplitude relative $(\Delta R/R)$ du signal de réflexion sur l'opale est 3 fois plus faible que l'amplitude du signal de réflexion sélective sur la surface plane. Il est compliqué d'interpréter l'amplitude d'un signal en réflexion surtout dans le cas d'une géométrie compliquée comme une opale. En revanche, cette observation nous permet de conclure que la densité de la vapeur atomique confinée dans l'opale est comparable à la densité de la vapeur atomique libre dans le reste de la cellule. S'il existe donc des effets de piégeage de la vapeur dans l'opale, ils sont

négligeables dans le cas de nos expériences, ce qui est rassurant pour la suite, et confirme une première estimation effectuée durant la thèse de P. Ballin.

c) **Résultats expérimentaux de la spectroscopie par réflexion sur l'opale 10 couches D=400 nm en incidence oblique**

En augmentant l'angle d'incidence le signal s'élargit jusqu'à atteindre la largeur Doppler. Pour cette transition la largeur Doppler est environ le double de celle en infrarouge. Le fond Doppler devient alors très large et de faible amplitude, donc noyé dans le bruit. A partir de 32° , une structure sub-Doppler, de largeur 150 MHz (avec $ku = 424 \text{ MHz}$ pour $T=300\text{K}$, cf. tableau 4-2) commence à apparaître pour une polarisation incidente TM (figure 5-7(a)). En polarisation TE, nous observons des structures sub-Doppler sur certains angles aussi. Dans la figure 5-7 (b), nous montrons qu'à 38° nous observons une structure sub-Doppler comparable pour les deux polarisations, et pour $45,5^\circ$ le signal s'annule pour la polarisation TE seulement.

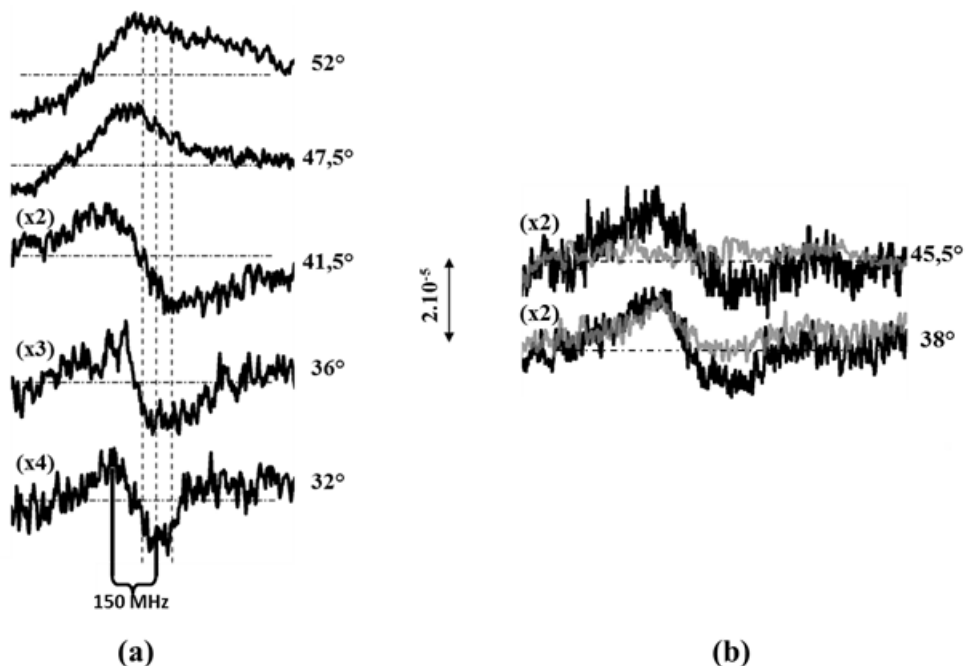


Figure 5-7 : (a) Résultats expérimentaux de la spectroscopie par réflexion sur des atomes de césium confinés dans une opale de 10 couches de billes de diamètre 400 nm montrant l'évolution du signal atomique avec l'angle d'incidence, pour une polarisation TM. (b) comparaison entre les spectres pour une polarisation TM (en noir) et une polarisation TE (en gris) pour 38° et $45,5^\circ$. La transition sondée est $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$ à partir de $F=4$.

d) Discussion

Sur cette transition nous observons des effets similaires aux effets de confinement observés par P. Ballin, sachant que les rapports entre la longueur d'onde et le diamètre des billes (λ/D) sont comparables dans ces deux cas. En revanche la différence de la largeur des structures sub-Doppler peut être expliquée par le fait qu'avec $\lambda = 455nm$ la largeur Doppler est environ le double de la largeur Doppler avec $\lambda = 894nm$. Les largeurs relatives (normalisées par les largeurs Doppler) sont du même ordre de grandeur. Les formes des raies dans ces deux cas étant assez différentes, nous ne pouvons pas comparer quantitativement les largeurs des structures car la définition de la largeur change d'une forme à une autre, et nous nous limitons à la comparaison des ordres de grandeurs.

Un avantage de ces expériences est que l'atténuation du fond large (largeur Doppler) en fonction de l'angle d'incidence, nous permet de mieux visualiser la forme des structures sub-Doppler et leurs évolutions, qui dépend fortement de l'incidence et de la polarisation.

