



HAL
open science

Interaction Casimir-Polder entre atome de césium et surface de saphir thermiquement émissive

João Carlos de Aquino Carvalho

► **To cite this version:**

João Carlos de Aquino Carvalho. Interaction Casimir-Polder entre atome de césium et surface de saphir thermiquement émissive. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université de Paris 13, 2018. Français. NNT: . tel-01886223v1

HAL Id: tel-01886223

<https://hal.science/tel-01886223v1>

Submitted on 2 Oct 2018 (v1), last revised 21 Mar 2020 (v2)

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.

UNIVERSITÉ PARIS 13
SORBONNE PARIS CITÉ
INSTITUT GALILÉE

LABORATOIRE DE PHYSIQUE DES LASERS

THÈSE
pour obtenir le grade de
DOCTEUR EN PHYSIQUE DE L'UNIVERSITÉ PARIS 13

présentée par

João Carlos DE AQUINO CARVALHO

le 09 Juillet 2018

Sujet de la thèse :

Interaction Casimir-Polder entre atome de césium et surface de saphir thermiquement émissive

JURY COMPOSÉ DE :

Mme. Laurence PRUVOST	Présidente
M. Stéphan BRIAUDEAU	Rapporteur
M. Cyriaque GENET	Rapporteur
M. Daniel BLOCH	Directeur de la thèse
M. Athanasios LALIOTIS	
M. Domingos DE SOUSA MENESES	
M. Yannick DE WILDE	

Rapport sur les travaux de

Monsieur João Carlos DE AQUINO CARVALHO

En vue de la soutenance d'une thèse de doctorat

de l'Université Paris 13

par Stéphan BRIAUDEAU, Maître de conférences (HDR,) affecté au Conservatoire National des Arts et Métiers (Laboratoire Commun de Métrologie LNE Cnam).

Le mémoire présenté par Monsieur João Carlos DE AQUINO CARVALHO est intitulé « **Interaction Casimir-Polder entre atome de césium et surface de saphir thermiquement émissive** ».

Le mémoire de thèse comporte un résumé (en français et en anglais) et est structurée en huit chapitres allant de l'introduction générale à la conclusion générale :

- 1) Introduction générale
- 2) Etude de l'interaction Casimir-Polder entre un atome et une surface thermiquement émissive
- 3) Critères de choix pour la surface et le niveau atomique : Interaction Casimir-Polder résonnante entre un atome et une surface
- 4) Technique utilisée pour la détection de l'interaction Casimir-Polder : Spectroscopie de réflexion sélective
- 5) Résultats expérimentaux de mesure du C_3 en fonction de la température à partir de la réflexion sélective sur les niveaux $7P_{1/2}$ et $7P_{3/2}$ du césium
- 6) Etude de l'interaction Casimir-Polder entre un atome excité sur la première raie d'absorption du césium et une surface de saphir
- 7) Etude de la fluorescence rétrodiffuse en milieu optiquement épais
- 8) Conclusion générale

Analyse détaillée du manuscrit

L'**Introduction générale** présente un historique complet et bien structuré des avancées scientifiques sur la description et l'observation de l'interaction atome surface allant du régime de van der Waals au régime de Casimir-Polder. La méthodologie adoptée est clairement expliquée. Les enjeux actuels sont bien décrits : étudier expérimentalement la dépendance en température de l'interaction résonnante Casimir-Polder entre un atome et un diélectrique. Le choix de la technique expérimentale de spectroscopie de réflexion sélective utilisée est bien argumenté, tout comme la nécessité de mesurer l'émissivité du matériau diélectrique utilisé dans les expériences, et ce sur une large gamme de température.

Le **second chapitre** « Etude de l'interaction Casimir-Polder entre un atome et une surface thermiquement émissive » présente le modèle théorique de l'interaction Casimir-Polder en champ proche (sans retard) allant du cas le plus simple (atome à symétrie sphérique et surface parfaitement réfléchissante) au cas le plus complexe et correspondant aux configurations expérimentales des mesures réalisées dans ces travaux (atome excité et surface diélectrique de température non nulle pouvant présenter des résonances). L'approche du second chapitre est très pédagogique puisque la théorie de l'interaction Casimir-Polder est introduite historiquement. Les modèles présentés sont

ramenés à leur plus simple expression mathématique grâce aux importantes références bibliographiques mentionnées. La théorie étudiée s'appuie sur le modèle de J. M. Wylie & J. E. Sipe pour établir la correction appliquée aux énergies des états atomiques considérés ainsi qu'à leur durée de vie, en fonction de la distance à la surface. Le modèle présente la dépendance de ces corrections radiatives selon les états atomiques étudiés, le matériau diélectrique constituant le dioptre, ainsi que sa température : il se résume essentiellement au coefficient appelé C_3 . PS : La constante diélectrique du dioptre n'est pas modélisée ici puisqu'elle est plus précisément étudiée au chapitre suivant de cette thèse.

Le troisième chapitre « Critères de choix pour la surface et le niveau atomique : Interaction Casimir-Polder résonnante entre un atome et une surface » argumente le choix du saphir (diélectrique utilisé dans les expériences menées dans ces travaux) pour ses propriétés thermiques et mécaniques ainsi que pour la présence d'une résonance infrarouge permettant un couplage résonnant en émission avec les atomes de césium autour de la longueur d'onde infrarouge de 12,15 μm . Le rappel des résultats précédemment obtenus par l'équipe d'accueil sur l'interaction Casimir-Polder entre un atome de césium et un diélectrique permet d'apprécier l'ampleur, la difficulté et l'originalité des travaux expérimentaux présentés dans cette thèse : la qualité des résultats obtenus est vraiment remarquable. Un rappel sur la collaboration scientifique menée en amont avec le groupe de recherche « Grandeurs radiatives et thermiques des matériaux » du CEMHTI à Orléans explique les mesures de la constante diélectrique ($\epsilon(\omega)$) du saphir qui ont été réalisées à différentes températures (295, 700, 1000 K). Le souci du détail permet au lecteur d'apprécier la pertinence de ces données utilisées pour modéliser l'interaction Casimir-Polder entre un atome de césium et une surface de saphir. La réponse de la surface du saphir est analysée après comparaison à d'autres données bibliographiques permet de conclure sur la pertinence du choix des résultats du CEMHTI pour la modélisation. Ce chapitre décrit aussi brièvement la modélisation quantique de la constante diélectrique du saphir utilisée par le CEMHTI. Avec ce modèle, le doctorant peut calculer la constante diélectrique pour une température d'utilisation donnée différente de celle du CEMHTI et pour la longueur d'ondes infrarouge (8 – 24 μm) du couplage atome-surface mis en jeu. A partir de ces données, la valeur du coefficient C_3 est estimée pour les états du Cs ($7P_{1/2}$ et $7P_{3/2}$) sondés par spectroscopie de réflexion sélective sur la gamme de température 0-1200 K. Le manuscrit explique bien la différence entre ces deux états : seul l'état $7P_{1/2}$ présente un couplage fortement résonant en absorption (transition dipolaire $7P_{1/2} - 6D_{3/2}$ à 12,15 μm) avec l'émission thermique du saphir alors que l'état $7P_{3/2}$ présente aucun couplage résonnant avec le saphir. La modélisation réalisée par le doctorant montre en effet :

- une forte augmentation du coefficient C_3 avec la température pour l'état $7P_{1/2}$ du Cs
- une très légère diminution du coefficient C_3 avec la température pour l'état $7P_{3/2}$ du Cs

Ce chapitre prédit aussi l'évolution avec la température du taux de transfert (nommé Γ_3) de l'énergie du diélectrique vers l'atome. Les modélisations de la dépendance des coefficients $C_3(T)$ et $\Gamma_3(T)$ sont aussi analysées par le doctorant au regard de la forme spectrale de la constante diélectrique $\epsilon(\omega)$ du saphir choisie (littérature, mesures réalisées par le CEMHTI).

Le quatrième chapitre intitulé « Technique utilisée pour la détection de l'interaction Casimir-Polder : Spectroscopie de réflexion sélective » décrit la technique spectroscopique utilisée pour sonder l'interaction atome-surface. Ce chapitre débute par un rappel historique de la Spectroscopie de réflexion sélective qui permet de sonder optiquement les atomes proches de la surface diélectrique. Le calcul semi-classique (matrice densité) du signal est d'abord exposé sans interaction atome surface (RS), puis en présence de cette dernière (RSFM). La singularité logarithmique de la résonance dipolaire enregistrée en réflexion sélective est clairement expliquée, tout comme l'utilisation de la modulation de fréquence pour réduire cette singularité par dérivation et faire apparaître une résonance sub-Doppler plus sensible au paramètre $C_3(T)$. La dépendance de la forme de la résonance dipolaire sub-Doppler (RSFM) avec les coefficients $C_3(T)$ et $\Gamma_3(T)$ qui lui sont rattachés est étudiée en détail, illustrée

par beaucoup de courbes. La résolution sub-Doppler de cette résonance doit donc permettre d'ajuster numériquement les paramètres d'interaction Cs-saphir théoriques à partir des spectres expérimentaux enregistrés, objet du chapitre suivant.

Le cinquième chapitre intitulé « Résultats expérimentaux de mesure du C_3 en fonction de la température à partir de la réflexion sélective sur les niveaux $7P_{1/2}$ et $7P_{3/2}$ du césium » est probablement le chapitre le plus important de ce manuscrit de thèse puisqu'il relate la majeure partie des résultats expérimentaux obtenus ainsi que leur analyse. Après une brève introduction, ce chapitre décrit les composantes hyperfines du système atomique sondé par spectroscopie de Réflexion Sélective. Les probabilités de transitions dipolaires hyperfines permises sont calculées ainsi que la pression et la densité atomique en fonction de la température du réservoir de césium qui permet de contrôler la pression de vapeur saturante. Le montage expérimental est alors détaillé (source laser, cavité Fabry Pérot d'analyse, cellule de saphir avec surface super polie, le chauffage, le système de mesure et de contrôle de température ainsi qu'un montage d'absorption saturée utilisé comme référence de fréquence). La température de la fenêtre de saphir fait varier celle du gaz atomique, donc sa pression ainsi que les effets collisionnels afférents. Un paragraphe est donc dédié à la mesure du décalage et de l'élargissement collisionnel des transitions dipolaires du césium ($6S_{1/2} \rightarrow 7P_{1/2}$ et $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$) sondées en volume par absorption saturée (pas d'effet d'interaction atome-surface) en fonction de la pression (déduite de la température de la cellule) pour $P < 100$ mTorr. La seconde partie de ce cinquième chapitre est dédiée à l'analyse des spectres hyperfins des transitions $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{1/2}$ et $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$ du césium observés par réflexion sélective en modulation de fréquence. L'optimisation par moyennage du rapport signal à bruit est décrite ainsi que la procédure d'ajustement numérique du modèle. L'évolution en température du coefficient $C_3(T)$ est donc déduite de l'ajustement numérique de chaque résonance du spectre hyperfin du césium. Dans un premier temps, l'ajustement numérique ne tient pas compte de l'effet de l'interaction Casimir-Polder sur la largeur spectrale de la transition hyperfine sondée. La consistance de ces résultats a été vérifiée en modifiant la pression de vapeur saturante mais en conservant une température constante pour la surface de saphir : le coefficient C_3 est bien invariant alors que la pression a varié d'environ 10 à 100 mTorr. La tentative d'ajustement numérique du coefficient $B_3(T)$ est intéressante car elle démontre la faible sensibilité du spectre de réflexion sélective à la largeur spectrale, et ce, même à forte température (1073 K). Il semble qu'une piste intéressante de progression de la méthode d'ajustement numérique se dégage de ce paragraphe. Le paragraphe suivant analyse la comparaison des résultats expérimentaux obtenus ($C_3(T)$ pour les états $7P_{1/2}$ et $7P_{3/2}$) à la modélisation de l'interaction atome de césium-surface de saphir réalisée au troisième chapitre. Pour l'état $7P_{1/2}$ (interaction résonnante), la tendance théorique est confirmée (augmentation de $C_3(T)$ avec T) malgré un désaccord visible à haute température. Pour l'état $7P_{3/2}$ (interaction non résonnante), la tendance théorique est aussi confirmée ($C_3(T)$ presque invariant avec T) mais le désaccord s'étend sur toute la gamme de température (400-1100 K). Une hypothèse est formulée sur de possibles erreurs sur les amplitudes des transitions dipolaires qui interviennent dans le calcul de $C_3(T)$. Afin d'expliquer l'écart théorie - expérience observé, le dernier paragraphe de ce chapitre discute la validité du modèle utilisé (potentiel Casimir-Polder en champ proche) pour interpréter les spectres de réflexion sélective observés. Pour la transition $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{1/2}$, l'écart entre le potentiel d'interaction atome-surface et le potentiel Casimir Polder en régime champ proche reste faible jusqu'à une distance de 500 nm grande devant la distance sondée par réflexion sélective : cette hypothèse n'est donc pas plausible. Pour la transition $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$, l'écart entre le potentiel d'interaction atome-surface et le potentiel Casimir Polder en régime champ proche est important (30%) aux très courtes distances ($z < 300$ nm) devant la distance sondée par réflexion sélective ; ce qui rend cette hypothèse plausible pour cette transition.

La conclusion de ce chapitre mentionne l'assez bonne description des observations par le modèle pour la transition dipolaire $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{1/2}$ qui présente (à haute température) un couplage résonnant entre la surface de saphir et l'atome de césium. Elle mentionne aussi l'erreur importante (facteur 2 à haute

température) entre le modèle et l'expérience persistant pour la transition $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$ qui ne présente pourtant pas de couplage résonnant atome-surface. Pour cette dernière transition les raisons de discordance ne paraissent pas encore très claires.

Le sixième chapitre intitulé « Etude de l'interaction Casimir-Polder entre un atome excité sur la première raie d'absorption du césium et une surface de saphir ». L'introduction de ce chapitre explique la motivation de ce travail dont l'originalité réside dans l'étude de l'interaction atome surface par spectroscopie de réflexion sélective à très faible pression. Dans ce régime collisionnel, la largeur spectrale de la résonance de réflexion sélective devrait s'approcher de la largeur naturelle de l'état excité. Ce chapitre décrit le système atomique hyperfin sondé : la transition D_1 du césium : $6S_{1/2} \rightarrow 6P_{1/2}$ qui ne présente aucun couplage résonant avec la surface diélectrique. Le dispositif expérimental est bien décrit, similaire à celui utilisé au chapitre précédent mais à une longueur d'onde différente. Comme attendu, l'état $6P_{1/2}$ ne présente pas de couplage résonant avec la surface et est très peu sensible à sa température. L'ajustement numérique des spectres de réflexion sélective montre l'invariance du coefficient $C_3(T)$ avec la température de surface (pour une température du queusot stabilisée). Néanmoins, la même analyse numérique fait aussi apparaître une très forte variation de la largeur naturelle avec la pression qui s'ajoute ainsi qu'une largeur naturelle trop importante (facteur deux) à très faible pression (0,02 mTorr). Des études complémentaires semblent donc nécessaires afin d'expliquer la largeur spectrale du spectre de réflexion sélective observée à très faible pression.

Le septième chapitre intitulé « Etude de la fluorescence rétrodiffuse en milieu optiquement épais » permet de mettre en évidence la frustration de l'excitation des atomes incidents à la surface et proches de cette dernière. L'interprétation des spectres de fluorescence n'est pas simple car pour certaines transitions dipolaires, la fluorescence peut aussi s'expliquer par des processus collisionnels ou encore par le rayonnement du corps noir issu du dioptre diélectrique. Une expérience d'excitation sélective (en vitesse) et donc dépendante de l'orientation du laser pompe, a permis d'observer une frustration de l'excitation pour les atomes incidents à la surface dont la composante de vitesse normale est trop importante. Notamment, ce chapitre explique l'observation de structure sub-Doppler dans le spectre de fluorescence rétrodiffuse avec un modèle simple prenant en compte le régime transitoire de l'excitation laser causé par les collisions atome-surface. La détection synchrone en modulation de fréquence permet alors, comme pour la réflexion sélective de lever la singularité logarithmique des résonances du Doppler observées. Ces observations expérimentales et leur modélisation infirment l'explication donnée par de précédents sauteurs sur l'origine de cette structure sub-Doppler dans le spectre de fluorescence rétrodiffusé. Enfin ce chapitre est complété par l'article « Phys. Rev. A 96 043405 (2017) » publié par l'auteur pendant sa thèse.

La conclusion générale reprend les conclusions des chapitres précédents notamment la démonstration expérimentale d'un couplage résonnant surface-atome qui permet de peupler des états atomiques ainsi que l'observation et l'explication de structures sub-Doppler dans le spectre de fluorescence rétrodiffusé. Les points à améliorer ne sont pas occultés et sont sources de discussions et d'études à venir : désaccord partiel entre modèle et observation sur l'amplitude de l'interaction Casimir-Polder pour certaines transitions dipolaires ainsi qu'une surestimation de la largeur naturelle par réflexion sélective observée à très basse pression pour la première fois. Ces travaux remettent en question la connaissance des amplitudes de transitions ou la résonance de la constante diélectrique du saphir avec la température. Perspectives de ces travaux : afin de conforter l'existence d'un transfert d'énergie thermique résonant de la surface de saphir à température non nulle vers les atomes de césium proches de la surface, une expérience pompe-sonde est en cours de réalisation dans laquelle un laser intense transfère la population de l'état fondamental vers un état relai. Le transfert de l'énergie de la surface chaude à l'atome qui le fait passer dans un état relai sera sondé par réflexion sélective.

Synthèse des principaux commentaires et avis du rapporteur

Points forts

Travail expérimental important ; complexité de l'interprétation des résultats et de la physique de l'interaction atome-surface. Très bonne compréhension de la physique sous-jacente.

Points faibles

Rédaction en français (qui n'est pas la langue naturelle de l'auteur), conclusions quelque fois un peu qualitative mais en majeure partie en raison de la méconnaissance des certains paramètres expérimentaux.

Valeur scientifique

Ce sujet de thèse expérimental comporte une complexité expérimentale ainsi que théorique notoires. Les travaux de recherche présentés dans ce manuscrit apportent une importante contribution à l'étude de l'influence de la température sur l'interaction Casimir-Polder entre un atome (ici alcalin) et la surface d'un matériau diélectrique présentant une résonance (saphir). Cette étude originale a permis de confronter la théorie à l'expérience pour la première fois sur une large gamme (400-1100 K), pour des interactions résonnantes et non résonnantes ainsi qu'à très faible pression (0,001 Pa). Le modèle théorique utilisé s'inspire du potentiel d'interaction résonnant Casimir-Polder. La méconnaissance de la constante diélectrique du diélectrique utilisé ou encore des amplitudes de transitions dipolaires atomiques rendent l'interprétation des résultats plus délicate. Par exemple, les expériences menées à très faible pression (20 μ Torr) montrent une surévaluation de la largeur spectrale mesurée par réflexion sélective. Ces travaux confirment donc la nécessité d'une meilleure caractérisation de la constante diélectrique de la surface et d'une meilleure connaissance des amplitudes de transition du système atomique pour confirmer l'interaction Casimir Polder avec une meilleure incertitude.

La structure de la thèse est cohérente, l'articulation entre les parties consécutives est logique. La mise en situation et en contexte est bien décrite avec des introductions et des rappels historiques très utiles. L'argumentation scientifique est rigoureuse. Elle s'appuie sur une modélisation complète ainsi que sur des résultats expérimentaux testés et validés qui interdisent toute remise en cause des observations réalisées. L'analyse et l'interprétation des résultats est bien structurée. Elle reste difficile en raison de la limitation du rapport signal à bruit mais aussi en raison de la méconnaissance de certains paramètres expérimentaux (constante diélectrique du saphir, amplitudes de transitions atomiques ...). Si un système plus simple ou plus sensible existait, les auteurs l'auraient certainement testé depuis longtemps. La majeure partie de ces travaux valide l'interaction atome surface résonante en présence d'une surface émissive. Enfin cette thèse soulève des interrogations utiles et mentionne des pistes d'études futures afin d'affiner la compréhension de l'interaction Casimir Polder sur des systèmes atome-surface complexes.

Qualité de la présentation

Le style est simple, direct et clair. La partie théorique de la thèse est traitée avec pédagogie et réduite au stricte nécessaire : la modélisation débute par un modèle simple qui est complété jusqu'au degré de complexité requis par les expériences. Quelques rares corrections (mineures) de la langue française restent encore peut-être à apporter au manuscrit. La qualité des illustrations et des tableaux est bonne. Attention néanmoins à bien veiller à ce que chaque illustration reste au service de la compréhension du manuscrit. Les références bibliographiques sont exhaustives et elles respectent les normes en vigueur.

Commentaires généraux

L'auteur fait indéniablement preuve de grandes capacités scientifiques mais aussi pédagogiques. A partir d'une approche structurée et rigoureuse, il a mis en œuvre différentes méthodes expérimentales afin de tester les différents paramètres de l'interaction atome surface. Critique, il a su soulever d'importantes questions à étudier pour suggérer les perspectives futures de ses travaux. Enfin, il a su interpréter des expériences complexes et mettre en évidence des effets physiques que d'autres auteurs ont confondus avec des effets physico-chimiques.

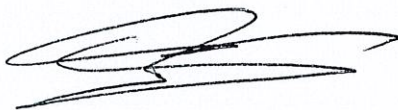
Enseignant chercheur en métrologie des températures, notamment en pyrométrie optique, j'ai pu apprécier la difficulté de la thèse présentée. En effet, la méconnaissance de l'émissivité du corps noir réel étudié est généralement la composante d'incertitude principale en pyrométrie optique. Ce manuscrit m'a montré l'importance de sa connaissance sur la physique de l'interaction atome-surface. Il faut néanmoins rappeler que les meilleures mesures d'émissivité sont entachées d'une incertitude relative de l'ordre de quelques % dès lors que l'émissivité est inférieure à 0,95. A ma connaissance les laboratoires nationaux de métrologie n'ont pas développé de banc de mesure d'émissivité pour des matériaux diélectriques présentant des résonances comme le saphir. Ces travaux motiveront peut-être les métrologues sur ce point ?

CONCLUSION

Au regard des importants résultats obtenus et de la grande qualité d'ensemble du manuscrit, je donne un avis très favorable pour que Monsieur João Carlos DE AQUINO CARVALHO soutienne sa thèse devant un jury. Je tiens à le féliciter pour sa démarche scientifique, sa rigueur et ses capacités d'analyse qui démontrent ses grandes qualités de chercheur. La thèse ne comporte pas de déficiences scientifiques et le manuscrit ne présente pas de partie à corriger en profondeur. Après la soutenance, le candidat sera susceptible d'apporter à sa thèse les corrections mineures demandées par les membres du jury.

Etabli à Saint Denis, le 25 juin 2018

Stéphan Briaudeau



A qui de droit

Strasbourg, le 28 juin 2018

Rapport sur la thèse présentée par M. Joao Carlos De Aquino Carvalho pour obtenir le grade de docteur en physique de l'Université Paris 13.

Madame, monsieur,

La thèse présentée par M. De Aquino Carvalho porte sur l'étude de l'interaction de type Casimir-Polder de champ proche entre atomes de césium et une surface de saphir. Ce travail développe un nombre important de problématiques actuelles en spectroscopie haute-résolution et dans le cadre des interactions transitions atomiques – champs optiques en régime thermique. L'approche très complète adoptée dans ce travail et la grande maîtrise expérimentale associée permettent au candidat de présenter dans ce travail une série de résultats importants et originaux.

Le travail principal est la mesure des effets thermiques sur les coefficients de van der Waals C_3 d'états excités au voisinage d'une surface, en régime de couplage résonant et non-résonant - fonction du choix de la transition $7P_{1/2}$ ou $7P_{3/2}$ - entre la transition atomique et un mode polaritonique de surface excité thermiquement. La nouveauté et la force de ce travail sont d'avoir inclus les effets thermiques dans la mesure de l'interaction van der Waals. Le deuxième aspect très intéressant du travail est l'analyse de la modification de durée de vie des états excités. Cette modification strictement résonante doit permettre en effet de quantifier la force d'interaction entre l'atome de césium et le mode polaritonique du saphir. Du point de vue du transfert d'énergie entre l'atome et le polariton, le candidat souligne bien l'importance, à la fin du Chapitre 3, de prendre en compte l'influence de la température sur la réponse optique de la surface elle-même.

L'ensemble des résultats sont présentés au Chapitre 5. Je souligne la précision du travail pour lequel le candidat met en œuvre un savoir-faire de pointe en spectroscopie, exploitant la technique de réflexion sélective en fréquence modulée (RSFM) mise en place dans l'équipe d'accueil « Spectroscopie atomique aux interfaces » du LPL. Dans cette thèse, le candidat est parvenu à améliorer la qualité des signaux à faible densité, indispensable à la mesure des effets thermiques. Cette capacité et la méthodologie de traitement des signaux (présentées en détail au Chapitre 4) permettent, pour la première fois, une discussion complète des effets combinés de déplacement d'énergie et de modification de durée de vie, même si pour ce dernier effet, les mesures ne semblent pas permettre de quantifier l'effet du transfert d'énergie atome-polariton de surface. L'approche développée dans ce chapitre permet également de confronter les résultats expérimentaux aux prédictions théoriques et de mener une discussion critique des incertitudes expérimentales et théoriques à l'origine possible des désaccords relevés. Ces résultats mènent vers des questions évidentes sur l'analogie entre transfert d'énergie à température non-nulle et les processus atome-polariton de type Förster. Dans ce cadre, la possibilité d'une étude résolue spatialement permettrait de discuter de la transition champ proche /

champ lointain avec une précision spectroscopique inégalée. Il n'est pas évident cependant que cette étude soit possible à mener dans le cadre de la RSFM qui sonde le voisinage immédiat de la surface.

L'expertise développée et le rapport signal à bruit atteint au Chapitre 5 permettent au candidat de présenter au Chapitre 6 du manuscrit une nouvelle série de mesures sur le coefficient de van der Waals de la transition $6S_{1/2} - 6P_{1/2}$ auparavant étudiée dans l'équipe, mais ici dans des conditions inégalées de contrôle (surface polie) et de pression (faible densité atomique : élargissement collisionnel négligeable). Ces mesures, présentées comme devant être des mesures de contrôle, donnent des résultats intéressants avec la signature d'un effet de retard sur le C_3 et une largeur de raie mesurée plus élevée que la largeur intrinsèque attendue en l'absence d'élargissement collisionnel. Une comparaison des méthodes RSFM et d'absorption saturée confirme ce point qui clôt le chapitre sur une énigme à résoudre, comme le souligne bien le candidat.

Le dernier chapitre du manuscrit (Chapitre 7) propose d'étudier sur la fluorescence elle-même le transfert d'énergie entre l'atome et le polariton excité thermiquement à la surface de la cellule. L'idée m'a semblée particulièrement intéressante, venant comme en écho des premières mesures historiques de modification de durée de vie (expériences de K.H. Drexhage (1966) par exemple). Ici cependant, la stratégie expérimentale est évidemment différente étant donné le nombre important de chemin de désexcitation possible à partir des niveaux excités $7P_{1/2}$ ou $7P_{3/2}$. Le signal mesuré dans ce travail est un signal de fluorescence « frustrée » dans le demi-espace extérieur de la cellule. Les spectres présentés dans ce chapitre montrent des effets de transfert d'excitation collisionnels et de peuplement par photons thermiques. Le point intéressant relevé est une diminution de l'efficacité de fluorescence de désexcitation à partir de $6D_{1/2}$. Une telle diminution a été interprétée jusqu'alors comme un effet d'augmentation du taux de relaxation non-radiatif au voisinage de la surface – en invoquant la formation d'un dépôt d'atomes de Cs agissant comme une couche métallique dissipative. Mais comme le démontre clairement le candidat, cette diminution possède une structure sub-Doppler qui est la signature d'un processus de sélectivité en vitesse sur la fluorescence, disqualifiant tout effet « métallique » de surface. Ce travail très précis a donné lieu à une publication dans Physical Review A parue en 2017.

En conclusion, le candidat rassemblé dans son manuscrit de thèse un grand nombre de résultats originaux relatifs (i) à l'interaction van der Waals/Casimir-Polder atome-surface, en tenant compte des effets thermiques, et (ii) aux effets dits de « rétrofluorescence », avec une réinterprétation précise et étayée du mécanisme de suppression de la fluorescence. Améliorant les conditions expérimentales (rapport signal à bruit, contrôle des surfaces, régime de travail à faible taux de collision), le candidat fait indiscutablement la preuve de ses grandes compétences expérimentales et de sa maîtrise du sujet. Grâce à elles, il est capable d'aborder des problèmes très complexes d'interaction atome-surface, en ouvrant des perspectives nouvelles sur le sujet. Pour ces raisons, M. De Aquino Carvalho mérite sans réserve aucune d'être autorisé à soutenir sa thèse pour obtenir le titre de Docteur en Physique de l'Université Paris 13.

Cordialement,



Cyriaque Genet
Directeur de Recherche CNRS (DR2)
ISIS – Laboratoire des Nanostructures
Tel : 03 68 85 51 96
Email : genet@unistra.fr

PROCÈS - VERBAL DE SOUTENANCE

DOCTORAT DÉLIVRÉ PAR L'UNIVERSITÉ SORBONNE PARIS CITÉ ET PRÉPARÉ
A L'UNIVERSITÉ PARIS 13

(Arrêté du 25 mai 2016)

Ecole Doctorale Sciences, Technologie, Santé, Galilée (ED 146)

SPECIALITE : Physique

Le **Lundi 9 juillet 2018**, les membres du jury étant réunis sous la présidencede Mme PRUVOST Laurence**Monsieur Joao Carlos DE AQUINO CARVALHO**né le **9 septembre 1988** à **Recife-PE (BRESIL)**

a présenté une thèse de Doctorat intitulée :

Interaction Casimir-Polder entre atome de césium et surface de saphir thermiquement émissive.


- Les membres du jury soussignés, ayant délibéré, l'ont admis et déclaré digne du titre de Docteur de l'Université Sorbonne Paris Cité.
- ~~Les membres du jury soussignés, ayant délibéré, l'ont ajourné.~~

(rayer la mention inutile)

ONT SIGNÉ :

Nom, Prénom, fonction ou qualité et lieu d'exercice de chaque membre du jury, signatures (à l'exception du ou des directeur(s) de thèse)

BLOCH Daniel, Directeur de Recherche, Université Paris 13

BRIADEAU Stéphane, MCF-HDR, Conservatoire national des arts et métiers DE SOUSAS MENESES Domingos, Maître de Conférences HDR, Centre de Recherche sur les Matériaux à Haute Température DE WILDE Yannick, Directeur de Recherche, ESPCI GENET Cyriaque, Directeur de Recherche CNRS, Université de Strasbourg 

LALIOTIS Athanasios, Maître de Conférences, Université Paris 13

PRUVOST Laurence, Directrice de Recherche, Université Paris Sud 

Conformément à l'arrêté du 25 mai 2016 l'école doctorale Galilée ne délivre plus de mention.

Conformément à l'arrêté du 25 mai 2016, les directeurs ou directrices de thèse ainsi que les co-encadrants participent à l'ensemble du huis-clos mais n'interviennent pas lors de la prise de décision concernant l'admission ou l'ajournement.

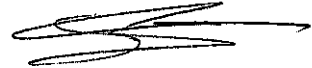
www.univ-paris13.fr

Villetaneuse* Saint-Denis* Bobigny* Saint-Denis-La Plaine* Argenteuil

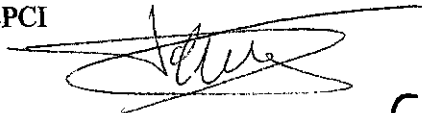
Villetaneuse, le

RAPPORT DE SOUTENANCE DE THESE(DOCTORAT DE L'UNIVERSITE SORBONE PARIS CITÉ ET PRÉPARÉ
A L'UNIVERSITÉ PARIS 13)SPECIALITE : **Physique**PRENOM ET NOM du. De la CANDIDAT. E : **Monsieur Joao Carlos DE AQUINO CARVALHO**PRENOM ET NOM DU. DE LA PRESIDENT. E du JURY : *Mme PRUVOST Laurence*SIGNATURES des Membres du Jury (y compris le ou les directeur(s) de thèse):BLOCH Daniel, Directeur de Recherche, Université Paris 13

BRIADEAU Stéphane, MCF-HDR, Conservatoire national des arts et métiers

DE SOUSAS MENESES Domingos, Maître de Conférences HDR, Centre de Recherche sur les
Matériaux à Haute Température *Domingos*

DE WILDE Yannick, Directeur de Recherch, ESPCI



GENET Cyriaque, Directeur de Recherche CNRS, Université de Strasbourg

cyriaque

LALLOTIS Athanasios, Maître de Conférences, Université Paris 13



PRUVOST Laurence, Ditrectrice de Directrice de Recherche, Université Paris Sud1



RAPPORT sur la SOUTENANCE :

(Cette feuille constitue la première page du rapport de soutenance ; ce dernier sera libellé au verso de ce document et si nécessaire, des pages complémentaires peuvent être annexées).

RAPPORT SUR LA SOUTENANCE :

Monsieur Joao Carlos de Aquino Carvalho a présenté –en français- son travail de thèse intitulé « interaction de Casimir-Polder entre atome de césium et surface de saphir thermiquement émissive », qui concerne des observations expérimentales de l'interaction d'atomes excités avec une surface par une analyse spectrale de la réponse atomique. Ce travail est nouveau car il concerne notamment le cas résonnant où la résonance de polariton est proche d'une transition atomique.

Pour cette présentation M. de Aquino Carvalho a choisi un plan différent de celui du manuscrit, ce qui a rendu l'exposé particulièrement pédagogique et agréable à suivre. La synthèse et le visuel par des illustrations adaptées lui ont permis de mettre en relief les points forts d'un sujet réputé difficile et de faire ressortir les spécificités des résultats expérimentaux : une spectroscopie de haute résolution sur des vapeurs à très basses pressions, avec des lasers de très faibles puissances qui demandent un soin particulier notamment pour les détections et pour le calibrage.

La grande quantité de résultats expérimentaux a été soulignée par le jury. Elle a suscité de nombreuses questions du jury. Les réponses de M. de Aquino Carvalho ont été précises attestant la maîtrise de son dispositif expérimental et du sujet. Pour certaines d'entre elles, plus ouvertes, M. de Aquino Carvalho a montré sa connaissance de l'état de l'art et un recul tout à fait remarquable. Il a aussi fait des suggestions d'expériences à entreprendre, comme d'utiliser d'autres niveaux excités ou choisir d'autres surfaces, ce, en les justifiant par des ordres de grandeurs et des critères de faisabilité.

En résumé, le jury a jugé la soutenance de M. de Aquino Carvalho riche de résultats, exposés de façon claire et pédagogique et offrant une discussion scientifique soutenue et d'un niveau relevé.

Lawrence PRUVOST

SIGNATURE DU PRESIDENT DU JURY

REMERCIEMENTS

Je remercie à mon père (Artur Gontran), à ma mère (Valéria) et à ma petite sœur (Lídia Vitória) qui m'ont bien encouragé ;

Je tiens à remercier Daladiane Matos (mon épouse) qui m'a bien soutenu tout au long de notre de vie ensemble, surtout, pendant mon doctorat, en acceptant de quitter le Brésil pour emménager avec moi en France ;

Je remercie à mon directeur de thèse Daniel Bloch pour m'avoir accepté dans l'équipe et d'avoir bien dirigé cette thèse, partageant tout son savoir scientifique. Il était toujours disponible à des discussions scientifique, en sachant bien transmettre son savoir. Je tiens à le remercier aussi pour les corrections de ma thèse, notamment mon français ;

Je remercie Isabelle Maurin pour les bons moments scientifiques et non-scientifiques, pendant ma thèse. Elle est bien capable de remonter la morale. Je tiens aussi à remercier Athanasios Laliotis pour tous les bons moments durant mon doctorant et pour m'apporter des éléments très importants pour ma formation académique et pour avoir partagé ses connaissances scientifiques ;

Je remercie également Martial Ducloy pour toutes les discussions, sûrement très constructives ;

Je tiens mes remerciements à Paolo Pedri et Jean Marc Martin, pour ses amitiés et les moments inoubliables. Ils sont aussi des très bons scientifiques ;

Je remercie à Pedro Chaves de Souza Segundo d'avoir participé activement dans ma thèse, surtout au début, qui m'a bien appris sur les techniques utilisées dans l'équipe et aussi des appareillages électroniques. En plus de tous les bons moments non-scientifiques ;

Je remercie Horacio Failache pour bien m'avoir accueilli dans son équipe pendant mes

séjours en Uruguay et aussi pour tous l'échanges scientifiques. Je remercie également à tous les membres de son équipe : Arturo Lezama, Santiago Villalba, Lorenzo Lenci et Adriana Auyuanet. Je tiens aussi à remercier Paulo Valente pour son amitié et les bons moments à Montevideo. Je remercie aussi à Sergio Barreiros par les courts et bons moments ;

Je remercie au directeur du LPL Olivier Gorceix pour m'avoir accepté comme étudiant de doctorat ;

Je remercie à Marcos Oriá et Marine Chevrollier pour tous leurs bons conseils, amitié, échanges scientifiques et des encouragements. J'ai fait mon doctorat en France grâce à eux aussi ;

Je remercie aussi à Thierry Passerat de Silans pour bien m'aider pendant mon Master au Brésil et les moments non-scientifiques ;

Je tiens mes remerciements à Abinael, Priscila, Itallo, Antônio Carlos et Edinaldo, car ils m'ont bien appris aussi la physique ;

Je remercie aussi les amitiés que j'ai fait pendant mon doctorat au LPL : Serge-Daniel, Thomas Gallineli, Kader, Lachene, Franck Correia, Kaci Kechadi, Elias Moufarej, Junior Lukusa, Francisco Perales, Gabriel Dutier, Jack Baudon, Laurent Vernac, Benoît Darquié et Sean Tokunaga. Je remercie aux très bons moments à toutes les personnes du foot ;

Je remercie à tous mes amis qui ont resté au Brésil et qui m'ont bien soutenu : Diba, Hercilio, Leandro, Paulinho, Roberto, et surtout à José Iraquitán ;

Je remercie Cyriaque Genet et Stéphan Briaudeau pour avoir accepté de faire un rapport sur cette thèse, et Laurence Pruvost, Yannick de Wilde et Domingos De Sousa Meneses pour faire partie de ce jury de thèse. Je remercie aussi l'équipe de Domingos De Sousa Meneses et Patrick Echegut pour les échanges scientifiques actifs ;

Je remercie à Fabrice Wiotte, Albert Kaladjian, Thierry Billeton, Marc Barbier et Stéphane Simonazzi pour donner tous les supports techniques qu'il fallait pendant toute ma thèse.

Je remercie aussi à l'administration du LPL qui est bien efficace : Maryse Médina, Carole Grangier et Solen Guezennec ;

Je remercie à CAPES (Agence brésilienne de financements aux études et recherche) par le programme *CIÊNCIAS SEM FRONTEIRAS* par tout le financement pendant mon doctorat.

RÉSUMÉ

Nous décrivons dans cette thèse des mesures spectroscopiques de réflexion sélective qui mettent en évidence les effets thermiques de l'interaction Casimir-Polder entre atome et surface. En régime de champ proche, cette interaction est gouvernée par un potentiel qui décroît avec le cube de la distance entre l'atome et la surface (régime van der Waals -vdW- de type dipôle-dipôle). Nous nous intéressons notamment aux niveaux excités du césium Cs ($7P_{1/2}$) et Cs ($7P_{3/2}$), qui possèdent un couplage dipolaire avec Cs ($6D$) à, respectivement, 12, 15 μm et $\sim 15 \mu\text{m}$, interagissant avec une surface de saphir thermiquement émissive dont les modes émetteurs sont situés autour de 12, 2 μm . Ainsi, ces niveaux sont respectivement sensibles à une interaction vdW résonnante, ou non-résonnante, que nous comparons expérimentalement. Le résultat le plus important de cette thèse est l'observation expérimentale de la différence de comportement du potentiel vdW en fonction de la température de fenêtre (150 – 800 °C), pour les niveaux Cs ($7P_{1/2}$) et Cs ($7P_{3/2}$). Pour le niveau Cs ($7P_{1/2}$) le potentiel vdW augmente en fonction de la température, tandis que pour le niveau Cs ($7P_{3/2}$) une légère décroissance est observée. Des expériences de spectroscopie de réflexion sélective sondant le niveau Cs ($6P_{1/2}$), interagissant avec une surface de saphir chaude, ont aussi été réalisées, qui confirment pour ce niveau l'absence d'effet de température. Les prédictions théoriques sont raffinées par l'évaluation de la constante diélectrique du saphir en fonction de la température, à partir de données nouvelles d'émissivité fournies par le groupe CEMHTI à Orléans. Enfin, utilisant la fluorescence rétrodiffuse comme diagnostic pour la cellule chaude de Cs lorsque l'excitation était faite sur les niveaux Cs ($6P_{1/2}$) et Cs ($7P_{1/2}$), nous avons interprété, de façon plus consistante que les propositions précédentes de la littérature, des structures sub-Doppler observées dans l'excitation de la fluorescence au voisinage de la fenêtre.

Mot clés : Réflexion Sélective, Interaction Casimir-Polder, Champ Proche, van der Waals, Saphir, Effets Thermiques, Polariton

ABSTRACT

In this thesis we describe measurements of selective reflection spectroscopy that highlight the thermal effects of the Casimir-Polder interaction between atom and surface. In the near field regime, this interaction is governed by a potential decreasing with the cube of the distance between the atom and the surface (van der Waals -vdW- regime of dipole-dipole type). We are particularly interested in the excited levels of cesium Cs ($7P_{1/2}$) and Cs ($7P_{3/2}$), which have a dipole coupling to respectively Cs ($6D$) at $12\ \mu\text{m}$ and $\sim 15\ \mu\text{m}$ interacting with a thermally emissive sapphire surface. Sapphire emitting modes are around $12, 2\ \mu\text{m}$, and, thus, these Cs levels are sensitive to a resonant, or non-resonant, vdW interaction. We compare experimentally these levels. The most important result of this thesis is the experimental observation of the difference in behavior of the vdW potential as a function of the window temperature ($150 - 800\ \text{°C}$), for the Cs ($7P_{1/2}$) and Cs ($7P_{3/2}$) levels. For the Cs ($7P_{1/2}$) level the vdW potential increases as a function of temperature, while for the Cs ($7P_{3/2}$) level a slight decrease is observed. Selective reflection spectroscopy experiments, probing the Cs ($6P_{1/2}$) level interacting with a hot sapphire surface, were also carried out, which confirm for this level the absence of a temperature effect. The theoretical predictions are refined by the evaluation of the dielectric constant of sapphire as a function of temperature, from new emissivity data provided by the CEMHTI's group, in Orléans. Finally, we use backscattered fluorescence as a diagnosis for the Cs hot cell when exciting Cs ($6P_{1/2}$) and Cs ($7P_{1/2}$) levels. We have interpreted, in a manner more consistent than previous literature, sub-Doppler structures observed in the excitation of the fluorescence near the window.

Key-words : Selective Reflexion, Casimir-Polder Interaction, Near Field, van der Waals, Sapphire, Thermal Effects, Polariton

TABLE DES MATIÈRES

Rapport de Thèse	i
Remerciements	xiii
Résumé	xv
Abstract	xvi
1 Introduction générale	2
2 Étude de l'interaction Casimir-Polder entre un atome et une surface thermiquement émissive	9
2.1 Interaction Casimir-Polder en champ proche entre un atome et une surface parfaitement réfléchissent	10
2.2 Interaction Casimir-Polder en champ proche entre un atome et une surface diélectrique idéale	12
2.3 Interaction vdW avec une paroi diélectrique dispersive à température nulle	13
2.3.1 Atome dans l'état fondamental	14
2.3.2 Atome dans l'état excité	15
2.4 Interaction vdW avec une surface diélectrique à température non nulle . .	16
2.5 Changement de la durée de vie atomique dû à l'interaction Casimir-Polder	19
2.6 Méthode générale pour l'évaluation du C_3 et Γ_3	20
2.6.1 Forme compacte pour l'évaluation du C_3	20
2.6.2 Forme compacte pour l'évaluation du Γ_3	21
2.7 Conclusion	22
3 Critères de choix pour la surface et le niveau atomique : Interaction Casimir-Polder résonnante entre un atome et une surface	23
3.1 Résumé des résultats précédents de l'équipe SAI du LPL-UP13 sur l'interaction Casimir-Polder en régime de champ proche entre atome de césium et surfaces dispersives	24
3.2 Obtention de $\varepsilon(\omega)$ de saphir par l'évaluation du coefficient de van der Waals	26
3.2.1 Saphir	27

3.2.2	Dispositif expérimental pour l'obtention des spectres d'émissivité du saphir par la collaboration avec CEMHTI-Orléans	27
3.2.3	Méthode théorique pour déterminer $\varepsilon(\omega)$	29
3.2.4	Réponse de la surface de saphir en fonction de la température à partir des ajustements des spectres d'émissivités obtenus par le groupe CEMHTI	31
3.2.5	Discussion sur les résultats de la réponse de saphir à partir de $\varepsilon(\omega)$ obtenu par les données expérimentaux fournies par le groupe CEMHTI	35
3.3	Prédictions du C_3 pour les niveaux Cs ($7P_{1/2}$) et Cs ($7P_{3/2}$)	39
3.4	Prédiction de Γ_3 en fonction de la température pour les niveaux Cs ($7P_{1/2}$) et Cs ($7P_{3/2}$)	44
3.4.1	Rapport Γ_3/C_3 pour les niveaux Cs ($7P_{1/2}$) et Cs ($7P_{3/2}$)	46
3.5	Conclusion	47
4	Technique utilisée pour la détection de l'interaction Casimir-Polder : Spectroscopie de réflexion sélective	49
4.1	Premières études sur le signal de réflexion sélective	49
4.2	Théorie du signal de réflexion sélective	52
4.2.1	Formalisme général pour le champ réfléchi à une interface diélectrique-vapeur atomique	52
4.2.2	Calcul de la polarisation du vapeur atomique induit par le champ transmis	54
4.2.3	Signal de réflexion sélective tenir compte de l'interaction Casimir-Polder	56
4.3	Signal de réflexion sélective avec modulation de fréquence	58
4.3.1	Technique FM	58
4.3.2	RSFM en présence de l'interaction avec la surface	60
4.4	Conclusion	65
5	Résultats expérimentaux de mesure du C_3 en fonction la température à partir de la réflexion sélective sur les niveaux $7P_{1/2}$ et $7P_{3/2}$ du césium	66
I	Système atomique, description expérimentale et expériences auxiliaires	68
5.1	Propriétés des niveaux Cs ($7P_{1/2}$) et Cs ($7P_{3/2}$) et pression de césium	69
5.1.1	Composantes hyperfines des niveaux	69
5.1.2	Probabilité de transition et rapport de force de transition entre les sous-niveaux des états excités	70
5.1.3	Largeur Doppler des transitions $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{1/2}$ et $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$	70
5.1.4	Pression et densité de la vapeur de césium en fonction de la température	71
5.2	Le montage expérimental de réflexion sélective	72
5.2.1	Les sources lasers	74
5.2.2	Système d'acquisitions de spectres	75
5.2.3	Le Fabry-Pérot	76
5.2.4	Cellule chaude de saphir avec une surface super polie	77
5.2.4.a	Description de la cellule	77
5.2.4.b	Système de chauffage	78
5.2.4.c	Système de contrôle de température sur la cellule de saphir	80

5.2.4.d	Mesure du champ magnétique sur le four de la fenêtre de saphir super polie	81
5.2.5	Absorption saturée	82
5.2.5.a	Rappel sur l'absorption saturée	82
5.2.5.b	Description expérimentale pour l'absorption saturée de référence	83
5.2.5.c	Les spectres d'absorption saturée de référence	84
5.2.5.d	Construction d'échelle en fréquence	86
5.2.5.e	Critère de choix des spectres expérimentaux pour faire la moyenne	86
5.2.6	Mesures d'élargissement et de déplacement par pression pour les niveaux $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{1/2}$ et $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$ du césium	88
5.2.6.a	Procédure de mesure d'élargissement et de déplacement par collision et résultats	89
II	Résultats expérimentaux de l'interaction vdW	97
5.3	Observations initiales sur les spectres de réflexion sélective en fréquence modulée	98
5.4	Procédure pour les ajustements théoriques sur les courbes expérimentales de RSFM	102
5.5	Analyse des spectres expérimentaux de réflexion sélective FM pour les transitions $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{1/2}$ et $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$ pour l'obtention du C_3 en fonction de la température	104
5.5.1	Exemples d'ajustements des spectres de RSFM	105
5.5.2	Coefficient de vdW en fonction de la température de la surface avec analyse des différents sous-niveaux atomiques	108
5.5.3	Consistance des mesures de RSFM à partir des études en fonction de pression de la vapeur atomique	114
5.5.4	Analyse du rapport des amplitudes entre les spectres de RSFM des transitions $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{1/2}$ et $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$	119
5.5.5	Spectres de RSFM obtenus en différents points de la surface de saphir super polie	121
5.6	Résumé des résultats de RSFM pour le C_3	122
5.7	Ajustements théoriques sur les spectres expérimentaux de RSFM avec le paramètre B	124
III	Discussion des résultats	127
5.8	Discussions sur les résultats expérimentaux du coefficient de vdW	128
5.8.1	Discussion sur la comparaison entre les valeurs expérimentaux du coefficient de vdW et les prédictions théoriques	128
5.8.2	Discussion sur l'utilisation du potentiel Casimir-Polder "exact" ou du régime de champ proche	132
5.9	Conclusion	134
6	Étude de l'interaction Casimir-Polder entre un atome excité sur la première raie de résonance du césium et une surface de saphir	136
6.1	Évaluation du coefficient de vdW pour la transition $6S_{1/2} \rightarrow 6P_{1/2}$ du césium	137

6.2	Dispositif expérimental de la réflexion sélective pour la transition $6S_{1/2} \rightarrow 6P_{1/2}$	138
6.3	Études préliminaires sur les spectres expérimentaux de réflexion sélective pour le niveau Cs ($6P_{1/2}$)	140
6.3.1	Saturation du signal de réflexion sélective	140
6.3.2	Moyenne des spectres de RSFM	141
6.4	Obtention du coefficient de vdW de la transition $6S_{1/2} \rightarrow 6P_{1/2}$ à partir des spectres de RSFM à différentes températures de la surface de saphir	142
6.4.1	Ajustements théoriques acceptables sur les spectres de RSFM	143
6.4.2	Effet de la température sur le coefficient de vdW	144
6.4.3	Variation des paramètres des ajustements théoriques en fonction de la pression de la vapeur atomique	147
6.5	Discussion sur le potentiel d'interaction pour la transition $6S_{1/2} \rightarrow 6P_{1/2}$ du césium	151
6.6	Expériences d'absorption saturée à forte épaisseur optique	153
6.6.1	Absorption saturée AM-FM	156
6.7	Conclusion	159
7	Études de la fluorescence rétrodiffuse en milieu optiquement épais	160
7.1	Généralités sur la fluorescence	161
7.2	Niveaux d'énergie et description expérimentale	162
7.2.1	Transfert depuis les niveaux Cs ($7P_{1/2}$) et Cs ($7P_{3/2}$)	162
7.2.2	Dispositif expérimental pour collecter la fluorescence rétro-diffuse	164
7.2.2.a	Schéma de la détection	164
7.2.2.b	Description du spectromètre	164
7.2.2.c	Description du photodétecteur	165
7.3	Résultats expérimentaux obtenus par le spectro-mètre	166
7.4	Structure sub-Doppler sur un spectre d'excitation en fluorescence	170
7.4.1	Excitation à 459 nm	170
7.4.2	Excitation à 894 nm	174
7.4.3	Modèle théorique pour les structures sub-Doppler	175
7.5	Conclusions	177
8	Conclusion générale	185
	Bibliographie	196

TABLE DES FIGURES

2.1	Dipôle d'atome et son image induite sur la surface.	10
3.1	Partie réelle de la réponse de la surface de saphir d'après les données de la constante diélectrique issues de la référence [50]. Les marqueurs pour les couplages $6D_{3/2} \rightarrow 7P_{1/2}$ ($\lambda = 12, 15 \mu\text{m}$), $7P_{3/2} \rightarrow 6D_{5/2}$ ($\lambda = 14, 6 \mu\text{m}$) et $7D_{3/2} \rightarrow 5F_{5/2}$ ($\lambda = 10, 8 \mu\text{m}$) sont également montrés.	25
3.2	Résumé du résultat de l'interaction de vdW pour le système d'interaction Cs ($7D_{3/2}$) /saphir. Figure issue de [27].	26
3.3	Schéma de détection de l'émissivité de l'échantillon de saphir qui a été utilisé par le groupe CEMHTI. Figure issue et adaptée de la référence [55].	28
3.4	Spectres expérimentaux de réflectivité ajustés par le modèle semi-quantique de $\varepsilon(\omega)$ décrit par l'équation (3.4). La réflectivité (ρ) sur cette figure a été obtenue par l'expression $E = 1 - \rho$, où E est l'émissivité. Les spectres d'émissivité ont été collectés à partir d'un échantillon de saphir avec l'axe optique de biréfringence parallèle à la surface (axe C_{\parallel}). (a) Spectre de réflectivité à partir de la collection de l'émissivité polarisée verticalement (axe extraordinaire- C_{\perp}) et (b) détection de l'émissivité polarisée horizontalement (axe ordinaire- C_{\parallel}). Les ajustements sur la réflectivité (ou l'émissivité) donnent accès à la fonction diélectrique $\varepsilon(\omega)$ du saphir.	32
3.5	(a) Partie réelle de la constante diélectrique : le tireté indique où se trouve $\text{Re}(\varepsilon) = -1$. (b) Agrandissement de (a) montrant que le mode de polariton de surface se déplace avec la température. (c) Partie imaginaire de la constante diélectrique.	34
3.6	Réponse de la surface de saphir. (a) Partie réelle et (b) imaginaire de la réponse de la surface pour quelques températures, à partir des ajustements, par le modèle semi-quantique [59], des spectres d'émissivités fournis par le groupe CEMHTI.	35
3.7	Comparaison entre la réponse de la surface de saphir évaluée d'après les mesures d'Orléans et à partir de quelques données de la fonction diélectrique trouvées dans la littérature : M. Shubert <i>et al</i> [64] et A. S. Barker Jr [50]. (a) Partie réelle et (b) imaginaire. Toutes les courbes sont à $T \approx 300 \text{ K}$. . .	36

3.8 En noir les spectres détectés par un échantillon C_{\perp} et en gris par un échantillon C_{\parallel} , mais avec une détection selon l'axe ordinaire. (a) Comparaison entre les spectres de réflectivité. (b) et (c) Partie réelle et imaginaire, dans cet ordre, de la réponse de la surface d'après les ajustements faits sur les spectres de réflectivité. La réponse de la surface est évaluée comme étant $\varepsilon(\omega) = \sqrt{\varepsilon_e(\omega)\varepsilon_o(\omega)}$ 37

3.9 Comparaison entre $\text{Re} \left[\frac{\varepsilon(\omega) - 1}{\varepsilon(\omega) + 1} \right]$ et $\text{Im} \left[\frac{\varepsilon(\omega) - 1}{\varepsilon(\omega) + 1} \right]$ du saphir pris par des évaluations différentes de la constante diélectrique, où la constante diélectrique est calculée comme $\varepsilon(\omega) = [\varepsilon_o(\omega)\varepsilon_e(\omega)]^{1/2}$. Pour la réponse de la surface en trait plein, le $\varepsilon_o(\omega)$ est issu à partir des ajustements des spectres de réflectivité faits par T. Passerat de Silans [52] et $\varepsilon_e(\omega)$ obtenu conformément aux ajustements des spectres d'émissivité qui ont été présentés à la figure (3.4). Pour la réponse de la surface en trait pointillé, la constante diélectrique est calculée avec les données des axes extraordinaire et ordinaire de la surface à partir des ajustements sur la figure (3.4). 38

3.10 Couplages dipolaires vers les niveaux pris en compte pour les évaluations de C_3 et Γ_3 . (a) $C_s(7P_{1/2})$ et (b) $C_s(7P_{3/2})$ 39

3.11 Coefficient de van der Waals en fonction de la température. La réponse de la surface a été calculée d'après les ajustements des données d'émissivité fournies par le groupe CEMHTI et selon quelques données de la constante diélectrique de la surface de saphir trouvées sur la littérature : M. Shubert *et al* [64], A. S. Barker Jr [50] et T. Passerat de Silans *et al* [52] (dans ce cas, la constante diélectrique extraordinaire est issue d'après les ajustements montrés sur la figure (3.4)). La ligne noire en trait léger indique le C_3 évalué à partir de $\varepsilon(\omega)$ d'après les ajustements des données d'émissivité du CEMHTI (Orléans), mais avec une température constante de 300 K. La probabilité de transition est celle du tableau (3.1) issue de O. S. Heavens [65]. (a) $C_3(7P_{1/2})$ et (b) $C_3(7P_{3/2})$ 43

3.12 Coefficient de van der Waals évalué pour deux valeurs différentes de probabilité de transition. Courbe en trait plein les valeurs de probabilités de transition issues de O. S. Heavens [65] - cf. le tableau (3.1)- et, en pointillé selon A. Lindgård & S. E. Nielsen [66]. (a) $C_3(7P_{1/2})$ et (b) $C_3(7P_{3/2})$ 44

3.13 Paramètre de transfert réel Γ_3 pour le niveau $C_s(7P_{1/2})$ en fonction de la température. Diverses modèles pour $\varepsilon(\omega)$ sont considérés, ainsi que pour la probabilité de transition : toutes les prédictions ont été évaluées par les valeurs de probabilité de transition issue de O. S. Heavens [65], sauf la ligne noire légère, calculée selon valeurs de A. Lindgård & S. E. Nielsen [66]. 45

3.14 Idem que fig. (3.13), mais $\Gamma_3(7P_{3/2})$. Noter le changement d'échelle verticale. 46

3.15 Rapport $\frac{\Gamma_3}{C_3}$ pour les niveaux (a) $C_s(7P_{1/2})$ et (b) $C_s(7P_{3/2})$ 47

4.1 Schéma de la réflexion sélective montrant les champs électriques incident (E_i), réfléchi (E_r) et transmis (E_t), ainsi que la direction z de leur propagation. 52

4.2	Spectres de réflexion sélective d'après l'équation (4.19) pour plusieurs valeurs de Γ ; en gris le spectre conformément à la théorie d'indice présentée sur la section (4.1). Pour des valeurs de $\Gamma \ll 1$, la singularité logarithmique est plus prononcée autour de $\Delta \rightarrow 0$, alors que la théorie d'indice montre un spectre symétrique (autour de $\Delta = 0$) sans aucune singularité logarithmique.	58
4.3	Comparaison entre les spectres de RS et RSFM pour $\Gamma = 0,01$. Le fond Doppler introduit une asymétrie sur le signal RSFM assez négligeable par rapport la partie étroite.	60
4.4	Évolution de la forme de raie de RSFM pour des petites valeurs positives et faibles de A . En gris, le spectre sans interaction atome-surface ($A = 0$). Ici, nous ne tenons en compte que la partie réelle de A' .	62
4.5	Formes de spectres de RSFM pour de grandes valeurs positives et réelles de A' . La courbe en gris est le spectre pour $A = 0$.	62
4.6	Formes de spectres de RSFM pour de grandes valeurs positives et avec le paramètre B . La courbe en gris est le spectre pour $A' = 0$.	63
4.7	Évolution des formes des spectres de RSFM pour A' réel et négatif. La courbe en gris est pour $A' = 0$ (spectre sans prend en compte l'interaction vdW).	64
4.8	Formes de spectres de RSFM pour A' imaginaire et $A < 0$. La courbe en gris montre le spectre pour $A = -8$.	64
5.1	Structure des niveaux atomiques du césium concernés dans ce chapitre de thèse.	69
5.2	Pression et densité atomique de césium en fonction de la température du réservoir.	72
5.3	Schéma expérimental pour l'expérience de réflexion sélective. Le miroir mobile laisse passer soit le laser irradiant à 459 nm, soit le laser irradiant à 455 nm. L'angle d'incidence des laser avec la normale de la surface est de $\theta \lesssim 1$ mrad.	73
5.4	(a) Photographie du Fabry-Pérot 2 de longueur de $L = 60$ cm. (b) Représentation du chemin optique dans le FP2. Dans ce cas, l'intervalle spectral libre est de $\Delta\nu = \frac{c}{6L} \approx 83$ MHz. (c) et (d) sont des spectres obtenus en balayant les lasers émettant à 455 nm et 459 nm, respectivement. On voit que la finesse est de ~ 6 à $\lambda \approx 459$ nm et ~ 5 à $\lambda \approx 455$ nm.	77
5.5	Photographie de la cellule de saphir avec la fenêtre super polie. Tout son corps est fait de saphir, sauf le réservoir qui contient le césium, qui est fait de verre.	78
5.6	Représentation de la cellule avec la fenêtre de saphir super polie. Trois fours indépendants chauffent les diverses partie de la cellule.	79
5.7	(a) Photographie du four côté surface. (b) Photographie du four côté surface à 800 °C, avec la cellule dans le four.	79
5.8	Stabilité de la température de la cellule de saphir. (a) Température de la surface et (b) du réservoir. Les insertions montrent un <i>zoom</i> lorsque les températures sont stabilisées. Une fois que les températures ont atteint les valeurs de consigne, nous attendons environ 40 min pour prendre nos mesures.	81
5.9	Les valeurs du champ magnétique mesurées à l'endroit où se trouve la fenêtre de saphir avec les trois fours allumés, successivement.	82

- 5.10 Spectres d'absorption saturée pour les transition $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{1/2}$ et $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$. À gauche les spectres d'absorption saturée détectés par une modulation en amplitude (au travers du *chopper*) et à droite leur dérivées, détectées par une modulation en fréquence sur les lasers. L'axe des abscisses a des unités de tension (volts). 85
- 5.11 Comparaison, au travers des spectres d'absorption saturée, entre deux types de méthodes pour la construction de l'échelle de balayage des lasers en fréquence. Les points noirs correspondent à une échelle de balayage laser transformée par l'absorption saturée et le FP2, et les points blancs à la transformation de l'échelle de balayage laser seulement par l'absorption saturée. (a) Spectre d'absorption saturée pour la transition $6S_{1/2} (F = 3) \rightarrow 7P_{3/2} (F')$. (b) Agrandissement de la partie indiquée sur (a) du spectre d'absorption saturée. (c) et (d) analogues respectifs de (a) et (b) pour la transition $6S_{1/2} (F = 4) \rightarrow 7P_{1/2} (F')$. Après la construction de la nouvelle échelle on fait une interpolation pour faire la somme de courbes. 87
- 5.12 Comparaison de deux spectres d'absorption saturée sur une composante de la transition $6S_{1/2} (F = 3) \rightarrow 7P_{3/2} (F' = 2)$. Les flèches montrent les imperfections sur un des courbes (la noir). En gris, un exemple de l'absorption saturée dans laquelle le balayage du laser est pris en compte pour la moyenne et en noir, un spectre qui n'est pas pris dans la moyenne. 88
- 5.13 Comparaison entre deux spectres d'absorption saturée pour la transition $6S_{1/2} (F = 4) \rightarrow 7P_{1/2} (F' = 3, 4)$. En gris les spectres expérimentaux et en noir les ajustements. L'absorption saturée de référence a été détectée à $P \approx 0,1 \mu\text{Torr}$ qui correspond à $T_R = 45 \text{ }^\circ\text{C}$. Pour la deuxième cellule (a), le spectre a été détecté à $P \approx 100 \text{ mTorr}$ ($T_R = 205 \text{ }^\circ\text{C}$). (b) et (c) montrent le *zoom* sur chaque transition de l'AS de référence avec les ajustements numériques respectifs. La largeur de l'AS de référence est $\sim 1,5 \text{ MHz}$ pour toutes les acquisitions laser (théoriquement $\gamma_0 \approx 1,15 \text{ MHz}$). 90
- 5.14 Dépendance en pression de la largeur et du déplacement pour la transition $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{1/2}$, avec l'ajustement linéaire, à partir du fondamental. Le F dénote la structure hyperfine du fondamental et F' pour le niveau excité. 92
- 5.15 Idem que figure (5.13), mais pour la transition (a) $6S_{1/2} (F = 3) \rightarrow 7P_{3/2} (F' = 2, 3, 4)$ et (b) $6S_{1/2} (F = 4) \rightarrow 7P_{3/2} (F' = 3, 4, 5)$. Pour la transition $6S_{1/2} (F = 3) \rightarrow 7P_{3/2} F' = 3$ et $6S_{1/2} (F = 4) \rightarrow 7P_{3/2} F' = 4$, l'analyse d'élargissement et de déplacement du spectre est compliquée par le mélange avec le *cross-over*. Dans le cas de la transition $6S_{1/2} (F = 4) \rightarrow 7P_{3/2} (F' = 3)$, l'amplitude du sous-niveau est très petite, ce qui rend l'ajustement difficile. La largeur, d'après les ajustements numériques, pour l'AS de référence de $\sim 1,5 \text{ MHz}$ (théoriquement $\sim \gamma_0 \approx 1,3 \text{ MHz}$). 94
- 5.16 Idem que figure (5.14), mais pour la transition $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$ 95
- 5.17 Spectres de RSFM en fonction de l'intensité incidente (I_{inc}) et normalisés par celle-ci. ils ont été détectés à $T_S = 800 \text{ }^\circ\text{C}$ et $P \approx 10 \text{ mTorr}$. (a) Spectres de RSFM pour la transition $6S_{1/2} (F = 4) \rightarrow 7P_{1/2} (F' = 3)$ et (b) pour la transition $6S_{1/2} (F = 4) \rightarrow 7P_{3/2} (F')$ 99

5.18	Spectres de RSFM pour la transition $6S_{1/2} (F = 4) \rightarrow 7P_{1/2} (F' = 3)$, normalisés en amplitude, pour deux températures de la surface très différentes. La température du réservoir était constante avec une valeur de 180°C qui correspond à une pression de la vapeur atomique d'environ 40 mTorr . Nous montrons aussi, en inséré, la prédiction du spectre de RSFM pour $C_3 = 0$: la distorsion de la courbe (déplacement et forme, signe compris) est clairement une signature de l'interaction atome-surface.	100
5.19	Idem que la figure (5.18), mais pour la transition $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$ du césium.	101
5.20	Le spectre en gris est un spectre unique de RSFM, tandis que le spectre en noir est la moyenne de douze courbes détectées d'affilée. (a) RSFM pour la transition $6S_{1/2} (F = 3) \rightarrow 7P_{3/2} (F')$. (b) RSFM pour la transition $6S_{1/2} (F = 4) \rightarrow 7P_{1/2} (F' = 3)$. L'intensité laser pour l'obtention de ces spectres a été d'environ $0,3\text{ mW/cm}^2$ dont la puissance est de $\sim 10\ \mu\text{W}$. La température, du réservoir et de la surface sont, respectivement, $\sim 150^\circ\text{C}$ ($P \approx 10\text{ mTorr}$) et $\sim 800^\circ\text{C}$	102
5.21	Spectre expérimental de RSFM, moyenné par dix courbes détectées l'une après l'autre. Les ajustements numériques de la structure hyperfine du niveau Cs ($7P_{1/2}$) ont été faits séparément avec quelques valeurs A . Avec cet ajustement, l'incertitude acceptable est de 5% sur la valeur centrale du choix du paramètre A . Les flèches indiquent où les ajustements, en général, sont considérés comme inacceptables. La température de la surface et la pression dans la cellule sont, 300°C et $\sim 40\text{ mTorr}$ (soit $T_R = 180^\circ\text{C}$).	105
5.22	Idem que figure (5.21), mais pour les transitions (a) $6S_{1/2} (F = 3) \rightarrow 7P_{3/2} (F')$ et (b) $6S_{1/2} (F = 4) \rightarrow 7P_{3/2} (F')$	106
5.23	Spectres expérimentaux de RSFM pour la transition $6S_{1/2} (F = 4) \rightarrow 7P_{1/2} (F' = 3)$ détectés pour plusieurs températures de la surface et en maintenant la pression dans cellule constante à une valeur de $\sim 40\text{ mTorr}$ (soit $T_R = 180^\circ\text{C}$). La ligne horizontale indique le zéro de l'axe des ordonnées de chaque spectre et la ligne verticale est le marqueur de la fréquence de la transition obtenu à l'aide du spectre de l'absorption saturée de référence. Seuls les meilleurs ajustements sont montrés, mais une différence de $\sim 10\%$ sur le C_3 est acceptable.	109
5.24	Idem que la figure (5.23), mais pour $6S_{1/2} (F = 4) \rightarrow 7P_{1/2} (F' = 3)$	110
5.25	Idem que la figure (5.23), mais pour la transition $6S_{1/2} (F = 4) \rightarrow 7P_{3/2} (F')$	111
5.26	<i>cf.</i> la figure (5.25), mais pour la transition $6S_{1/2} (F = 4) \rightarrow 7P_{3/2} (F')$	112
5.27	Coefficient de van der Waals en fonction de la température de la surface d'après les ajustements numériques pour les différentes composantes hyperfines d'état excité des spectres expérimentaux de RSFM pour les transition $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{1/2}$ et $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$. Pour ces points, la pression de la vapeur atomique a été maintenue constante à $\sim 40\text{ mTorr}$	113
5.28	Mesures expérimentales et ajustements avec des courbes théoriques de RSFM pour la transition $6S_{1/2} (F = 4) \rightarrow 7P_{1/2} (F' = 3)$ en modifiant seulement la température du réservoir de Cs. La température de la surface a été maintenue constante à 800°C	115
5.29	Idem que figure (5.28), mais pour la transition $6S_{1/2} (F = 3) \rightarrow 7P_{1/2} (F' = 4)$, et pour une température de la surface maintenue constante à 300°C	116
5.30	Idem que fig. (5.28), mais pour la transition $6S_{1/2} (F = 4) \rightarrow 7P_{3/2} (F')$	117
5.31	Idem que fig. (5.29), mais ici pour la transition $6S_{1/2} (F = 3) \rightarrow 7P_{3/2} (F')$	118

5.32 Valeurs de γ , de δ et de C_3 déduites des ajustements théoriques effectués des spectres expérimentaux tels que ceux des figures (5.28) - (5.31), en fonction de la pression de la vapeur atomique. (a) Largeur, (b) déplacement,, (c) et (d) coefficient de vdW pour les températures de la surface de 300 °C et 800 °C. 119

5.33 Rapport des amplitudes, évalué d’après l’équation (5.7), entre les spectres expérimentaux pour les transitions $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{1/2}$ et $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$. La barre d’erreur a été obtenue de la même façon que pour le coefficient de vdW (*cf.* fig. (5.35)). 121

5.34 Spectres de RSFM pour plusieurs points d’incidence laser sur la surface de saphir super polie. (a) - (c) transition $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{1/2}$. (d) - (f) RSFM pour la transition $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$. (a) et (d) sont des spectres expérimentaux détectés en déplaçant les faisceaux lasers d’incidence horizontalement. (b) et (e) le déplacement des faisceaux lasers est verticale. (c) et (f) présentent les ajustements numériques qui représente les meilleurs spectres expérimentaux. Pour ces spectres, $T_S = 800$ °C et $P \approx 40$ mTorr. 122

5.35 Coefficient de vdW pour les transitions $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{1/2}$ et $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$ du césium en fonction de la température de la surface. Les barres d’erreur ont été construites en prenant en compte les données de C_3 en fonction de la pression de la vapeur atomique ainsi que les différents sous-niveaux atomiques, soit de départ d’état fondamental, soit d’état excité. 123

5.36 Exemple d’ajustement d’un spectre expérimental de RSFM avec des courbes avec $A' = A + iB$. La courbe ajustée est celle qui correspond à la figure (5.28) à une pression de Cs de 40 mTorr et température de la surface de 800 °C. L’ajustement théorique par une courbe seulement avec le paramètre A est aussi indiqué. 125

5.37 Courbe expérimentale idem que (5.36), ajustée avec $A' = 20$ ou $A' = 20 + 40i$. 126

5.38 Comparaison entre les données du coefficient de van der Waals, pour le niveau Cs ($7P_{1/2}$), obtenues d’après les ajustements numériques sur les spectres expérimentaux (*cf.* la figure (5.35)) et les prédictions théoriques évaluées dans le chapitre (3) selon les données de la constante diélectrique fournies par A. S. Barker Jr. [50], M. Shubert *et al* [64] et à partir de mesures du groupe CEMHTI d’Orléans. Les prédictions théoriques prennent en compte l’effet du C_3 du niveau fondamental, *i.e.* le C_3 mesuré correspond à $C_3(7P) - C_3(6S)$ 130

5.39 Idem que figure (5.38), mais pour la transition $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$ du césium. . . 131

5.40 Dépendance spatiale du déplacement d’énergie, à 400 K et à 1200 K, normalisé en z^{-3} pour les transitions (a) $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{1/2}$ et (b) $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$. Les données “saphir” sont celles du groupe CEMHTI. 133

6.1 Les couplages dipolaires pris en compte pour l’évaluation du coefficient de vdW pour le niveau Cs ($6P_{1/2}$). 138

6.2	Schéma expérimental de la réflexion sur la transition $6S_{1/2} \rightarrow 6P_{1/2}$ du césium. La cavité Fabry-Pérot utilisée est la même que celle pour les lasers émettant à 455 nm et 459 nm (longueur de 60 cm en triple passage). Cette fois-ci, il possède une finesse d'environ 11 à cause du changement des miroirs. La réflexion sélective a été faite sur la cellule avec la surface de saphir super polie, décrite au chap. (5). La combinaison de la lame demi-onde avec le polariseur a pour seule fonction de contrôler (atténuation variable) la puissance du faisceau laser.	139
6.3	Spectres de RSFM, pour la transition $6S_{1/2} \rightarrow 6P_{1/2}$ du césium, en fonction de l'intensité laser. La pression de la vapeur atomique est de $P \approx 20 \mu\text{Torr}$	141
6.4	Comparaison entre un seul spectre de RSFM (en noir) et la moyenne de huit courbes (en gris). L'intensité est de $I \approx 0,7 \text{ mW/cm}^{-2}$ et la pression de Cs est de $P \approx 20 \mu\text{Torr}$ ($T_R = 55 \text{ }^\circ\text{C}$). La ligne horizontale marque le "zéro" sur l'axe des ordonnées et la verticale sur la fréquence obtenue d'après l'absorption saturée.	142
6.5	Spectre expérimental, pour la transition $6S_{1/2} (F = 4) \rightarrow 6P_{1/2} (F' = 3)$, moyenné sur dix enregistrements. Les ajustements théoriques des sous-niveaux du niveau Cs ($6P_{1/2}$) ont été faits de manière indépendantes et la différence ne vient que du facteur d'amplitude. Nous présentons ici la courbe théorique qui s'ajuste le mieux au spectre expérimental (avec le paramètre $A = 0,13$) et deux autres courbes théoriques qui ne sont pas admissibles. Les flèches soulignent les écarts entre l'ajustement et l'expérience. En insert (côté supérieur droit), on montre une courbe avec $C_3 = 0$ avec $\gamma = 8,5 \text{ MHz}$	143
6.6	Spectre expérimental de RSFM pour la transition $6S_{1/2} (F = 3) \rightarrow 6P_{1/2} (F' = 4)$ et l'ajustement numérique. La température de la surface de saphir et du réservoir a été maintenue constante à $T_R \approx 65 \text{ }^\circ\text{C}$. La ligne horizontale marque le zéro sur l'axe des ordonnées et la verticale, sur l'axe des abscisses grâce à l'absorption saturée de référence.	144
6.7	<i>Cf.</i> fig. (6.6), mais pour la transition $6S_{1/2} (F = 4) \rightarrow 6P_{1/2} (F' = 3)$	145
6.8	Idem que fig. (6.6), mais pour la transition $6S_{1/2} (F = 4) \rightarrow 6P_{1/2} (F' = 4)$	145
6.9	Idem que fig. (6.6), sauf T_S et P	146
6.10	Idem que fig. (6.8), sauf T_S et P	146
6.11	Spectres de RSFM sur la transition $6S_{1/2}(F = 4) \rightarrow 6P_{1/2}(F = 3)$ du césium en fonction de la pression de la vapeur atomique. La température de la surface est maintenue constante avec une valeur de $T_S = 150 \text{ }^\circ\text{C}$. Il est indiqué le nombre de spectres moyennés. La ligne pointillée à la horizontale indique le zéro de chaque spectre sur l'axe des ordonnées et la verticale, obtenue à l'aide de l'AS de référence, marque où se situe la transition atomique.	149
6.12	Idem de la figure (6.11), mais à $T_S = 600 \text{ }^\circ\text{C}$. (a) $6S_{1/2}(F = 4) \rightarrow 6P_{1/2}(F = 3)$ et (b) $6S_{1/2}(F = 3) \rightarrow 6P_{1/2}(F = 4)$	150
6.13	Évolution, en fonction de la pression de Cs, de quelques paramètres d'après les ajustements numériques sur les spectres expérimentaux de RSFM pour la transition $6S_{1/2} \rightarrow 6P_{1/2}$. (a) la largeur γ , (b) le déplacement δ , (c) l'amplitude $C_1\gamma$ et (d) le coefficient de vdW C_3	151

6.14	Le déplacement d'énergie (en noir) et la largeur (en trait-pointillé), dû à l'interaction atome-surface, en fonction de la distance. Le déplacement d'énergie est multiplié par z^3 pour être comparé au C_3	152
6.15	Schéma du montage expérimental pour l'absorption saturée sur la transition $6S_{1/2} \rightarrow 6P_{1/2}$ du césium sur la cellule qui possède la surface de saphir super polie. Le faisceau pompe est AM Le <i>chopper</i> permet une modulation de ~ 2 kHz.	154
6.16	Spectres expérimentaux d'absorption saturée, pour la transition $6S_{1/2}$ ($F = 3$) \rightarrow $6P_{1/2}$ ($F' = 4$), détectés sur la cellule avec la fenêtre en saphir super polie et ajustement par une Lorentzienne. L'intensité du faisceau pompe est maintenue constante à $I_{\text{pompe}} \approx 1 \mu\text{W}/\text{cm}^2$, tandis que l'intensité du faisceau sonde, à l'entrée, peut varier $0,1 \text{ mW}/\text{cm}^2 < I_{\text{sonde}} < 10 \text{ mW}/\text{cm}^2$. Dans le coin supérieur droit est présentée la région où la pompe affecte le milieu atomique (le paramètre de base pour obtenir la constante d'atténuation à partir la loi de Beer-Lambert est que à température ambiante, ~ 20 °C, et une longueur de ~ 8 cm, le faisceau laser, non-saturant, est absorbé de 80%). L'intensité du faisceau sonde à la sortie est indiquée, pour savoir s'il reste saturant dans la région où le faisceau pompe est assez efficace pour contribuer à l'absorption saturée. L'amplitude des spectres est ici en échelle arbitraire. La ligne verticale, obtenue par l'AS de référence, marque où se situe la transition atomique.	155
6.17	Idem que fig. (6.16), mais ici avec intensité du faisceau sonde constante et différentes intensités pompe.	156
6.18	Courbe théorique d'une dérivée de <i>Lorentzienne</i> selon l'équation (6.1). Les lignes en gris montrent les "zéros" sur les axes des ordonnées et des abscisses (le zéro est la fréquence de transition atomique). La ligne pointillée noir indique où se situe les sommets de la courbe.	157
6.19	Spectre d'absorption saturée AM-FM. La distance pic à pic est ~ 4 MHz.	158
6.20	Détection du signal d'absorption saturée quand la cellule avec la surface de saphir super polie était à température ambiante.	158
7.1	Spectres numériques de fluorescence selon la densité optique en \mathcal{N} en supposant une réponse gaussienne d'élargissement Doppler.	162
7.2	Principales voies de couplage et chemins de désexcitation des niveaux $7P_{1/2}$ et $7P_{3/2}$. Le niveau $7P$ se désexcite vers $6S$, $7S$ et $5D$, avec une probabilité respective de $\sim 20\%$, $\sim 50\%$ et $\sim 30\%$	163
7.3	Schéma expérimental standard pour la détection de la fluorescence.	164
7.4	Spectres de fluorescence détectés pour une excitation sur la transition $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$. La température du réservoir est maintenue constante à 110 °C. (a) et (b) $T_S = 300$ °C et $\tau_{\text{exp}} = 100$ ms et $\tau_{\text{exp}} = 10$ s. (c) et (d) $T_S = 800$ °C et $\tau_{\text{exp}} = 50$ ms et $\tau_{\text{exp}} = 10$ s. Noter entre (a,c) et (b,d) le changement de l'échelle verticale, et horizontale.	167
7.5	idem que fig. (7.4), mais pour l'excitation sur $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{1/2}$	167
7.6	Amplitude de la fluorescence en fonction de la densité atomique (évaluée selon la température du réservoir) à partir du niveau $6D$. L'excitation est sur la raie (a) $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$ et (b) $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{1/2}$	168

7.7	Spectre d'excitation de la fluorescence émise sur les raies indiquées, en fonction de la fréquence du laser à 459nm. Les pointillés verticaux sont des marqueurs en fréquence construits grâce à une absorption saturée de référence. Les lignes horizontales en gris marquent les zéros respectifs (et décalés) sur l'axe des ordonnées.	169
7.8	Spectres expérimentaux de fluorescence rétrodiffuse à $T_S = 300$ °C sur la transition $6S_{1/2} (F = 4) \rightarrow 7P_{1/2}$. $T_S = 300$ °C. (a) Signal détecté directement par le photodétecteur à $T_R = 170$ °C ($n \approx 5.10^{14}$ at.cm ⁻³). (b) Le signal FM de (a) après passage par un <i>lock-in</i> . (c) Agrandissement de la région sélectionnée sur (b) avec deux températures additionnelles du réservoir, $T_R = 180$ °C ($n \approx 8.10^{14}$ at.cm ⁻³) et $T_R = 190$ °C ($n \approx 1.10^{15}$ at.cm ⁻³). Les lignes verticales sont les marqueurs en fréquence obtenus à partir de l'absorption saturée de référence. Les lignes horizontales sur les signaux FM indiquent les zéros respectifs sur l'axe des ordonnées.	172
7.9	Idem que fig. (7.8) pour la transition $6S_{1/2} (F = 3) \rightarrow 7S_{1/2}$	173
7.10	Idem que fig. (7.8), mais pour la transition $6S_{1/2} \rightarrow 6P_{1/2}$ et $T_S = 200$ °C. La température du réservoir pour (a) et (b) était $T_R = 130$ °C ($n \approx 8.10^{13}$ at.cm ⁻³) et (c) montre l'agrandissement de la région sélectionnée en (b) et pour d'autres températures du réservoir : 120 °C ($n \approx 5.10^{13}$ at.cm ⁻³) et 150 °C ($n \approx 2.10^{14}$ at.cm ⁻³).	175

LISTE DES TABLEAUX

3.1	Ce tableau indique les valeurs de C_3 en $\text{kHz} \cdot \mu\text{m}^3$ et en fonction de la température pour le niveau Cs ($7P_{1/2}$) interagissant avec une surface de saphir, ainsi que les valeurs individuelles pour chaque couplage dipolaire pris en compte. Le couplage dipolaire qui contribue le plus au coefficient de vdW est surligné en gris. Les valeurs du coefficient de vdW ont été calculées à partir des données de la constante diélectrique obtenue selon les mesures d'émissivité du groupe CEMHTI. Les valeurs de probabilité de chaque transition atomique sont issues de O. S. Heavens [65]. Entre parenthèses, les valeurs du C_3 évaluées pour les valeurs de probabilité de transition issues de A. Lindgård & S. E. Nielsen [66].	40
3.2	Idem que tableau (3.1) pour le niveau Cs ($7P_{3/2}$). Les astérisques sur quelques valeurs de $A_{a \rightarrow n}$ indiquent que ces valeurs sont issues de [66].	41
5.1	Facteur relatif entre les structures hyperfines des états excités $P_{1/2}$ et $P_{3/2}$, en partant d'un niveau $S_{1/2}$	71
5.2	Résultats des ajustements pour le déplacement et l'élargissement par collision pour la transition $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{1/2}$ du césium. Les incertitudes indiquées sont associées à la procédure des ajustements des courbes d'absorption saturée. Le F indique la composante hyperfine du niveau fondamental et le F' du niveau excité.	91
5.3	Idem que table (5.2), mais pour la transition $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$. En parenthèse, les résultats obtenus précédemment à cette thèse [28].	96
5.4	Évaluation du coefficient de vdW pour le niveau Cs ($6S_{1/2}$) interagissant avec un surface de saphir. Les données "saphir" utilisées sont issues des mesures du CEMHTI (les autres données "saphir", présentés au chapitre (3), changent $< 5\%$). Les valeurs de probabilité de chaque couplage dipolaire sont issues de O. S. Heavens [65].	128
6.1	Le tableau donne la valeur totale du C_3 en $\text{kHz} \cdot \mu\text{m}^3$, pour le niveau Cs ($6P_{1/2}$), en fonction de la température ainsi que les valeurs individuelles pour chaque couplage dipolaire pris en compte. Le couplage le plus important (pas vraiment dominant) est surligné. La réponse de la surface de saphir a été calculée d'après les données issues de [50] et les valeurs de probabilité de chaque transition sont issues de O. S. Heavens [65].	138

-
- 6.2 Les valeurs du coefficient de vdW pour les températures de la surface de 150 °C et 600 °C, et pour les 2 composantes hyperfines de l'état Cs ($6P_{1/2}$), en partant des différents sous-niveaux de l'état Cs ($6S_{1/2}$). 147

CHAPITRE 1

INTRODUCTION GÉNÉRALE

L'interaction entre un atome et une surface parfaitement réfléchissante a été traitée par F. London [1] et Lenard-Jones [2]. Cette interaction peut être comprise comme l'interaction du dipôle fluctuant de l'atome avec son image induite sur la surface. Le potentiel d'interaction atome-surface, intrinsèquement attractif, est décrit, dans le cadre électrostatique par la méthode des images, comme l'interaction entre deux dipôles. Ainsi, il est proportionnel à $\frac{\boldsymbol{\mu}^2 + \mu_z^2}{16z^3}$, où z est la distance entre l'atome et la surface, $\boldsymbol{\mu}$ est le moment dipolaire électrique de l'atome et μ_z est la projection de $\boldsymbol{\mu}$ selon la direction z . Si l'on néglige les contributions anisotropes et que l'atome est considéré comme ayant une symétrie sphérique [3, 4], où $\mu_z = \frac{\boldsymbol{\mu}}{3}$, le potentiel d'interaction atome-surface peut être écrit comme $-C_3.z^{-3}$, où C_3 est appelé de coefficient de van der Waals (ou coefficient de vdW). La méthode des images pour la construction du potentiel atome-surface est valide lorsque l'atome est à une distance suffisante de la surface pour que sa structure spatiale ne soit pas importante [2].

