SPIM Thèse de Doctorat

école doctorale sciences pour l'ingénieur et microtechniques UNIVERSITÉ DEFRANCHE-COMTÉ

> Étude du déplacement collisionnel de la fréquence d'horloge du césium en présence du gaz tampon hélium ou xénon. Applications pour microcellules à haute température.

ERIC KROEMER

SPIM Thèse de Doctorat

X X X

école doctorale sciences pour l'ingénieur et microtechniques UNIVERSITÉ DE FR СОМТ Ε.

A N

CH

THÈSE présentée par

ERIC KROEMER

pour obtenir le Grade de Docteur de l'Université de Franche-Comté

Spécialité : Sciences pour l'Ingénieur

Étude du déplacement collisionnel de la fréquence d'horloge du césium en présence du gaz tampon hélium ou xénon.

Applications pour microcellules à haute température.

Marie Houssin	Rapporteur	Professeur, Université d'Aix-Marseille				
Noël Dimarcq	Rapporteur	Directeur de Recherche CNRS, LNE-SYRTE,				
		Observatoire de Paris				
Bernard Fouilland	Examinateur	Ingénieur, Thales Avionics, Valence				
Jean-Marc Lesage	Examinateur	Ingénieur, Direction Générale de l'Armement,				
		Rennes				
Christophe Gorecki	Examinateur	Directeur de Recherche CNRS, Institut FEMTO-ST,				
		Besançon				
VINCENT GIORDANO	Directeur de thèse	Directeur de Recherche CNRS, Institut FEMTO-ST,				
		Besançon				
Rodolphe Boudot	Co-directeur de thèse	Chercheur CNRS, Institut FEMTO-ST, Besançon				

Soutenue publiquement le 08 juillet 2015 devant le Jury composé de :

À mon papa, parti trop tôt. À ma famille et à mes amis. À celle qui partage ma vie.

REMERCIEMENTS

Ce manuscrit résume les travaux réalisés au sein de l'équipe OHMS (Oscillateurs, Horloges, Métrologie et Systèmes) du département Temps-Fréquence de l'Institut FEMTO-ST (UMR-6174) à Besançon. Ces travaux se sont déroulés de décembre 2011 à décembre 2014 et ont été financés par le groupe Thales Avionics.

Ces trois années m'ont été riches d'enseignement tant d'un point de vue professionnel qu'humain. J'ai eu la chance d'évoluer dans un milieu agréable et de qualité. Ces quelques lignes sont destinées à remercier l'ensemble des personnes m'ayant aidé et soutenu.

Mes premiers et plus grands remerciements vont à mes encadrants : Rodolphe Boudot, chercheur HDR au CNRS, et Vincent Giordano, directeur de recherche au CNRS et ancien directeur du département. Ils possèdent de grandes qualités d'écoute, de pédagogie, de gentillesse et d'intelligence (en plus d'être bons dans ce qu'ils font !). Je n'en serais pas là aujourd'hui sans eux alors je vous en remercie grandement.

Je tiens à remercier Bernard Fouilland, du groupe Thales Avionics, d'avoir accepté de financer et suivre ces travaux de thèse. Je remercie également l'ensemble des personnes du groupe Thales Avionics qui se sont intéressés à ces travaux.

Je souhaite également remercier les membres du jury qui ont bien voulu examiner ces travaux : Noël Dimarcq, directeur de recherche CNRS au LNE-SYRTE, Marie Houssin, Professeur à l'Université d'Aix-Marseille, Jean-Marc Lesage, Ingénieur DGA et Christophe Gorecki, président du jury et directeur de recherche CNRS à l'Institut FEMTO-ST.

Ma gratitude se tourne vers Nicolas Chaillet, directeur de l'Institut FEMTO-ST, de m'avoir accueilli au sein de ce grand institut.

Un grand merci également aux chercheurs, professeurs et personnels du département de m'avoir aidé sur des points divers et variés. Je remercie entre autres Aryanne, Cyrus, Philippe, Pierre, Serge, Benoît, PYB, Yannick, Yann, Jacques, Clément et j'en oublie !

Je remercie chaleureusement mes camarades de Licence et Master qui se sont embarqués eux aussi dans cette grande aventure. Je pense tout particulièrement à Antoine, Jacques, Batiste, Rémy, PAM, Amaury, Seb, Romain.

Je remercie grandement mes collègues de bureau Alex, Moustafa, Maël.

Et enfin, je remercie ma famille et mes amis proches qui m'ont soutenu durant ces années, et tout particulièrement la licornesque Poussinus Rex de m'avoir supporté pendant les longs mois de rédaction.