5.4.2 Expériences sur une opale (20 couches) D=1080 nm

Des expériences analogues ont été réalisées sur la cellule contenant l'opale de 20 couches de billes de diamètre 1080 nm, dans le but d'augmenter le rapport λ/D . Les paramètres expérimentaux (intensité lumineuse, densité de vapeur, température de chauffage de l'opale) sont les mêmes que dans le cas des expériences sur l'opale de billes de diamètre 400 nm. Sur cette opale la transmission est suffisamment négligeable pour que les formes des raies ne soient pas contaminées par la réponse des atomes dans la région libre.

En incidence normale nous observons, comme toutes les autres expériences, un spectre sub-Doppler où les trois transitions sont résolues, mais sont plus larges que les spectres de réflexion sélective sur la surface plane (figure 5-8).

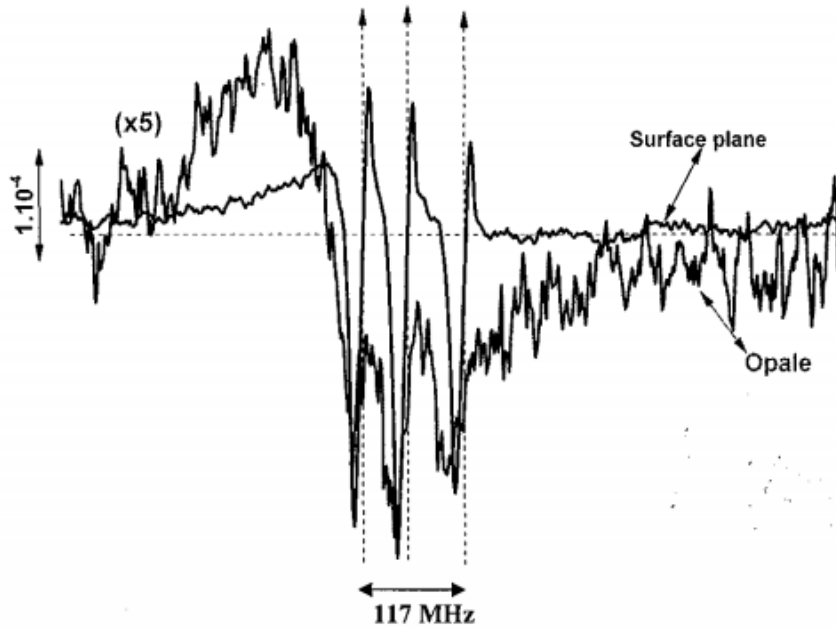


Figure 5-8 : Comparaison entre le spectre par réflexion sélective sur une surface plane et le spectre par réflexion sur une opale pour une incidence normale. La transition sondée est

$$6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}, \text{ à partir de } F=3.$$

En augmentant l'angle nous observons les mêmes élargissements que dans le cas précédent. Pour un angle d'incidence de 49° , un signal commence à apparaître pour les deux polarisations (TE et TM). En polarisation TM la largeur de ce signal est d'environ 220 MHz, tandis qu'en polarisation TE le spectre a quasiment la largeur Doppler. La forme, la largeur, et l'amplitude du signal évoluent rapidement et sont très sensibles à la variation de l'angle pour une polarisation TM (figure 5-9 (a)), contrairement au signal pour une polarisation TE.

Nous remarquons qu'entre 54° et 57° la variation de la forme de raie ressemble à une inversion du signe du signal atomique, en polarisation TM seulement. Ceci ressemble à l'inversion du signe du signal de réflexion sélective à l'angle de Brewster entre le vide et la surface diélectrique ($56,3^\circ$ pour une surface d'indice $n=1,5$), que nous avons montrée théoriquement dans le chapitre 3 et expérimentalement dans le chapitre 4, pour une polarisation TM. Pour ce diamètre de billes (1080 nm), la région entre le substrat et la première couche de billes, est relativement importante par rapport à la longueur d'onde. Le signal atomique pourrait être principalement construit par les atomes libres dans cette région, ce qui justifierait que nous observions des effets ressemblants à la réflexion sélective sur une vapeur libre.