Pour un atome dans un état $|a\rangle$ devant une surface conductrice parfaite, le coefficient de vdW est évalué comme la somme de tous les couplages dipolaires permis vers des états $|n\rangle$, à une fréquence de transition ω_{na} . Si la surface est un diélectrique, pour chaque couplage, il faut prendre en compte le coefficient de réflexion, qui dépend des propriétés optiques de la surface [5, 6]. Le coefficient d'interaction dépend de :

$$C_3 \propto \sum_n r(\omega_{na}) |\langle a|\boldsymbol{\mu}|n\rangle|^2 \quad (1.1)$$

(NB : la constante de proportionnalité dans l'équation (1.1) dépend du système d'unité

choisi), où la somme se fait sur tous les couplages dipolaires permis de fréquence ω_{na} et le facteur $r(\omega_{na})$ est le coefficient de réflexion (dans le cas d'une surface conductrice parfaite, le coefficient de réflexion vaut 1). Cependant, si la distance atome-surface ne vérifie pas $z \ll \lambda_{na}/2\pi$, où λ_{na} est la longueur d'onde de la transition optique, les effets de retard (ou de propagation du rayonnement du champ de l'atome) doivent être pris en compte, alors que l'interaction dipôle/dipôle image avait supposé une corrélation instantanée.

En 1948, H. B. G. Casimir & D. Polder [7] ont examiné l'interaction atome-surface de façon différente, en tenant compte des effets de propagation. Dans leur interprétation, l'atome interagit avec la fluctuation du vide modifiée par la présence d'une surface. Pour les atomes du niveau fondamental, ils ont calculé que le potentiel d'interaction atome-surface est du type $-f(z).z^{-3}$ au lieu d'être seulement $\propto z^{-3}$. Pour $z \rightarrow 0$ (limite vdW ou interaction Casimir-Polder en champ proche), le potentiel d'interaction peut être décrit comme du type vdW, $-C_3.z^3$, alors que quand $z \rightarrow \infty$, le potentiel d'interaction tend vers une forme $-\alpha.z^{-4}$, où α est la polarisabilité atomique. En raison de la faiblesse de l'interaction Casimir-Polder, l'observation de la dépendance en z^{-4} a été seulement observée expérimentalement en 1993, à partir d'un jet d'atomes de sodium dans l'état fondamental voyageant entre deux plaques conductrices parfaites [8]. À partir de ces mesures, d'autres expériences ont été effectuées (voir par exemple [9, 10]). Depuis, le terme "interaction Casimir-Polder" tend à devenir le terme générique pour toute l'interaction atome-surface à longue portée.

Pour décrire les effets de surface sur les atomes excités, il faut prendre en compte les effets d'émission spontanée, qui peut être décrite comme l'émission de la radiation du dipôle dans un mode du vide. Cependant, les conditions aux limites imposées par une surface modifie la distribution modale du vide. Au voisinage d'une paroi, les conditions aux limites font que le champ émis par l'atome interfère avec son propre champ réfléchi sur celle-ci. Ainsi, en 1984-85, J. M. Wylie & J. E. Sipe [11, 12] ont développé le traitement complet de l'interaction entre l'atome (soit dans son état excité, soit dans état fondamental) et une surface (diélectrique ou conductrice parfaite), dans lequel ils utilisent la théorie de perturbation de deuxième ordre pour évaluer le déplacement d'énergie d'un niveau atomique, et la règle d'or de Fermi pour calculer le taux de désexcitation d'un atome excité. Leurs études permettent de calculer le déplacement d'énergie et la durée du vie des états atomique en fonction de la distance. Elles permettent de plus d'inclure

le traitement avec la température, bien qu'ils n'aient pas poussé l'analyse sur ce plan.

À partir des études de J. M. Wylie & J. E. Sipe [11, 12], il a été observé que dans certaines conditions, l'interaction Casimir-Polder entre un atome excité et une surface diélectrique peut donner lieu à une interaction résonnante [5], où une transition atomique est couplée aux modes électromagnétiques de la surface (ce mode étant un polariton de surface, évanescent selon la direction perpendiculaire à la surface [13]). Une des conséquences de cette interaction résonnante est que les atomes peuvent être soumis à un potentiel beaucoup plus important que pour le cas d'une surface parfaitement réfléchissante, ou que le potentiel peut être répulsif au lieu d'attractif, comme observé expérimentalement [14, 15] pour le niveau excité Cs ($6D_{3/2}$) interagissant avec une surface de saphir (couplage en émission atomique $6D_{3/2} \rightarrow 7P_{1/2}$ - $\lambda = 12,15 \mu\text{m}$ - et une absorption dans le mode de polariton de surface de saphir qui est autour de $12,2 \mu\text{m}$). En outre, à cause de ce couplage résonnant atome-surface, une modification de la durée de vie avait aussi été observée [16], où l'atome se désexcite en émettant dans un mode du champ électromagnétique de surface.

L'interaction atome-surface avec des atomes excités a été observée par plusieurs groupes, comme par exemple : les expériences spectroscopiques qui prennent en compte la différence d'énergie entre le niveau atomique fondamental et le niveau excité sondé ([17] et références citées) ; V. Sandoghdar *et al* [18] a aussi mesuré l'interaction atome-surface sur des atomes dans des états excités de Rydberg de sodium (niveau $10D_{3/2}$ et/ou $nS_{1/2}$, avec $n = 10-13$), qui passent entre deux plaques métalliques : le déplacement du niveau d'énergie est observé en fonction de la distance entre ces plaques. Toutes ces mesures expérimentales sont majoritairement sensibles à l'interaction Casimir-Polder en champ proche. À grandes distances, le déplacement d'énergie d'un niveau excité possède un comportement bien différent de celui de l'état fondamental, car il présente un comportement amorti oscillatoire, équivalent à l'interaction d'une antenne avec son propre champ réfléchi [19] (de façon expérimentale ces effets oscillatoires ont été observés dans [20]).

Toutes les considérations sur l'interaction Casimir-Polder faites ci-dessus ne prennent pas en compte les effets thermiques. En revanche, à des température non-nulles les fluctuations du vide ont une contribution thermique. Les effets thermiques peuvent modifier aussi les propriétés atomiques. Ainsi, il a été observé, expérimentalement, un déplacement des niveaux de Rydberg [21] et la modification de la durée des atomes en présence du rayonne-

ment thermique du corps noir [22]. Pour le traitement de la température dans l'interaction atome-surface, il faut prendre en compte les fluctuations du vide à l'interface, et modifiées thermiquement. Ceci est une autre indication pour utiliser le terme Casimir-Polder comme terme générique pour l'interaction atome-surface, où l'interaction vdW n'est que conçue comme la limite $z \rightarrow 0$. Pour prendre en compte les effets thermiques, il apparaît la "longueur thermique" $\lambda = \frac{\hbar c}{k_B T}$, et c'est pour des distances atome-surface $z < \lambda$ que l'interaction est dans la limite vdW. En régime de champ proche, l'émission thermique est liée aux propriétés dispersives du matériau, particulièrement aux modes évanescents de surface. Ainsi, dans ce cas, les effets thermiques en champ lointain, voisins d'une émission de corps noir (large bande), changent complètement de forme lorsqu'ils sont observés en champ proche (à des distances de ~ 100 nm). Dans ce dernier régime, le rayonnement de l'énergie thermique du matériau est modifié, en présentant cohérence spatiale et étroite spectralement, liée aux résonances du matériau par ses modes de polariton [23, 24, 25].

Le traitement pour l'interaction Casimir-Polder entre un atome situé dans le vide en équilibre thermique avec une surface dispersive a été développé par M.-P. Gorza & M. Ducloy [6]. Avec un bon choix de la surface et du niveau atomique, l'effet de la température peut faire changer le signe de l'interaction atome-surface [26]. Pour le cas d'une surface chaude, le phénomène inverse à celui observé par H. Failache *et al* [16] (l'émission atomique dans un mode du champ électromagnétique de la surface) peut, à priori, être observé, c'est-à-dire que l'atome peut absorber l'énergie de modes de surface thermiquement peuplés. L'effet thermique de l'interaction Casimir-Polder en champ proche a été observé de façon expérimentale, dans l'équipe SAI (Spectroscopie Atomique aux Interfaces), récemment [27], pour le système Cs ($7D_{3/2}$) /saphir.

Dans cette thèse, le principal travail a été de mesurer expérimentalement l'effet de température sur le C_3 des niveaux Cs ($7P_{1/2}$) et Cs ($7P_{3/2}$) interagissant avec une surface de saphir. Le niveau Cs ($7P_{1/2}$) possède le même couplage dipolaire que le système étudié par H. Failache *et al* [15], mais dans notre cas en absorption vers le niveau Cs ($6D_{3/2}$). Ainsi, nous mettons en évidence l'effet en température de l'interaction résonnante de Casimir-Polder en régime de champ proche, par lequel nous constatons une forte augmentation du C_3 ($7P_{1/2}$) en fonction de la température (150 – 800 °C). Par contre, pour le niveau Cs ($7P_{3/2}$), on mesure une légère réduction du C_3 en fonction de la température, dans des conditions identiques à celles pour le niveau Cs ($7P_{1/2}$). L'interaction du ni-

veau Cs ($7P_{3/2}$) avec une surface de saphir a été déjà mesurée expérimentalement [28] auparavant dans l'équipe, mais sans rechercher des effets en température.

Signalons que des mesures sur la modification en température de l'interaction Casimir-Polder ont aussi été réalisées dans le groupe de E. A. Cornell sur un condensat de Bose-Einstein [29], à des distances allant entre 7 – 11 μm à partir d'une surface de silicium chauffée jusqu'à une température d'environ 600 K, alors que le reste de l'environnement avait été maintenu à ~ 300 K. Dans ce cas, l'effet est fortement lié au déséquilibre thermique entre la surface et le vide (environnement), avec une dépendance en $(T_S^2 - T_E^2)$ [30], où T_S est la température de la surface et T_E est la température de l'environnement. Il y a aussi une autre différence fondamentale entre nos expériences et celle du groupe de E. A. Cornell : nous sondons les atomes très proches de la surface (~ 100 nm), ce qui permet la sensibilité aux modes de surface.

Dans notre cas, pour sonder les atomes sensibles à l'interaction Casimir-Polder, on a utilisé une technique spectroscopique de réflexion sélective (RS) [31]. Cette technique a été largement utilisée et développée dans notre équipe depuis les années quatre-vingt-dix [3, 4, 16, 26, 32, 33, 34]. Essentiellement, elle mesure le changement, autour de la fréquence de résonance atomique, d'intensité réfléchie d'un faisceau lumineux à l'interface entre la paroi et la vapeur atomique. En ajustant les spectres expérimentaux de RS avec des courbes théoriques calculées de façon universelle [31], on extrait des informations sur l'interaction atome-surface. La technique de RS a l'avantage de sonder les atomes excités avec une courte durée de vie, sur un volume avec une épaisseur d'une longueur d'onde réduite, $\lambda_{ai}/2\pi$, où λ_{ai} est la longueur d'onde optique de la transition qui couple l'état $|i\rangle$ à l'état plus excité $|a\rangle$ que nous voulons sonder. Une autre technique, qui a aussi été utilisée dans notre équipe, est la transmission sur une cellule nanométrique, qui a permis de tester la dépendance en z^{-3} de l'interaction vdW pour des épaisseurs variant de 40 à 130 nm.

Pour raffiner les prédictions théoriques, et comme le niveau Cs ($7P_{1/2}$) est résonnant avec le mode de polariton de la surface de saphir (*cf.* étudié auparavant dans [5]), et que les effets thermiques de la surface jouent un rôle important dans l'interaction [26], nous avons obtenu de nouvelles mesures pour l'émission du saphir selon la température ($\varepsilon(\omega, T)$). Ces mesures de l'émissivité thermique dans la région de l'infrarouge (5 – 35 μm) ont été réalisées par l'équipe du CEMHTI (Grandeurs Radiatives et Thermiques des Matériaux),

à Orléans. Cette grandeur est essentielle pour évaluer le coefficient de réflexion de la surface pour chaque transition dipolaire permise et à chaque température (*cf.* eq. (1.1)). Ainsi, nous pouvons estimer le coefficient de vdW des niveaux atomiques qui nous intéressent, et pour chaque température d'intérêt.

Le plan de cette thèse est le suivant :

- Dans le deuxième chapitre, nous traitons le problème de l'interaction Casimir-Polder à la limite de champ proche entre un atome neutre et une surface diélectrique dispersive à température non-nulle ;
- Dans le troisième chapitre, nous présentons de nouvelles mesures sur la constante diélectrique en fonction de la température. Par ailleurs, l'échantillon qui a été utilisé dans ces mesures était de même nature de polissage de celui utilisé sur nos expériences. Pour l'étude des effets thermiques sur l'interaction Casimir-Polder résonnante, la connaissance précise d'où se trouve le mode de polariton de surface peut jouer un rôle importante sur les prédictions théoriques. Dans ce chapitre, on fait l'évaluation du coefficient de vdW pour l'interaction Cs ($7P_J$) /saphir en fonction de la température, en comparant ces évaluations à celles issues d'autres données de la constante diélectrique trouvées sur la littérature ;
- Dans le quatrième chapitre, on décrit la technique de réflexion sélective. Nous montrons et nous discutons les formes de raie prévues pour un potentiel d'interaction Casimir-Polder en champ proche, soit pour des valeurs négatives du coefficient de vdW, soit pour des valeurs positives. De plus, les courbes visant le transfert réel d'énergie entre l'atome et la surface sont aussi abordées ;
- Dans le cinquième chapitre, nous présentons nos expériences de RS réalisées sur le système d'interaction Cs ($7P_{1/2}$) /saphir et Cs ($7P_{3/2}$) /saphir. Avec les résultats expérimentaux de RS, on fait les ajustements numériques de façon à l'obtenir les valeurs de $C_3(7P_{1/2})$ et $C_3(7P_{3/2})$ en fonction de la température ;
- Dans le sixième chapitre, on présente et on discute les résultats de réflexion sélective obtenus en sondant le niveau $6P_{1/2}$ du césium, surtout, dans le cas d'une largeur minimale, où les effets de collisions sont négligés. Même pour cette simple raie de résonance du Cs, sans vrai effet de température, les spectres de réflexion sélective dans cette condition de largeur minimale n'avaient jamais été analysés ;
- Dans le septième chapitre, on consacre à étudier brièvement les échanges d'énergie

à partir du niveau Cs ($7P$) en plus d'un de nos articles publiés au cours de la thèse [35].

CHAPITRE 2

ÉTUDE DE L'INTERACTION CASIMIR-POLDER ENTRE UN ATOME ET UNE SURFACE THERMIQUEMENT ÉMISSIVE

Ce chapitre étudie les modifications des propriétés d'un émetteur quantique (un atome) au voisinage d'une surface, à des distances cependant supérieures à une taille atomique, pour permettre de considérer la surface comme plane. Lorsque l'atome est proche d'une surface, ses niveaux d'énergie, et éventuellement ses couplages par émission spontanée sont modifiés. En régime de champ proche, l'interaction est de type dipôle-dipôle, appelée aussi "interaction de van der Waals" (vdW), ce qui conduit à des effets évoluant en z^{-3} , où z est la distance entre l'atome et la surface.

Quand la surface est diélectrique, et assez chaude pour être thermiquement émissive, un traitement général a été développé dans [6]. Pour faire comprendre les résultats de ce traitement, on rappelle d'abord le traitement du potentiel van der Waals pour le cas où l'atome interagit avec une surface parfaitement réfléchissante (2.1), puis on passe au cas encore très électrostatique d'une surface diélectrique, d'abord non-dispersive (2.2), puis au cas d'une surface diélectrique dispersive (2.3). Le cas plus général de l'interaction Casimir-Polder, où l'atome est près d'une surface diélectrique dispersive à température non-nulle est discuté dans (2.4), et la section (2.5) concerne les effets de changement de durée de vie des atomes excités par l'interaction atome-surface. Les grandeurs physiques qui nous intéresseront sont les coefficients C_3 et Γ_3 , facteurs des dépendances en z^{-3} pour le déplacement d'énergie, et la modification de durée de vie, respectivement, et la section

(2.6) présente une méthode générale pour le calcul de ces coefficients.

2.1 Interaction Casimir-Polder en champ proche entre un atome et une surface parfaitement réfléchissant

Nous traitons ici le problème de l'interaction Casimir-Polder en champ proche (ou interaction vdW) entre un atome neutre et une surface parfaitement réfléchissante (dans ce cas $\varepsilon = -\infty$, où ε est la constante diélectrique) en utilisant la méthode des images.

On considère un atome neutre comme un dipôle fluctuant $\boldsymbol{\mu}$ situé à une distance z de la surface. Ce dipôle fluctuant induit une image symétrique dans la surface (à la position $-z$) et avec un dipôle $\boldsymbol{\mu}_{im}$ (cf. fig. (2.1)), où $\mu_{z,im} = \mu_z$ et $\mu_{\parallel,im} = -\mu_{\parallel}$.

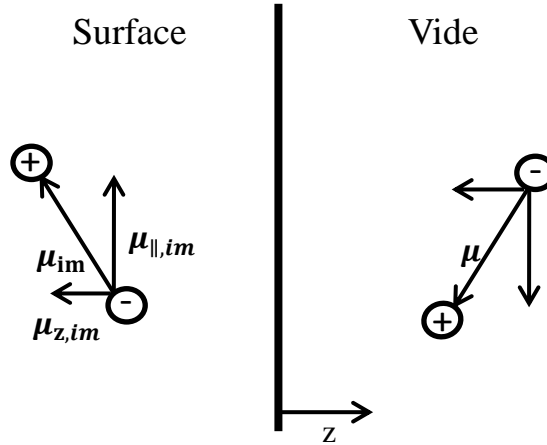


FIGURE 2.1: Dipôle d'atome et son image induite sur la surface.

Ainsi, le champ électrique (système Gaussien d'unités) produit par un dipôle image $\boldsymbol{\mu}_{im}$ à la position du dipôle $\boldsymbol{\mu}$ a la forme suivante :

$$\mathbf{E} = \frac{\boldsymbol{\mu}_{im} - 3(\boldsymbol{\mu}_{im} \cdot \hat{z})\hat{z}}{16z^3} \quad (2.1)$$

où \hat{z} est un vecteur unitaire dans la direction normale à l'interface. À partir de l'équation (2.1) nous calculons l'énergie d'interaction entre le dipôle atomique et le champ \mathbf{E} produit par son image. Ainsi :

$$V = -\mathbf{E} \cdot \boldsymbol{\mu}$$

$$V = -\frac{1}{16z^3} (\boldsymbol{\mu}_{\parallel}^2 + 2\boldsymbol{\mu}_z^2) \quad (2.2)$$

Par le principe de correspondance avec la mécanique quantique, l'hamiltonien d'interaction atome-surface est :

$$\hat{H} = -\frac{1}{16z^3} (\boldsymbol{\mu}_{\parallel}^2 + 2\boldsymbol{\mu}_z^2) = -\frac{1}{16z^3} (\boldsymbol{\mu}^2 + \boldsymbol{\mu}_z^2) \quad (2.3)$$

Dans l'équation (2.3) : $\boldsymbol{\mu}^2 = \boldsymbol{\mu}_z^2 + \boldsymbol{\mu}_{\parallel}^2$. Cet hamiltonien est responsable du déplacement des niveaux atomiques. Par la théorie de perturbation de la mécanique quantique, le déplacement d'énergie d'un niveau atomique induit par (2.3) est donné par :

$$\delta F_a = -\frac{1}{16z^3} (\langle a | \boldsymbol{\mu}^2 | a \rangle + \langle a | \boldsymbol{\mu}_z^2 | a \rangle) \quad (2.4)$$

Par rapport à une théorie électrostatique pour des dipôles permanents, il faut remarquer ici que la valeur moyenne de l'opérateur moment dipolaire est nulle, mais que la valeur quadratique moyenne ne l'est pas, qui correspond aux fluctuations dipolaires (c'est-à-dire, $\langle a | \boldsymbol{\mu} | a \rangle = 0$ et $\langle a | \boldsymbol{\mu}^2 | a \rangle \neq 0$).

Tant que nous supposons l'atome avec une symétrie sphérique (i.e. les composants de $\boldsymbol{\mu}$ en coordonnées cartésiennes sont $\boldsymbol{\mu}_x = \boldsymbol{\mu}_y = \boldsymbol{\mu}_z$), le problème atome-surface a une symétrie cylindrique, et :

$$\delta F_a = -\frac{1}{12z^3} \langle a | \boldsymbol{\mu}^2 | a \rangle \quad (2.5)$$

En introduisant la relation de fermeture $I = \sum_n |n\rangle\langle n|$ dans δF_a , nous obtenons :

$$\delta F_a = -\frac{1}{12z^3} \sum_n |\langle a | \boldsymbol{\mu} | n \rangle|^2 \quad (2.6)$$

L'équation (2.6), donnant le déplacement d'énergie du niveau $|a\rangle$ par l'interaction de surface, indique qu'il faut sommer sur tous les couplages dipolaires $|n\rangle$. Cette équation peut s'exprimer comme $\delta F_a = -C_3 \cdot z^3$, où C_3 est le coefficient de vdW, qui est calculé de la forme suivante :

$$C_3^{PR} = \frac{1}{12} \sum_n |\langle a | \boldsymbol{\mu} | n \rangle|^2 \quad (2.7)$$

où l'indice supérieur (PR) est pour *Parfaitement Réfléchissant*.

2.2 Interaction Casimir-Polder en champ proche entre un atome et une surface diélectrique idéale

Pour le cas de l'interaction de l'atome avec une surface non-dispersive de constante diélectrique ε , on doit remplacer $\boldsymbol{\mu}_{im}$ par [36] :

$$\boldsymbol{\mu}_{im}(\varepsilon) = \frac{\varepsilon - 1}{\varepsilon + 1} (\boldsymbol{\mu}_z - \boldsymbol{\mu}_{\parallel}) \quad (2.8)$$

À partir de l'équation (2.8), le déplacement d'énergie est

$$\delta F_a = -\frac{1}{12z^3} \left(\frac{\varepsilon - 1}{\varepsilon + 1} \right) \sum_n |\langle a | \boldsymbol{\mu} | n \rangle|^2 \quad (2.9)$$

Le terme $\left(\frac{\varepsilon - 1}{\varepsilon + 1} \right)$ est la réponse du matériau, et de la même façon que dans la section antérieure, nous pouvons déduire le C_3 à partir de l'expression (2.9). Ainsi :

$$C_3^{DI} = \frac{1}{12} \left(\frac{\varepsilon - 1}{\varepsilon + 1} \right) \sum_n |\langle a | \boldsymbol{\mu} | n \rangle|^2 \quad (2.10)$$

où le (DI) dénote le *Diélectrique Idéal*. Notons que dans une pure approche "électrostatique", le terme de réponse correspondrait à la permittivité d.c., alors que les couplages dipolaires qui apparaissent dans l'équation sont à des fréquences du domaine optique, et qui diffèrent

selon les transitions. Le facteur $\frac{\varepsilon - 1}{\varepsilon + 1}$ dans l'équation (2.10) sera appelé dans cette thèse la réponse de la surface.

2.3 Interaction vdW avec une paroi diélectrique dispersive à température nulle

Dans le cas d'une surface diélectrique dispersive, la constante diélectrique de la surface dépend de la fréquence. C'est une grandeur complexe ($\varepsilon(\omega) = \varepsilon'(\omega) + i\varepsilon''(\omega)$), traduisant des effets de dispersion et d'absorption, et l'équation (2.10) ne peut plus s'appliquer.

Le problème a fait l'objet de nombreux travaux, notamment [37, 38, 39, 40, 41, 42], mais l'approche la plus générale consiste à suivre le chemin de J. M. Wylie & J. E. Sipe [11, 12], qui ont utilisé une théorie de la réponse linéaire, et déterminent le déplacement d'énergie et la durée de vie d'atome, par la théorie de perturbation de deuxième ordre. L'hamiltonien d'interaction entre un atome avec la radiation du champ est donné par :

$$\hat{H}_{int} = -\mathbf{D}(\mathbf{r}_0) \cdot \boldsymbol{\mu}(\omega) \quad (2.11)$$

où $\boldsymbol{\mu}(\omega)$ est le dipôle oscillant de l'atome à la position \mathbf{r}_0 et $\mathbf{D}(\mathbf{r}_0)$ est le déplacement du champ dans la position de l'atome. Dans le cas général, le déplacement du champ peut être calculé comme $\mathbf{D}(\mathbf{r}, \omega) = \overleftrightarrow{\mathbf{G}}(\mathbf{r}, \omega) \boldsymbol{\mu}(\omega)$, où $\overleftrightarrow{\mathbf{G}}$ est le tenseur de Green provenant de champ rayonné par l'atome et réfléchi sur la surface.

Avec l'hamiltonien de l'équation (2.11), on écrit par la correction au deuxième ordre de la théorie de perturbation de la mécanique quantique, le déplacement d'énergie comme [11] (équation (2.7)) :

$$\delta F_a = \frac{1}{\hbar} P \sum_{I, K, n} \rho(I) \frac{D_\alpha^{IK}(\mathbf{r}_0) D_\beta^{KI}(\mathbf{r}_0) \mu_\alpha^{in} \mu_\beta^{ni}}{(\omega_I - \omega_K) + (\omega_a - \omega_n)} \quad (2.12)$$

où les lettres majuscules I, K et minuscules a, n désignent, respectivement, les éléments de matrice du déplacement du champ et du moment dipolaire entre les états du champ et de l'atome. Les indices en grec sont les coordonnées dans le plan cartésien et P est la partie principale. Enfin, $\rho(I)$ est la probabilité que le champ soit dans l'état I .

L'équation (2.12) permet d'évaluer le déplacement d'énergie de l'atome quand il se trouve dans l'état fondamental ou dans un état excité, et le dénominateur laisse la possi-

bilité à des résonances, couplant atome et surface.

2.3.1 Atome dans l'état fondamental

Pour $T = 0$ et l'atome dans le niveau fondamental, l'équation (2.12) prend la forme suivante [11] (eq. (5.3)) :

$$\delta F_a = -\frac{1}{\pi} \sum_n \omega_{na} \mu_\alpha^{an} \mu_\beta^{na} \int_0^\infty d\xi \frac{G_{\alpha\beta}(i\xi)}{\xi^2 + \omega_{na}^2} \quad (2.13)$$

L'indice "na" désigne la transition dipolaire $\omega_{na} = \omega_n - \omega_a$ avec $E_n > E_a$, et $G_{\alpha\beta}(i\xi)$ est la fonction de Green évaluée sur des fréquences imaginaires. Il est possible de noter que le problème d'interaction atome-surface se limite à trouver la fonction de Green, et que pour le régime en champ proche $G_{\alpha\beta}(i\xi)$ a la forme suivante [11] :

$$\begin{cases} G_{xx}(\omega) = G_{yy}(\omega) = \frac{1}{8z^3} \frac{\epsilon - 1}{\epsilon + 1} \\ G_{zz}(\omega) = \frac{1}{4z^3} \frac{\epsilon - 1}{\epsilon + 1} \\ G_{\alpha\beta} = 0, \alpha \neq \beta \end{cases} \quad (2.14)$$

Introduisant (2.14) dans (2.13), nous obtenons :

$$\delta F_a = -\frac{2}{\pi} \frac{1}{12z^3} \sum_n |\langle a | \boldsymbol{\mu} | n \rangle|^2 \int_0^\infty d\xi \frac{\varepsilon(i\xi) - 1}{\varepsilon(i\xi) + 1} \frac{\omega_{na}}{\xi^2 + \omega_{na}^2} \quad (2.15)$$

où $\varepsilon(i\xi)$ est la constante diélectrique qui dépend de la fréquence. Nous pouvons aussi, pour le terme C_3 , généraliser l'équation (2.10) :

$$C_3 = \frac{1}{12} \sum_n r(\omega_{na}) |\langle a | \boldsymbol{\mu} | n \rangle|^2 \quad (2.16)$$

où le terme $r(\omega_{na})$ est le coefficient d'image pour la transition ω_{na} , et est donné par l'expression suivante :

$$r(\omega_{na}) = \frac{2}{\pi} \int_0^\infty d\xi \frac{\varepsilon(i\xi) - 1}{\varepsilon(i\xi) + 1} \frac{\omega_{na}}{\xi^2 + \omega_{na}^2} \quad (2.17)$$

2.3.2 Atome dans l'état excité

Pour un atome dans un état excité, un terme supplémentaire apparaît, qui n'existait pas pour le niveau fondamental. Dans le cas de l'état fondamental, le dénominateur de l'équation (2.12) était toujours plus grand que zéro ($\omega_I - \omega_K > 0$ et $\omega_n - \omega_a > 0$). En revanche, pour le niveau excité, le terme $(\omega_n - \omega_a)$ peut être négatif, ouvrant la possibilité à des pôles pour l'équation (2.12) (cas du dénominateur résonnant).

Avec l'identité mathématique [11, 12], $P\left(\frac{1}{x}\right) = \frac{1}{x + i\eta} + i\pi\delta(x)$, $\eta \rightarrow 0^+$, apparaît le terme supplémentaire dans l'expression du déplacement d'énergie pour l'atome excité et [5] :

$$\delta F_a = -\frac{1}{\pi} \sum_n \omega_{na} \mu_\alpha^{an} \mu_\beta^{na} \int_0^\infty d\xi \frac{G_{\alpha\beta}(i\xi)}{\xi^2 + \omega_{na}^2} - \sum_n \mu_\alpha^{an} \mu_\beta^{na} \text{Re}[G(\omega_{na})] \theta(\omega_{an}) \quad (2.18)$$

où $\omega_{na} = \omega_n - \omega_a$, $\theta(\omega_{an})$ est la fonction de Heaviside, qui annule les termes en absorption atomique ($\theta(\omega_{an}) = 0$ pour $\omega_a - \omega_n < 0$ et $\theta(\omega_{an}) = 1$ pour $\omega_a - \omega_n > 0$), et Re désigne la partie réelle.

L'équation (2.18) peut être séparée en deux termes. Le premier est identique à l'équation (2.15), alors que le deuxième terme, de résonance, n'apparaît que quand il y a un couplage entre émission atomique et absorption par le "reste du système" (la surface). Ce terme n'existe cependant que pour une transition en émission atomique, alors que si $\omega_{na} > 0$, l'expression n'est que l'analogie de ce qui était trouvée pour l'état fondamental.

Nous pouvons toujours écrire le coefficient de van der Waals C_3 comme :

$$C_3 = \frac{1}{12} \sum_n r(\omega_{na}) |\langle a | \boldsymbol{\mu} | n \rangle|^2 \quad (2.19)$$

mais dans ce cas, le coefficient de réflexion inclut les deux termes :

$$r(\omega_{na}) = \frac{2}{\pi} \int_0^\infty d\xi \frac{\varepsilon(i\xi) - 1}{\varepsilon(i\xi) + 1} \frac{\omega_{na}}{\xi^2 + \omega_{na}^2} + 2\text{Re} \left[\frac{\varepsilon(|\omega_{na}|) - 1}{\varepsilon(|\omega_{na}|) + 1} \right] \theta(\omega_{an}) \quad (2.20)$$

respectivement connus comme terme non-résonnant et résonnant. À la différence du pre-

mier terme de l'expression (2.20) évalué sur tout le spectre des fréquences imaginaires (conformément à l'idée de fluctuations temporelles du dipôle), le deuxième terme n'est calculé que pour les fréquences bien précises de transitions dipolaires.

À partir de l'équation (2.20) nous voyons que le terme $\left[\frac{\varepsilon(|\omega_{na}|) - 1}{\varepsilon(|\omega_{na}|) + 1} \right]$ peut avoir des pôles ($\varepsilon(|\omega_{na}|) + 1 = 0$) qui rendent ce terme divergent, permettant alors des grandes valeurs pour $r(\omega_{na})$. Les pôles de ce deuxième terme correspondent à des modes de polariton de surface (cf. chap. (3)). Ainsi, l'interprétation physique des termes résonnants qu'il est correspondent à une émission de l'atome dans le mode de polariton de surface.

2.4 Interaction vdW avec une surface diélectrique à température non nulle

À température nulle, l'interaction résonnante entre atome excité et surface n'existe que pour des transitions en émission atomique, comme analysé ci-dessus. Des transitions en absorption peuvent correspondre à un couplage résonnant avec un peuplement thermique des modes de polariton de la surface, donc à $T \neq 0$ (cf. conclusion de H. Failache *et al* [15]). L'expression (2.12) peut alors avoir des pôles pour une situation telle que $\omega_I - \omega_K < 0$ et $\omega_n - \omega_a > 0$.

En 2006, M.-P. Gorza & M. Ducloy [6] ont calculé le changement dans l'interaction Casimir-Polder lorsque la surface est à température non nulle, et en équilibre thermique avec l'environnement. Ils ont privilégié dans le calcul la situation du champ proche (régime vdW) même si le traitement formel est adapté naturellement au problème de la propagation. Il peut notamment y avoir un couplage résonnant entre l'émission de la surface et une absorption atomique.

En introduisant $\rho = \frac{e^{\frac{E_I}{k_B T}}}{\sum_I e^{\frac{E_I}{k_B T}}}$ (probabilité de trouver le champ du vide dans l'état I) dans l'équation (2.12), on peut écrire le déplacement d'énergie du niveau atomique en deux parties, une pour l'émission (δF_a^{em}), qui se produit même pour $T = 0$, et l'autre pour l'absorption (δF_a^{abs}), qui n'a que lieu lorsque $T > 0$.

Alors, pour le terme en émission $a \rightarrow n'$ ($\omega_{an'} = \omega_a - \omega_{n'} > 0$), on obtient

$$\delta F_a^{em}(\omega_{an'}) = - \sum_{n' < a} \mu_\alpha^{an'} \mu_\beta^{n'a} \left\{ \frac{e^{\frac{\hbar\omega_{an'}}{k_B T}}}{e^{\frac{\hbar\omega_{an'}}{k_B T}} - 1} \operatorname{Re} [G_{\alpha\beta}(\omega_{an'})] - \frac{2k_B T}{\hbar} \sum_{k=0}^{\infty} 'G_{\alpha\beta}(i\xi_k) \frac{\omega_{an'}}{\omega_{an'}^2 + \xi_k^2} \right\} \quad (2.21)$$

et pour le terme en absorption $a \rightarrow n$ ($\omega_{na} = \omega_n - \omega_a > 0$)

$$\delta F_a^{abs}(\omega_{na}) = \sum_{n > a} \mu_\alpha^{an} \mu_\beta^{na} \left\{ \frac{1}{e^{\frac{\hbar\omega_{na}}{k_B T}} - 1} \operatorname{Re} [G_{\alpha\beta}(\omega_{na})] - \frac{2k_B T}{\hbar} \sum_{k=0}^{\infty} 'G_{\alpha\beta}(i\xi_k) \frac{\omega_{na}}{\omega_{na}^2 + \xi_k^2} \right\} \quad (2.22)$$

Dans les équations (2.21) et (2.22) le premier terme correspond au couplage résonnant, respectivement, en émission et en absorption. Dans le cas où la contribution pour le déplacement du niveau atomique vient d'un couplage en émission, on ne doit prendre en compte que l'expression (2.21). Dans les deux équations, le deuxième terme est le terme non-résonnant, donné non plus par une intégration sur les fréquences imaginaires, mais par une somme discrète de fréquences de Matsubara avec $\xi_k = k \left(\frac{2\pi k_B T}{\hbar} \right)$ le long de l'axe de fréquence imaginaire. (NB : pour la sommation en k , le symbole prime indique que le premier terme est multiplié par 1/2). On voit que indépendamment de la complexité de l'interaction atome-surface, elle peut se réduire à calculer la fonction de Green. Il faut aussi noter que dans ce traitement, l'apparition de fréquences de Matsubara, liées à la température, fait apparaître une "longueur thermique" ($\lambda = \frac{\hbar c}{k_B T}$). La notion de champ proche, définie à température nulle seulement par rapport à la longueur d'onde de transitions atomiques, devient alors sensible à cette longueur thermique et donc à la température. En ce sens, même le régime de champ proche (limite vdW) oblige à un traitement du type Casimir-Polder.

À la limite $T \rightarrow 0$, le déplacement d'énergie δF_a se réduit à l'expression (2.18) et la

somme de Matsubara redevient une intégrale.

$$\delta F_a(\omega_{na}) = \delta F_a^{NR}(\omega_{na}) + \delta F_a^{Em}(\omega_{na})\theta(\omega_{an}) + \delta F_a^{Abs}(\omega_{na})\theta(\omega_{na}) \quad (2.23)$$

où le premier terme est le terme non-résonnant et les deux autres sont les termes résonnant en émission et en absorption, respectivement (NB : $\omega_{an} = \omega_a - \omega_n$). Dans l'approximation de champ proche, on peut toujours déduire le coefficient vdW selon l'expression (2.19). Cependant, pour le cas où $T \neq 0$, le coefficient de réflexion $r(\omega)$ est écrit sous la forme suivante :

$$r(\omega_{na}) = r_{NR}(\omega_{na}) + r_{Em}(\omega_{na})\theta(\omega_{an}) + r_{Abs}(\omega_{na})\theta(\omega_{na})$$

$$\left\{ \begin{array}{l} r_{NR}(\omega_{na}) = \frac{4k_B T}{\hbar} \sum_{k=0}^{\infty} \frac{\varepsilon(i\xi_k) - 1}{\varepsilon(i\xi_k) + 1} \frac{\omega_{an}}{\omega_{an}^2 + \xi_k^2} \\ r_{Em}(\omega_{na}) = 2\text{Re} \left[\frac{\varepsilon(|\omega_{na}|) - 1}{\varepsilon(|\omega_{na}|) + 1} \right] \frac{e^{\frac{\hbar|\omega_{na}|}{k_B T}}}{e^{\frac{\hbar|\omega_{na}|}{k_B T}} - 1} \\ r_{Abs}(\omega_{na}) = -2\text{Re} \left[\frac{\varepsilon(\omega_{na}) - 1}{\varepsilon(\omega_{na}) + 1} \right] \frac{1}{e^{\frac{\hbar\omega_{na}}{k_B T}} - 1} \end{array} \right. \quad (2.24)$$

On peut observer sur l'équation (2.24) que le terme $r_{Em}(\omega_{na})$ est de signe opposé à $r_{Abs}(\omega_{na})$ et que $\left(e^{\frac{\hbar\omega_{na}}{k_B T}} - 1\right)^{-1}$ correspond au nombre de photons dans le mode de polariton de surface avec une fréquence ω_{na} .

Avec la prise en compte des effets de température dans l'interaction atome-surface, les effets en absorption peuvent être observés. En outre, indépendamment de la température, si la surface a un mode de polariton tel que $\varepsilon(|\omega_{na}|) + 1 \approx 0$, l'interaction atome-surface est dite résonnante. Ce type d'interaction a été étudié [5] et observé expérimentalement [14, 15], avec un couplage atomique dipolaire en émission couplé à une absorption par le mode de polariton de surface. Dans ce cas, la valeur du coefficient de réflexion devient très grande (en valeur absolue) et des effets exotiques peuvent être observés, comme par

exemple, une interaction vdW du type répulsive [14, 15].

2.5 Changement de la durée de vie atomique dû à l'interaction Casimir-Polder

L'émission spontanée d'un atome excité, vers son état fondamental, est un effet essentiel des fluctuations du vide, et on sait que l'environnement, et les conditions aux limites pour les fluctuations du vide, peuvent modifier (augmenter, diminuer ou même supprimer) ce taux de cette désexcitation [43, 44]. Avec la surface, apparaissent ainsi d'autres modes où les atomes peuvent se désexciter : ces modes peuvent être évanescents ou de propagation [45] ; ou un mode lié à la résonance de la surface, quand $\varepsilon(\omega_{na}) \approx -1$ [5]. Diverses expériences ont déjà établi ces phénomènes en électrodynamique quantique en cavité avec des cavités optiques qui inhibent la désexcitation atomique [46] par la suppression, dans ce type de cavité, de certains modes du vide permettant la désexcitation de l'atome.

La largeur totale d'un niveau atomique peut être exprimée comme $\gamma_a = \gamma_0 + \gamma_a(z)$, où γ_0 est le taux de désexcitation loin de la surface. Pour l'évaluation du changement de la durée de vie d'atome en fonction de la distance, nous suivons le chemin fait par J. M. Wylie & J. E. Sipe [11, 12], qui démarre avec la règle d'or de Fermi, l'utilisation de la fonction de Green et du théorème fluctuation-dissipation pour obtenir l'expression suivante :

$$\gamma_a(z) = \frac{2}{\hbar} \sum_{n'} \mu_\alpha^{an} \mu_\beta^{an'} \bar{n}(\omega_{na}, T) \text{Im} [G_{\alpha\beta}(\omega_{na})] \quad (2.25)$$

où $\bar{n}(\omega_{na}, T)$ est le nombre moyen d'occupation de photons avec énergie $\hbar\omega$. Pour que la transition soit en émission, le $\bar{n}(\omega_{na}, T)$ devient $\bar{n}(|\omega_{na}|, T) + 1$. Le Im dénote la "partie imaginaire de".

Dans le régime de champ proche et l'atome avec symétrie sphérique oscillant identiquement dans toutes les directions, l'expression (2.25) de la durée de vie s'exprime :

$$\gamma_a(z) = \frac{1}{3\hbar z^3} \sum_n |\mu^{na}|^2 \text{Im} \left[\frac{\varepsilon(\omega_{na}) - 1}{\varepsilon(\omega_{na}) + 1} \right] \bar{n}(\omega_{na}, T) = \frac{\Gamma_3}{z^3} \quad (2.26)$$

La grandeur Γ_3 est analogue du C_3 , mais pour le changement de la durée de vie des

atomes.

Alors que la contribution résonnante au déplacement en énergie est donnée par la partie réelle de la réponse de la surface, le terme de transfert, qui a la même dépendance spatiale z^{-3} que δF_a , dépend de la partie imaginaire de la réponse de la surface. Ainsi, le déplacement d'énergie de l'atome est la partie non-dissipative du couplage atome-surface, alors que le changement de la durée de vie correspond à la partie dissipative du même couplage. Rappelons aussi que cette partie dissipative est toujours positive et pour un couplage résonnant, en émission atomique, son effet a déjà été observé expérimentalement [16].

2.6 Méthode générale pour l'évaluation du C_3 et Γ_3

Dans cette section, on met sous forme plus compacte le calcul de C_3 et Γ_3 , qui sont les grandeurs que nous voulons mesurer expérimentalement dans cette thèse. Pour cela, on fait l'approximation d'un atome avec symétrie sphérique et dégénéré par rapport aux sous-niveaux magnétiques.

2.6.1 Forme compacte pour l'évaluation du C_3

En prenant l'équation (2.16) et en incluant l'effet thermique, on a :

$$C_3^a = \frac{1}{12} \left(\frac{1}{2\pi\hbar} \right) \sum_n r(\omega_{na}) |\langle a|\mu|n\rangle|^2 \quad (2.27)$$

où le terme $2\pi\hbar$ vient du fait qu'on veut évaluer le déplacement de la fréquence atomique et l'équation (2.16) calcule le coefficient de vdW en raison du déplacement d'énergie.

Pour calculer C_3 , il faut expliciter les états $|a\rangle$ et $|n\rangle$ pour les nombres quantiques n , J et M : $|\langle a|\mu|n\rangle| = |\langle n_a, J_a, M_a|\mu|n_n, J_n, M_n\rangle|$. Ainsi, il est possible de démontrer [3], selon le théorème de Wigner-Eckart et les propriétés de Clebsh-Gordon, que le déplacement de fréquence sera la moyenne sur tous les sous-niveaux M de l'état $|a\rangle$ [47] :

$$C_3^a = \frac{1}{12} \left(\frac{1}{2\pi\hbar} \right) \frac{1}{(2J_a + 1)} \sum_{n_n, J_n} |\langle n_a J_a |\mu| n_n J_n \rangle|^2 r(\omega_{na}) \quad (2.28)$$

Le terme $|\langle n_a J_a |\mu| n_n J_n \rangle|$ est l'élément de matrice calculé à partir de la connaissance

de la probabilité de transition atomique entre les niveaux $|a\rangle$ et $|n\rangle$, c'est-à-dire [48] :

$$A_{|a\rangle\rightarrow|n\rangle} = \frac{4}{3\hbar} \frac{k_{na}^3}{(2J_{>} + 1)} |\langle n_a J_a | \mu | n_n J_n \rangle|^2 \quad (2.29)$$

où k_{na}^3 est le vecteur d'onde de la transition $|a\rangle \rightarrow |n\rangle$ et $J_{>}$ est le moment angulaire total du niveau atomique plus énergétique. Ainsi, à partir de l'expression (2.29), on peut trouver le C_3^a sous la forme suivante :

$$C_3^a = \sum_n \left[\frac{2J_{>} + 1}{2J_a + 1} \right] \frac{\lambda_{an}^3 A_{|a\rangle\rightarrow|n\rangle}}{256\pi^4} r(\omega_{na}) \quad (2.30)$$

où $r(\omega_{na})$ est calculé à partir de l'équation (2.24). La valeur de $A_{|a\rangle\rightarrow|n\rangle}$ est en unité de fréquence. Des calculs plus approfondis seraient nécessaires pour évaluer l'effet de la structure hyperfine. Cependant, il est possible noter qu'aucun changement n'est attendu pour les niveaux $J = 1/2$ (purement isotropes) et les niveaux $J = 3/2$ (quasi-isotropes) [3] (d'où notamment les transition $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{1/2}$, $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$ et $6S_{1/2} \rightarrow 6P_{1/2}$ du césium nous intéressent - *cf.* chaps. (5) et (6)).

2.6.2 Forme compacte pour l'évaluation du Γ_3

Pour trouver une forme plus compacte de Γ_3 analogue à celle pour C_3 , on utilise l'équation (2.29) pour le moment dipolaire de la transition, en tenant en compte que la valeur de $A_{|a\rangle\rightarrow|n\rangle}$ est en fréquence (il faut diviser par 2π). Ainsi :

$$\Gamma_3^a = 4 \sum_n \left[\frac{2J_{>} + 1}{2J_a + 1} \right] \frac{\lambda_{an}^3 A_{|a\rangle\rightarrow|n\rangle}}{256\pi^4} \bar{n}(\omega_{na}, T) \text{Im} \left[\frac{\varepsilon(\omega_{na}) - 1}{\varepsilon(\omega_{na}) + 1} \right] \quad (2.31)$$

Pour l'évaluation de Γ_3 , il n'y a pas de partie non-résonnante. L'équation (2.31) montre donc que l'effet de la modification de la durée de vie de l'atome dû à l'interaction vdW a lieu lorsque celle-ci est résonnante. En général, $\text{Im} \left[\frac{\varepsilon(\omega_{na}) - 1}{\varepsilon(\omega_{na}) + 1} \right]$ a une forme plus piquée que $\text{Re} \left[\frac{\varepsilon(\omega_{na}) - 1}{\varepsilon(\omega_{na}) + 1} \right]$, donc il suffit sans doute qu'une seule transition soit prise en compte pour l'évaluation de Γ_3 .

2.7 Conclusion

Dans ce chapitre, on a décrit, en régime de champ proche, l'interaction Casimir-Polder entre surface et atome induit un déplacement d'énergie et une possible modification corrélée dans le taux de désexcitation atomique, avec toujours une dépendance spatiale en z^{-3} , incluant une interaction atome-surface, qui se comporte comme $C_3.z^{-3}$ pour le déplacement d'énergie et $\Gamma_3.z^{-3}$ pour la modification de la durée de vie atomique.

L'interaction atome-surface est résonnante quand une des fréquences de transition atomique, la réponse de surface, en $\frac{\varepsilon(\omega_{na}) - 1}{\varepsilon(\omega_{na}) + 1}$, est résonnante, c'est-à-dire si pour la grandeur complexe, $\varepsilon(\omega_{na})$, on a $\varepsilon(\omega_{na}) \approx -1$. Dans ce cadre de l'interaction vdW résonnante, le coefficient de vdW peut changer de signe, passant d'une valeur positive à une valeur négative et la surface peut induire localement un fort transfert d'un état à un autre. Ces effets, qui ne s'observent que pour une émission atomique si la surface est à température nulle, deviennent observables pour un couplage atomique en absorption si la surface elle-même est suffisamment excitée thermiquement.

CHAPITRE 3

CRITÈRES DE CHOIX POUR LA SURFACE ET LE NIVEAU ATOMIQUE : INTERACTION CASIMIR-POLDER RÉSONNANTE ENTRE UN ATOME ET UNE SURFACE

Dans ce chapitre, nous commençons par un résumé de l'histoire de notre équipe sur les mesures de l'interaction Casimir-Polder en champ proche entre l'atome et la surface jusqu'à l'interaction résonnante, en montrant aussi les résultats expérimentaux des effets thermiques sur le coefficient de vdW (3.1). Dans la section suivante, nous analysons de nouvelles mesures d'émissivité effectuées par le CEMHTI sur des échantillons tout à fait identiques à ceux que nous avons utilisés sur nos expériences, pour évaluer précisément la constante diélectrique en fonction de la température, et en tenant compte de la biréfringence du saphir (3.2). Enfin, nous présentons nos prédictions pour le coefficient de vdW C_3 (3.3) et pour la durée de vie Γ_3 (3.4), en fonction de la température, pour les niveaux $7P_{1/2}$ et $7P_{3/2}$ du césium, compte tenu des nouvelles mesures de la constante diélectrique du matériau, et en comparant avec d'autres valeurs de la littérature. Rappelons que l'interaction vdW pour le niveau Cs ($7P_{3/2}$) (avec quelques résultats pour le niveau Cs ($7P_{1/2}$)) a été déjà étudiée antérieurement [3, 28, 49], mais les effets de température n'avaient pas été pris en compte.

3.1 Résumé des résultats précédents de l'équipe SAI du LPL-UP13 sur l'interaction Casimir-Polder en régime de champ proche entre atome de césium et surfaces dispersives

Les premières expériences pour mesurer le déplacement d'une transition atomique par l'interaction atome-surface ont été faites dans les années 90, où l'étude avait été réalisée sur la raie D₂ du césium (transition $6S_{1/2} \rightarrow 6P_{3/2}$ avec $\lambda = 852$ nm) [3, 32] et la raie de la deuxième résonance du césium [3, 49] (transition $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{1/2}, 7P_{3/2}$ avec $\lambda = 459$ nm et $\lambda = 455$ nm).

En 1995 [5] les études de l'interaction atome-surface ont été poursuivies théoriquement pour le cas d'un atome excité interagissant avec une surface caractérisée par $\varepsilon(\omega)$ (ici, diélectrique dispersif). Ce travail analyse l'évaluation du déplacement d'énergie pour le système Cs ($7P_{3/2}$) /saphir, pour lequel il y avait déjà des résultats expérimentaux [3], en utilisant pour le saphir une étude réalisée par A. S. Barker Jr. [50]. Il s'agissait de déterminer l'efficacité ("coefficient d'image") du saphir pour un couplage (vers Cs ($6D$)), où le saphir n'est plus du tout un diélectrique transparent. En outre, de manière théorique, l'interaction de vdW Cs ($6D_{3/2}$) et une surface de saphir a été abordée, prévoyant une répulsion sur l'interaction atome-surface. En effet, ce niveau du césium a une transition dipolaire, en émission vers le niveau $7P_{1/2}$ ($\lambda = 12,15$ μm), qui est quasi-coïncidente avec le mode de polariton de la surface de saphir, de telle façon que l'interaction vdW peut être exaltée. En plus de ce système Cs ($6D_{3/2}$) /saphir, d'autres systèmes avec une interaction atome-surface résonnante ont été étudiés dans l'équipe [47] (Cs ($6D_{3/2}$) /YAG, Rb ($6D_{3/2}$) /saphir, Rb ($6D_{3/2}$) /YAG).

Expérimentalement, à la fin des années 90, cette répulsion géante a été démontrée par H. Failache *et al* [15], en sondant le niveau Cs ($6D_{3/2}$), mais les effets de température n'ont pas été pris en compte. À l'époque, la correction en température n'a pas été cherchée sur l'évaluation de C_3 , d'autant que la température de la cellule était limitée.

Les effets de température ont été d'abord recherchés par un système d'interaction Cs ($8P_{3/2}$) /CaF₂ [51] (en théorie, le système Cs ($8P_{3/2}$) /CaF₂ n'est pas très résonnant,

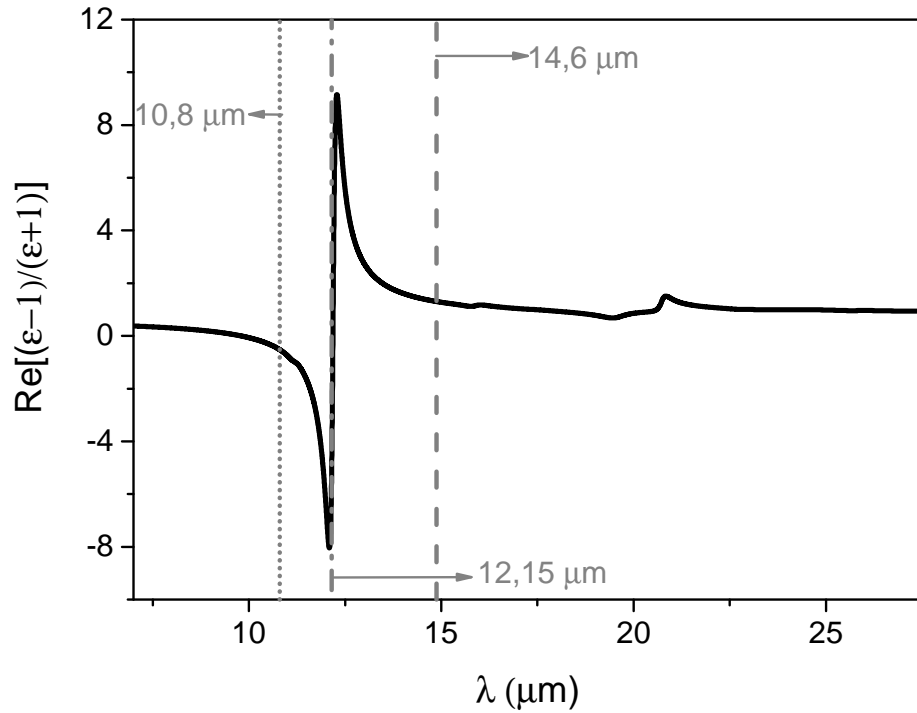


FIGURE 3.1: Partie réelle de la réponse de la surface de saphir d'après les données de la constante diélectrique issues de la référence [50]. Les marqueurs pour les couplages $6D_{3/2} \rightarrow 7P_{1/2}$ ($\lambda = 12,15 \mu\text{m}$), $7P_{3/2} \rightarrow 6D_{5/2}$ ($\lambda = 14,6 \mu\text{m}$) et $7D_{3/2} \rightarrow 5F_{5/2}$ ($\lambda = 10,8 \mu\text{m}$) sont également montrés.

mais permettait des températures raisonnables $T \approx 300 - 500 \text{ K}$). Néanmoins, les résultats expérimentaux du coefficient de vdW sont constants en fonction de la température, et il semble que ce soit en raison des réactions chimiques entre le césium et la surface de CaF_2 : la nature de cette surface avait été significativement affectée, ce qui changeait considérablement les résonances de la surface. Il avait aussi été prédit que les effets de température donnent lieu à un changement notable de l'interaction atome-surface (passant d'une interaction attractive pour une répulsive à des températures modérées), pour le système quasi-équivalent $\text{Cs}(8P_{3/2})/\text{BaF}_2$ [52]. Cependant, BaF_2 présente des contraintes techniques très délicates.

Grâce à une cellule de saphir, qui supporte des températures de $\sim 1200 \text{ K}$ construite en Arménie (puis grâce à une nouvelle arménienne décrite sur le chapitre (5)), l'équipe a pu observer expérimentalement les effets de température pour le déplacement d'énergie sur l'interaction vdW [27], pour le niveau $7D_{3/2}$ du césium. Dans cette expérience, effectuée sur la transition $6P_{1/2} \rightarrow 7D_{3/2}$, partant d'un niveau préalablement pompé, le couplage le plus important pour l'interaction atome-surface est l'absorption virtuelle, $7D_{3/2} \rightarrow 5F_{5/2}$, $\lambda = 10,8 \mu\text{m}$, située dans les ailes de la résonance du saphir (*cf.* fig. (3.1)). Cette

expérience, réalisée entre 500 K et 1000 K, montre une augmentation importante du C_3 avec la température, et mêmes aux plus basses températures étudiées, les résultats sont supérieurs à la prédiction à $T = 0$ K (*cf.* fig. (3.2)).

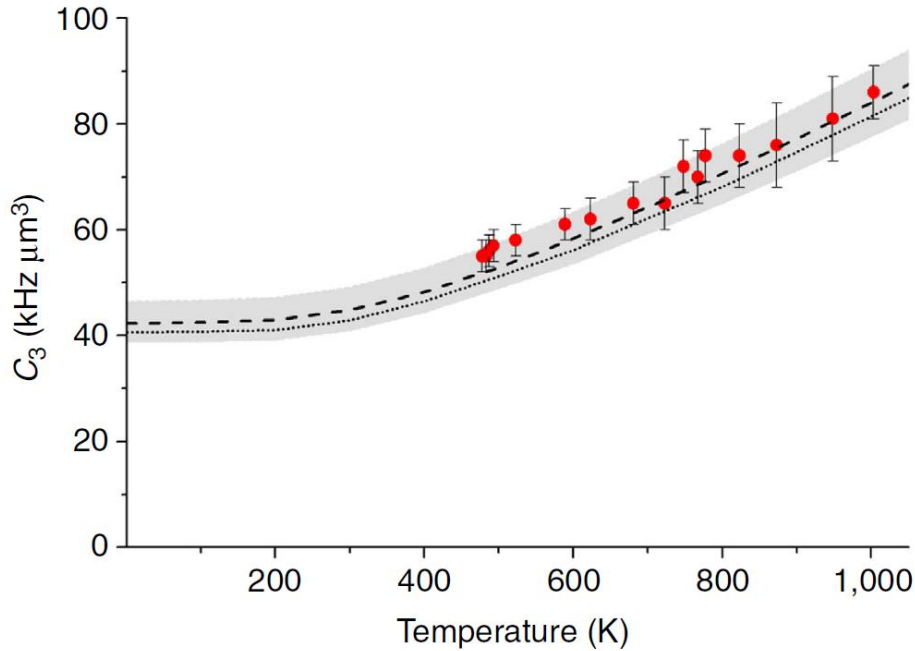


FIGURE 3.2: Résumé du résultat de l'interaction de vdW pour le système d'interaction Cs ($7D_{3/2}$) /saphir. Figure issue de [27].

3.2 Obtention de $\varepsilon(\omega)$ de saphir par l'évaluation du coefficient de van der Waals

La problématique de cette section est de modéliser la fonction diélectrique d'un matériau pour évaluer la réponse de la surface $S(\omega) = \frac{\varepsilon(\omega) - 1}{\varepsilon(\omega) + 1}$, notamment autour de sa résonance de polariton.

Pour raffiner notre prédiction théorique de l'interaction de vdW, le groupe "Grandeurs Radiatives et Phénomènes de Transport dans les Matériaux" du CEMHTI à Orléans, dirigé par P. Echegut et D. De Sousa Meneses, a réalisé de nouvelles mesures pour obtenir la fonction diélectrique de la surface du saphir. Ces mesures prennent en compte les effets thermiques de la surface jusqu'à environ 1400 K, et elles ont été effectuées sur des surfaces de saphir totalement identiques à celle de nos expériences (saphir super poli de rugosité

$\sim 0,3 \text{ nm}$).

3.2.1 Saphir

Le saphir est la forme cristalline de Al_2O_3 et est transparent pour une large gamme de fréquence, allant de l’ultraviolet jusqu’à $5 - 6 \mu\text{m}$. C’est un matériau résistant aux atomes alcalins et qui est très fiable pour opérer à haute température ($T > 1000 \text{ K}$)[53]. C’est un matériau biréfringent et, si l’axe de biréfringence est perpendiculaire à la surface (C_\perp), la réponse de la surface $S(\omega)$ dépend de la constante diélectrique du milieu définie par $\varepsilon(\omega) = \sqrt{\varepsilon_o(\omega)\varepsilon_e(\omega)}$, où $\varepsilon_o(\omega)$ est la constante diélectrique ordinaire et $\varepsilon_e(\omega)$ l’extraordinaire. Le traitement théorique pour l’évaluation de C_3 à partir d’une surface taillée selon d’autres directions a été déjà discuté [54]. L’orientation de biréfringence de la surface peut faire passer d’un effet attractif à répulsif l’interaction résonnante de vdW (ou vice-versa).

3.2.2 Dispositif expérimental pour l’obtention des spectres d’émissivité du saphir par la collaboration avec CEMHTI-Orléans

Dans cette sous-section, on reprend brièvement les éléments du dispositif expérimental utilisé par le groupe CEMHTI [55] pour les spectres expérimentaux d’émissivité analysés ultérieurement pour obtenir la fonction diélectrique du matériau.

À la différence des expériences précédentes faites par A. S. Barker Jr [50], F. Gervais & B. Piriou [56] ou, plus récemment, apportées dans [52], où la valeur de $\varepsilon(\omega)$ était extraite par des mesures de réflectivité, les nouvelles mesures d’Orléans sont obtenues à partir de spectre d’émissivité (des mesures sur le saphir en fonction de la température avaient déjà été effectuées [52], mais sur un échantillon “incertain”). L’émissivité spectrale est définie à partir du rapport entre l’intensité du champ thermique émis par l’échantillon et par le corps noir dans les mêmes conditions de température et direction de collection.

L’échantillon de saphir est chauffé des deux côtés, par un laser CO_2 de puissance ajustable, avec l’objectif de minimiser les gradients thermiques et l’acquisition des spectres n’est déclenchée qu’après que l’échantillon ait atteint l’équilibre thermique dans son volume. Le laser CO_2 a un faisceau gaussien de 12 mm de diamètre à $1/e^2$. Ainsi, l’émissivité de l’échantillon n’est mesurée que depuis une petite aire centrée sur le chauffage laser, assurant mieux l’homogénéité de la température. La région analysée correspond à un

diamètre de 2 mm, et la direction d'observation est perpendiculaire à l'échantillon.

La température d'échantillon était évaluée par un spectromètre qui travaille sur la fréquence de Christiansen. Pour chaque température, il y a une valeur de la longueur d'onde où l'émissivité de l'échantillon est maximale [57].

Pour faire l'analyse spectrale de l'émissivité sur une grande plage de fréquence (20 – 10000 cm^{-1}), quatre configurations différentes sont utilisées, selon la gamme de fréquence (Bolomètre, DLaTGS, InGaAs et une photodiode de Si). La résolution est de 4 cm^{-1} . Les mesures présentées dans ce manuscrit ont été obtenues avec une configuration instrumentale unique (Vertex 80V, DLaTGS).

Pour l'acquisition des données d'émissivité, l'échantillon de saphir et une référence corps noir ont été disposés sur une plaque tournante. Les flux issus de l'échantillon et de la référence corps noir sont acquis dans les mêmes conditions, l'un à la suite de l'autre (*cf.* fig. (3.3)). Tous les spectres d'émissivité ont été collectés selon une direction perpendiculaire en relation à la surface, soit l'échantillon de saphir soit la référence corps noir. En effet, l'émissivité est une grandeur qui est fonction d'angle de collection [58].

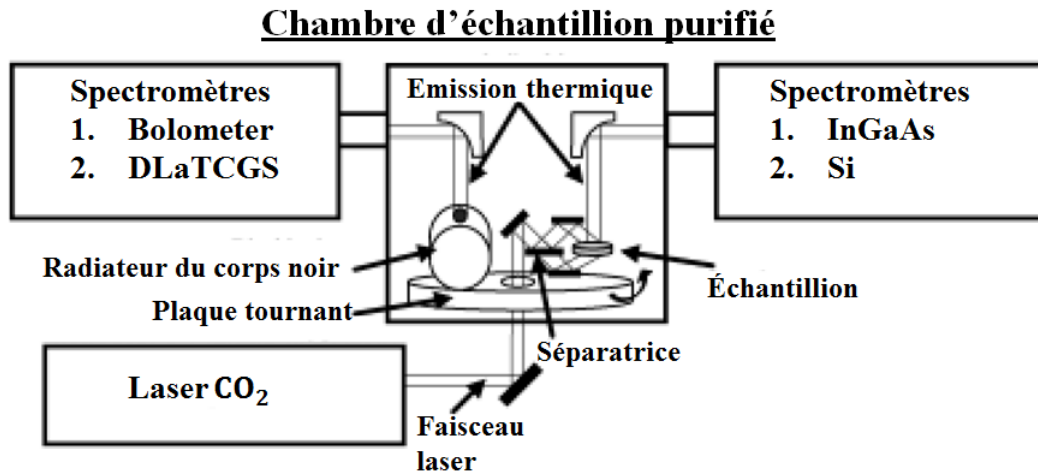


FIGURE 3.3: Schéma de détection de l'émissivité de l'échantillon de saphir qui a été utilisé par le groupe CEMHTI. Figure issue et adaptée de la référence [55].

Pour accéder aux deux axes de biréfringence de la surface de saphir, les mesures d'émissivité ont été réalisées avec deux types d'échantillon, mais de même nature de polissage entre eux : un avec l'axe C_{\perp} de biréfringence et l'autre avec l'axe C_{\parallel} . Pour le dernier échantillon, des polariseurs ont été mis en place pour aider la détection de l'émissivité selon l'axe souhaité, car elle est une grandeur polarisée qui contient les informations sur les deux axes d'orientation (ordinaire et extraordinaire).

3.2.3 Méthode théorique pour déterminer $\varepsilon(\omega)$

Dans cette partie, nous discutons brièvement la méthode utilisée pour extraire la fonction diélectrique complexe d'un matériau à partir des mesures d'émissivité.

Nous sommes intéressés aux propriétés optiques du matériau dans une région spectrale opaque, dans laquelle il y a une très forte absorption à l'intérieur du matériau. Par conséquence, dans cette zone, la transmission est nulle. De cette manière, avec la loi de Kirchhoff, $\rho = 1 - E$, où ρ est la réflectivité et E l'émissivité. Les spectres d'émissivité peuvent être analysés en utilisant la relation de Kramers-Kronig. Cette méthode consiste à récupérer la phase ($\theta(\omega)$) acquise par l'onde électromagnétique à partir de la connaissance de la réflectivité de l'échantillon dans toute la gamme spectrale [59] :

$$\theta(\omega) = -\frac{1}{2\pi}P \int_0^\infty \ln \left| \frac{s + \omega}{s - \omega} \right| \frac{d \ln(\rho(s))}{ds} ds \quad (3.1)$$

où P dénote la partie principale évaluée sur le point $s = \omega$, $\rho = \left| \frac{\tilde{n} - 1}{\tilde{n} + 1} \right|^2$ est la réflectivité (détectée à la direction normale par rapport à l'échantillon) obtenue expérimentalement, et $\tilde{n} = n + i\kappa$ est l'indice de réfraction complexe, par lequel nous pouvons écrire n et κ à partir de ρ et $\theta(\omega)$ comme étant [59] :

$$n = \frac{1 - \rho}{1 + \rho^2 - 2\rho^{1/2} \cos(\theta)} \quad (3.2)$$

$$\kappa = \frac{2\rho^{1/2} \sin(\theta)}{1 + \rho - 2\rho^{1/2} \cos(\theta)} \quad (3.3)$$

À partir des équations (3.1), (3.2), (3.3) et du spectre d'émissivité, nous pouvons trouver la valeur de \tilde{n} et, donc, la valeur de la fonction diélectrique complexe puisque $\varepsilon = \tilde{n}^2$. En pratique, la détermination de $\theta(\omega)$ peut être réalisée par une modélisation analytique de $\varepsilon(\omega)$.

Les ajustements théoriques sur les spectres d'émissivité dépendent donc du modèle choisi pour la fonction diélectrique. Plusieurs modèles peuvent être trouvés dans la littérature : le modèle d'un oscillateur harmonique amorti classique est utilisé par A. S. Barker Jr. [50] ; pour un autre modèle, la fonction diélectrique est écrite en incluant la sommation de divers modes transversaux optiques [60], où les amortissements sont identiques avec les modes

longitudinaux. Ce dernier modèle est appelé “3P” parce qu’il y a trois paramètres à ajuster (Ω_j , $\omega_{TO,j}$ et γ_j). Un autre modèle, fréquemment utilisé, est dit à 4 paramètres (4P) (cf. F. Gervais & B. Piriou [56]), et qui prend en compte les différences entre les fréquences longitudinales ($\Omega_{LO,j}$) et transversales ($\Omega_{TO,j}$), ainsi que la différence sur l’amortissement entre ces deux modes.

Ces modèles que nous venons de mentionner ci-dessus ne prennent pas en compte l’anharmonicité du réseau. Cette anharmonicité fait que l’interaction des phonons avec les modes de vibrations du réseau est plus complexe, et que l’amortissement ne doit plus être pris en compte comme une constante, mais comme une variable qui dépend de la fréquence [59]. Un modèle connu comme semi-quantique a notamment été développé par le groupe CEMHTI. La constante diélectrique du matériau est donnée par la fonction suivante [59] :

$$\varepsilon(\omega) = \varepsilon_\infty + \sum_j \frac{\Delta\varepsilon_j \Omega_j^2}{\Omega_j^2 - \omega^2 - 2\Omega_j P_j(\omega)} \quad (3.4)$$

où $P_j(\omega) = \Delta_j(\omega) + i\Gamma_j(\omega)$ est connue comme la fonction de *self energy*, avec $\Delta_j(\omega)$ qui représente le déplacement transversal de la fréquence optique et $\Gamma_j(\omega)$ l’amortissement qui dépend de la fréquence. Plusieurs modèles ont été proposés pour décrire $P_j(\omega)$, cependant, le modèle utilisé par D. De Sousa Meneses *et al* [59] consiste à l’écrire comme une séquence de pics qui peuvent être reproduits par des fonctions élémentaires de forme générale sous la forme suivante [59] :

$$P_j(\omega) = \sum_k g(\omega) + g^{kkg}(\omega) \quad (3.5)$$

avec

$$g(\omega) = Ae^{-\left(\frac{\omega-\omega_0}{\gamma}\right)^2} - Ae^{-\left(\frac{\omega+\omega_0}{\gamma}\right)^2} \quad (3.6)$$

et

$$g^{kkg}(\omega) = \frac{2A}{\sqrt{\pi}} \left[D\left(\frac{\omega+\omega_0}{\gamma}\right) - D\left(\frac{\omega-\omega_0}{\gamma}\right) \right] \quad (3.7)$$

où A , ω_0 et γ sont, respectivement, l'amplitude, la localisation et l'amortissement. Le $D(x) = e^{-x^2} \int_0^x dt e^{-t^2}$ est la fonction de Dawson. Le $g^{kkg}(\omega)$ est la transformée de Kramers-Kronig de la fonction $g(\omega)$ qui est la somme de deux fonctions gaussiennes (NB : l'amortissement et g^{kkg} doit dépendre - ou devrait - de la température, et c'est justement une affaire compliquée. Le tableau (3) de la référence [52] montre déjà des variations, en température des nombreux paramètres).

3.2.4 Réponse de la surface de saphir en fonction de la température à partir des ajustements des spectres d'émissivités obtenus par le groupe CEMHTI

La figure (3.4) montre les spectres de réflectivité déduits des mesures d'émissivité ($R = 1 - E$). Dans cette figure, nous montrons aussi où se situent les couplages $7P_{1/2} \rightarrow 6D_{3/2}$ ($\lambda = 12, 15 \mu\text{m}$) et $7P_{3/2} \rightarrow 6D_{3/2}$ ($\lambda = 14, 6 \mu\text{m}$), les plus significatifs pour l'évaluation du C_3 [3, 14] (NB : avec le nouveau montage en émissivité du groupe CEMHTI, le matériau n'est pas thermiquement très émissif à des températures proches de la température ambiante, et la sensibilité est dégradée). On peut noter que ces couplages n'apparaissent pas dans une région particulièrement remarquable sur les spectres. Les spectres d'émissivité (cf. fig. (3.4)) correspondent à un échantillon de saphir avec axe C_{\parallel} . Avec des polariseurs, les chercheurs du CEMHTI ont pu sélectionner les spectres d'émissivité selon chaque axe de biréfringence du matériau : lorsque l'axe optique est parallèle à la surface, elle contient dans son plan les informations sur les deux axes de biréfringence (C_{\parallel} et C_{\perp}) [61]. Les spectres d'émissivité, a priori, dépendant de la direction de détection (choisie normale à la surface) contiennent aussi des informations sur les axes éventuels de biréfringence du matériau. La figure (3.4) présente aussi les ajustements de la réflectivité à partir de l'équation (3.4) pour le modèle de la fonction diélectrique.

L'obtention indirecte de la réflectivité, via l'émissivité, ne change pas sa forme par rapport au cas où elle est détectée de façon directe [62]. Autrement dit, nous pouvons utiliser soit la loi de Kirchhoff (on considère une région spectrale opaque de la surface) pour obtenir indirectement ρ à travers de E , soit directement la réflexion d'une source lumineuse, avec des résultats, en forme et en amplitude.

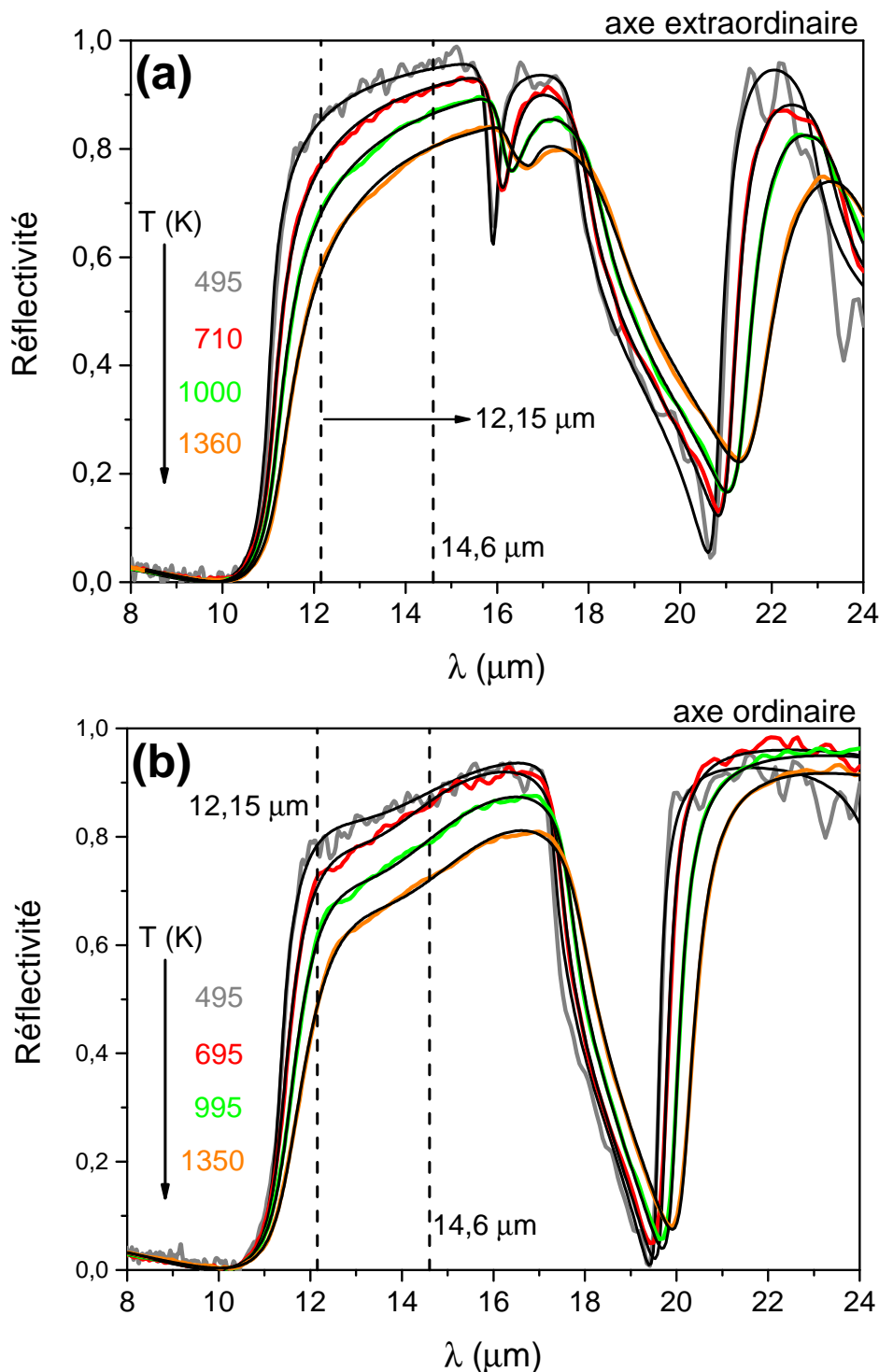
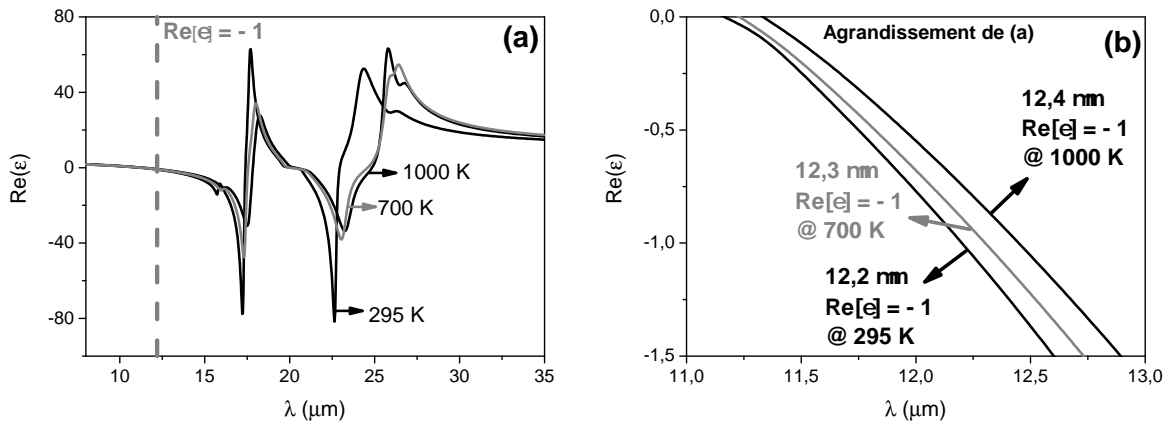


FIGURE 3.4: Spectres expérimentaux de réflectivité ajustés par le modèle semi-quantique de $\varepsilon(\omega)$ décrit par l'équation (3.4). La réflectivité (ρ) sur cette figure a été obtenue par l'expression $E = 1 - \rho$, où E est l'émissivité. Les spectres d'émissivité ont été collectés à partir d'un échantillon de saphir avec l'axe optique de biréfringence parallèle à la surface (axe C_{\parallel}). (a) Spectre de réflectivité à partir de la collection de l'émissivité polarisée verticalement (axe extraordinaire- C_{\perp}) et (b) détection de l'émissivité polarisée horizontalement (axe ordinaire- C_{\parallel}). Les ajustements sur la réflectivité (ou l'émissivité) donnent accès à la fonction diélectrique $\varepsilon(\omega)$ du saphir.

Les critères d’ajustement employés sur les spectres montrés à la figure (3.4) ont été les suivants :

- Premièrement on effectue une inspection visuelle des ajustements, où les paramètres sont choisis de façon à obtenir la meilleure qualité des ajustements ;
- Un critère de “consistance” est une relation de dépendance monotone avec la température pour $A_{n,j}$, $\omega_{n,j}^0$ et $\Gamma_{n,j}$ [26] ;
- Une autre condition est l’extrapolation vers les fréquences “élevées”, très supérieures à toute les vibrations du réseau (ε_∞). Cette valeur ε_∞ correspond à la permittivité dans la zone de transparence (ici on tend vers les fréquences visible-IR) [26, 63], et prend en compte les contributions des transitions électroniques qui font l’absorption UV du matériau (et sa transparence finale $\varepsilon = 1$ au delà).

Pour savoir où se situe la fréquence du mode de polariton de la surface, nous devons trouver quand $\text{Re}[\varepsilon(\omega)] \approx -1$ et $\text{Im}[\varepsilon(\omega)] \ll 1$ (en fait, on cherche la fréquence où $\varepsilon(\omega) \approx -1$ pour avoir des pôles sur la réponse de surface, comme indiqué au chapitre (2)). Il apparait difficile, à partir des spectres de réflectivité de localiser les modes de polariton de surface. La figure (3.5) montre que le mode de polariton se déplace vers les grandes longueurs d’onde quand la température augmente. Ces longueurs d’onde (dans le vide)¹, correspondant aux modes de polariton de la surface de saphir, sont en quasi-coïncidence avec le couplage dipolaire $7P_{1/2} \rightarrow 6D_{3/2}$ du césium ($\lambda = 12, 15 \mu\text{m}$).



1. Par commodité, nous définissons les fréquences optiques par les longueurs d’onde dans le vide.

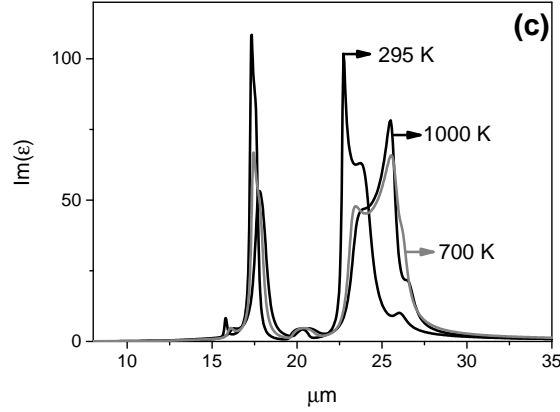


FIGURE 3.5: (a) Partie réelle de la constante diélectrique : le tireté indique où se trouve $\text{Re}(\varepsilon) = -1$. (b) Agrandissement de (a) montrant que le mode de polariton de surface se déplace avec la température. (c) Partie imaginaire de la constante diélectrique.

Nous notons aussi à la figure (3.5) une diminution de l’amplitude et un déplacement sur la fonction diélectrique avec la température. Par conséquent, cet effet peut jouer un rôle sur l’évaluation du coefficient de vdW avec la température.

Une fois que la fonction diélectrique a été obtenue, nous pouvons calculer la réponse de la surface, $S(\omega) = \frac{\varepsilon(\omega) - 1}{\varepsilon(\omega) + 1}$, qui est la grandeur importante pour l’évaluation de C_3 et de Γ_3 . La figure (3.6) montre $\text{Re}[S(\omega)]$ et $\text{Im}[S(\omega)]$ pour une surface de saphir et pour quelques températures. À partir de cette figure, il est possible de noter que la température de la surface a comme conséquence un élargissement et un déplacement du mode de polariton en plus d’une diminution de son amplitude, comme attendu à cause des effets de $\varepsilon(\omega)$ montrés à la figure (3.5). Il faut bien remarquer que les résultats pour la réponse de la surface sont obtenus de façon très indirecte. Ainsi, à partir des spectres d’émissivité (ou réflectivité) obtenus pour chaque axe de biréfringence de la surface, nous avons utilisé un modèle pour $\varepsilon(\omega)$ avec beaucoup de paramètres pour ces spectres, et pour remonter la fonction diélectrique, qui est une grandeur complexe, à partir de l’émissivité, il faut utiliser une relation du type Kramers-Kronig [59]. Puis, après avoir fait les ajustements sur les spectres, on prend la partie réelle et imaginaire de l’opération $\frac{\varepsilon(\omega) - 1}{\varepsilon(\omega) + 1}$ pour chaque température.