Sommaire

In	trodu	ction	1		
1	Réfé	rences de fréquence et horloges atomiques	5		
	1.1	Principe de fonctionnement	6		
		1.1.1 Définition d'une horloge	6		
		1.1.2 Horloge à jet thermique de césium	6		
	1.2	Outils de caractérisation	9		
		1.2.1 Stabilité relative de fréquence	10		
		1.2.2 Exactitude	12		
	1.3	Applications	13		
	1.4	Horloges atomiques compactes	15		
2	Hor	loges CPT	19		
	2.1	Vers une horloge compacte	20		
	2.2	Piégeage cohérent de population	20		
		2.2.1 Principe physique	21		
		2.2.2 CPT dans les systèmes réels	23		
		2.2.3 Schémas d'excitation CPT	28		
	2.3	Micro-horloges	32		
		2.3.1 Projet MAC-TFC	32		
		2.3.2 Architecture	32		
	2.4	Bruits limitants à court-terme	35		
	2.5	Problématique et objectif de thèse	37		
3	Ban	Banc de caractérisation CPT continu			
	3.1	Principe et aperçu général	40		
	3.2	Banc de mesure	40		
		3.2.1 Partie optique	40		
		3.2.2 Module physique	48		

4 Mesure des pressions et dépendance thermique				
	4.1	Cellules à disposition	. 56	
	4.2	Mesure des pressions	. 56	
		4.2.1 Principe	. 57	
		4.2.2 Résultats des mesures de pression	. 62	
	4.3	Dépendance thermique	. 66	
		4.3.1 Déplacement des transitions optiques	. 66	
		4.3.2 Élargissement des transitions optiques	. 69	
	4.4	Résumé	. 71	
5	Etuc	de du déplacement collisionnel césium-gaz tampon	73	
	5.1	Déplacements de la fréquence d'horloge	. 74	
		5.1.1 Déplacement Zeeman	. 74	
		5.1.2 Déplacement lumineux	. 74	
	5.2	Déplacement collisionnel de fréquence hyperfine	. 76	
		5.2.1 Cellules mono-gaz	. 77	
		5.2.2 Cellules à mélange de gaz	. 78	
	5.3	Choix des gaz tampon	. 78	
	5.4	Principe de mesure	. 81	
	5.5	Résultats de la mesure de déplacement collisionnel	. 82	
		5.5.1 Diazote	. 82	
		5.5.2 Hélium	. 83	
		5.5.3 Xénon	. 85	
	5.6 Spectroscopie CPT			
		5.6.1 Hélium	. 89	
		5.6.2 Xénon à 17,9 Torr	. 93	
		5.6.3 Xénon à 35,0 Torr	. 97	
	5.7	Conclusion sur les gaz tampon hélium et xénon	. 100	
6	Mes	sures sur microcellules He-Ne	103	
	6.1	La microcellule	. 104	
		6.1.1 Description générale	. 104	
		6.1.2 Microcellules développées à FEMTO-ST	. 106	
	6.2	Banc de mesure VCSEL - CPT	. 111	
		6.2.1 Étude de la VCSEL D_1	. 112	
		6.2.2 Mesure du signal d'horloge	. 116	

	6.3 Mesure sur microcellules Cs-Ne-He			
		6.3.1	Banc de mesure à schéma CPT optimisé	117
		6.3.2	Résultats expérimentaux	120
7	Con	clusion	générale	125
A	A Constantes fondamentales et unités			129
B	3 Atome de césium et gaz tampon			
Bibliographie				149

INTRODUCTION

«Ce n'est pas le temps qui passe, mais nous qui passons dans le temps.» Albert Einstein

La mesure du temps a toujours été un besoin pour l'homme. Mais qu'est-ce que *la mesure du temps*? Ce n'est pas le temps à proprement parler que nous mesurons mais une durée entre deux événements. Cette mesure a d'abord été basée sur des phénomènes astronomiques et naturels (alternance jour/nuit par exemple), et sur des dispositifs physiques périodiques (comme l'oscillation d'un pendule).

La mesure et le balisage du temps, très commodes pour rythmer nos vies, sont indispensables pour les transports et notamment pour la navigation maritime. En effet, le seul moyen de se repérer au milieu d'un paysage uniforme, outre la position par rapport aux étoiles, est de compter le temps, en gardant à bord du navire l'heure du port de départ. Ainsi, dès le XVIII^e siècle, des instruments portables de mesure du temps sont inventés, notamment par l'horloger britannique John Harrison en 1737. Ces instruments sont basés sur des chutes de corps ou des ressorts et deviennent de plus en plus complexes pour assurer robustesse et stabilité, notamment à leur transport.