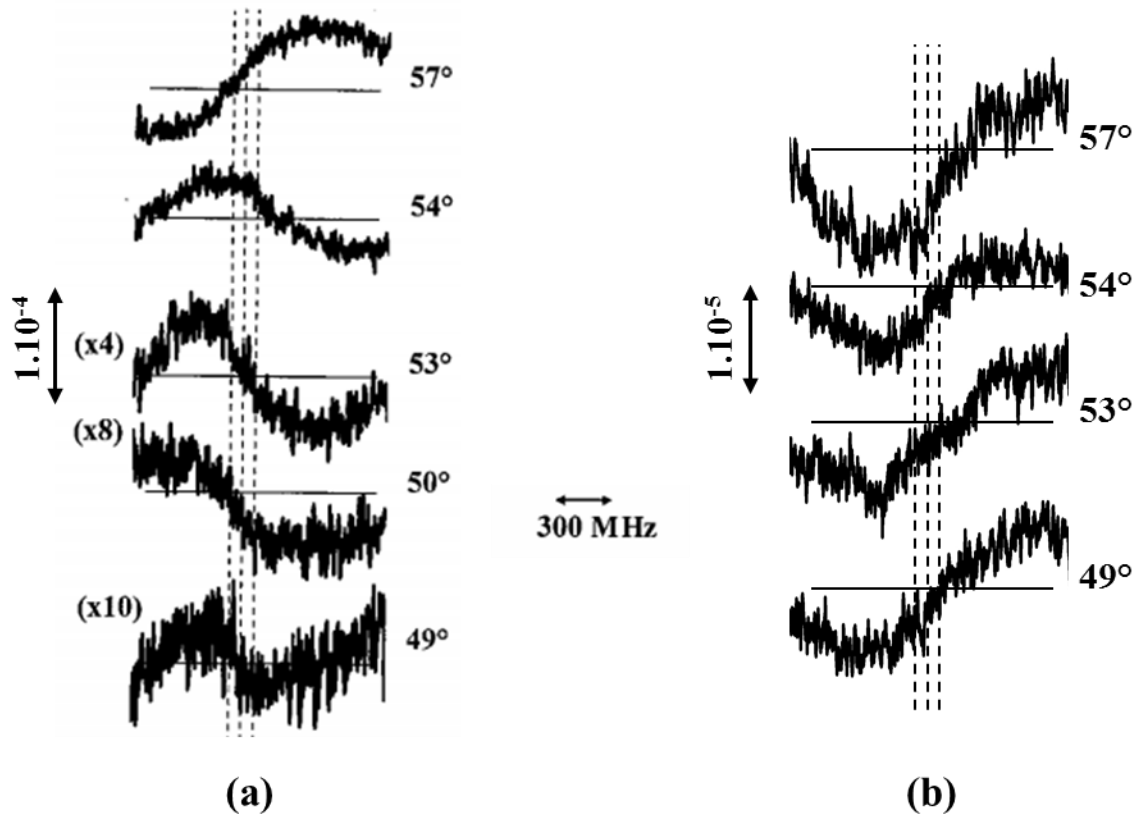


Figure 5-9 : Résultats expérimentaux de la spectroscopie par réflexion sur des atomes de césium confinés dans une opale de 20 couches de billes de diamètre 1080 nm montrant l'évolution du signal atomique avec l'angle d'incidence, pour une polarisation TM (a) et une polarisation TE (b). La transition sondée est $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$ à partir de $F=3$.

Les changements de forme de raie rapides avec l'angle d'incidence que nous avons observés, montre à quel point la sommation des différentes contributions spatiales de la réponse atomique, dans la direction du champ réfléchi qu'on détecte, est compliquée. Des tentatives d'explications de ces variations ont été obtenues par un calcul (I. Maurin) [MOU] avec infiltration d'un milieu résonant dans le modèle théorique d'opale avec un indice stratifié que nous avons présenté dans le chapitre 2 (paragraphe 2.3.2 (b))

5.4.3 Infiltration d'une vapeur atomique dans le modèle d'indice stratifié

Le modèle d'indice effectif stratifié (paragraphe 2.3.2 (b)) peut être généralisé à la réflexion sur une opale infiltrée par un milieu résonant, telle qu'une vapeur atomique immobile. On considère une vapeur diluée résonante caractérisée par un indice effectif

complexe $n_v = 1 + \delta n$, comme pour le calcul du signal de réflexion sélective par la théorie locale de l'indice (chapitre 3 section 3.1). La densité de la vapeur résonante évolue périodiquement, selon la densité $[1 - f(z)]$ (avec $f(z)$ le taux de remplissage en silices de l'opale) des régions vides de l'opale considérées par le modèle. Le calcul s'effectue en décomposant le milieu résonant en des tranches infiniment fines, comme dans le cas du calcul du signal de réflexion sélective en incidence oblique (chapitre 3 section 3.3). L'effet de chaque tranche sur la réflectivité, oscille en fonction de la position de cette dernière. La période des oscillations dépend de la longueur d'onde et de l'angle d'incidence. La phase de ces oscillations varie entre une contribution résonnante dispersive ($\text{Re}(\delta n)$) et une contribution absorptive ($\text{Im}(\delta n)$). Elle dépend aussi de la polarisation incidente (pour des larges angles d'incidences). Pour certains angles d'incidences, la réponse globale du milieu résonant oscillante est en accord de phase avec le vide périodique dans l'opale $[1 - f(z)]$. Dans ces conditions un signal résonant est prédit, dû à la contribution constructive du milieu résonant, provenant des couches profondes de l'opale. Pour un milieu résonant incluant les deux contributions dispersive $\text{Re}(\delta n(\omega - \omega_0))$ et absorptive $\text{Im}(\delta n(\omega - \omega_0))$, la forme de raie du signal devient très sensible à l'angle d'incidence et à la polarisation (figure 5-10).

Ce modèle peut décrire les variations de forme des raies rapides que nous observons expérimentalement surtout dans le cas d'une faible longueur d'onde ($\lambda = 455\text{nm}$). En revanche, ce modèle considère un milieu résonant immobile, or dans le chapitre 3, nous avons discuté l'importance de la mobilité des atomes sur la forme d'un signal atomique. Ce calcul peut prédire les angles où il est possible d'observer un signal provenant des couches profondes de l'opale, mais ne prédit dans aucun cas la largeur ou l'amplitude du signal.