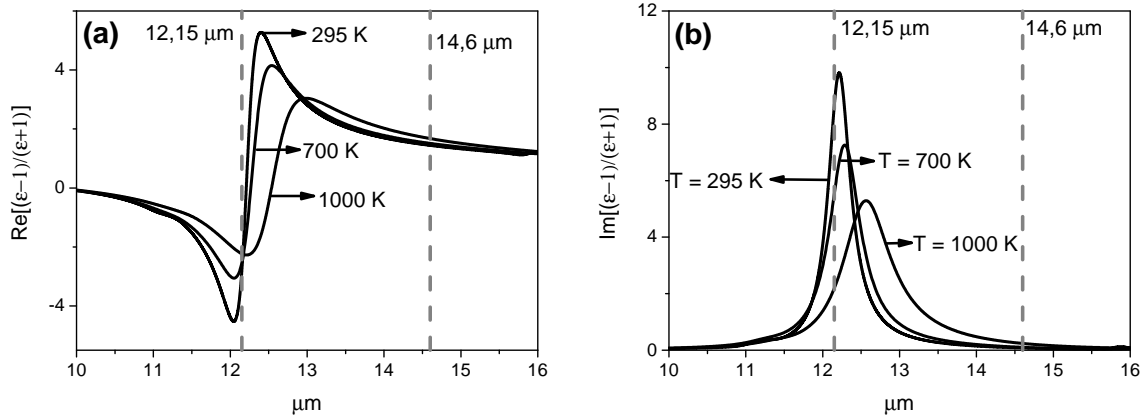
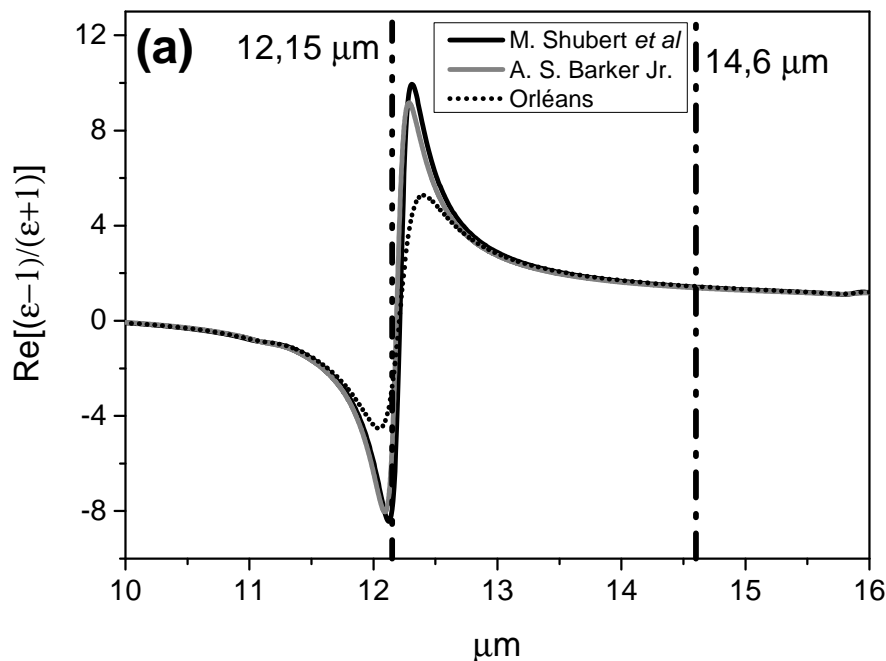


FIGURE 3.6: Réponse de la surface de saphir. (a) Partie réelle et (b) imaginaire de la réponse de la surface pour quelques températures, à partir des ajustements, par le modèle semi-quantique [59], des spectres d'émissivités fournis par le groupe CEMHTI.

3.2.5 Discussion sur les résultats de la réponse de saphir à partir de $\epsilon(\omega)$ obtenu par les données expérimentaux fournies par le groupe CEMHTI

- La figure (3.7) compare les réponses, $\frac{\epsilon(\omega) - 1}{\epsilon(\omega) + 1}$, de la surface de saphir (partie réelle et imaginaire), à $T = 300 \text{ K}$, évaluées à partir de quelques données de $\epsilon(\omega)$ trouvées sur la littérature et selon les ajustements des mesures d'émissivité faites par le groupe CEMHTI. Elle montre des différences importantes pour la prédiction pour l'interaction vdW, soit le C_3 soit le Γ_3 ;



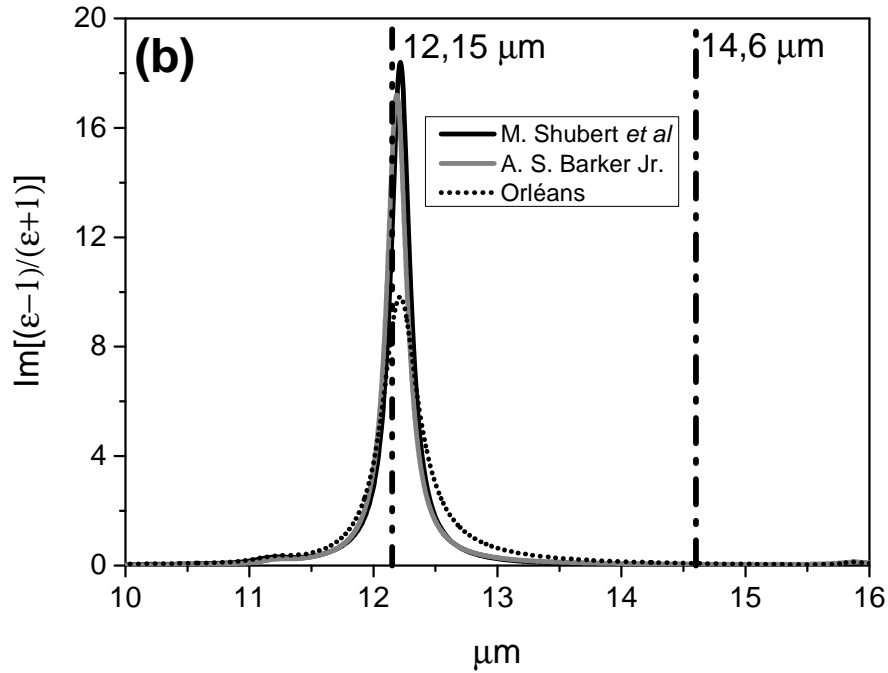


FIGURE 3.7: Comparaison entre la réponse de la surface de saphir évaluée d’après les mesures d’Orléans et à partir de quelques données de la fonction diélectrique trouvées dans la littérature : M. Shubert *et al* [64] et A. S. Barker Jr [50]. (a) Partie réelle et (b) imaginaire. Toutes les courbes sont à $T \approx 300$ K.

- Les mesures d’émissivité présentées à la figure (3.4) n’ont été que détectées par un échantillon avec un axe C_{\parallel} . Avec la détection de la bonne polarisation de l’émissivité, nous pouvons toujours accéder aux constantes diélectriques respectives de la surface. Néanmoins, la figure (3.8) montre la comparaison entre les spectres d’émissivité (réflectivité) détectés par une surface de saphir avec l’axe C_{\perp} de biréfringence et celui correspondant lorsque l’échantillon a un axe C_{\parallel} (*cf.* fig. (3.4)). Cette figure présente aussi la réponse de la surface selon les valeurs respectives des constantes diélectriques. Ainsi, comme nous pouvons l’observer, les changements sont non significatifs entre les réponses de la surface du saphir, particulièrement, dans la région qui nous intéresse ;
- Les données de $\varepsilon(\omega)$ fournies par T. Passerat de Silans *et al* [52] ne sont que pour l’axe ordinaire. C’est pourquoi nous présentons sur la figure (3.9) une comparaison entre les réponses de saphir évaluées à partir des données obtenues selon les ajustements des mesures d’émissivité du CEMHTI et, celles évaluées en prenant en compte le $\varepsilon_o(\omega)$ (axe ordinaire) issu de la référence [52] et $\varepsilon_e(\omega)$ (axe extraordinaire) issu des ajustements des spectres d’émissivité montrés sur la figure (3.4). Comme

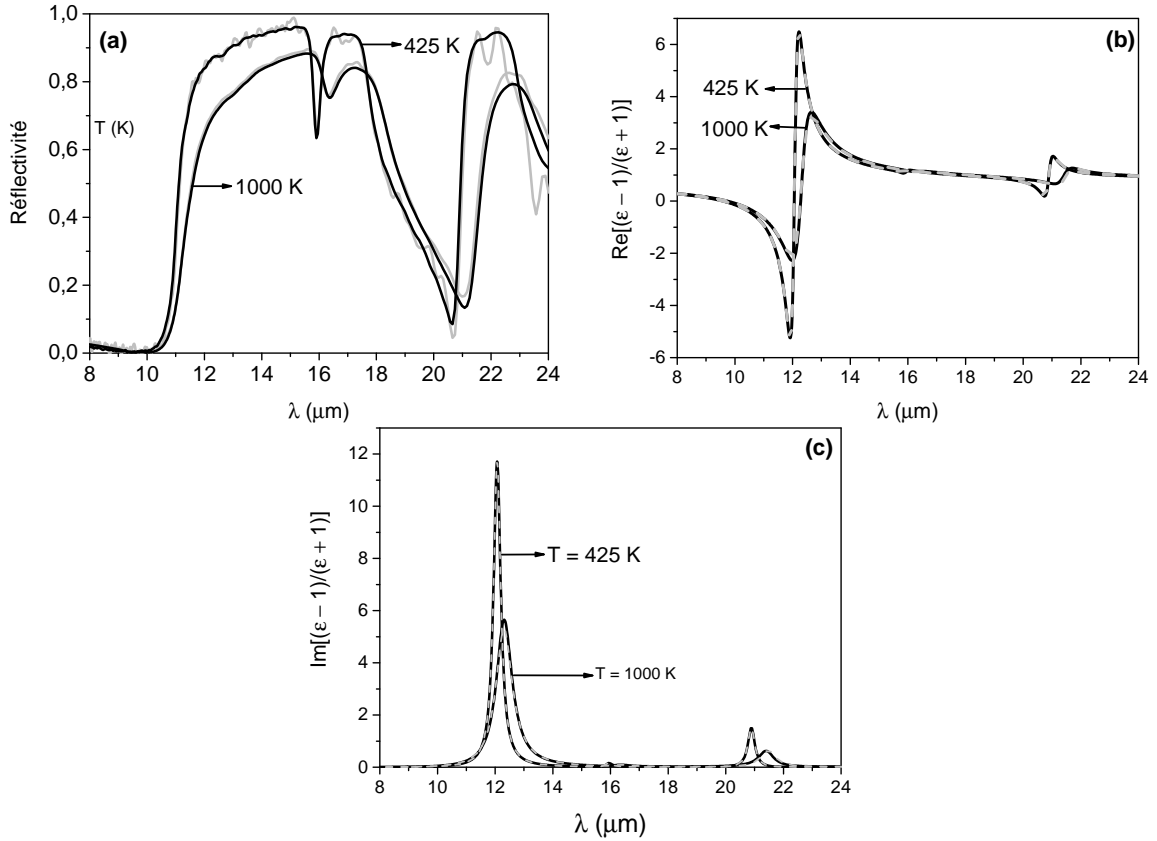


FIGURE 3.8: En noir les spectres détectés par un échantillon C_{\perp} et en gris par un échantillon C_{\parallel} , mais avec une détection selon l'axe ordinaire. (a) Comparaison entre les spectres de réflectivité. (b) et (c) Partie réelle et imaginaire, dans cet ordre, de la réponse de la surface d'après les ajustements faits sur les spectres de réflectivité. La réponse de la surface est évaluée comme étant $\epsilon(\omega) = \sqrt{\epsilon_e(\omega)\epsilon_o(\omega)}$.

nous pouvons le voir, bien que la constante diélectrique ordinaire ait été prise pour une surface qui n'était pas super polie, la réponse de la surface (partie réelle et imaginaire) change peu en amplitude, et à 12, 15 μm et 14, 6 μm ne présente pas des modifications significatives. Les études initiales sur le saphir en fonction de la température [52] ont été faites sur un échantillon assez quelconque de saphir, alors que les nouvelles études à Orléans portent sur une fenêtre identique à celle de la cellule à fenêtre super polie.

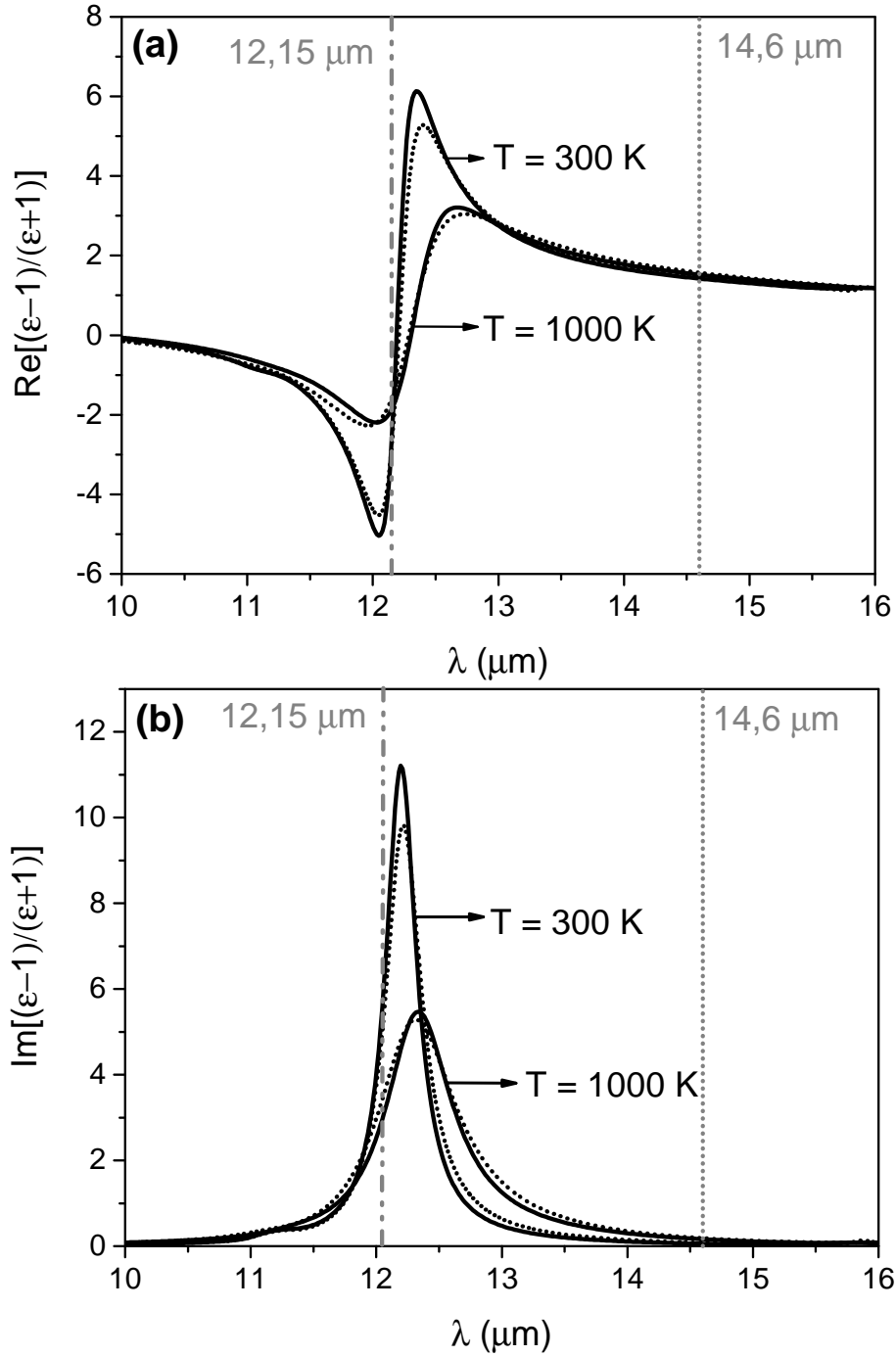


FIGURE 3.9: Comparaison entre $\text{Re} \left[\frac{\epsilon(\omega) - 1}{\epsilon(\omega) + 1} \right]$ et $\text{Im} \left[\frac{\epsilon(\omega) - 1}{\epsilon(\omega) + 1} \right]$ du saphir pris par des évaluations différentes de la constante diélectrique, où la constante diélectrique est calculée comme $\epsilon(\omega) = [\epsilon_o(\omega)\epsilon_e(\omega)]^{1/2}$. Pour la réponse de la surface en trait plein, le $\epsilon_o(\omega)$ est issu à partir des ajustements des spectres de réflectivité faits par T. Passerat de Silans [52] et $\epsilon_e(\omega)$ obtenu conformément aux ajustements des spectres d'émissivité qui ont été présentés à la figure (3.4). Pour la réponse de la surface en trait pointillé, la constante diélectrique est calculée avec les données des axes extraordinaire et ordinaire de la surface à partir des ajustements sur la figure (3.4).

3.3 Prédictions du C_3 pour les niveaux Cs ($7P_{1/2}$) et Cs ($7P_{3/2}$)

Dans cette section, nous présentons les prédictions théoriques pour le coefficient de van der Waals pour les interactions Cs ($7P_{1/2}$) /saphir et Cs ($7P_{3/2}$) /saphir, en utilisant des données diverses pour $\varepsilon(\omega)$ trouvées dans la littérature, ou selon les mesures d'émissivité effectuées par le groupe CEMHTI.

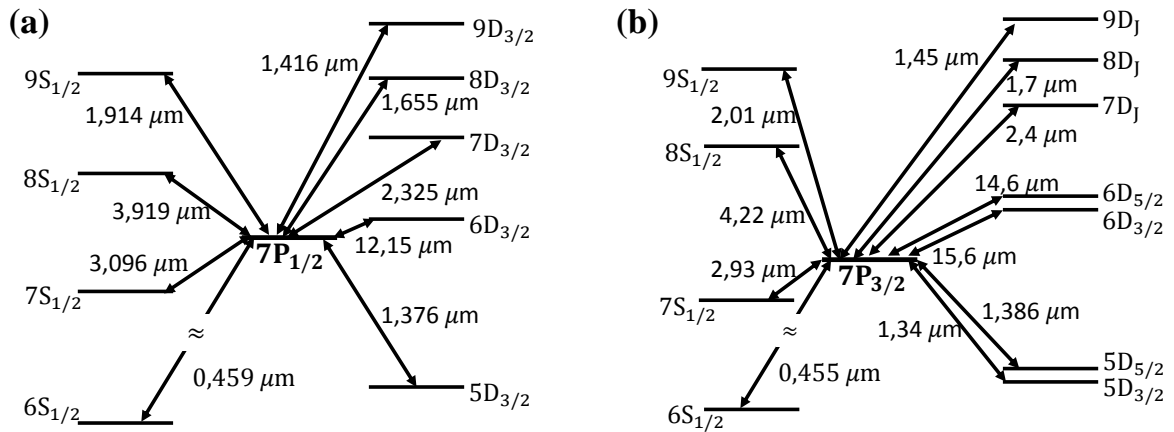


FIGURE 3.10: Couplages dipolaires vers les niveaux pris en compte pour les évaluations de C_3 et Γ_3 . (a) Cs ($7P_{1/2}$) et (b) Cs ($7P_{3/2}$).

Les tableaux (3.1) et (3.2) présentent les contributions du coefficient vdW pour les niveaux Cs ($7P_{1/2}$) et Cs ($7P_{1/2}$), en fonction de la température, pour chaque couplage dipolaire individuel, et la valeur totale. Les niveaux d'énergie couplés pris en compte sont décrits à la figure (3.10). Il est possible de noter que l'essentiel du C_3 ($7P_{1/2}$) vient du couplage à $12,15 \mu\text{m}$ (et encore plus à haute température), alors que pour les couplages vers les niveaux Cs ($7S_{1/2}$) ($\lambda = 3,096 \mu\text{m}$) et Cs ($8S_{1/2}$) ($\lambda = 3,919 \mu\text{m}$), les effets de température restent très faibles.

Pour la valeur C_3 ($7P_{3/2}$), le couplage vers le niveau Cs ($6D_{5/2}$) donne le principal effet avec la température, car les couplages importants vers les niveaux Cs ($7S_{1/2}$), Cs ($8S_{1/2}$) et Cs ($7D_{5/2}$) sont quasi-constants avec la température. En outre, comme le couplage dipolaire le plus significatif pour le niveau Cs ($7P_{3/2}$), en absorption vers le niveau Cs ($6D_{5/2}$), se trouve sur l'aile opposée de la réponse de la surface de saphir par rapport au cas étudié par A. Laliotis *et al* [27], où la principale transition est à $\sim 10,8 \mu\text{m}$, il est normal (*cf.* [27]) que le niveau Cs ($7P_{3/2}$) ait un coefficient de vdW qui diminue avec l'effet de la température.

Cs($7P_{1/2}$)	λ (μm)	A ($/s$) (10^6)	$\frac{2J_s + 1}{2J_a + 1}$	C_3^{PR}	C_3^{0K}	C_3^{300K}	C_3^{600K}	C_3^{900K}	C_3^{1200K}
$6S_{1/2}$	-0,459	2,12 (3,54)	1	< 0,01(0,01)	< 0,01(-0,03)	< 0,01(-0,035)	< 0,01(-0,035)	< 0,01(-0,035)	< 0,01(-0,035)
$7S_{1/2}$	-3,096	3,52 (4,02)	1	4,2 (4,78)	1,85(2,11)	1,7(1,93)	1,65(1,9)	1,4(1,62)	1,35(1,55)
$8S_{1/2}$	3,919	1,38 (1,28)	1	3,3(3,1)	1,9(1,74)	2(1,84)	2,1(1,94)	2,2(2,1)	2,4(2,24)
$9S_{1/2}$	1,914	0,45 (0,45)	1	0,13 (0,13)	0,065(0,066)	0,07(0,073)	0,075(0,075)	0,08(0,08)	0,08(0,08)
$5D_{3/2}$	-1,376	1,59 (1,29)	1	0,17(0,13)	0,0,09(0,074)	0,08(0,063)	0,08 (0,065)	0,075(0,06)	0,075(0,06)
$6D_{3/2}$	12,147	0,09 (0,054)	2	12,94(7,76)	8,45(4,26)	13,54(6,09)	28,1(14,2)	44,9(22,9)	60,73(28,41)
$7D_{3/2}$	2,325	1,74 (1,74)	2	1,75(1,75)	0,9(1,12)	1(1,1)	1 (1)	1(1)	1,1(1)
$8D_{3/2}$	1,655	1,11 (1,11)	2	0,4(0,4)	0,2(0,2)	0,22(0,22)	0,23(0,23)	0,24(0,24)	0,24(0,24)
$9D_{3/2}$	1,416	0,7 (0,7)	2	0,16 (0,15)	0,075(0,75)	0,09(0,85)	0,09(0,09)	0,09(0,09)	0,095(0,1)
Total				23,05(18,21)	13,53(10,29)	18,7(12,13)	33,32(19,46)	49,98(28,05)	66,07(33,7)

TABLE 3.1: Ce tableau indique les valeurs de C_3 en $\text{kHz}\cdot\mu\text{m}^3$ et en fonction de la température pour le niveau Cs ($7P_{1/2}$) interagissant avec une surface de saphir, ainsi que les valeurs individuelles pour chaque couplage dipolaire pris en compte. Le couplage dipolaire qui contribue le plus au coefficient de vdW est surligné en gris. Les valeurs du coefficient de vdW ont été calculées à partir des données de la constante diélectrique obtenue selon les mesures d'émissivité du groupe CEMHTI. Les valeurs de probabilité de chaque transition atomique sont issues de O. S. Heavens [65]. Entre parenthèses, les valeurs du C_3 évaluées pour les valeurs de probabilité de transition issues de A. Lindgård & S. E. Nielsen [66].

Cs($7P_{3/2}$)	$\lambda(\mu m)$	$A(/s)$ (10^6)	$\frac{2J_s + 1}{2J_a + 1}$	C_3^{PR}	C_3^{0K}	C_3^{300K}	C_3^{600K}	C_3^{900K}	C_3^{1200K}
$6S_{1/2}$	-0,455	2,97 (3,54)	1	0,01 (0,014)	< 0,01 (< 0,01)	< 0,01 (< 0,01)	< 0,01 (< 0,01)	< 0,01 (0,01)	-0,03 (-0,03)
$7S_{1/2}$	-2,93	4,05 (4,02)	1	4,09(4,06)	1,7(1,7)	1,7(1,67)	1,65(1,65)	1,4(1,41)	1,4 (1,36)
$8S_{1/2}$	4,22	2,62 (2,57)	1/2	3,94(3,87)	2,3 (2,29)	2,4(2,32)	2,5(2,46)	2,7(2,65)	2,9(2,88)
$9S_{1/2}$	2,01	0,89*	1/2	0,14	0,08	0,08	0,085	0,085	0,09
$5D_{3/2}$	-1,34	0,13 (0,129)	1	0,012(0,012)	< 0,01 (< 0,01)	< 0,01(< 0,01)	< 0,01 (< 0,01)	< 0,01(< 0,01)	< 0,01
$5D_{5/2}$	-1,38	1,1 (1,16)	1	0,11(0,1)	0,05 (0,06)	0,05(0,06)	0,05(0,06)	0,05 (0,05)	0,05 (0,05)
$6D_{3/2}$	15,57	0,0086 (0,011)	1	1,3(1,63)	0,9(1,12)	0,9(1,11)	0,7 (0,88)	0,35(0,44)	-0,06(-0,014)
$6D_{5/2}$	14,59	0,063 (0,065)	3/2	11,77 (12,1)	8,07 (8,53)	7,76(8,27)	5,21(5,47)	1,75(1,42)	0,98(0,6)
$7D_{3/2}$	2,44	0,348*	1	0,2	0,1	0,1	0,1	0,12	0,13
$7D_{5/2}$	2,42	2,087*	3/2	1,79	1	1	1	1,1	1,15
$8D_{3/2}$	1,705	0,223*	1	0,04	0,025	0,025	0,025	0,025	0,027
$8D_{5/2}$	1,702	1,337*	3/2	0,4	0,022	0,022	0,022	0,023	0,024
$9D_{3/2}$	1,45	0,141*	1	0,017	< 0,01	< 0,01	< 0,01	0,01	0,01
$9D_{5/2}$	1,45	0,844*	3/2	0,15	0,085	0,085	0,085	0,09	0,09
Total				23,97(24,52)	14,33(15,01)	14,12(14,74)	11,43(11,84)	7,7(7,41)	6,76(6,4)

TABLE 3.2: Idem que tableau (3.1) pour le niveau Cs ($7P_{3/2}$). Les astérisques sur quelques valeurs de $A_{a \rightarrow n}$ indiquent que ces valeurs sont issues de [66].

Graphiquement, les résultats des tableaux (3.1) et (3.2) sont résumés à la figure (3.11), qui permet la comparaison à partir d'autres évaluations de C_3 d'après différentes valeurs de la constante diélectrique pour l'obtention de la réponse de la surface.

Nous remarquons que à $T = 0$ K, les prédictions théoriques pour le C_3 coïncident quelles que soient les données pour $\varepsilon(\omega)$.

À haute température, il est intéressant de noter que si la prédiction du coefficient de vdW pour le niveau Cs ($7P_{1/2}$) aboutit à une forte augmentation de C_3 avec la température, les valeurs sont très différentes comparées à celles obtenues d'après des données de la littérature pour $\varepsilon(\omega)$, quand les mesures n'ont été faites que à température ambiante. Pour ce couplage très résonnant, le C_3 est lié aussi aux effets de température du matériau. Les C_3 ($7P_{1/2}$) estimés à partir des données issues de M. Shubert *et al* [64] et A. S. Barker Jr [50] divergent à haute température, puisque la réponse de la surface ne change pas avec la température et l'augmentation du coefficient de van der Waals ne vient que du facteur $\bar{n}(\omega, T)$ (le nombre moyen d'occupation de photons avec une énergie $\hbar\omega$). D'ailleurs, la différence sur l'évaluation du C_3 à haute température selon $\varepsilon(\omega)$ fourni par M. Shubert *et al* [64] et A. S. Barker Jr [50] peut être expliquée par les modèles distincts utilisés pour la constante diélectrique ou par les différences dans la nature du saphir. Les effets thermiques C_3 ($7P_{1/2}$) (prédiction avec les données du CEMHTI) dépendent donc fortement des effets en température du mode de polariton de la surface. En effet, la courbure sur la prédiction de C_3 (vers 1200 K, cf. fig. (3.11)), où l'effet n'est pas exponentiel, vient strictement des effets thermiques liés à la constante diélectrique du matériau ; lorsque nous prenons $\varepsilon(\omega)$ pour une température donnée, d'après les mesures du CEMHTI, la prédiction C_3 ($7P_{1/2}$) devient divergente. En revanche, quand nous comparons le C_3 à partir des réponses de la surface présentée aux figures (3.6) et (3.9), il n'y a pas de désaccord significatif, malgré la différence de polissage entre la surface saphir utilisée par T. Passerat de Silans [52] et à celle du groupe CEMHTI.

Pour le C_3 ($7P_{3/2}$), même si le couplage principal est localisé sur l'aile de la résonance de polariton de la surface de saphir, l'effet de la température sur $\varepsilon(\omega)$ influence la prédiction théorique. Ainsi, à $T \gtrsim 1000$ K, on note une courbure sur $C_3(T)$ à la figure (3.11). En revanche, si l'on garde pour $\varepsilon(\omega)$ la valeur d'après les ajustements des données du groupe CEMHTI à une température constante (ici 300 K), l'effet quantique de température est monotone et il n'y a pas de courbures sur la prédiction théorique du C_3 ($7P_{3/2}$).

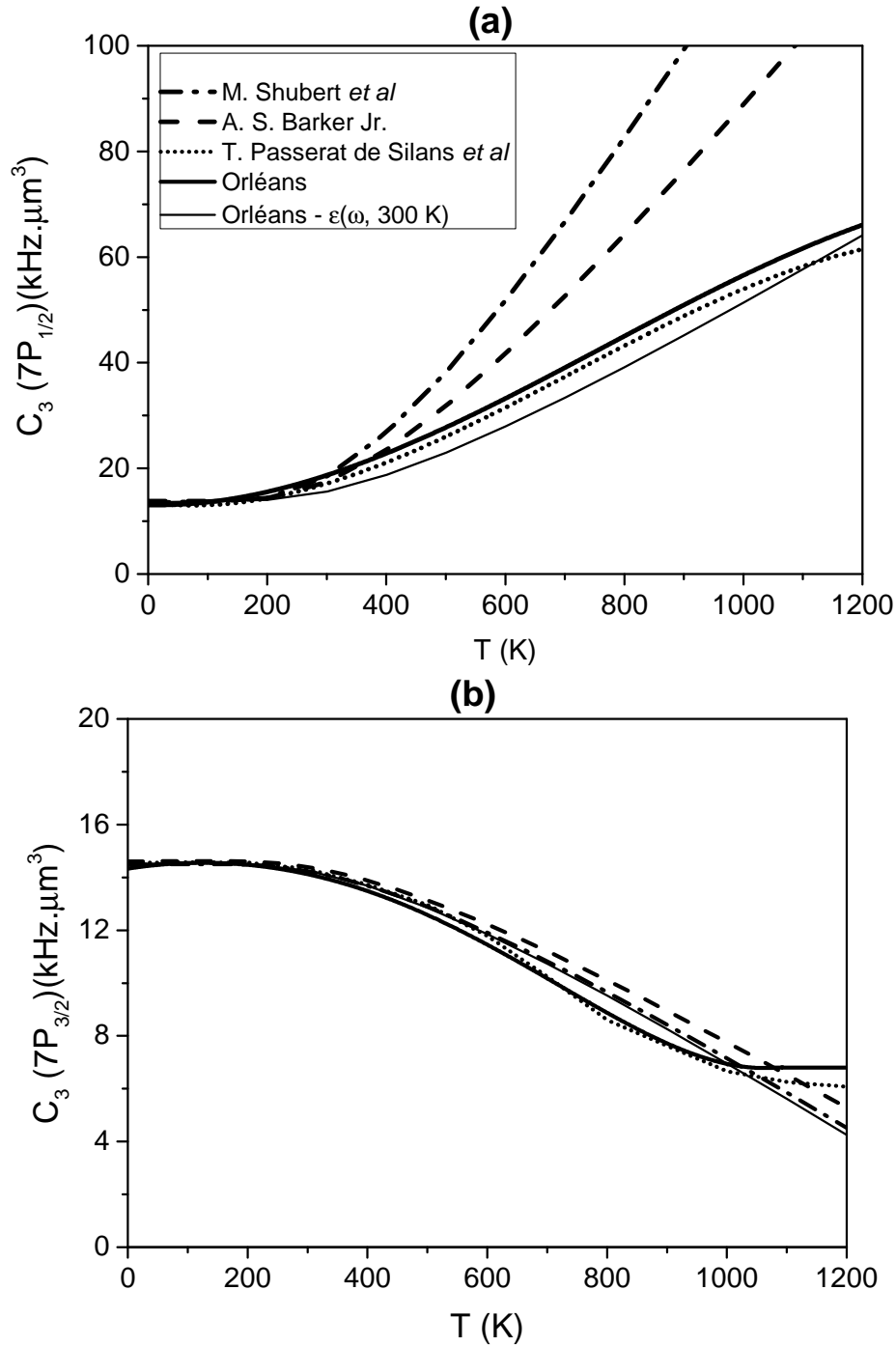


FIGURE 3.11: Coefficient de van der Waals en fonction de la température. La réponse de la surface a été calculée d'après les ajustements des données d'émissivité fournies par le groupe CEMHTI et selon quelques données de la constante diélectrique de la surface de saphir trouvées sur la littérature : M. Shubert *et al* [64], A. S. Barker Jr [50] et T. Passerat de Silans *et al* [52] (dans ce cas, la constante diélectrique extraordinaire est issue d'après les ajustements montrés sur la figure (3.4)). La ligne noire en trait léger indique le C_3 évalué à partir de $\epsilon(\omega)$ d'après les ajustements des données d'émissivité du CEMHTI (Orléans), mais avec une température constante de 300 K. La probabilité de transition est celle du tableau (3.1) issue de O. S. Heavens [65]. (a) $C_3(7P_{1/2})$ et (b) $C_3(7P_{3/2})$.

En plus de la connaissance de la réponse de la surface, un autre facteur, qui joue un rôle sur la prédiction du C_3 sont les valeurs des probabilités de transition. La figure (3.12) montre le changement de C_3 avec la température si on compare les résultats pour deux valeurs différentes de probabilités de transitions trouvées sur la littérature [65, 66]. Pour $C_3(7P_{1/2})$ la différence remarquable vient surtout de la probabilité de transition du couplage $7P_{1/2} \rightarrow 6D_{3/2}$, qui a une différence d'un facteur ~ 2 comme indiqué au tableau (3.1). Par contre, ceci est sans effet sur la valeur du $C_3(7P_{3/2})$. En fait, pour le calcul de ce niveau du césium, une moitié des probabilités de transitions sont issues de A. Lindgård & S. E. Nielsen [66], car O. S. Heavens [65] n'a pas toutes les valeurs des probabilités de transition nécessaires pour évaluer le $C_3(7P_{3/2})$, comme indiqué au tableau (3.2) (NB : il n'y a pas d'autre source dans la littérature pour ces probabilités de transition).

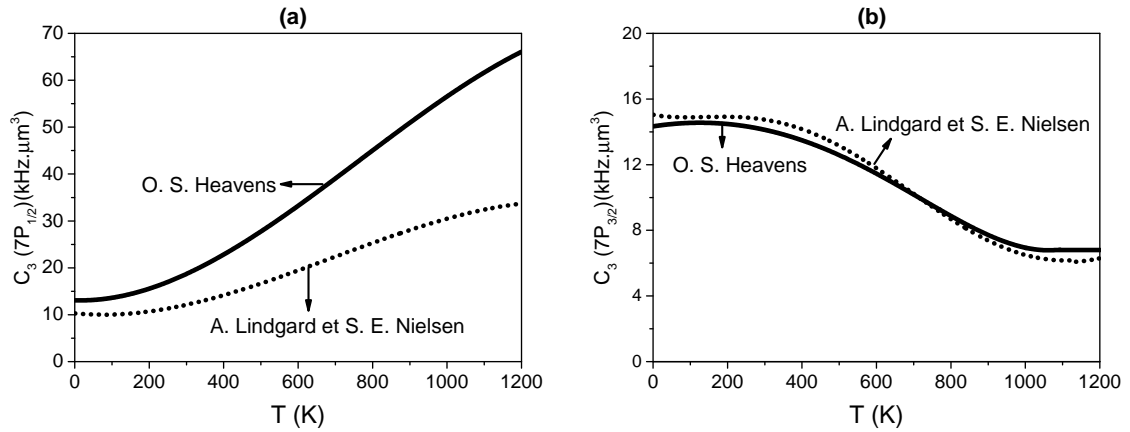


FIGURE 3.12: Coefficient de van der Waals évalué pour deux valeurs différentes de probabilité de transition. Courbe en trait plein les valeurs de probabilités de transition issues de O. S. Heavens [65] - cf. le tableau (3.1)- et, en pointillé selon A. Lindgård & S. E. Nielsen [66]. (a) $C_3(7P_{1/2})$ et (b) $C_3(7P_{3/2})$.

3.4 Prédiction de Γ_3 en fonction de la température pour les niveaux Cs ($7P_{1/2}$) et Cs ($7P_{3/2}$)

Comme le niveau Cs ($7P_{1/2}$) possède un couplage dipolaire en absorption vers le niveau Cs ($6D_{3/2}$) avec une fréquence proche de celle du mode de polariton de la surface de saphir, un transfert réel de l'énergie peut avoir lieu. Dans ce cas, il y a une absorption atomique de l'énergie fournie par le polariton thermiquement émissif. Le paramètre lié à cet effet est le Γ_3 (cf. défini au chap. (2)).

La figure (3.13) montre l'évolution du Γ_3 du niveau Cs ($7P_{1/2}$) en fonction de la température quand l'atome est au voisinage d'une surface de saphir. Elle montre aussi une comparaison pour des données diverses de la constante diélectrique, ou pour les différentes données de probabilités de transition (cf. fig. (3.11)). L'effet du Γ_3 ($7P_{1/2}$) ne vient que du couplage $7P_{1/2} \rightarrow 6D_{3/2}$ puisque pour les autres couplages, on a $\text{Im} \left[\frac{\varepsilon(\omega) - 1}{\varepsilon(\omega) + 1} \right] \approx 0$.

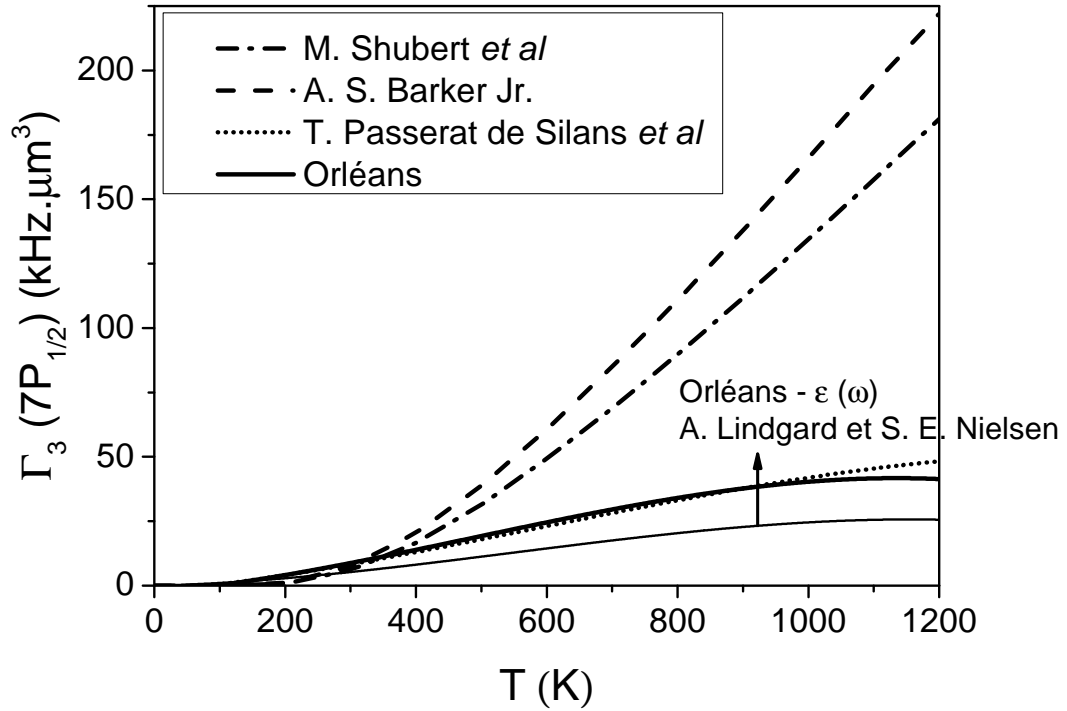


FIGURE 3.13: Paramètre de transfert réel Γ_3 pour le niveau Cs ($7P_{1/2}$) en fonction de la température. Diverses modèles pour $\varepsilon(\omega)$ sont considérés, ainsi que pour la probabilité de transition : toutes les prédictions ont été évaluées par les valeurs de probabilité de transition issue de O. S. Heavens [65], sauf la ligne noire légère, calculée selon valeurs de A. Lindgård & S. E. Nielsen [66].

Par contre pour Cs ($7P_{3/2}$), tous les couplages sont situés dans les ailes de $\text{Im} \left[\frac{\varepsilon(\omega) - 1}{\varepsilon(\omega) + 1} \right]$: le transfert réel d'énergie est donc très faible, comme montré à la figure (3.14). En effet, on peut remarquer que Γ_3 ($7P_{1/2}$) $\gtrsim 10\Gamma_3$ ($7P_{3/2}$). Le transfert Γ_3 ($7P_{3/2}$) vient exclusivement du couplage $7P_{3/2} \rightarrow 6D_{5/2}$. Par ailleurs, la pente du Γ_3 ($7P_{3/2}$) pour les prédictions "Orléans" et "T. Passerat de Silans *et al*" (cf. fig.(3.14)) est essentiellement due à la variation de $\varepsilon(\omega)$ avec la température et, non de $\bar{n}(\omega, T)$.

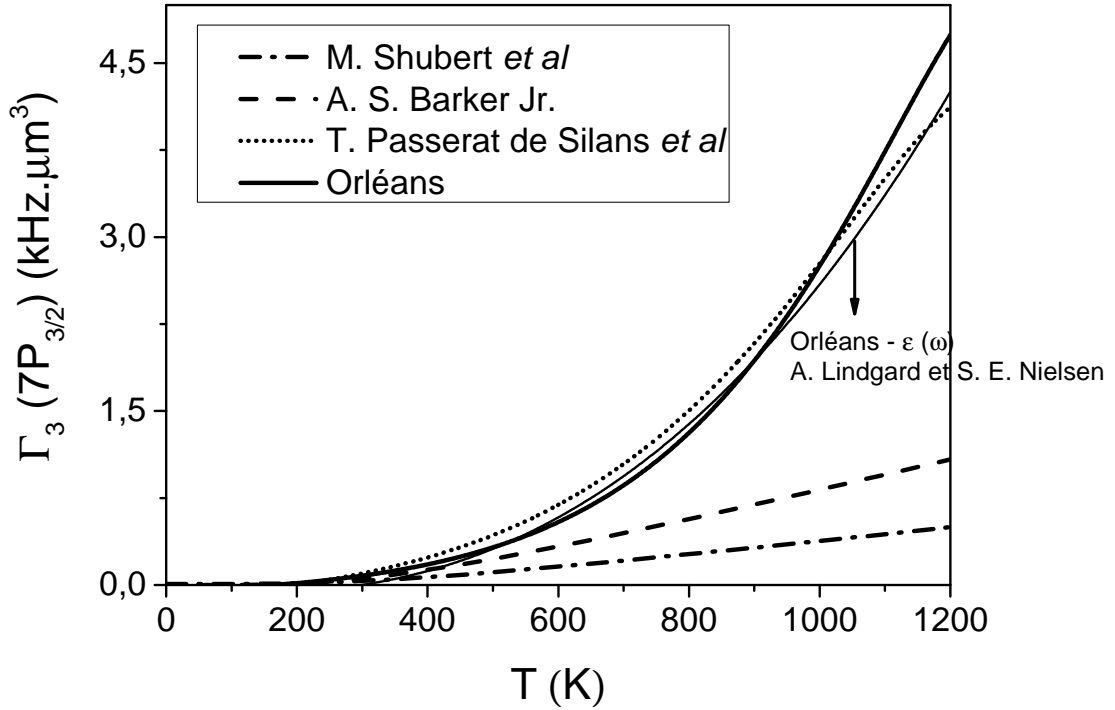


FIGURE 3.14: Idem que fig. (3.13), mais $\Gamma_3 (7P_{3/2})$. Noter le changement d'échelle verticale.

3.4.1 Rapport Γ_3/C_3 pour les niveaux Cs ($7P_{1/2}$) et Cs ($7P_{3/2}$)

Un facteur intéressant à analyser est le rapport Γ_3/C_3 (cf. fig.(3.15)). Comme on peut le voir, pour le niveau Cs ($7P_{1/2}$), à partir de $T \approx 400$ K le rapport $\frac{\Gamma_3}{C_3}$ est approximativement constant de $\sim 0,75$ pour les données “saphir” issues de “Orléans” et de “T. Passerat de Silans *et al*”, alors que pour les données “A. S. Barker Jr.” et “M. Shubert *et al*” la pente est assez douce pour $T_S \gtrsim 600$ K. En outre, même à basse température ($\lesssim 400$ K), pour les prédictions de C_3 et Γ_3 faites à partir des données de $\varepsilon(\omega)$ issues de [50] et [64], on perçoit un transfert réel d'énergie plus grand que le *shift* vdW.

Pour le niveau Cs ($7P_{3/2}$), le rapport Γ_3/C_3 est tout à fait négligeable. Pour les prédictions selon les données $\varepsilon(\omega)$ fournies par le groupe CEMHTI ou par T. Passerat de Silans *et al* [52], on a toujours $C_3 (7P_{1/2}) > \Gamma_3 (7P_{1/2})$, tandis que, pour le niveau Cs ($7P_{3/2}$) l'effet de température du rapport Γ_3/C_3 dépend principalement de $\varepsilon(\omega)$ (cf. observé aussi à la figure (3.15)).

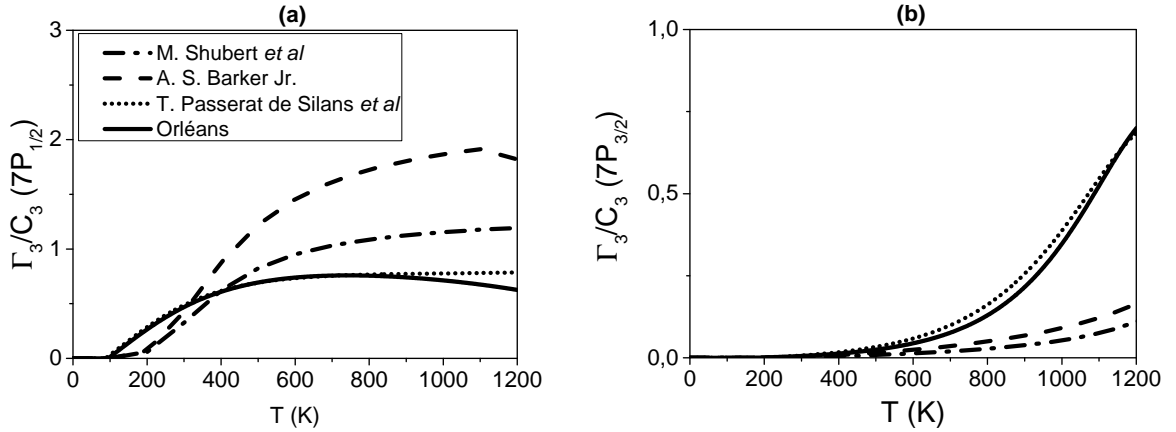


FIGURE 3.15: Rapport $\frac{\Gamma_3}{C_3}$ pour les niveaux (a) Cs ($7P_{1/2}$) et (b) Cs ($7P_{3/2}$).

3.5 Conclusion

Pour trouver un cas de couplage résonnant entre absorption atomique et émission thermique de la surface, nous avons montré que l'interaction Cs ($7P_{1/2}$) avec une surface de saphir est un système intéressant. Par comparaison, l'autre niveau de structure fine Cs ($7P_{3/2}$) possède son couplage principal dans l'aile du mode de polariton de surface. Bien que ces deux niveaux du césium soient très proches en énergie, on prévoit que les C_3 respectifs ont des comportements très différents, c'est-à-dire que C_3 ($7P_{1/2}$) augmente rapidement avec la température, tandis que C_3 ($7P_{3/2}$) tend à diminuer. Cet effet en température est indépendant du modèle de $\varepsilon(\omega)$ pris en compte. Néanmoins, le choix du modèle de $\varepsilon(\omega)$ utilisé pour construire la réponse de la surface occasionne des différences sur la prédiction théorique du C_3 , pour le niveau Cs ($7P_{1/2}$), alors que pour le Cs ($7P_{3/2}$) les différentes réponses de la surface n'entraînent pas des différences significatives dans les prédictions pour le coefficient de vdW. En outre, le changement de C_3 avec la température vient de la combinaison du nombre moyen d'occupation de photons, $\bar{n}(\omega, T)$, et des effets thermiques de $\varepsilon(\omega)$, même pour le C_3 ($7P_{3/2}$), d'où une courbure à $T \gtrsim 1000$ K. En plus du modèle "saphir", la connaissance des probabilités de transition des couplages pris en compte dans le calcul de C_3 joue un rôle important.

En plus des évaluations pour $C_3(T)$, on a fait aussi les prédictions pour Γ_3 . Pour le niveau Cs ($7P_{1/2}$), selon le modèle "saphir" choisi, les effets de transfert réel (Γ_3) dominent le déplacement énergétique vdW, même à des températures relativement faibles ($T \gtrsim 400$ K). Indépendamment du modèle "saphir" choisi, pour $T \gtrsim 500$ K, le rapport

$\frac{\Gamma_3}{C_3}$ pour le niveau Cs ($7P_{1/2}$) est quasi-constant. Enfin, pour le niveau Cs ($7P_{3/2}$), si un transfert réel paraît prévu pour $T \gtrsim 600$ K, il reste quantitativement très faible comparé au Γ_3 ($7P_{1/2}$).

CHAPITRE 4

TECHNIQUE UTILISÉE POUR LA DÉTECTION DE L'INTERACTION CASIMIR-POLDER : SPECTROSCOPIE DE RÉFLEXION SÉLECTIVE

Ce chapitre présente le principe (4.1) de la spectroscopie de réflexion sélective (RS) que nous utiliserons pour évaluer l'interaction Casimir-Polder des atomes excités au voisinage d'une surface diélectrique thermiquement émissive. Le formalisme mathématique de la technique RS, et ses principes physiques (4.2) sont discutés. On introduit aussi la technique FM de modulation en fréquence (4.3) (RSFM) qui permet d'isoler une singularité sub-Doppler [67], et on introduit dans ce cadre l'effet de l'interaction atome-surface. De là, on peut construire une bibliothèque de courbes théoriques, qui a été largement utilisé dans l'équipe et qui sont finalement comparées aux spectres expérimentaux pour extraire l'information sur l'interaction atome-surface, comme déplacement énergétique vdW, ou comme modifiant un changement de la durée de vie.

4.1 Premières études sur le signal de réflexion sélective

La spectroscopie de réflexion sélective a été introduite au début du vingtième siècle par R. W. Wood [68] et consiste en la mesure du coefficient de réflexion à l'interface avec une vapeur, pour une lumière résonnante avec la vapeur. À l'époque, le principe de la technique est décrit à partir d'une théorie locale d'indice (complexe), sensible à la dispersion du gaz, qui est élargie par effet Doppler. À une interface entre un milieu d'indice n et un milieu atomique d'indice $n_v(\omega)$, on peut, en incidence normale, évaluer

le coefficient de réflexion de Fresnel comme :

$$R = \left| \frac{n - n_v(\omega)}{n + n_v(\omega)} \right|^2 \quad (4.1)$$

Dans le cas d'une vapeur diluée $n_v(\omega) \approx 1 + \delta_v n(\omega)$, le coefficient R n'a des variations que autour de la fréquence de résonance atomique. En développant l'expression (4.1), on a :

$$R = \left(\frac{n - 1}{n + 1} \right)^2 - \frac{4n(n - 1)}{(n + 1)^3} \text{Re} [\delta_v n(\omega)] \quad (4.2)$$

où le premier terme est relatif au coefficient de réflexion de Fresnel pour une interface milieu diélectrique et vide, sans intérêt pour la spectroscopie du gaz. Seul le deuxième terme possède des variations résonnantes, et il dépend de la partie réelle de la variation résonnante de l'indice $\delta_v n(\omega)$. Pour résoudre l'équation (4.2), on peut écrire $n_v(\omega)$ pour un milieu dilué, en fonction de la susceptibilité complexe de la vapeur $\chi(\omega)$:

$$n_v(\omega) = \sqrt{1 + 4\pi\chi(\omega)} = 1 + 2\pi\chi(\omega) \quad (4.3)$$

Avec l'expression de $n_v(\omega)$ au-dessus, on a $\delta_v n(\omega) = 2\pi\chi(\omega)$. Si on considère une vapeur atomique à une température T où les atomes se déplacent avec une vitesse \mathbf{v} , répartie selon une distribution Maxwell-Boltzmann (MB), la susceptibilité résultante est une convolution de la distribution de vitesse $W(\mathbf{v})$, avec la réponse atomique décalée par effet Doppler. La variation résonnante du coefficient de réflexion, sous incidence normale à la surface, est alors donnée par :

$$\Delta R(\omega) \propto -\frac{8\pi n(n - 1)}{(n + 1)^3} \int_{-\infty}^{\infty} W(v_z) \frac{\omega - \omega_0 + k_z v_z}{(\omega - \omega_0 + k_z v_z)^2 + \gamma^2} dv_z \quad (4.4)$$

où ω_0 est la fréquence de résonance atomique et $\omega_0 - k_z v_z$ prend en compte l'effet Doppler sur la transition pour une incidence lumineuse perpendiculaire à la surface et z est la direction normale à la surface. Pour l'équation (4.4), on a considéré l'atome comme un oscillateur harmonique, amorti avec un temps donné par l'inverse de la largeur atomique ($1/\gamma$). Dans le cas où la distribution de vitesse $W(v_z)$ vérifie $ku \gg \gamma$, on a un profil de Voigt dispersif avec une largeur Doppler ku .

Au cours des années cinquante, J. L. Cojan [69], en réalisant la réflexion sélective en vapeur dense de mercure, a observé que les spectres expérimentaux possédaient un

rétrécissement sur la position de transition atomique, malgré les limites des sources lumineuses de l'époque (lampes spectrales). Il a cherché à expliquer cet effet par une discontinuité due aux collisions spéculaires¹ des atomes avec la surface. Cette hypothèse implique le fait que la polarisabilité est discontinue pour $v_z = 0$ et pour obtenir la variation du coefficient de réflexion, il faut intégrer dans l'équation (4.4) sur une demi-distribution de vitesses. Ce calcul aurait pu expliquer le rétrécissement des spectres de réflexion sélective, mais, l'hypothèse (ancienne) de collisions spéculaires n'a plus beaucoup de justification.

Avec l'arrivée de lasers accordables, J. P. Woerdman & M. F. H. Schuurmans [70], en 1975, ont aussi observé, à partir des spectres de RS, un rétrécissement à la fréquence de transition atomique sur les raies D_1 et D_2 du sodium. C'est en 1976 que M. F. H. Schuurmans [71] a proposé le modèle théorique correct pour expliquer le rétrécissement dans les spectres de RS. Après une collision avec la paroi, les atomes sont supposément dépolarisés et leur réponse optique lorsqu'ils partent de la surface est en régime transitoire avec le champ exciteur, tandis que, les atomes qui arrivent vers la surface sont en régime permanent avec le champ. L'interface interrompt la symétrie dans l'intégration sur la vitesse sur le signal de RS (voir l'expression (4.4)), lui donnant un rétrécissement autour de $v_z = 0$ (convolution avec des demi-Gaussiennes). Ce rétrécissement est une singularité sub-Doppler qui apparaît sur un profil de Voigt dispersif de largeur Doppler, qui est plus prononcée quand la largeur de la transition atomique devient beaucoup plus petite que la largeur Doppler. En plus, la théorie est non-locale, car dans le régime transitoire, la polarisation $P(z)$ de l'atome, à une distance z de la paroi, dépend du champ exciteur à une position z' avec $0 < z' < z$ parcourue par l'atome depuis la collision, où z est l'axe normal à la paroi. Ainsi, on peut conclure que cette singularité sub-Doppler a son origine autour de $v_z = 0$, et est induite par la surface.

1. Une collision spéculaire ne change que la composante de vitesse de l'atome dans la direction normale à la paroi, c'est-à-dire, v_z passe à $-v_z$.

4.2 Théorie du signal de réflexion sélective

4.2.1 Formalisme général pour le champ réfléchi à une interface diélectrique-vapeur atomique

Nous synthétisons ici la théorie du signal RS développée par M. Ducloy & M. Fichet [31], qui s'applique en présence d'une interaction atome-surface. On considère une interface entre une vapeur atomique et un milieu diélectrique d'indice de réfraction n . À la figure (4.1), le champ E_i arrive sur la surface d'où un champ transmis, E_t , et un réfléchi, E_r .

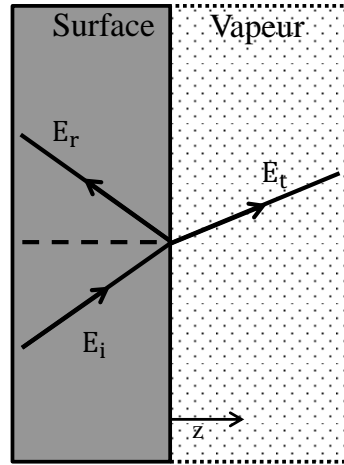


FIGURE 4.1: Schéma de la réflexion sélective montrant les champs électriques incident (E_i), réfléchi (E_r) et transmis (E_t), ainsi que la direction z de leur propagation.

En se limitant au cas de l'incidence normale à la surface, nous avons :

$$E_i = \hat{e}E_{0i}e^{i(nkz-\omega t)} + c.c. \quad (4.5)$$

$$E_r = \hat{e}E_{0r}e^{-i(nkz+\omega t)} + c.c. \quad (4.6)$$

$$E_t = \hat{e}E_{0t}(z)e^{i(n(\omega)kz-\omega t)} + c.c. \quad (4.7)$$

où z est la direction perpendiculaire à la surface, \hat{e} indique la direction de polarisation du champ, les E_0 sont les amplitudes des champs respectifs et $c.c.$ dénote le complexe conjugué. Le champ électrique transmis polarise le milieu atomique introduisant une émission qui modifie le champ. Cette polarisation peut être spatialement inhomogène à cause du mouvement des atomes, mais par la symétrie dans le plan xy de la surface

(plan parallèle à la surface), nous pouvons écrire le champ transmis E_t qui ne dépend que de la direction z (plan perpendiculaire à surface).

Selon les conditions de passage pour les champs électromagnétiques à l'interface entre deux milieux, nous avons en $z = 0$:

$$\begin{cases} E_{0i} + E_{0r} = E_{0t}(z = 0) \\ ink(E_{0i} - E_{0r}) = ikE_{0t}(z = 0) + \left. \frac{\partial E_{0t}}{\partial z} \right|_{z=0} \end{cases} \quad (4.8)$$

À partir de l'équation (4.8) où nous avons considéré une vapeur diluée, $n(\omega) \approx 1$, on peut déduire le champ réfléchi sous la forme suivante :

$$E_{0r} = \frac{n-1}{n+1}E_{0i} - \frac{1}{ik(n+1)} \left. \frac{\partial E_{0t}}{\partial z} \right|_{z=0} \quad (4.9)$$

À l'équation (4.9), on peut séparer (comme à la section précédente) deux contributions : le premier terme est le coefficient de réflexion de Fresnel entre la surface et le vide, indépendant de la vapeur atomique et, le deuxième terme vient de la contribution résonnante du champ électromagnétique avec le milieu atomique. Pour évaluer le deuxième terme de l'expression (4.9), il faut prendre en compte la polarisation du milieu atomique.

Le résultat général, qui remplace la théorie locale d'indice, est donné par l'équation ci-dessous :

$$\Delta E_{0r}(\omega) = \frac{4\pi ik}{n+1} \int_0^\infty P_0(z) e^{2ikz} dz \quad (4.10)$$

Sur cette réponse générale (eq. (4.10)), on remarque les points suivants :

- L'intégrale somme toutes les contributions des dipôles induits par le champ transmis ;
- Le facteur e^{2ikz} résulte de la phase e^{ikz} de la propagation du champ jusqu'à la position où se trouve l'atome depuis la surface, et de la phase e^{ikz} qui est liée à la propagation du champ rayonné par l'atome jusqu'à la paroi ;
- Le terme oscillant e^{2ikz} est essentiel pour comprendre la résolution spatiale propre à la technique de réflexion sélective. Si la réponse $P_0(z)$ est spatialement constante, elle se moyenne à zéro sur une longueur d'onde. La réponse privilégie les régions

dont la réponse varie rapidement avec $\lambda/2\pi$. En pratique la réponse atomique est soumise à des changements notables en raison de la présence de la surface, soit par collisions avec la surface (interruption de la réponse atomique et régime transitoire pour les atomes qui partent), soit par l'interaction atome-surface qui modifie les transitions atomiques. La réflexion sélective sonde donc surtout la réponse des atomes proches de la paroi. L'intégration spatiale va en théorie jusqu'à l'infini, mais la convergence est assurée en passant à la limite d'une décroissance, même très faible, exponentielle avec la distance (par exemple, diffraction à la propagation qui fait chuter l'amplitude du champ exciteur) [71].

4.2.2 Calcul de la polarisation du vapeur atomique induit par le champ transmis

Ici, nous considérons un ensemble d'atomes de deux niveaux (désigné par $|e\rangle$ l'état excité et $|g\rangle$ l'état fondamental), où la fréquence du champ est proche à la fréquence de la transition atomique. Un moment dipolaire μ est associé à la transition $|g\rangle \rightarrow |e\rangle$. Le milieu atomique peut être déterminé par une matrice de densité local $\sigma_{eg}(z, v, t)$, où z et v sont la position et la vitesse, respectivement, à l'instant t . Ainsi, la polarisation macroscopique de la vapeur atomique, à une position donnée, est évaluée par la somme de toutes les contributions des vitesses :

$$P_0(z) = N\mu \int_{-\infty}^{\infty} \sigma_{eg}(z, v)W(v)dv \quad (4.11)$$

où N est la densité atomique et $W(v)$ est la distribution de vitesse des atomes. Dans l'approximation des ondes tournantes, les équations de Bloch fournissent :

$$\begin{cases} \frac{d\sigma_{ee}}{dt} = -\frac{d\sigma_{gg}}{dt} = i\Omega(\sigma_{ge} - \sigma_{eg}) - \gamma\sigma_{ee} \\ \frac{d\sigma_{eg}}{dt} = -\left[\frac{\gamma}{2} - i(\omega - \omega_0 - kv_z)\right]\sigma_{eg} + i\frac{\Omega}{2}(\sigma_{gg} - \sigma_{ee}) \end{cases} \quad (4.12)$$

où :

- ω_0 est la fréquence de transition atomique ;
- $\Omega = \frac{2\mu E_{0t}}{\hbar}$ est la fréquence de Rabi. On considère que l'atténuation sur la région sondée par la RS est faible de façon à avoir un champ transmis constant, c'est-à-

dire que sur l'épaisseur de $\lambda/2\pi$ l'amplitude du champ transmis n'est presque pas modifiée ;

- γ est la largeur du niveau atomique. Elle prend en compte la largeur naturelle de la transition plus la largeur à cause des effets de collisions ;
- kv_z est le décalage Doppler.

Surtout, dans l'expression (4.11), apparaît la dérivée totale par rapport au temps de la cohérence optique σ_{eg} , qui se transforme par conservation "hydrodynamique" en :

$$\frac{d\sigma_{eg}}{dt} = \frac{\partial\sigma_{eg}}{\partial t} + v_z \frac{\partial\sigma_{eg}}{\partial z} \quad (4.13)$$

Comme nous devons calculer σ_{eg} près de la surface et que les atomes sont soumis à un interaction qui dépend de z , le traitement le plus général prend en compte une possible dépendance, avec la distance à la surface, de γ et ω_0 . Pour l'essentiel, le traitement suppose :

- que le champ exciteur n'est pas saturant (limite du premier ordre sur l'amplitude du champ) ;
- que les trajectoires atomiques sont rectilignes et parcourues à vitesse constante ;
- que l'état initial des atomes est limité à la population de l'état fondamental, soit aux grands z pour les atomes qui vont vers la paroi, ou en $z = 0$ pour les atomes qui quittent la paroi.

Pour les autres hypothèses consulter [17].

Nous obtenons alors pour le régime stationnaire (excitation lumineuse constante au cours du temps) que :

$$v_z \frac{\partial\sigma_{eg}}{\partial z} = - \left[\frac{\gamma}{2} - i(\omega - \omega_0 - kv_z) \right] \sigma_{eg} + i \frac{\Omega}{2} \quad (4.14)$$

dont la solution générale, en un lieu z est donnée, si on connaît la solution en un lieu particulier z_0 , par :

$$\sigma_{eg}(z) = \sigma_{eg}(z_0, v_z) e^{-\frac{L(z)}{v_z}} + \frac{i\Omega}{2v_z} \int_{z_0}^z e^{\frac{L(z')-L(z)}{v_z}} dz' \quad (4.15)$$

Ceci permet un ajustement aux conditions de passage imposées (cohérence nulle à la surface pour les atomes qui en partent, ou au loin, pour ceux qui se dirigent vers la surface)

$$\begin{aligned} L(z) &= \int_{z_0}^z \frac{\gamma(z')}{2} - i [\omega - \omega_0(z') - kv_z] \\ &= L_0(z) + izkv_z \end{aligned} \quad (4.16)$$

où $L_0(z) = \int_{z_0}^z \left(\frac{\gamma(z')}{2} - i [\omega - \omega_0(z')] \right) dz'$.

Expérimentalement, le signal détecté est une variation de l'intensité résonnante du faisceau lumineuse réfléchi :

$$RS(\omega) = |E^{NR} + \Delta E_{0r}(\omega)|^2 - |E^{NR}|^2 \quad (4.17)$$

où E^{NR} est la partie non résonnante du champ lié au coefficient de réflexion de Fresnel. En supposant la vapeur assez diluée pour négliger les variations de second ordre (c'est-à-dire, $|\Delta E_{0r}(\omega)| \ll |E^{NR}|$), l'équation (4.17) prend la forme suivante :

$$RS(\omega) = 2E^{NR} \text{Re}[\Delta E_{0r}(\omega)] \quad (4.18)$$

Dans le signal $RS(\omega)$, on peut séparer la contribution des atomes avec $v_z < 0$ (v_{z-}) et des atomes avec $v_z > 0$ (v_{z+}). Remarquablement, et généralisant ce qui avait été trouvé dans [71], la contribution des atomes qui arrivent et de ceux qui partent est identique, même en présence d'interaction de surface [31] dès lors que la distribution des vitesses atomiques est symétrique autour de $v_z = 0$.

L'article [31] développe les formules générales pour toute interaction de surface (fréquence de résonance atomique et largeur) dépendant de z , et notamment pour le cas d'un potentiel qui évolue en z^{-3} , en privilégiant un traitement dans le cas d'une modulation de fréquence FM, dont nous justifions plus loin l'avantage.

4.2.3 Signal de réflexion sélective tenir compte de l'interaction Casimir-Polder

Le traitement, analogue à celui de M. F. H. Schuurmans [71] fait apparaître l'intégration sur les vitesses d'une réponse dispersive lorentzienne pour les atomes qui arrivent vers la surface, et à cause du régime transitoire pour les atomes qui quittent la surface depuis

leur état fondamental, cette contribution est simplement doublée (et non pas étendue à l'autre demi-espace des vitesses).

L'expression du signal de réflexion sélective est alors donnée par :

$$RS(\Delta) = C_1 \int_0^\infty W(\Lambda) \frac{\Delta + \Lambda}{(\Delta + \Lambda)^2 + \Gamma^2} d\Lambda \quad (4.19)$$

où on a défini les variables réduites $\Delta = \frac{\omega - \omega_0}{ku}$, $\Lambda = \frac{kv_z}{ku}$, $\Gamma = \frac{\gamma}{2ku}$ et “ u ” est la vitesse plus probable. Le paramètre $C_1 = -\frac{16\pi n(n-1)kNE_r^2\mu^2}{\hbar(n+1)^2}$ est l'amplitude de la courbe [47], où : n est l'indice de réfraction de la paroi, N est la densité d'atomes proche de la paroi et μ est le moment dipolaire de la transition atomique sondée. Dans l'équation (4.19), la distribution de vitesses est une distribution de Maxwell-Boltzmann, de vitesse la plus probable u .

Sous l'hypothèse souvent très raisonnable que la largeur Γ de la transition atomique est beaucoup plus petite que la largeur Doppler ($\Gamma \ll 1$), on trouve que la forme de raie de réflexion sélective se compose d'une dispersion élargie par effet Doppler (comme prévu par R.W. Wood [68]), à laquelle s'ajoute une réponse symétrique, qui apparaît sous forme d'une singularité logarithmique (divergente à la limite où le rapport largeur Doppler/largeur homogène serait infini) :

$$RS(\Delta) = \lim_{\Delta \rightarrow 0^+} W(0) \left[cte - \frac{1}{2} \ln(\Gamma^2 + \Delta^2) \right] \quad (4.20)$$

Notons que d'après l'expression (4.19), toutes les classes de vitesse contribuent au signal RS, avec un poids cependant, $\sim \frac{1}{\Lambda}$, pour les vitesses plus importantes. Les atomes de vitesses faibles autour de zéro ($v_z \approx 0$) jouent donc un rôle fondamental sur le signal de réflexion sélective.

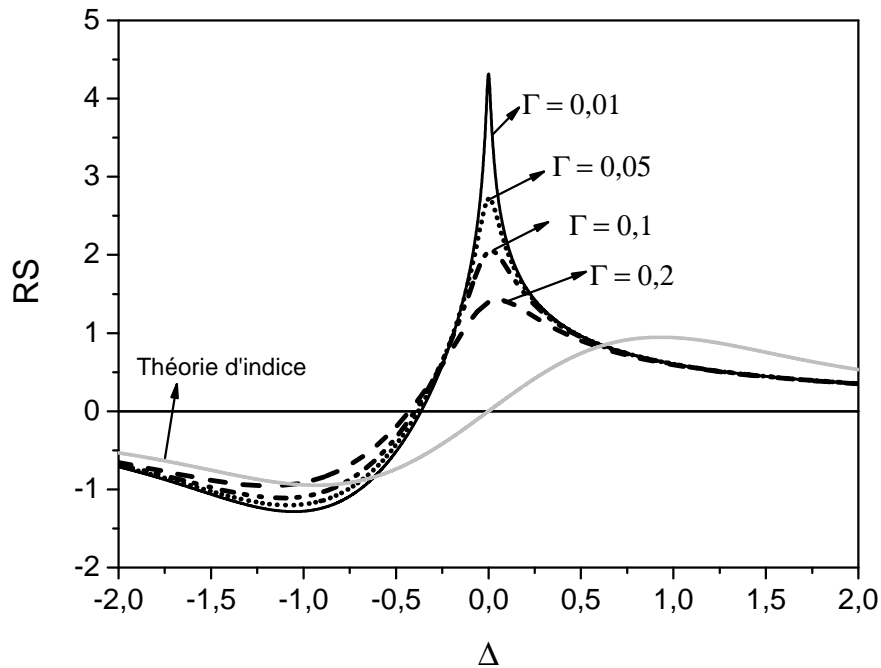


FIGURE 4.2: Spectres de réflexion sélective d'après l'équation (4.19) pour plusieurs valeurs de Γ ; en gris le spectre conformément à la théorie d'indice présentée sur la section (4.1). Pour des valeurs de $\Gamma \ll 1$, la singularité logarithmique est plus prononcée autour de $\Delta \rightarrow 0$, alors que la théorie d'indice montre un spectre symétrique (autour de $\Delta = 0$) sans aucune singularité logarithmique.

4.3 Signal de réflexion sélective avec modulation de fréquence

C'est à la fin des années quatre-vingt que le groupe de Moscou [67] a introduit l'idée d'une dérivation en fréquence du spectre de réflexion sélective, qui produit alors un signal libre d'élargissement Doppler. Techniquement, cette dérivation, qui supprime la divergence logarithmique dans l'équation (4.20), fournit une dispersion purement lorentzienne à la limite des grandes largeurs Doppler. Elle est réalisée par une modulation de fréquence (FM) du champ incident, et suppose qu'est détecté le signal démodulé.

4.3.1 Technique FM

Cette technique FM consiste à moduler la fréquence du champ exciteur et, à l'aide d'une détection synchrone, à ne détecter que le signal modulé.

On considère que l'on applique une modulation à la fréquence du champ exciteur, qui devient :

$$\omega(t) = \omega_0 + M \cos(\omega_m t) \quad (4.21)$$

où M est l'amplitude de modulation, ω_m est la fréquence de modulation et ω_0 est la fréquence autour duquel se module. Pour une petite amplitude de modulation par rapport à la largeur spectrale considérée, on peut faire un développement limité autour de la fréquence ω_0 pour déduire le signal modulé $S(\omega(t))$.

$$S(\omega(t)) = S(\omega_0) + M \cos(\omega_m t) \left[\frac{\partial S(\omega)}{\partial \omega} \right] \Big|_{\omega=\omega_0} \dots \quad (4.22)$$

Tant que l'amplitude de modulation est très faible, on peut se limiter au premier ordre d'un développement limité. Le processus de détection consiste à faire une moyenne sur une période de temps T du produit du signal $S(\omega(t))$ et de la modulation :

$$S_{FM} = \frac{1}{T} \int_T S(\omega(t)) \cos(\omega_m t + \phi) dt \quad (4.23)$$

où ϕ est une phase arbitraire, librement choisie. Pour une observation sur un temps $T \gg \frac{2\pi}{\omega_m}$, on trouve depuis (4.23) :

$$S_{FM} = \frac{M}{2} \frac{\partial S(\omega)}{\partial \omega} \quad (4.24)$$

On trouve donc pour le signal de réflexion sélective en l'absence d'interaction de surface :

$$RSFM(\Delta) \propto \int_0^\infty W(\Lambda) \left[\frac{\Gamma^2 - (\Delta + \Lambda)^2}{\Gamma^2 + (\Delta + \Lambda)^2} \right] \quad (4.25)$$

et avec l'approximation des grandes largeurs Doppler ($\Gamma \ll 1$) :

$$RSFM(\Delta) \propto W(0) \frac{\Delta}{\Gamma^2 + \Delta^2} \quad (4.26)$$

Le signal RSFM est donc devenu une Lorentzienne de dispersion libre d'effet Doppler (*cf.* fig. 4.3). Cette technique FM a aussi permis d'éliminer la contribution des atomes avec grandes vitesses, en détectant seulement les atomes de vitesse autour de zéro.

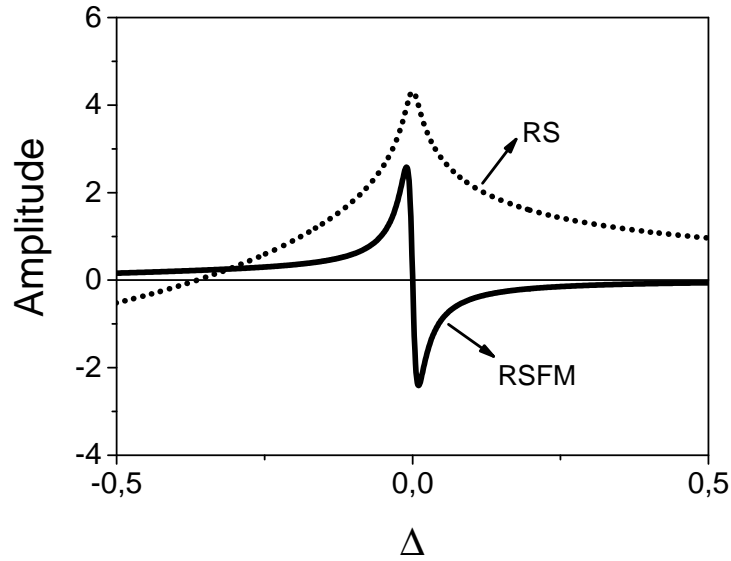


FIGURE 4.3: Comparaison entre les spectres de RS et RSFM pour $\Gamma = 0,01$. Le fond Doppler introduit une asymétrie sur le signal RSFM assez négligeable par rapport la partie étroite.

4.3.2 RSFM en présence de l'interaction avec la surface

Le traitement RSFM dans le cas général, sans permettre d'aboutir à une formulation aussi simple que l'équation (4.25) permet de sélectionner la contribution des atomes de faible vitesse, dans l'approximation des grandes largeurs Doppler, en se limitant à une double intégration spatiale (*cf.* eq. (53) de [31]) qui traduit l'intégration spatiale intrinsèque à la RS, et l'intégration spatiale nécessaire au calcul de la réponse non locale des atomes [72]. Le cas particulièrement important où l'interaction de surface est en z^{-3} est en fait intégrable, y compris si la dépendance porte non seulement sur le déplacement en énergie (interaction vdW) [31], mais aussi (par extension de [31]) sur l'élargissement par transfert énergétique.

Ainsi, dans le cas :

$$\begin{cases} \omega(z) = \omega_0 - \frac{C_3}{z^3} \\ \gamma(z) = \gamma + \frac{\Gamma_3}{z^3} \end{cases} \quad (4.27)$$

les spectres de réflexion sélective FM sont évalués à partir d'un unique paramètre complexe sans dimension $A' = A + iB$, où $A = \frac{2C_3k^3}{\gamma}$ est lié au déplacement du niveau d'énergie et $B = \frac{k^3\Gamma_3}{\gamma}$ est relatif à la durée de vie du niveau atomique.

$$RSFM = -\frac{C_1}{ku(1-i\Delta)\sqrt{\pi}} \operatorname{Re} \left\{ i \left[1 + \sqrt{\frac{A'\pi^3}{2(1-i\pi)}} - \frac{8iA'}{1-i\Delta} \int_0^\infty ds \frac{e^{is}}{s^2} \left(J(\beta) - \frac{i\pi}{4\beta} \right) \right] \right\} \quad (4.28)$$

où cette expression est donné en unités de $\gamma/2$, $\beta = 2(1+i) \left[\frac{A'}{(1-i\Delta)s^3} \right]^{1/2}$ et $J(\beta)$ est :

$$J(\beta) = \frac{\beta}{2} \left[\frac{1}{\sqrt{1-\beta}} \tanh^{-1} \left(\frac{1}{\sqrt{1-\beta}} \right) - \frac{1}{\sqrt{1+\beta}} \tanh^{-1} \left(\frac{1}{\sqrt{1+\beta}} \right) \right] \quad (4.29)$$

Le cas où A' est un paramètre réel ($B = 0$) a été abondamment étudié dans l'équipe, et fournit des informations sur le déplacement du niveau d'énergie atomique. Globalement, l'équation (4.28) permet d'évaluer les spectres de RSFM et de construire une bibliothèque qui nous aidera à ajuster les spectres expérimentaux (*cf.* chap. (5)).

Une remarque : pour des expériences de RS avec un angle d'incidence par rapport la normale de l'interface, un élargissement des spectres est prévu [31], et il est de l'ordre de $ku\theta$ (où θ est l'angle entre la normale de l'interface et la direction d'incidence du champ électromagnétique), en étant négligeable pour $\theta \leq \gamma/ku$.

Nous discutons ci-dessous quelques points importants concernant les courbes théoriques de RSFM obtenues pour diverses valeurs de A' .

- La figure (4.4) présente les spectres de RSFM en régime vdW “faible”, qui a été observé dès [32]. Par rapport au cas du spectre sans interaction avec la surface ($A = 0$), les spectres se déplacent vers le “rouge”, et subissent une distorsion par rapport à leur antisymétrie initiale. De plus leur amplitude augmente ;
- En régime fort d'interaction vdW (*cf.* fig. (4.5)), observé expérimentalement dès [49], les formes des courbes théoriques de RSFM sont encore plus déformées qu'à la fig. (4.4). La forme peut ressembler à la dispersion initiale, mais avec un fort déplacement, et un remarquable changement de signe ;
- Quelques exemples de courbes pour A' imaginaire ($A > 0$ et $B > 0$) sont montrés à la figure (4.6). On voit que dans ce cas, l'amplitude de la courbe est modifiée par rapport la courbe avec $\operatorname{Re}[A']$ (courbe en gris) [47]. Quand le facteur B a des

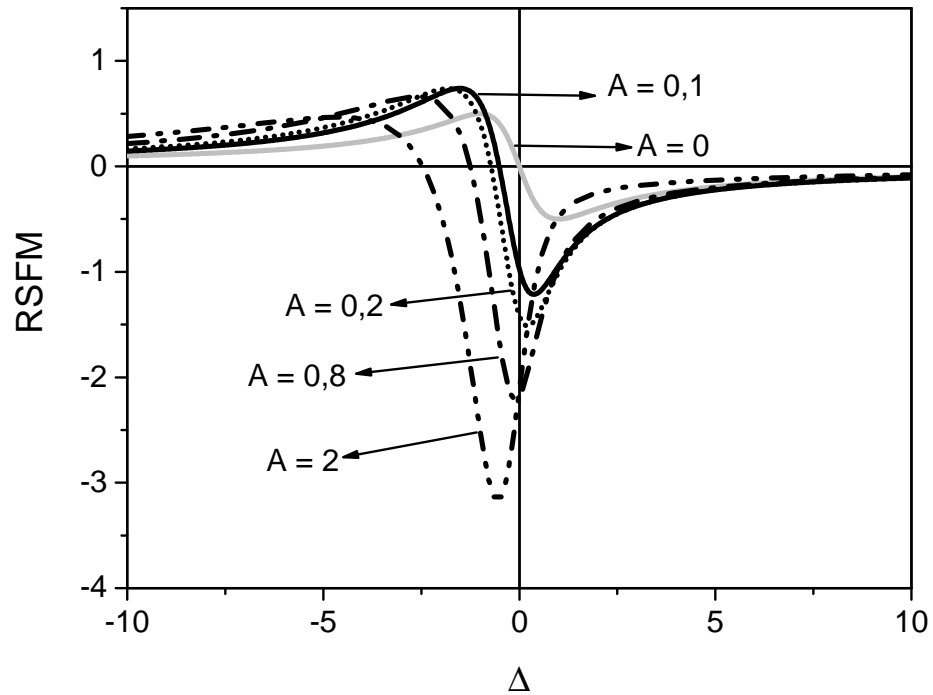


FIGURE 4.4: Évolution de la forme de raie de RFSM pour des petites valeurs positives et faibles de A . En gris, le spectre sans interaction atome-surface ($A = 0$). Ici, nous ne tenons en compte que la partie réelle de A' .

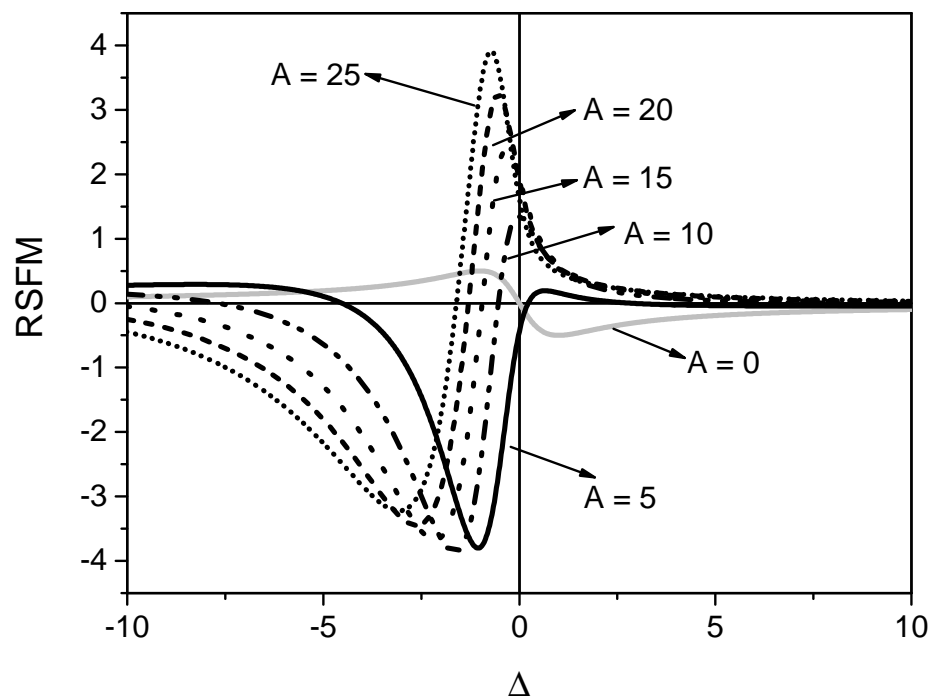


FIGURE 4.5: Formes de spectres de RFSM pour de grandes valeurs positives et réelles de A' . La courbe en gris est le spectre pour $A = 0$.

valeurs non-négligeables devant la valeur de A , les courbes théoriques subissent une diminution d'amplitude par rapport aux courbes avec $B = 0$. Dans le cas $A \gg B$,

les courbes sont quasi-identiques aux spectres avec A' purement réel;

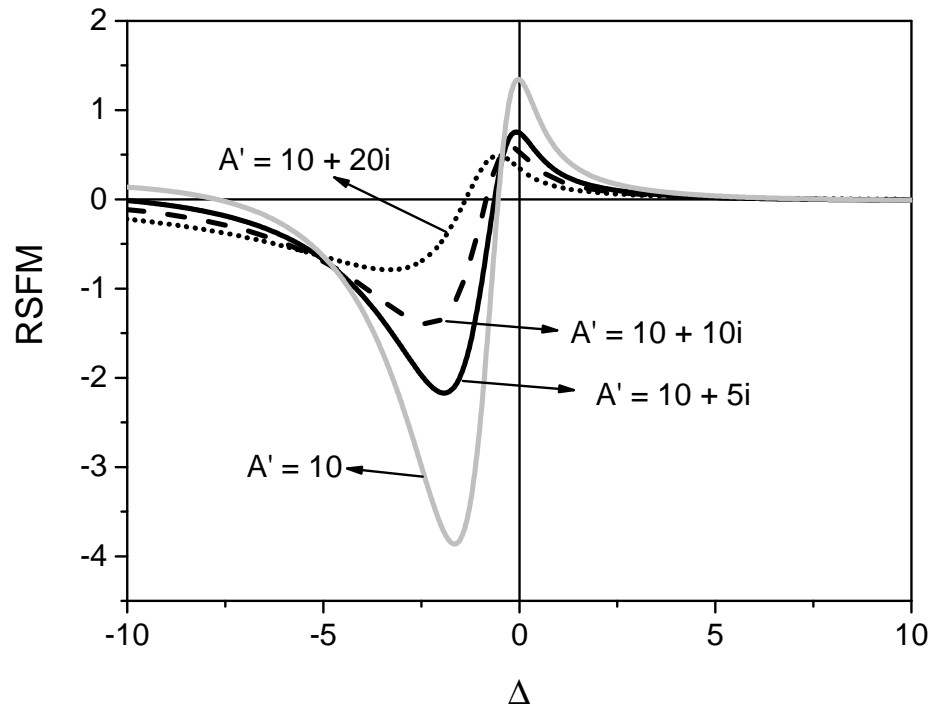


FIGURE 4.6: Formes de spectres de RSFM pour de grandes valeurs positives et avec le paramètre B . La courbe en gris est le spectre pour $A' = 0$.