En 1873, James Clerk Maxwell suggéra d'utiliser les dimensions et les propriétés oscillatoires des atomes pour déterminer avec exactitude les échelles de temps mais aussi d'espace. Cette suggestion sera pleinement réalisée en 1967 lors de la définition de la seconde, basée sur des transitions énergétiques de l'atome de césium 133. L'utilisation des propriétés atomiques pour la détermination du temps donne accès à une stabilité et une exactitude jamais atteintes par des dispositifs basés sur des phénomènes macroscopiques.

Les meilleures horloges atomiques permettent d'obtenir une dérive de temps de l'ordre d'une seconde sur plusieurs milliards d'années. Ces stabilités exceptionnelles sont difficilement appréhendables par l'Homme et sont pourtant utilisées de manière quotidienne au travers du transfert de données ou du positionnement par satellite, où une dérive de 0,000 001 s donne une imprécision au sol de 300 m. Cependant, ces horloges atomiques, extrêmement complexes et sophistiquées, ne sont pas transportables.

Depuis quelques dizaines d'années, un effort notable est réalisé par différents laboratoires et industries du monde entier pour produire des horloges atomiques à la fois stables et compactes. En 2004, des travaux pionniers ont été menés sur un prototype de micro-horloge [1]. En 2011, la première micro-horloge à cellule de césium opérationnelle est apparue sur le marché américain [2]. Celle-ci présente des performances remarquables tout en ayant les dimensions d'une boîte d'allumettes. Une telle horloge, d'une taille comparable à une horloge à quartz mais présentant des performances supérieures, est un enjeu stratégique majeur, tant civil que militaire. Le projet européen MAC-TFC, débuté en 2008, a ainsi pu concevoir et démontrer un prototype de

micro-horloge atomique à césium reposant sur le principe de piégeage cohérent de population et présentant un optimum en température de fonctionnement, nommé température d'inversion, autour de 80 °C. Cette température particulière traduit une insensibilité au premier ordre de la fréquence d'horloge aux variations de température de la cellule autour de ce point d'inversion. Elle permet ainsi de relâcher les contraintes sur le contrôle de la température. Pour des applications à contraintes environnementales sévères telles l'utilisation d'horloges atomiques compactes dans des avions ou des satellites, il est préférable d'avoir des températures de fonctionnement de l'ordre de 90 jusqu'à 125 °C.

Ce travail de thèse est financé par Thales Avionics et est réalisé en collaboration avec le département Temps-Fréquence de l'Institut FEMTO-ST de Besançon. Le but majeur du travail présenté dans ce manuscrit est l'augmentation de la température d'inversion de la microcellule de la microhorloge. Cette température dépend de la nature du gaz tampon introduit dans la cellule à vapeur de césium. Aussi, ce travail se concentre principalement sur la recherche d'un gaz tampon ou d'un mélange de gaz tampon autorisant une température d'inversion supérieure à 80 °C via des mesures de déplacement collisionnel de la fréquence d'horloge du césium en présence de gaz tampon.

Le premier chapitre donne quelques notions élémentaires de la métrologie temps-fréquence et se focalise, pour des raisons de cohérences pratique et historique, sur la description de l'horloge atomique à jet thermique de césium à pompage optique. Nous trouvons également dans ce chapitre les outils principaux à la caractérisation des performances des horloges en terme de stabilité et d'exactitude. Ce chapitre décrit également diverses applications où les horloges atomiques jouent un rôle majeur. Enfin, ce chapitre dresse un état de l'art des performances des horloges atomiques qui nous concernent plus particulièrement dans ce travail de thèse : les horloges atomiques compactes.

Le second chapitre détaille la description physique du phénomène de piégeage cohérent de population (CPT) ainsi que les limitations de ce phénomène dans des systèmes réels. Ce chapitre décrit également le principe et le fonctionnement d'une micro-horloge atomique, en s'appuyant sur le prototype de micro-horloge européenne MAC-TFC. Nous trouvons également les différents bruits limitant les performances des horloges atomiques miniatures et compactes.

Le troisième chapitre est consacré à la caractérisation des divers éléments de notre banc de mesure CPT continu. Ce chapitre décrit également le module physique conçu pour accueillir les cellules à vapeur de césium, de taille centimétrique, remplies avec les gaz tampon que nous avons retenus : l'hélium et le xénon. Ces deux gaz peuvent potentiellement être utilisés en mélange avec du néon pour augmenter la température d'inversion au-delà de 80 °C.

Le quatrième chapitre décrit la méthode spectroscopique de mesure de la pression de gaz tampon dans les cellules à vapeur de césium. Cette étape de mesure est indispensable pour déterminer la valeur des coefficients de déplacement collisionnel de la fréquence d'horloge qui nous intéresse ici. Ce chapitre donne les résultats de mesure de pression ainsi que les valeurs des coefficients de la dépendance thermique du déplacement et de l'élargissement optique provoqués par la présence de gaz tampon.