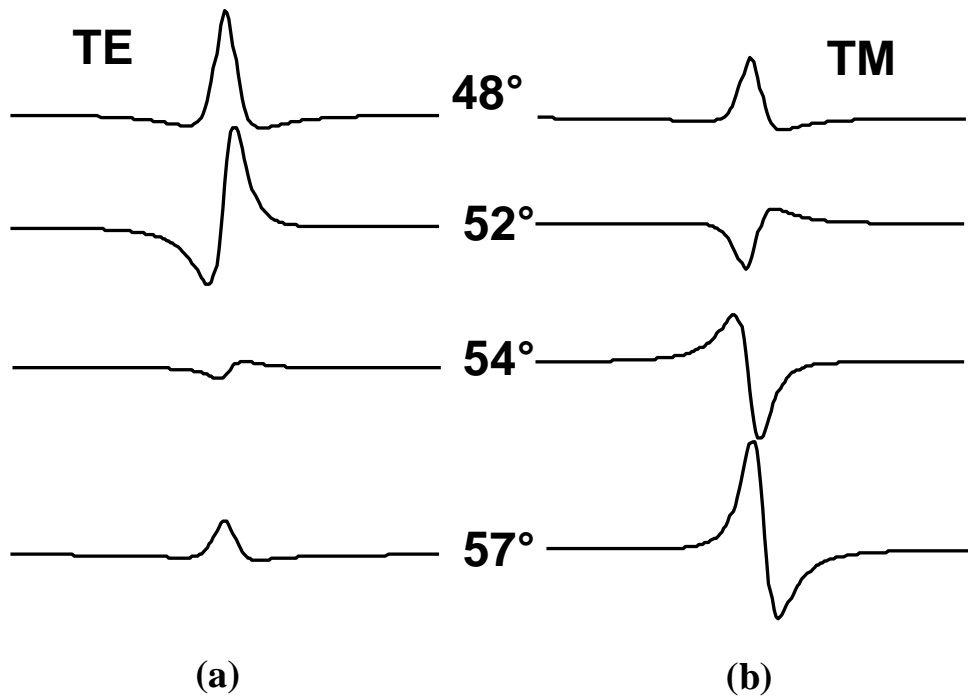


Figure 5-10 : Dérivées des spectres $\Delta R/R$ calculées par le modèle d'infiltration, en considérant une résonance Lorentzienne du milieu, pour 48° , 52° , 54° et 57° , en polarisation TE (a) et TM (b). Calculs effectués pour une opale de 20 couches avec $\lambda/D = 0.852$. [MOU]

5.5 Expériences avec des opales multizones

Pour explorer l'effet du nombre de couches sur les caractéristiques du confinement et essayer de comprendre l'origine des structures sub-Doppler observé auparavant, nous effectuons le même type de spectroscopie par réflexion mais sur une opale multizone, dont le nombre de couches varie avec la position sur la fenêtre. Ceci nous permet de comparer les spectres, en effectuant des expériences de spectroscopie sur différents nombres de couches, dans les mêmes conditions expérimentales (densité de la vapeur atomique, angle d'incidence, etc.). Les expériences sont effectuées sur la raie D_1 du césium.

Nous présentons dans cette section les deux cellules que nous avons à notre disposition ainsi que les principaux résultats expérimentaux de spectroscopie par réflexion sur ces opales.

5.5.1 Présentations des cellules

Nous avons à notre disposition plusieurs fenêtres multizones (figure 5-11), contenant de 1 à 4 couches avec un pas de 1, ou de 3 à 12 couches avec un pas de 3. Ces opales sont faites avec des billes de silice de diamètre 1030 nm ou 725 nm, et sont fabriquées par la technique Langmuir-Blodgett. En effet, pour déposer une opale avec cette technique, chaque opération se traduit par la déposition d'une couche. Ainsi en variant la hauteur, à laquelle on fait plonger le substrat dans la solution, entre les opérations, on change le nombre de couches en fonction de la hauteur.

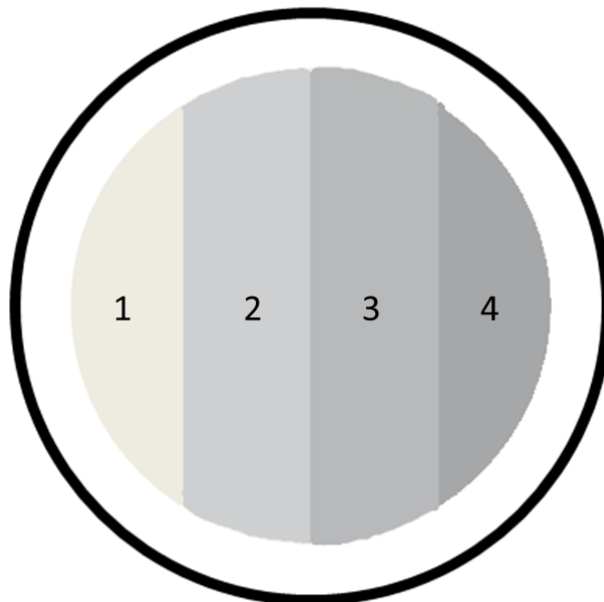


Figure 5-11 : Opale multizone déposée sur une fenêtre avec un nombre de couches variant de 1 à 4 avec un pas de 1.

Nous avons décidé de faire fabriquer deux cellules avec des opales ayant un nombre de couche variant de 1 à 4 couches, mais chaque cellule à un diamètre de billes différents (1030 nm et 725 nm). Les cellules sont de même forme que les cellules présentées dans le paragraphe 4.2.1.