- Des formes de raie pour pour A' réel et négatif sont présentées à la fig. (4.7), qui correspondent au cas où l'interaction atome-surface est répulsive. Le déplacement est toujours vers le "rouge" (*cf.* appendice de [3]), mais l'amplitude diminue si l'interaction est plus forte ;
- Des formes de courbes de RSFM pour $A < 0$ et $B > 0$ sont montrées à la figure (4.8). Cette situation a été en partie analysée dans [47].

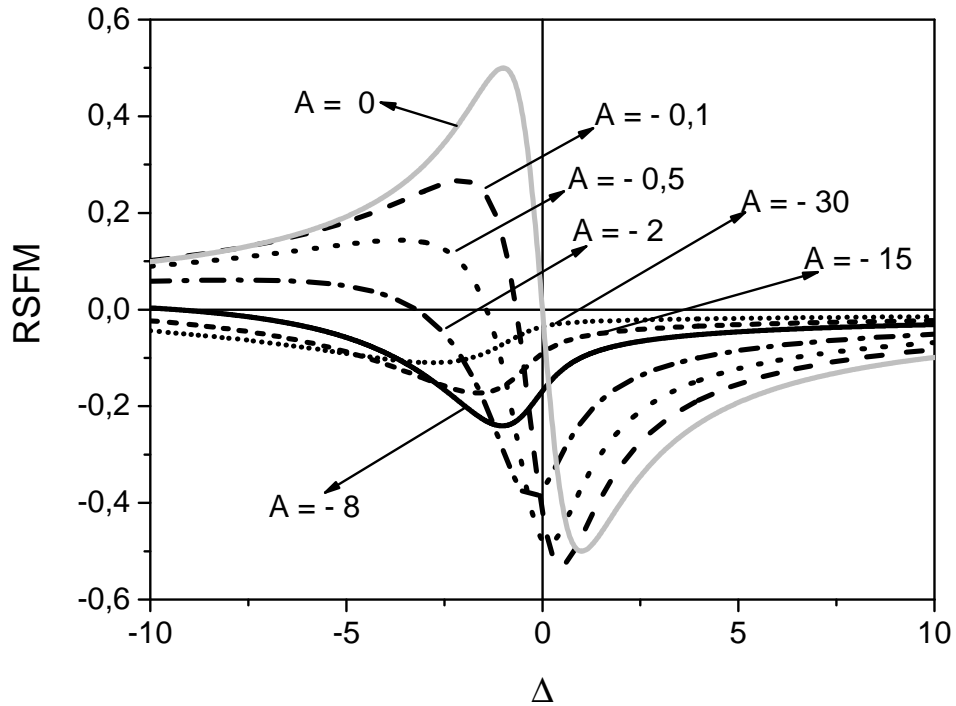


FIGURE 4.7: Évolution des formes des spectres de RSFM pour A' réel et négatif. La courbe en gris est pour $A' = 0$ (spectre sans prendre en compte l'interaction vdW).

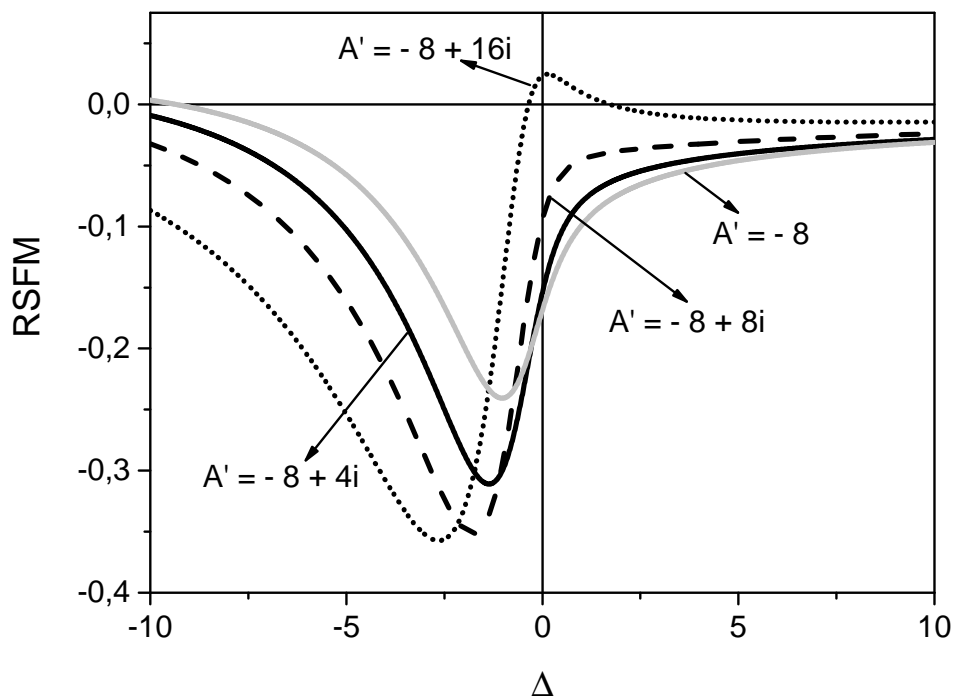


FIGURE 4.8: Formes de spectres de RSFM pour A' imaginaire et $A < 0$. La courbe en gris montre le spectre pour $A = -8$.

4.4 Conclusion

Dans ce chapitre, on a présenté la technique de spectroscopie de réflexion sélective qui permet de sonder une transition atomique lorsque l'atome se trouve près d'une surface. La région sondée correspond à une épaisseur d'environ $\lambda_{ab}/2\pi$, où λ_{ab} est la longueur d'onde de la transition optique étudiée.

L'application de la technique FM sur la réflexion sélective privilégie les atomes dont la vitesse perpendiculaire à la paroi est presque nulle. De plus, la RSFM se présente comme libre d'effet Doppler. Ces atomes en vol quasi-parallèle sont particulièrement sensibles à une possible interaction avec la surface.

On a montré aussi que l'interaction entre atome et surface donne lieu à une déformation et un déplacement caractéristique dans les spectres de RSFM, qui peut être quantifié avec un simple paramètre $A' = A + iB$, dès que l'interaction évolue en z^{-3} . C'est à partir des bibliothèques correspondantes que nous analyserons l'interaction de surface à partir de spectres expérimentaux de RSFM.

CHAPITRE 5

RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX DE MESURE DU C_3 EN FONCTION LA TEMPÉRATURE À PARTIR DE LA RÉFLEXION SÉLECTIVE SUR LES NIVEAUX $7P_{1/2}$ ET $7P_{3/2}$ DU CÉSIIUM

L'expérience pour sonder les niveaux $7P_{1/2}$ et $7P_{3/2}$ du césium devant une surface de saphir super polie thermiquement émissive, par la technique de réflexion sélective (représentée par RS), est la plus importante de ce travail de thèse. Le rapport *Signal/Bruit* favorable nous a permis d'étudier la dépendance en température de l'interaction Casimir-Polder en champ proche, en déterminant le coefficient $C_3(T)$, dans le cas de l'interaction Cs ($7P_{1/2}$) /Saphir où le couplage est résonnant, et Cs ($7P_{3/2}$) /Saphir où le couplage avec les modes de polariton est beaucoup plus faible.

Ce chapitre regroupe les principaux résultats de ce manuscrit et il est divisé en trois parties. Avant d'exposer nos résultats sur le coefficient de vdW, nous décrivons les expériences auxiliaires qui nous ont permis de mieux utiliser les résultats de RS.

La première partie de ce chapitre commence par le système atomique que nous étudions dans ce chapitre. Ensuite, on présente, de façon générale, le montage expérimental de la réflexion sélective (RS), en présentant les lasers, le système d'acquisition de données, la cellule de réflexion sélective et son système de chauffage, le Fabry-Pérot et l'absorption saturée de référence en fréquence. En plus de ces éléments essentiels pour l'expérience de

RS, on montre, dans cette partie, nos mesures d'élargissement et déplacement par pression pour les transitions $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{1/2}$ et $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$, qui sont des résultats importants pour l'analyse des spectres expérimentaux de réflexion sélective.

La deuxième partie présente les résultats expérimentaux de réflexion sélective pour les niveaux $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{1/2}$ et $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$ du césium, ainsi que la procédure d'ajustements numériques pour que nous puissions extraire les informations sur l'interaction vdW. Nous montrerons, d'après les ajustements de nos spectres de RS, les résultats du C_3 en fonction de la température et les possibles ajustements théoriques de RSFM avec le facteur relatif au Γ_3 .

Finalement, dans la troisième partie, nous comparons en détail nos résultats expérimentaux, obtenus dans la deuxième partie, avec les prédictions théoriques faites au chapitre (3).

Première partie

Systeme atomique, description
experimentale et experiences
auxiliaires

5.1 Propriétés des niveaux Cs ($7P_{1/2}$) et Cs ($7P_{3/2}$) et pression de césium

Dans cette section, nous présentons quelques propriétés pour les niveaux Cs ($7P_{1/2}$) et Cs ($7P_{3/2}$), y compris les valeurs de pression et densité de Cs en fonction de la température.

5.1.1 Composantes hyperfines des niveaux

La figure (5.1) montre les structures hyperfines des niveaux Cs ($7P_{1/2}$) et Cs ($7P_{3/2}$), y compris l'état fondamental.

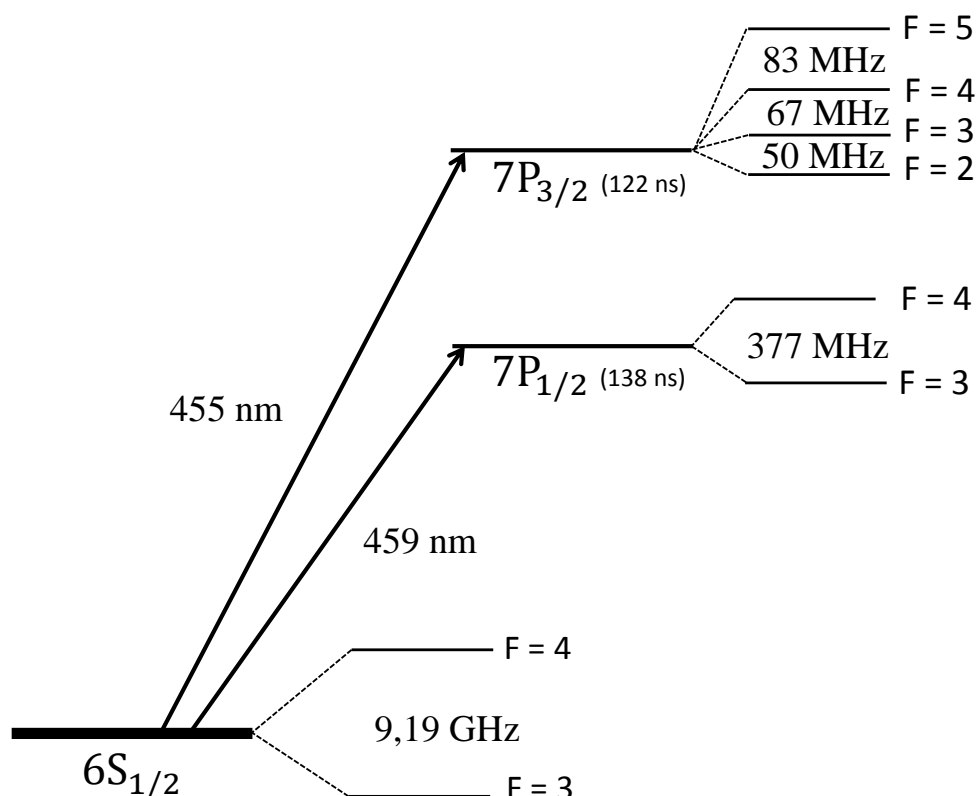


FIGURE 5.1: Structure des niveaux atomiques du césium concernés dans ce chapitre de thèse.

On note que l'écart des niveaux hyperfins des états excités est beaucoup plus petit que celui du fondamental. En particulier, la largeur Doppler des transitions $6S \rightarrow 7P$ (voir la sous-section (5.1.3)) est beaucoup plus petite que la séparation des sous-niveaux du

niveau Cs ($6S_{1/2}$), alors que les sous-niveaux ont un écart d'énergie inférieur à la largeur Doppler, qui vaut ~ 422 MHz à $T = 300$ K et plus à des températures plus élevées. Ceci permettra, en général, de considérer deux séries de mesures indépendantes à partir du niveau fondamental, une pour le $F = 3$ et l'autre pour le $F = 4$.

5.1.2 Probabilité de transition et rapport de force de transition entre les sous-niveaux des états excités

Les transitions $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{1/2}$ et $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$ du césium sont permises dans l'approximation dipolaire, mais possèdent une assez faible force de transition. Les probabilités de transition sont $A_{6S_{1/2} \rightarrow 7P_{1/2}} = 2,12 \cdot 10^6 \text{ s}^{-1}$ et $A_{6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}} = 2,97 \cdot 10^6 \text{ s}^{-1}$ (à titre de comparaison, pour la raie D₁ et D₂ du césium, $A_{6S_{1/2} \rightarrow 6P_{1/2}} = 28,6 \cdot 10^6 \text{ s}^{-1}$ et $A_{6S_{1/2} \rightarrow 6P_{3/2}} = 32,6 \cdot 10^6 \text{ s}^{-1}$) - voir [65].

Les rapports de probabilité de transition entre les composantes hyperfines est donnée par (matrice de Wigner 6 - j) :

$$S_{FF'} = (2F' + 1)(2J + 1) \begin{Bmatrix} J & J' & 1 \\ F' & F & I \end{Bmatrix} \quad (5.1)$$

où I est le moment angulaire nucléaire, qui vaut $I = 7/2$ dans le cas de ^{133}Cs , et J est moment angulaire électronique avec moment angulaire. Le $F = (I + J)$ est le moment angulaire total. Le symbole ' désigne l'état excité. L'équation (5.1) est indépendant du niveau de départ et respecte $\sum_{F'} S_{FF'} = 1$.

Pour les transitions du type $S_{1/2} \rightarrow P_{1/2}$ et $S_{1/2} \rightarrow P_{3/2}$ étudiées pendant la thèse, le rapport de probabilité entre les différents niveaux hyperfins, obtenus à partir de l'expression (5.1), est présenté au tableau (5.1).

5.1.3 Largeur Doppler des transitions $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{1/2}$ et $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$

La largeur Doppler est caractérisée par la grandeur ku , où k est le module du vecteur de la transition et $u = \sqrt{\frac{2k_B T}{m}}$ est la vitesse plus probable des atomes, de masse m, à

$S_{1/2} \rightarrow P_{1/2}$	S_{33}	1/4	S_{43}	7/12
	S_{34}	3/4	S_{44}	5/12
$S_{1/2} \rightarrow P_{3/2}$	S_{32}	20/56	S_{43}	7/72
	S_{33}	21/56	S_{44}	21/72
	S_{34}	15/56	S_{45}	44/72

TABLE 5.1: Facteur relatif entre les structures hyperfines des états excités $P_{1/2}$ et $P_{3/2}$, en partant d'un niveau $S_{1/2}$.

une température donnée. Numériquement, pour une évaluation en fréquence, on calcul en (2π MHz). Ainsi, la largeur Doppler est évaluée selon l'opération suivante :

$$k_D = \frac{1}{\lambda} \sqrt{\frac{2k_B T}{m}} \quad (5.2)$$

Avec l'expression pour la largeur Doppler, à $T = 300$ K, on obtient $k_D \approx 422$ MHz pour la transition $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{1/2}$ et $k_D \approx 426$ MHz pour $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$ du césium et plus haute pour $T > 300$ K. Par comparaison, pour la raie D_1 ($\lambda = 894$ nm), dans les conditions identiques, $k_D \approx 217$ MHz.

5.1.4 Pression et densité de la vapeur de césium en fonction de la température

Généralement, une cellule utilisée pour la spectroscopie atomique de référence est composée de deux parties : le corps de la cellule, où se situent les atomes dans son état gazeux, et le réservoir, où les atomes de césium sont dans l'état dense (la température de fusion du césium est ~ 29 °C [73]). À l'équilibre, la température du réservoir contrôle la pression de vapeur saturante et, par conséquent, la densité atomique dans la cellule.

Pour accéder à la pression de Cs dans la cellule à partir de la température du réservoir, on utilise l'équation ci-dessous [73] :

$$P = 10^{[7,046 - 3830T^{-1}]} \quad (5.3)$$

où P est donné en Torr et T en Kelvin. En considérant que la vapeur atomique est un gaz parfait, on peut calculer la densité d'atomes par $n = \frac{P}{k_B T}$. La figure (5.2) montre la

densité et la pression de Cs en fonction de la température du réservoir.

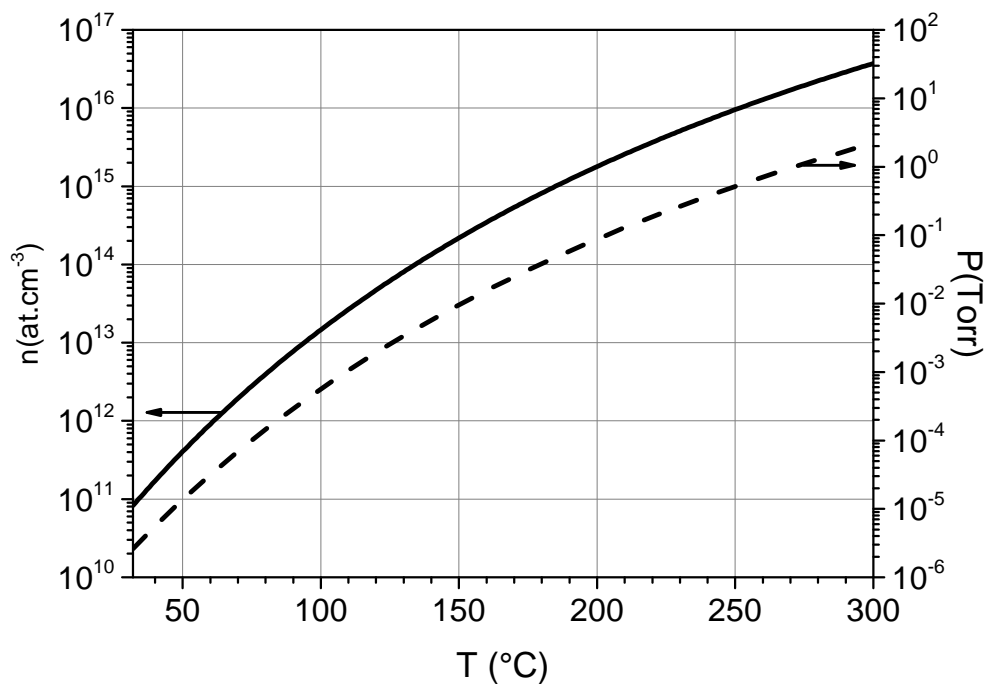


FIGURE 5.2: Pression et densité atomique de césium en fonction de la température du réservoir.

5.2 Le montage expérimental de réflexion sélective

Le schéma expérimental est présenté à la figure (5.3). Ensuite, nous détaillons chaque élément de notre montage expérimental pour réaliser la réflexion sélective.

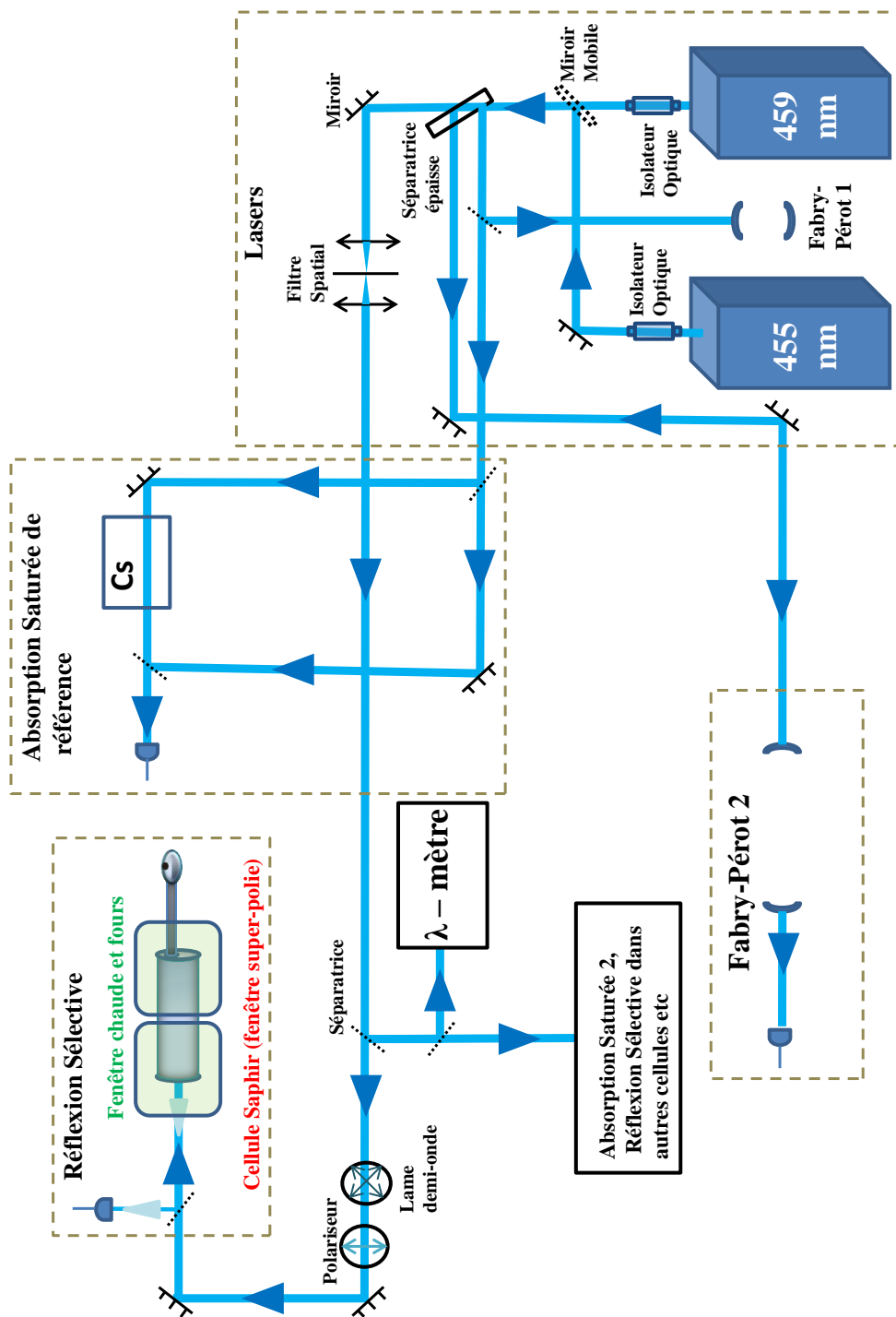


FIGURE 5.3: Schéma expérimental pour l'expérience de réflexion sélective. Le miroir mobile laisse passer le laser irradiant à 459 nm, soit le laser irradiant à 455 nm. L'angle d'incidence des laser avec la normale est de $\theta \lesssim 1$ mrad.

5.2.1 Les sources lasers

On a utilisé deux lasers diode émettant, respectivement, à 459 nm et à 455 nm, qui sont les longueurs d'onde des transitions que nous voulons étudier (voir la figure (3.10)). Ces deux lasers sont des lasers diode à cavité étendue de la marque TOPTICA du type DL 100 (459 nm) et DL 100 PRO (455 nm). Le laser DL 100 PRO, selon spécification du fournisseur, à cause de sa structure mécanique, est plus stable par rapport aux bruits mécaniques et sa dérive en fréquence par rapport la température est de 100 MHz/°C (pour le laser DL 100, 400 MHz/°C).

La puissance de sortie de ces deux lasers est de ~ 15 mW à un courant électrique ~ 50 mA avec un seuil de fonctionnement laser de ~ 30 mA (le courant maximum est de 60 mA). Ils possèdent à la sortie un diamètre ~ 3 mm. Un filtrage optique a été utilisée pour améliorer le mode spatial du faisceau et, ainsi, mieux contrôler l'intensité laser dans l'obtention des spectres de RS. Pour réaliser ce filtrage, on a focalisé les faisceaux lasers sur un *pin-hole* de ~ 50 μm de diamètre et à la sortie, avec l'aide d'une lentille, le diamètre des faisceaux lasers devient ~ 2 mm.

Le courant électrique et la température des diodes lasers sont contrôlés et stabilisés par deux alimentations du type DC 110 (laser à 459 nm) et DC 300 (laser à 455 nm), de la marque TOPTICA.

Les lasers utilisés dans ce chapitre ont une largeur $\lesssim 1$ MHz. Pour le laser émettant à 459 nm, on peut balayer une plage de fréquence d'environ 800 MHz par la tension sur le piézo, qui modifie la longueur de la cavité. Pour obtenir une grande plage de balayage (~ 5 GHz), sans sauts de modes, il faut appliquer aussi une correction de courant sur la diode (*feedforward*). En revanche, pour le laser émettant à 455 nm, la plage de balayage est limitée ~ 250 MHz et le *feedforward* n'a jamais réussi à fonctionner, car d'autres modes apparaissent. Malgré cette plage de fréquence limitée sur ce laser, on peut couvrir toute la structure hyperfine du niveau Cs ($7P_{3/2}$) depuis un sous-niveau d'état fondamental. Le laser émettant à 455 nm devrait fonctionner aussi bien que le laser à 459 nm, et même sur une plus large plage de balayage. Cependant, le mode laser, à la fréquence que nous intéresse, n'était pas bien couplé à la cavité, où il aurait fallu rerégler la cavité.

L'émission des lasers n'est pas toujours monomode. Ainsi, l'apparition de plusieurs modes indésirables est surveillée sur le Fabry-Pérot 1 (THORLABS du modèle SA200-5B et *Free Spectral Range* de 1,5 GHz), qui est un Fabry-Pérot d'analyse (longueur de

balayage en tension).

Modulation en fréquence

Pour obtenir les spectres de réflexion sélective FM, il a fallu moduler la fréquence du laser. Le signal FM est généré par un générateur de fonction et envoyé sur le contrôle de longueur de la cavité des lasers. L'excursion de cette modulation doit rester faible par rapport à la largeur des spectres (en pratique, jusqu'à la demi-largeur), sinon, les courbes expérimentales sont déformées, rendant plus difficile l'analyse (voir M. Ducloy & M. Fichet [31]). Ainsi, nous modulons, le plus souvent, les lasers émettant à 459 nm et à 455 nm, avec une excursion, respectivement, de $\sim 3,5$ MHz et $\sim 2,5$ MHz. Ces excursions de modulation sur les lasers sont raisonnables, car les spectres de RSFM ont une largeur de l'ordre, au moins, de 10 MHz (*cf.* sous-section (5.5.3)). La fréquence de modulation était de ~ 1 kHz.

Les excursions de modulation ont été mesurées en positionnant la fréquence du laser est positionnée sur un flanc d'un discriminateur de fréquence (dans notre cas le Fabry-Pérot) et en mesurant l'amplitude totale de la modulation.

5.2.2 Système d'acquisitions de spectres

Le système d'acquisition de données expérimentales est composé de photodétecteurs, des *lock-in* (détecteurs synchrones), d'un convertisseur analogique-digital (DAQ - *Digital Analog Converter*) et d'un ordinateur.

Les photodétecteurs utilisés sont des photodiodes de silicium New Focus 2001 avec amplificateur incorporé. Ils ont un diamètre de détection de 0,9 mm. La bande passante en fréquence est de 100 kHz (maximum) avec un filtrage passif, et un gain variable, qui donne une sensibilité de $1 - 3 \cdot 10^4$ Volts/mW. Comme nous modulons la fréquence (ou parfois l'amplitude du laser par une roue dentée), ces photodétecteurs sont connectés à des entrées de *lock-in*. Les signaux de la sortie analogique de la détection synchrone, qui sont des signaux "en phase" ou "en quadrature", ainsi que le signal directement issu du photodiode, sont envoyés à l'ordinateur via le DAQ. Pour réduire le bruit à la digitalisation des signaux, l'ordinateur et le DAQ doivent être bien connectés à la masse.

L'ordinateur, non seulement reçoit les données de l'expérience, mais contrôle le balayage des lasers : il envoie un signal de tension à un circuit électronique, qui commande

le piézoélectrique (PZT) des lasers. Ce circuit électronique a la finalité d'ajouter un signal de modulation à la tension de balayage commandée via ordinateur.

Pour chaque point en fréquence du laser, 50 mesures sont digitalisées par le DAQ et envoyées à l'ordinateur, qui sont moyennées pour diminuer le bruit. Chacun de ces points prend un temps de ~ 1 ms. Pour qu'il n'y ait pas un mélange des points avec différentes fréquences, le temps de communication entre l'ordinateur et deux points successifs en fréquence est de ~ 70 ms. Ainsi, on obtient que le temps total entre chaque point est d'environ 120 ms (50 ms pour chaque point plus 70 ms d'un point pour l'autre). Considérons que l'on veut une résolution en fréquence de 0,3 MHz (soit entre deux points successifs) et un balayage au total de 500 MHz à 459 nm (incluant la structure hyperfine). La durée de balayage laser est d'environ 3 min ($120 \text{ ms} \times 1600$ points). Pour la transition à 455 nm, une plage totale de balayage de 250 MHz suffit (pour chaque composante hyperfine), donc, la durée est d'environ 1,5 min. L'écart entre points correspond à un compromis entre résolution spectrale et acquisition rapide, pour éviter les possibles fluctuations des lasers.

5.2.3 Le Fabry-Pérot

En même temps que l'acquisition de nos spectres expérimentaux de réflexion sélective, le signal de transmission d'un Fabry-Pérot (FP2 *cf.* montré sur la figure (5.3)) est aussi enregistré sur l'ordinateur.

Le FP2 est construit dans un matériau très stable : *Ultra Low Expansion Glass* - ULE, dont le coefficient d'expansion thermique est de 10^{-8} K^{-1} à $5 - 35$ °C. Il est rempli par l'air et bien fixé sur deux structures métalliques, en évitant bruits acoustiques/mécaniques. C'est une cavité avec deux miroirs sphériques de rayon de courbure $R = 2L$ ($L = 60$ cm), où L est la distance des deux miroirs de la cavité. Un faisceau lumineux, hors d'axe, parcourt une distance optique $6L$ (*cf.* fig. (5.4)). Le choix de cette configuration permet de voir plusieurs pics du FP (intervalle spectral libre de $\frac{c}{6L} \approx 83$ MHz) sur un balayage, en fréquence, de faible extension. Avec cet intervalle spectral libre, le FP2 aide à transformer l'échelle du balayage laser, initialement en volts, en fréquence (voir la sous-section (5.2.5.d)).

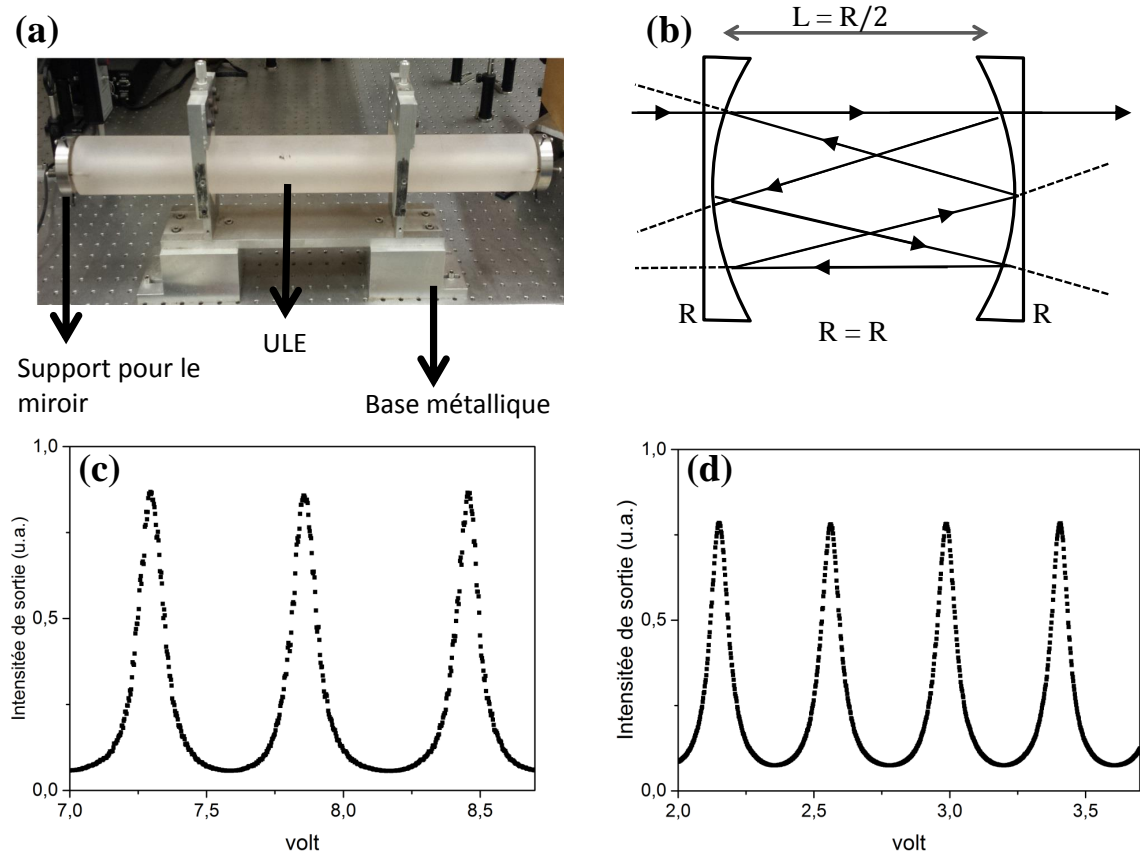


FIGURE 5.4: (a) Photographie du Fabry-Pérot 2 de longueur de $L = 60$ cm. (b) Représentation du chemin optique dans le FP2. Dans ce cas, l'intervalle spectral libre est de $\Delta\nu = \frac{c}{6L} \approx 83$ MHz. (c) et (d) sont des spectres obtenus en balayant les lasers émettant à 455 nm et 459 nm, respectivement. On voit que la finesse est de ~ 6 à $\lambda \approx 459$ nm et ~ 5 à $\lambda \approx 455$ nm.

5.2.4 Cellule chaude de saphir avec une surface super polie

5.2.4.a Description de la cellule

Nos mesures de RS ont été réalisées dans une cellule de saphir contenant de la vapeur de césium. Celle-ci a une fenêtre en saphir super poli avec une rugosité de 0,3 nm mesurée par microscopie de force atomique. Cette cellule (fig. (5.5)) est celle déjà utilisée par A. Laliotis *et al* [27], pour mesurer le déplacement vdW du niveau Cs ($7D_{3/2}$) en fonction de la température. Sa longueur totale est de ~ 16 cm de longueur et 8 cm le cylindre épais et, approximativement, 8 cm le cylindre moins épais en incluant le réservoir. La fenêtre de saphir super polie possède un diamètre de 2 cm.

Cette cellule a été produite en Arménie, par le groupe de D. Sarkisyan. Elle a été construite en utilisant une colle minérale qui connecte la fenêtre avec son corps. Ceci permet de la chauffer à haute température (~ 900 °C), mais le réservoir doit rester à

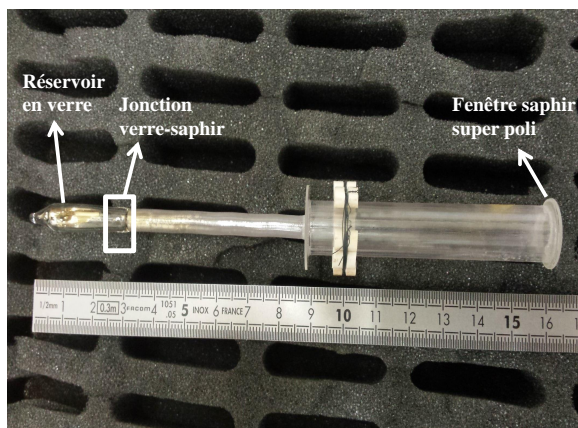


FIGURE 5.5: Photographie de la cellule de saphir avec la fenêtre super polie. Tout son corps est fait de saphir, sauf le réservoir qui contient le césium, qui est fait de verre.

des températures modérées ($\lesssim 200$ °C). Avant de la sceller, elle avait été évacuée et, une goutte de Cs a été introduite par une connexion de verre (fig. (5.5)).

En raison de cette différence remarquable entre la fenêtre et le réservoir, la cellule est prévue pour être en déséquilibre thermique. Ainsi, le nombre d’atome proche de la fenêtre est différent de celui près du réservoir. Ainsi, comme “hypothèse raisonnable”, la pression de Cs dans la cellule est constante, mais le nombre d’atomes près de la surface doit être normalisé par la température de celle-ci, c’est-à-dire, $P(T_R) \propto n \frac{T_R}{T_S}$.

5.2.4.b Système de chauffage

Le système de chauffage de la cellule de saphir est constitué de trois fours indépendants (*cf.* fig. (5.6)) : le four de la surface, le four du milieu et le four du réservoir. Sur le four de la surface, une fenêtre en silice fondue (transparence silice $\sim 0,3 - 3 \mu\text{m}$), de 2 cm de diamètre, a été collée afin d’éviter les attaques des particules, qui se trouvent dans l’air, sur la surface de la cellule.

La température de la cellule est mesurée à l’aide de thermocouples. Pour la fenêtre, un thermocouple touche sa face latérale. Pour le réservoir, un autre thermocouple est en contact avec la cellule au niveau de la surface supérieure métallisée du césium qui est dans le réservoir. Dans le cas du milieu de la cellule, un thermocouple a été mis en contact avec la fenêtre qui ferme le côté opposé de la fenêtre super polie. Les positions des thermocouples sont montrées *cf.* fig. (5.6).

Les trois fours sont du même type. Ils ont une plaque métallique qui couvre une céramique, et des filaments de tungstène à l’intérieur sont entourés sur un cylindre de

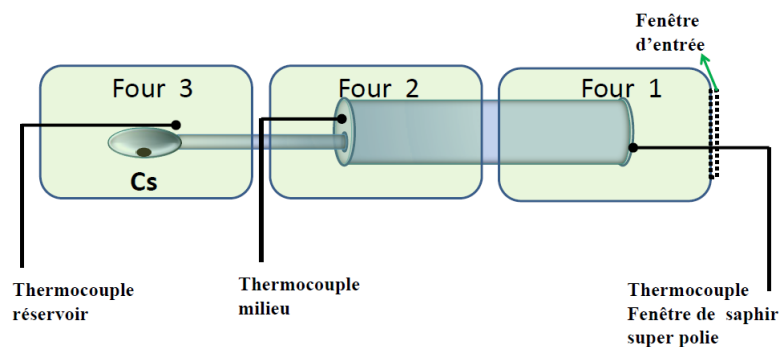


FIGURE 5.6: Représentation de la cellule avec la fenêtre de saphir super polie. Trois fours indépendants chauffent les diverses parties de la cellule.

saphir (le tungstène tient à une température de ~ 2000 K). Ces filaments sont disposés sur le cylindre de Al_2O_3 en boucles opposées afin de minimiser un champ magnétique induit, lorsqu'on fait passer le courant électrique. La céramique utilisée est un type de blindage qui sert pour bien maintenir la chaleur dans le four. Le tube cylindrique de Al_2O_3 est fait seulement pour entourer le filament. La figure (5.7) montre le four de la fenêtre chaude et son rougeoiement quand il est chauffé à une température de ~ 800 °C.

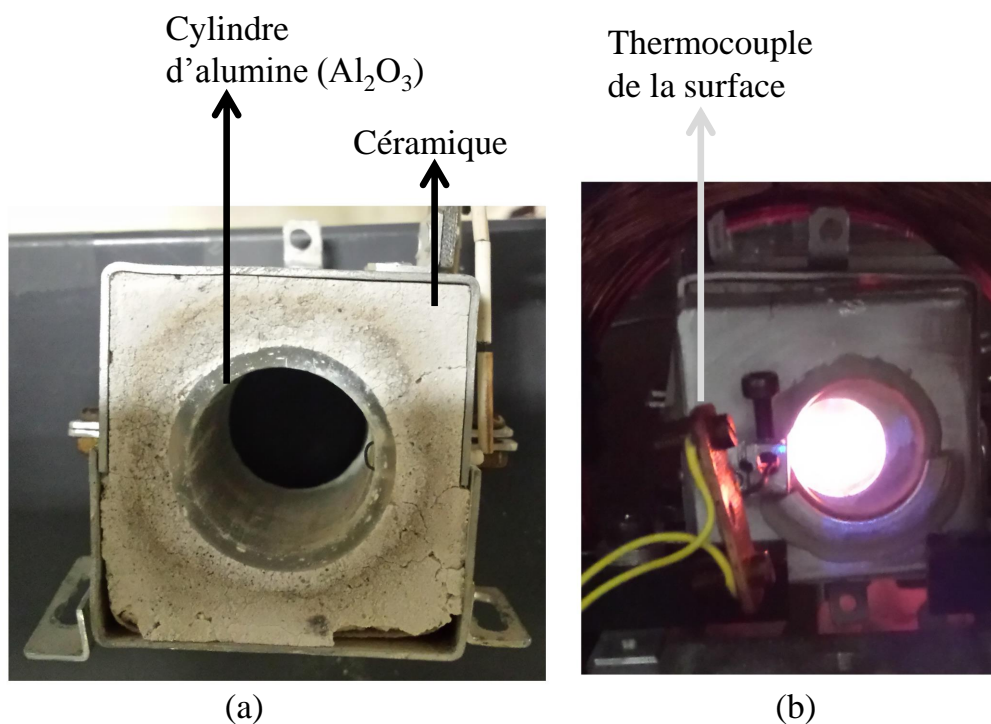


FIGURE 5.7: (a) Photographie du four côté surface. (b) Photographie du four côté surface à 800 °C, avec la cellule dans le four.

5.2.4.c Système de contrôle de température sur la cellule de saphir

La thermique de toute la cellule est contrôlée par un système piloté par un ordinateur identique à celui utilisé par [26] : programme d'asservissement du type PID, qui évalue la puissance envoyée à chaque four. Le programme est élaboré de façon à ce que les températures, de toutes les parties de la cellule, soient rapidement stabilisées à une température de consigne, mesurées quand les thermocouples installés dans chaque partie de la cellule (*cf.* fig. (5.5)). Il prend en compte la vitesse de chauffage et assume que la température de la fenêtre reste plus élevée que celle des autres parties de la cellule (notamment le réservoir).

Pour le contrôle de température, la mesure est faite toutes les 5 s, mais on moyenne, car la digitalisation (à 0,1 °C) sinon rajoute du bruit. En outre, quelques exigences de sécurité sont introduites :

- La température de montée et de descente est contrôlée de sorte à ne pas dépasser 15 °C/min. L'objectif est d'éviter un risque de casse pour la fenêtre par de trop fortes contraintes thermiques. Pour le réservoir, où les températures restent beaucoup plus faibles, cette contrainte sert pour éviter un décollement de celle-ci avec le corps de la cellule ;
- Par prudence, toutes les températures respectives, au niveau de la fenêtre, du milieu et du réservoir de la cellule sont bornées à 900 °C, 350 °C et 200 °C ;
- Dans le cas d'une déconnexion du thermocouple au système de contrôle, le programme éteint tous les fours.

La figure (5.8) montre la précision de la stabilisation de la température du réservoir et de la surface. Pour la surface, on voit seulement une variation inférieure à 5 °C quand $T_S = 800$ °C, ce qui n'est pas considéré comme important sur nos mesures expérimentales de réflexion sélective. Pour le réservoir, nous observons des fluctuations d'environ 2 °C qui peut se traduire par une variation de la pression de la vapeur de Cs de $\sim 5\%$ (*cf.* la fig. (5.2)), dont la première influence sera d'induire des variations sur l'amplitude du signal en cours d'enregistrement.

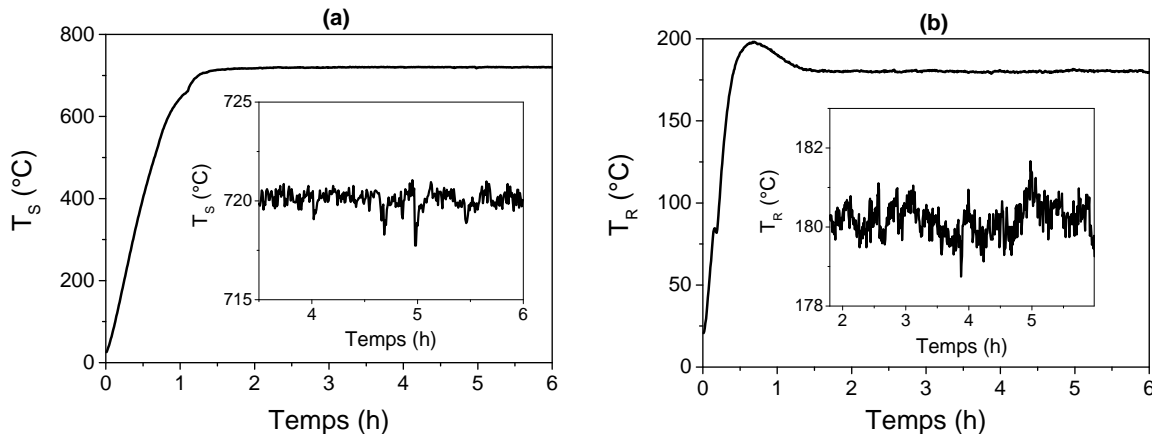


FIGURE 5.8: Stabilité de la température de la cellule de saphir. (a) Température de la surface et (b) du réservoir. Les insertions montrent un *zoom* lorsque les températures sont stabilisées. Une fois que les températures ont atteint les valeurs de consigne, nous attendons environ 40 min pour prendre nos mesures.

5.2.4.d Mesure du champ magnétique sur le four de la fenêtre de saphir super polie

La présence d'un champ magnétique externe (\mathbf{B}_{ext}) affecte la dégénérescence des niveaux atomiques, en faisant apparaître, les sous-niveaux magnétiques, c'est-à-dire, les structures Zeeman. L'interaction vdW en présence d'un champ magnétique externe a été déjà étudiée auparavant en régime de "champ moyen" [4]. Ici, nous sommes intéressés par l'interaction vdW d'un niveau atomique au voisinage d'une surface diélectrique, sans la présence de \mathbf{B}_{ext} . Nous avons donc mesuré le champ magnétique au voisinage de la surface de saphir super polie, pour s'assurer que le champ magnétique résiduel lorsqu'on fait passer un courant électrique sur les filaments des fours reste suffisamment faible (normalement, les niveaux hyperfins ont un déplacement en fonction du champ magnétique de ~ 1 MHz/Gauss).

Les mesures du champ magnétique ont été faites en mettant deux types de sonde (une après l'autre) qui quantifie le champ magnétique dans les trois directions d'espace. Une sonde mesure seulement B_z (direction longitudinale), tandis que l'autre mesure les champs B_y et B_x , dans les directions transverses. On positionne une des sondes sur l'endroit où la surface de saphir polie sera posée et on allume, à un certain courant électrique, les trois fours, un à la fois. On fait cette mesure pour plusieurs courants de chaque four et pour les deux sondes. Les résultats de ces mesures sont synthétisés sur la figure (5.9).

Le courant électrique maximum est sur le four de la fenêtre de saphir est $\sim 3,5$ A pour

~ 800 °C. Pour les autres fours, le courant électrique n'a pas à dépasser 2 A. Les résultats de ces mesures sont présentés à la figure (5.9). Dans tous les cas, le champ magnétique des fils chauffants n'excède pas le champ magnétique terrestre, dont la compensation ou non-compensation n'affectera pas les mesures de réflexion sélective sur notre transition.

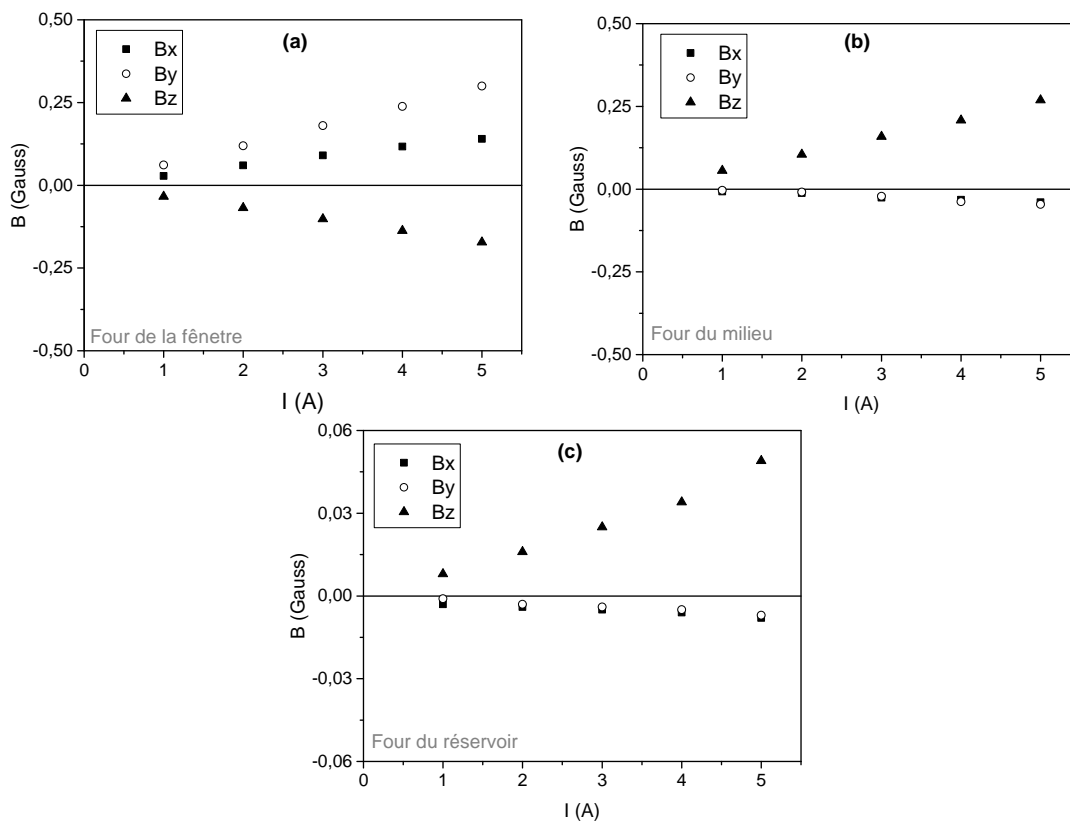


FIGURE 5.9: Les valeurs du champ magnétique mesurées à l'endroit où se trouve la fenêtre de saphir avec les trois fours allumés, successivement.

5.2.5 Absorption saturée

5.2.5.a Rappel sur l'absorption saturée

Quand un rayonnement électromagnétique de fréquence ω traverse le milieu atomique, la résonance subit l'élargissement Doppler car chaque atome, avec fréquence de résonance ω_0 et vitesse \mathbf{v} , "voit", à cause de l'effet Doppler, ce rayonnement avec une fréquence $\omega' = \omega - \mathbf{k} \cdot \mathbf{v}$, où \mathbf{k} est le vecteur d'onde du rayonnement électromagnétique. Ainsi, compte tenu de la déviation des vitesses, l'absorption linéaire a un spectre dont la largeur est dominée par la largeur Doppler, qui est définie comme la largeur à mi hauteur d'une courbe Gaussienne (ku). Cette courbe a une forme Gaussienne due à la distribution Maxwell-Boltzmann de vitesses, que l'on considère pour les atomes confinés dans une cellule à une

température T .

Cependant, comme nous pouvons l'observer sur la figure (5.1), la séparation des structures hyperfines du Cs($7P_{1/2}$) et Cs($7P_{3/2}$) est inférieure à la largeur Doppler, même à la température ambiante, empêchant que les différentes structures hyperfines soient résolues. Donc, pour que nous puissions observer les structures hyperfines, il nous faut faire une spectroscopie sub-Doppler, comme par exemple, une absorption saturée.

L'absorption saturée consiste, fondamentalement, à faire passer deux faisceaux contrapropageants (pompe, ω_p , et l'autre, la sonde, ω_s) dans un milieu atomique. Quand les atomes de la classe de vitesse v (v parallèle à k), avec $\omega_p - k_p v_p = \omega_0$, absorbent le faisceau laser pompe, ils laissent le milieu plus transparent pour le faisceau sonde, puisque le faisceau pompe a réduit la différence de population dans cette classe de vitesse, d'où on observe un pic sur la courbe de transmission du faisceau sonde à $\omega_s = \omega_0 + k_s v_p = \omega_0 - k_p v_p$ (si $k_s = -k_p$, pour les faisceaux contrapropageants). Ce pic, sub-Doppler, d'absorption saturée, obtenu autour de ω_0 pour le cas à un seul laser ($\omega_s = \omega_p$), est de largeur homogène (γ) de la transition. Il faut bien sûr que la source laser ait une largeur, en fréquence, plus petite que γ , que le laser ne sature pas la transition atomique, et que les faisceaux sonde et pompe soient parfaitement contrapropageants pour éviter un effet Doppler résiduel.

Dans le cas d'atomes multiniveaux, tels que les niveaux Cs($7P_{1/2}$) et Cs($7P_{3/2}$), les spectres d'absorption saturée présentent plusieurs résonances correspondants aux composantes hyperfines. En plus des résonances principales, il apparaît des résonances de croisement (*cross-over*), qui surgissent pour une classe de vitesse telle que les atomes sont en résonance, en même temps, avec le faisceau sonde, et avec le faisceau pompe sur des transitions différentes mais couplées. Les *cross-over* ne sont pas reliés à une transition atomique unique et se trouvent sur la moyenne arithmétique entre deux composantes hyperfines (voir par exemple la figure (5.10)).

5.2.5.b Description expérimentale pour l'absorption saturée de référence

Pour obtenir les spectres d'absorption saturée de référence, nous avons utilisé une cellule ayant un corps en cuivre et avec une taille de 1 cm de longueur. L'accouplement entre le corps de la cellule et du réservoir a été fait par une transition verre-métal et deux fils chauffants, de matériau isolant, ont été utilisés de manière à chauffer individuellement le corps de la cellule et du réservoir. La pression de la vapeur atomique dépend de la

température à l'interface supérieur liquide de césium avec le vide qui est dans le réservoir.

Nous avons chauffé le réservoir de la cellule d'où une densité d'atomes de césium de $\sim 2,7 \cdot 10^{11}$ at.cm⁻³ (à $T_R \approx 45$ °C). Pour la longueur de la cellule de 1 cm, on obtient $\sim 45\%$ d'absorption laser pour la transition $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$ et $\sim 15\%$ pour $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{1/2}$. L'intensité choisie pour les lasers est $I_{\text{pompe}} = I_{\text{sonde}} \approx 300 \mu\text{W} \cdot \text{cm}^{-2}$.

5.2.5.c Les spectres d'absorption saturée de référence

Pour ne faire apparaître que les spectres d'absorption saturée, nous avons appliqué une modulation d'amplitude avec une roue dentée (*chopper*) sur le chemin du faisceau pompe. Ceci permet d'éliminer le fond Doppler de l'absorption linéaire. Une autre technique, presque aussi sélective, pour observer les résonances de l'absorption saturée consiste à appliquer la modulation en fréquence sur le laser. La détection après démodulation, qui montre la dérivée du spectre de transmission, ce qui privilégie les résonances étroites, sélective en vitesse, de l'absorption saturée.

Les spectres d'absorption pour les transitions $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{1/2}$ et $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$, y compris les deux sous-niveaux de départ de l'état fondamental, sont montrés sur la figure (5.10). Une observation est que la modulation FM qui sera choisie pour la RS (*cf.* sous-section (5.2.1)) a une excursion plus grande que celle des spectres d'absorption saturée présentés sur la figure (5.10). Pour une AS de largeur minimale, il faut une faible modulation notamment plus faible que celle permise en RS, aux fortes pressions utilisées.

Si on analyse le spectre d'AS pour la transition $6S_{1/2} (F = 3) \rightarrow 7P_{1/2} (F')$ présenté sur la figure (5.10), l'écart entre le sous-niveau de l'état excité $F' = 3$ et le *cross-over* paraît différent de celui entre $F' = 4$ et le *cross-over*. On peut faire cette même observation pour la transition vers le niveau Cs ($7P_{3/2}$) et, nous percevons que la distance entre les sous-niveaux et les résonances de croisement ne sont pas comme attendu. Ceci conduit à transformer l'échelle en tension (volts) en une échelle en fréquence.

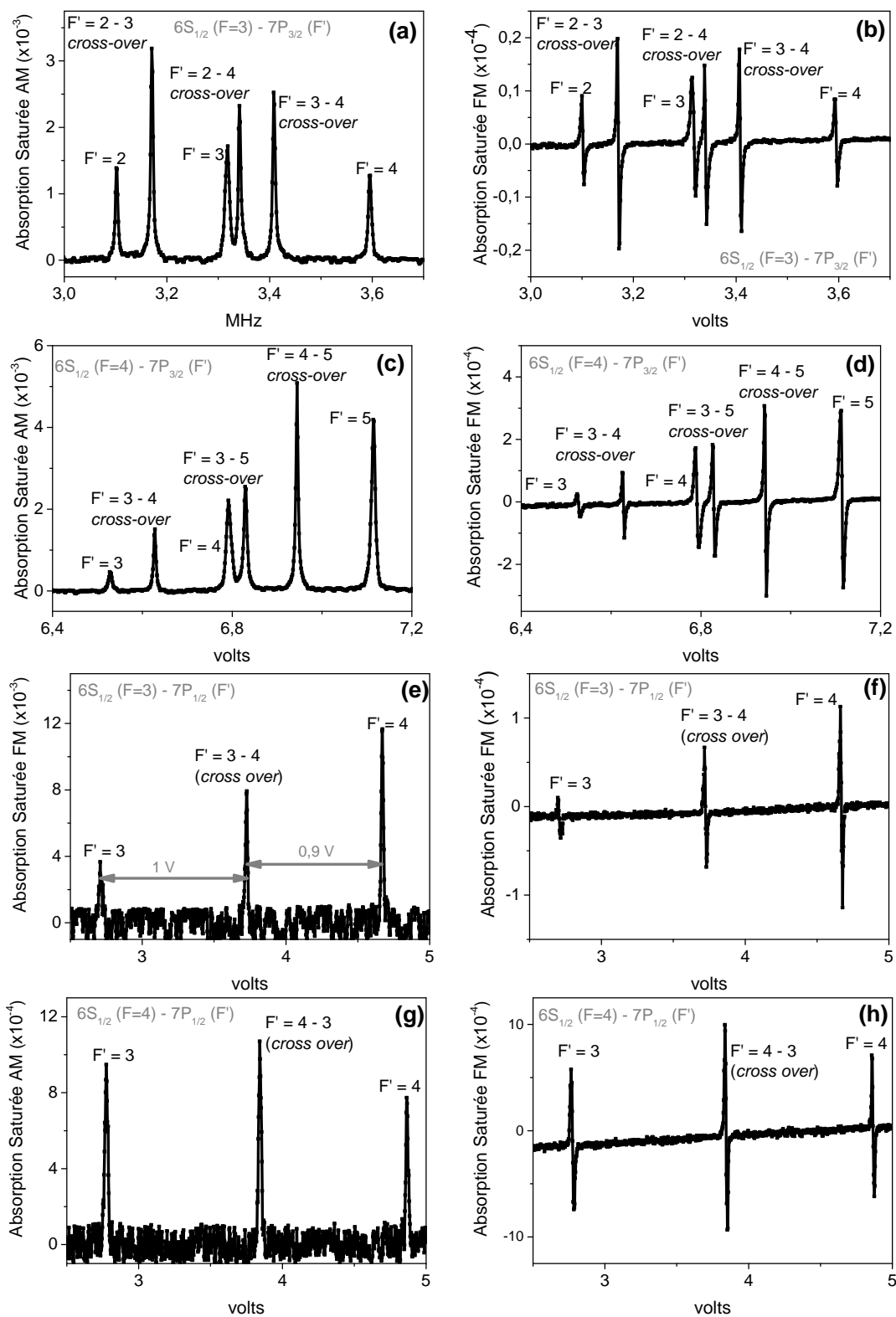


FIGURE 5.10: Spectres d'absorption saturée pour les transition $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{1/2}$ et $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$. À gauche les spectres d'absorption saturée détectés par une modulation en amplitude (au travers du *chopper*) et à droite leur dérivées, détectées par une modulation en fréquence sur les lasers. L'axe des abscisses a des unités de tension (volts).

5.2.5.d Construction d'échelle en fréquence

La construction de l'échelle en fréquence est très importante pour évaluer les expériences de RS, tant pour permettre un *fit* des spectres, que pour obtenir les informations sur l'interaction atome-surface, qui est évaluée grâce à un paramètre sans dimension A proportionnel à la largeur en fréquence (*cf.* ch. (4)).

Une façon de transformer l'échelle de tension de balayage du laser en échelle en fréquence, est d'utiliser les informations du spectre d'absorption saturée. Dans ce cas, nous associons les fréquences bien connues des structures hyperfines (voir la figure (5.1)) du niveau atomique en question avec la tension envoyée au PZT correspondant au balayage du laser. Avec cette association entre tension de balayage du laser et fréquence des sous-niveaux de l'état atomique, nous faisons une linéarisation entre chaque point. Ainsi, de cette manière, nous avons une nouvelle échelle de balayage, en fréquence, qui prend en compte les points correspondants aux sous-niveaux atomiques de l'état excité étudié.

Une deuxième manière de transformer l'échelle de balayage laser, en échelle en fréquence, est d'utiliser le spectre de transmission du Fabry-Pérot, combiné à l'absorption saturée. Dans ce cas, on linéarise l'échelle avec les résonances de l'absorption saturée, alors que pour les ailes des spectres, situées en dehors de la structure hyperfine des niveaux excités, nous utilisons, comme marqueur en fréquence, les interférences du FP2.

La figure (5.11) montre une comparaison, à partir des spectres d'absorption saturée de référence, entre les types de transformation d'échelles qu'on vient de décrire ci-dessus. Comme on peut le voir, il n'y a aucun changement significatif (autour de la résonance étroite d'AS), en fréquence, entre le choix de transformation des échelles de balayage laser.

Avec cette nouvelle échelle en fréquence, nous pouvons faire la moyenne de plusieurs spectres enregistrés sur des durées de plusieurs minutes et nous affranchir, par cette réalisation, de la dérive en fréquence qui aurait brouillé un spectre unique sur la durée totale (durée de l'ensemble du spectre à moyenner). Ainsi, on améliore le *Signal/Bruit*, surtout en RS, car l'amplitude de typique du signal de RS est $10^{-4} - 10^{-5}$ du fond de réflexion non résonnante.

5.2.5.e Critère de choix des spectres expérimentaux pour faire la moyenne

Indépendamment de la méthode utilisée pour construire l'échelle en fréquence, avant de sommer nos spectres (en AS, comme en RS), nous sélectionnons nos acquisitions d'ab-

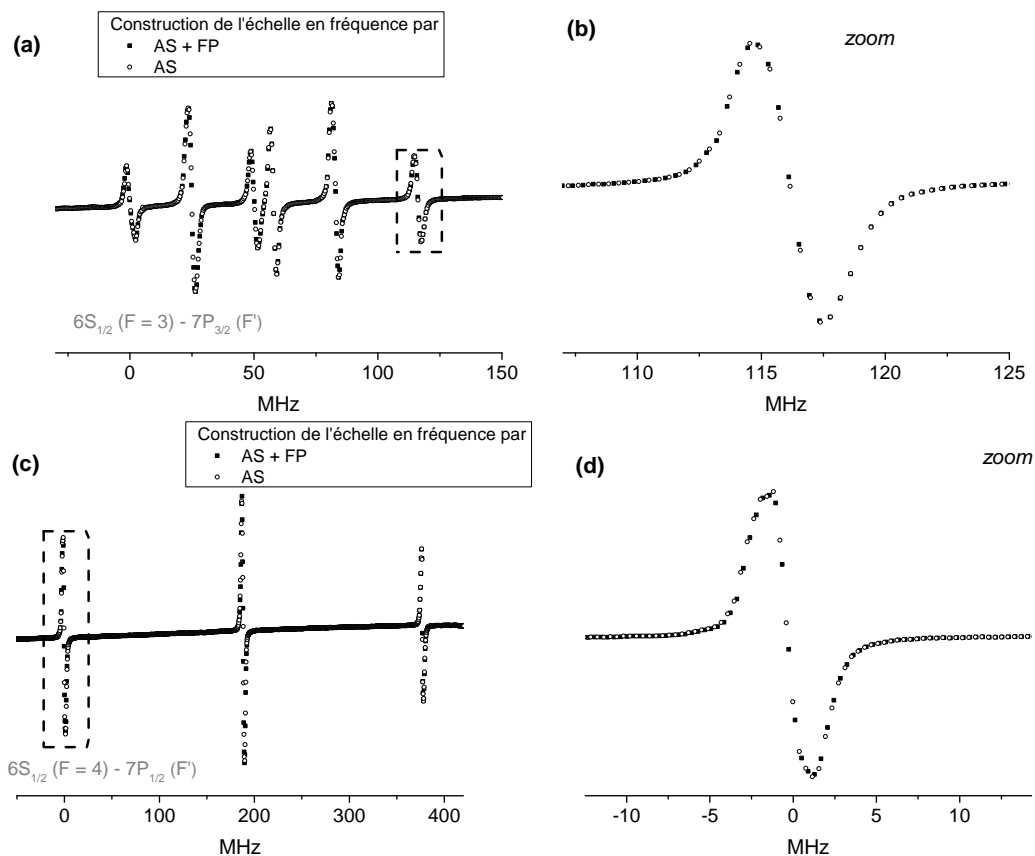


FIGURE 5.11: Comparaison, au travers des spectres d'absorption saturée, entre deux types de méthodes pour la construction de l'échelle de balayage des lasers en fréquence. Les points noirs correspondent à une échelle de balayage laser transformée par l'absorption saturée et le FP2, et les points blancs à la transformation de l'échelle de balayage laser seulement par l'absorption saturée. (a) Spectre d'absorption saturée pour la transition $6S_{1/2}(F=3) \rightarrow 7P_{3/2}(F')$. (b) Agrandissement de la partie indiquée sur (a) du spectre d'absorption saturée. (c) et (d) analogues respectifs de (a) et (b) pour la transition $6S_{1/2}(F=4) \rightarrow 7P_{1/2}(F')$. Après la construction de la nouvelle échelle on fait une interpolation pour faire la somme de courbes.

sorption saturée pour ne pas prendre en compte dans le moyennage des spectres où le balayage en fréquence a été visiblement défectueux. Pour mieux comprendre ce choix, deux spectres d'absorption saturée sont présentés sur la figure (5.12). Ce choix a posteriori, étant effectué au vu du signal AS, n'est pas une sélection arbitraire pour les spectres de RS que l'on veut analyser.

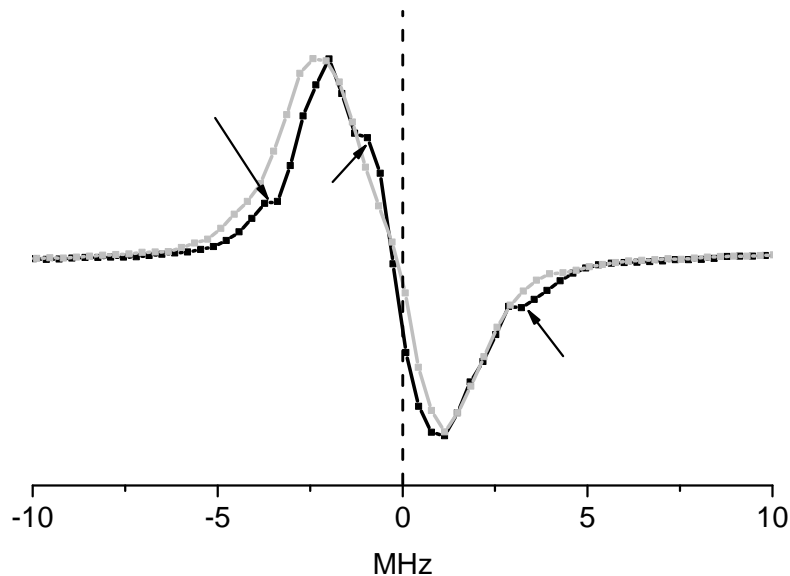


FIGURE 5.12: Comparaison de deux spectres d'absorption saturée sur une composante de la transition $6S_{1/2} (F = 3) \rightarrow 7P_{3/2} (F' = 2)$. Les flèches montrent les imperfections sur un des courbes (la noir). En gris, un exemple de l'absorption saturée dans laquelle le balayage du laser est pris en compte pour la moyenne et en noir, un spectre qui n'est pas pris dans la moyenne.

5.2.6 Mesures d'élargissement et de déplacement par pression pour les niveaux $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{1/2}$ et $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$ du césium

Dans cette sous-section, on présente nos résultats sur l'élargissement et le déplacement par pression pour les niveaux Cs ($7P_{1/2}$) et Cs ($7P_{3/2}$) du césium. Ces mesures sont nécessaires pour les analyses des spectres de RSFM.

Pour une meilleure mesure d'élargissement et de déplacement par collision, nous avons appliqué une modulation en amplitude (AM) sur le faisceau pompe, ASAM (*cf* (5.2.5.c)).

Avant de mesurer le déplacement et l'élargissement par pression des niveaux Cs ($7P_{1/2}$) et Cs ($7P_{3/2}$), on a testé l'intensité du laser pour vérifier qu'elle n'élargit pas la transition atomique. Cette vérification a été faite à basse pression (~ 5 mTorr), où les effets de collision sont négligeables par rapport à l'effet éventuel de la saturation par intensité laser¹.

1. On peut considérer que la largeur totale de la transition est donnée par $\gamma = \sqrt{\gamma_{col}^2 + \Omega^2}$, où γ_{col} est la largeur qui englobe les effets de collisions et la largeur naturelle γ_0 et Ω est la fréquence de Rabi. Dans le cas où $I_{laser} \ll I_{sat}$, on a $\Omega \ll \gamma_0$, donc, dans ce cas, on ne voit que les effets par collision.

5.2.6.a Procédure de mesure d'élargissement et de déplacement par collision et résultats

La procédure pour déterminer la valeur d'élargissement et du déplacement par collision est de comparer deux spectres d'absorption saturée : un de référence avec une densité atomique constante et l'autre avec une densité atomique variable. En réalité, l'absorption saturée de référence n'est nécessaire que pour obtenir les informations sur le déplacement par collision. La deuxième cellule (cellule 2) que nous utilisons est faite de silice fondue avec une longueur de 100 μm . Cette cellule, très courte, a été choisie, parce que nous pouvons accéder à des informations sur les spectres d'absorption saturée avec des pressions de Cs comparables à celles utilisées pour l'obtention des spectres de réflexion sélective. Elle possède deux fours indépendants : un pour chauffer son corps, évitant la condensation de la vapeur atomique sur la surface, et un pour le réservoir qui donne la pression de la vapeur atomique dans la cellule.

Après avoir construit une échelle en fréquence (*cf.* (5.2.5.d)), nous avons fait un ajustement numérique avec une somme de *Lorentziennes* sur les spectres d'AS obtenus à partir de la cellule 2. Ces courbes ont comme paramètres libres : l'amplitude, la position du centre (ν) et la largeur à mi-hauteur (γ). La largeur est fournie directement par les ajustements théoriques. Par contre, pour déterminer le déplacement par collision (δ), il est nécessaire de faire la différence entre la position des résonances de l'absorption saturée de référence avec celles obtenues sur la cellule de pression variable.

Mesures d'élargissement et de déplacement collisionnels pour le niveau Cs ($7P_{1/2}$)

Dans le cas du niveau Cs ($7P_{1/2}$), trois courbes *Lorentziennes* étaient suffisantes : deux pour la transition atomique et une pour le *cross-over*.

La figure (5.13) montre un spectre d'absorption saturée sur la deuxième cellule avec une pression de ~ 110 mTorr ($T_R = 205$ °C), pour la transition $6S_{1/2} (F = 4) \rightarrow 7P_{1/2} (F')$. Elle présente également les ajustements numériques tant pour le spectre à relativement forte pression, que pour le spectre d'absorption saturée de référence. L'agrandissement sur une partie du spectre expérimentaux de l'AS de référence nous montre qu'elle possède une largeur de $\gamma \approx 1,5$ MHz, qui est très proche de la largeur naturelle (1,15 MHz). Cependant, ce résultat important indique que nos spectres de RS ne sont pas limités par la largeur du laser.

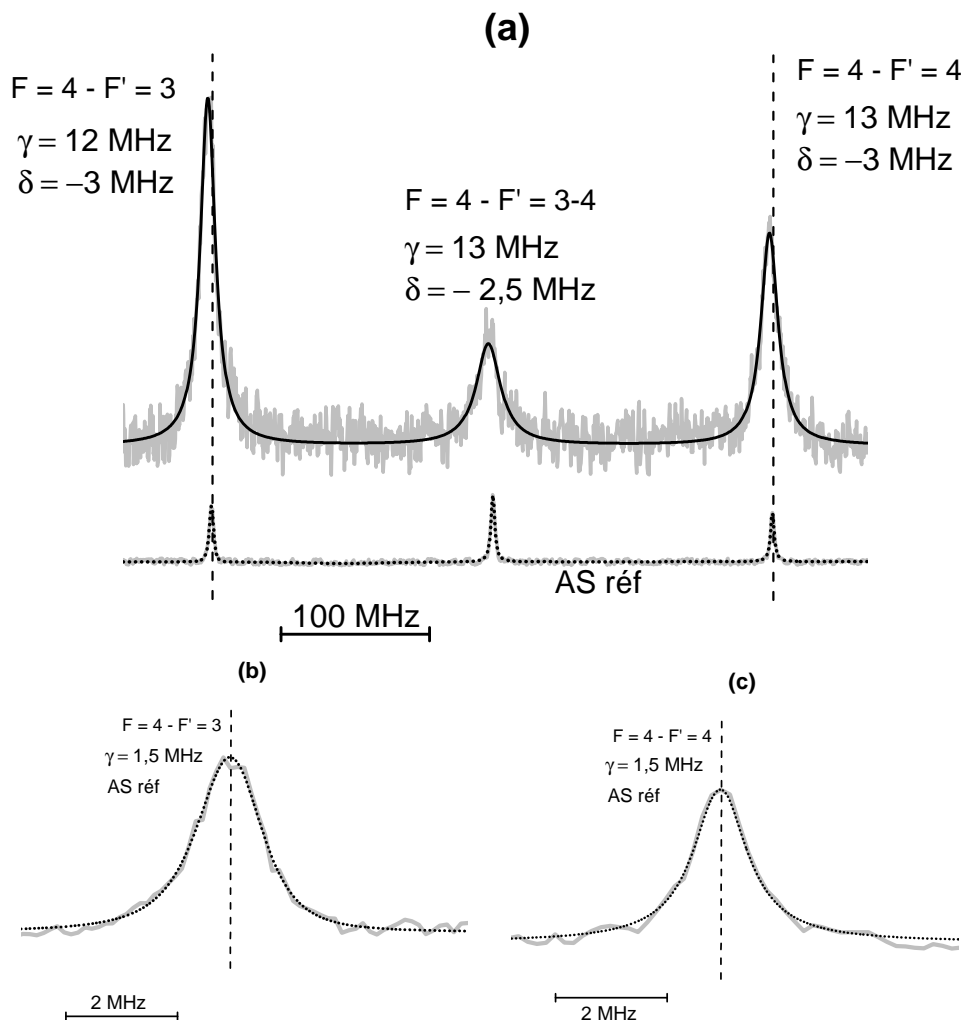


FIGURE 5.13: Comparaison entre deux spectres d'absorption saturée pour la transition $6S_{1/2}(F=4) \rightarrow 7P_{1/2}(F'=3,4)$. En gris les spectres expérimentaux et en noir les ajustements. L'absorption saturée de référence a été détectée à $P \approx 0,1 \mu\text{Torr}$ qui correspond à $T_R = 45 \text{ }^\circ\text{C}$. Pour la deuxième cellule (a), le spectre a été détecté à $P \approx 100 \text{ mTorr}$ ($T_R = 205 \text{ }^\circ\text{C}$). (b) et (c) montrent le *zoom* sur chaque transition de l'AS de référence avec les ajustements numériques respectifs. La largeur de l'AS de référence est $\sim 1,5 \text{ MHz}$ pour toutes les acquisitions laser (théoriquement $\gamma_0 \approx 1,15 \text{ MHz}$).

Nous avons aussi détecté des spectres d'AS à plus basse pression (le minimum a été $P \approx 4,5 \text{ mTorr}$, correspondant à $T_R = 135 \text{ }^\circ\text{C}$). La détection d'AS sur la transition $6S_{1/2}(F=3) \rightarrow 7P_{1/2}(F'=3,4)$ a aussi été faite et il n'y a aucun changement par rapport la largeur et le déplacement.

L'ensemble des résultats des ajustements numériques sur les spectres d'absorption saturée obtenus sur la cellule de pression variable, est montré sur la figure (5.14). Dans cette figure, on montre aussi l'incertitude de chaque point (la barre d'erreur). Elle a été obtenue par plusieurs façons d'ajuster la courbe expérimentale d'absorption saturée : en ajustant

numériquement chaque résonance individuelle (niveau avec une structure hyperfine bien résolue) et en détectant plusieurs spectres pour une même pression de Cs (parfois sur des jours différents, parfois sur le même jour).

Le résumé de cette étude d'élargissement et de déplacement, par pression par toutes les composantes hyperfines du niveau $7P_{1/2}$ du césium, est présenté sur le tableau (5.2).

$F \rightarrow F'$	Γ (MHz/Torr)	Δ (MHz/Torr)
$3 \rightarrow 3$	109 ± 10	-28 ± 3
$3 \rightarrow 4$	100 ± 8	$-22,5 \pm 3$
$4 \rightarrow 3$	101 ± 8	-22 ± 3
$4 \rightarrow 4$	98 ± 10	-23 ± 3

TABLE 5.2: Résultats des ajustements pour le déplacement et l'élargissement par collision pour la transition $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{1/2}$ du césium. Les incertitudes indiquées sont associées à la procédure des ajustements des courbes d'absorption saturée. Le F indique la composante hyperfine du niveau fondamental et le F' du niveau excité.

Ces mesures d'élargissement et déplacement par pression seront utilisées pour mieux interpréter les spectres de RS. En effet, les températures du réservoir (ou pression de Cs) utilisées par ces mesures sont voisines de celles pour l'obtention des spectres de RS (température du réservoir de $160 - 200$ °C).

Les résultats montrés au tableau (5.2) indiquent une imprécision seulement sur les *fits*. Néanmoins, une différence d'environ 10 °C entre la température du réservoir, telle que mesurée par le thermocouple et la température incluant la conduction de la partie chaude du corps de la cellule, peut donner l'élargissement par pression à ~ 200 MHz/Torr (sûrement que la valeur de Γ peut devenir moindre que ~ 100 MHz/Torr). Par contre, le rapport Γ/Δ est insensible à la précision en pression sur la température de réservoir.

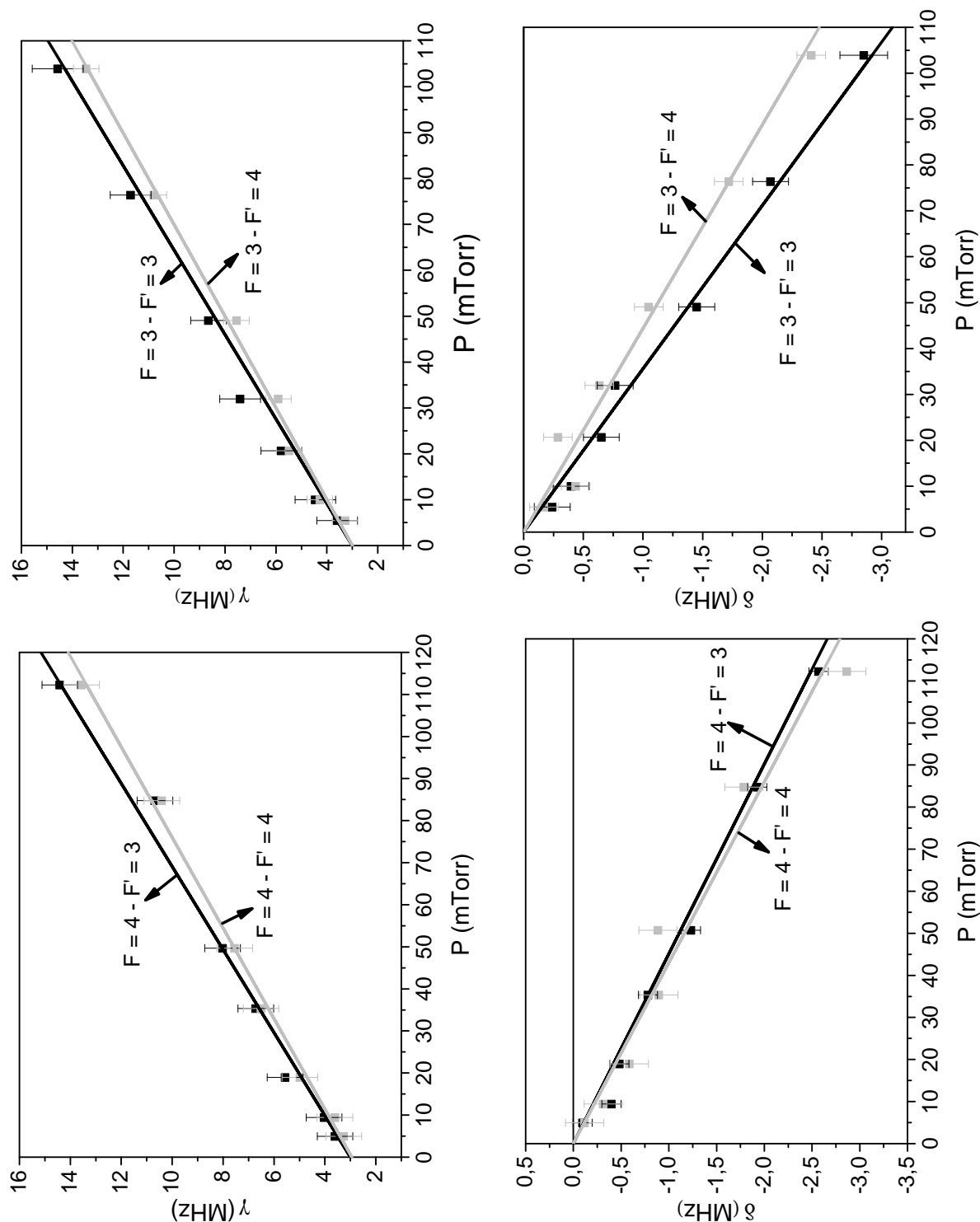


FIGURE 5.14: Dépendance en pression de la largeur et du déplacement pour la transition $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{1/2}$, avec l'ajustement linéaire, à partir du fondamental. Le F dénote la structure hyperfine du fondamental et F' pour le niveau excité.

Mesures d'élargissement et de déplacement collisionelles pour le niveau Cs ($7P_{3/2}$)

Pour la transition $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$, les élargissements et les déplacements par collision avaient déjà étudiés par des ajustements théoriques des spectres de réflexion sélective [28].

Nonobstant, nous faisons ces mesures en utilisant la méthode de comparaison entre deux spectre d'absorption saturée, comme pour la transition $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{1/2}$.

Dans le cas de la transition $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$, les ajustements des spectres d'AS sont faits par la somme de six pics avec une forme *Lorentzienne*, où les paramètres libres sont identiques à ceux utilisés pour la transition $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{1/2}$ (amplitude, fréquence du centre de la résonance et la largeur γ).

La figure (5.15) montre deux spectres d'AS à une pression de $P \approx 110$ mTorr, similairement à la figure (5.13), en partant du sous-niveau $F = 3$ ainsi que $F = 4$ du fondamental. Elle présente aussi un *fit* sur le spectre d'AS de référence avec une largeur de $\sim 1,5$ MHz comme la transition $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{1/2}$, bien que le niveau Cs ($7P_{3/2}$) a une largeur naturelle de $\sim 1,3$ MHz.

De façon analogue aux résultats montrés sur la figure (5.14), le résumé des résultats du déplacement et d'élargissement par collision, d'après les ajustements des spectres d'AS, à plusieurs pression de la vapeur atomique, sont présentés sur la figure (5.16). L'incertitude a été obtenue en faisant les ajustements de plusieurs spectres d'AS (cinq pour chaque pression) détectés soit d'affilée, soit des jours différents.

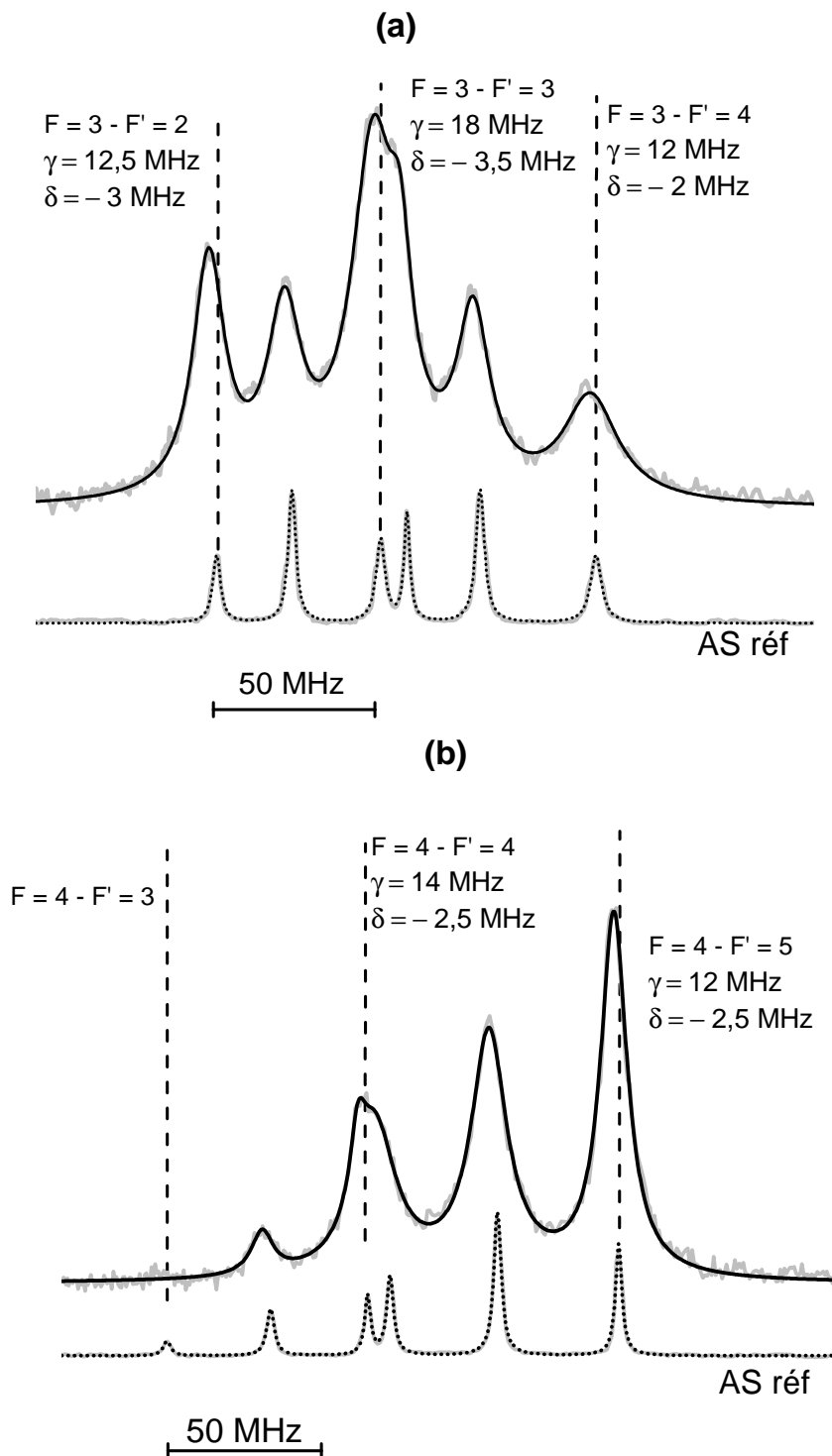


FIGURE 5.15: Idem que figure (5.13), mais pour la transition (a) $6S_{1/2}(F = 3) \rightarrow 7P_{3/2}(F' = 2, 3, 4)$ et (b) $6S_{1/2}(F = 4) \rightarrow 7P_{3/2}(F' = 3, 4, 5)$. Pour la transition $6S_{1/2}(F = 3) \rightarrow 7P_{3/2}F' = 3$ et $6S_{1/2}(F = 4) \rightarrow 7P_{3/2}F' = 4$, l'analyse d'élargissement et de déplacement du spectre est compliquée par le mélange avec le *cross-over*. Dans le cas de la transition $6S_{1/2}(F = 4) \rightarrow 7P_{3/2}(F' = 3)$, l'amplitude du sous-niveau est très petite, ce qui rend l'ajustement difficile. La largeur, d'après les ajustements numériques, pour l'AS de référence de $\sim 1,5 \text{ MHz}$ (théoriquement $\sim \gamma_0 \approx 1,3 \text{ MHz}$).

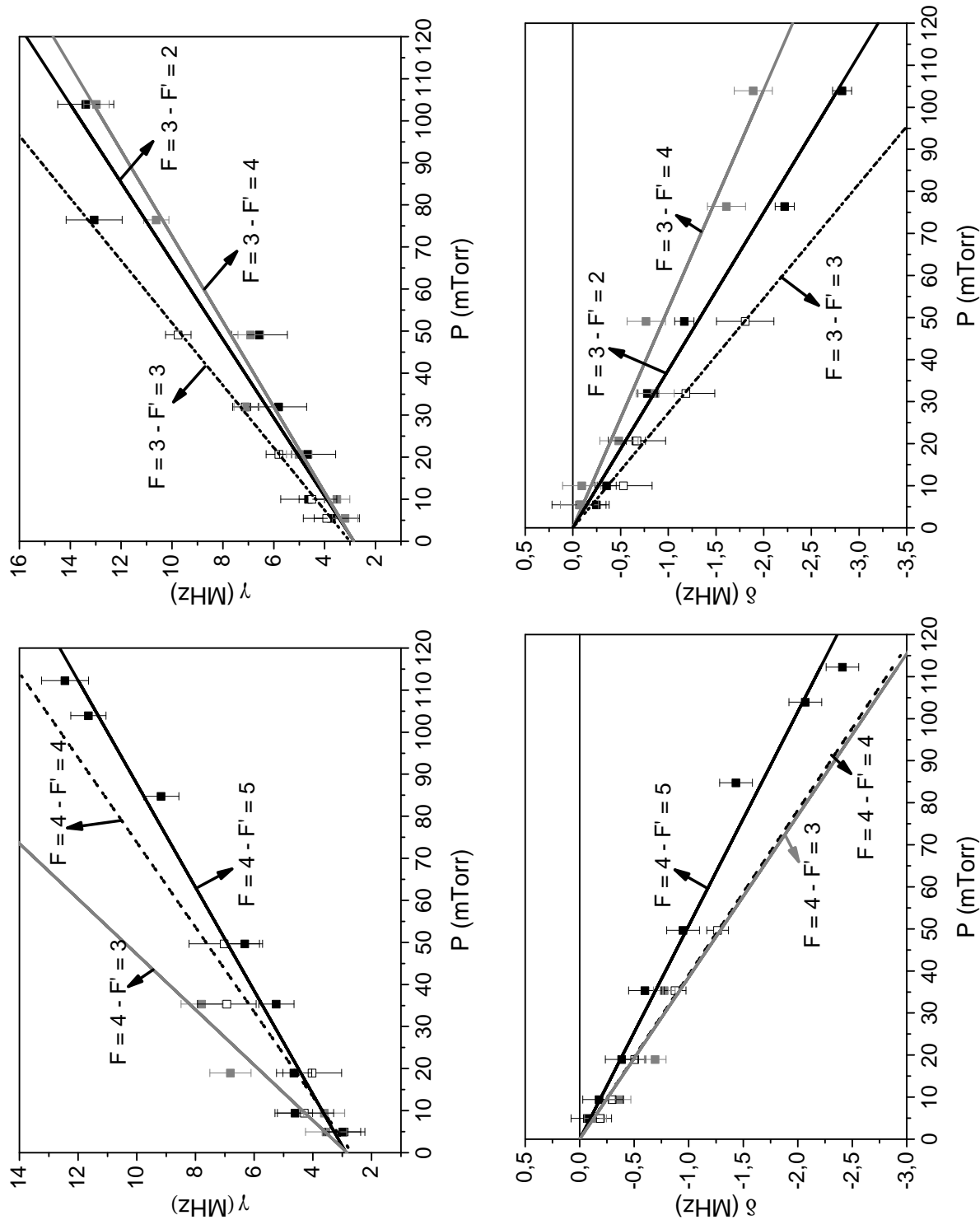


FIGURE 5.16: Idem que figure (5.14), mais pour la transition $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$.

Le résumé de l'étude d'élargissement et de déplacement par pression selon les résultats montrés sur la figure (5.16) est présenté au tableau (5.3), où on compare avec les résultats antérieurs à ce manuscrit de thèse. Notons que une différence de 10 °C entre la température du réservoir, mesurée par le thermocouple, et la température effective du réservoir, peut doubler le Γ et le Δ , sans changer leur rapport.

$F \rightarrow F'$	Γ (MHz/Torr)	Δ (MHz/Torr)
$3 \rightarrow 2$	107 ± 10 (110 ± 10)	-27 ± 3 (-35 ± 10)
$3 \rightarrow 3$	135 ± 25 (110 ± 10)	$-36,5 \pm 7$ (-45 ± 10)
$3 \rightarrow 4$	$98,5 \pm 10$ (125 ± 20)	$-19,5 \pm 5$ (-50 ± 15)
$4 \rightarrow 3$	152 ± 25 (130 ± 30)	-26 ± 3 (-40)
$4 \rightarrow 4$	$99,5 \pm 10$ (115 ± 10)	$-25,5 \pm 3$ (-45 ± 5)
$4 \rightarrow 5$	$81,5 \pm 10$ (125 ± 15)	-20 ± 3 (-50 ± 5)

TABLE 5.3: Idem que table (5.2), mais pour la transition $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$. En parenthèse, les résultats obtenus précédemment à cette thèse [28].

Selon le tableau (5.3), nous voyons que nos résultats sont en accord avec ceux trouvés par M. Chevrollier [28]. Les différences assez légères peuvent être expliquées par les ajustements numériques de réflexion sélective qui sont plus compliqués que ceux avec des spectres d'AS, où les ajustements numériques sont faits avec des *Lorentziennes*. En effet, pour les spectres RS, il faut faire les *fits* selon l'équation de RSFM (*cf.* chap. (4)), en prenant en compte aussi l'interaction de vdW. Une deuxième comparaison est faite avec les données du tableau (5.2). Ainsi, nous observons que les déplacements et les élargissements par pression pour les deux transitions étudiées dans ce chapitre n'ont pas de différences significatives. Ce résultat est important puisqu'il donne une contrainte sur les ajustements théoriques sur les spectres de RSFM pour ces deux niveaux. Cette contrainte est d'autant mieux assurée que les études à 455 nm et 459 nm sont faites strictement dans les mêmes conditions, et le rapport des élargissements/déplacements à 455 nm et 459 nm est donc indépendant des incertitudes.

Deuxième partie

Résultats expérimentaux de
l'interaction vdW

5.3 Observations initiales sur les spectres de réflexion sélective en fréquence modulée

Une fois que le signal de RSFM est obtenu, il faut vérifier un certain nombre de points pour assurer l'interprétation des résultats.

Pour obtenir les spectres de RSFM, il a fallu moduler la fréquence du laser. Ainsi, en plus de la déformation si l'excursion de la modulation est trop grande, il y a une autre distorsion des spectres qui peut provenir de la saturation en intensité lumineuse. Avant d'analyser nos spectres de RSFM de manière systématique, nous avons donc augmenté, graduellement, l'intensité du faisceau incident jusqu'au maximum disponible. Les spectres de RSFM en fonction de l'intensité lumineuse sont montrés à la figure (5.17) où la pression de Cs est aussi faible que possible (~ 10 mTorr, soit $T_R \approx 150$ °C). Les effets de saturation sont, en effet, plus perceptibles lorsque l'élargissement en pression est faible. Quand il n'y a pas de la saturation, la réflexion sélective reste linéaire, c'est-à-dire que l'amplitude du signal RSFM, normalisée en intensité, est indépendante de la puissance. C'est ce qui se voit sur la fig. (5.17).

Une remarque est que les spectres de RSFM pour la transition $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{1/2}$, à relativement basse pression de Cs, sont ici observés pour la première fois avec un *Signal/Bruit* acceptable. En effet, auparavant dans notre équipe, avec la thèse de M. Chevrollier [28], ce spectre de RSFM a été obtenu, à partir d'un laser à colorant et avec une pression de Cs de ~ 50 mTorr (soit $T_R \approx 185$ °C), avec un mauvais rapport *Signal/Bruit*, rendant l'exploitation impossible, mais montrant la signature d'une forte interaction vdW (forme de raie, variable avec la pression, et toujours un déplacement vers la fréquence "rouge" par rapport à la transition atomique). En revanche, dans cette même thèse [28], les spectres de RSFM pour la transition $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$ avaient été détectés à partir de ~ 23 mTorr ($T_R \approx 169$ °C) et bien analysés. Néanmoins, les effets liés à la températures de surface n'avaient pas été étudiés. En outre, les signaux de RSFM présentés sur la fig. (5.17) ont été détectés pour $T_S = 800$ °C, donc pour une la densité d'atomes proches de la surface plus petite que celle près du réservoir (en supposant -cf. sous-section (5.2.4)- que pour la cellule hors équilibre thermique c'est la pression de la vapeur qui est constante dans toute la cellule).

Après s'être assuré que la saturation du signal de réflexion sélective est négligeable, on

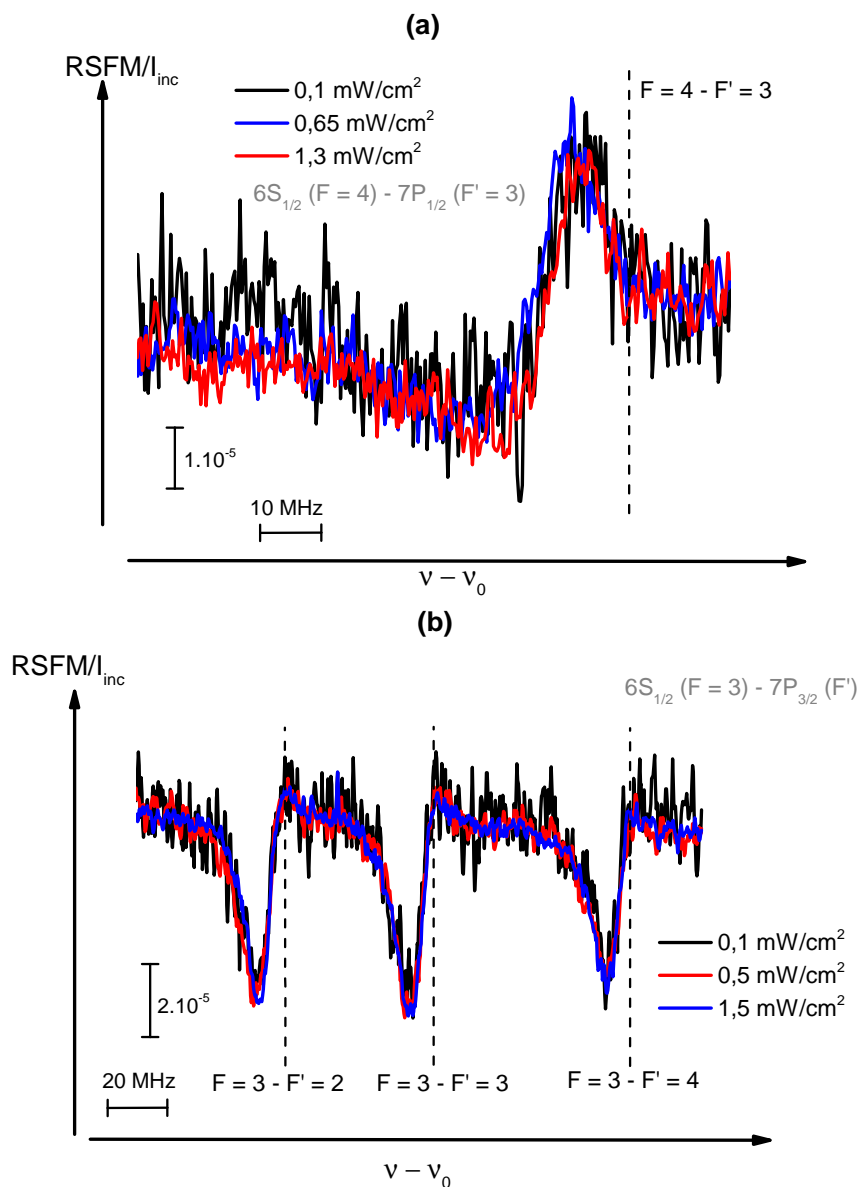


FIGURE 5.17: Spectres de RSFM en fonction de l'intensité incidente (I_{inc}) et normalisés par celle-ci. ils ont été détectés à $T_S = 800$ °C et $P \approx 10$ mTorr. (a) Spectres de RSFM pour la transition $6S_{1/2} (F = 4) \rightarrow 7P_{1/2} (F' = 3)$ et (b) pour la transition $6S_{1/2} (F = 4) \rightarrow 7P_{3/2} (F')$.

peut examiner le comportement des spectres en fonction de la température de la surface. Les figures (5.18) et (5.19) montrent des spectres de RSFM détectés à deux températures différentes de la surface, où on a maintenu la température du réservoir fixe. Les formes de raie de RSFM possèdent une forme très différente par rapport à la prédiction pour l'interaction atome-surface nulle, comme le montrent les figures (5.18) et (5.19). De telles formes très variées sont caractéristiques de RSFM en régime fort ($A > 1$) d'interaction vdW. Des formes telles que celles des figures (5.18) et (5.19) avaient déjà observées [3]. En fait, pour la transition $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{1/2}$, on note que le pic du spectre de RSFM est plus

grand à 800 °C qu'à 300 °C outre un déplacement de fréquence important (cf. fig.(5.18)). Les autres spectres de RSFM pour les autres composantes hyperfines de la transitions vers $7P_{1/2}$ sont tous semblables et la différence ne vient que du rapport d'amplitude entre eux. Pour la transition $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$ (cf. fig.(5.19)), nous pouvons observer un changement de forme des spectres, et notamment la position, en fonction de la température de la surface, surtout, quand le niveau du fondamental est $F = 4$, pour la grande transition 4 – 5 qui est bien résolue.

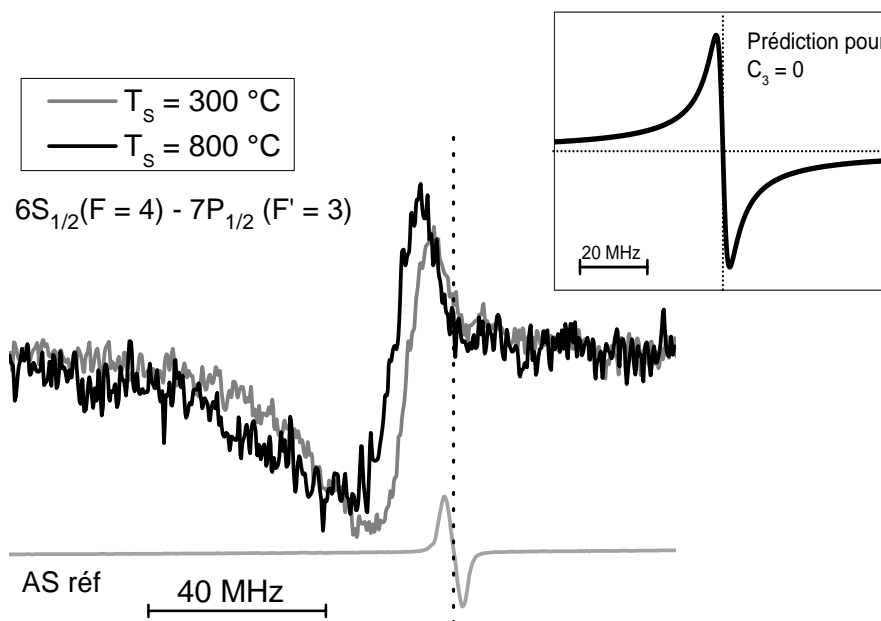


FIGURE 5.18: Spectres de RSFM pour la transition $6S_{1/2}(F = 4) \rightarrow 7P_{1/2}(F' = 3)$, normalisés en amplitude, pour deux températures de la surface très différentes. La température du réservoir était constante avec une valeur de 180 °C qui correspond à une pression de la vapeur atomique d'environ 40 mTorr. Nous montrons aussi, en inséré, la prédiction du spectre de RSFM pour $C_3 = 0$: la distorsion de la courbe (déplacement et forme, signe compris) est clairement une signature de l'interaction atome-surface.

Le *Signal/Bruit* des spectres de RSFM montrés sur la figure (5.17) est confortable pour *fitter* les données. Néanmoins, pour des pressions atomiques plus faibles, une façon d'améliorer le *Signal/Bruit* est de faire une moyenne sur plusieurs spectres en faisant des balayages laser successifs relativement rapides, ce qui limite l'effet des dérives importantes de fréquence du laser. Ainsi, le balayage pour le laser émettant à 459 nm est effectué en ~ 3 min pour une plage de fréquence de ~ 500 MHz, avec une résolution théorique de $\sim 0,2$ MHz. Pour le laser émettant à 455 nm, nous faisons une plage de balayage en fréquence de ~ 200 MHz avec une durée de ~ 1 min et aussi avec une résolution théorique

de $\sim 0,2$ MHz. Pour faire la moyenne des courbes, nous transformons l'échelle du balayage de tension en une échelle en fréquence, (*cf.* sous-section (5.2.5.c)). La figure (5.20) montre la comparaison entre la moyenne des spectres et un spectre unique de RSFM, dans lequel il y a une augmentation du *Signal/Bruit*, mais sans déformation du spectre final.

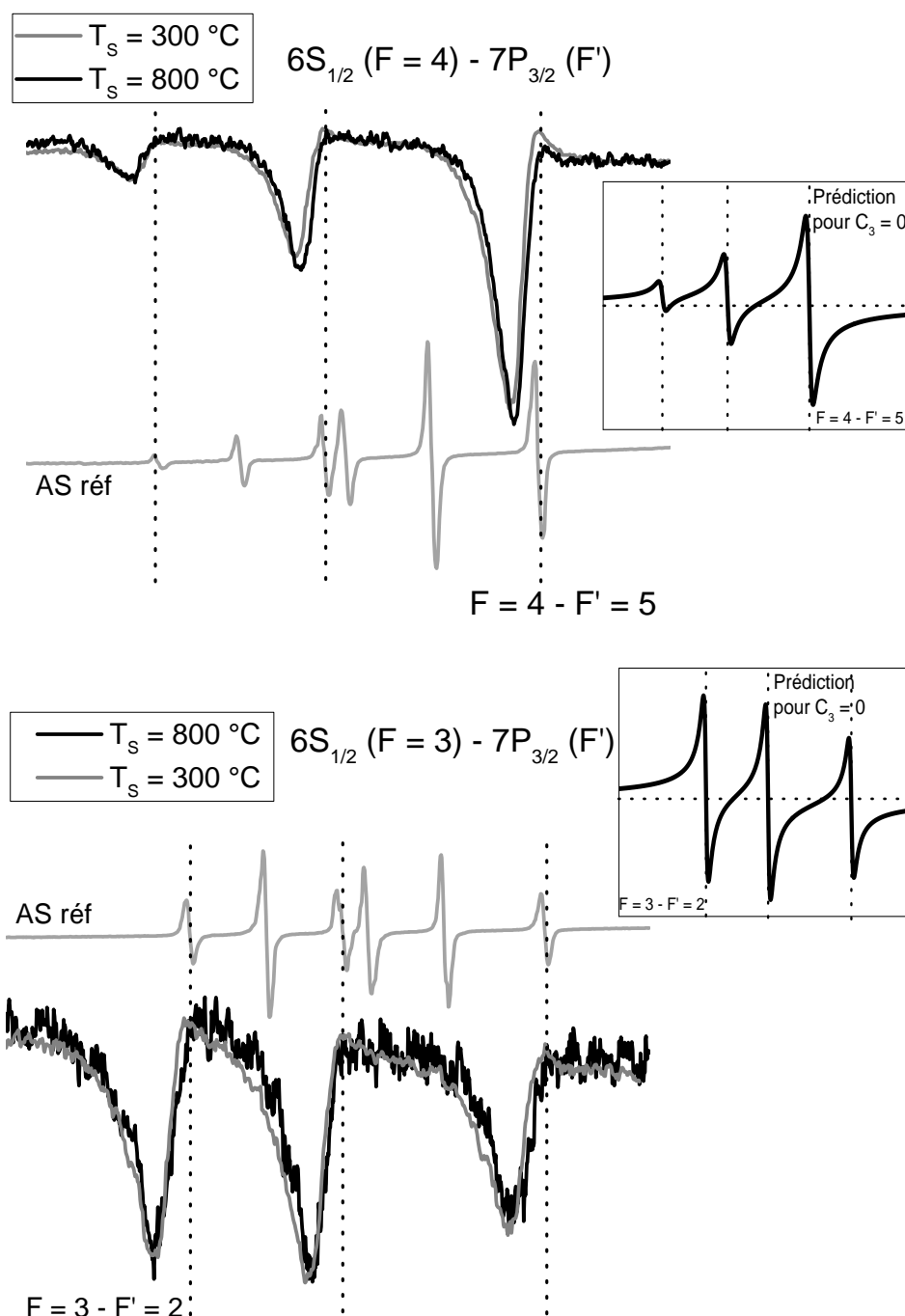


FIGURE 5.19: Idem que la figure (5.18), mais pour la transition $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$ du césium.

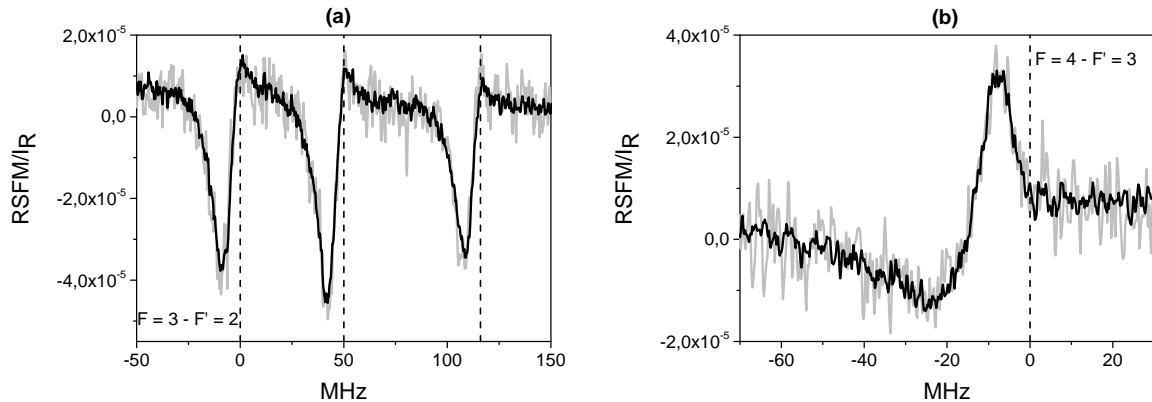


FIGURE 5.20: Le spectre en gris est un spectre unique de RFSM, tandis que le spectre en noir est la moyenne de douze courbes détectées d'affilée. (a) RFSM pour la transition $6S_{1/2} (F = 3) \rightarrow 7P_{3/2} (F')$. (b) RFSM pour la transition $6S_{1/2} (F = 4) \rightarrow 7P_{1/2} (F' = 3)$. L'intensité laser pour l'obtention de ces spectres a été d'environ $0,3 \text{ mW/cm}^2$ dont la puissance est de $\sim 10 \mu\text{W}$. La température, du réservoir et de la surface sont, respectivement, $\sim 150 \text{ }^\circ\text{C}$ ($P \approx 10 \text{ mTorr}$) et $\sim 800 \text{ }^\circ\text{C}$.

Une fois faites les analyses préliminaires sur l'intensité de saturation, les premières études sur la forme de raie de RFSM et la moyenne des spectres, nous passons à la procédure des ajustements théoriques.

5.4 Procédure pour les ajustements théoriques sur les courbes expérimentales de RFSM

Pour avoir accès aux informations sur le déplacement de niveau énergétique et l'éventuel changement de la durée de vie dus à l'interaction de surface, il faut comparer les spectres expérimentaux de réflexion sélective avec des courbes théoriques ajustées numériquement (*cf.* chap. (4)). Pour une courbe théorique sans dimension, associée à un potentiel en z^{-3} défini par un coefficient A complexe (ou réel) $A' = A + iB$ (voir le chapitre (4)), on essaie de trouver une amplitude et une largeur qui simule au mieux le spectre expérimental.

Les premières procédures d'ajustements automatisés ont commencé dans la thèse de N. Papageorgiou [4] (voir aussi [74]). Elles ont été depuis systématisées et améliorées à de nombreuses reprises [14, 26, 33, 47] (NB : seulement le cas de A' réel a été démontré jusqu'ici). Nous faisons ci-dessous une brève description de l'ajustement numérique utilisé dans cette thèse.

Les courbes théoriques sans dimension de RFSM présentées au chapitre (4) sont norma-

lisées sur l'axe des fréquences en $\frac{\omega - \omega_0}{\gamma/2}$. L'amplitude normalisée du signal est déterminée par des paramètres spécifiques du milieu atomique et surface : densité d'atomes proches de la surface, moment dipolaire de la transition, largeur Doppler, indice de réfraction et profondeur de la modulation FM. Les ajustements théoriques des spectres expérimentaux consistent essentiellement en une comparaison des échelles.

Initialement, pour les ajustements théoriques, il faut convertir les points de la courbe théorique, sans dimension, en ceux de la courbe expérimentale. Pour faire cette adaptation, il a fallu faire l'opération suivante :

$$YT(j) = C_1 Y_{A'} \left(\overbrace{C_2 j}^I + \overbrace{C}^{II} \right) + C_4 \quad (5.4)$$

où $Y_{A'}(j)$ est la courbe théorique de RSFM, décrite sur le chapitre (4), pour un paramètre A' donné, à l'échelle théorique. Le j est la distance numérique entre deux points successifs sur l'axe des abscisses et il a des unités de γ . Le C_1 et le C_2 sont les facteurs de “compression” (ou “dilatation”) sur les axes des ordonnées et des abscisses, respectivement. Les paramètres C et C_4 sont les *offsets* respectifs en abscisse (fréquence) et ordonnées (amplitude du signal). En résumé, le terme I prend en compte la dilatation sur l'axe horizontal théorique, alors que le terme II représente le décalage en unités de γ .

Pour le cas de plusieurs sous-niveaux, il nous faut construire une courbe théorique qui prend en compte chaque composante hyperfine. Pour la création de cette courbe théorique, on considère que l'interaction de vdW est la même pour tous les niveaux hyperfins, qu'ils ont le même déplacement et élargissement par collision (voir la section (5.14)) et que les amplitudes relatives sont données par la force d'oscillateur de chaque transition [4]. Tous ces paramètres pourraient être considérés comme libres [26, 4, 47, 14, 33], mais pour une technique linéaire comme la réflexion sélective les rapports entre les amplitudes de composantes hyperfines peuvent être considérés fixes (selon les tableaux (5.2) et (5.3)); les mesures de déplacements et d'élargissement par pression peuvent de plus être considérées comme identiques pour toutes les composantes hyperfines). De façon générale, la courbe théorique d'ajustement, en prenant en compte les structures hyperfines, est écrite comme :

$$YT(j) = \sum_{F'} S_{FF'} YT(j + C_{2,F'}) \quad (5.5)$$

où $YT(j)$ est la courbe calculée à partir de l'équation (5.4) pour une seule transition et pour une valeur de A' donnée, en prenant en compte les écarts $C_{2,F'}$ des niveaux hyperfins d'état excité². Le $S_{FF'}$ correspond à la force d'oscillateur relative à l'amplitude de transition depuis le fondamental F à l'état excité F' .

Une fois que la courbe théorique est construite avec ses paramètres libres (C_1 , C_2 , C_4 et C) pour un A' donné, on utilise la méthode des moindres carrés, dans lequel on cherche à optimiser le carré de la distance, verticalement, entre la courbe théorique et expérimentale.

$$\chi^2 = \sum_j \sqrt{YE(j) - YT(j)} \quad (5.6)$$

Dans le processus de minimisation du χ , on évalue la dérivée de χ par rapport aux paramètres libres. A' est imposé a priori, pour éliminer l'optimisation de ce paramètre dans le moindre carré, puisque, pour chaque valeur de A' , une nouvelle courbe numérique de RSFM doit être calculée. L'optimisation sur A' se fait de façon discrète, en choisissant les valeurs qui donnent l'erreur plus faible, avec les autres paramètres ajustés par la méthode des moindres carrés. La méthode de moindre carré (eq. (5.6)) est appliquée sur la forme du signal, en ordonnées, car on considère que l'axe des abscisses est bien un axe en fréquence.

5.5 Analyse des spectres expérimentaux de réflexion sélective FM pour les transitions $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{1/2}$ et $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$ pour l'obtention du C_3 en fonction de la température

Cette section résume les résultats obtenus à partir des ajustements numériques sur les spectres expérimentaux de réflexion sélective FM pour les transitions $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{1/2}$ et $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$, en considérant A' réel, c'est-à-dire, le seul paramètre A ($A = 2C_3k^3/\gamma$) relatif au déplacement vdW.

2. L'apparente difficulté est que la structure hyperfine est fixe en fréquence, mais "variable" dans l'échelle à ajuster en C_2 . En pratique, à partir d'une valeur d'essai, on arrive facilement à une évaluation satisfaisante pour la largeur γ de la courbe qui donne une conversion précise de la structure hyperfine (fréquence \rightarrow nombre de points) pour arriver au spectre théorique avec multiples composantes hyperfines

5.5.1 Exemples d'ajustements des spectres de RSFM

Les figures (5.21) et (5.22) montrent des ajustements théoriques pour les transitions $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{1/2}$ et $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$ du césium, en pointant les défauts des ajustements.

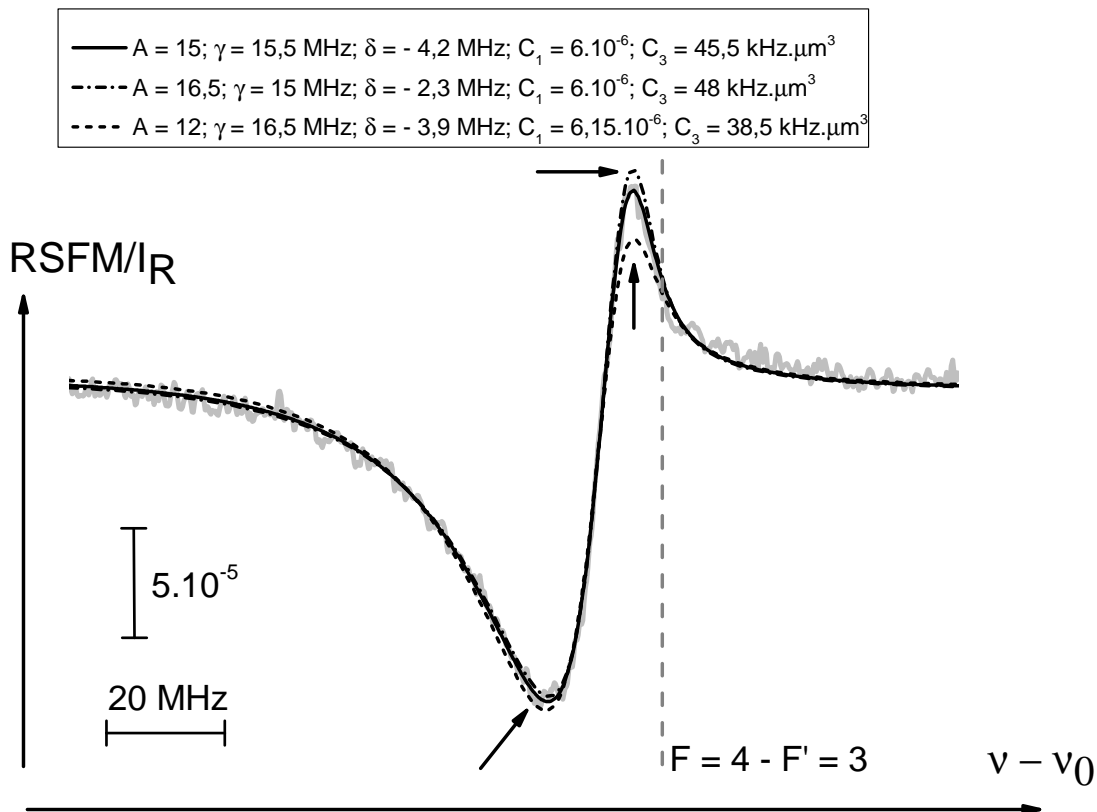


FIGURE 5.21: Spectre expérimental de RSFM, moyenné par dix courbes détectées l'une après l'autre. Les ajustements numériques de la structure hyperfine du niveau Cs ($7P_{1/2}$) ont été faits séparément avec quelques valeurs A . Avec cet ajustement, l'incertitude acceptable est de 5% sur la valeur centrale du choix du paramètre A . Les flèches indiquent où les ajustements, en général, sont considérés comme inacceptables. La température de la surface et la pression dans la cellule sont, $300\text{ }^{\circ}\text{C}$ et $\sim 40\text{ mTorr}$ (soit $T_R = 180\text{ }^{\circ}\text{C}$).

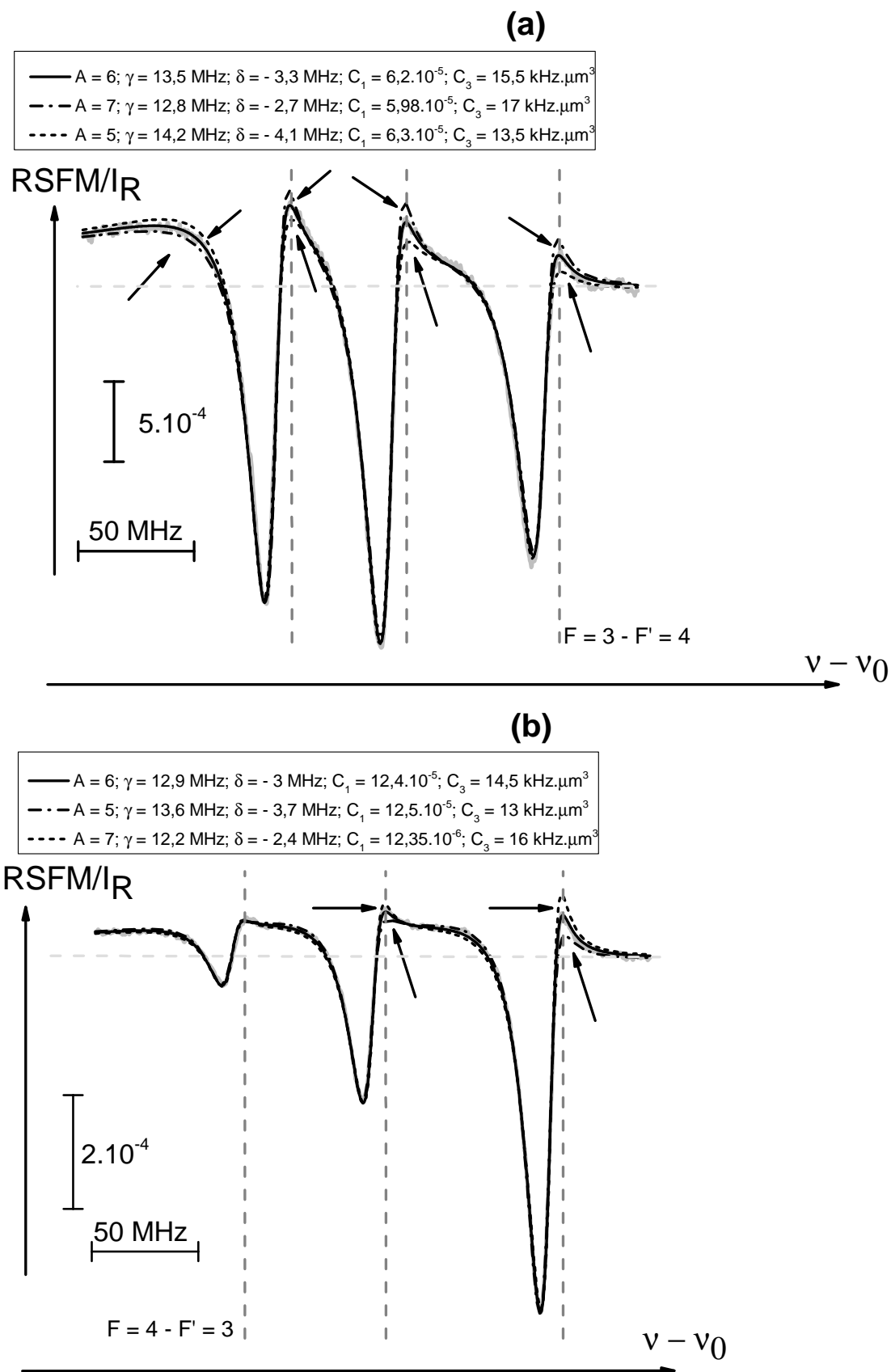


FIGURE 5.22: Idem que figure (5.21), mais pour les transitions (a) $6S_{1/2}(F = 3) \rightarrow 7P_{3/2}(F')$ et (b) $6S_{1/2}(F = 4) \rightarrow 7P_{3/2}(F')$.

En analysant le cas de la transition $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{1/2}$, présentée à la figure (5.21), nous considérons que les courbes $A = 16, 5$ et $A = 12$ ne s'ajustent pas correctement au spectre expérimental. Ainsi, on peut remarquer qu'il y a une valeur "centrale" de A pour ajuster les courbes expérimentales, et que nous pouvons la borner avec une valeur maximale et une valeur minimale [33]. La bibliothèque des courbes théoriques de RSFM en fonction de la valeur de A est discrète, et une diminution (ou augmentation) dans la valeur de A entraîne un changement, en sens opposé, dans la valeur de γ . Comme C_3 est proportionnel au produit $A\gamma$, une modification de la valeur de A conduit à un changement plus faible sur le C_3 . Ainsi, pour les spectres présentés sur la figure (5.21), l'incertitude est de $\sim 5\%$. Par exemple, pour la transition $6S_{1/2} (F = 4) \rightarrow 7P_{1/2} (F' = 3)$, $C_3 = 45,5 \pm 2 \text{ kHz} \cdot \mu\text{m}^3$. Hormis la valeur de la largeur comme paramètre donné d'après le *fit*, il y a aussi le δ et le C_1 . Le δ correspond à un déplacement du spectre par rapport à la référence AS (et peut, en général, correspondre à un déplacement en pression - *cf.* [28]), tandis que le C_1 , qui fournit l'amplitude des spectres de RSFM, est proportionnel à la densité atomique près de la surface (C_1 est en fait proportionnel - *cf.* (4) - à $n \frac{\gamma}{\text{ku}}$). Les études sur le C_1 , jamais entreprises systématiquement auparavant, sont abordées dans la section (5.7), car elles fournissent une contrainte essentielle pour rechercher le Γ_3 .

Pour la transition $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$ (*cf.* fig. (5.22)), les sous-niveaux ne sont que partiellement résolus, surtout, si le sous-niveau de départ est $6S_{1/2} (F = 3)$, puisque les composantes hyperfines sont d'amplitude quasi-identiques et que les ailes se recouvrent. Pour les transitions depuis $6S_{1/2} (F = 4)$, la composante hyperfine $F = 4 \rightarrow F' = 5$ est dominante, et l'analyse des ajustements numériques se fait, principalement, dans la plupart des cas, sur celle-ci. Notons que dans les deux cas, les valeurs de δ et γ , pour une pression de la vapeur de césium de $\sim 40 \text{ mTorr}$, ne correspondent pas aux valeurs prévues d'après les expériences d'AS (*cf.* tableau (5.3)). Nonobstant, le rapport δ/γ reste raisonnable (signe compris). Il est simplement possible que la pression effective de Cs soit plus grande que prévue par la mesure de température du réservoir.

Les discussions détaillées sur les résultats présentés dans ce chapitre de manuscrit de thèse est faite dans partie III.

5.5.2 Coefficient de vdW en fonction de la température de la surface avec analyse des différents sous-niveaux atomiques

Pour étudier la variation du coefficient de vdW avec T , nous avons pris des mesures RSFM à différentes températures de la surface, en maintenant la température du réservoir constante de 180 °C ($P \approx 40$ mTorr). Nous avons aussi fait des séries de mesures aussi à des températures différentes du réservoir (160 °C soit $\sim 15,5$ mTorr et 200 °C soit $\sim 87,5$ mTorr), *cf.* sous-section (5.5.3).

Nous avons, en général, enregistré avant moyennage 10 à 15 spectres pour chaque température. Les figures (5.23), (5.24) (5.25) et (5.26) montrent les spectres de RSFM pour les transitions $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{1/2}$ et $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$, en présentant également les meilleurs ajustements numériques.

Les spectres de RSFM ont aussi été détectés en changeant systématiquement le sous-niveau de départ du fondamental. Aucune différence systématique n'apparaît pas sur la mesure de vdW, mais les diverses mesures, indépendantes, renforcent notre analyse d'incertitude (*cf.* aussi [26, 28, 47]).

Pour le niveau Cs ($7P_{1/2}$), les spectres de RSFM sont ajustés de façon indépendante puisque l'écart hyperfin est de 377 MHz et, les sous-niveaux sont parfaitement résolus. Pour le niveau Cs ($7P_{3/2}$), malgré la différence des analyses des ajustements et leur formes, selon le sous-niveau de départ du fondamental, les coefficients de vdW restent identiques avec une incertitude autour de 5% entre eux.

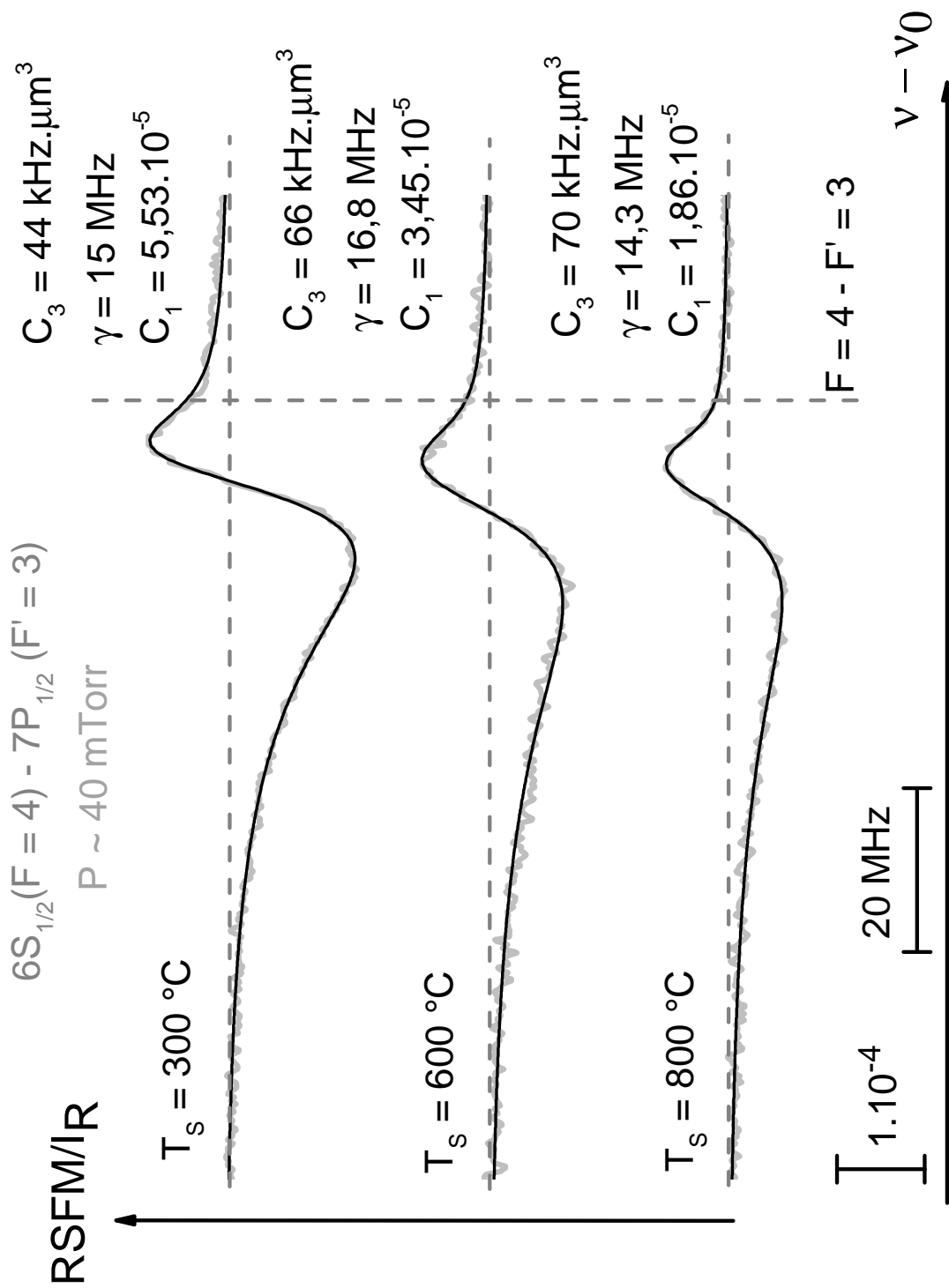


FIGURE 5.23: Spectres expérimentaux de RFSMIR pour la transition $6S_{1/2}(F=4) \rightarrow 7P_{1/2}(F'=3)$ détectés pour plusieurs températures de la surface et en maintenant la pression dans cellule constante à une valeur de ~ 40 mTorr (soit $T_R = 180\text{ }^\circ\text{C}$). La ligne horizontale indique le zéro de l'axe des ordonnées de chaque spectre et la ligne verticale est le marqueur de la fréquence obtenu à l'aide du spectre de l'absorption saturée de référence. Seuls les meilleurs ajustements sont montrés, mais une différence de $\sim 10\%$ sur le C_3 est acceptable.

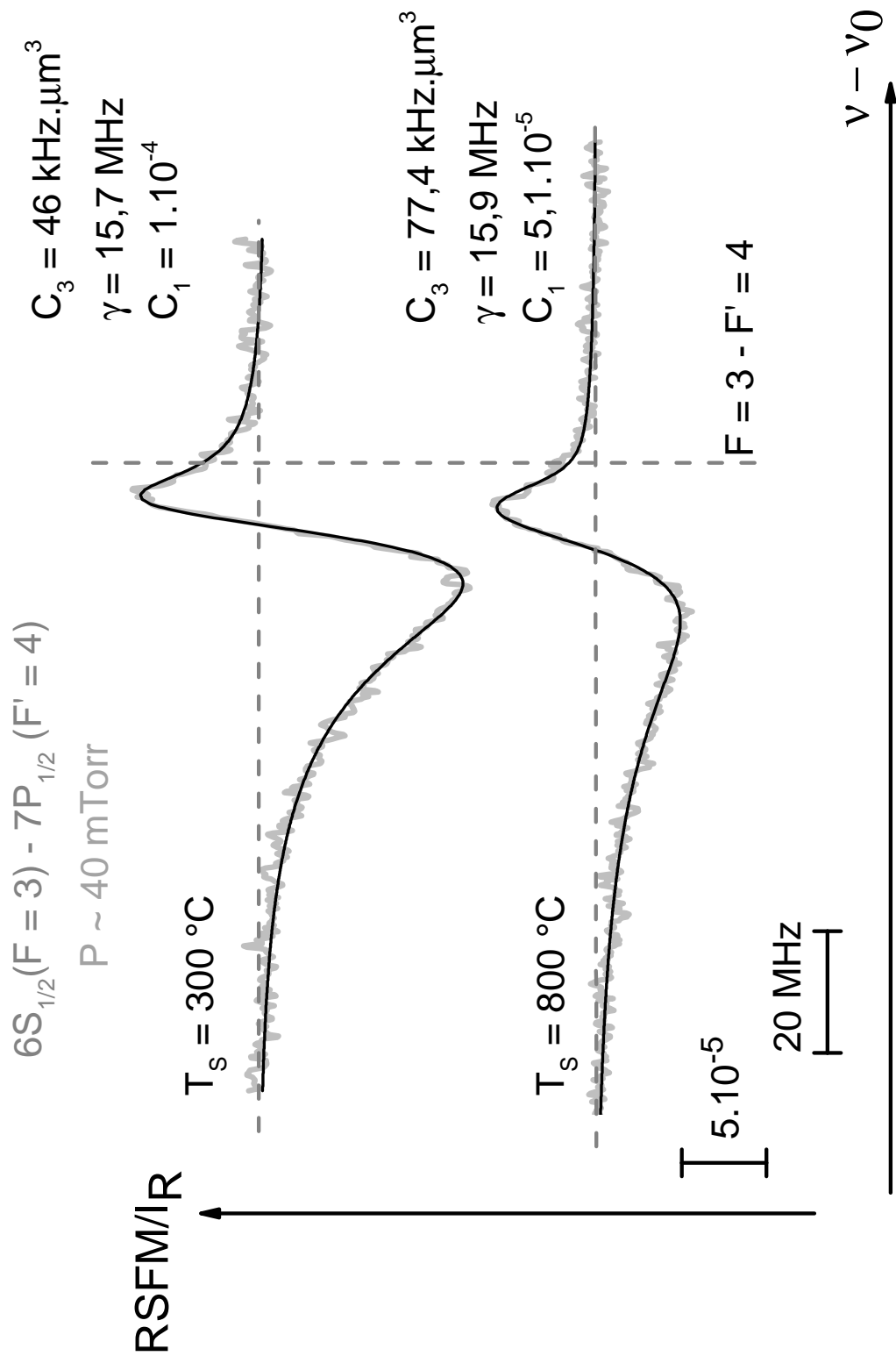


FIGURE 5.24: Idem que la figure (5.23), mais pour $6S_{1/2}(F=4) \rightarrow 7P_{1/2}(F'=3)$.

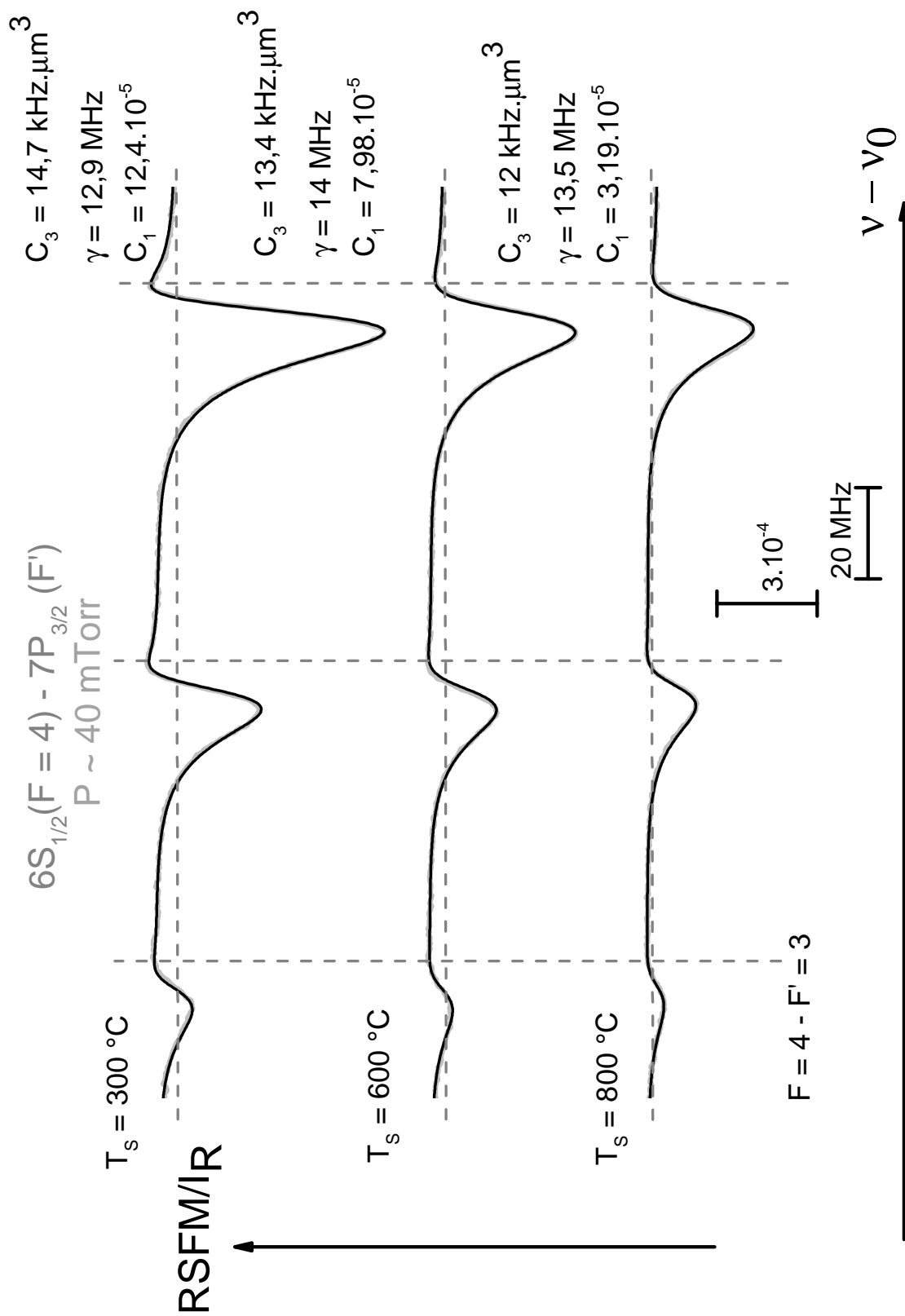


FIGURE 5.25: Idem que la figure (5.23), mais pour la transition $6S_{1/2}(F=4) \rightarrow 7P_{3/2}(F')$.

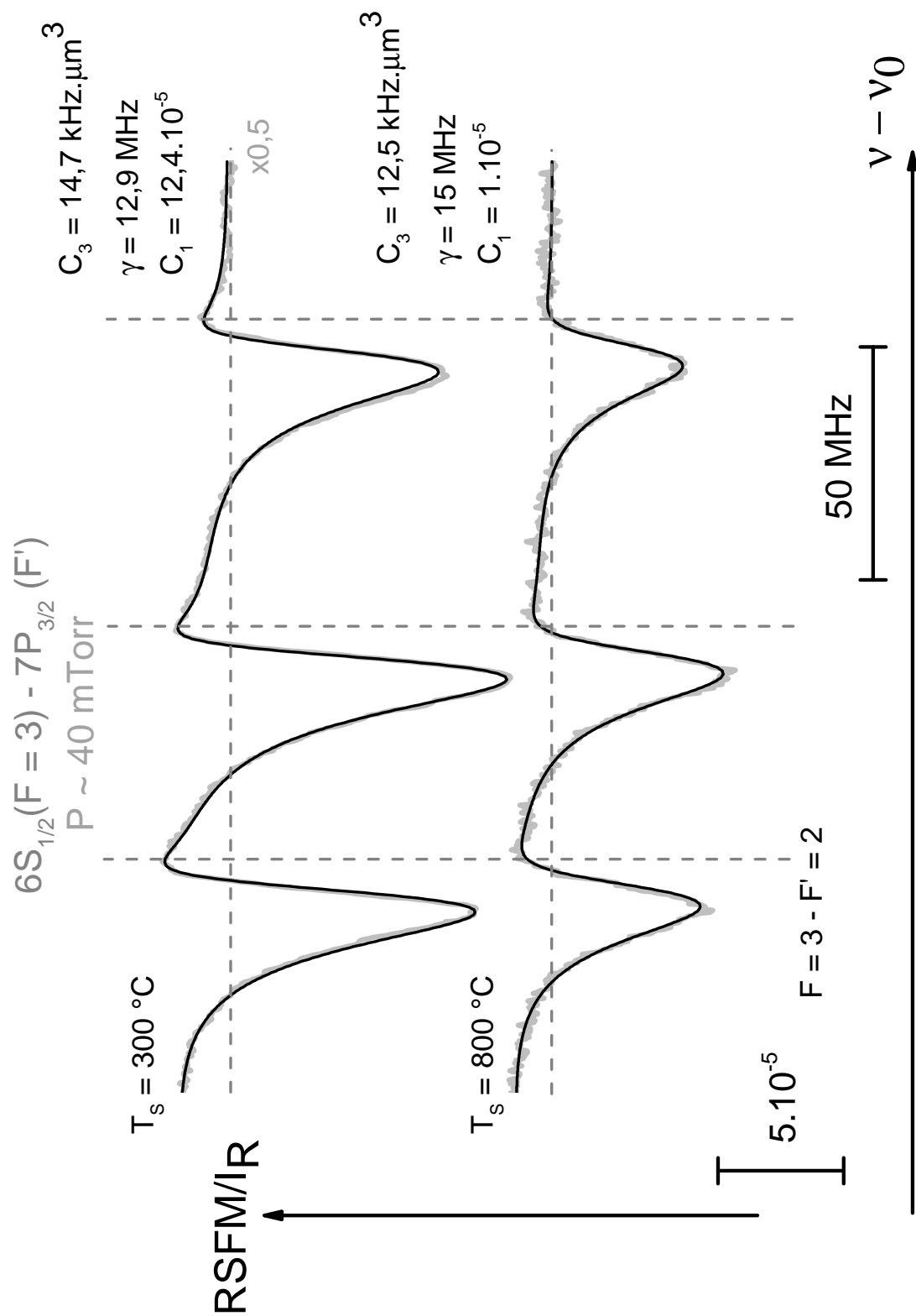


FIGURE 5.26: cf. la figure (5.25), mais pour la transition $6S_{1/2}(F=3) \rightarrow 7P_{3/2}(F')$.

La qualité des ajustements est comparable pour toutes les transitions hyperfines et aussi bien vers Cs ($7P_{1/2}$), que vers Cs ($7P_{3/2}$). On trouve de plus un très bon accord des valeurs du paramètre A et de la largeur, lorsque l'on compare individuellement les composantes hyperfines d'une même transition. Cette cohérence entre les valeurs confirme que les valeurs obtenues sont tout à fait significatives.

Les résultats du coefficient de vdW en fonction de la température, y compris les différentes structures hyperfines, des analyses proposées dans cette section, sont montrés sur la figure (5.27). On voit que les coefficients de vdW n'ont pas de différence significative associées aux différentes composantes hyperfines. Surtout, on remarque clairement une augmentation très significative du C_3 en fonction de la température pour la transition $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{1/2}$, compte tenu des incertitudes de nos mesures. Tandis que, pour la transition $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$, on observe une légère descente.

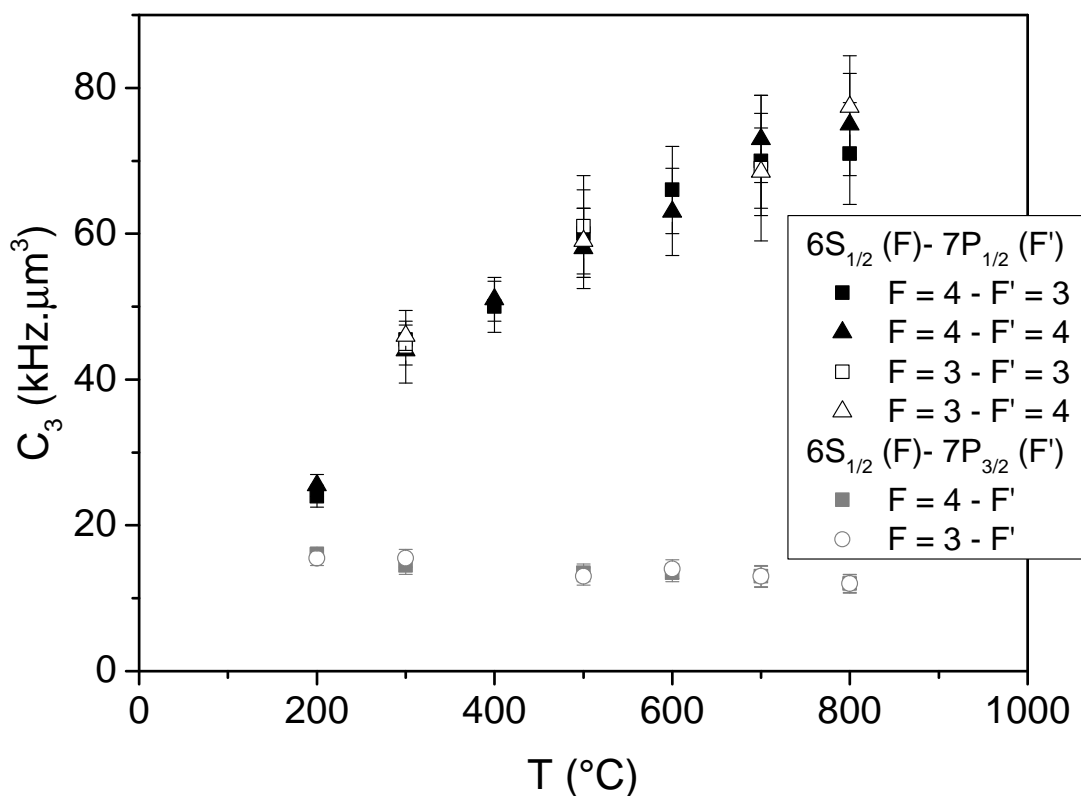


FIGURE 5.27: Coefficient de van der Waals en fonction de la température de la surface d'après les ajustements numériques pour les différentes composantes hyperfines d'état excité des spectres expérimentaux de RSFM pour les transition $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{1/2}$ et $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$. Pour ces points, la pression de la vapeur atomique a été maintenue constante à ~ 40 mTorr.

5.5.3 Consistance des mesures de RSFM à partir des études en fonction de pression de la vapeur atomique

Pour confirmer la consistance de nos mesures du coefficient de vdW pour les transitions $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{1/2}$ et $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$ du césium, nous avons effectué des mesures en maintenant la température de la surface constante et, en modifiant seulement la pression de la vapeur atomique, contrôlée par la température du réservoir.

Les figures (5.28) à (5.31) montrent les spectres expérimentaux (et les ajustements) détectés pour différentes pressions de la vapeur atomique, et deux températures distinctes de la surface. Nous voyons d'abord que la largeur des spectres augmentent avec la pression de la vapeur atomique et malgré la modification de forme de raie, et de γ , C_3 reste inchangé, alors que la forme de raie (en A) a beaucoup évolué. De plus, les déplacements δ (associés à la pression) augmentent en valeur absolue (indépendamment de la température de la surface). Les valeurs de γ et de δ comparées pour les différentes composantes d'une des deux transitions d'un même état sont de plus compatibles avec les résultats de la section (5.2.6). Notre analyse donnant les valeurs de C_3 est donc confortée par cette indépendance par rapport aux effets de collisions, qui sont des effets de volume. En faisant une étude minutieuse sur les paramètres γ et δ , issus de nos ajustements théoriques sur les courbes de RSFM, nous pouvons noter que le déplacement et l'élargissement par pression des transition atomiques sont, approximativement, deux fois plus grands comparés que ceux donnés par les tableaux (5.2) et (5.3). Cet effet peut être expliqué par le fait que le raccordement de la température du réservoir à une pression de la vapeur atomique n'est pas correct, probablement, sur la cellule avec la surface de saphir super polie, vu que les mesures de γ/P et δ/P , *cf.* étudiées sur la sous-section (5.2.6), sont en bon accord avec des résultats antérieurs à cette thèse [28]. Par ailleurs, nous n'avons pas pris en compte les éventuelles incertitudes sur la pression de Cs. Dans la région de la pression de la vapeur où les spectres de RSFM ont été détectés, un écart de ~ 10 °C entre la température du réservoir et celle réelle peut donner lieu à une différence de ~ 10 mTorr pour $T_R = 160$ °C et ~ 40 mTorr pour $T_R = 200$ °C.

Finalement, la figure (5.32) montre que le coefficient de van der Waals est indépendant de la pression de la vapeur. C'est donc la preuve que l'on mesure avec Cs l'interaction atome-surface.

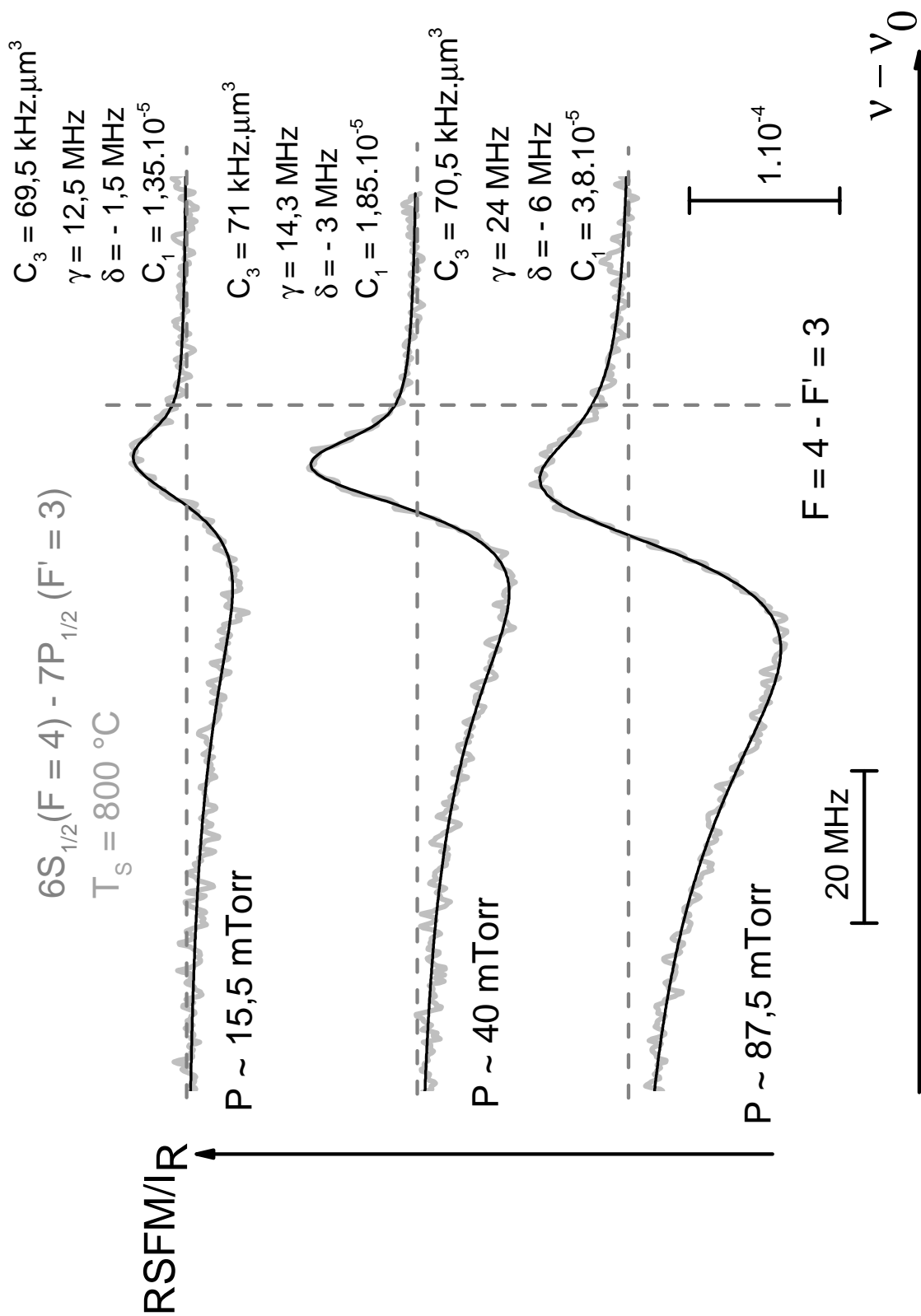


FIGURE 5.28: Mesures expérimentales et ajustements avec des courbes théoriques de RFSM pour la transition $6S_{1/2} (F=4) \rightarrow 7P_{1/2} (F'=3)$ en modifiant seulement la température du réservoir de Cs. La température de la surface a été maintenue constante à $800 \text{ }^\circ\text{C}$.

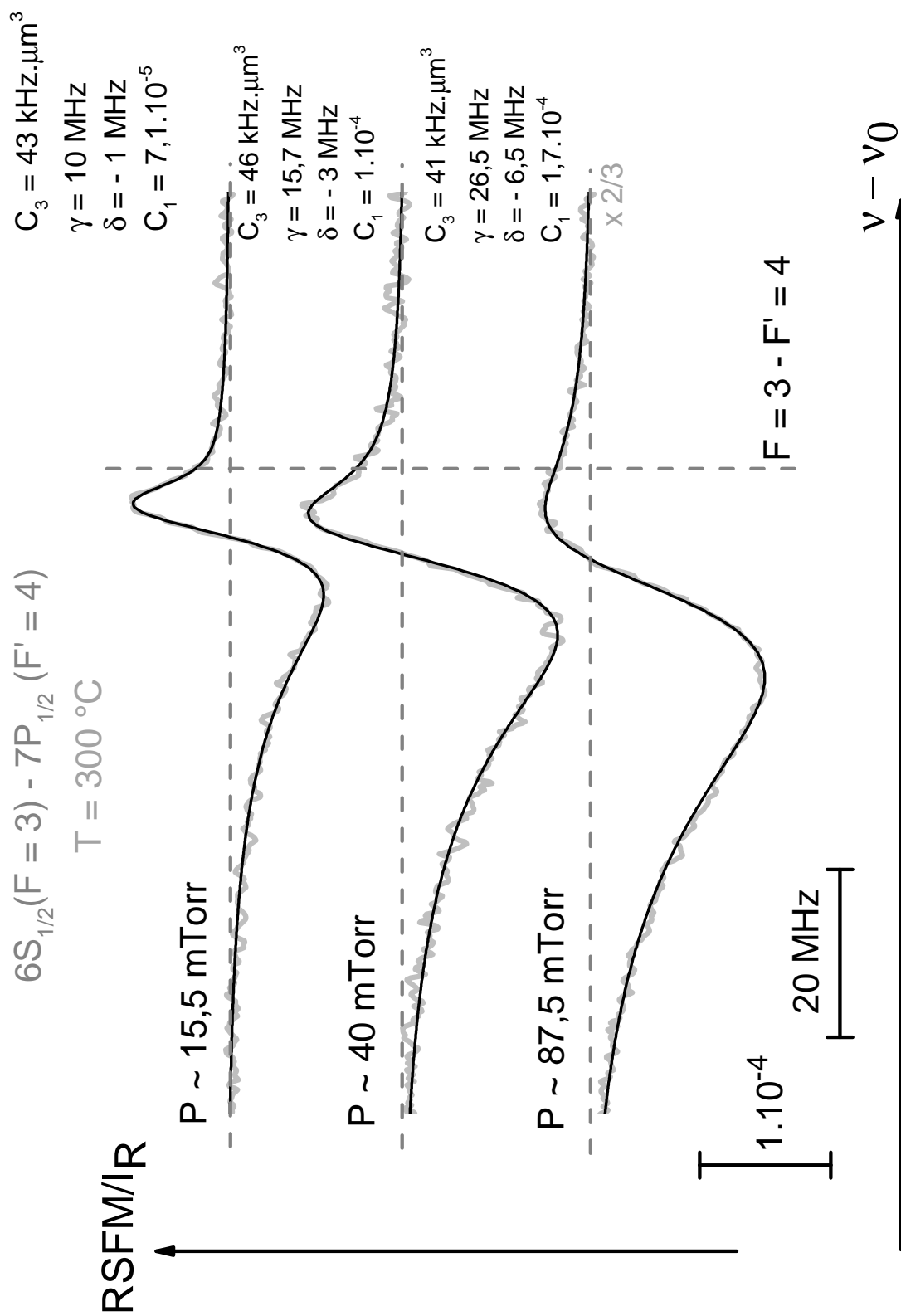


FIGURE 5.29: Idem que figure (5.28), mais pour la transition $6S_{1/2}(F=3) \rightarrow 7P_{1/2}(F'=4)$, et pour une température de la surface maintenue constante à $300\text{ }^{\circ}\text{C}$.

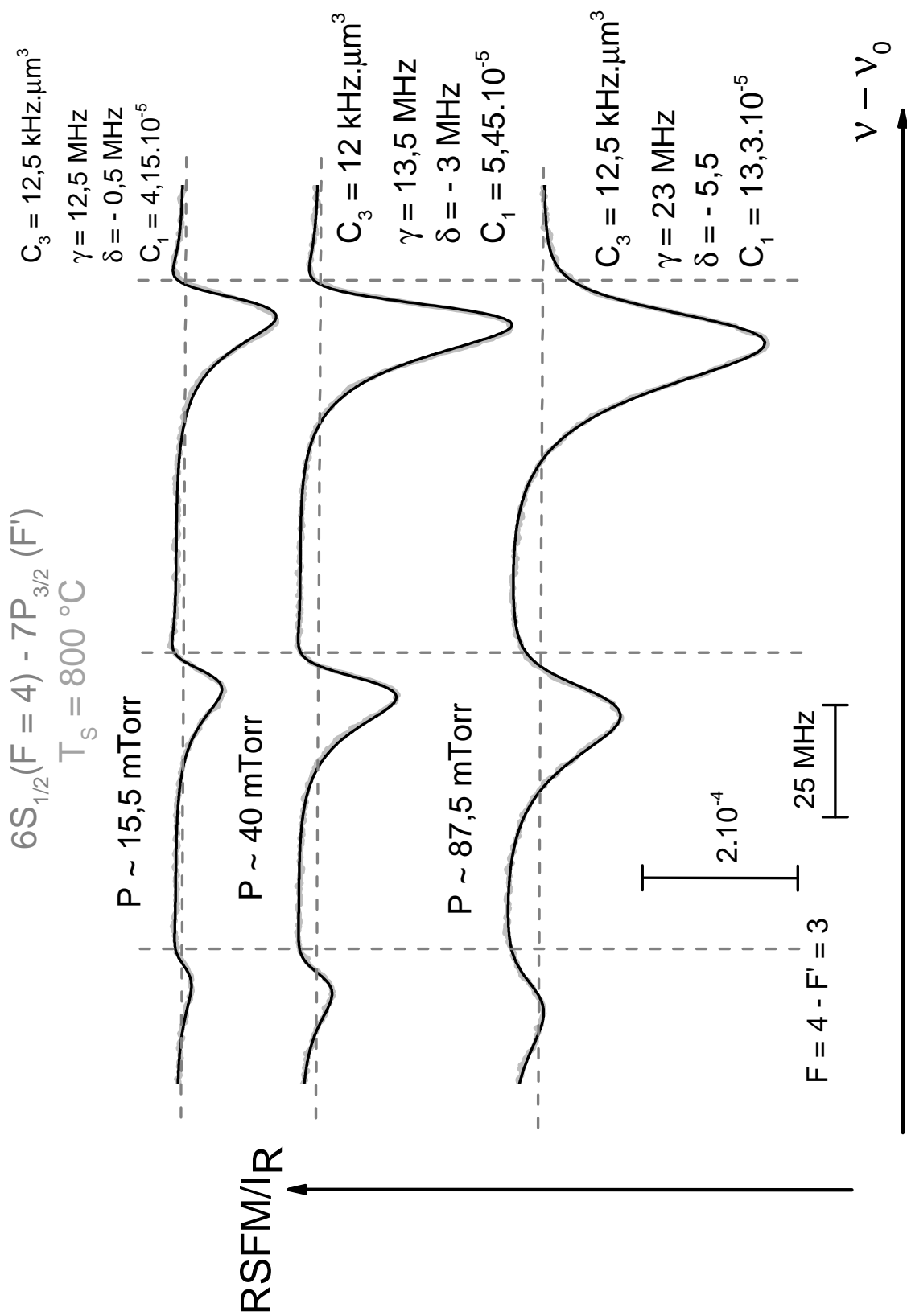


FIGURE 5.30: Idem que fig. (5.28), mais pour la transition $6S_{1/2}(F=4) \rightarrow 7P_{3/2}(F')$.

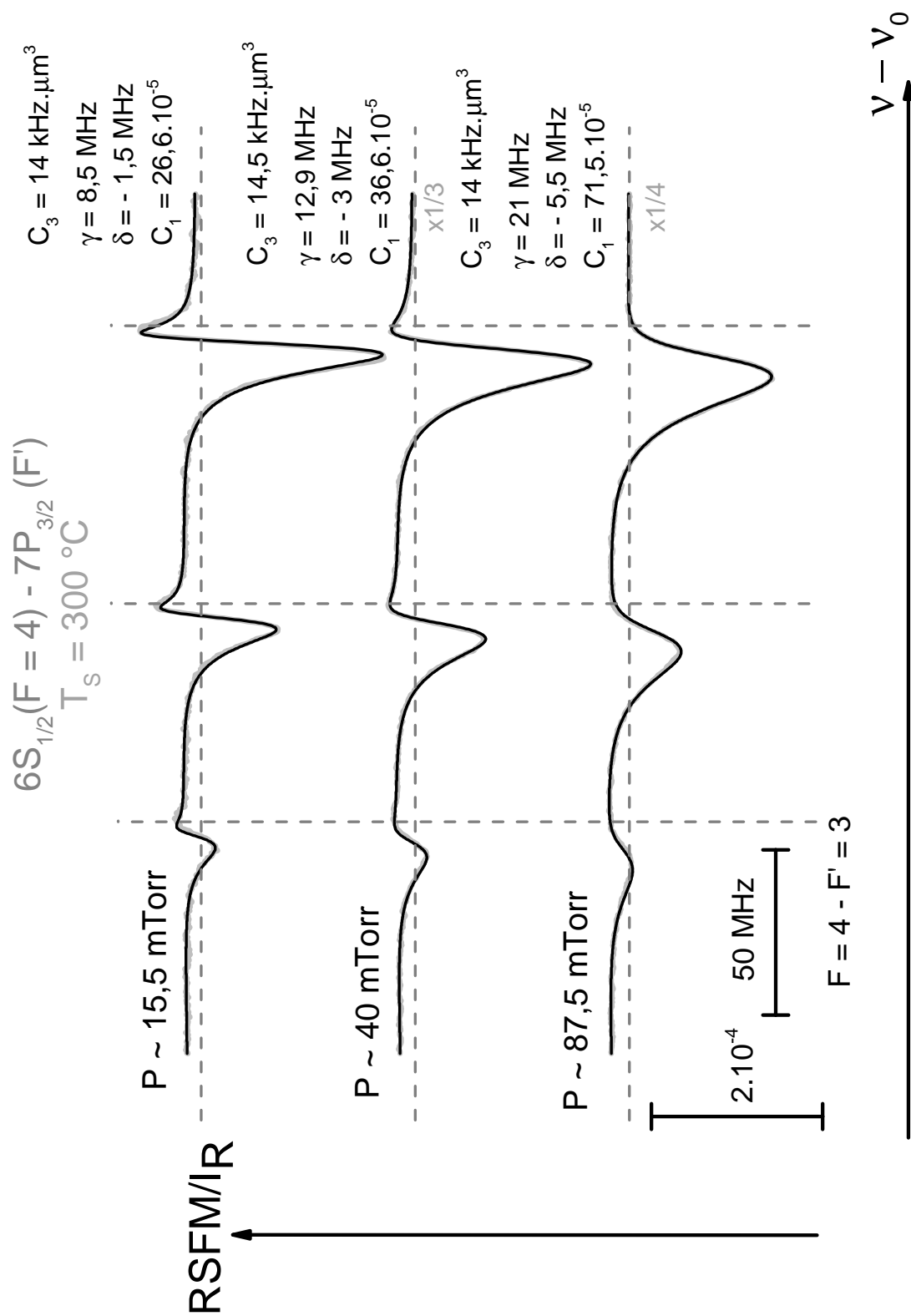


FIGURE 5.31: Idem que fig. (5.29), mais ici pour la transition $6S_{1/2}(F=3) \rightarrow 7P_{3/2}(F')$.

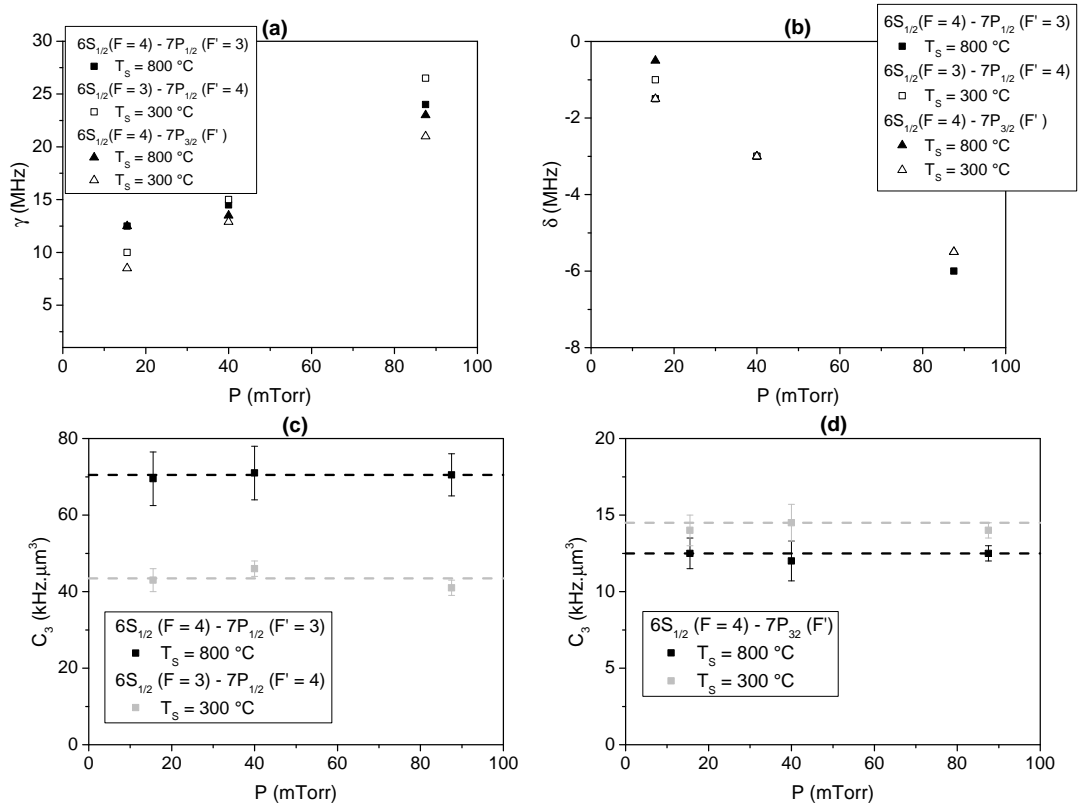


FIGURE 5.32: Valeurs de γ , de δ et de C_3 déduites des ajustements théoriques effectués des spectres expérimentaux tels que ceux des figures (5.28) - (5.31), en fonction de la pression de la vapeur atomique. (a) Largeur, (b) déplacement, (c) et (d) coefficient de vdW pour les températures de la surface de 300°C et 800°C .