5.5.2 Spectroscopie par réflexion sur l'opale de billes de diamètre 1030 nm

Dans ce paragraphe nous présentons les résultats expérimentaux obtenus sur l'opale multizones de billes de diamètre 1030 nm (figure 5-12). Pour des raisons de géométrie nous

n'avons pas la possibilité d'effectuer des mesures sur 4 couches de billes pour des angles supérieurs à 50° . En revanche expérimentalement nous n'observons pas des différences importantes entre les mesures effectuées sur 3 couches et celles effectuées sur 4 couches, pour les angles accessibles. Nous présentons donc les résultats obtenus sur 1, 2 et 3 couches de billes, pour différents angles d'incidence et pour les polarisations TE et TM.

a) Conditions expérimentales

Dans le paragraphe 5.4.1 nous avons confirmé qu'il n'existe pas d'effets importants du piégeage des atomes, sur la densité de la vapeur dans les interstices. Nous pouvons considérer donc que la densité d'atomes dans l'opale est indépendante du nombre de couches, et qu'elle est définie par la température de chauffage du queusot. Pour ces expériences nous utilisons la même température que celle utilisée pour les expériences sur la raie D_1 du césium, c'est-à-dire 100°C pour une température de chauffage de la fenêtre équivalente à 140°C .

La structure d'une couche de billes n'étant pas compacte comme la structure des couches supérieures, l'intensité lumineuse de saturation sur cette structure est donc plus faible que sur une opale plus épaisse. Dans le cadre de ces expériences nous utilisons une intensité lumineuse équivalente à $I_{inc} = 2,5 \text{ mW/cm}^2$. Cette intensité est convenable pour toutes les zones (nombre de couches différent) de cette opale, et permet d'avoir un bon rapport signal/bruit.

Une couche de billes de diamètre 1030 nm transmet (en incidence normale) environ 50% d'un faisceau de longueur d'onde $\lambda = 894 \text{ nm}$. Même en augmentant le nombre de couches de billes jusqu'à 4, la transmission n'est pas suffisamment atténuée (5%), et nous détectons probablement aussi dans la réponse une contribution des atomes dans la zone libre.

b) Résultats expérimentaux

Sur les mesures effectuées sur 3 couches de billes, une différence entre les spectres effectués avec une polarisation TM et ceux effectués avec une polarisation TE, commence à apparaître à partir de 27° . Cette différence s'accroît avec l'angle d'incidence. À partir de 45° une structure sub-Doppler commence à apparaître sur le spectre pour une polarisation

TM, et disparaît à partir de 59° . Pour cette polarisation nous observons une différence remarquable entre les angles plus faibles et les angles supérieurs à 56° , où l'amplitude du signal diminue (figure 5-12). En comparant les spectres pour les polarisations TE et TM, nous remarquons que les amplitudes relatives des signaux $\left(\frac{\Delta R}{R}\right)$ sont comparables, ce qui n'est pas le cas pour la réflexion sélective sur une surface plane.

Nous présentons de même, sur la figure 5-12, les résultats obtenus sur 2 couches de billes. Nous observons le même comportement que dans le cas de 3 couches de billes. A partir de 27° les spectres deviennent différents pour les deux polarisations, et une structure sub-Doppler apparaît sur le spectre en polarisation TM à partir de 45° . Dans ce cas, les spectres en TE et TM restent différents jusqu'à 59° , contrairement au cas précédent.

Pour 1 couche de billes, où il n'existe pas de confinement tridimensionnel de la vapeur, les spectres effectués avec une polarisation TM, commence à se rétrécir à partir de 34° . Jusqu'à 52° , pour cette polarisation les spectres sont sub-Doppler, et d'amplitude environ le double que les spectres effectués sur 2, 3 et 4 couches. Un fond large apparaît sur les spectres à partir de 52° . En revanche pour une polarisation TE, les spectres sont larges, et présentent une structure sub-Doppler centré autour de la fréquence de résonance. Ces résultats sont inattendus puisqu'on pensait qu'avec une seule couche de billes nous avions l'équivalent d'une cellule mince (chapitre 1), c'est-à-dire nous nous attendions à observer un spectre sub-Doppler en incidence normale seulement. Ces résultats étonnants méritent une exploration. Nous effectuons donc des expériences similaires mais avec un diamètre de billes différents.