5.5.4 Analyse du rapport des amplitudes entre les spectres de RSFM des transitions $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{1/2}$ et $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$

Un autre paramètre de consistance est l'analyse du rapport des amplitudes entre les spectres de RSFM des différents niveaux atomiques pour une température de la surface et une pression de la vapeur atomique données. Il s'agit ici de composantes de structure fine, dont les comportements vdW sont très différents. Cette analyse d'amplitude n'avait été effectuée que de façon rudimentaire dans [28] entre composantes de structure hyperfine. Elle est ici particulièrement importante ici puisqu'elle concerne deux raies différentes, qui ont été sondées de façon quasi-simultanée. Ainsi, indépendamment de la mesure de température de la cellule, le rapport entre les amplitudes des spectres expérimentaux de RSFM de ces deux différentes transitions peut être comparé. Notons ici que ce rapport des amplitudes peut être déterminé parce que les transitions partent directement de l'état fondamental, où la population a une distribution en vitesses a priori connue (à la différence

des expériences [15, 27] nécessitent une étape pompage optique).

Cette analyse du rapport des amplitudes est très importante pour les effets de changement de la durée de vie de l'état atomique par l'émission thermique de surface (*cf.* sous-section (5.7)).

À partir de l'équation (4.19), et en prenant en compte la modulation faite sur les lasers, la formule (5.7) évalue ce rapport d'amplitude entre les spectres de RSFM.

$$\frac{C_{1,459}\gamma_{459}M_{459}^{-1}\lambda_{459}\mu_{459}^{-2}}{C_{1,455}\gamma_{455}M_{455}^{-1}\lambda_{455}\mu_{455}^{-2}} = \frac{N_{459}}{N_{455}} \quad (5.7)$$

où C_1 est le paramètre d'amplitude des ajustements numériques qui est normalisé par $\gamma/2ku$, γ est la largeur du spectre et ku la largeur Doppler (d'où des modifications à attendre si on compare des températures de la surface différentes), M est l'excursion de la modulation appliqué aux lasers ($M_{455} \approx 2,5$ MHz et $M_{459} \approx 3,5$ MHz) et μ est le moment dipolaire de la transition considérée. Les valeurs du moment dipolaire sont [75] : $\mu = 0,578a_0$ pour la transition $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$ et $\mu = 0,2789a_0$ pour $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{1/2}$, où a_0 est le rayon de Bohr. Enfin, N_{455} et N_{459} est le nombre d'atomes près de la paroi déduit des mesures sur les respectives transitions atomiques. À partir des données des spectres expérimentaux ajustés théoriquement présentés sur les figures (5.28), (5.29), (5.30) et (5.31), nous obtenons un rapport, sensiblement, égal à 1, (*cf.* fig. (5.33)). Ceci justifie les *fits* effectués en prenant en compte seulement une interaction vdW, mais s'avère problématique pour un effet sur la durée de vie.

L'incertitude des points présentés à la figure (5.33) a été obtenue d'après les résultats des comparaisons des différents composantes hyperfines, et des différentes températures du réservoir pour une température de la surface identique.

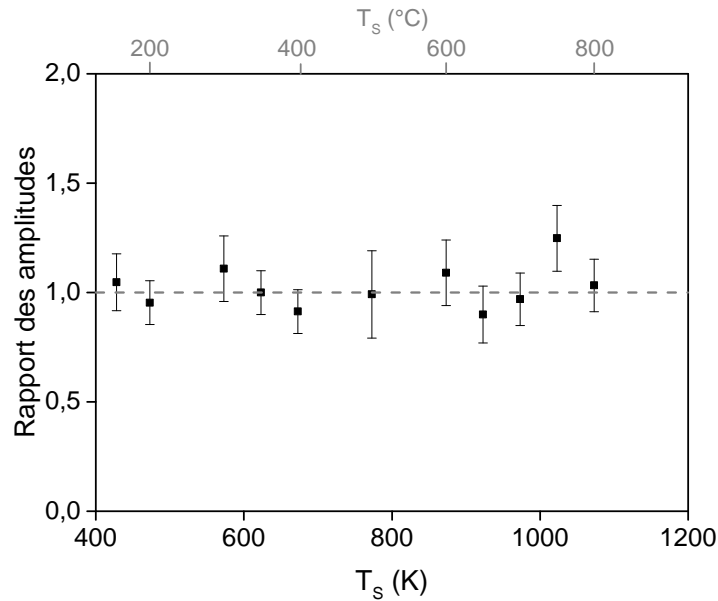


FIGURE 5.33: Rapport des amplitudes, évalué d'après l'équation (5.7), entre les spectres expérimentaux pour les transitions $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{1/2}$ et $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$. La barre d'erreur a été obtenue de la même façon que pour le coefficient de vdW (*cf.* fig. (5.35)).

5.5.5 Spectres de RSFM obtenus en différents points de la surface de saphir super polie

Nous avons aussi fait des mesures en changeant les points d'incidence sur la surface de saphir. Ceci est important pour la validité de nos résultats, relatifs au coefficient de vdW, parce que les variations dans la rugosité de la surface ou, par exemple, la présence d'ions, pourraient influencer considérablement les mesures de l'interaction vdW [76, 77]. La figure (5.34) montre qu'il n'y a aucun changement significatif entre les spectres de RSFM détectés sur plusieurs points d'incidence laser sur la surface, soit en forme, soit en paramètres des ajustements numériques. Ces vérifications ont aussi été faites aussi pour plusieurs températures de la surface (200 °C, 650 °C et 800 °C).

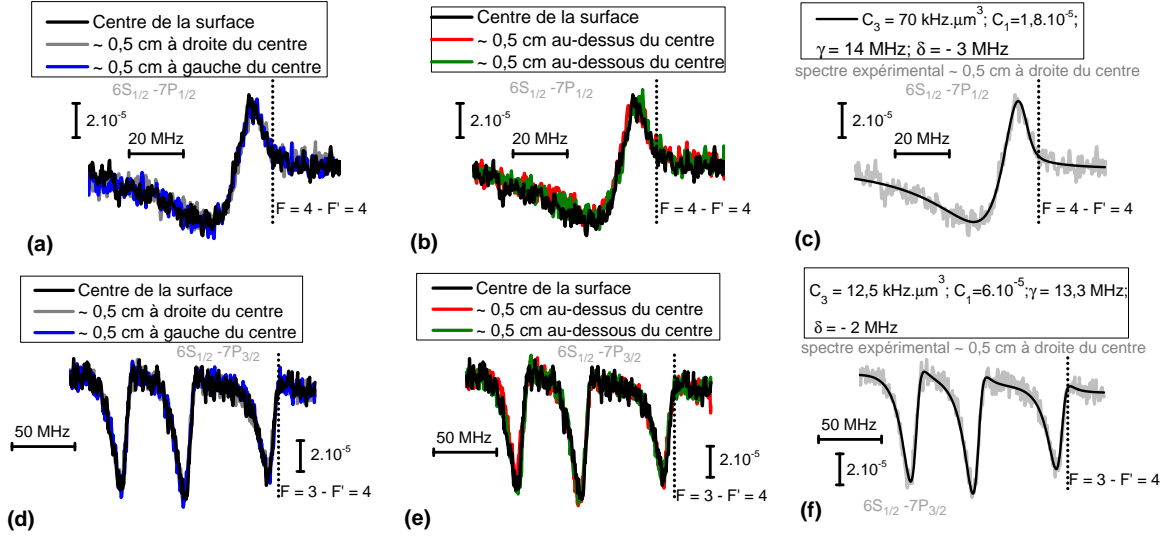


FIGURE 5.34: Spectres de RFSM pour plusieurs points d'incidence laser sur la surface de saphir super polie. (a) - (c) transition $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{1/2}$. (d) - (f) RFSM pour la transition $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$. (a) et (d) sont des spectres expérimentaux détectés en déplaçant les faisceaux lasers d'incidence horizontalement. (b) et (e) le déplacement des faisceaux lasers est verticale. (c) et (f) présentent les ajustements numériques qui représente les meilleurs spectres expérimentaux. Pour ces spectres, $T_S = 800 \text{ }^\circ\text{C}$ et $P \approx 40 \text{ mTorr}$.

5.6 Résumé des résultats de RFSM pour le C_3

Nous présentons à la figure (5.35), le coefficient de vdW, en fonction de la température de la surface, mais, dans ce cas, en prenant en compte les analyses faites sur la sous-section précédente et celles sur la sous-section (5.5.2), pour l'obtention de la barre d'erreur. Cette figure synthétise le résultat le plus important de cette thèse, où est mis en évidence le comportement très différent du coefficient de vdW, en fonction de la température, pour les transitions $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{1/2}$ et $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$. Par comparaison, le $C_3(7P_{3/2})$ mesuré par M. Chevrollier *et al* [3] avait été de $\sim 20 \text{ kHz} \cdot \mu\text{m}^3$ à $T_S \approx 200 \text{ }^\circ\text{C}$, qui est une mesure assez en accord avec celles réalisées ici (*cf.* fig. (5.35)).

Les *fits* des spectres de RFSM, présentés ici, ne prennent en compte que l'interaction vdW $A' = A + iB$ avec $B = 0$. Pourtant, ils décrivent bien la forme des spectres expérimentaux, y compris le rapport d'amplitude (*cf.* sous-section (5.5.4)). Ceci peut surprendre surtout pour le niveau Cs ($7P_{1/2}$), parce que un effet $B \neq 0$ devrait apparaître pour les grandes valeurs de T_S (*cf.* fig. (3.13), dans lequel $\Gamma_3 \propto B$).

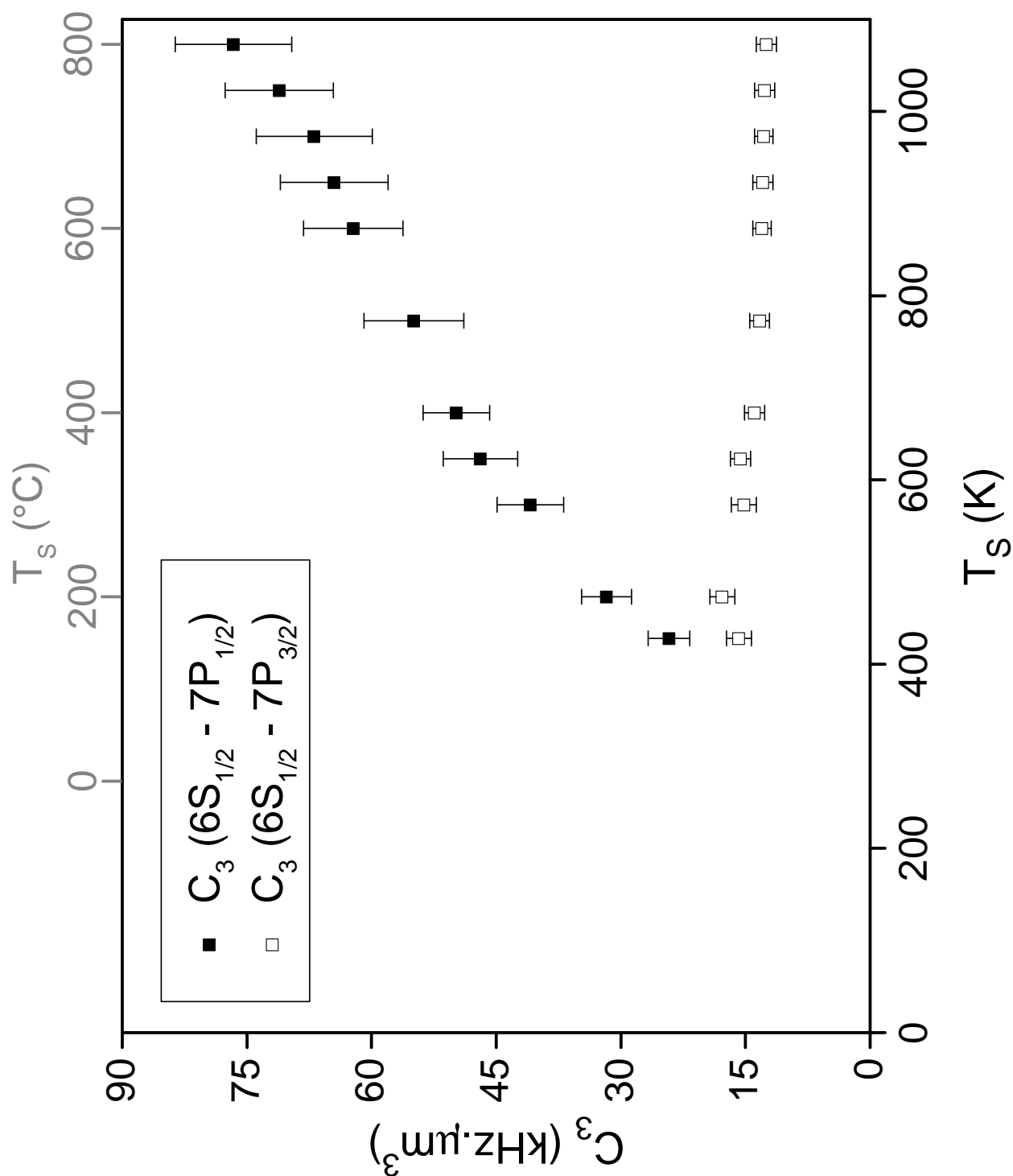


FIGURE 5.35: Coefficient de vdW pour les transitions $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{1/2}$ et $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$ du césium en fonction de la température de la surface. Les barres d'erreur ont été construites en prenant en compte les données de C_3 en fonction de la pression de la vapeur atomique ainsi que les différents sous-niveaux atomiques, soit de départ d'état fondamental, soit d'état excité.

5.7 Ajustements théoriques sur les spectres expérimentaux de RSFM avec le paramètre B

La problématique de cette section est d'étudier si, avec les spectres de RSFM, nous pouvons observer dans les ajustements numériques des effets associés au paramètre $B = \frac{k^3 \Gamma_3}{\gamma}$ (où k est le vecteur d'onde) relatif au changement de la durée de vie d'un état atomique induit par excitation du niveau atomique avec absorption d'un polariton émis thermiquement. Cet effet est attendu pour le niveau Cs ($7P_{1/2}$) parce qu'il a un couplage dipolaire en absorption vers le niveau Cs ($6D_{3/2}$) à une énergie équivalente de $\lambda = 12, 15 \mu\text{m}$, qui est en quasi-coïncidence avec le mode de polariton de la surface de saphir, dans lequel $B \propto \text{Im} \left[\frac{\varepsilon(\omega) - 1}{\varepsilon(\omega) + 1} \right] > 0$. Au contraire, le niveau Cs ($7P_{3/2}$), avec son couplage principal à $14, 6 \mu\text{m}$ vers le niveau Cs ($6D_{5/2}$), se situe dans l'aile du mode de polariton de surface de saphir, et conséquemment, $\text{Im} \left[\frac{\varepsilon(\omega) - 1}{\varepsilon(\omega) + 1} \right] \approx 0$ (*cf.* fig.(3.6)). Le niveau Cs ($7P_{3/2}$) ne doit donc pas subir de transfert réel d'énergie avec le champ électromagnétique de la surface de saphir, et est une référence sur l'amplitude des spectres de RSFM détectés pour le niveau Cs ($7P_{1/2}$), où l'étude de l'amplitude devient très importante (*cf.* fig.(5.33)).

D'après l'important résultat sur le rapport des amplitudes exposé à la figure (5.33), on peut faire un *fit* sur les courbes expérimentaux avec le seul paramètre A . Le paramètre B , lorsque $A > 0$, change essentiellement l'amplitude des courbes théoriques et la forme reste approximativement identique (*cf.* fig. (4.6)). Donc, on veut savoir quelle valeur de B est acceptable pour faire les *fit* sur les spectres de RSFM de la transition $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{1/2}$, sachant que le rapport des amplitudes doit être toujours respecté. Rappelons que, antérieurement à cette thèse, des résultats de RSFM pour le niveau Cs ($6D_{3/2}$), où le principal couplage dipolaire est en émission vers le niveau Cs ($7P_{1/2}$), interagissant avec une surface de saphir avaient été obtenus [47] avec $C_3 < 0$. Les spectres n'étaient ajustés numériquement que avec $A (< 0)$, et il avait été conclu que le paramètre B modifiait peu les formes de raie (mais sans analyse d'amplitude) [47]. Cependant, un transfert d'énergie induit par la surface depuis le niveau Cs ($6D_{3/2}$) avait été observé par une technique dédiée (sondant la population de l'état final) [16].

Ici, pour que le paramètre B soit non-négligeable, il faut peupler thermiquement le polariton de la surface de saphir, puisque le couplage dipolaire d'intérêt est en absorption, et $B \propto n(\omega_{ab}, T)$, où $n(\omega_{ab}, T)$ est le nombre moyen d'occupation de photon de fréquence

ω_{ab} à une température T .

La figure (5.36) montre un spectre expérimental de RSFM, à haute température ($T_S = 800$ °C), ajusté numériquement par des courbes théoriques de RSFM avec un coefficient en z^{-3} complexe $A' = A + iB$. Cette figure montre un résultat intéressant, qui confirme que le rapport des amplitudes des deux transitions étudiées dans ce chapitre de thèse est primordial lorsque l'on cherche à quantifier le transfert réel induit par le couplage dipolaire atomique résonnant avec le mode de polariton de la surface. En effet, sauf pour $B > 16$ on trouve diverses valeurs de $A' = A + iB$ qui paraissent faire des *fits* très satisfaisants, presque sans modifier γ , δ ou C_3 . Néanmoins, pour que la courbe avec $B > 0$ soit consistante pour le rapport des amplitudes (coefficient d'amplitude C_1 , cf. fig. (5.33)), il faut $B/A \ll 1$ (ou tout simplement $B = 0$).

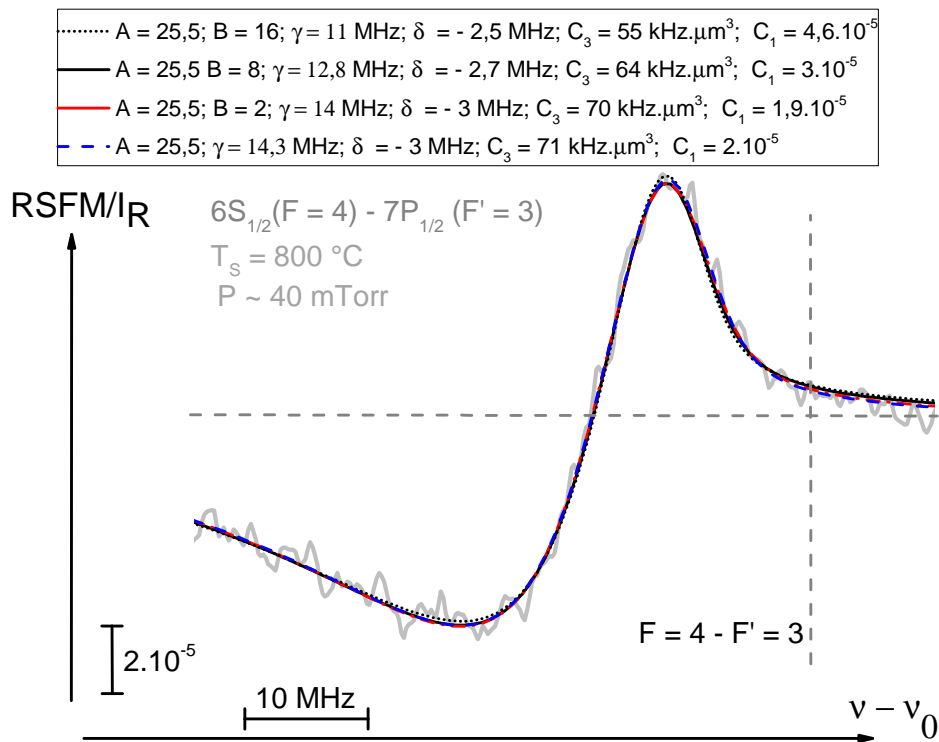


FIGURE 5.36: Exemple d'ajustement d'un spectre expérimental de RSFM avec des courbes avec $A' = A + iB$. La courbe ajustée est celle qui correspond à la figure (5.28) à une pression de Cs de 40 mTorr et température de la surface de 800 °C. L'ajustement théorique par une courbe seulement avec le paramètre A est aussi indiqué.

Nous pouvons aussi chercher si l'introduction de B améliore l'ajustement pour une courbe expérimentale qui ne peut être bien être bien ajustée si on prend une interaction avec $B = 0$ (cf. fig. (5.36)). En introduisant le paramètre B , les courbes expérimentales retrouvent un bon ajustement théorique, si on choisit un paramètre A pour la courbe

théorique ($A + iB$) plus petit que celui de la courbe équivalent avec $B = 0$ (cf. (5.37)). À la figure (5.37), le spectre expérimental - identique à fig. (5.36), qui était ajusté avec $A = 25,5$ - est ajusté ici avec $A = 20$: la présence du facteur B permet de l'ajuster de façon acceptable. Cependant, la valeur de l'amplitude ($C_1\gamma$) tend à augmenter encore plus, et la courbe théorique $A + iB$ n'est plus compatible avec le rapport des amplitudes. De plus, les valeurs de γ et de δ commencent à ne pas être acceptables (cf. sous-section (5.2.6)).

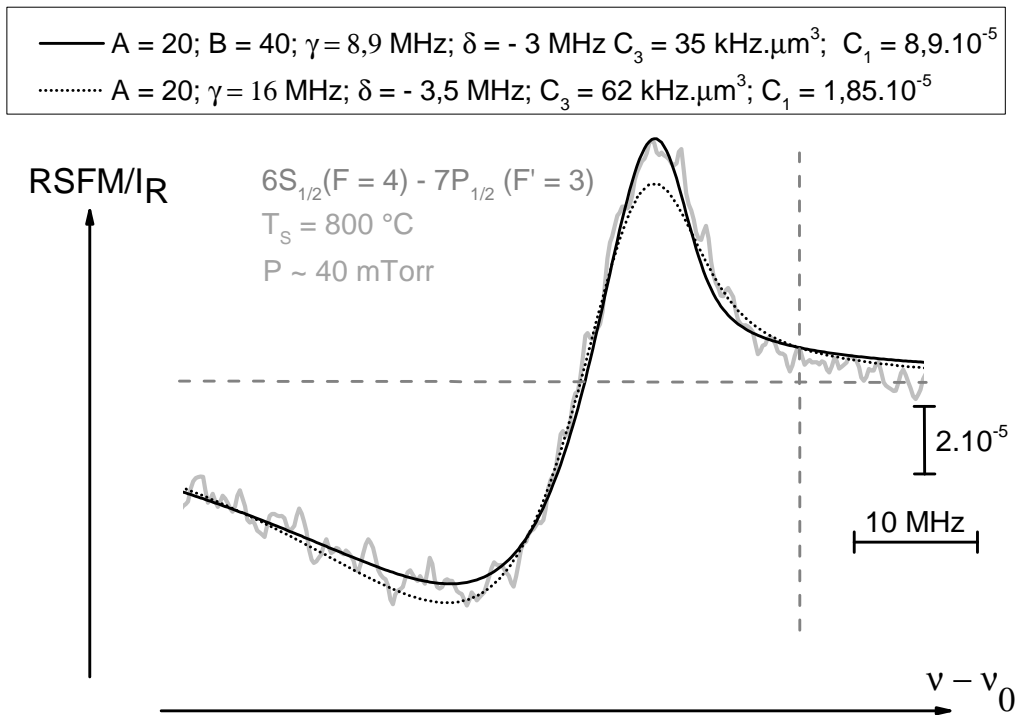


FIGURE 5.37: Courbe expérimentale idem que (5.36), ajustée avec $A' = 20$ ou $A' = 20 + 40i$.

Ainsi, d'après les résultats montrés dans cette section, les spectres expérimentaux de RFSM peuvent être ajustés numériquement avec les courbes du type $A + iB$, mais à condition que $A \gg B$, ceci en raison de la contrainte du rapport d'amplitude.

Troisième partie

Discussion des résultats

5.8 Discussions sur les résultats expérimentaux du coefficient de vdW

5.8.1 Discussion sur la comparaison entre les valeurs expérimentaux du coefficient de vdW et les prédictions théoriques

Les figures (5.38) et (5.39) comparent les données expérimentales pour $C_3(7P_{1/2})$ et $C_3(7P_{3/2})$, présentées sur la figure (5.35), et les prédictions théoriques (voir le chapitre (3)). En raison de la technique spectroscopique que nous utilisons pour sonder les atomes proches d'une surface, le coefficient de vdW est la différence entre les C_3 d'état final et initial. Dans notre cas, l'état initial est le fondamental, où les valeurs du C_3 sont exposées au tableau (5.4), et où les couplages autres que avec $6P$ sont négligeables.

Cs($6S_{1/2}$)	$\lambda(\mu\text{m})$	$A(10^6\text{s}^{-1})$	$\frac{2J_> + 1}{2J_a + 1}$	C_3^{PR}	C_3^{0K}	C_3^{600K}	C_3^{1200K}
$6P_{1/2}$	0,894	28,6	1	0,82	0,43	0,45	0,46
$6P_{3/2}$	0,894	32,4	2	1,61	0,85	0,87	0,91
Total				2,43	1,28	1,32	1,37

TABLE 5.4: Évaluation du coefficient de vdW pour le niveau Cs ($6S_{1/2}$) interagissant avec un surface de saphir. Les données ‘‘saphir’’ utilisées sont issues des mesures du CEMHTI (les autres données ‘‘saphir’’, présentés au chapitre (3), changent $< 5\%$). Les valeurs de probabilité de chaque couplage dipolaire sont issues de O. S. Heavens [65].

Nous commençons notre comparaison par rapport aux évaluations du C_3 à partir des données de $\varepsilon(\omega)$ du groupe CEMHTI et pour la transition $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{1/2}$. Lorsque la température augmente ($T_S > 250$ °C), la prédiction théorique (*cf.* figs. (5.38) et (5.39)) du coefficient de vdW est plus petite, d'un facteur $\sim 1,3$, que les valeurs expérimentales. Cependant, une courbure sur la prédiction théorique apparaît, comme observé sur le C_3 expérimental. Cette courbure vient de ce que le coefficient de vdW prend en compte aussi les variations thermiques de la réponse de la surface, qui est déterminée par la constante diélectrique. En revanche, jusqu'à ~ 500 °C, la prédiction théorique du coefficient de vdW d'après les données de $\varepsilon(\omega)$ fournies soit par M. Shubert *et al* [64] soit, notamment, par A. S. Barker Jr. [50] sont en assez bon accord avec les points expérimentaux, bien que ces données ‘‘saphir’’ aient été faites à température ambiante. Néanmoins, les modèles utilisés pour $\varepsilon(\omega)$ à partir de données de réflectivité/émissivité sont différents (voir le chapitre

(3)). Une explication possible pour l'écart entre les points expérimentaux de $C_3(7P_{1/2})$ et la prédiction d'après les données de "saphir" du CEMHTI est l'amplitude de la réponse de la surface au couplage dipolaire $7P_{1/2} \rightarrow 6D_{3/2}$. Les résultats du $C_3(7P_{1/2})$ et la prédiction ont, approximativement, des formes identiques ; l'incertitude sur la probabilité de transition $7P_{1/2} \rightarrow 6D_{3/2}$, dominante dans le calcul du coefficient de vdW (*cf.* différentes valeurs observés à la table (3.1)), pourrait alors expliquer cet écart. À basse température ($T_S \lesssim 200$ °C), indépendamment du modèle utilisé pour obtenir $\varepsilon(\omega)$, nous voyons que les données expérimentales coïncident avec la prédiction théorique : en effet, à basse température, les effets thermiques sont relativement négligeables, et les variations entre les modèles "saphir" ont un impact très limité, puisque la "résonance" saphir/Cs a peu d'influence.

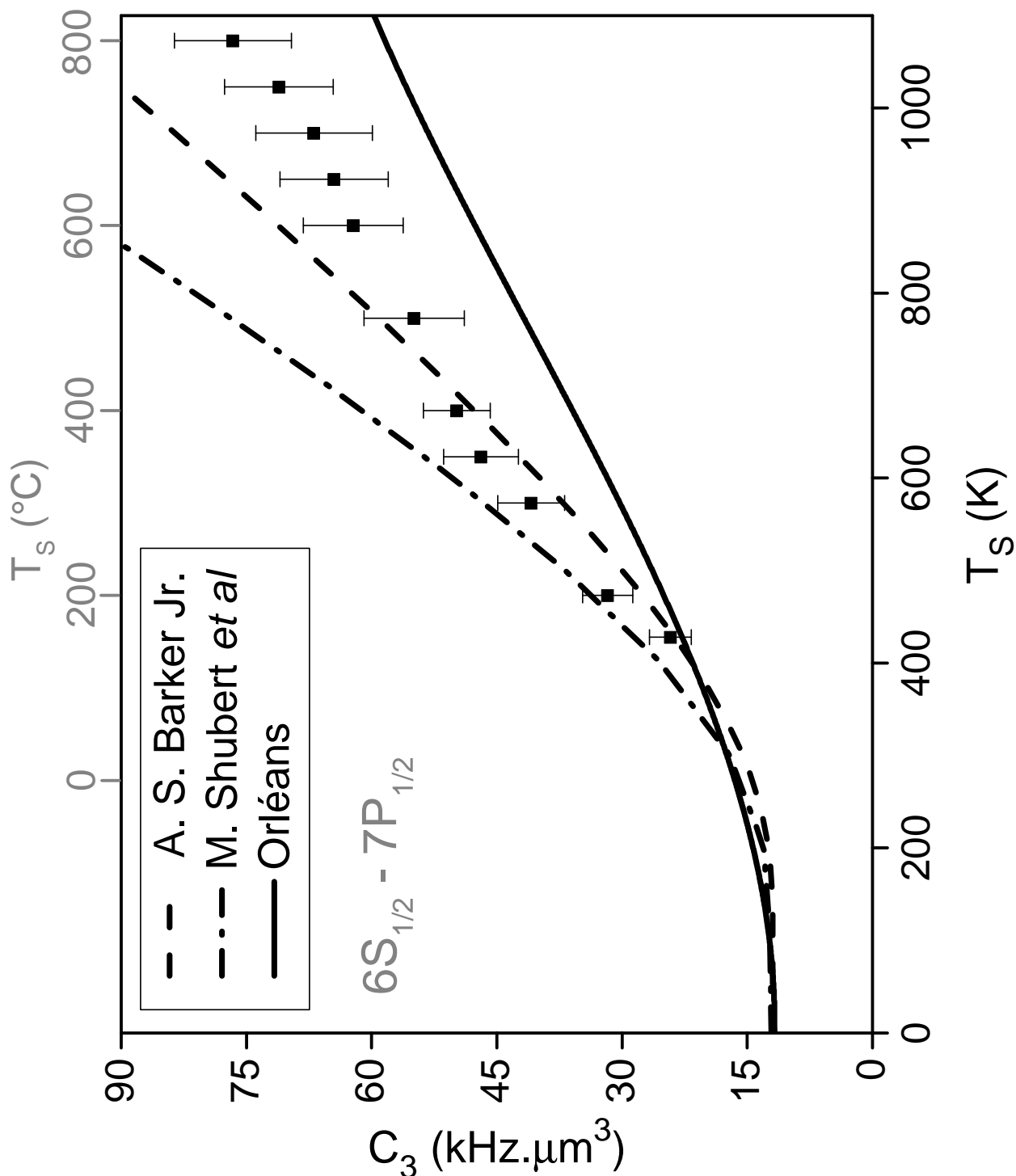


FIGURE 5.38: Comparaison entre les données du coefficient de van der Waals, pour le niveau $Cs(7P_{1/2})$, obtenues d'après les ajustements numériques sur les spectres expérimentaux (*cf.* la figure (5.35)) et les prédictions théoriques évaluées dans le chapitre (3) selon les données de la constante diélectrique fournies par A. S. Barker Jr. [50], M. Shubert *et al* [64] et à partir de mesures du groupe CEMHTI d'Orléans. Les prédictions théoriques prennent en compte l'effet du C_3 du niveau fondamental, *i.e.* le C_3 mesuré correspond à $C_3(7P) - C_3(6S)$

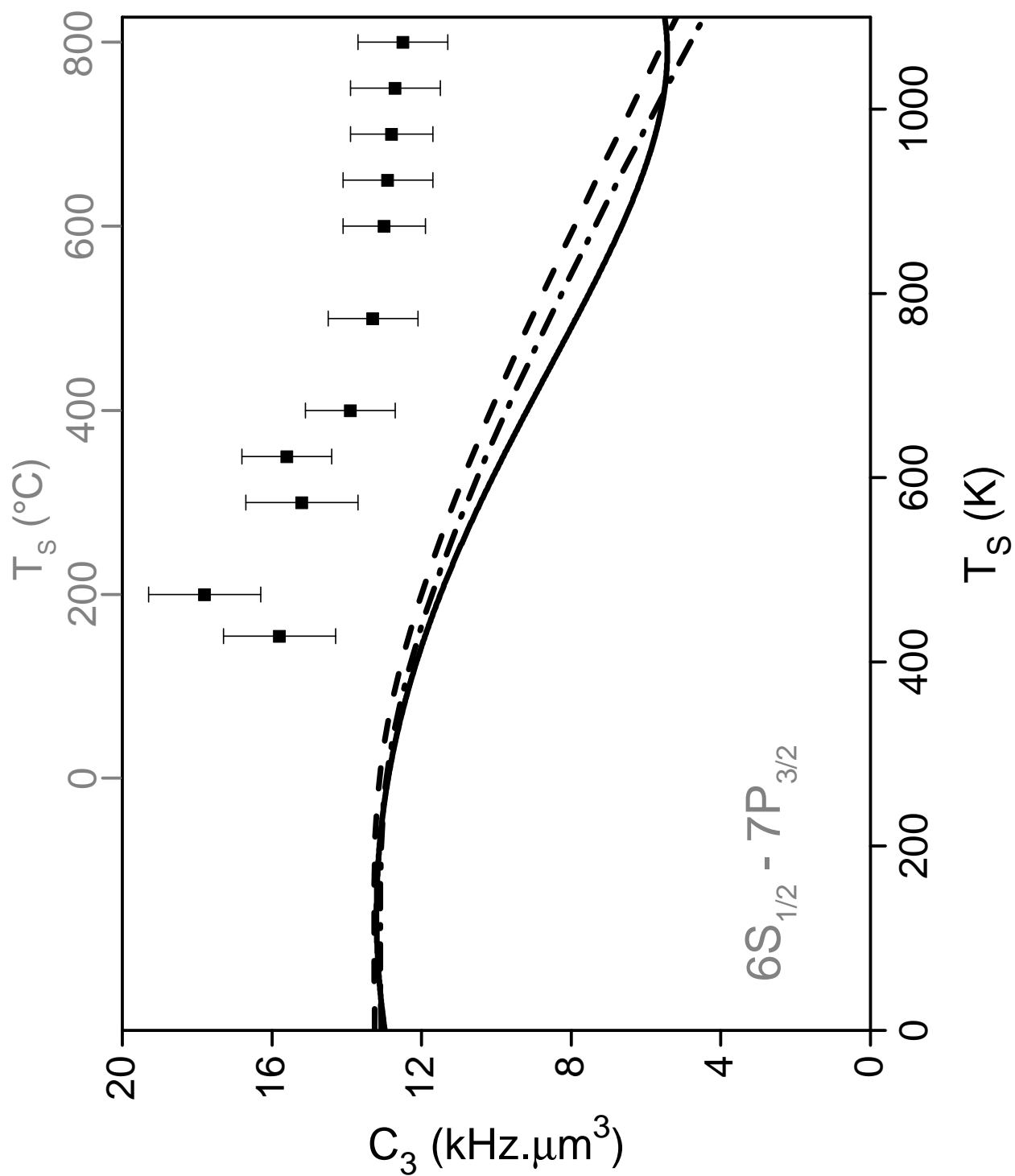


FIGURE 5.39: Idem que figure (5.38), mais pour la transition $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$ du césium.

5.8.2 Discussion sur l'utilisation du potentiel Casimir-Polder "exact" ou du régime de champ proche

On discute dans cette sous-section la légitimité du potentiel atome-surface utilisé pour les ajustements théoriques sur les spectres expérimentaux de RSFM (pour l'évaluation du potentiel complet et en fonction de la distance, voir l'équation (2.23)).

En réflexion sélective, on sonde en principe la réponse atomique sur un voisinage "typique" de $\lambda/2\pi$. En fait, selon la valeur de l'interaction vdW, la réponse résonnante et déformée en RS correspond typiquement à une région où l'interaction de surface ne fait que des modifications de forme de raie, avec un "déplacement" de plus comparable à la largeur optique observée. En régime fort d'interaction vdW ($A \gg 1$), le potentiel à $\lambda/2\pi$ est beaucoup plus grand que la largeur optique, et la réponse n'apparaît que sur des ailes lointaines du spectre RS. On peut donc estimer que c'est à $z = \sqrt[3]{\frac{C_3}{\gamma}}$ qu'est observée la réponse de RS.

Si on prend comme exemple une température de la surface de 200 °C et la transition $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{1/2}$, où on a mesuré $C_3 \approx 30 \text{ kHz} \cdot \mu\text{m}^3$, la zone où les atomes sont sondés est $z \gtrsim 126 \text{ nm}$ (avec $\gamma \approx 15 \text{ MHz}$, une mesure faite à une pression de Cs de $\sim 40 \text{ mTorr}$). Pour la transition $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$, dans des conditions identiques, on obtient $z \gtrsim 100 \text{ nm}$. Donc, on sonde donc un peu plus loin que $\lambda/2\pi \approx 73 \text{ nm}$, qui est la distance typique sondée à $\lambda = 455 \text{ nm}$ et à $\lambda = 459 \text{ nm}$. De même, pour la raie D_1 ($\lambda = 894 \text{ nm}$), les effets de retard sont déjà observables à courte distance ($< 100 \text{ nm}$) [72, 78]. Nos résultats expérimentaux ne sonde donc pas seulement $C_3(z \rightarrow 0)$ et on veut identifier les corrections.

La figure (5.40) montre le potentiel d'interaction atome-surface pour Cs ($7P$) /saphir en fonction de la distance z . Les oscillations qui surgissent à partir de $\sim 0,5 \mu\text{m}$, caractéristiques des atomes dans l'état excité à cause des modes de propagation du champ, sont les principales corrections pour le limite d'interaction atome-surface en champ proche [19] (voir aussi la référence [27]). Ces oscillations sont très petites, car les courbes montrées dans cette figure sont normalisées en z^3 : à $z \gtrsim 0,5 \mu\text{m}$ le *shift* vdW est de l'ordre de 0,5 kHz pour les transitions $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{1/2}$ et $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$, indétectable sur nos spectres de RSFM.

Pour le doublet de transition $6S_{1/2} \rightarrow 7P$, entre les températures de 400 K et 1200 K, le potentiel d'interaction diffère de $\sim 5\%$ pour une plage de $0 - 0,3 \mu\text{m}$ (à une distance

de $\sim 0,3 \mu\text{m}$ le $\delta_{vdW} \approx 0,5 \text{ MHz}$, déjà imperceptible sur les spectres expérimentaux de RSFM). Cette correction du potentiel d'interaction peut donc être négligée : les valeurs mesurées ici, avec la technique de réflexion sélective, sont donc des mesures satisfaisantes de $C_3(z \rightarrow 0)$.

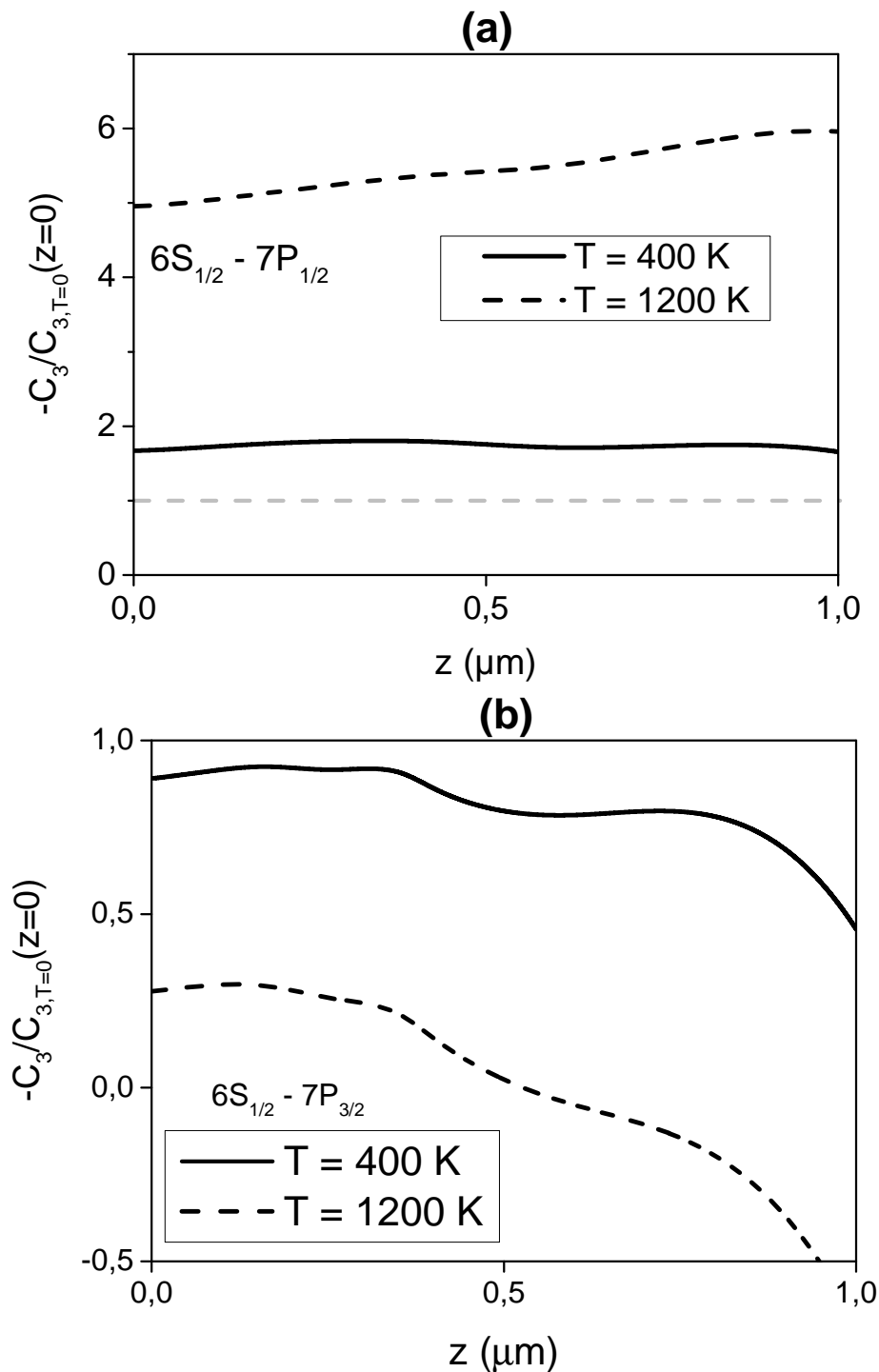


FIGURE 5.40: Dépendance spatiale du déplacement d'énergie, à 400 K et à 1200 K, normalisé en z^{-3} pour les transitions (a) $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{1/2}$ et (b) $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$. Les données "saphir" sont celles du groupe CEMHTI.

5.9 Conclusion

Nous établissons, dans ce chapitre, la différence remarquable d'interaction entre deux niveaux atomiques assez proches en énergie, Cs ($7P_{1/2}$) et Cs ($7P_{3/2}$), au voisinage d'une surface de saphir thermiquement émissive en équilibre avec l'environnement. Tandis que $C_3(7P_{1/2})$ augmente d'un facteur ~ 3 pour une plage de température de la surface entre $150 - 800$ °C, le $C_3(7P_{3/2})$ diminue, dans ces mêmes conditions, d'un facteur $\sim 1,3$.

Pour le niveau Cs ($7P_{1/2}$), à basse température, nous observons une bonne concordance des valeurs de C_3 obtenues d'après les ajustements numériques sur les spectres expérimentaux avec la prédiction théorique, quelque soit le modèle ou les données utilisés pour déterminer $\varepsilon(\omega)$. À haute température de la surface, on observe une courbure sur l'évolution avec la température du coefficient de vdW. Ceci est une claire indication de la modification de la constante diélectrique avec la température de la surface. Dans cette région de haute température, la concordance entre le C_3 mesuré et celui prédit est assez imparfaite, ceci peut être expliquée par les différents modèles utilisés pour obtenir la constante diélectrique, notamment, à haute température. Pour une interaction vdW résonnante, de petites différences sur le mode de polariton (amplitude, déplacement, etc), peuvent induire un changement important sur l'évaluation du $C_3(7P_{1/2})$. En outre, l'incertitude sur la probabilité de transition $7P_{1/2} \rightarrow 6D_{3/2}$ peut aussi avoir des lourds effets sur le coefficient de vdW. Ce niveau $7P_{1/2}$ est, en principe, sensible au changement de durée de vie induit par l'émission des modes de polariton de la surface. Avec la contrainte sur l'amplitude comparée des spectres de RSFM vers Cs ($7P_{3/2}$), on a conclu que le facteur B doit être très petit devant A , c'est-à-dire, $B/A \ll 1$ jusqu'à $T_S = 800$ °C.

En ce qui concerne le niveau Cs ($7P_{3/2}$), une différence de $\sim 30\%$ est observée des mesures du C_3 avec sa prédiction théorique, bien que le principal couplage dipolaire se situe sur l'aile de la réponse de la surface. On observe, également, des effets de température des résonances de surface. Dans cette région, on a mesuré un $C_3(7P_{3/2})$ approximativement double de celui évalué théoriquement, indépendamment des données et du modèle utilisés pour la construction de $\varepsilon(\omega)$. Cette non-concordance peut être liée aux effets des modèles pour la constante diélectrique utilisés pour ajuster les spectres de réflectivité (ou émissivité) à haute température en plus de la connaissance des probabilités de transitions dipolaires vers le niveau Cs ($7P_{3/2}$).

Par ailleurs, les transitions $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{1/2}$ et $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$ ne sont pas sensibles aux

effets de retard, d'où nous pouvons toujours utiliser la prédiction faite à $z \rightarrow 0$.

CHAPITRE 6

ÉTUDE DE L'INTERACTION CASIMIR-POLDER ENTRE UN ATOME EXCITÉ SUR LA PREMIÈRE RAIE DE RÉSONANCE DU CÉSIIUM ET UNE SURFACE DE SAPHIR

Des expériences sur la raie D_1 ($6S_{1/2} \rightarrow 6P_{1/2}$) et D_2 ($6S_{1/2} \rightarrow 6P_{3/2}$) du césium ont été déjà effectuées auparavant, qui avaient comme objectif d'observer l'effet de l'interaction Casimir-Polder en champ proche (interaction de vdW) sur les spectres de réflexion sélective (RS). Celui-ci se manifeste par le déplacement et l'asymétrie des formes de raie D_2 [32, 3]. Ces expériences ont aussi mesuré l'interaction de vdW, sur la raie D_1 , à partir d'ajustements plus détaillés sur les spectres de réflexion sélective FM [79].

Nous sommes intéressés, dans ce chapitre, à remesurer expérimentalement le coefficient de van der Waals pour le niveau Cs ($6P_{1/2}$) interagissant avec une surface de saphir, mais cette fois-ci avec une surface de nature de polissage bien connue et une rugosité bien contrôlée, ce pour faire la différence avec la référence [79]. La cellule utilisée dans [79] avait été accidentellement remplie avec des impuretés, ce qui n'a pas empêché de réussir à mesurer expérimentalement le C_3 . Par ailleurs, nous cherchons aussi à mesurer le C_3 à très basse pression de césium, de manière que l'élargissement par collision puisse être négligé. Jusqu'à maintenant, les spectres de RSFM n'ont jamais été analysés, dans ces conditions de la cellule. En effet, la largeur naturelle sur les spectres de réflexion sélective n'a jamais été observée jusqu'ici, car les transitions atomiques d'intérêt sont, dans la plupart des cas, vers les niveaux assez excités, qui nécessitent une pression de vapeur élevée à cause

de la faible force de transition atomique. Une autre originalité de ce chapitre de thèse est que l'on analyse le C_3 de la transition $6S_{1/2} \rightarrow 6P_{1/2}$ à deux températures très distinctes de la surface de saphir (150 °C et 600 °C) pour vérifier que, comme prédit, les effets de température sont très négligeables.

On commence ce chapitre, par l'évaluation du C_3 par le niveau $6P_{1/2}$ du césium (6.1) au voisinage d'une surface de saphir. Nous ferons une brève description expérimentale (6.2) puisque la plupart des éléments optiques utilisés sont les mêmes que ceux utilisés par l'expérience RSFM sur les niveaux Cs ($7P_{1/2}$) et Cs ($7P_{3/2}$) (voir le chapitre (5)). Nous présentons, ensuite, des études préliminaires sur les spectres expérimentaux de RSFM (6.3). La section (6.4) présente nos résultats du coefficient de vdW aux deux différentes températures de la surface. Dans la section (6.5), nous faisons une discussion sur le *shift* et le γ en fonction de la distance pour comparer avec nos résultats expérimentaux de C_3 . Enfin (6.6), on effectue des mesures d'absorption saturée sur la cellule où ont été réalisées les expériences de RSFM, et dans les mêmes conditions de température.

6.1 Évaluation du coefficient de vdW pour la transition $6S_{1/2} \rightarrow 6P_{1/2}$ du césium

Pour l'évaluation du coefficient de van der Waals (voir le chapitre (2)) du niveau Cs ($6P_{1/2}$) au voisinage d'une surface de saphir, tous les couplages qui apparaissent à la figure (6.1) ont été pris en compte.

Le tableau (6.1) montre la contribution individuelle du C_3 , évalué d'après la constante diélectrique fournies par A. S. Barker Jr. [50], de chaque couplage et pour quelques températures. Le couplage vers le niveau Cs ($5D_{3/2}$) donne, approximativement, la moitié de la contribution pour le C_3 . La valeur du coefficient de vdW augmente, de façon monotone, pour une plage de température entre $T = 0$ K et $T = 1000$ K, pour un effet de température très petit (10% entre 0 et 1000 K).

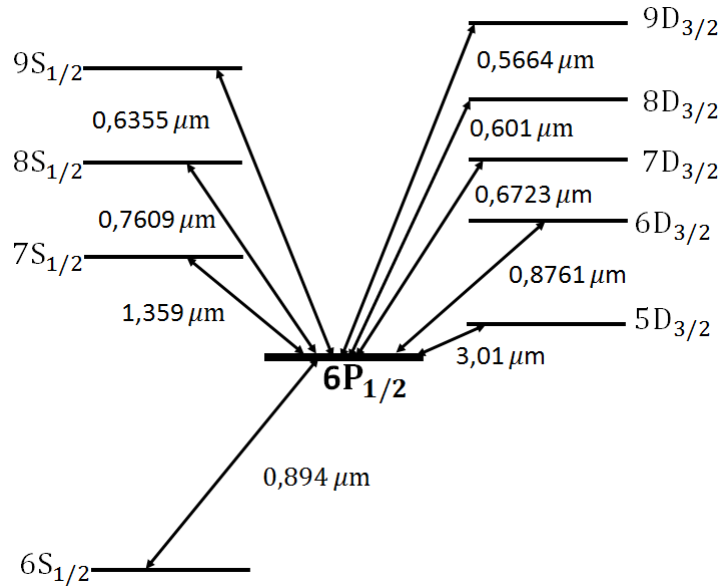


FIGURE 6.1: Les couplages dipolaires pris en compte pour l'évaluation du coefficient de vdW pour le niveau Cs ($6P_{1/2}$).

Cs($6P_{1/2}$)	$\lambda(\mu\text{m})$	$A_{a \rightarrow n} (10^6 \text{ s}^{-1})$	$\frac{2J_n + 1}{2J_a + 1}$	C_3^{PR}	C_3^{0K}	C_3^{500K}	C_3^{1000K}
$6S_{1/2}$	-0,894	28,6	1	0,82	0,5	0,4	0,39
$7S_{1/2}$	1,359	6,23	1	0,63	0,3	0,35	0,36
$8S_{1/2}$	0,7609	2,04	1	0,036	0,014	0,02	0,02
$9S_{1/2}$	0,6355	0,885	1	0,01	< 0,01	< 0,01	< 0,01
$5D_{3/2}$	3,01	0,94	2	2,06	1,1	1,2	1,34
$6D_{3/2}$	0,8761	12,7	2	0,68	0,29	0,37	0,38
$7D_{3/2}$	0,6723	6,08	2	0,15	0,057	0,08	0,08
$8D_{3/2}$	0,601	3,36	2	0,06	0,02	0,03	0,03
$9D_{3/2}$	0,5664	2,031	2	0,03	0,01	0,016	0,016
Total				4,476	2,291	2,466	2,616

TABLE 6.1: Le tableau donne la valeur totale du C_3 en $\text{kHz} \cdot \mu\text{m}^3$, pour le niveau Cs ($6P_{1/2}$), en fonction de la température ainsi que les valeurs individuelles pour chaque couplage dipolaire pris en compte. Le couplage le plus important (pas vraiment dominant) est surligné. La réponse de la surface de saphir a été calculée d'après les données issues de [50] et les valeurs de probabilité de chaque transition sont issues de O. S. Heavens [65].

6.2 Dispositif expérimental de la réflexion sélective pour la transition $6S_{1/2} \rightarrow 6P_{1/2}$

L'expérience (*cf.* figure (6.2)) pour obtenir les résultats de réflexion sélective sur la raie D₁ du césium (transition $6S_{1/2} \rightarrow 6P_{1/2}$ avec $\lambda = 894 \text{ nm}$) a été effectuée de la même façon que celle du chapitre (5) pour les transitions vers Cs ($7P_{1/2}$) et Cs ($7P_{3/2}$).

Le laser utilisé est un DBR (*Distributed Bragg Reflector*), qui a une puissance de sortie

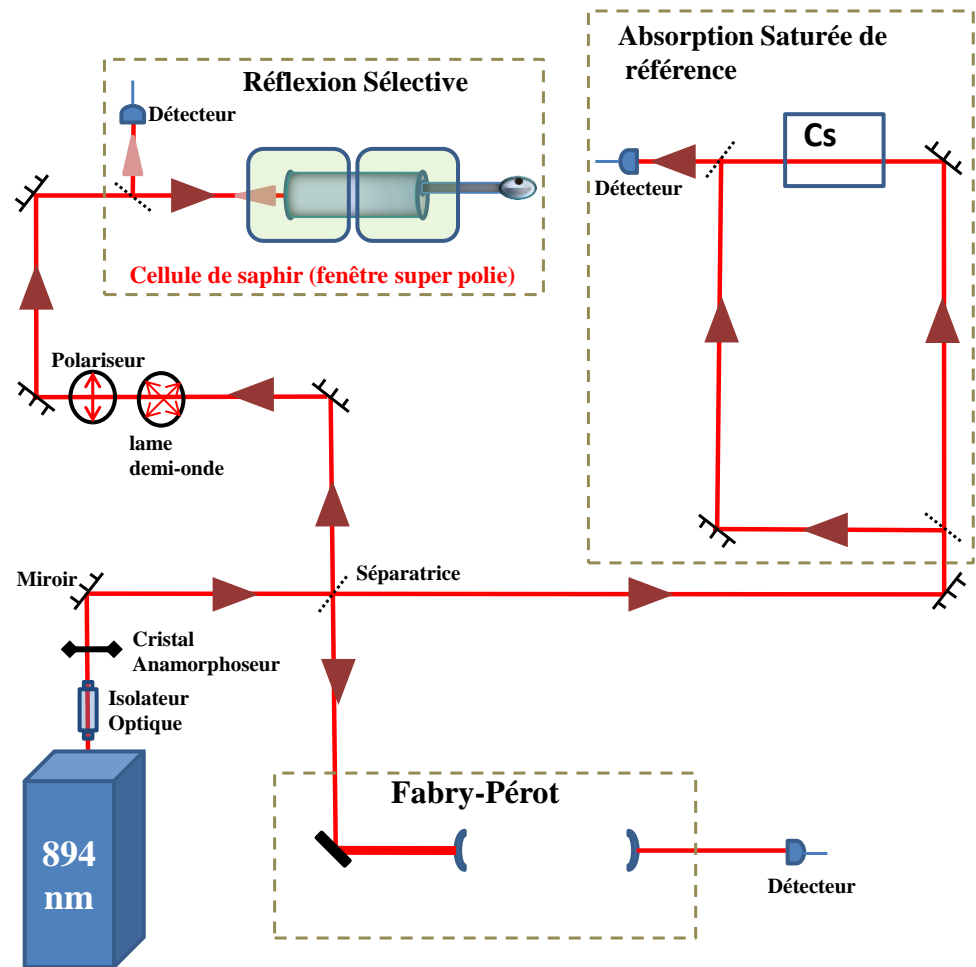


FIGURE 6.2: Schéma expérimental de la réflexion sur la transition $6S_{1/2} \rightarrow 6P_{1/2}$ du césium. La cavité Fabry-Pérot utilisée est la même que celle pour les lasers émettant à 455 nm et 459 nm (longueur de 60 cm en triple passage). Cette fois-ci, il possède une finesse d'environ 11 à cause du changement des miroirs. La réflexion sélective a été faite sur la cellule avec la surface de saphir super polie, décrite au chap. (5). La combinaison de la lame demi-onde avec le polariseur a pour seule fonction de contrôler (atténuation variable) la puissance du faisceau laser.

de 30 mW avec un diamètre du faisceau d'environ 3 mm. Le balayage du laser est fait via l'ordinateur qui envoie une tension qui change le courant. Cette tension arrive à une carte électronique qui fait la somme de la tension de balayage laser avec la tension de modulation en fréquence, commandée par un générateur de fonction. Chaque acquisition de spectre prend un temps de balayage de quelques minutes (~ 6 min) et le temps entre chaque point est de ~ 100 ms. Nous utilisons, par toutes les expériences de RSFM, une profondeur de modulation de ~ 2 MHz, qui est raisonnable, car la largeur naturelle du

niveau Cs ($6P_{1/2}$) est de $\sim 4,5$ MHz.

Tous les spectres ont été détectés par des photodétecteurs identiques à ceux employés dans l'expérience de RS des transitions $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{1/2}$ et $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$, où les signaux passent par un *lock-in* et arrivent à l'ordinateur par le convertisseur DAQ (analogique \rightarrow digital).

Pour la référence de fréquence en volume par l'absorption saturée, nous avons utilisé une cellule de 8 cm de longueur, à température ambiante ($T \approx 20$ °C) pour laquelle l'absorption linéaire est de ~ 80 %. Les spectres d'absorption saturée fournissent de plus une référence de fréquence utile pour sommer des spectres successifs de réflexion sélective FM (*cf.* chap(5)), lorsqu'ils sont obtenus à très basse pression de Cs.

6.3 Études préliminaires sur les spectres expérimentaux de réflexion sélective pour le niveau Cs ($6P_{1/2}$)

La majorité de nos résultats a été obtenue à très basse pression : $P \approx 20$ μ Torr ($T_R \sim 55$ °C). Par comparaison, la réflexion sélective sur les niveaux Cs ($7P$) a été faite avec $P \gtrsim 10$ mTorr ($T_R \sim 150$ °C). L'élargissement par pression du niveau Cs ($6P_{1/2}$) est ~ 1 GHz/Torr [79] (un ordre de grandeur supérieur aux niveaux Cs ($7P$)). Ainsi, nous attendons à des spectres de réflexion sélective en ayant la largeur homogène ($\sim 4,5$ MHz) et, par conséquent, avec les valeurs du coefficient de vdW du tableau (6.1), le paramètre sans dimension d'interaction vdW sera $A \ll 1$ (même pour des largeurs minimales).

Avant de chercher à ajuster les spectres de réflexion sélective, nous avons eu besoin d'études préliminaires, notamment en testant, dans nos conditions, la saturation avec l'intensité laser (même si elle est en principe très bien connue).

6.3.1 Saturation du signal de réflexion sélective

Pour observer les effets de saturation sur les spectres de RS, on a changé, graduellement, la puissance du laser (à l'aide de la lame demi-onde et du polariseur). La figure (6.3) montre les spectres de RS en fonction de l'intensité du laser. Pour éviter la saturation, on doit réaliser nos expériences avec $I < 1$ mW/cm² (les spectres à 10,5 mW/cm² et 1 mW/cm² sont quasi-identiques), ce qui est en accord avec la théorie [73] et les expériences précédentes, au moins sur la raie D₂ [32].

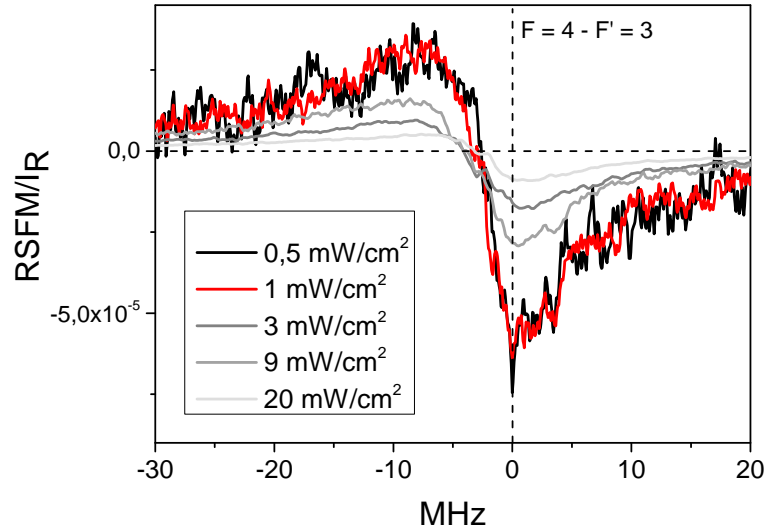


FIGURE 6.3: Spectres de RSFM, pour la transition $6S_{1/2} \rightarrow 6P_{1/2}$ du césium, en fonction de l'intensité laser. La pression de la vapeur atomique est de $P \approx 20 \mu\text{Torr}$.

6.3.2 Moyenne des spectres de RSFM

Pour améliorer le *Signal/Bruit* des spectres de RSFM, surtout, à très basse densité atomique, on a fait la moyenne de quelques spectres (*cf.* chap.(5)). Pour cela, nous n'avons ici utilisé que le Fabry-Pérot pour construire notre échelle, avec une origine de fréquence imposée par l'absorption saturée. Dans ce cas, contrairement à la méthode utilisée pour les transitions $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{1/2}$ et $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$, la linéarisation de l'échelle n'est faite que entre chaque pic du Fabry-Pérot espacé de ~ 83 MHz. En effet, pour le niveau Cs ($6P_{1/2}$) l'écart entre les deux structures hyperfines est de $\sim 1,17$ GHz (le *cross-over* n'est pas observé parce que la largeur Doppler de la transition $6S_{1/2} \rightarrow 6P_{1/2}$ - ku ~ 200 MHz à $T = 300$ K- est beaucoup plus petite que la distance entre les sous-niveaux d'état excité).

La figure (6.4) montre la comparaison entre la moyenne et un spectre expérimental de RSFM détecté la plus faible pression de Cs utilisée sur nos expériences. Ainsi, nous sommes assuré que la moyenne des spectres ne modifie pas la forme, ni n'ajoute un élargissement supplémentaire à cause de la construction de l'échelle en fréquence.

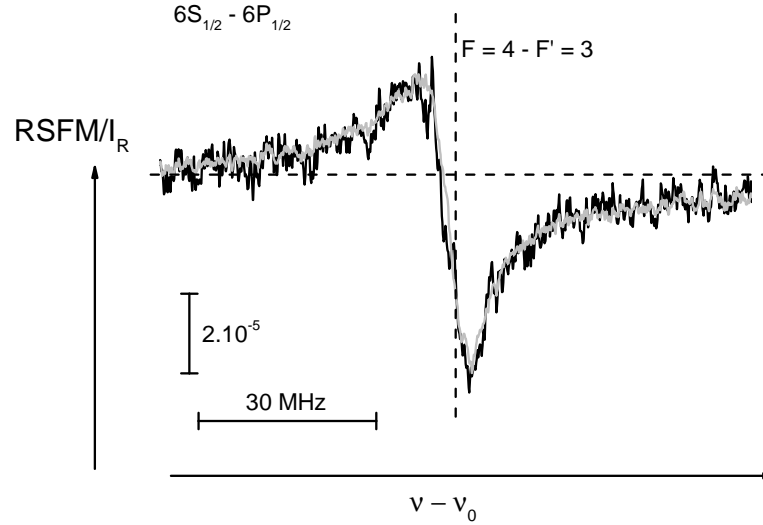


FIGURE 6.4: Comparaison entre un seul spectre de RFSM (en noir) et la moyenne de huit courbes (en gris). L'intensité est de $I \approx 0,7 \text{ mW/cm}^{-2}$ et la pression de Cs est de $P \approx 20 \mu\text{Torr}$ ($T_R = 55 \text{ }^\circ\text{C}$). La ligne horizontale marque le "zéro" sur l'axe des ordonnées et la verticale sur la fréquence obtenue d'après l'absorption saturée.

6.4 Obtention du coefficient de vdW de la transition

$6S_{1/2} \rightarrow 6P_{1/2}$ à partir des spectres de RFSM à différentes températures de la surface de saphir

Nous présentons ici les spectres de réflexion sélective FM, pour la transition $6S_{1/2} \rightarrow 6P_{1/2}$ du césium, permettant de mesurer expérimentalement, par des ajustements théoriques, le coefficient de vdW, à deux températures distinctes de la surface de saphir ($150 \text{ }^\circ\text{C}$ et $600 \text{ }^\circ\text{C}$). Tous les spectres de cette section ont été obtenus avec une intensité de $I \approx 0,7 \text{ mW/cm}^2$.

La structure hyperfine du niveau Cs ($6P_{1/2}$) est bien résolue en fréquence ($\sim 1,17 \text{ GHz}$), donc, nous pouvons faire les ajustements théoriques sur les courbes expérimentales de RFSM pour chaque sous-niveau indépendamment, comme c'était le cas pour le niveau Cs ($7P_{1/2}$) (voir le chapitre (5)). En outre, les balayages sont faits sur des domaines de fréquence, couvrant une plage de balayage limitée ($\sim 200 \text{ MHz}$) : nous ne disposons donc que de trois "pics" du Fabry-Pérot pour transformer l'échelle de tension de balayage en échelle de fréquence. Cette procédure a été faite pour tous les sous-niveaux, l'un après l'autre.

6.4.1 Ajustements théoriques acceptables sur les spectres de RSFM

Comme indiqué au chap. (5), chaque spectre de RSFM possède une plage des valeurs acceptables pour le coefficient de vdW.

La figure (6.5) montre un spectre de RSFM présentant l'ajustement le meilleur, et deux autres qui ne sont considérés pas comme acceptables. De cette façon nous pouvons limiter le coefficient de vdW à une valeur centrale définie comme celle du meilleur ajustement, et les valeurs maximales et minimales comme l'incertitude de nos mesures. L'asymétrie et le déplacement remarquable sur le spectre expérimental, et très bien connues [32, 79] est la signature de l'interaction de surface. Bien que le $Signal/Bruit \approx 30$, l'incertitude sur les mesures C_3 est de l'ordre de 20%, car, une différence de seulement 10 – 15% sur les valeurs du paramètre A (lorsque $A \ll 1$) d'ajustement est très difficile à identifier.

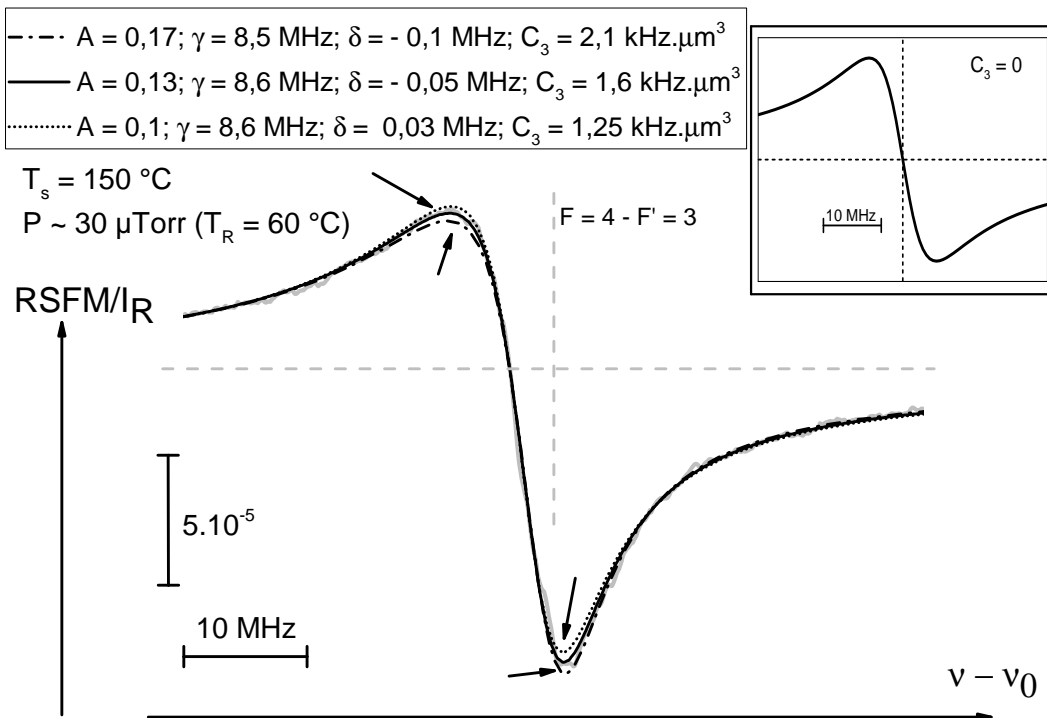


FIGURE 6.5: Spectre expérimental, pour la transition $6S_{1/2}(F = 4) \rightarrow 6P_{1/2}(F' = 3)$, moyenné sur dix enregistrements. Les ajustements théoriques des sous-niveaux du niveau Cs ($6P_{1/2}$) ont été faits de manière indépendantes et la différence ne vient que du facteur d'amplitude. Nous présentons ici la courbe théorique qui s'ajuste le mieux au spectre expérimental (avec le paramètre $A = 0,13$) et deux autres courbes théoriques qui ne sont pas admissibles. Les flèches soulignent les écarts entre l'ajustement et l'expérience. En insert (côté supérieur droit), on montre une courbe avec $C_3 = 0$ avec $\gamma = 8,5 \text{ MHz}$.

6.4.2 Effet de la température sur le coefficient de vdW

Nous présentons, premièrement, nos résultats obtenus à $T_S = 150\text{ °C}$ et, ensuite, à $T_S = 600\text{ °C}$.

Les figures (6.6), (6.7) et (6.8) montrent les ajustements numériques sur les spectres expérimentaux détectés aux conditions de température de la cellule identiques ($T_S = 150\text{ °C}$ et $P \approx 45\text{ }\mu\text{Torr}$), mais en modifiant les sous-niveaux atomiques, soit de départ du l'état fondamental, soit d'excité. Ces courbes montrent que le coefficient de vdW est identique quel que soit les sous-niveaux en plus du paramètre largeur.

Les figures (6.9) et (6.10) présentent les spectres de RSFM, détectés à $T_S = 600\text{ °C}$ et à pression estimée de Cs de $\sim 1\text{ mTorr}$, avec le meilleur ajustement théorique (NB : porter la fenêtre à 600 °C implique un chauffage par conduction de la cellule au niveau du réservoir, comme discuté à la sous-section (6.4.3)).

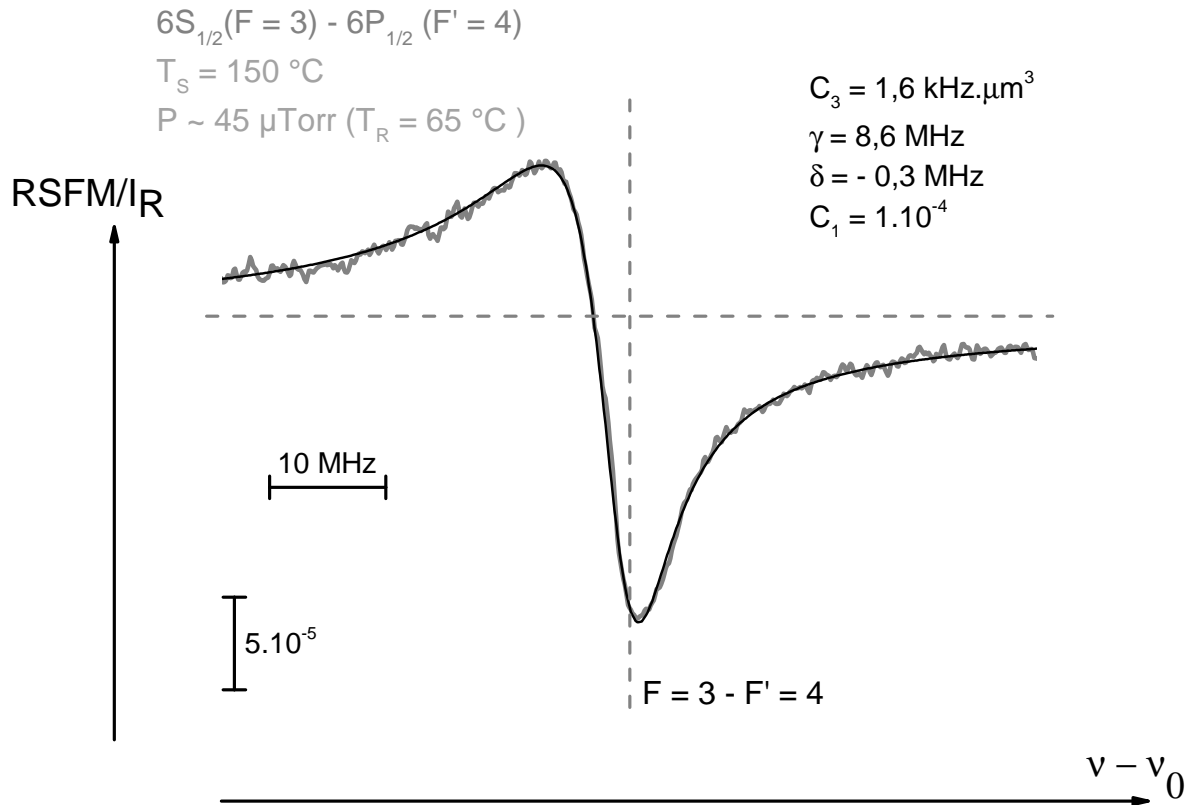


FIGURE 6.6: Spectre expérimental de RSFM pour la transition $6S_{1/2}(F = 3) \rightarrow 6P_{1/2}(F' = 4)$ et l'ajustement numérique. La température de la surface de saphir et du réservoir a été maintenue constante à $T_R \approx 65\text{ °C}$. La ligne horizontale marque le zéro sur l'axe des ordonnées et la verticale, sur l'axe des abscisses grâce à l'absorption saturée de référence.

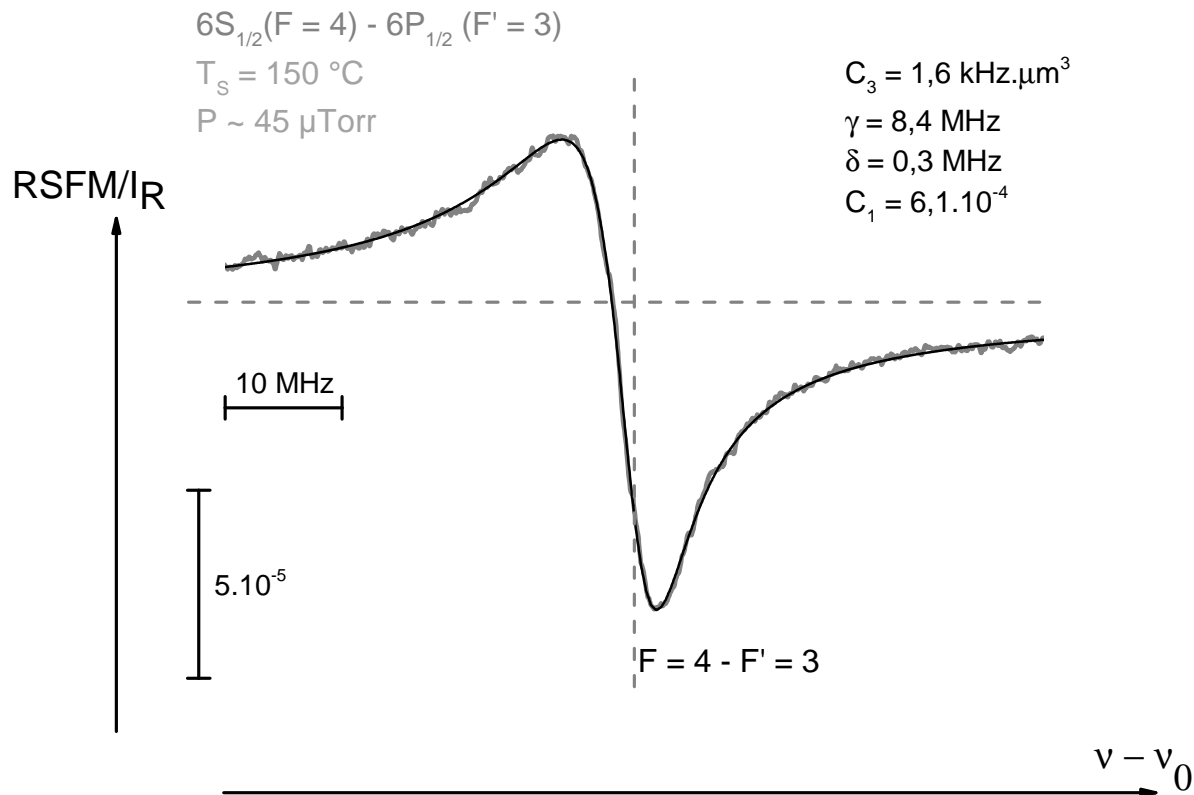


FIGURE 6.7: Cf. fig. (6.6), mais pour la transition $6S_{1/2}(F = 4) \rightarrow 6P_{1/2}(F' = 3)$.

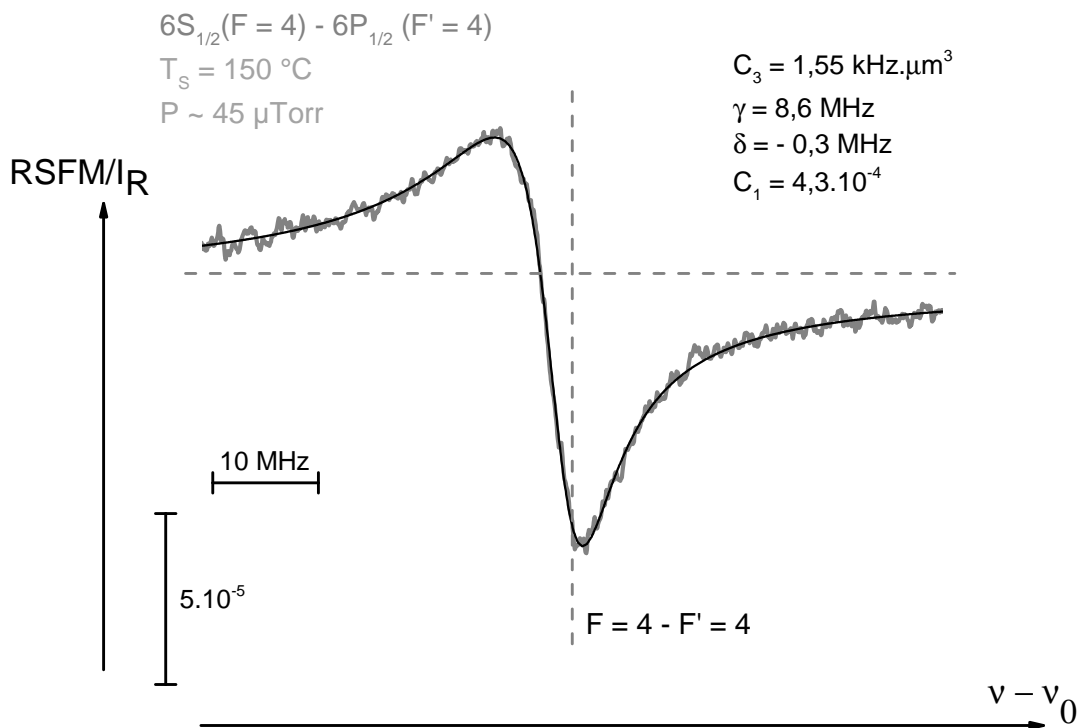


FIGURE 6.8: Idem que fig. (6.6), mais pour la transition $6S_{1/2}(F = 4) \rightarrow 6P_{1/2}(F' = 4)$.

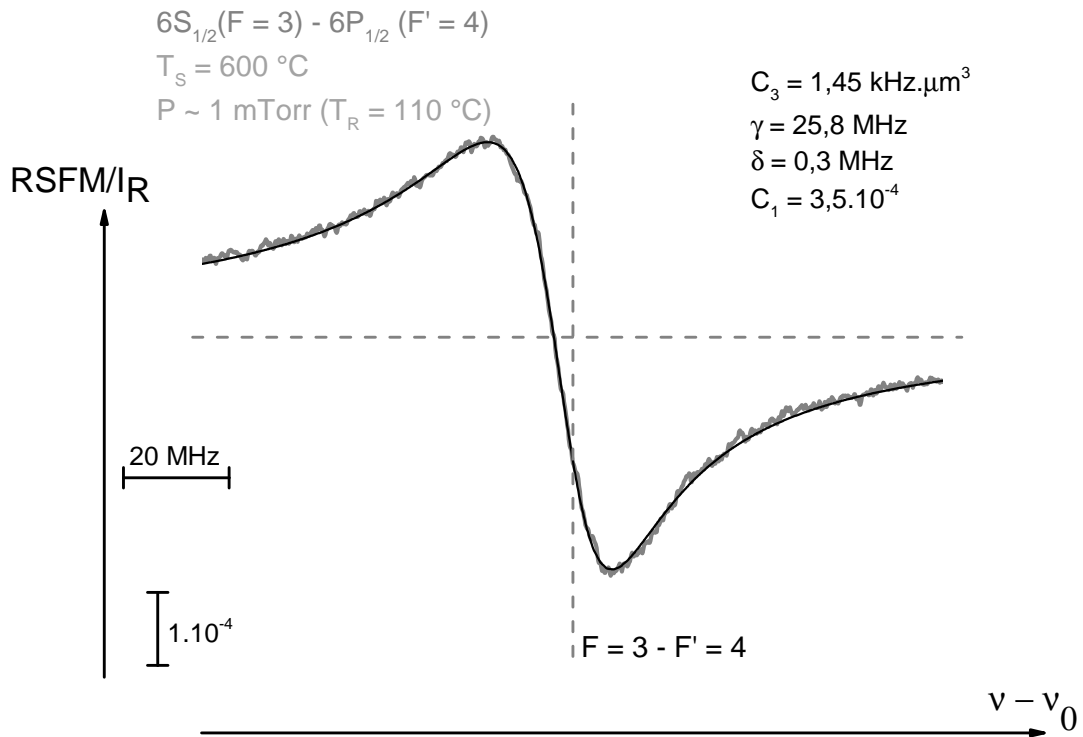


FIGURE 6.9: Idem que fig. (6.6), sauf T_S et P .

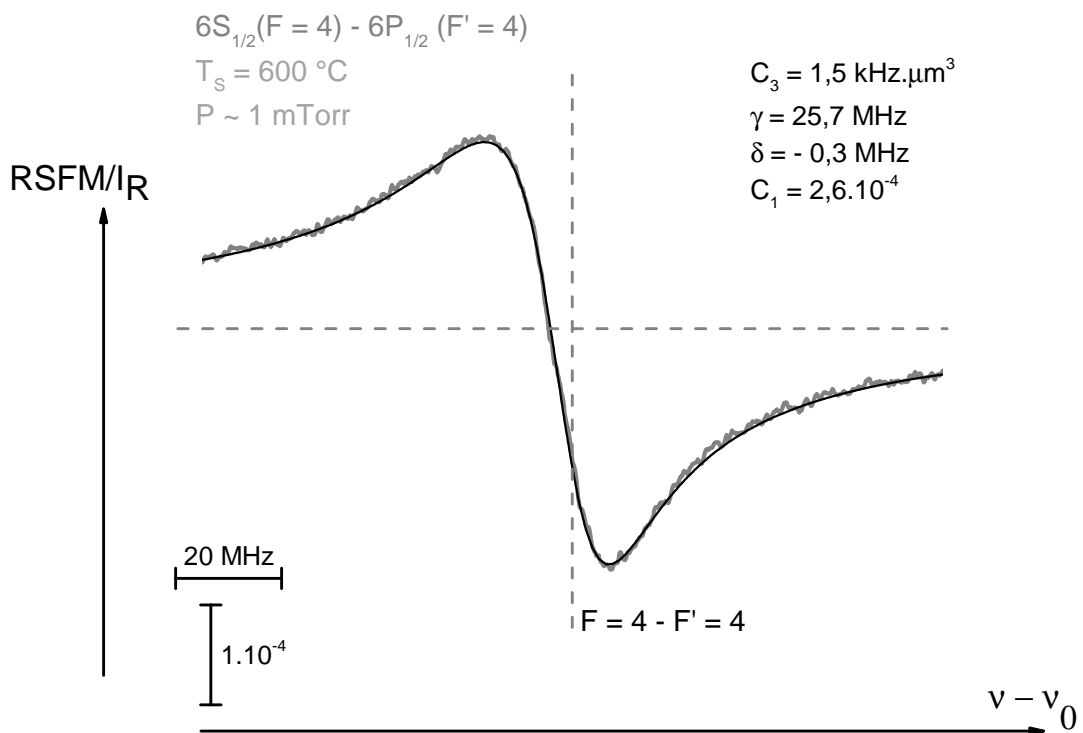


FIGURE 6.10: Idem que fig. (6.8), sauf T_S et P .

La différence entre les spectres de différentes composantes hyperfines est l'amplitude, les rapports d'amplitude sont comme attendu, par exemple, entre les transitions $6S_{1/2} (F = 4) \rightarrow 6P_{1/2} (F' = 3)$ et $6S_{1/2} (F = 4) \rightarrow 6P_{1/2} (F' = 4)$, $(C_1\gamma)_{43} \approx 1,4 (C_1\gamma)_{43}$.