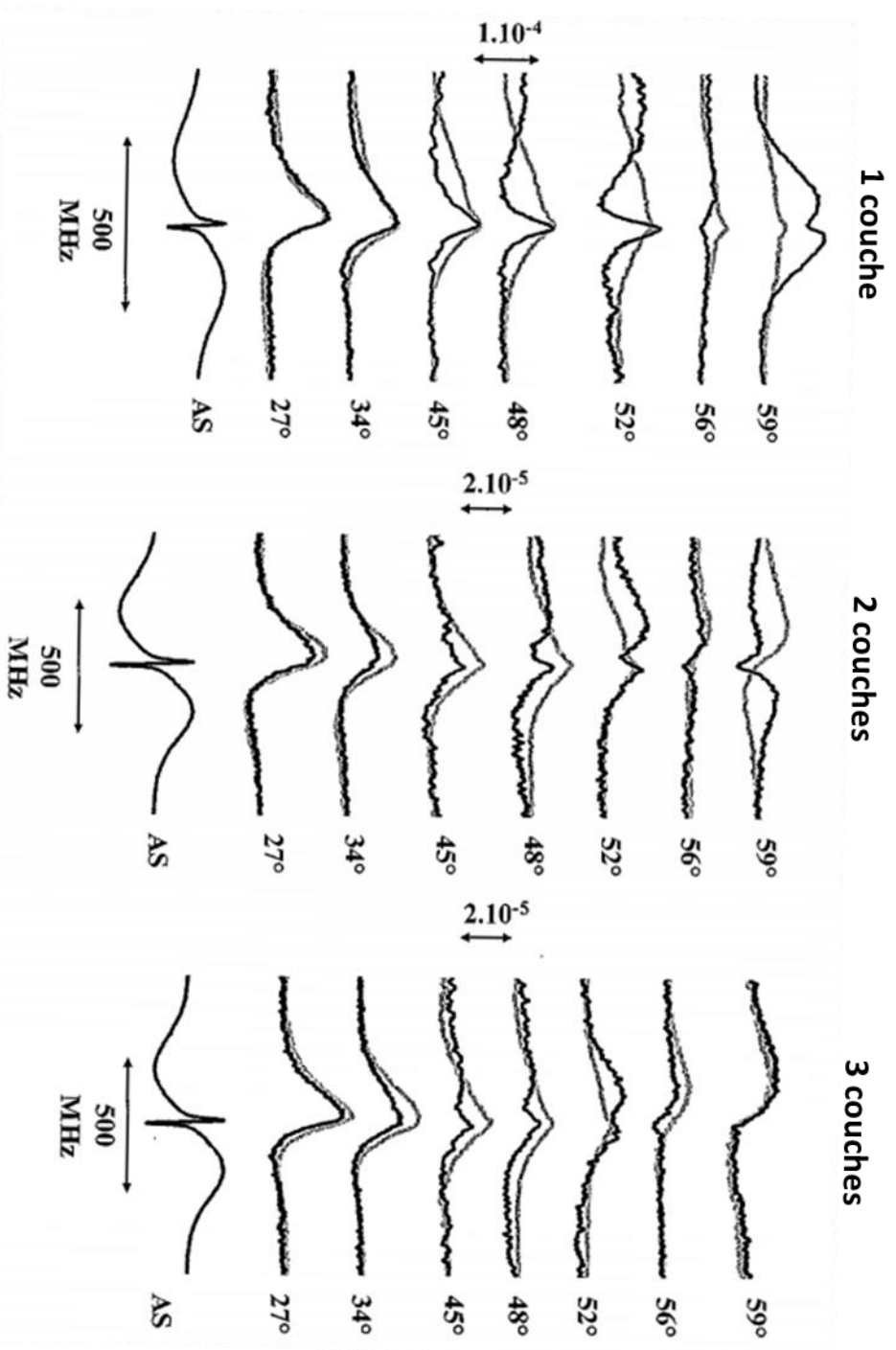


Figure 5-12 : Résultats expérimentaux de la spectroscopie par réflexion sur une opale multizones (1, 2 et 3 couches) de billes de diamètre 1030 nm, pour différents angles d'incidence. En noir les spectres réalisés avec une polarisation incidente TM, en gris les spectres réalisés avec une polarisation incidente TE.

5.5.3 Spectroscopie par réflexion sur l'opale de billes de diamètre 725 nm

Nous effectuons les mêmes expériences sur une opale de 1, 2, 3 et 4 couches de billes de diamètre 725 nm. Les conditions expérimentales sont les mêmes qu'avec l'opale 1030 nm.

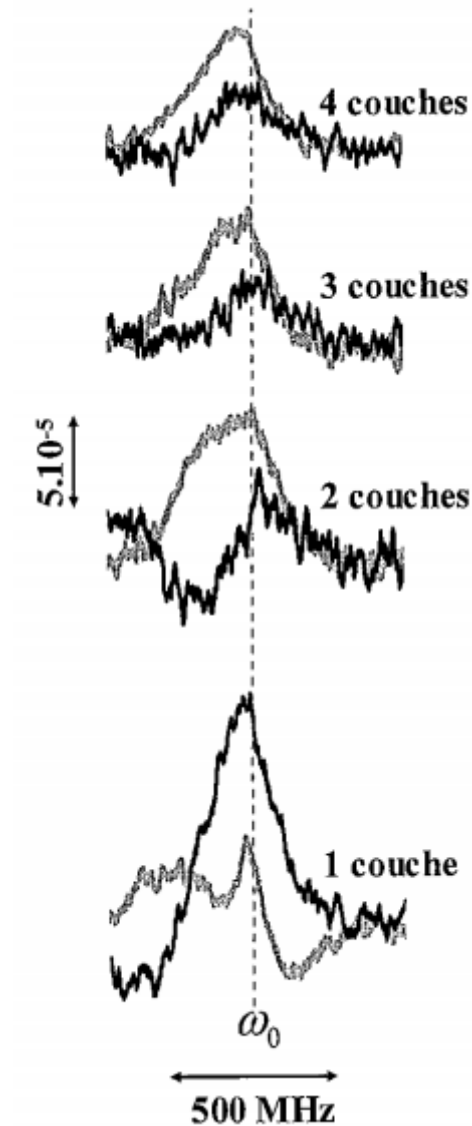


Figure 5-13 : Résultats de la spectroscopie par réflexion sur 1, 2, 3 et 4 couches de billes de diamètre 725 nm, pour $\theta = 45^\circ$. En noir les spectres réalisés avec une polarisation incidente TM et en gris les spectres réalisés avec une polarisation incidente TE.