Il n'y a pas de différence entre les transitions hyperfines pour le coefficient de vdW, ni pour les largeurs. C'est à la fois prévu théoriquement, et identique à ce qui a été observé pour les transitions $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{1/2}$ et $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$ (cf. chap(5)).

Nous obtenons ainsi les coefficients de vdW pour $T_S = 150 \text{ }^\circ\text{C}$ et pour $T_S = 600 \text{ }^\circ\text{C}$, comme indiqué au tableau (6.2). Il n'y a pas non plus de différence significative entre les valeurs du C_3 pour $T_S = 150 \text{ }^\circ\text{C}$ et $T_S = 600 \text{ }^\circ\text{C}$.

$T_S = 150 \text{ }^\circ\text{C}$	$C_{3;4-3} = 1,6 \pm 0,25 \text{ kHz} \cdot \mu\text{m}^3$
	$C_{3;4-4} = 1,5 \pm 0,25 \text{ kHz} \cdot \mu\text{m}^3$
	$C_{3;3-3} = 1,6 \pm 0,3 \text{ kHz} \cdot \mu\text{m}^3$
	$C_{3;3-4} = 1,6 \pm 0,25 \text{ kHz} \cdot \mu\text{m}^3$
$T_S = 600 \text{ }^\circ\text{C}$	$C_{3;4-3} = 1,6 \pm 0,25 \text{ kHz} \cdot \mu\text{m}^3$
	$C_{3;4-4} = 1,65 \pm 0,25 \text{ kHz} \cdot \mu\text{m}^3$
	$C_{3;3-3} = 1,5 \pm 0,3 \text{ kHz} \cdot \mu\text{m}^3$
	$C_{3;3-4} = 1,55 \pm 0,25 \text{ kHz} \cdot \mu\text{m}^3$

TABLE 6.2: Les valeurs du coefficient de vdW pour les températures de la surface de $150 \text{ }^\circ\text{C}$ et $600 \text{ }^\circ\text{C}$, et pour les 2 composantes hyperfines de l'état Cs ($6P_{1/2}$), en partant des différents sous-niveaux de l'état Cs ($6S_{1/2}$).

6.4.3 Variation des paramètres des ajustements théoriques en fonction de la pression de la vapeur atomique

Afin de vérifier la consistance de nos résultats, une série de mesures, en changeant la pression de la vapeur atomique et maintenant la température de la surface constante, a été réalisée, comme pour les transitions $6S_{1/2} \rightarrow 7P$ (voir (5.5.3)). Les figures (6.11) et (6.12) exposent les spectres expérimentaux, à $T_S = 150 \text{ }^\circ\text{C}$ et $T_S = 600 \text{ }^\circ\text{C}$, pour diverses températures du réservoir.

L'ensemble des résultats de ces figures est présenté sur la figure (6.13) et à partir de celle-ci, nous faisons quelques analyses. Initialement, on note, à partir des ajustements, que la largeur des spectres de RSFM est constante, avec une valeur $\sim 8,5 \text{ MHz}$ jusqu'à

une pression de $\sim 0,3$ mTorr pour $T_S = 150$ °C et $\sim 0,1$ mTorr pour $T_S = 600$ °C. Il y a une espèce de “seuil” de la valeur du γ jusqu’au moment où les collisions ne peuvent plus être ignorées.

Pour une analyse d’élargissement par collisions, on trouve, pour $T_S = 150$ °C, $\Gamma \approx 3$ GHz/Torr et $\Gamma \approx 17$ GHz/Torr pour $T_S = 600$ °C. Ces mesures ne sont pas en accord avec les résultats trouvés sur la littérature, qui est de l’ordre de 1 GHz/Torr (voir par exemple [79, 80]), notamment à haute température de la surface. Cette différence peut venir du fait que la mesure de la pression n’est pas bien raccordée à la température du réservoir. En effet, la largeur des spectres à $T_S = 600$ °C est toujours plus élevée comparée à celle de $T_S = 150$ °C, sauf, à basse pression de Cs. Ce point est confirmé lorsqu’on analyse l’amplitude des spectres à ces deux températures de la surface, car il y a plus d’atomes à haute température de la surface en relation à basse T_S . Ainsi, une fois que la température de la surface a atteint une valeur élevée, le réservoir est également plus chaud que ce qui indique par le thermocouple, ce qui augmente, par conséquence, la pression de la vapeur dans la cellule, donc, $(C_1\gamma)_{150\text{ °C}} < (C_1\gamma)_{600\text{ °C}}$ (en fait, la grandeur $(C_1\gamma \propto N$, où N est la densité atomique proche à la surface). Par exemple, pour la température du réservoir ~ 70 °C, le four du réservoir est complètement éteint quand la température de la surface est de 600 °C.

Nous voyons que le déplacement par pression est négligeable, en raison de la dispersion des points. En effet, selon, les résultats obtenus sur la référence [80], le déplacement par pression des structures hyperfines du niveau $6P_{1/2}$ n’est observable que pour $P \gtrsim 1$ mTorr.

Finalement, le coefficient de vdW, apparait constant dans nos mesures avec la pression, indépendamment de la largeur des spectres, avec, $C_3^{150} = 1,6 \pm 0,3$ kHz. μm^3 et $C_3^{600} = 1,65 \pm 0,3$ kHz. μm^3 . Nos incertitudes nous empêchent de distinguer entre ces deux valeurs.

Pour essayer de comprendre qui se passe sur la largeur des spectres de RSFM, nous avons effectué des expériences aussi de RSFM sur d’autres cellules avec une surface de saphir. Cependant, les résultats, pour la largeur des spectres et du coefficient de vdW, obtenus ont été identiques à ceux mesurés pour la cellule avec la surface de saphir super polie.

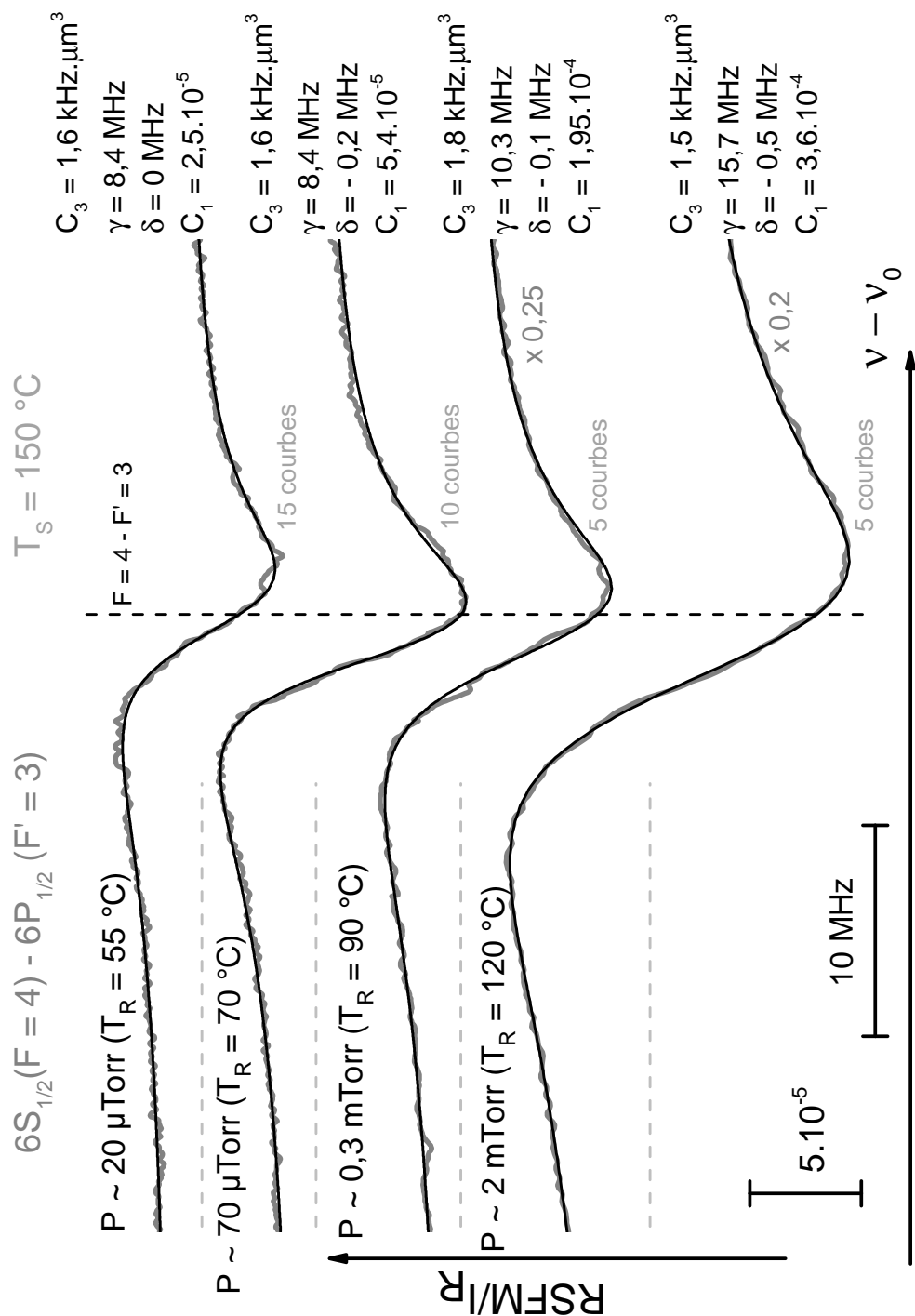
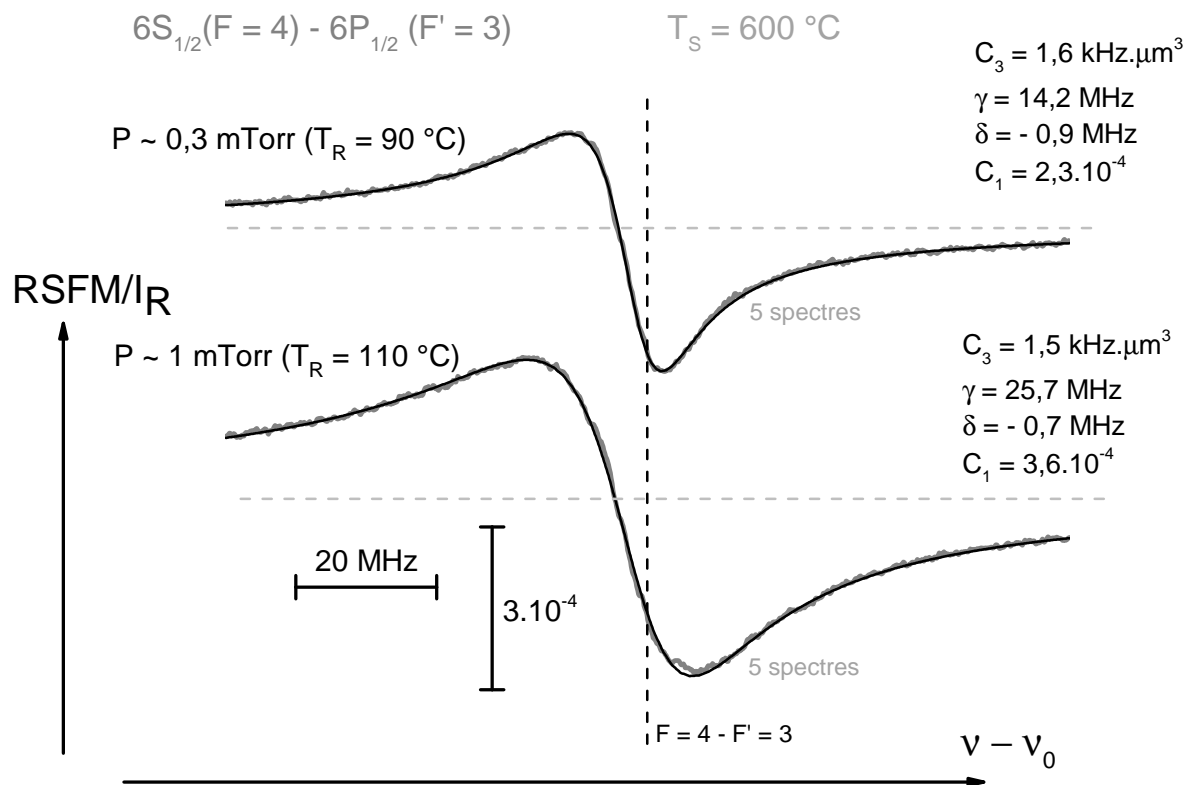
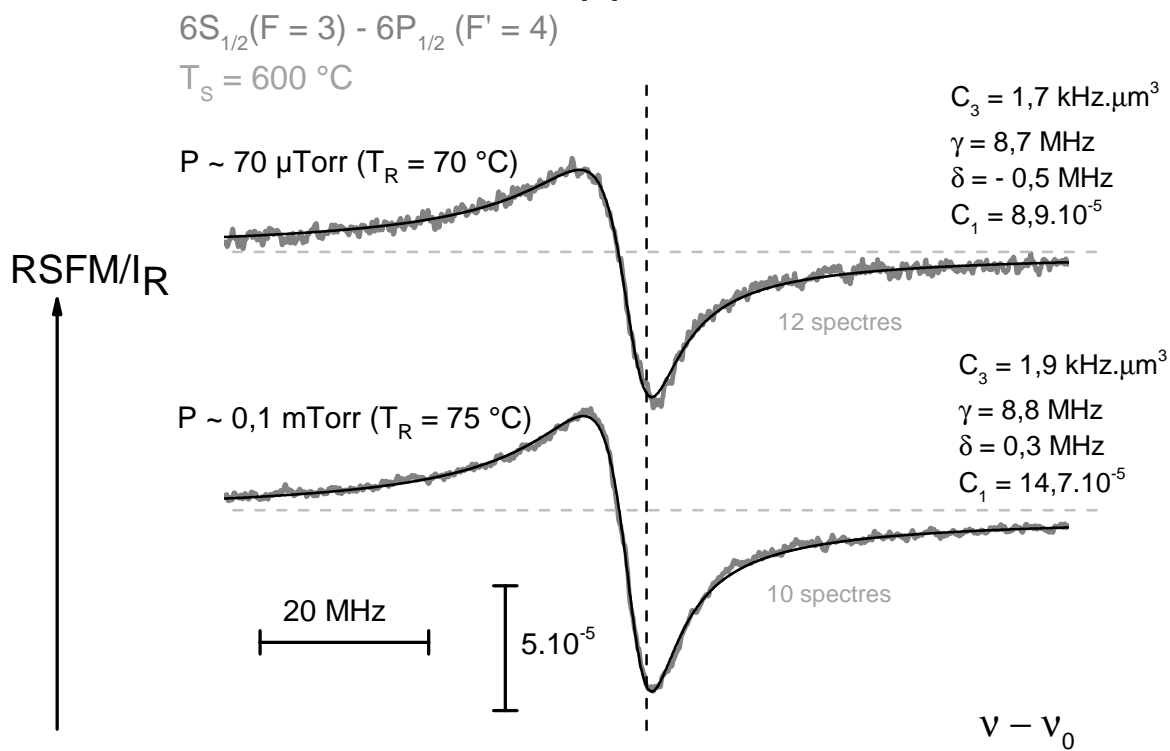


FIGURE 6.11: Spectres de RFSM sur la transition $6S_{1/2}(F = 4) \rightarrow 6P_{1/2}(F' = 3)$ du césium en fonction de la pression de la vapeur atomique. La température de la surface est maintenue constante avec une valeur de $T_s = 150\text{ °C}$. Il est indiqué le nombre de spectres moyennés. La ligne pointillée à la horizontale indique le zéro de chaque spectre sur l'axe des ordonnées et la verticale, obtenue à l'aide de l'AS de référence, marque où se situe la transition atomique.



(a)



(b)

FIGURE 6.12: Idem de la figure (6.11), mais à $T_S = 600\text{ °C}$. (a) $6S_{1/2}(F = 4) \rightarrow 6P_{1/2}(F = 3)$ et (b) $6S_{1/2}(F = 3) \rightarrow 6P_{1/2}(F = 4)$.

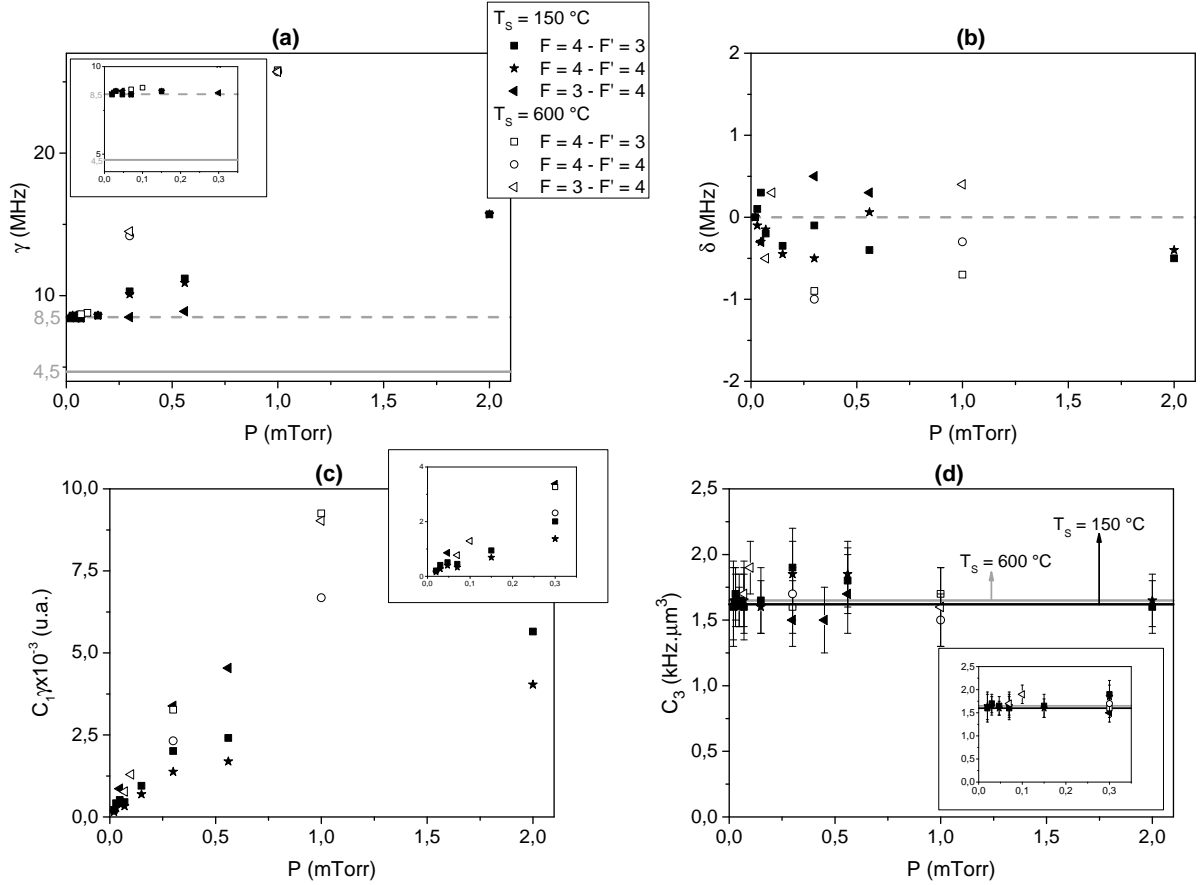


FIGURE 6.13: Évolution, en fonction de la pression de Cs, de quelques paramètres d'après les ajustements numériques sur les spectres expérimentaux de RSFM pour la transition $6S_{1/2} \rightarrow 6P_{1/2}$. (a) la largeur γ , (b) le déplacement δ , (c) l'amplitude $C_1\gamma$ et (d) le coefficient de vdW C_3 .

6.5 Discussion sur le potentiel d'interaction pour la transition $6S_{1/2} \rightarrow 6P_{1/2}$ du césium

Notre résultat expérimental pour le coefficient vdW, de la transition $6S_{1/2} \rightarrow 6P_{1/2}$ interagissant avec le saphir ($1,6 \pm 0,25 \text{ kHz}\cdot\mu\text{m}^3$), est supérieur à celui obtenu auparavant [79], de $1,4 \text{ kHz}\cdot\mu\text{m}^3$. Cependant, avec l'incertitude de nos ajustements numériques, la différence n'est pas significative. En revanche, la prédiction théorique est de $C_3^{the} \approx 1,15 \text{ kHz}\cdot\mu\text{m}^3$ (voir le tableau (6.1)). Il faut pour cela faire la soustraction avec le coefficient de vdW du fondamental- *cf.* table (5.4)-). Les valeurs expérimentales sont donc toujours plus élevées que la prédiction théorique.

Une des explications possibles pour cette différence pourrait tenir dans l'effet de propagation, auquel celle transition est sensible, selon l'étude faite par A. Laliotis & M. Ducloy

[78]. La figure (6.14) montre le déplacement d'énergie de cette transition, interagissant avec une surface de saphir, en fonction de la distance (cette évaluation est identique à celle faite à la sous-section (5.8.2)). Nous observons que le potentiel ne varie exactement pas comme z^{-3} , jusqu'à une distance de la surface de $z \approx 70$ nm. Au delà, pour des distances $70 < z < 200$ nm, le potentiel d'interaction atome-surface en z^{-3} paraît valide avec le C_3 mesuré. En effet, pour que le déplacement vdW, d'après nos mesures, soit comparable à la largeur de nos spectres (par exemple quand $\gamma \approx 8,5$ MHz), il faut que $z \gtrsim 70$ nm, puisque la région optiquement sondée avec le plus de détail est celle où la largeur de raie est comparable au déplacement dû à l'interaction atome-surface (soit $C_3 = 1,6 \text{ kHz} \cdot \mu\text{m}^3$, le $|\delta_{\text{vdW}}| \approx 7,5$ MHz à $z = 60$ nm).

Les variations de γ de l'atome quand il s'approche de la surface le γ ($z \rightarrow 0$ cf. fig. (6.14)) peuvent s'interpréter comme une désexcitation de l'atome dans les modes évanescents de la surface, et qui dépend de l'indice de réfraction de celle-ci [81].

En revanche, l'effet de propagation n'explique pas la différence entre la largeur des spectres de RSFM ($\sim 8,5$ MHz) à $P \rightarrow 0$ et celle théorique ($\sim 4,5$ MHz). Si on peut prévoir que $\gamma(z) \approx 8,5$ MHz, c'est pour une distance ≤ 30 nm, où le déplacement vdW est simultanément devenu très important, $\geq 30 - 50$ MHz (cf. fig. (6.14)).

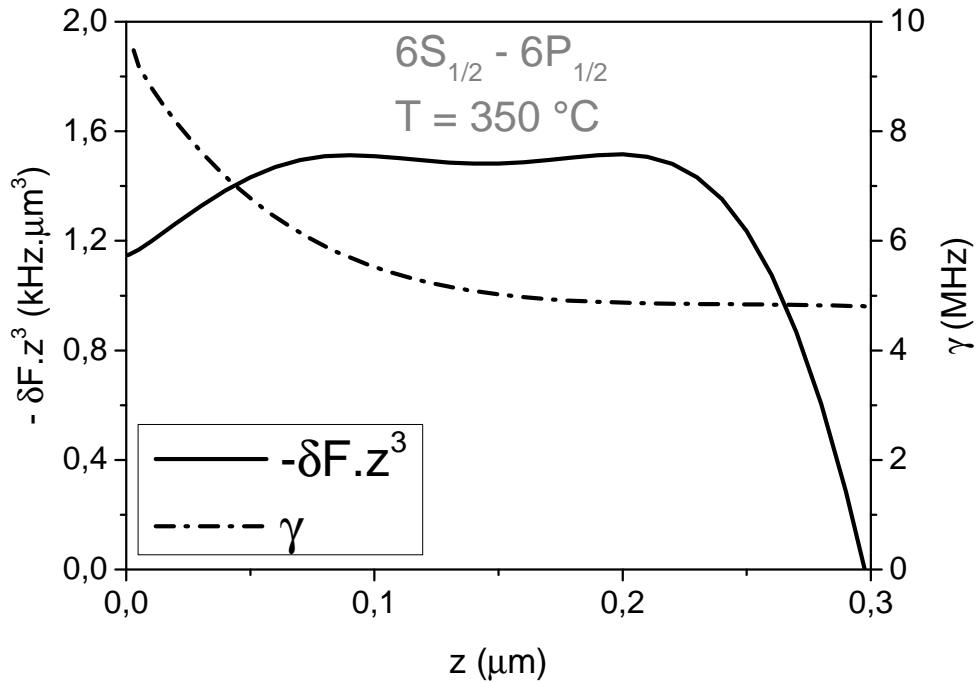


FIGURE 6.14: Le déplacement d'énergie (en noir) et la largeur (en trait-pointillé), dû à l'interaction atome-surface, en fonction de la distance. Le déplacement d'énergie est multiplié par z^3 pour être comparé au C_3 .

Pour essayer d'expliquer cet écart entre la largeur des spectres de RSFM, dans la région de basse pression de la vapeur, et la largeur homogène de la transition $6S_{1/2} \rightarrow 6P_{1/2}$ du césium, nous avons mis en place des expériences auxiliaires décrites à la section suivante.

6.6 Expériences d'absorption saturée à forte épaisseur optique

Nous avons effectué une absorption saturée dans la cellule de nos expériences principales de réflexion sélective (cellule de saphir super poli), avec l'objectif de mesurer la largeur provenant d'un élargissement additionnel par des impuretés, ou par le dispositif "laser avec FM".

Nous voulons réaliser les expériences d'AS dans les mêmes conditions de température que les expériences de réflexion sélective. La difficulté est que dans ces conditions, la cellule correspond à un milieu optiquement très dense. Ainsi, même à la "faible pression" pour le RS ($P \approx 13,5 \mu\text{Torr}$), une absorption importante ($\sim 80\%$) se fait sur ~ 1 cm (notre cellule avec la surface de saphir super polie a une longueur de 8 cm). Cependant, on sait que des expériences d'absorption saturée dans un milieu dense, où des faisceaux d'intensité modérée sont complètement absorbés pris individuellement, ont été déjà réalisées (S. Svanberg *et al* [82]).

La figure (6.15) montre le schéma expérimental pour obtenir nos spectres d'absorption saturée. Le principe est d'envoyer deux faisceaux contre-propageants, dont l'un des faisceaux est la sonde, saturante et avant propagation et absorption, et l'autre faisceau est la pompe, de faible intensité (pour la raie D_1 du césium, l'intensité de saturation a une valeur de $\sim 2,5 \text{ mW.cm}^{-2}$ [73]). Le faisceau pompe est modulé en amplitude, et on ne détecte que l'effet croisé pompe/sonde pour obtenir le signal AS sans l'absorption linéaire. Le faisceau sonde est saturant à l'entrée pour pouvoir pénétrer le milieu atomique, mais il est atténué le long de son parcours, et dans la région d'intersection pompe-sonde, le faisceau sonde a une intensité bien en dessous de celle de saturation. On vérifie bien en sortie (près de la fenêtre de RS), que l'intensité du faisceau sonde est très inférieure à l'intensité de saturation.

Comme nos expériences d'absorption saturée n'ont pas été faites de façon habituelle (milieu optiquement dense), et pour évaluer les incertitudes, nous faisons deux séries de

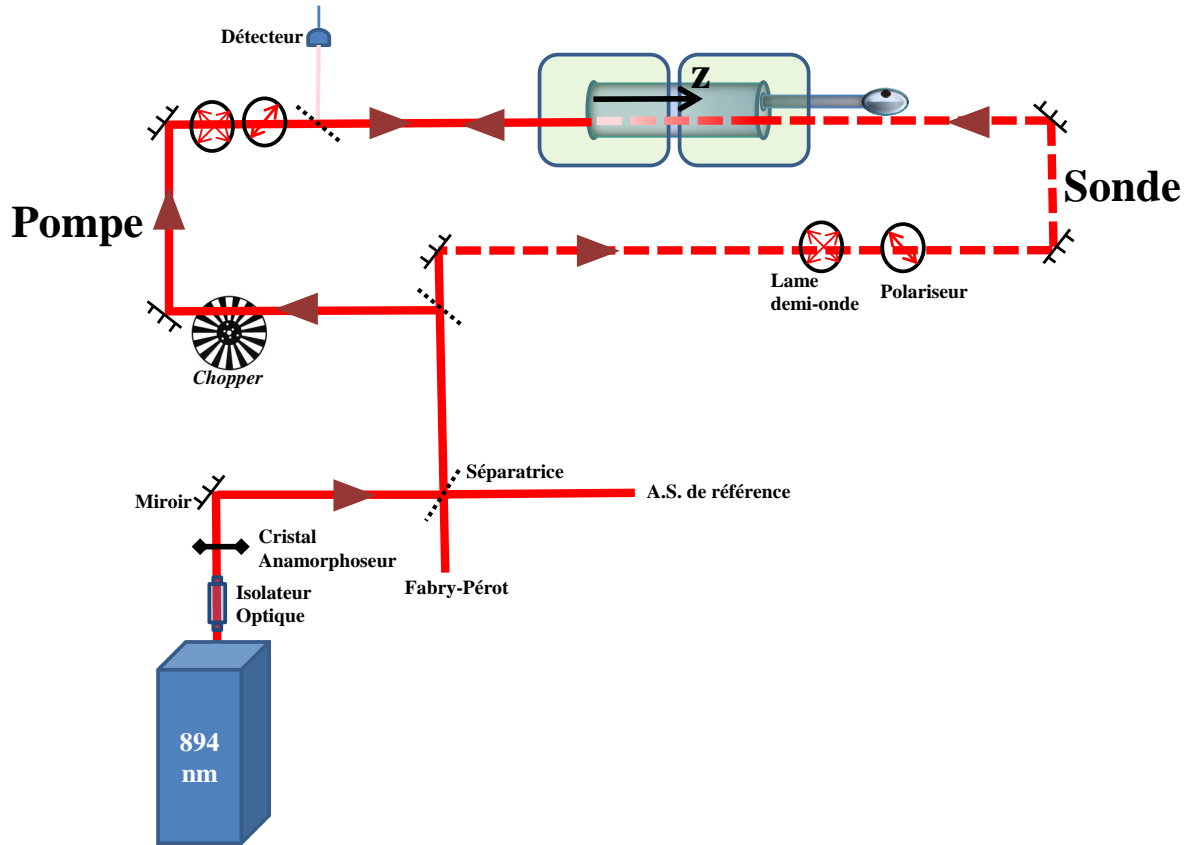


FIGURE 6.15: Schéma du montage expérimental pour l'absorption saturée sur la transition $6S_{1/2} \rightarrow 6P_{1/2}$ du césium sur la cellule qui possède la surface de saphir super polie. Le faisceau pompe est AM Le *chopper* permet une modulation de ~ 2 kHz.

mesures : la première avec une intensité pompe (à l'entrée) constante $I_{\text{pompe}} \approx 1 \mu\text{W}/\text{cm}^2$ en variant I_{sonde} (voir la figure (6.16)) et la deuxième, avec une intensité sonde constante, à l'entrée, de $I_{\text{sonde}} \approx 6 \text{ mW}/\text{cm}^2$ (*cf.* fig. (6.17)).

À partir de l'intensité du faisceau sonde mesurée à la sortie de la cellule (*cf.* figures (6.16) - (6.20)), on peut calculer, à partir de la loi de Beer-Lambert, s'il est saturant sur la région où l'intensité du faisceau pompe n'est pas négligeable, et peut donc contribuer au signal d'absorption saturée. Cette évaluation est justifiée par le fait que l'intensité du faisceau sonde est très au-dessous de celle de saturation à la sortie de la cellule (NB : au début de son parcours, le faisceau sonde sature le milieu atomique, et la loi de Beer-Lambert n'est pas applicable). Prenons comme exemple, la figure (6.16), où $I_{\text{sonde,sortie}} \approx 2 \text{ nW}/\text{cm}^2$. Dans ce cas, le faisceau pompe contribue à une distance de la surface jusqu'à

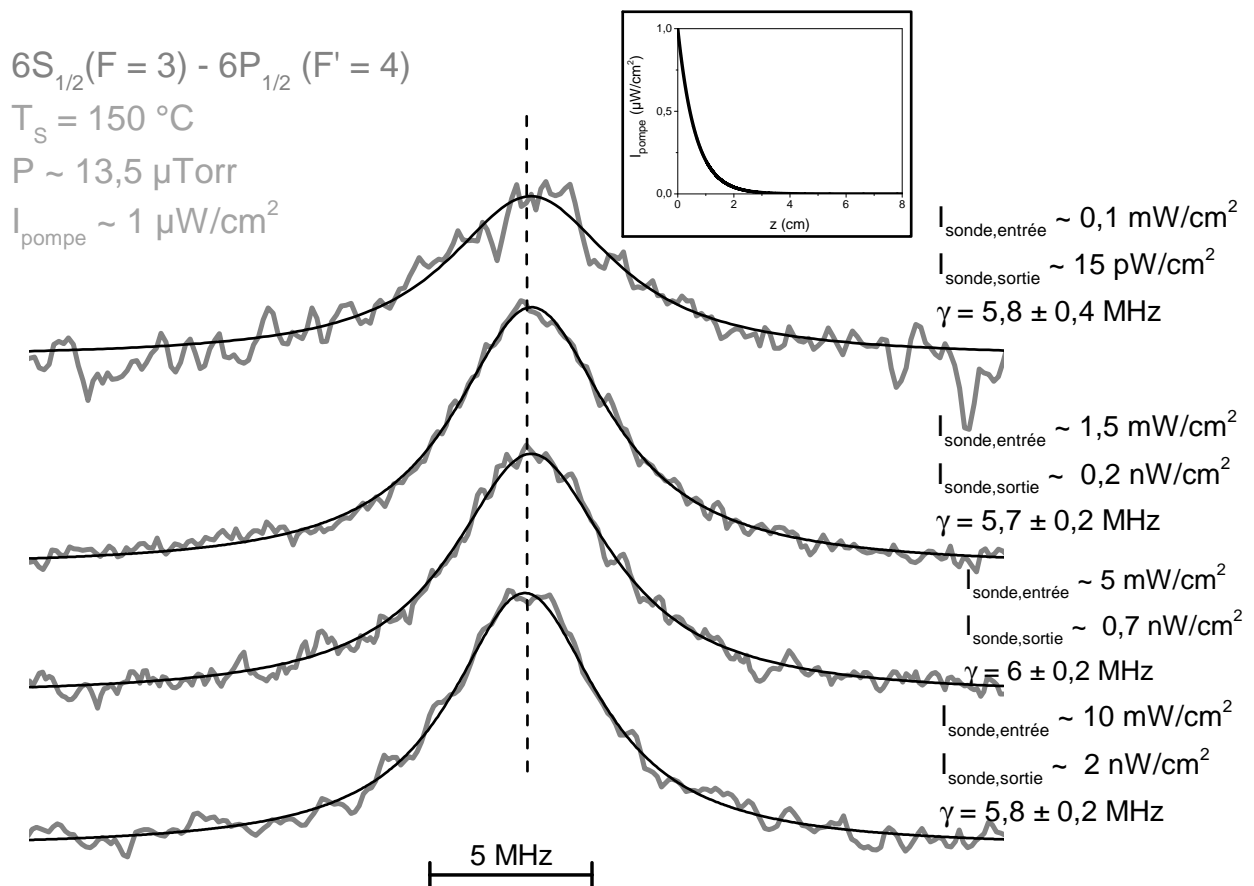


FIGURE 6.16: Spectres expérimentaux d'absorption saturée, pour la transition $6S_{1/2} (F = 3) \rightarrow 6P_{1/2} (F' = 4)$, détectés sur la cellule avec la fenêtre en saphir super polie et ajustement par une Lorentzienne. L'intensité du faisceau pompe est maintenue constante à $I_{\text{pompe}} \approx 1 \text{ } \mu\text{W}/\text{cm}^2$, tandis que l'intensité du faisceau sonde, à l'entrée, peut varier $0,1 \text{ mW}/\text{cm}^2 < I_{\text{sonde}} < 10 \text{ mW}/\text{cm}^2$. Dans le coin supérieur droit est présentée la région où la pompe affecte le milieu atomique (le paramètre de base pour obtenir la constante d'atténuation à partir la loi de Beer-Lambert est que à température ambiante, $\sim 20 \text{ }^\circ\text{C}$, et une longueur de $\sim 8 \text{ cm}$, le faisceau laser, non-saturant, est absorbé de 80%). L'intensité du faisceau sonde à la sortie est indiquée, pour savoir s'il reste saturant dans la région où le faisceau pompe est assez efficace pour contribuer à l'absorption saturée. L'amplitude des spectres est ici en échelle arbitraire. La ligne verticale, obtenue par l'AS de référence, marque où se situe la transition atomique.

$\sim 2 \text{ cm}$. Ainsi, pour cette distance nous avons que $I_{\text{sonde}}(2 \text{ cm}) \approx 50 \text{ nW}/\text{cm}^2$, qui est une intensité très au-dessous de la saturation. Une analyse identique peut être faite pour les spectres présentés sur la figure (6.17). Dans ce cas, l'intensité d'entrée du faisceau pompe est $\sim 0,5 \text{ mW}/\text{cm}^2$, l'intensité devient insignifiante à partir d'une distance de $\sim 6 \text{ cm}$. Ainsi, d'après la loi de Beer-Lambert, après 6 cm la sonde a une intensité de $\approx 7 \text{ } \mu\text{W}/\text{cm}^2$. Pour tous les spectres, nous pouvons confirmer que le faisceau sonde ne sature pas le milieu atomique dans la région où a lieu l'absorption saturée (induite par le

faisceau pompe).

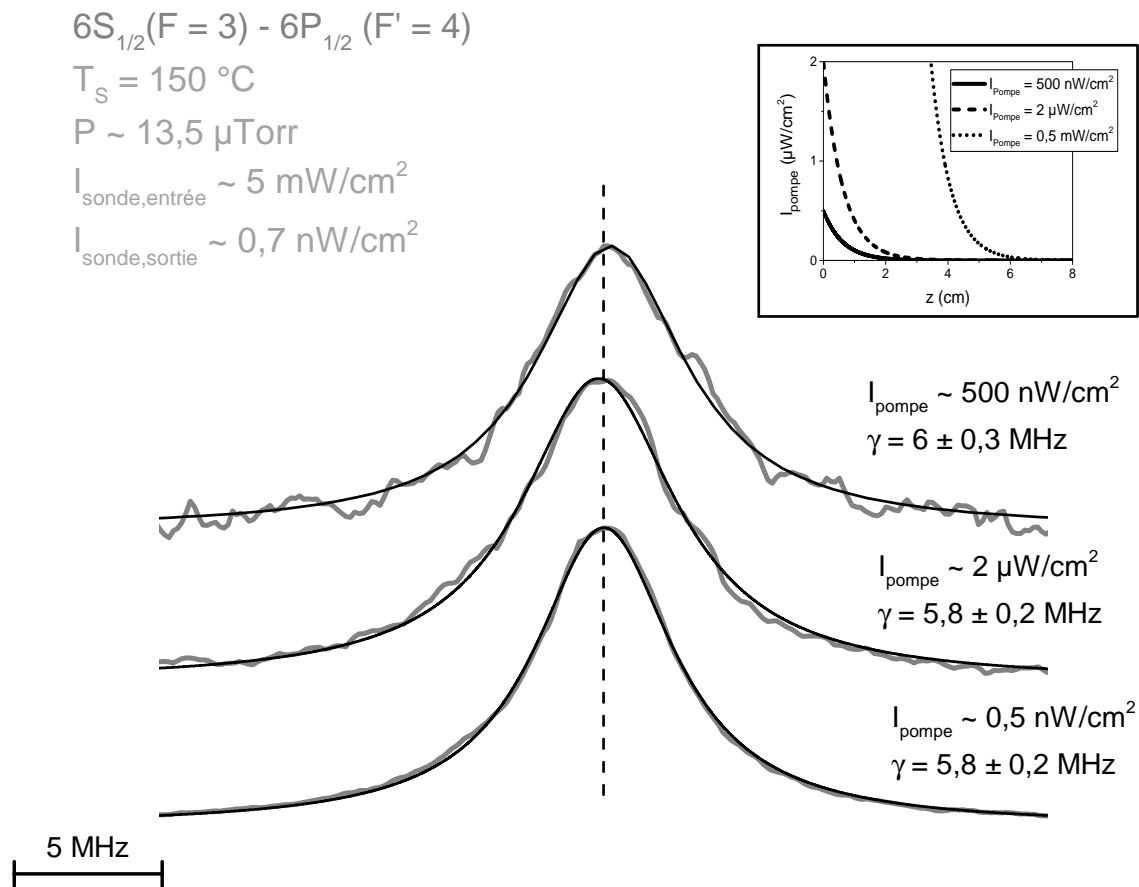


FIGURE 6.17: Idem que fig. (6.16), mais ici avec intensité du faisceau sonde constante et différentes intensités pompe.

L'incertitude des ajustements numériques sur les spectres expérimentaux d'AS vient de la largeur minimale et maximale autour de la valeur centrale acceptable. Nous avons aussi fait des ajustements avant moyennage des courbes expérimentales pour repérer des erreurs systématiques sur les largeurs; on a toujours obtenu ~ 6 MHz.

Jusqu'ici, d'après les analyses sur les spectres expérimentaux d'AS, la largeur mesurée de la transition $6S_{1/2} \rightarrow 6P_{1/2}$ du césium est $\gamma = 6 \pm 0,3$ MHz. Ceci reste au-dessus ($\sim 40\%$) de la largeur naturelle théorique.

6.6.1 Absorption saturée AM-FM

Pour s'assurer que la modulation en fréquence sur le laser, utilisée pour obtenir les spectres de RSFM, n'est pas responsable de la largeur "excessive" observée en RS, nous avons gardé cette modulation, en effectuant une détection FM (excursion pic-à-pic de ~ 2 MHz avec une fréquence de ~ 10 kHz) sur le signal ASAM. Pour cela, la détection

utilise une double démodulation. L'excursion de modulation (FM) est identique à celle utilisée sur les spectres de RSFM. Les constantes de temps sur les *lock-in*, en cascade, ont été, respectivement, 0,3 ms (FM @10 kHz) et 100 ms (AM @300 Hz). Avec ces constantes de temps, on démodule d'abord la fréquence la plus élevée (FM) puis la fréquence moins élevée (AM). Par conséquent, on obtient la dérivée des spectres d'absorption saturée, à la sortie du *lock-in*. Nous avons ajusté ces spectres théoriquement par la dérivée d'une courbe *Lorentzienne* ($L(\delta)$), comme indiqué à l'équation (6.1).

$$\dot{L}(\delta) = -\frac{16}{\pi} \frac{\delta\gamma}{(4\delta^2 + \gamma^2)^2} \quad (6.1)$$

où γ est la largeur de la *Lorentzienne* et δ est le désaccord de la fréquence de la lumière par rapport la fréquence de transition atomique. Remarquons que la distance entre les sommets, de la dérivée d'une courbe *Lorentzienne*, est de $\gamma/\sqrt{3}$ (cf. fig. (6.18)), plus étroit donc que la largeur de la *Lorentzienne* originale.

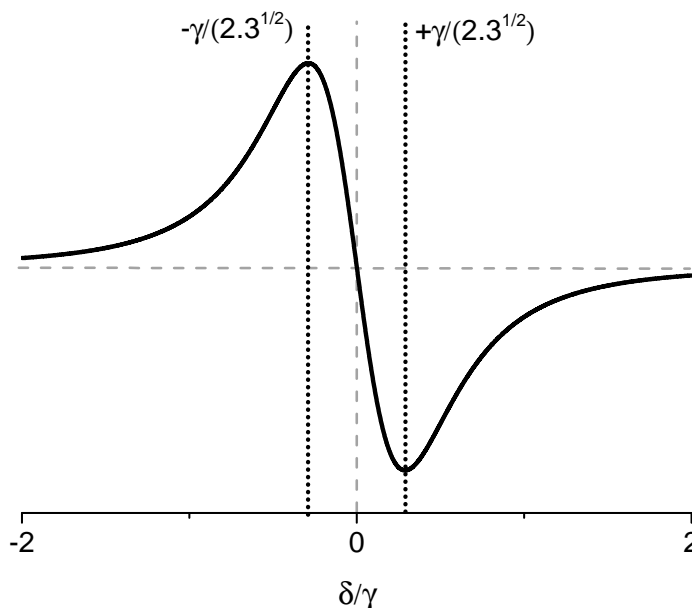


FIGURE 6.18: Courbe théorique d'une dérivée de *Lorentzienne* selon l'équation (6.1). Les lignes en gris montrent les "zéros" sur les axes des ordonnées et des abscisses (le zéro est la fréquence de transition atomique). La ligne pointillée noir indique où se situe les sommets de la courbe.

La figure (6.19) présente le spectre d'absorption saturée doublement démodulé, AM plus FM. Le meilleur ajustement théorique, fait à partir de la dérivée d'une *Lorentzienne* (cf. eq. (6.1)), est également exposé. Un point remarquable pour la figure (6.19) est que la FM appliquée sur la RS n'interdit pas une mesure à 4,5 MHz, vu que la distance entre

les pics du spectre est de $\sim 3,5$ MHz ($\gamma/\sqrt{3}$). Ceci confirme à une largeur de l'absorption saturée dans la cellule valant, approximativement, 6 MHz.

La figure (6.20) montre une absorption saturée (seulement AM) à la température ambiante, où nous percevons que la largeur de la transition reste encore à une valeur 6 MHz. La petite augmentation de la densité atomique dans la cellule ne fait pas élargir la transition.

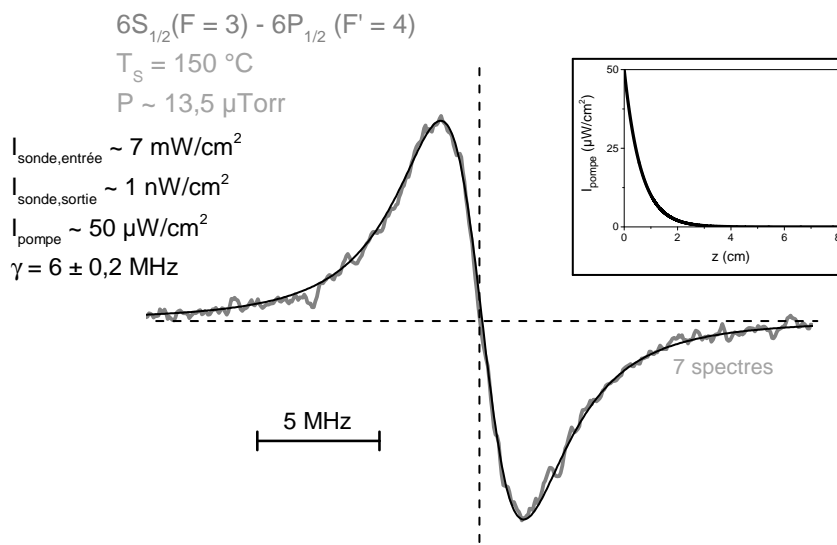


FIGURE 6.19: Spectre d'absorption saturée AM-FM. La distance pic à pic est ~ 4 MHz.

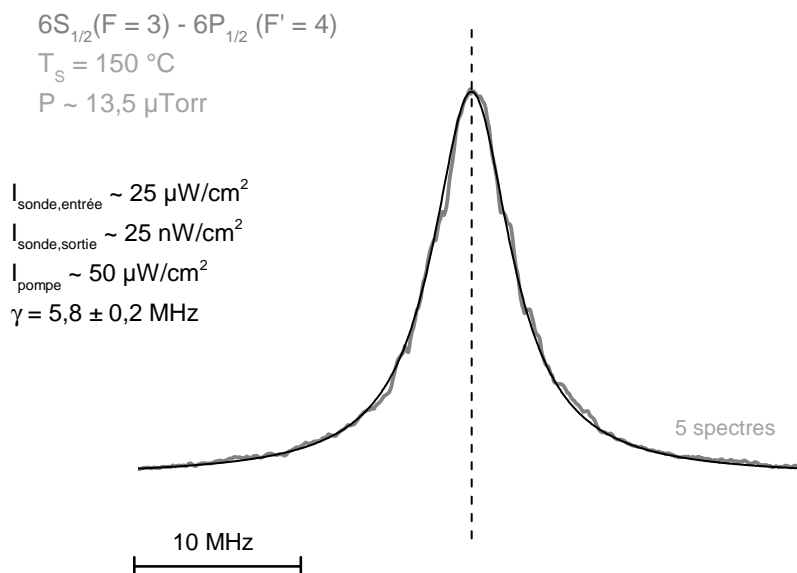


FIGURE 6.20: Détection du signal d'absorption saturée quand la cellule avec la surface de saphir super polie était à température ambiante.

6.7 Conclusion

Dans ce chapitre, on a repris des mesures de réflexion sélective, d'apparence élémentaire, pour mesurer le coefficient de vdW sur la raie D_1 du césium, mais sur la cellule d'intérêt pour la RS (surface de saphir très bien contrôlée). Nous avons aussi effectué des études en fonction de la température de la surface.

La valeur expérimentale du C_3 à l'interface avec le saphir, pour $T_S = 150$ °C et $T_S = 600$ °C paraît très indépendante de la température. On peut conclure que pour ces deux températures de la fenêtre $C_3(6P_{1/2}) - C_3(6S_{1/2}) = 1,6 \pm 0,3$ kHz. μm^3 . Cette valeur est d'environ 40% supérieur à la valeur prédite théoriquement, évaluée à $z \rightarrow 0$. Cependant, pour une région 70 nm $< z < 200$ nm, où $\delta_{\text{vdW}} \approx \gamma$, le C_3 mesuré est compatible avec la prédiction théorique. En effet, les effets de retard, pour la transition $6S_{1/2} \rightarrow 6P_{1/2}$ du césium interagissant avec une surface de saphir, jouent un rôle même à une distance assez proche de la surface ($z < 100$ nm), qui correspond à celle sondée par la technique de RS (de l'ordre de $\lambda/2\pi \approx 140$ nm, pour $\lambda = 894$ nm).

En revanche, en réflexion sélective, la largeur des spectres ($\gamma \approx 8,5$ MHz) est toujours plus élevée que la largeur naturelle ($\gamma_0 \approx 4,5$ MHz), même lorsque les collisions peuvent être ignorées. Les expériences complémentaires de réflexion sélective sur d'autres cellules ont aussi donné $\gamma \approx 8,5$ MHz.

Les expériences d'absorption saturée, dans les mêmes conditions utilisées que pour RS, ont montré une largeur de ~ 6 MHz certes plus élevée que la largeur naturelle, mais seulement moindre que la largeur en RSFM. Des largeurs expérimentales de $\sim 4-4,5$ MHz sont même observables avec notre laser FM. Il reste donc une subtilité un peu mystérieuse qui nous échappe dans ces expériences de contrôle en principe très "élémentaire".

CHAPITRE 7

ÉTUDES DE LA FLUORESCENCE RÉTRODIFFUSE EN MILIEU OPTIQUEMENT ÉPAIS

Jusqu'ici, nous avons effectué des expériences de réflexion sélective et elles n'étaient sensibles que au δ_{vdW} . Quand un atome peut se coupler aux modes excités de polariton de surface, un transfert réel d'énergie thermique peut avoir lieu. C'est ce que nous attendions pour le système Cs ($7P_{1/2}$) /saphir avec un transfert attendu vers $6D_{3/2}$. Cependant, à partir des spectres de RS (*cf.* chap. (5)), nous n'avons pas pu quantifier ce transfert avec le paramètre Γ_3 (défini au chapitre (2)). Il est connu depuis H. Failache et al [16] que les collisions peuvent transférer le niveau $6D$ au niveau $7P$, masquant éventuellement les effets de transfert réel entre les modes de polariton de surface et l'atome. Ainsi, pour essayer de mieux comprendre les échanges d'énergie pour la transition $7P \rightarrow 6D$, notamment dans une cellule chaude, nous avons réalisé des expériences de diagnostic par fluorescence, au voisinage (macroscopique) de la surface.

Tout d'abord (7.1), on fait un bref rappel pour le cas général d'un spectre de fluorescence, où nous étudions une situation hypothétique dans laquelle tous les photons de fluorescence sont détectés à l'intérieur d'un certain volume. Puis (7.2) nous présentons les niveaux d'énergie, accessibles pour des atomes excités au niveau $7P$ (par transfert du corps noir et/ou par collision). De plus, dans (7.2), nous décrivons le montage expérimental de "rétrofluorescence"; les résultats expérimentaux sont présentés ensuite (7.3), où on analyse les spectres de fluorescence. Dans (7.4), on s'intéresse aux spectres d'excitation de la fluorescence, qui présentent un creux au centre de raie. Une étude plus soignée

montre la présence d'une structure sub-Doppler [35]. Cette structure avait été signalée dans la littérature [83, 84], mais avec une interprétation inadéquate. Nous résumons finalement, le modèle théorique publié dans [35], qui explique l'apparition de ce creux par une désexcitation sur la paroi sélective en vitesse, et qui est annexé au chapitre.

7.1 Généralités sur la fluorescence

On considère une vapeur atomique dont la fréquence de transition atomique est ν_0 . Lorsque la vapeur est illuminée avec des photons à une fréquence ν proche de la transition atomique, ceux-ci sont absorbés et les atomes passent dans un état excité. Ces atomes excités vont se désexciter vers un niveau de plus basse énergie (dans le cas d'un atome de deux niveaux, l'état de plus basse énergie est l'état fondamental) en émettant des photons, avec une égale probabilité dans toutes les directions, ce qui constitue la fluorescence. L'analyse du spectre de fluorescence peut fournir plusieurs informations liées à la durée de vie d'un niveau atomique ou au transfert d'énergie entre niveaux atomiques (collisions, *energy pooling*¹, corps noir, etc).

Avant que le photon émis en fluorescence ne sorte du milieu atomique, il peut rencontrer un autre atome, qui l'absorbe, et émet ultérieurement un autre photon. Ce processus d'absorption et de réémission de photons par les atomes avant détection est appelé emprisonnement de radiation (*radiation trapping*). Par conséquence, la diffusion des photons dans un milieu atomique donne lieu à une importante redistribution de la fréquence laser [86] autour de la fréquence centrale de l'atome.

Lorsqu'on fait passer un rayonnement électromagnétique (un laser, par exemple) de fréquence $\nu \sim \nu_0$ dans une vapeur résonnante, par la loi de Beer-Lambert, l'intensité de la lumière transmise décroît exponentiellement avec la longueur L. Si on suppose que tous les photons émis par les atomes, après l'absorption, sont collectés sous un angle solide Ω , le signal de fluorescence est proportionnel à $\frac{\Omega}{4\pi} (I_0 - I_L)$, avec $I_L = I_0 e^{-\alpha(\nu)L}$. Ainsi, le signal de fluorescence vérifie :

$$\frac{I_L}{I_0} \propto \frac{\Omega}{4\pi} (1 - e^{-\mathcal{N}\alpha(\nu)}) \quad (7.1)$$

où I_0 est l'intensité initiale, L est la longueur de la cellule et où $\alpha(\nu)$ est le coefficient

1. *Energy-pooling* est un processus de collision entre deux atomes excités d'où l'un des atomes se désexcite vers le niveau fondamental et l'autre passe à un état plus excité (voir par exemple [85]).

d'absorption linéaire, proportionnel à la densité N de particules (atomes) - en supposant que la densité ne fait pas varier, par exemple par élargissement collisionnel, la réponse individuelle d'une particule (atome) : $\alpha(\nu) = NA(\nu) = NA_0g(\nu)$, où $A(\nu)$ est la réponse spectrale d'une particule, et où $g(\nu)$ est une réponse spectrale normalisée autour de la rsonance ν_0 [i.e. $g(\nu_0) = 1$]. Dans ce cadre, le paramètre quantitativement important pour l'absorption totale est NL (que l'on note $\mathcal{N} = NL$).

À partir de l'équation (7.1), nous présentons (fig. (7.1)) les spectres de fluorescence pour différentes valeurs de \mathcal{N} , qui caractérise l'épaisseur optique, et en supposant pour la réponse spectrale $g(\nu)$ une réponse gaussienne associée à un élargissement Doppler de l'absorption. Le spectre de fluorescence lui-même ressemble à la gaussienne source aux faibles épaisseurs optiques, mais, quand \mathcal{N} devient grand, le laser est complètement absorbé dans le volume détecté et, l'intensité de la fluorescence atteint une valeur limite, et s'élargit notablement (le remplacement pour $g(\nu)$ d'un profil gaussien, par un profil de Voigt, changerait seulement la forme des ailes des courbes présentées à la figure(7.1)).

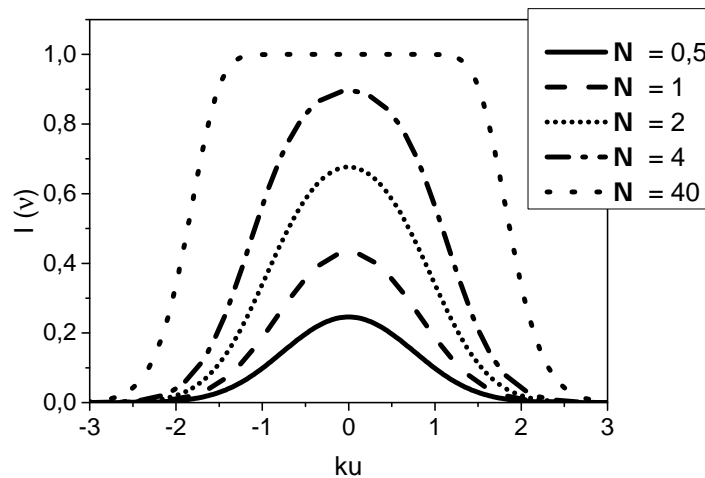


FIGURE 7.1: Spectres numériques de fluorescence selon la densité optique en \mathcal{N} en supposant une réponse gaussienne d'élargissement Doppler.

7.2 Niveaux d'énergie et description expérimentale

7.2.1 Transfert depuis les niveaux Cs ($7P_{1/2}$) et Cs ($7P_{3/2}$)

Pour un atome de Cs dans les niveaux $7P_{1/2}$ ou $7P_{3/2}$, plusieurs voies de transfert d'énergie peuvent être efficaces, soit par désexcitation, soit par transfert collisionnel (figure (7.2)).

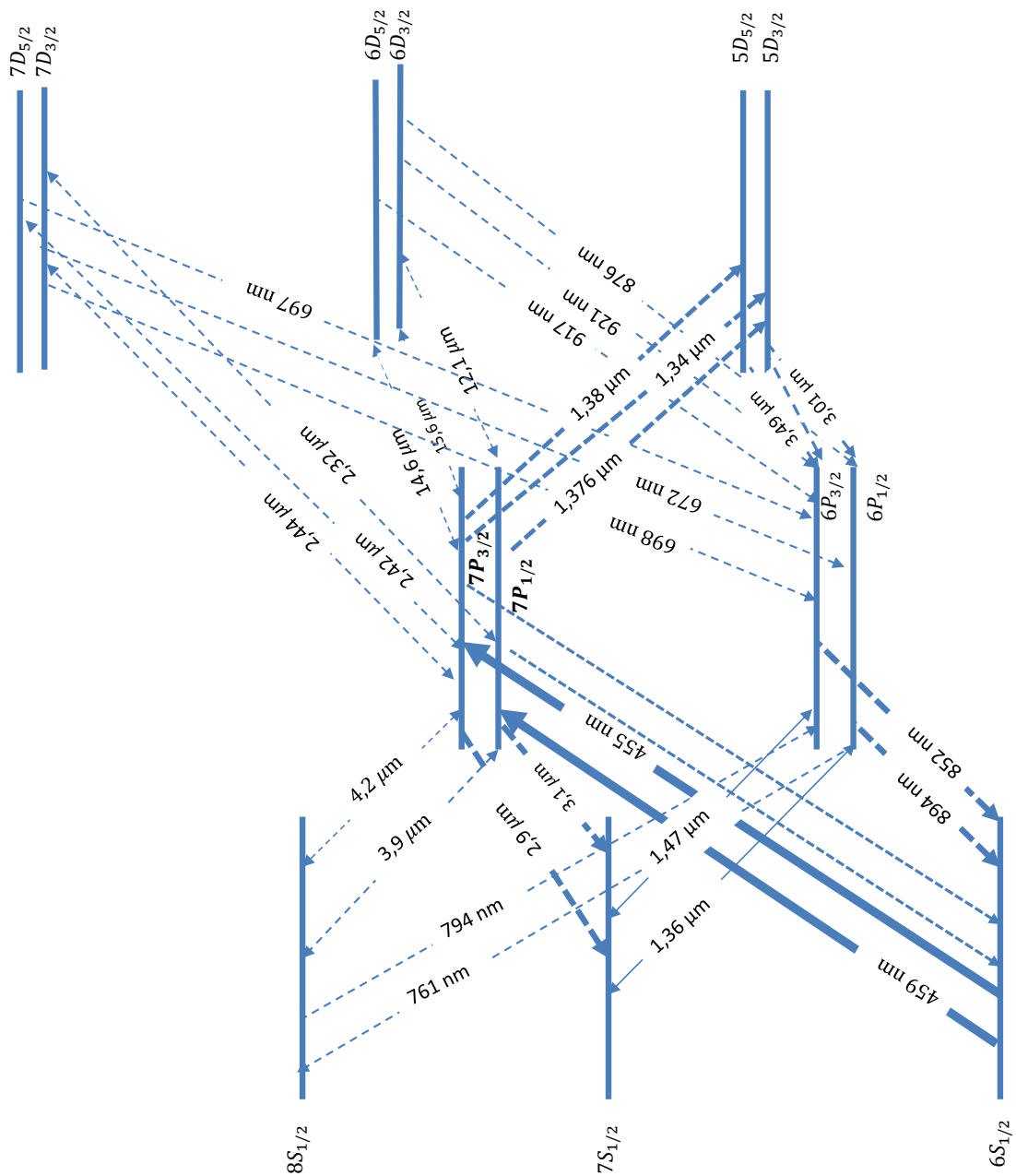


FIGURE 7.2: Principales voies de couplage et chemins de désexcitation des niveaux $7P_{1/2}$ et $7P_{3/2}$. Le niveau $7P$ se désexcite vers $6S$, $7S$ et $5D$, avec une probabilité respective de $\sim 20\%$, $\sim 50\%$ et $\sim 30\%$.

7.2.2 Dispositif expérimental pour collecter la fluorescence rétrodiffuse

7.2.2.a Schéma de la détection

Le schéma de la détection de fluorescence est présenté à la figure (7.3). Les lasers employés dans cette expérience sont ceux déjà utilisés pour réaliser la spectroscopie de réflexion sélective pour les transitions $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{1/2}$ et $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$ (lasers diode à cavité étendue). L'incidence des lasers est choisie quasi-normale à la fenêtre de la cellule (2°). Une absorption saturée auxiliaire est enregistrée simultanément aux spectres d'excitation de la fluorescence. Comme la lumière d'excitation peut subir une forte absorption (les conditions qui nous intéressent sont typiquement celles de la réflexion sélective, où le signal est produit sur ~ 100 nm, et la cellule de Cs est en général celle permettant une forte température pour la fenêtre saphir et le corps de cellule environnant), la fluorescence n'existe que près de la fenêtre d'entrée. Nous la détectons dans une direction à peu près opposée à celle du laser, pour des raisons d'encombrement (géométrie du four, ...). La lumière de fluorescence est collectée par une lentille de fort diamètre (~ 2 cm) et de focale courte ($f = 10$ cm) pour maximiser l'angle solide de collection ($\sim 10^{-2}$ sr).

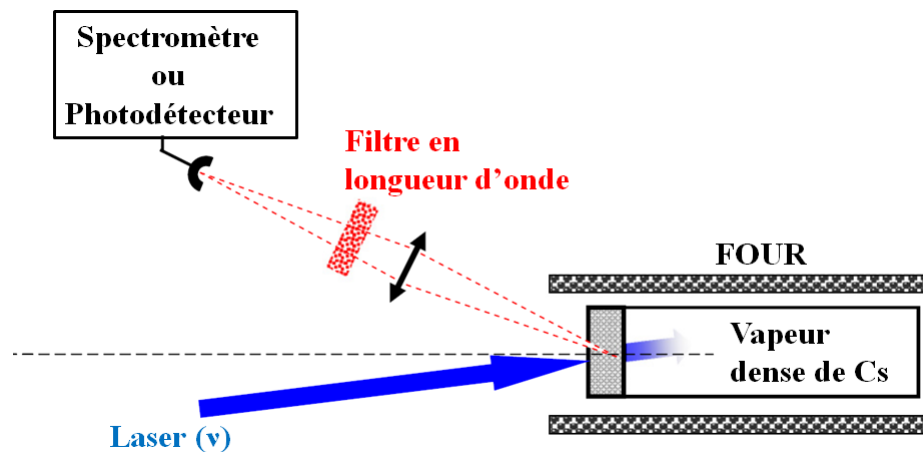


FIGURE 7.3: Schéma expérimental standard pour la détection de la fluorescence.

7.2.2.b Description du spectromètre

Pour les expériences -section (7.3)- visant à analyser le spectre d'émission de la fluorescence, et les échanges d'énergie à partir des niveaux $7P_{1/2}$ et $7P_{3/2}$, on a utilisé un spectromètre sensible aux longueurs d'onde entre ~ 350 et ~ 1100 nm. Ce spectromètre

(OCEAN OPTICS) collecte la lumière à partir d'une fibre optique multimode, d'ouverture de $100 \mu\text{m}$, sur laquelle on focalise la lumière collectée. La sortie de la fibre est connectée au spectromètre qui intègre un réseau de diffraction, et envoie la lumière sur une camera CCD composée de 2048 éléments de détection de $20 \mu\text{m}$. L'échelle en longueur d'onde du spectromètre a été calibrée avec 6 lasers : $\lambda = 459 \text{ nm}$, $\lambda = 455 \text{ nm}$, $\lambda = 894 \text{ nm}$, $\lambda = 852 \text{ nm}$, $\lambda = 633 \text{ nm}$ et $\lambda = 543 \text{ nm}$. L'échelle verticale d'intensité pour chaque canal de longueur d'onde est en "Counts" (une grandeur proportionnelle au nombre de photons). Selon le fournisseur à $\lambda = 400 \text{ nm}$ on a 75 Counts/photons et à $\lambda = 600 \text{ nm}$ on a 41 Counts/photons.

La saturation de chaque élément est pour $14 \cdot 10^4$ Counts, et la saturation peut influencer la détection sur les canaux voisins. Pour corriger la réponse en intensité du spectromètre à chaque longueur d'onde, nous avons détecté l'émission d'une lampe à fil de tungstène qui émet, selon le fabricant, une lumière équivalente à un corps noir à $T = 2800 \text{ K}$. Le temps d'intégration (τ_{exp}) pour l'analyse du spectre des photons collectés peut varier de 1 ms à 60s.

Pour détecter les spectres d'émission de fluorescence, il est utile de soustraire, aux spectres obtenus avec une excitation laser résonnante, les effets de la lumière diffusée quand le laser est hors résonance (décalage de $\sim 50 \text{ GHz}$). On élimine ainsi la diffusion laser (sur les fenêtres du four et de la cellule), qui est monochromatique mais assez intense pour exciter sous incidence oblique divers canaux du spectromètre, et où élimine également les photons de rayonnement du corps noir, émis par la cellule notamment quand elle est à température élevée. De plus, on détecte en général plusieurs spectres (5) d'affilée, à la résonance et hors résonance, pour moyenniser des spectres qui ont été individuellement enregistrés sur des temps assez courts pour éviter la saturation du spectromètre.

7.2.2.c Description du photodétecteur

Pour les expériences décrites en section (7.4) et [35], le détecteur est un simple photodétecteur amplifié du même type que utilisé précédemment (chap. (5) et (6)), éventuellement dans une variante "germanium" sensible à l'infrarouge ($0,8 - 1,7 \mu\text{m}$), dans une bande spectrale éventuellement réduite à $1,1 - 1,5 \mu\text{m}$ par un filtre adapté.

7.3 Résultats expérimentaux obtenus par le spectromètre

Les figures (7.4) et (7.5) montrent des spectres de fluorescence détectés sur le spectromètre à deux températures différentes de la fenêtre et en maintenant la température du réservoir constante, lorsque les excitations laser sont, respectivement, à 455 nm et à 459 nm. On notera sur les figs. (7.4) et (7.5), que les courbes restreintes à la gamme 700–1000 nm (situées à droite) correspondent à des temps d'intégration longs, permettant d'observer des raies de fluorescence ayant de petites amplitudes, au prix d'une saturation visible sur les grandes raies.

Comme attendu, on observe en excitant les atomes sur un niveau $7P$ qu'ils peuvent se désexciter par des cascades vers le niveau résonnant $6P$, d'une façon quantitativement importante par rapport à la fluorescence directe à la longueur d'onde d'excitation.

En excitant le niveau $7P_{3/2}$, on peut remarquer une émission depuis le niveau $7P_{1/2}$ (de même, l'excitation vers $7P_{1/2}$ conduit à une émission depuis $7P_{3/2}$) : l'amplitude du signal est cependant très faible, et ce transfert entre composantes de structure fine, de nature collisionnelle, est déjà connu dans la littérature [87]). On observe aussi des raies depuis les niveaux $8S_{1/2}$ et $6D$, même pour une assez basse température de la surface, et on remarque que l'amplitude de ces signaux (et donc la population de ces niveaux) augmentent fortement avec la température du corps de cellule (et de fenêtre) ; ce transfert est alors à attribuer aux effets de photons du rayonnement de corps de noir. On peut même remarquer que si c'est $7P_{1/2}$ qui est initialement excité, le niveau $6D_{5/2}$ ne peut être peuplé par rayonnement de corps noir. Pourtant, le signal depuis $6D_{5/2}$ augmente aussi avec la température : il faut donc considérer la possibilité d'un transfert (collisionnel) de structure fine à partir du peuplement par rayonnement de $6D_{3/2}$. L'augmentation de la température de la fenêtre fait aussi apparaître la signature d'une fluorescence depuis d'autres niveaux, tels que $7D$, ce qui montre que augmenter la température de cellule conduit à une plus grande variété des niveaux atomiques présents, malgré un pompage limité initialement au seul état $7P$.

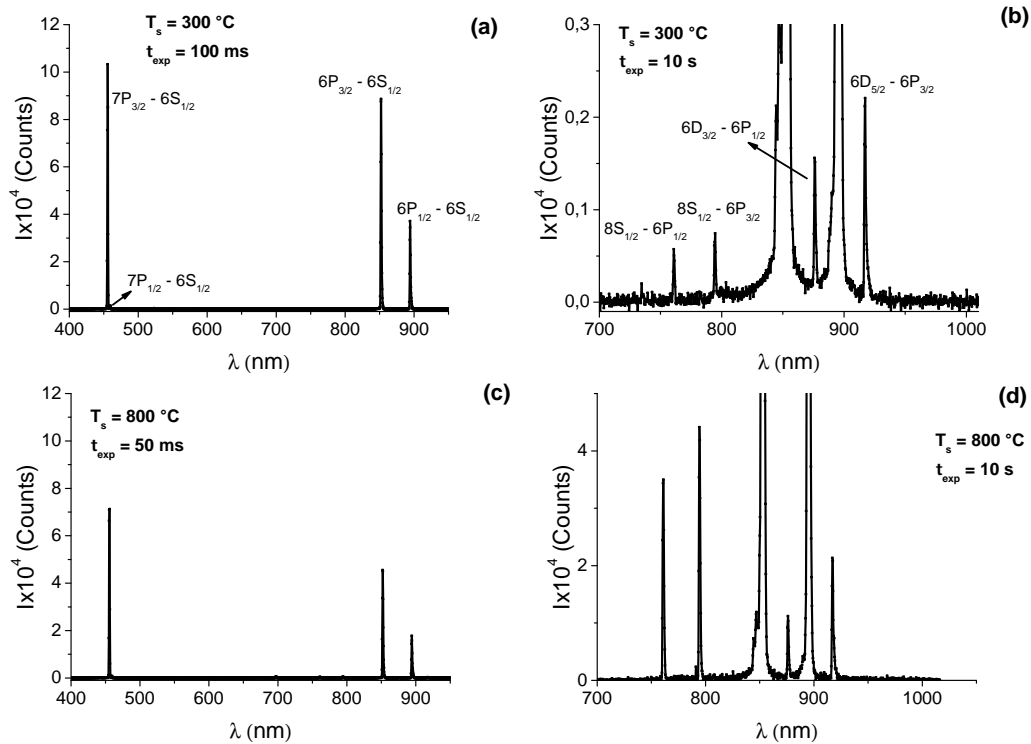


FIGURE 7.4: Spectres de fluorescence détectés pour une excitation sur la transition $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$. La température du réservoir est maintenue constante à $110\text{ }^{\circ}\text{C}$. (a) et (b) $T_S = 300\text{ }^{\circ}\text{C}$ et $\tau_{\text{exp}} = 100\text{ ms}$ et $\tau_{\text{exp}} = 10\text{ s}$. (c) et (d) $T_S = 800\text{ }^{\circ}\text{C}$ et $\tau_{\text{exp}} = 50\text{ ms}$ et $\tau_{\text{exp}} = 10\text{ s}$. Noter entre (a,c) et (b,d) le changement de l'échelle verticale, et horizontale.

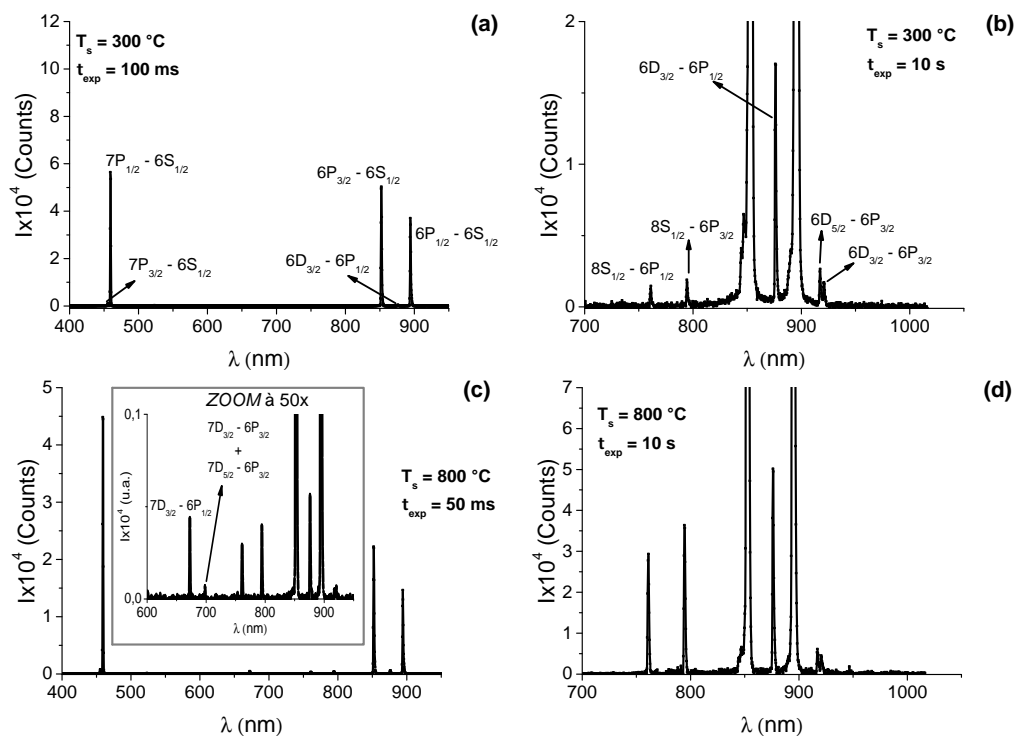


FIGURE 7.5: idem que fig. (7.4), mais pour l'excitation sur $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{1/2}$.

La figure (7.6) présente l'amplitude de la fluorescence depuis le niveau $6D$ en fonction de la densité atomique (température du réservoir et non du corps de cellule). Quand les atomes sont excités vers le niveau $7P_{3/2}$, on voit qu'à basse densité (c'est-à-dire lorsque les transferts collisionnels sont minimales) l'amplitude de la fluorescence ne tombe pas à zéro. Ceci est dû au peuplement par photons de corps noir (*cf.* [88]). Par contre, pour une excitation vers $7P_{1/2}$, et comme indiqué plus haut, $6D_{5/2}$ ne peut être peuplé que par collision de telle sorte que à basse densité, l'amplitude de la fluorescence provenant du niveau $6D_{5/2}$ tombe à zéro (quelle que soit la température).

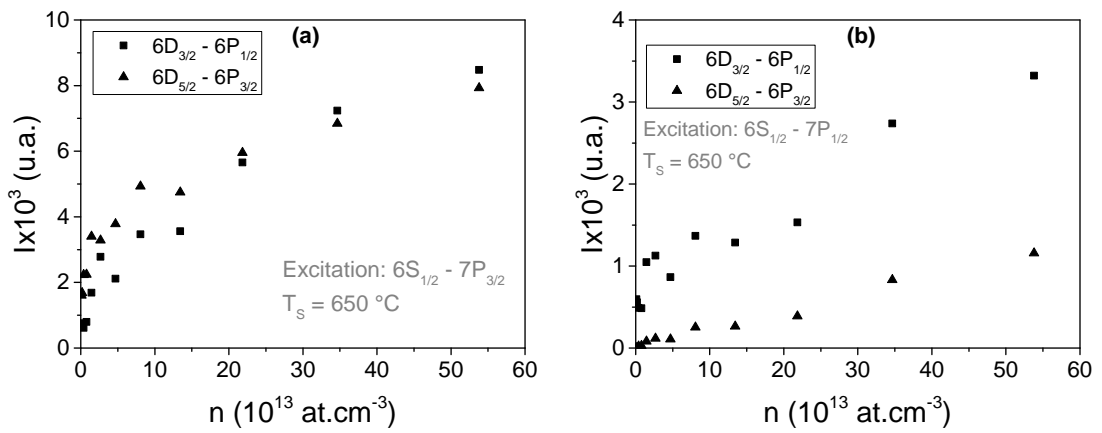


FIGURE 7.6: Amplitude de la fluorescence en fonction de la densité atomique (évaluée selon la température du réservoir) à partir du niveau $6D$. L'excitation est sur la raie (a) $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$ et (b) $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{1/2}$.

Pour mieux comprendre ces phénomènes de transfert, notamment avec une cellule très chaude (800 °C), nous avons mis en place une expérience de spectroscopie d'excitation (balayage en fréquence du laser d'excitation), sélective sur les différentes raies de transfert, qui sont nombreuses (*cf.* figs. (7.4) et (7.5)). Pour cela, on balaye en fréquence le laser à 459 nm (vers $7P_{1/2}$) point par point autour de la résonance, et pour chaque point, on enregistre le spectre délivré par le spectromètre. La figure (7.7) montre les spectres d'excitation pour une détection aux longueurs d'onde 455 nm ($7P_{3/2} \rightarrow 6S_{1/2}$), 894 nm ($6P_{1/2} \rightarrow 6S_{1/2}$), 876 nm ($6D_{3/2} \rightarrow 6P_{1/2}$) et 917 nm ($6D_{5/2} \rightarrow 6P_{3/2}$) avec deux températures de réservoir (120 °C et 170 °C) correspondant à des densités atomiques respectives, $\sim 4,7 \cdot 10^{13} \text{ at.cm}^{-3}$ et $\sim 5,4 \cdot 10^{14} \text{ at.cm}^{-3}$, et donc à des régimes collisionnels et de densité optique très différents.

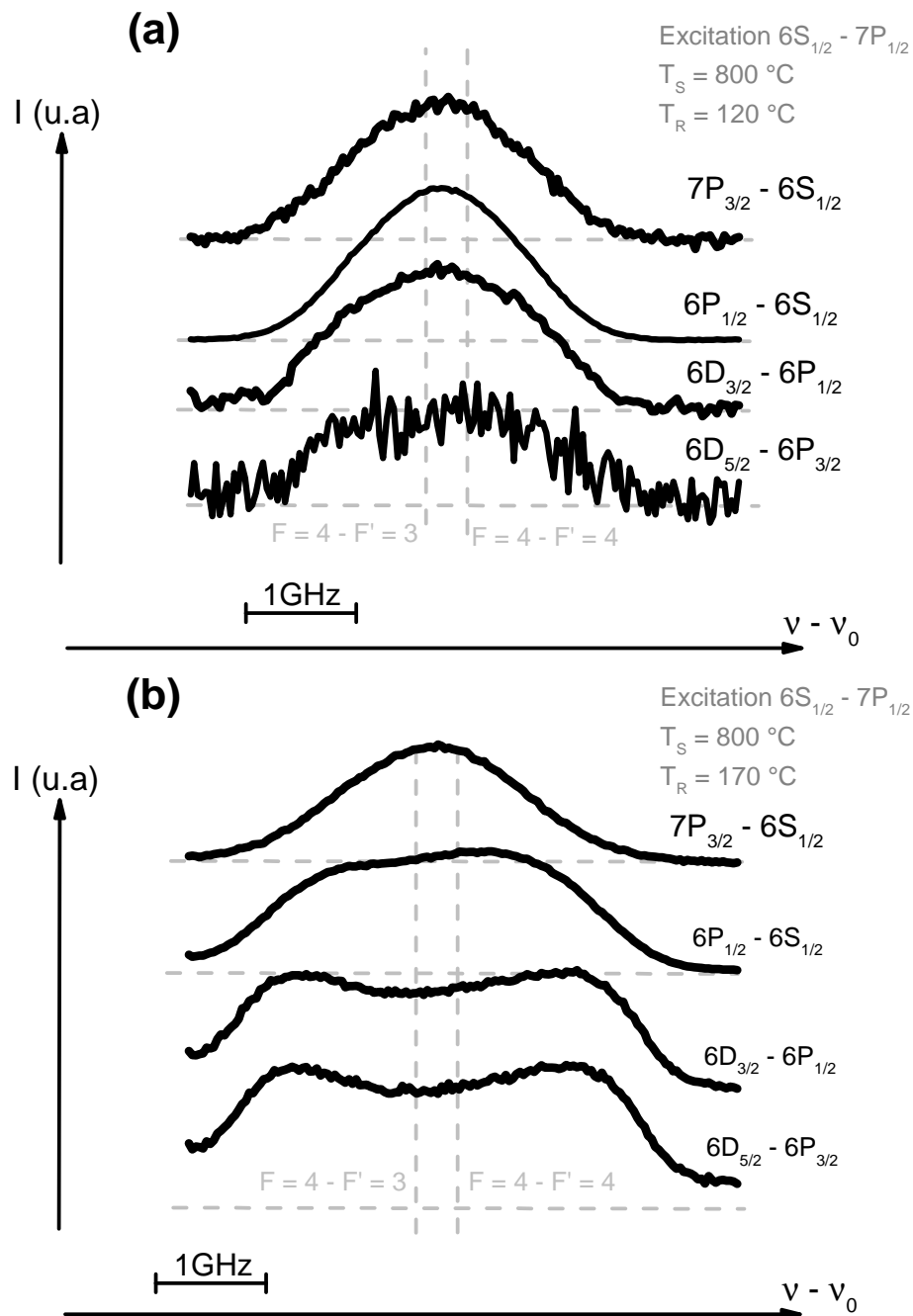


FIGURE 7.7: Spectre d'excitation de la fluorescence émise sur les raies indiquées, en fonction de la fréquence du laser à 459nm. Les pointillés verticaux sont des marqueurs en fréquence construits grâce à une absorption saturée de référence. Les lignes horizontales en gris marquent les zéros respectifs (et décalés) sur l'axe des ordonnées.

La durée de balayage du laser est d'environ 10 min et le temps d'intégration du spectromètre pour chaque fréquence du laser exciteur est $\tau_{\text{exp}} = 50 \text{ ms}$ pour collecter la fluorescence du niveau $6P$ ou $\tau_{\text{exp}} = 500 \text{ ms}$ pour les autres niveaux. À $T_R = 120 \text{ }^\circ\text{C}$, lorsque l'absorption du laser reste encore relativement faible, les profils d'excitation sont déjà bien élargis (*cf.* section (7.1)) par rapport à la largeur Doppler - même élargie par la

structure hyperfine non résolue -, et pour toutes les transitions de fluorescence, les spectres d'excitation ont des comportements voisins. Par contre, à $T_R = 170$ °C les spectres d'excitation de la fluorescence sont substantiellement modifiés, et varient selon la raie de fluorescence considérée :

- Pour la transition $7P_{3/2} \rightarrow 6S_{1/2}$ le spectre d'excitation n'est presque pas modifié par rapport à $T_R = 120$ °C ;
- Pour les transitions depuis $6P_{1/2} \rightarrow 6S_{1/2}$, on observe comme un plateau, qui pourrait ressembler aux prédictions de la section (7.1). Enfin pour les transitions depuis $6D_{3/2}$, on observe non plus un plateau, mais comme un plateau creusé au centre de raie. Un tel creux a déjà été observé dans la littérature [89, 83] et ce comportement est attribué au fait que lorsque l'absorption est très forte (dans la zone centrale du "plateau"), les atomes n'ont pu être excités qu'à très grande proximité de la paroi, ce qui fait que la désexcitation non radiative sur les fenêtres entre en compétition avec la désexcitation radiative par fluorescence : l'efficacité de celle-ci est alors réduite.

Globalement, la différence de comportement d'excitation que nous observons, pour différents processus de fluorescence, montrent qu'un diagnostic quantitatif des effets de transfert peut devenir extrêmement complexe. C'est pourquoi nous nous sommes intéressés (section (7.4)) à retrouver sur le creux d'excitation une signature sub-Doppler mentionnée dans la littérature, qui était à l'époque interprétée par une zone proche de la surface, en fait très large ($\sim 1 \mu\text{m}$), étrangement assimilée à une couche métallique [83].

7.4 Structure sub-Doppler sur un spectre d'excitation en fluorescence

7.4.1 Excitation à 459 nm

Pour étudier en détail le comportement qui aboutit à un creux sur le spectre d'excitation, et retrouver une situation voisine de celle de [83], nous avons cherché à détecter directement une fluorescence émise depuis $7P$, et remplacé le spectromètre par un photodétecteur. La sensibilité est alors augmentée, et pour garder la sélectivité en fréquence, on choisit d'observer la raie $7P - 5D$ émettant à $1,38 \mu\text{m}$. C'est ce qui explique l'utili-

sation d'un détecteur germanium (NewFocus 2011), précédé d'un filtre optique bloquant notamment les émissions (852 nm et 894 nm) sur la raie de résonance. Dans ce schéma, l'émission par cascade depuis $7S$ (à $1,36\mu\text{m}$ et $1,47\mu\text{m}$) est également détectée.