Nous observons des formations d'agrégats au niveau de l'opale, qui est dû au fait que le diamètre des billes est plus faible que le cas précédent. Nous avons rencontré le même

problème pendant les expériences sur les billes de diamètre 400 nm, où nous avons augmenté la température de l'opale jusqu'à la limite (200°C), pour réduire la densité des agrégats.

Pour 2, 3, et 4 couches nous n'observons pas de structure sub-Doppler sur les spectres et pas de différence remarquable de forme de raie entre les spectres effectués en polarisation TE et ceux effectués en polarisation TM, contrairement au cas des billes de diamètre 1030 nm. En revanche, pour 1 couche de billes nous observons une structure sub-Doppler apparaître entre 40° et 59°, pour une polarisation TE uniquement (figure 5-13).

5.5.4 Conclusion

Ces expériences montrent qu'il est possible d'obtenir des structures sub-Doppler en infiltrant une vapeur atomique dans seulement 1 couche de billes, et une structure sub-Doppler en incidence oblique n'est pas toujours la signature d'un confinement tridimensionnel.

L'interprétation de ces spectres reste compliquées, d'autant que la transmission n'est pas négligeable. En revanche, ces résultats ne sont pas contradictoires avec l'interprétation des structures sub-Doppler avec 10 et 20 couches de billes comme étant le résultat d'un confinement tridimensionnel. Ces résultats sont plutôt la signature d'une physique différente qui mérite une exploration.

5.6 Conclusion

Pendant ces travaux de thèse, P. Ballin, a observé des structures sub-Doppler en spectroscopie par réflexion d'une vapeur de césium confinée dans une opale, sur certains angles d'incidences obliques. Dans son cas, la structure sub-Doppler était plus remarquable pour une polarisation TM, que pour une polarisation TE. Les expériences avaient été effectuées sur la raie D_1 et D_2 du césium, et sur des opales de 20 et 10 couches de billes de diamètre 1080 nm. La comparaison que nous effectuons entre les spectres des raies D_1 et D_2 , montre que les formes des raies deviennent différentes même pour une différence de 5% de la longueur d'onde. Ce résultat signifie que la propagation du champ excitant dans ces structures est très sensible au rapport λ/D .

Les expériences variées effectuées sur 2 opales (10 couches $D = 400$ nm et 20 couches $D = 1080$ nm), et avec trois longueurs d'ondes différentes (455 nm, 852 nm et 894 nm), confirment qu'il est possible d'obtenir des spectres sub-Doppler en incidence oblique dans un régime linéaire, et que la forme des spectres (le fond large et la structure sub-Doppler) dépend fortement de l'incidence, la polarisation et la longueur d'onde. La forme des raies varie plus vite avec l'incidence pour une même opale et pour la plus faible longueur d'onde (455 nm). La dépendance des formes de raies des paramètres d'incidences et de la longueur d'onde peut être en partie expliquée par un modèle simpliste d'infiltration d'un milieu résonnant dans une opale. Ce modèle montre que, pour certains angles d'incidence, la réponse des atomes infiltrés dans l'opale interfère d'une façon constructive. La réponse des atomes est un mélange de contributions absorptives et dispersives, dont les proportions dépendent des paramètres d'incidence.

Les expériences effectuées sur les opales multizones visaient à mieux comprendre la structure sub-Doppler observée dans un régime linéaire et en incidence oblique, et attribuée au confinement tridimensionnel. Nous avons montré qu'il est en fait possible d'obtenir des spectres sub-Doppler avec simplement une couche de billes, qui ne peuvent pas être une signature d'un confinement tridimensionnel. L'interprétation de ces formes de raies est compliquée, d'autant que la transmission par une monocouche d'opale est assez importante.

Bibliographie :

- [BAL12] Ballin, P. (2012). *Confinement tridimensionnel d'une vapeur de césium dans une opale de nanobilles* (Doctoral dissertation, Université Paris-Nord-Paris XIII).
- [BAL13] Ballin, P., Moufarej, E., Maurin, I., Laliotis, A., & Bloch, D. (2013). Three-dimensional confinement of vapor in nanostructures for sub-Doppler optical resolution. *Applied Physics Letters*, 102(23), 231115.
- [DIC] Dicke, R. H. (1953). The effect of collisions upon the Doppler width of spectral lines. *Physical Review*, 89(2), 472.
- [KAR] Karpov, I. A., Samarov, E. N., Masalov, V. M., Bozhko, S. I., & Emel'chenko, G. A. (2005). The intrinsic structure of spherical particles of opal. *Physics of the Solid State*, 47(2), 347-351.
- [MOU] Moufarej, E., Maurin, I., Zabkov, I., Laliotis, A., Ballin, P., Klimov, V., & Bloch, D. (2014). Infiltrating a thin or single-layer opal with an atomic vapour: Sub-Doppler signals and crystal optics. *EPL (Europhysics Letters)*, 108(1), 17008.
- [STE] Steck, D. A. (1998). Cesium D Line Data.

Conclusion générale

Il est possible d'obtenir des spectres sub-Doppler dans un régime linéaire et sous incidence oblique en infiltrant une vapeur atomique diluée dans une opale artificielle. La réponse spectroscopique des atomes confinés dépend de trois aspects physiques différents, qui sont : la propagation de la lumière dans une opale, les interactions entre les atomes et la lumière dans l'opale et la sommation des contributions atomiques dans la direction du champ réfléchi.

Dans le chapitre 2 de ce mémoire nous avons effectué des expériences optiques (sans atomes) sur diverses opales fabriquées par la technique Langmuir-Blodgett de dépôt couche par couche. Nous avons observé la surface de nos opales par microscopie optique et électronique. Les opales en verre fabriquées par cette technique présentent plus de défauts d'empilement que celles en polystyrène. Nous avons effectué des spectres de réflexion et de

transmission en variant différents paramètres comme l'angle d'incidence, la polarisation incidente et le diamètre des billes. Les résultats expérimentaux obtenus ont été comparés aux résultats d'un modèle d'indice stratifié. La comparaison nous a permis de comprendre que le faisceau réfléchi se construit par des interférences entre les champs réfléchis par les plans de l'opale (interférences de Bragg) et par des interférences entre les champs réfléchis par la première et la dernière couches (interférences de type Fabry-Perot). En revanche, le modèle d'indice stratifié ou celui d'indice effectif continu ne décrivent pas les spectres de réflexion et de transmission sur une opale monocouche. Les spectres expérimentaux obtenus ont été reproduits par un modèle d'éléments finis fait par I. Zabkov. Par ailleurs, nous avons étudié la diffraction sur les opales. La forme géométrique de la figure de diffraction nous a permis de déterminer le diamètre des billes et l'organisation de la couche qui diffracte.

Les expériences spectroscopiques sur les opales sont effectuées en réflexion et inspirée de la spectroscopie de réflexion sélective sur une surface plane. Au cours de ce projet, nous avons effectué des expériences de réflexion sélective sur la partie sans opale des fenêtres des cellules. Ces expériences permettent d'abord de vérifier les qualités des cellules, à savoir si l'opale n'a pas introduit des impuretés. En effectuant ces expériences auxiliaires nous avons vérifié que la forme de raies est sensiblement identique pour les polarisations TE et TM, ce qui n'est pas le cas en spectroscopie sur une vapeur infiltrée dans une opale. En revanche, nous observons des annulations du signal à 45° et à l'angle de Brewster et pour une polarisation TM. Entre ces deux zéros le signe du signal de réflexion sélective est inversé. Dans le chapitre 3 nous interprétons théoriquement ces annulations et inversions de signe, que nous observons dans le chapitre 4.

Nous avons montré que, pour une opale, la propagation de la lumière est sensible au rapport entre la longueur d'onde et le diamètre des billes (λ/D). Pour une différence de 5% de la longueur d'onde nous observons que la forme de raies devient différente. Nous avons effectué les expériences spectroscopiques par réflexion sur deux types d'opales (10 couches $D = 400$ nm et 20 couches $D = 1080$ nm) et avec trois longueurs d'onde différentes (455 nm, 852 nm et 894 nm). En variant le rapport λ/D , nous observons des structures sub-Doppler pour des gammes d'angles différentes. Pour l'opale constituée de grosses billes ($D = 1080$ nm) et à petite longueur d'onde (455 nm), nous observons une inversion du signe du signal

spectroscopique autour de l'angle de Brewster pour une polarisation TM. Ceci ressemble à l'inversion de signe que nous avons observé en réflexion sélective sur la surface plane.

Nous avons effectué des expériences similaires sur des opales multizones (1, 2, 3 et 4 couches). Avec une seule couche de billes nous observons une structure sub-Doppler, en polarisation TM pour $D = 1030$ nm, et TE pour $D = 725$ nm. Ces résultats sont inattendus puisqu'une couche de bille n'a pas une structure compacte. La vapeur n'est donc pas confinée en 3 dimensions. Ces observations ne sont pas contradictoires avec l'interprétation du signal sub-Doppler dans une opale multicouche comme un effet attribué au confinement tridimensionnel, puisqu'on a observé (dans le chapitre 2) que le signal réfléchi ne se construit pas de la même façon dans le cas d'une opale monocouche et une opale multicouche. Ainsi ces deux observations sont différentes et probablement complémentaires.

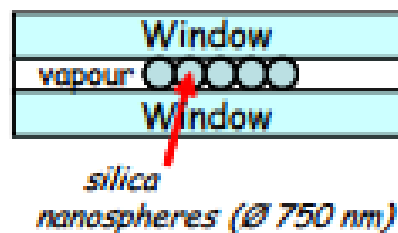


Figure c-1 : Schéma de la cellule contenant une opale monocouche emprisonnée entre les deux fenêtres, imaginée par le groupe en 2007 [ROM].

L'interprétation des formes des spectres restent compliqués. Les atomes confinés dans l'opale peuvent subir des collisions qui les empêchent de sortir du régime transitoire d'interaction avec le champ excitant. De plus, en régime transitoire, la forme de raies résulte à priori d'un mélange de contributions dispersives et absorptives dont les proportions dépendent fortement de l'incidence, de la polarisation incidente et du rapport λ/D . Enfin, nous savons qu'il est possible d'obtenir des spectres sub-Doppler en confinant une vapeur diluée avec une couche de billes. Ces résultats nécessitent une exploration expérimentale plus systématique. Ceci introduit comme perspective l'idée de relancer un effort de fabrication d'une opale monocouche emprisonnée entre les deux fenêtres de la cellule (Figure c-1) jamais encore réalisée par le groupe [ROM].

Bibliographie :

- [ROM] Romanelli, M., Maurin, I., Todorov, P., Chan, C. H., & Bloch, D. (2007). A 2D nanosphere array for atomic spectroscopy. *Ann. Phys. (Paris)*, 32 (2007) 127.