Les figures (7.8) et (7.9) montrent des spectres expérimentaux obtenus par l'excitation du niveau $6S_{1/2} (F = 4) \rightarrow 7P_{1/2}$. Comme à la figure (7.7) pour certaines transitions, on observe ici un plateau de fluorescence, nettement assorti d'un creux. Celui-ci est asymétrique et décalé de façon marquée, vers le "rouge". La sensibilité ne permet pas d'observer une structure sub-Doppler autour des marqueurs d'absorption saturée. Cependant, on sait l'intérêt d'une modulation et détection FM, fournissant la dérivée en fréquence du signal, pour favoriser les contributions spectrales étroites. Sur les figures (7.8.b) et (7.9.b) obtenues en FM (amplitude de modulation pic-à-pic ~ 10 MHz), des contributions étroites, petites mais repérables, sont observées autour de la résonance atomique, qui sont beaucoup plus étroites que la largeur Doppler. Le contraste de ces contributions sub-Doppler peut être amélioré en changeant un peu la densité atomique (et l'absorption au centre de raie - fig. (7.8.c)).

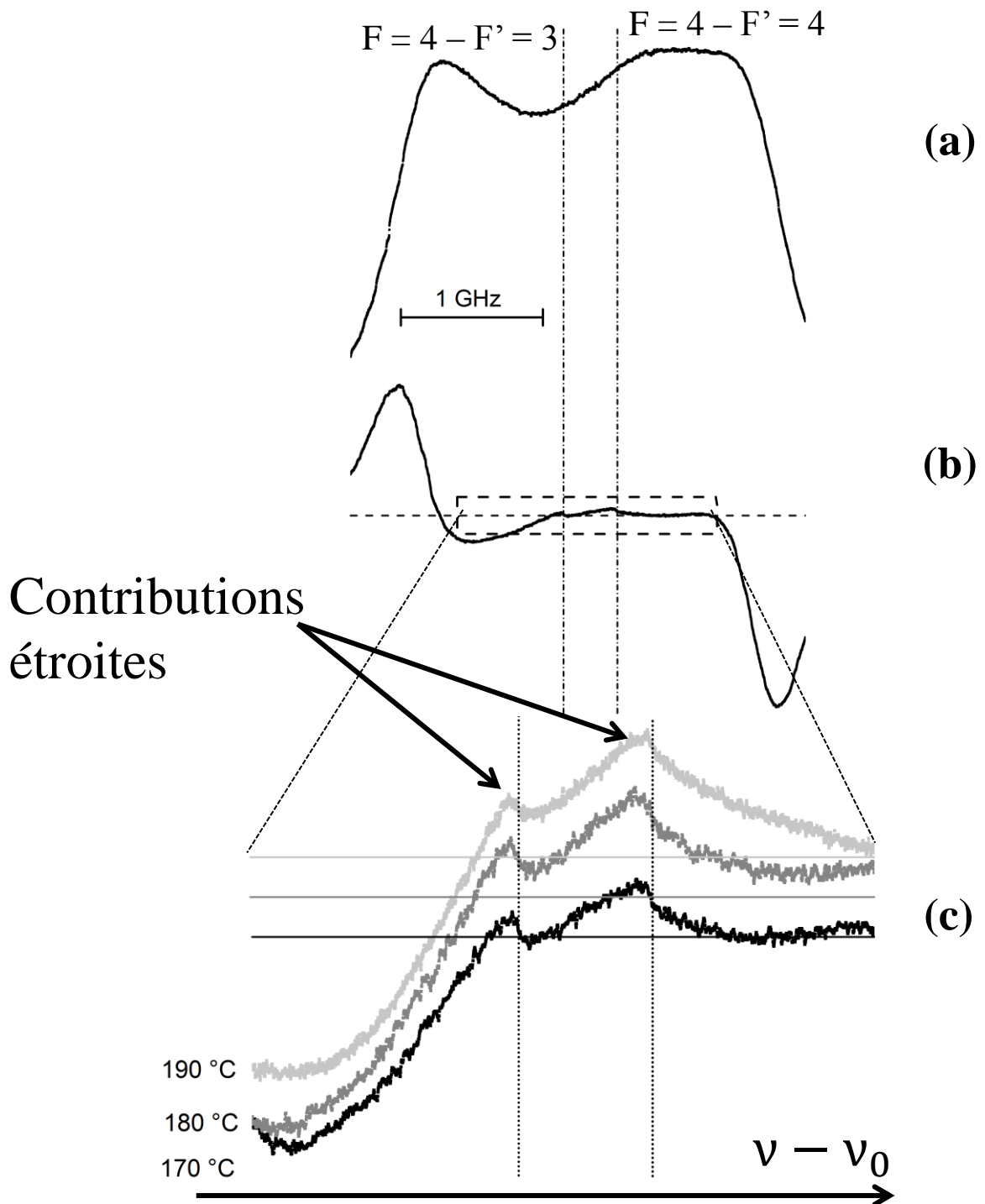
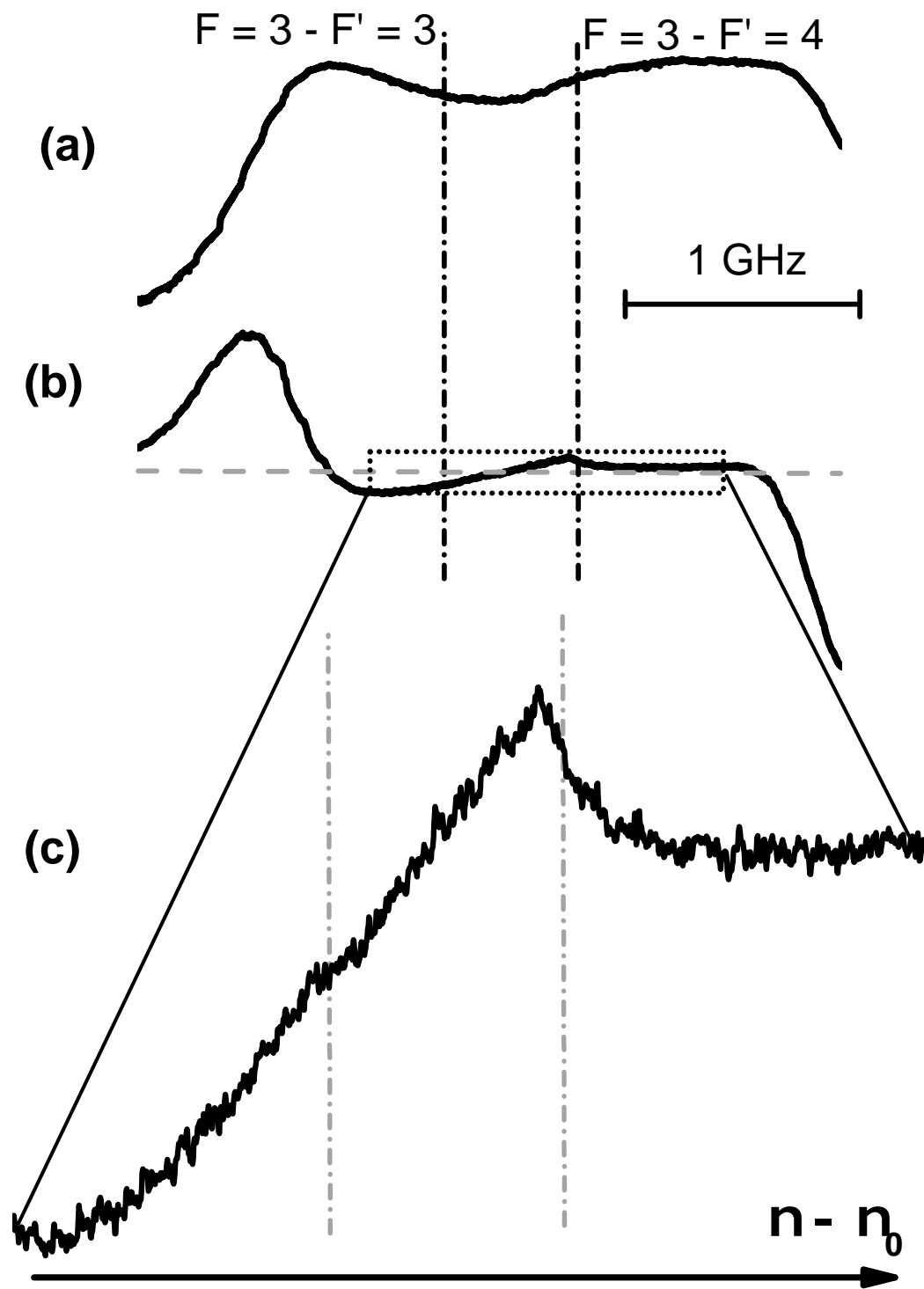


FIGURE 7.8: Spectres expérimentaux de fluorescence rétrodiffuse à $T_S = 300$ °C sur la transition $6S_{1/2}(F = 4) \rightarrow 7P_{1/2}$. $T_S = 300$ °C. (a) Signal détecté directement par le photodétecteur à $T_R = 170$ °C ($n \approx 5.10^{14}$ at.cm $^{-3}$). (b) Le signal FM de (a) après passage par un *lock-in*. (c) Agrandissement de la région sélectionnée sur (b) avec deux températures additionnelles du réservoir, $T_R = 180$ °C ($n \approx 8.10^{14}$ at.cm $^{-3}$) et $T_R = 190$ °C ($n \approx 1.10^{15}$ at.cm $^{-3}$). Les lignes verticales sont les marqueurs en fréquence obtenus à partir de l'absorption saturée de référence. Les lignes horizontales sur les signaux FM indiquent les zéros respectifs sur l'axe des ordonnées.

FIGURE 7.9: Idem que fig. (7.8) pour la transition $6S_{1/2}(F=3) \rightarrow 7S_{1/2}$.

7.4.2 Excitation à 894 nm

Pour s'approcher mieux des observations de la littérature [83], et parce que la structure sub-Doppler n'apparaît que après l'astuce de la détection FM, nous avons entrepris des expériences similaires de spectroscopie d'excitation sur la raie de résonance D_1 ($6S_{1/2} \rightarrow 6P_{1/2}$), avec cette fois un photodétecteur silicium, et un filtrage de la fluorescence pour le 894 nm (par collisions diverses, d'autres raies s'avèrent excitées avec un fort pompage sur la raie D_1). Un avantage de la raie D_1 , tant par rapport aux expériences de [83] pratiquées sur la raie D_2 , que par rapport aux expériences à 459 nm est que les composantes hyperfines (séparées de $\sim 1,17$ GHz) sont résolues. En revanche, la sensibilité est dégradée par les effets, non éliminables, de la diffusion du laser excitateur. Pour cette expérience, et pour des raisons principalement d'encombrement et de disposition du montage, nous avons utilisé une cellule en verre, limitée à ~ 200 °C, et utilisée couramment à $n \approx 5.10^{13}$ at.cm³ (~ 120 °C).

La figure (7.10) montre des résultats très analogues à ceux des figs. (7.8) et (7.9), avec cette fois, deux zones "plateaux" distinctes résolues autour de chaque composante hyperfine. Pour chacun de ces plateaux, on observe comme pour l'excitation à 459 nm, un creux, relativement central, mais décalé vers le "rouge", et on peut cette fois éventuellement observer une petite structure sub-Doppler sur le signal direct. Celle-ci devient, comme précédemment, plus facilement observable avec une technique FM.

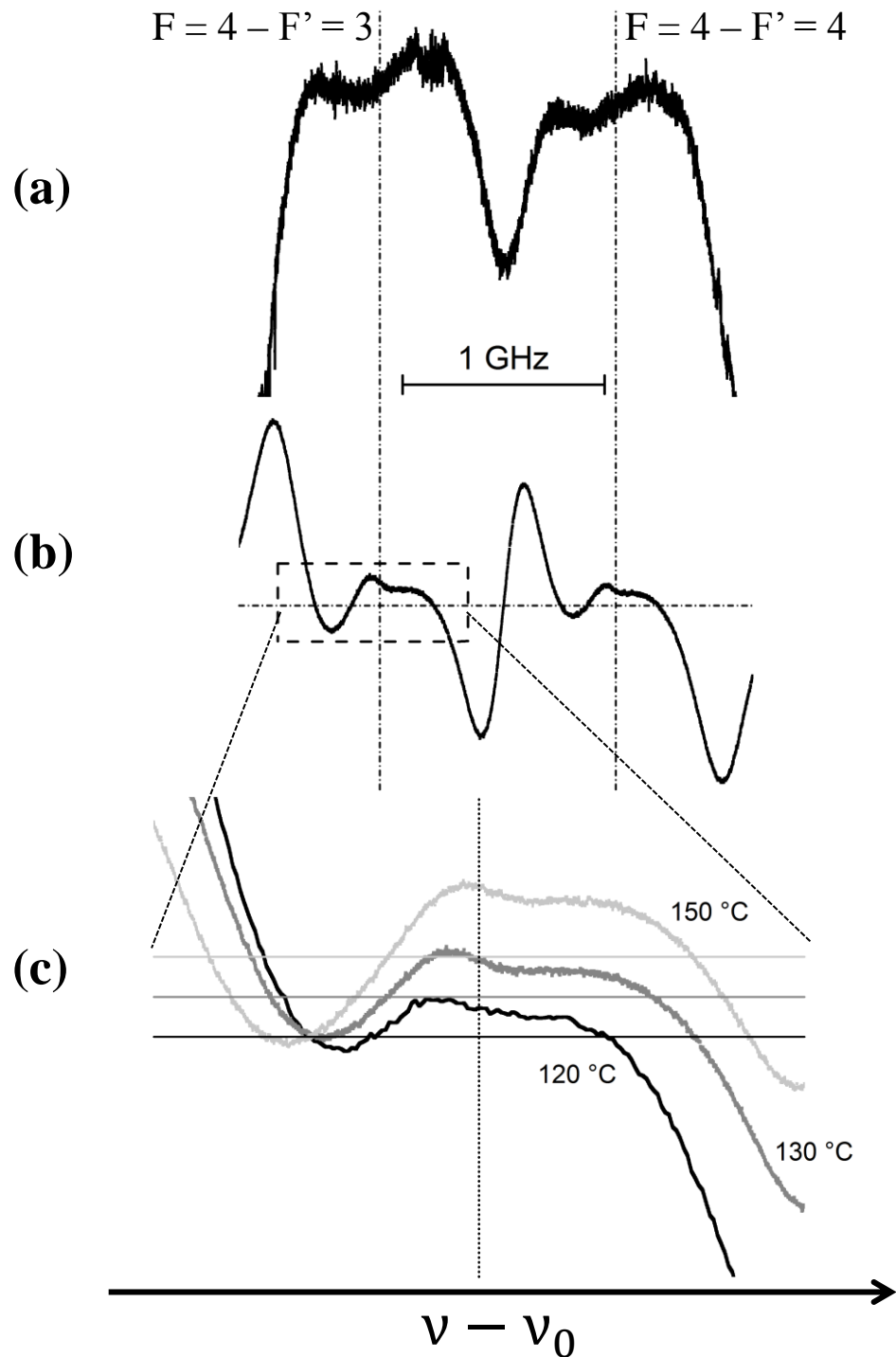


FIGURE 7.10: Idem que fig. (7.8), mais pour la transition $6S_{1/2} \rightarrow 6P_{1/2}$ et $T_S = 200$ °C. La température du réservoir pour (a) et (b) était $T_R = 130$ °C ($n \approx 8 \cdot 10^{13}$ at.cm $^{-3}$) et (c) montre l'agrandissement de la région sélectionnée en (b) et pour d'autres températures du réservoir : 120 °C ($n \approx 5 \cdot 10^{13}$ at.cm $^{-3}$) et 150 °C ($n \approx 2 \cdot 10^{14}$ at.cm $^{-3}$).

7.4.3 Modèle théorique pour les structures sub-Doppler

Pour interpréter les spectres expérimentaux et le creux sur le plateau, il faut s'intéresser à la réponse des atomes proches de la fenêtre. La frustration de la fluorescence par

désexcitation sur la fenêtre ne concerne que des atomes excités (possiblement émetteurs) qui se déplacent vers la paroi. Avec les divers processus de transfert (collisions, *radiation trapping*, etc), il n’y a pas nécessairement de relation entre fréquence de l’excitation (et décalage Doppler correspondant), et le fait que l’excitation devienne portée par un atome qui se déplace vers la fenêtre (avec la possibilité de “frustrer” la fluorescence) (*cf.* H. van Kampen *et al* [89]).

Pour fixer les idées, la vitesse thermique des atomes de Cs est 200–250 m/s, et la durée de vie des niveaux atomiques $6P_{1/2}$ et $7P_{1/2}$ est, respectivement, ~ 30 ns et ~ 100 ns. Le libre parcours des atomes excités avant une émission par fluorescence est donc d’environ $5 - 30 \mu\text{m}$. Dans le régime de densité qui nous intéresse pour une expérience typique de réflexion sélective, cette distance est précisément comparable à la longueur d’absorption du laser (au centre de la résonance). Une modélisation détaillée est proposée dans la publication annexée [35].

Pour l’essentiel, le signal sub-Doppler correspond à une sélectivité en vitesse, plus ou moins étroite, selon le rapport entre la longueur d’absorption (qui varie selon une forme de raie, principalement dépendante de l’absorption élargie par effet Doppler) et le libre parcours des atomes excités avant leur émission en fluorescence. Pour l’essentiel, c’est pour des états excités directement - sans ou avant redistribution - que la désexcitation sur la fenêtre (qui induit le creux sur la zone plateau) n’affecte que l’excitation des atomes arrivant vers la fenêtre (décalage rouge). Compte tenu d’une sélectivité seulement partielle (compétition entre temps de vol excité, avec la décroissance exponentielle caractéristique de la fluorescence, et temps de vol à la paroi), le creux est décentré vers le rouge mais avec une largeur variable selon la sélectivité en vitesse. Cette interprétation permet de comprendre que la structure de creux sélective en vitesse peut apparaître sur différentes raies de fluorescence, dès lors qu’il s’agit d’une cascade de fluorescence, et non d’un processus collisionnel qui redistribue trop les vitesses et fait perdre la “mémoire” de la fréquence d’excitation. On peut aussi extrapoler, pour le cas de la figure (7.7.b), que les émissions depuis $6D_{3/2}$ pourraient porter une réponse sub-Doppler, dès lors que les atomes initialement $7P$ ont été individuellement excités en $6D$ par corps noir sans que l’information sur leur vitesse (et leur désexcitation éventuelle sur la fenêtre) ne soit perdue.

7.5 Conclusions

Nous avons vu que quand l'atome est dans le niveau $7P$, il peut être branché (en une cellule chaude), à plusieurs niveaux plus énergétiques, accessibles par collision ou rayonnement du corps noir. Ceci crée un risque de complication pour l'analyse des spectres RSFM, et surtout pour observer le transfert $7P \rightarrow 6D$, spécifiquement induit par l'émission thermique du polariton de surface du saphir. Il est déjà intéressant d'observer que le transfert fort induit par la paroi, que nous recherchons, a un analogue en champ lointain (rayonnement de corps noir). L'analyse de tous les comportements de transfert autorisés en volume apparaît très complexe, et les résultats sont difficiles à exploiter quantitativement. Ces transferts peuvent cependant rester négligeables pour une technique de spectroscopie purement linéaire, et optiquement limitée à une région très confinée près de la surface, comme l'est la réflexion sélective.

Par ailleurs, nos expériences de collection de rétrofluorescence par les photodétecteurs ont permis d'observer des résultats déjà connus dans la littérature [83, 89] avec une structure sub-Doppler apparaissant sur le creux de fluorescence. Ce creux correspond à la partie de la fluorescence frustrée par collisions sur la surface. Cette frustration est sélective en vitesse, d'où l'apparition d'une structure sub-Doppler, qui n'est mise en évidence que grâce à une modulation en fréquence du laser.

Avec le modèle théorique simple que nous avons élaboré, l'allusion trouvée dans la littérature [83] mais jamais justifiée, à une déposition d'atomes sur la fenêtre de la cellule (formation de films métalliques) n'est pas nécessaire. De plus, cette réponse sub-Doppler n'a pas de raison d'être sensible à l'angle de détection (nous ne détectons une "rétrofluorescence", vers l'arrière que pour des raisons d'encombrement géométrique). Par contre, le critère essentiel pour une sélectivité en vitesse est que l'excitation lumineuse, porteuse du décalage Doppler, sélectionne des atomes selon la normale à la fenêtre où a lieu la désexcitation.

Backward-emitted sub-Doppler fluorescence from an optically thick atomic vapor

João Carlos de Aquino Carvalho,¹ Athanasios Laliotis,¹ Martine Chevrollier,² Marcos Oriá,² and Daniel Bloch^{1,*}
¹*Laboratoire de Physique des Lasers, UMR 7538 du CNRS, Université Paris13–Sorbonne Paris Cité, 93430 Villetaneuse, France*
²*Universidade Federal Rural de Pernambuco, UACSA, Cabo de Santo Agostinho, PE, Brazil*

(Received 1 June 2017; published 4 October 2017)

Literature mentions only incidentally a sub-Doppler contribution in the excitation spectrum of the backward fluorescence of a dense vapor. This contribution is here investigated on Cs vapor, both on the first resonance line (894 nm) and on the weaker second resonance line (459 nm). We show that in a strongly absorbing medium, the quenching of excited atoms moving towards a window irradiated under near normal incidence reduces the fluorescence on the red side of the excitation spectrum. Atoms moving slowly towards the window produce a sub-Doppler velocity-selective contribution, whose visibility is here improved by applying a frequency-modulation technique. This sub-Doppler feature, induced by a surface quenching combined with a short absorption length for the incident irradiation, exhibits close analogies with the narrow spectra appearing with thin vapor cells. We also show that a normal incidence irradiation is essential for the sub-Doppler feature to be observed, while it should be independent of the detection geometry.

DOI: [10.1103/PhysRevA.96.043405](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.96.043405)

Fluorescence detection in a laser-excited gas cell provides a variety of useful information. In particular, it both evaluates the absorption processes when sweeping the frequency of the exciting laser (excitation spectroscopy) and diagnoses decay mechanisms—including energy-level transfers—when the detected fluorescence is wavelength selected. In the course of our detailed studies of the nonzero temperature quantum effect on the atom-surface interaction for highly excited atoms [1], we investigated the fluorescence of a dense Cs vapor close to a strongly heated window in order to evaluate locally the vapor density, atomic velocity, and rate of collisions or radiative transfer. The fluorescence observed from the entrance window of the cell is a natural tool for this purpose.

Standard high-resolution atomic spectroscopy is hard to apply in an optically thick medium because of various broadenings, mainly due to the high atomic density associated to optical thickness (yielding collisions and velocity redistribution), and to propagation, with its strong absorption possibly accompanied by radiation trapping. This is why literature has addressed sub-Doppler spectroscopy in an optically thick medium only infrequently [2–7]. Rather, specific single beam techniques based upon a confinement of the detection region for high densities, such as reflection spectroscopy (selective reflection or evanescent wave spectroscopy), or thin vapor cells, have been shown to provide sub-Doppler signals (see [8] for a review). Remarkably, in a series of papers [3–6] on so-called “retrofluorescence”—i.e., observation of the fluorescence in a backward direction, relatively to an excitation under near normal incidence—the Gagné group has observed [3,4] a tiny sub-Doppler component (width ~ 40 MHz vs Doppler width ~ 250 MHz) in the excitation spectrum of fluorescence on the Cs D_2 line at 852 nm appearing over a broad dip in the fluorescence spectrum. (See also Ref. [7] for a confirmation on the Rb D_2 line, with a width ~ 25 – 30 MHz for the sub-Doppler contribution.)

The broad spectral dip [9,10] is known to originate in a nonradiative relaxation on the wall (the corresponding

quenching is mostly on resonance, corresponding to maximal absorption length), but the specific sub-Doppler feature reported in [3,4,7] has lacked a clear interpretation. The claim has been that it is needed to discriminate between a far-field region (i.e., standard free vapor) and a “vapor boundary layer” or “near-field proximity region”, whose thickness would be $\sim \lambda$ (the optical wavelength), and where a thin metal layer—possibly submonolayer—coating the window would dramatically influence the atomic lifetime [3]. On the contrary, from our own experience in a variety of spectroscopy experiments close to an interface (see [1,8,11–13] and references therein), spectroscopy in the vicinity of a window can be fully interpreted by standard processes of atomic physics once the interaction with light is described in the transient regime, as long as the sudden deexcitation on the window or the transient coupling to the irradiation for atoms leaving the window are taken into account. Moreover, in our present work, the window of one of our vapor cells [1] is largely overheated relative to the colder Cs reservoir, preventing any metallic condensation. (Residual Cs atoms or clusters would be removed by thermal desorption.)

Here, we report on fluorescence experiments in an optically thick regime, performed for two different transitions of Cs, namely, the D_1 resonance line ($6S_{1/2}$ – $6P_{1/2}$ at 894 nm), and the weaker (~ 10 times) second resonance line $6S_{1/2}$ – $7P_{1/2}$ at 459 nm (Fig. 1). For these lines, the hyperfine components are limited to $F = \{3,4\} \rightarrow F' = \{3,4\}$, avoiding a hyperfine structure as large as the Doppler broadening, as is the case on the Cs (or Rb) D_2 line. Our results confirm the presence of a sub-Doppler contribution even on a weak line and at moderate densities, as easily evidenced through a frequency-modulation (FM) technique. We show also that the dip [2,9,10] around the line center is actually redshifted, confirming that the wall relaxation applies mainly to atoms moving towards the window. As for the many other sub-Doppler features [8,11,12] appearing for an excitation under normal incidence in the vicinity of an interface, we show that the sub-Doppler contribution is associated to a specific response of the atoms both in the vicinity of the surface and whose motion—counted along the normal to the window—is slow.

*Corresponding author: daniel.bloch@univ-paris13.fr

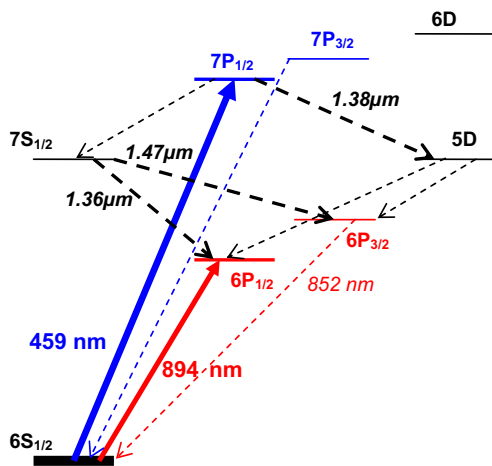


FIG. 1. Scheme of relevant Cs levels, showing the first and second resonance lines (894 and 459 nm, respectively) with the most relevant transitions for fluorescence. The $7P$ level decays to $7S$ (with further cascades in the IR to $6P$, detectable in our setup) or to $5D$ (detectable IR fluorescence), or along the second resonance itself at 459 nm, with respective branching ratios of $\sim 50\%$, $\sim 20\%$, and $\sim 30\%$.

A schematic of the experimental setup is provided in Fig. 2, and the experiments were conducted for an irradiation under near normal incidence—up to 5° for the 894-nm setup, 1° – 2° for the 459-nm experiment. Due to the cell and oven geometry, the backward-emitted fluorescence was detected slightly off-axis, under an angle up to 10° , on the side opposite to that of the irradiation in order to better discriminate between fluorescence and scattered laser light. Although the issue was not addressed in the previous literature, our interpretation will show that the detection angle should not affect the sub-Doppler contribution of interest. The fluorescence light was focused onto a photodetector collecting a solid angle $\sim 10^{-2}$ sr. The experiments were performed on a standard Cs glass cell (1 cm long) for the 894-nm experiment. For the 459-nm experiment, we used the ~ 8 -cm-long Cs cell described in [1], whose sapphire window is superpolished and annealed. In this last case, a three-section oven allows a major overheating of the

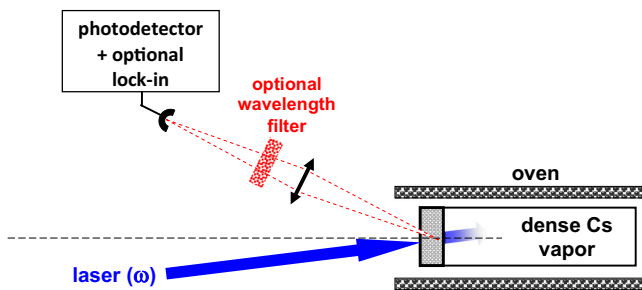


FIG. 2. Schematic of the experimental setup. The nearly resonant laser is sent onto the vapor cell close to the normal incidence, here shown as a dashed line, and is rapidly absorbed by the dense vapor. The emitted fluorescence is focused onto the photodetector (solid angle $\sim 10^{-2}$ sr) and possibly filtered in wavelength. The signal from the photodetector can be processed with a lock-in amplifier (for “FM fluorescence”).

cell relative to the Cs reservoir. (Here, the window has been kept at $\sim 300^\circ\text{C}$ for a Cs reservoir temperature below 200°C). The narrow linewidth (up to a few MHz) laser sources were a distributed Bragg reflector (DBR) laser diode for 894 nm, and an extended cavity laser diode for the 459-nm line. For both of them, a frequency modulation could be applied. The irradiating power falling onto the cell was kept low enough ($< 1\text{ mW/mm}^2$) to avoid strong saturation, which in any case would decrease quickly with propagation and absorption. For all experiments, an auxiliary saturated absorption (SA) spectrum was recorded simultaneously to provide sub-Doppler references of the atomic transitions. For the 894-nm line, the fluorescence is essentially emitted on the excitation line itself at 894 nm, although energy-pooling collisions may allow fluorescence from highly excited levels, including the D_2 line at 852 nm. The 459-nm line brings the atom in a high-lying state, and numerous excited atomic levels can be reached by fluorescence decay or by collisions, which are even susceptible to populate energy levels higher than $7P$ (see Fig. 1). We have been able to observe such excited populations through the analysis of the emitted fluorescence, but for the Cs densities used for the present report, their influence should remain extremely marginal. Here, the optical thickness also allows radiation trapping to occur, mostly on the resonance doublet through cascades. To detect the fluorescence induced by the 459-nm absorption and to eliminate the scattering of the incident light, we use a Ge photodetector, sensitive up to $1.7\ \mu\text{m}$, after a filter which blocks wavelengths shorter than $\sim 1.1\ \mu\text{m}$. Hence, we detect (see Fig. 1) the emission at $\sim 1.38\ \mu\text{m}$ (from the $7P_{1/2}$ level to $5D_{3/2}$), and the $1.36\text{-}\mu\text{m}$ and $1.47\text{-}\mu\text{m}$ doublet from $7S_{1/2} \rightarrow 6P$.

In the optically thin regime, the excitation spectrum of fluorescence is simply a Doppler-broadened resonance whose amplitude increases with density; when the Cs density is increased and becomes so large that the laser light is totally absorbed in the volume allowed by the field of view of the detector (typically, for our setup, the fluorescence is collected on a depth hardly exceeding a few millimeters), the fluorescence intensity reaches a limit while the spectrum broadens. This maximal intensity is simply the equivalent, with respect to the solid angle of detection, of the incident light intensity which has been totally converted into fluorescence. Although radiation trapping can induce multiple cycles of absorption and emission, the flux of emerging light does not increase, as governed by the incident flux of photons.

For the 894-nm line, the fluorescence signal starts to saturate for a density $\sim 5 \times 10^{13}$ at cm^{-3} (i.e., 120°C). The two hyperfine components (~ 1.1 GHz splitting for the excited state $6P_{1/2}$), naturally resolved with respect to the Doppler broadening (~ 200 MHz) at low Cs density, are still resolved in the conditions of an optically thick medium, but, as shown on top of Fig. 3, the maximal fluorescence is attained for a range of frequencies exceeding the Doppler width, corresponding to total absorption through the cell. In this regime of optically thick medium, the plateau drops down only when the frequency detuning is sufficient for the overall absorption to decrease, so that at high Cs densities, the wings of the plateau are located well apart from the Doppler-broadened central frequency. The most remarkable feature is that a dip can be seen on this plateau of maximal intensity. Such an effect has been

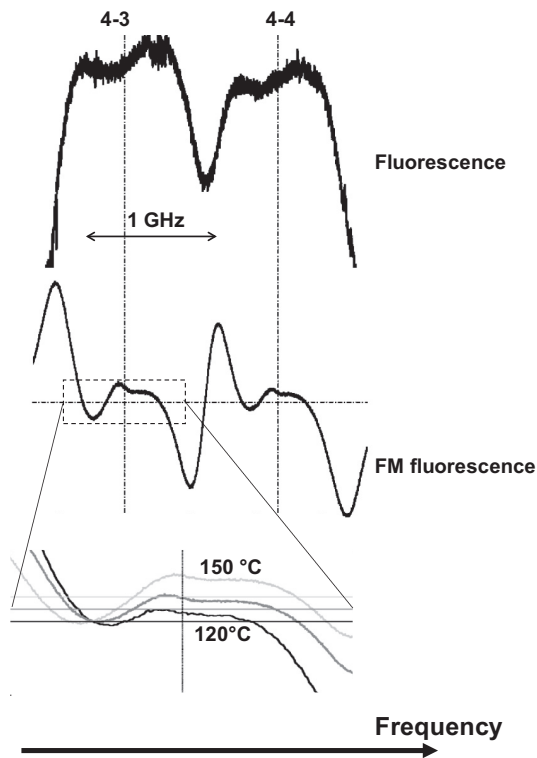


FIG. 3. Excitation frequency spectrum of the backward-emitted fluorescence on the Cs D_1 line (894 nm) around the $F = 4 \rightarrow F' = \{3,4\}$ hyperfine components (splitting 1.17 GHz). On top is the direct fluorescence for the Cs reservoir at 130 °C ($\sim 8 \times 10^{13}$ at cm^{-3}); the middle is the corresponding simultaneous recording of the FM signal; and the bottom is the zoomed FM signal, with the two additional Cs temperatures 120 °C ($\sim 5 \times 10^{13}$ at cm^{-3}) and 150 °C ($\sim 2 \times 10^{14}$ at cm^{-3}). The experiment is performed on a Cs cell made of glass, the temperature of the window is ~ 200 °C, and the frequency markers are provided by the corresponding auxiliary SA reference.

previously noticed (see [9] and also [3–5]) and results from the fact that when the absorption occurs close to the window (i.e., for a frequency close to line center), surface collisions can interrupt nonradiatively the (multiple) cycle(s) of fluorescence: the dip is hence the signature of this frustrated fluorescence. These features are similar to those reported previously for excitation on the Cs 852-nm line [3], but here the resolution of the hyperfine components makes visible that the dip is shifted to the red. (Note that the discussion in [3,4,7] has been limited to the strongest hyperfine component, for which the red side is plagued with the—hardly resolved—other hyperfine components of a weaker amplitude.) It is, however, very delicate to find a narrow contribution on the fluorescence spectrum itself, as it was already the case in [3,4,7]. However, the FM applied to the laser (at 10 kHz, and with an excursion ~ 10 MHz, much smaller than the width of the direct signal) allows us to process the signal by a lock-in detector, delivering the frequency derivative of the initial spectrum, which emphasizes the narrow contributions. For a large range of densities, the FM detection makes visible

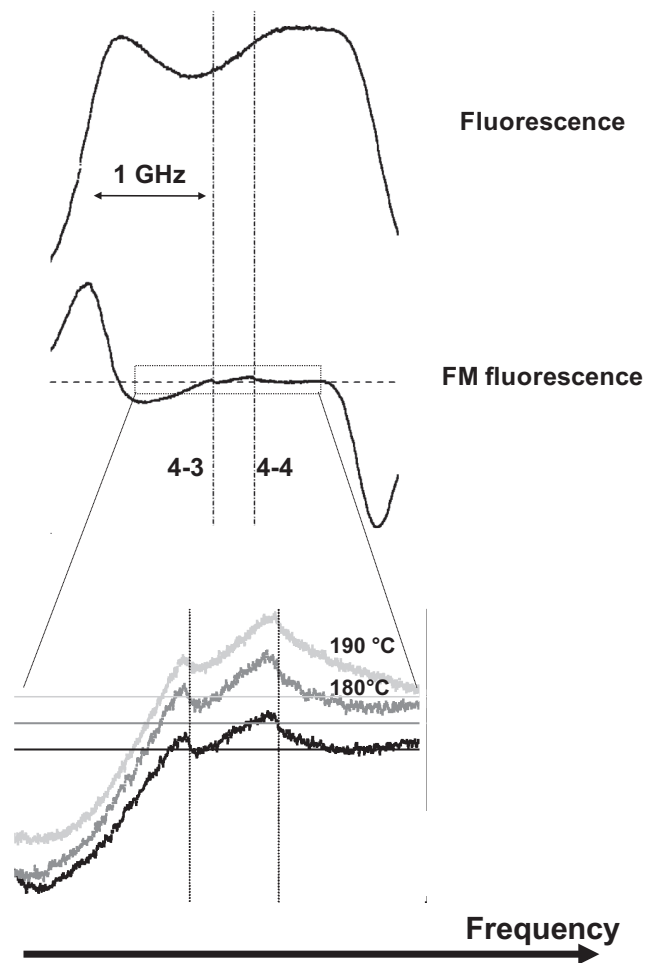


FIG. 4. Excitation frequency spectrum of the backward-emitted fluorescence (filtered between 1.1 and 1.7 μm) on the Cs 459 nm around the $F = 4 \rightarrow F' = \{3,4\}$ hyperfine components (splitting 377 MHz). On top is the direct fluorescence for the Cs reservoir at 170 °C, the middle is the corresponding simultaneous recording of the FM signal, and the bottom is a zoomed FM signal with the two additional Cs temperatures 180 °C and 190 °C. The experiment is performed in a Cs cell ended by a sapphire window, whose temperature is ~ 300 °C (see [1]), and the frequency markers are provided by the corresponding auxiliary SA reference.

sub-Doppler contributions (see Fig. 3), which appear on the red side of the auxiliary SA marker of each component in the dip of fluorescence. The SA marker is naturally associated to atoms with a null (longitudinal) velocity in the lab frame, whose resonance is not shifted by the Doppler shift.

Very similar observations are performed on the line at 459 nm (Fig. 4), which is much weaker and nearly insensitive to radiation trapping, as long as the Cs density is increased in order to reach an absorption comparable to the one for the D_1 line measurements. The signal-to-noise ratio benefits from the wavelength filtering, which eliminates the scattering of the incident irradiation. However, the $7P_{1/2}$ hyperfine structure (377 MHz) remains unresolved owing to the Doppler broadening, twice as large as for the 894-nm line. Here, too, the excitation line shape of fluorescence broadens when the

atomic density is high enough to make the detected volume an optically thick region. On the direct signal, a plateau and a dip also appear, with a clear asymmetry. The dip is notably shifted to the red, distinctly on the red side of the marker of the $F = 4 \rightarrow F' = 3$ hyperfine component. No significant differences are found between the two hyperfine doublets $F = 3 \rightarrow \{F' = 3, 4\}$ (the strength of the $F = 3 \rightarrow F' = 4$ component is 3 times larger than the $F = 3 \rightarrow F' = 3$), and $F = 4 \rightarrow \{F' = 3, 4\}$ (the two components of the doublet $F = 4 \rightarrow F' = 3$ and $F = 4 \rightarrow F' = 4$ are of a comparable strength, in a ratio of 5 to 7). Through the FM detection (modulation at ~ 1 kHz, excursion ≤ 10 MHz), narrow sub-Doppler features are made observable. They also appear on the red side, with respect to each hyperfine SA marker, and vary only moderately with the Cs density. All these features for the excitation on the 459-nm line confirm the strong analogy with the observations on the 894-nm line.

To interpret what appears as a general behavior, with a sub-Doppler dip on the red side of the spectrum in addition to the previously known broad dip, we have to consider in detail the fluorescence reduction occurring specifically in the vicinity of the window. Reduction of the fluorescence efficiency can occur either in a direct process of excitation and fluorescence, hence restricted to atoms moving *towards* the surface, with their redshifted excitation resonance, or during a more complex coupling between the initial excitation and the detection of the fluorescence, involving a transfer from one atom to another (e.g., by radiation trapping or collision) or at least a velocity change between excitation and fluorescence (e.g., velocity-changing “weak” collision). In this last case, the surface quenching of an atom moving towards the surface occurs whatever the laser frequency of the initial excitation process: the redistribution of excitation may transport an excitation initially induced by a blueshifted irradiation, i.e., addressing atoms flying away from the surface, to an atom moving towards the window and sensitive to quenching, as it was analyzed in [10] (although for densities much higher than ours). Here, the typical thermal velocity for Cs is ~ 200 – 250 m/s while the excited state lifetime is ~ 30 ns for Cs(6P) and ~ 100 ns for Cs(7P). This shows that the atoms the most susceptible to undergo a wall-induced relaxation, instead of a sudden fluorescent emission at a random time, are located in the vicinity (~ 10 – $30 \mu\text{m}$) of the window. This compares with the absorption length (on resonance) at the atomic densities of interest and justifies modeling simply the detected fluorescence as proportional to I_{fluo} , with

$$I_{\text{fluo}} = \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{dv f(v)}{(\gamma/2)^2 + (\delta - kv)^2} \times \int_0^{+\infty} dz \exp(-z/\Lambda) \eta(z, v). \quad (1)$$

In Eq. (1), the first integral, over the velocity distribution $f(v)$ (one-dimensional distribution of velocity, along the normal to the window, and assumed to be Maxwellian) describes a simple excitation governed by a Doppler-shifted Lorentzian response to the irradiation (where δ is the detuning from resonance, and k the wave-vector modulus). The second integral is for a spatial integration (along the normal to the window) and assumes the excitation to be proportional to

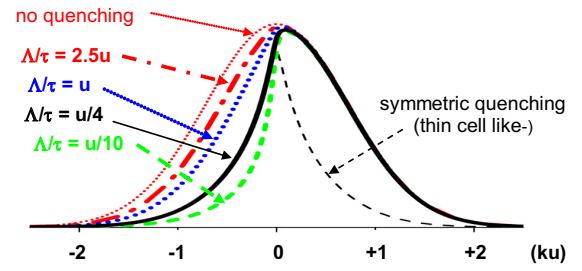


FIG. 5. Predictions for I_{fluo} from Eq. (1) for various values of Λ/τ as indicated. The light dotted (red) line assumes no quenching at all (or $\Lambda/\tau \rightarrow \infty$), which is the standard situation for a (Doppler-broadened) Gaussian excitation line shape, while the light (black) dashed line is for a quenching affecting symmetrically v and $-v$ atoms, in analogy with a thin cell, (see text), except in this last case the excitation line shape is unaffected on the blue side by the Λ/τ value. The numerical calculation assumes $\lambda = 1 \mu\text{m}$, $u = 200$ m/s, $\tau = 100$ ns, and $\gamma = 10$ MHz (i.e., $\gamma \ll ku$), yielding $50 \mu\text{m}$ (red, dash-dotted), $20 \mu\text{m}$ (blue, dotted), $5 \mu\text{m}$ (black, full line), and $2 \mu\text{m}$ (green, dotted), respectively, for the absorption length Λ .

the local irradiation intensity following an exponential decay characterized by an absorption length Λ , while the conversion of the atomic excitation into a detectable fluorescence is governed by an efficiency factor $\eta(z, v)$, which is velocity dependent because of the quenching by the window. In a simple case (i.e., neglecting redistributions), one assumes $\eta(z, v) = [1 - \exp(z/v\tau)]$ for $v < 0$ and $\eta(z, v) = 1$ for $v \geq 0$, with τ the lifetime of the relevant excited level (i.e., decay time for the conversion of excitation into fluorescence) and $v < 0$ corresponding to atoms directed towards the window. Note that among the simplifying assumptions of Eq. (1), the atomic excitation obeys a Lorentzian response because the effects of the transient regime of interaction in the building up of the excited population have been neglected. Although these transient effects may become important [8,14] in the vicinity of a surface, they would reduce the efficiency of excitation only for fast departing atoms, or in the very close vicinity of the surface when the surface interaction modifies the energetic structure of the atom.

Figures 5–7 illustrate the predictions derived from Eq. (1), showing that the velocity Λ/τ is the key parameter to discriminate atoms sensitive to the quenching, as can be expected from the definition of $\eta(z, v)$. Figure 5 shows the decrease of the fluorescence signal on the red side of the atomic resonance with respect to the fluorescence spectrum in the absence of quenching, i.e., the Gaussian-shaped fluorescence for $\eta(z, v) = 1$, as long as Λ/τ is only a fraction of the thermal velocity u (only atoms with velocity such as $-\Lambda/\tau < v < 0$ are insensitive to the quenching). Figure 6 addresses a more realistic situation for the optical thickness of the medium, thick only on resonance, while returning to quasitransparency for a detuned irradiation frequency. The additional assumptions of an absorption length Λ varying according to a usual Voigt profile of absorption, resulting in a Beer-Lambert propagation, and of a physically bounded spatial integration of the fluorescence emitters allow prediction of a fluorescence excitation spectrum combining the known flat response spanning well over the

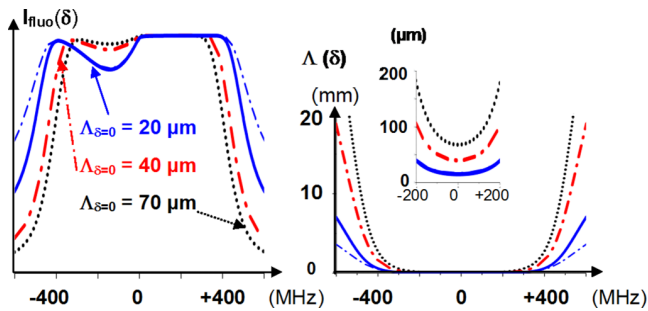


FIG. 6. Predictions for I_{fluo} assuming in Eq. (1) that the absorption, maximal on-resonance ($\delta = 0$), decreases with the frequency detuning δ according to a Voigt profile; see on the right part of the figure the variations of the absorption length Λ with the detuning. The spatial integration in Eq. (1) is limited to a depth of observation of 3 mm. The numerical values are $\lambda = 1 \mu\text{m}$, $u = 200 \text{ m/s}$ (leading to $ku = 200 \text{ MHz}$), $\tau = 30 \text{ ns}$, and $\Lambda(\delta = 0)$ as indicated. One has chosen $\gamma = 10 \text{ MHz}$ for all thick lines, while the light (blue) dash-dotted line is for $\gamma = 20 \text{ MHz}$ and $\Lambda(\delta = 0) = 20 \mu\text{m}$, showing that $\gamma \ll ku$ plays a role only when the effective absorption length $\Lambda(\delta)$ becomes comparable to or larger than the observation depth. The optical thicknesses as governed by $\Lambda(\delta = 0)$ values are chosen for resembling the single path absorption on the D_1 line of Cs at 120°C , 130°C , and 150°C , respectively (see Fig. 3).

Doppler width, with a significant drop of the fluorescence on the red part of the spectrum owing to the velocity-selective quenching in Eq. (1) through $\eta(z, v)$, which affects atoms going towards the window. The predictions are clearly reminiscent of the observed spectra, as presented in Figs. 3 and 4. Varying the parameters in a way mimicking the change of Cs vapor density with the cell temperature does not affect the essence of the global spectral shape. The FM counterpart of Fig. 6 is provided in Fig. 7 (with $dI_{\text{fluo}}/d\delta$), showing again clear analogies with the experimental spectra for both the 894-nm and the 459-nm lines.

The simplified Eq. (1) is successful enough to establish that the essence of the sub-Doppler response is the combination of a velocity-dependent loss term $[1 - \eta(z, v)]$, favoring the response of slow atoms, and of the short effective length Λ of the excitation region in the optically thick vapor, which allows sensitivity to the surface quenching. A fully quantitative analysis, aiming notably to predict the relative amplitude

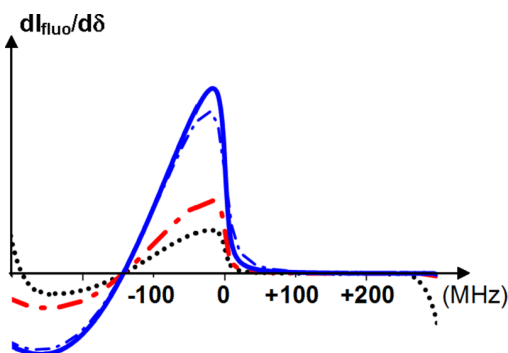


FIG. 7. Same as Fig. 6 for $dI_{\text{fluo}}/d\delta$, which is the predicted FM signal for the excitation spectrum of fluorescence.

of the narrow contribution with respect to the plateau of maximal fluorescence, would be an overwhelming task. This is because of a variety of processes susceptible to affect Eq. (1), and because at the high atomic densities associated to optically thick media there are a number of complex processes (multilevel transfer, energy-pooling collisions) which scatter the initial excitation. As a first limit of a quantitative applicability of Eq. (1), we have already mentioned that the surface quenching can also reduce the fluorescence signal for an irradiation on the blue side, when the initial excitation to atoms moving away from the surface is transferred to atoms moving towards the surface. Because of this, the dip observed in the fluorescence spectrum may appear shifted to the red, without being limited to the red side of the excitation spectrum, before getting totally symmetrized. Another difficulty arises for evaluating the absorption length, or the spatially dependent irradiation $\exp(-z/\Lambda)$: for a fluorescence emitted at the same wavelength as the one of the irradiation (e.g., the 894-nm line), the emitted fluorescence is partly reabsorbed, hence reducing the effective length of propagation Λ in the overall process detected through fluorescence. Moreover, for a rather high intensity at the entrance of the window, a situation quite natural because the intensity, despite saturation, quickly attenuates through propagation, the local irradiation no longer follows an exponential law. The frequency-dependent propagation of the irradiation itself may become very complex (see [15] for an extreme case), notwithstanding the already mentioned transient effects affecting the atomic excitation and the absorption itself. The efficiency of the quenching, governed in Eq. (1) by $[1 - \eta(z, v)]$ and hence by the decay time τ of the fluorescence, is also uneasy to determine in the presence of a transfer of excitation partly preserving the initial velocity v (e.g., fluorescence cascade or even velocity-changing collisions), as the effective path to the window may become longer than a free flight. In addition, the atom radiative lifetime itself is susceptible to be space dependent, through a possible quenching into a surface mode [16] or by the weaker coupling to evanescent modes [17], which is a general phenomenon.

The successful interpretation by Eq. (1) allows one to understand the geometry needed for the observation of a narrow contribution, which was never discussed in previous reports of a sub-Doppler structure [3–5,7]. The velocity-dependent loss term is intrinsically dependent on the velocity normal to the window, while for an irradiation under an oblique incidence, the Lorentzian absorption factor would be sensitive to a Doppler shift governed by the relevant oblique component of velocity, finally yielding a residual Doppler broadening to the sub-Doppler structure governed by $\Lambda/\tau u$. Conversely, if the fluorescence is collected under a large angle or under an oblique emergence, there is no need to modify the velocity-dependent loss term. (Eventually, the effective attenuation length Λ may change when the fluorescence is detected on the same line—strongly absorbed—as the incident irradiation.) Our prediction of an insensitivity of the sub-Doppler response to the orientation of the detection is clearly in agreement with the early observation [18] of a sub-Doppler feature in the excitation of the fluorescence emitted in an evanescent field, which is nothing else than an extremely large detection angle.

The present observation of a narrow contribution originating in the selected response of atoms with a slow (normal)

velocity is connected to the general class of sub-Doppler signatures [8,11–12], when a single normal beam is sent to a surface or a thin cell and where the contribution of the slowest atoms, along the normal, becomes dominant because of a long interaction time, which supersedes the deleterious effect of the transient interaction. The analogy is particularly close with the fluorescence spectrum in very thin vapor cells [11], where the excitation spectrum (under normal incidence) is sub-Doppler because only the slowest atoms contribute efficiently to the fluorescence. Here, the strong optical attenuation is similar to the abrupt interruption of the fluorescence by the windows of a micrometric thin cell. The difference is that in our present case, the strong attenuation on a short distance is a “soft” exit window, not imposing a quenching, so that the sub-Doppler contribution appears only on the red side of the transition (instead of being intrinsically symmetric for a thin cell). To make the analogy more obvious, in one of the curves of Fig. 5, the velocity-dependent loss term in Eq. (1) has been replaced by a symmetric loss term, namely, with $\eta(z, v) = \eta(z, -v)$ for $v > 0$. This makes the overall spectrum symmetric around the resonance, while the response on the red side is practically unaffected. This response with the symmetric loss term, clearly sub-Doppler as long as $\Lambda/\tau u \ll 1$, exhibits clear analogies with the experimental observations in thin cells [11]. This confirms again our analysis that the sub-Doppler structure is insensitive to the detection angle, as the experimental observations of sub-Doppler fluorescence in thin cells have been usually performed at $\sim 90^\circ$ from the normal to the window [11].

To summarize, our experiments confirm the general possibility of observing, in a medium strongly absorbing in the vicinity of the window, a narrow sub-Doppler signature in the excitation spectrum of fluorescence, made more visible when implementing a FM technique. This narrow contribution has no connection with the presence of any metallic film

[3–7]. Rather, our interpretation evidences the analogy with various sub-Doppler responses observed with a single laser and occurring in the vicinity of a window. This justifies why a near normal incidence is required for the excitation, while the fluorescence can be detected in any direction.

Finally, we have found (on the 459-nm line) that the sub-Doppler feature is robust when a wavelength selection is applied to the detection scheme, and this allows the fluorescence to be detected on a zero background, insensitive to the nonresonant scattering by the window. Further discrimination on the direct or cascade fluorescence (e.g., from $7P$ or from $7S$) may provide complementary information owing to the different time constants involved. Although the amplitude of the narrow contribution may remain small because the required strong absorption usually comes with a collisional broadening, the sub-Doppler feature may help to analyze how some excited or rare species survive in the vicinity of the window, where specific charges or stray fields may be present. Also, it can be expected that the sub-Doppler signature is not present for a detection from a level populated solely by collision-induced transfers (and velocity redistribution). Conversely, the sub-Doppler structure should survive when the population is induced by internal transfers (fluorescence cascade, blackbody transfer [19], . . .), or when strong absorption can be associated to another species (e.g., dimers vs monomers [20], rare isotope in a mixture). In a similar way, diagnostics of the behavior of excited states close to a surface may be operated in a dual-laser excitation scheme, when the medium is optically thick only for the initial pumping step.

Franco-Brazilian cooperation was supported by CAPES-COFECUB Ph740/12. J.C.A.C. acknowledges financial support for his Ph.D. preparation by “Ciência Sem Fronteiras”, Brazil.

-
- [1] A. Lalot, T. Passerat de Silans, I. Maurin, M. Ducloy, and D. Bloch, Casimir-Polder interactions in the presence of thermally excited surface modes, *Nat. Commun.* **5**, 5634 (2014).
- [2] S. Svanberg, G.-Y. Yan, T. P. Duffey, and A. L. Schawlow, High-contrast Doppler-free transmission spectroscopy, *Opt. Lett.* **11**, 138 (1986).
- [3] K. Le Bris, J.-M. Gagné, F. Babin, and M.-C. Gagné, Characterization of the retrofluorescence inhibition at the interface between glass and optically thick Cs vapor, *J. Opt. Soc. Am. B* **18**, 1701 (2001).
- [4] J.-M. Gagné, C. K. Assi, and K. Le Bris, Measurement of the atomic Cs [$6^2P_{3/2}(F_e = 5)$] hyperfine level effective decay rate near a metallic film with diode laser retrofluorescence spectroscopy, *J. Opt. Soc. Am. B* **22**, 2242 (2005).
- [5] K. Le Bris, C. K. Assi, and J.-M. Gagné, Spectroscopic investigation of sensitized-Cs ($6^2P_{3/2}$ - $6^2P_{1/2}$) laser retrofluorescence in a pure optically thick vapor near a dissipative surface, *Can. J. Phys.* **82**, 387 (2004).
- [6] J.-M. Gagné, K. Le Bris, and M.-C. Gagné, Laser energy-pooling processes in an optically thick Cs vapor near a dissipative surface, *J. Opt. Soc. Am. B* **19**, 2852 (2002).
- [7] J. Liu, Y. Shen, and K. Dai, Measurement of the $^{87}\text{Rb}[5P_{3/2}(F' = 3) - 5S_{1/2}(F = 2)]$ effective nonradiative relaxation rate near a metallic film, *Int. J. Spectrosc.* **2010**, 704183 (2010).
- [8] D. Bloch and M. Ducloy, Atom-wall interaction, *Adv. At., Mol., Opt. Phys.* **50**, 91 (2005).
- [9] G. Zajonc and A. V. Phelps, Nonradiative transport of atomic excitation in Na vapor, *Phys. Rev. A* **23**, 2479 (1981).
- [10] H. van Kampen, V. A. Sautenkov, A. M. Shalagin, E. R. Eliel, and J. P. Woerdman, Dipole-dipole collision-induced transport of resonance excitation in a high-density atomic vapor, *Phys. Rev. A* **56**, 3569 (1997).
- [11] D. Sarkisyan, T. Varzhapetyan, A. Sarkisyan, Yu. Malakyan, A. Papoyan, A. Lezama, D. Bloch, and M. Ducloy, Spectroscopy in an extremely thin vapor cell: Comparing the cell-length dependence in fluorescence and in absorption techniques, *Phys. Rev. A* **69**, 065802 (2004).
- [12] S. Briau, D. Bloch, and M. Ducloy, Detection of slow atoms in laser spectroscopy of a thin vapor film, *Europhys. Lett.* **35**, 337 (1996).

- [13] P. Ballin, E. Moufarej, I. Maurin, A. Laliotis, and D. Bloch, Three-dimensional confinement of vapor in nanostructures for sub-Doppler optical resolution, *Appl. Phys. Lett.* **102**, 231115 (2013).
- [14] Even for a two-level system, fluorescence from an excited population is at least a second-order process, an intrinsically more complex process than the coherent first-order linear effect responsible for selective reflection or absorption in a microcell (see, e.g., [8,11,12]). This explains why, until now, a rigorous theory of sub-Doppler fluorescence in a thin vapor cell has been limited to a formal approach. See G. V. Nikogosyan, D. G. Sarkisyan, and Yu. P. Malakyan, Absorption of resonance radiation and fluorescence of a layer of an atomic gas with thickness of the order of a wavelength, *J. Opt. Technol.* **71**, 602 (2004).
- [15] L. Roso-Franco, Propagation of light in a nonlinear absorber, *J. Opt. Soc. Am. B* **4**, 1878 (1987).
- [16] H. Failache, S. Saltiel, A. Fischer, D. Bloch, and M. Ducloy, Resonant Quenching of Gas-Phase Cs Atoms Induced by Surface Polaritons, *Phys. Rev. Lett.* **88**, 243603 (2002).
- [17] W. Lukosz and R. E. Kunz, Fluorescence lifetime of magnetic and electric dipoles near a dielectric interface, *Opt. Commun.* **20**, 195 (1977).
- [18] A. L. J. Burgmans, M. F. H. Schuurmans, and B. Bölger, Transient behavior of optically excited vapor atoms near a solid interface as observed in evanescent wave emission, *Phys. Rev. A* **16**, 2002 (1977).
- [19] M. Pimbert, Transfert d'excitation électronique, par collision atomique, entre niveaux élevés d'un atome de césium, *J. Phys. (Paris, 1946–1992)* **33**, 331 (1972).
- [20] T. Passerat de Silans, I. Maurin, A. Laliotis, P. Chaves de Souza Segundo, and D. Bloch, Extra sub-Doppler lines in the vicinity of the third resonance 6S-8P of atomic Cs attributed to optically induced Cs dimers, *Phys. Rev. A* **83**, 043402 (2011).

CHAPITRE 8

CONCLUSION GÉNÉRALE

La mise en évidence des effets de température d'un couplage résonnant et non-résonnant, entre l'absorption atomique et une émission thermique d'un mode de polariton de surface de surface, constitue le résultat principal de cette thèse. L'existence de ce couplage résonnant a comme conséquence une exaltation de l'interaction Casimir-Polder observée pour le système Cs ($7P_{1/2}$) /saphir, qui passe de ~ 24 à $\sim 76,5$ kHz. μm^3 (précision de $\sim 10\%$), pour une plage de température de 150 à 800 °C. Dans le cas du système Cs ($7P_{3/2}$) /saphir, l'interaction Casimir-Polder reste relativement faible et décroît modérément avec la température, car le couplage principal du niveau Cs ($7P_{3/2}$) se trouve dans l'aile du mode de polariton de la surface (interaction Casimir-Polder non-résonnante). Dans les mêmes conditions expérimentales que Cs ($7P_{1/2}$) /saphir, nous avons observé une légère descente du C_3 ($7P_{3/2}$), en fonction de la température, qui a été entre ~ 16 à $\sim 12,5$ kHz. μm^3 (incertitude de $\sim 10\%$). Ces résultats de mesure ne prennent pas en compte les possibles échanges réels d'énergie entre l'atome et le polariton de surface du saphir, présumé importants dans le cas du système d'interaction atome-surface Cs ($7P_{1/2}$) /saphir, puisque celle-ci est une interaction résonnante. Le paramètre qui quantifie ce phénomène est le Γ_3 . Pour établir que ce paramètre dans les ajustements théoriques sur les courbes expérimentales est faible, il nous a fallu analyser le rapport des amplitudes des spectres de RSFM, pour les interactions subies par les différentes composantes de structure fine, Cs ($7P_{1/2}$) et Cs ($7P_{3/2}$). Expérimentalement, la détection quasi-simultanée sur ces deux raies est très importante dans cette analyse du rapport des amplitudes, parce que les conditions de températures et densité atomique de la cellule sont toujours

identiques. En outre, pour le niveau Cs ($7P_{3/2}$), on ne prévoit pas un transfert réel par l'absorption thermique d'un mode de polariton de surface, et ce qui fait que les spectres de RSFM vers le niveau Cs ($7P_{1/2}$) fournissent une référence d'amplitude.

Parallèlement aux résultats expérimentaux du C_3 pour les spectres de RSFM sondant les niveaux Cs ($7P_{1/2}$) et Cs ($7P_{3/2}$), nous avons développé des prédictions théoriques, qui ne sont que en accord relatif avec les résultats expérimentaux. Cette non-concordance pourrait venir : (i) de manque de connaissance des probabilités de transition, notamment pour le couplage dipolaire $7P \rightarrow 6D$; (ii) de l'amplitude ou position du mode de polariton de surface à des températures différentes ; (iii) du modèle d'ajustement des spectres de réflectivité/émissivités) pour avoir accès aux valeurs de $\varepsilon(\omega)$. En outre, nos résultats sur le C_3 ($7P_{1/2}$) peuvent être une sonde très précise pour obtenir des informations sur le mode de polariton de surface de saphir, comme par exemple, amplitude et position.

En plus des mesures sur l'interaction Cs ($7P_{1/2}$) /saphir et Cs ($7P_{3/2}$) /saphir, une expérience de RS pour la raie D₁ du césium, à l'interface avec une surface de saphir, a aussi été mise en place, même si des résultats avaient déjà été obtenus précédemment [79]. Outre la vérification qu'il n'y a pas d'effet lié à la température de la surface, la principale nouveauté de notre étude était d'analyser les signaux expérimentaux de RSFM à très basse pression de Cs, où les effets de collisions sont négligés. Le coefficient de vdW est obtenu très constamment à une valeur de $1,6 \text{ kHz} \cdot \mu\text{m}^3$ (incertitude de 20%) et indépendante de la température de la surface. Nonobstant, aux basses pressions de Cs, les largeurs des spectres de RSFM ($\gamma_{RSFM} \approx 8,5 \text{ MHz}$) restent assez élevées comparées à la largeur naturelle ($\gamma_0 \approx 4,5 \text{ MHz}$). Bien que pour ce niveau les effets de retard puissent être assez prononcés à courte distance de la surface ($z < 100 \text{ nm}$), et fournir une explication pour l'écart entre le C_3 mesuré et celui prévu ($C_3^{the} \approx 1,1 \text{ kHz} \cdot \mu\text{m}^3$, mais qui devient $\sim 1,6 \text{ kHz} \cdot \mu\text{m}^3$ pour $z \gtrsim 100 \text{ nm}$, qui est la région sondée, dans ce cas, par la technique de RS), la largeur des spectres, dans la région sondée par la RS, n'est pas expliquée par ces effets de retard, alors même que l'on a pris la précaution de vérifier sur l'absorption saturée auxiliaire que le montage permet d'obtenir des signaux notamment plus étroits.

Par ailleurs, au cours de nos investigations avec une longue cellule où la vapeur se trouve dans un système où l'équilibre thermique n'est que local, nous avons réalisé une expérience de diagnostic qui détectait la fluorescence émise, dans un milieu optiquement épais, pour des excitations lasers, sur les raies $6S_{1/2} \rightarrow 6P_{1/2}$ et $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{1/2}$.

Un point qui reste en suspens est de vérifier s'il y a un transfert réel d'énergie de Cs ($7P_{1/2}$) à Cs ($6D_{3/2}$) par l'émission d'un polariton de surface pour le saphir thermiquement émissif. Nous avons commencé à mettre en place un système qui sonde la population des atomes transférés du niveau Cs ($7P$) au niveau Cs ($6D_{3/2}$). Cette expérience est très similaire à celle effectuée par H. Failache *et al* [16]. Il s'agit d'un système de type pompe-sonde, avec un laser (455 ou 459 nm) qui pompe jusqu'au niveau Cs ($7P$) et, où on sonde une réflexion sélective depuis Cs ($6D_{3/2}$). On a choisi la transition $6D_{3/2} \rightarrow 7F_{5/2}$ ($\lambda = 1,524 \mu\text{m}$) parce qu'elle a une probabilité de transition plus forte, que pour les autres, depuis le niveau Cs ($6D_{3/2}$) [66]. Un travail préliminaire, avant la mise en place de la source spécifique à $1,524 \mu\text{m}$, a cependant montré 2 difficultés importantes : la transition $6D_{3/2} \rightarrow 7F_{5/2}$ est particulièrement faible ($A \approx 0,449 \cdot 10^6 \text{ s}^{-1}$) [66] et le δ_{vdW} ($7F_{5/2}$) peut être source de difficultés émergentes d'interprétation.

BIBLIOGRAPHIE

- [1] F. London. Zur theorie und systematik der molekularkräfte. *Zeitschrift für Physik*, 63 :245–279, 1930.
- [2] J. E. Lennard-Jones. Processes of adsorption and diffusion on solid surfaces. *Trans. Faraday Soc.*, 28 :333–359, 1932.
- [3] Martine Chevrollier, Michèle Fichet, Marcos Oria, Gabriel Rahmat, Daniel Bloch, and Martial Ducloy. High resolution selective reflection spectroscopy as a probe of long-range surface interaction : measurement of the surface van der Waals attraction exerted on excited Cs atoms. *Journal de Physique II*, 2(4) :631–657, 1992.
- [4] Nicolas Papageorgiou. *Spectroscopie de réflexion à très haute résolution sur la vapeur de césium : déplacement collisionnel, structure Zeeman et effets de saturation sur la raie D₂*. PhD thesis, Paris 13, 1994.
- [5] M. Fichet, F. Schuller, D. Bloch, and M. Ducloy. van der waals interactions between excited-state atoms and dispersive dielectric surfaces. *Phys. Rev. A*, 51 :1553–1564, 1995.
- [6] M.-P. Gorza and M. Ducloy. van der waals interactions between atoms and dispersive surfaces at finite temperature. *Eur. Phys. J. D*, 40 :343–356, 2006.
- [7] H. B. G. Casimir and D. Polder. The influence of retardation on the london-van der waals forces. *Phys. Rev.*, 73 :360–372, 1948.
- [8] C. I. Sukenik, M. G. Boshier, D. Cho, V. Sandoghdar, and E. A. Hinds. Measurement of the casimir-polder force. *Phys. Rev. Lett.*, 70 :560–563, 1993.

- [9] Fujio Shimizu. Specular reflection of very slow metastable neon atoms from a solid surface. *Phys. Rev. Lett.*, 86 :987–990, 2001.
- [10] D. M. Harber, J. M. Obrecht, J. M. McGuirk, and E. A. Cornell. Measurement of the casimir-polder force through center-of-mass oscillations of a bose-einstein condensate. *Phys. Rev. A*, 72 :033610, 2005.
- [11] J. M. Wylie and J. E. Sipe. Quantum electrodynamics near an interface. *Phys. Rev. A*, 30 :1185–1193, 1984.
- [12] J. M. Wylie and J. E. Sipe. Quantum electrodynamics near an interface. ii. *Phys. Rev. A*, 32 :2030–2043, 1985.
- [13] E. Burstein, W. P. Chen, Y. J. Chen, and A. Hartstein. Surface polaritons propagating electromagnetic modes at interfaces. *Journal of Vacuum Science and Technology*, 11(6) :1004–1019, 1974.
- [14] H. Failache, S. Saltiel, M. Fichet, D. Bloch, and M. Ducloy. Resonant coupling in the van der waals interaction between an excited alkali atom and a dielectric surface : an experimental study via stepwise selective reflection spectroscopy. *Eur. Phys. J. D*, 23 :237–255, 2003.
- [15] Horacio Failache, Solomon Saltiel, Michèle Fichet, Daniel Bloch, and Martial Ducloy. Resonant van der waals repulsion between excited cs atoms and sapphire surface. *Phys. Rev. Lett.*, 83 :5467–5470, 1999.
- [16] Horacio Failache, Solomon Saltiel, Alexis Fischer, Daniel Bloch, and Martial Ducloy. Resonant quenching of gas-phase cs atoms induced by surface polaritons. *Phys. Rev. Lett.*, 88 :243603, 2002.
- [17] D. Bloch and M. Ducloy. Atom-wall interaction. volume 50 of *Advances In Atomic, Molecular, and Optical Physics*, pages 91 – 154. Academic Press, 2005.
- [18] V. Sandoghdar, C. I. Sukenik, E. A. Hinds, and S. Haroche. Direct measurement of the van der waals interaction between an atom and its images in a micron-sized cavity. *Phys. Rev. Lett.*, 68 :3432–3435, 1992.
- [19] E. A. Hinds and V. Sandoghdar. Cavity qed level shifts of simple atoms. *Phys. Rev. A*, 43 :398–403, 1991.

- [20] Pavel Bushev, Alex Wilson, Jürgen Eschner, Christoph Raab, Ferdinand Schmidt-Kaler, Christoph Becher, and Rainer Blatt. Forces between a single atom and its distant mirror image. *Phys. Rev. Lett.*, 92 :223602, Jun 2004.
- [21] L. Hollberg and J. L. Hall. Measurement of the shift of rydberg energy levels induced by blackbody radiation. *Phys. Rev. Lett.*, 53 :230–233, 1984.
- [22] K. S. Lai and E. A. Hinds. Blackbody excitation of an atom controlled by a tunable cavity. *Phys. Rev. Lett.*, 81 :2671–2674, 1998.
- [23] Andrei V. Shchegrov, Karl Joulain, Rémi Carminati, and Jean-Jacques Greffet. Near-field spectral effects due to electromagnetic surface excitations. *Phys. Rev. Lett.*, 85 :1548–1551, 2000.
- [24] Jean-Jacques Greffet, Remi Carminati, Karl Joulain, Jean-Philippe Mulet, Stephane Mainguy, and Yong Chen. Coherent emission of light by thermal sources. *Nature*, 416 :61–64, 2002.
- [25] Arthur Babuty, Karl Joulain, Pierre-Olivier Chapuis, Jean-Jacques Greffet, and Yannick De Wilde. Blackbody spectrum revisited in the near field. *Phys. Rev. Lett.*, 110 :146103, 2013.
- [26] Thierry Passerat de Silans. *Interaction atome-surface : interaction de van der Waals entre un atome excité et une surface diélectrique thermiquement émissive : oscillations de Bloch pour un atome adsorbé*. PhD thesis, Paris 13, 2009.
- [27] Athanasios Laliotis, Thierry Passerat De Silans, Isabelle Maurin, Martial Ducloy, and Daniel Bloch. Casimir-polder forces in the presence of thermally excited surface modes. *Nature Communications*, 5 :4364, 2014.
- [28] Martine Chevrollier. *Spectroscopie de réflexion sélective à une interface diélectrique/vapeur de césium : observation de l’attraction van der Waals de surface*. PhD thesis, Paris 13, 1992.
- [29] J. M. Obrecht, R. J. Wild, M. Antezza, L. P. Pitaevskii, S. Stringari, and E. A. Cornell. Measurement of the temperature dependence of the casimir-polder force. *Phys. Rev. Lett.*, 98 :063201, 2007.
- [30] Mauro Antezza, Lev P. Pitaevskii, and Sandro Stringari. New asymptotic behavior of the surface-atom force out of thermal equilibrium. *Phys. Rev. Lett.*, 95 :113202, 2005.

- [31] M. Ducloy and M. Fichet. General theory of frequency modulated selective reflection. influence of atom surface interactions. *J. Phys. II France*, 1(12) :1429–1446, 1991.
- [32] M. Oria, M. Chevrollier, D. Bloch, M. Fichet, and M. Ducloy. Spectral observation of surface-induced van der waals attraction on atomic vapour. *EPL (Europhysics Letters)*, 14(6) :527, 1991.
- [33] Pedro chaves de Souza Segundo. *Átomos próximos à superfície : interação de van der Waals et Diodo laser acoplado à transição atômica : realimentação incoerente*. PhD thesis, Universidade Federal da Paraíba, 2005.
- [34] Elias Moufarej. *Infiltration d'une vapeur diluée dans une opale artificielle Langmuir-Blodgett : études optiques et spectroscopiques*. PhD thesis, Université paris 13, 2014.
- [35] João Carlos de Aquino Carvalho, Athanasios Laliotis, Martine Chevrollier, Marcos Oriá, and Daniel Bloch. Backward-emitted sub-doppler fluorescence from an optically thick atomic vapor. *Phys. Rev. A*, 96 :043405, 2017.
- [36] John David Jackson. *Classical electrodynamics*. John Wiley & Sons, 2007.
- [37] E. M. Lifshitz. The theory of molecular attractive forces between solids. *Sov. Phys. JETP*, 2, 1956.
- [38] AD McLachlan. Retarded dispersion forces in dielectrics at finite temperatures. *Proceedings of the Royal Society of London A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, 274(1356) :80–90, 1963.
- [39] AD McLachlan. Retarded dispersion forces between molecules. *Proceedings of the Royal Society of London A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, 271(1346) :387–401, 1963.
- [40] M.J. Renne and B.R.A. Nijboer. Microscopic derivation of macroscopic van der waals forces. *Chemical Physics Letters*, 1(8) :317 – 320, 1967.
- [41] G. Barton. van der waals shifts in an atom near absorptive dielectric mirrors. *Proceedings of the Royal Society of London A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, 453(1966) :2461–2495, 1997.
- [42] C. Mavroyannis. The interaction of neutral molecules with dielectric surfaces. *Molecular Physics*, 6(6) :593–600, 1963.
- [43] E. M. Purcell. Spontaneous emission probabilities at radio frequencies. volume 340, page 839. Springer, Boston, MA, 1995.

- [44] Daniel Kleppner. Inhibited spontaneous emission. *Phys. Rev. Lett.*, 47 :233–236, 1981.
- [45] Fam Le Kien and A. Rauschenbeutel. Spontaneous emission of a two-level atom with an arbitrarily polarized electric dipole in front of a flat dielectric surface. *Phys. Rev. A*, 93 :043828, 2016.
- [46] W. Jhe, A. Anderson, E. A. Hinds, D. Meschede, L. Moi, and S. Haroche. Suppression of spontaneous decay at optical frequencies : test of vacuum-field anisotropy in confined space. *Phys. Rev. Lett.*, 58 :666–669, 1987.
- [47] Horacio Failache. *Etude spectroscopique des couplages résonnants dans l'interaction de van der Waals entre un atome et une surface diélectrique*. PhD thesis, 1999.
- [48] Gilbert Grynberg, Alain Aspect, and Claude Fabre. *Introduction aux lasers et à l'optique quantique*. Ellipses, 1997.
- [49] M. Chevrollier, D. Bloch, G. Rahmat, and M. Ducloy. van der waals-induced spectral distortions in selective-reflection spectroscopy of cs vapor : the strong atom–surface interaction regime. *Opt. Lett.*, 16(23) :1879–1881.
- [50] A. S. Barker. Infrared lattice vibrations and dielectric dispersion in corundum. *Phys. Rev.*, 132 :1474–1481, 1963.
- [51] T Passerat de Silans, A Laliotis, I Maurin, M-P Gorza, P Chaves de Souza Segundo, M Ducloy, and D Bloch. Experimental observations of temperature effects in the near-field regime of the casimirpolder interaction. *Laser Physics*, 24(7) :074009, 2014.
- [52] Thierry Passerat de Silans, Isabelle Maurin, Pedro Chaves de Souza Segundo, Solomon Saltiel, Marie-Pascale Gorza, Martial Ducloy, Daniel Bloch, Domingos de Sousa Meneses, and Patrick Echegut. Temperature dependence of the dielectric permittivity of CaF_2 , BaF_2 and Al_2O_3 : application to the prediction of a temperature-dependent van der waals surface interaction exerted onto a neighbouring $\text{cs}(8p\ 3/2)$ atom. *Journal of Physics : Condensed Matter*, 21(25) :255902, 2009.
- [53] D. Sarkisyan, U. Hinze, L. Meyer, and B. Wellegehausen. Efficient cw sodium dimer raman laser operation in a high-temperature sapphire cell. *Applied Physics B : Lasers and Optics*, 70 :351–354, 2000.

- [54] M.-P. Gorza, S. Saltiel, H. Failache, and M. Ducloy. Quantum theory of van der waals interactions between excited atoms and birefringent dielectric surfaces. *Eur. Phys. J. D*, 15 :113–126, 2001.
- [55] Leire del Campo, Domingos De Sousa Meneses, Annie Blin, Benot Rousseau, Emmanuel Vron, Marianne Balat-Pichelin, and Patrick Echegut. High-temperature radiative properties of an yttria-stabilized hafnia ceramic. *Journal of the American Ceramic Society*, 94(6) :1859–1864, 2011.
- [56] F Gervais and B Piriou. Anharmonicity in several-polar-mode crystals : adjusting phonon self-energy of LO and TO modes in Al_2O_3 and TiO_2 to fit infrared reflectivity. *Journal of Physics C : Solid State Physics*, 7(13) :2374, 1974.
- [57] B. Rousseau, J.F. Brun, D. De Sousa Meneses, and P. Echegut. Temperature measurement : Christiansen wavelength and blackbody reference. *International Journal of Thermophysics*, 26 :1277–1286, 2005.
- [58] Andrew Resnick, Chris Persons, and George Lindquist. Polarized emissivity and kirchhoff’s law. *Appl. Opt.*, 38(8) :1384–1387.
- [59] Domingos De Sousa Meneses, Jean-Francois Brun, Patrick Echegut, and Patrick Simon. Contribution of semi-quantum dielectric function models to the analysis of infrared spectra. *Appl. Spectrosc.*, 58(8) :969–974.
- [60] D L Mills and E Burstein. Polaritons : the electromagnetic modes of media. *Reports on Progress in Physics*, 37(7) :817, 1974.
- [61] Amnon Yariv and Pochi Yeh. *Optical waves in crystals*, volume 5. Wiley New York, 1984.
- [62] O. Rozenbaum, D. De Sousa Meneses, Y. Auger, S. Chermanne, and P. Echegut. A spectroscopic method to measure the spectral emissivity of semi-transparent materials up to high temperature. *Review of Scientific Instruments*, 70(10) :4020–4025, 1999.
- [63] Alang Kasim Harman, Susumu Ninomiya, and Sadao Adachi. Optical constants of sapphire $\alpha - \text{Al}_2\text{O}_3$ single crystals. *Journal of Applied Physics*, 76(12) :8032–8036, 1994.
- [64] M. Schubert, T. E. Tiwald, and C. M. Herzinger. Infrared dielectric anisotropy and phonon modes of sapphire. *Phys. Rev. B*, 61 :8187–8201, 2000.

- [65] O. S. Heavens. Radiative transition probabilities of the lower excited states of the alkali metals. *J. Opt. Soc. Am.*, 51(10) :1058–1061.
- [66] Anders Lindgård and Svend Erik Nielsen. Transition probabilities for the alkali isoelectronic sequences li, i, na i, k i, rb i, cs, i, fr, i. *Atomic Data and Nuclear Data Tables*, 19(6) :533 – 633, 1977.
- [67] AM Akul'shin, VL Velichanskii, AS Zibrov, VV Nikitin, VA Sautenkov, EK Yurkin, and NV Senkov. Collisional broadening of intra-doppler resonances of selective reflection on the D₂ line of cesium. *JETP Lett.*, 36 :303 – 307, 1982.
- [68] R.W. Wood. Xx. the selective reflexion of monochromatic light by mercury vapour. *The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science*, 18(103) :187–193, 1909.
- [69] Jean-Louis Cojan. Contribution à l'étude de la réflexion sélective sur les vapeurs de mercure de la radiation de résonance du mercure. *Ann. Phys.*, 12(9) :385–440, 1954.
- [70] J.P. Woerdman and M.F.H. Schuurmans. Spectral narrowing of selective reflection from sodium vapour. *Optics Communications*, 14(2) :248 – 251, 1975.
- [71] M. F. H. Schuurmans. Spectral narrowing of selective reflection. *Journal de Physique*, 37(5) :469–485, 1976.
- [72] J. C. de Aquino Carvalho, P. Pedri, M. Ducloy, and A. Laliotis. Retardation effects in spectroscopic measurements of the casimir-polder interaction. *Phys. Rev. A*, 97 :023806, 2018.
- [73] Daniel A Steck. Cesium d line data. 2010.
- [74] N. Papageorgiou, M. Fichet, V.A. Sautenkov, D. Bloch, and M. Ducloy. Doppler-free reflection spectroscopy of self-induced and krypton-induced collisional shift and broadening of cesium D₂ line components in optically dense vapor. *Las. Phys.*, 4(2) :392–395, 1994.
- [75] D. Antypas and D. S. Elliott. Measurement of the radial matrix elements of the $6s^2S_{1/2} \rightarrow 7p^2P_J$ transitions in atomic cesium. *Phys. Rev. A*, 88 :052516, 2013.
- [76] J. M. Obrecht, R. J. Wild, and E. A. Cornell. Measuring electric fields from surface contaminants with neutral atoms. *Phys. Rev. A*, 75 :062903, 2007.
- [77] M. Fichet, G. Dutier, A. Yarovitsky, P. Todorov, I. Hamdi, I. Maurin, S. Saliétiel, D. Sarkisyan, M.-P. Gorza, D. Bloch, and M. Ducloy. Exploring the van der

- waals atom-surface attraction in the nanometric range. *EPL (Europhysics Letters)*, 77(5) :54001, 2007.
- [78] A. Laliotis and M. Ducloy. Casimir-polder effect with thermally excited surfaces. *Phys. Rev. A*, 91 :052506, 2015.
- [79] Athanasios Laliotis, Isabelle Maurin, Michèle Fichet, Daniel Bloch, Martial Ducloy, Nikolay Balasanyan, Asphet Sarkisyan, and David Sarkisyan. Selective reflection spectroscopy at the interface between a calcium fluoride window and Cs vapour. *Applied Physics B - Laser and Optics*, 90 :415–420, 2008.
- [80] C. Zimmermann V. Vuletić, V.A. Sautenkov and T.W. Hänsch. Measurement of cesium resonance line self-broadening and shift with doppler-free selective reflection spectroscopy. *Optics Communications*, 99(3) :185 – 190, 1993.
- [81] W. Lukosz and R. E. Kunz. Light emission by magnetic and electric dipoles close to a plane interface. i. total radiated power. *J. Opt. Soc. Am.*, 67(12) :1607–1615.
- [82] S. Svanberg, G.-Y. Yan, T. P. Duffey, and A. L. Schawlow. High-contrast doppler-free transmission spectroscopy. *Opt. Lett.*, 11(3) :138–140.
- [83] Jean-Marie Gagné, Claude Kondo Assi, and Karine Le Bris. Measurement of the atomic Cs $[6^2P_{3/2} (Fe = 5)]$ hyperfine level effective decay rate near a metallic film with diode laser retrofluorescence spectroscopy. *J. Opt. Soc. Am. B*, 22(10) :2242–2249.
- [84] Karine Le Bris, Claude Kondo Assi, and Jean-Marie Gagné. *Can. J. Phys.*, (5) :387–402.
- [85] Z. J. Jabbour, R. K. Namiotka, J. Huennekens, M. Allegrini, S. Milošević, and F. de Tomasi. Energy-pooling collisions in cesium : $6p_j + 6p_j \rightarrow 6s + (nl=7p,6d,8s,4f)$. *Phys. Rev. A*, 54 :1372–1384, 1996.
- [86] João Carlos de A. Carvalho, Marcos Oriá, Martine Chevrollier, Hugo L. D. de Souza Cavalcante, and T. Passerat de Silans. Redistribution of light frequency by multiple scattering in a resonant atomic vapor. *Phys. Rev. A*, 91 :053846, 2015.
- [87] Paul W. Pace and J. B. Atkinson. Transfer of electronic excitation between the $7^2P_{1/2}$ and $7^2P_{3/2}$ states of cesium induced by collisions with cesium atoms. *Canadian Journal of Physics*, 52(17) :1641–1647, 1974.

-
- [88] M. Pimbert. Transfert d'excitation électronique, par collision atomique, entre niveaux élevés d'un atome de césium. *J. Phys. France*, 33(4) :331–343, 1972.
- [89] H. van Kampen, V. A. Sautenkov, A. M. Shalagin, E. R. Eliel, and J. P. Woerdman. Dipole-dipole collision-induced transport of resonance excitation in a high-density atomic vapor. *Phys. Rev. A*, 56 :3569–3575, 1997.