Le cinquième chapitre est le coeur de ce travail de thèse. Il est consacré à la mesure des coefficients de déplacement collisionnel de la fréquence d'horloge du césium en présence d'hélium ou de

xénon. La détermination de ces coefficients est primordiale pour prédire le rapport des pressions partielles de gaz tampon nécessaire à l'obtention d'une température d'inversion supérieure à 80 °C. Ce chapitre donne également les résultats de spectroscopie CPT de base pour les deux gaz tampons retenus. Nous reportons pour la première fois une valeur des coefficients quadratiques en température du déplacement collisionnel en présence d'hélium. Les mesures avec le xénon conduisent à des résultats originaux et très intéressants. L'explication théorique et les phénomènes physiques sous-jacents mis en jeu expliquant les comportements observés restent à bâtir et approfondir.

Enfin, le sixième et dernier chapitre, traite du processus de fabrication des microcellules et décrit les spécificités et l'originalité des microcellules développées à l'institut FEMTO-ST. Les microcellules décrites dans ce chapitre sont remplies d'un mélange de gaz tampon à base de néon et d'hélium qui permet d'obtenir les températures d'inversion élevées escomptées. Ces tests constituent les premières réalisations de microcellules à mélange de gaz tampons à l'Institut FEMTO-ST et sont l'objet de la démonstration de l'obtention de températures d'inversion supérieures à 80 °C grâce à un mélange néon-hélium. Ces travaux font l'objet d'un dépôt de brevet en collaboration avec l'Institut FEMTO-ST et Thales Avionics.

1

Références de fréquence et horloges atomiques

Ce premier chapitre décrit le principe des références de fréquence. D'un point de vue pratique et historique, nous décrirons le fonctionnement de la première horloge atomique viable : l'horloge atomique à jet thermique de césium.

Nous expliquons les outils permettant de caractériser les références de fréquence en terme de bruit, de stabilité et d'exactitude.

Nous donnons les principales applications des références de fréquence et horloges dans divers domaines tels que l'électronique ou le positionnement GPS. Nous présenterons également un aperçu des horloges atomiques micro-ondes compactes.

> «Si vous ne pouvez expliquer un concept à un enfant de six ans, c'est que vous ne le comprenez pas totalement.» Albert Einstein

1.1/ Principe de fonctionnement

1.1.1/ Définition d'une horloge

Une horloge est un dispositif fournissant des impulsions, régulièrement espacées, pouvant constituer des signaux de synchronisation ou de mesure. On définit la période *T* de ce signal, exprimée en secondes, comme l'intervalle de temps entre deux impulsions. On définit également la fréquence v_0 de ce signal, en Hz, comme l'inverse de la période, définissant le nombre d'oscillations par seconde, telle que :

$$\nu_0 = \frac{1}{T} \tag{1.1}$$

Un oscillateur idéal délivre un signal V(t), ayant une fréquence fixe v_0 et une amplitude constante V_0 , de la forme :

$$V(t) = V_0 \sin(2\pi\nu_0 t)$$
 (1.2)

Dans le domaine fréquentiel, le spectre d'un oscillateur idéal n'est donc constitué que d'un seul pic de Dirac à la fréquence v_0 . Cependant, un oscillateur réel voit son amplitude et sa phase perturbées par divers phénomènes aléatoires et/ou déterministes. Ainsi, le signal réel délivré par un oscillateur peut s'écrire sous la forme :

$$V(t) = V_0 [1 + \alpha(t)] \sin[2\pi v_0 t + \varphi(t)]$$
(1.3)

où $\alpha(t)$ représente le bruit d'amplitude et $\varphi(t)$ représente les fluctuations de phase. En règle générale, le bruit d'amplitude est négligeable devant le bruit de phase.

On définit également le facteur de qualité Q d'une horloge comme étant le rapport de la fréquence v_0 délivrée par l'horloge sur la largeur Δv de la bande passante de la résonance :

$$Q = \frac{\nu_0}{\Delta \nu} \tag{1.4}$$

Le facteur de qualité influence directement la stabilité d'une horloge. Plus le facteur de qualité sera élevé, plus l'horloge sera stable puisque l'horloge délivrera un signal qui fluctuera très peu.

1.1.2/ Horloge à jet thermique de césium

La mécanique quantique précise que les niveaux d'énergie d'un atome sont quantifiés et bien définis. La relation de Planck-Einstein (1.5) lie la fréquence v_{at} du rayonnement électromagnétique nécessaire pour effectuer une transition atomique d'un état d'énergie E_1 vers un état d'énergie $E_2 > E_1$:

$$E_2 - E_1 = h v_{at} \tag{1.5}$$

où h est la constante de Planck. Ainsi, l'écart entre deux niveaux énergétiques est stable et pérenne. Le but d'une horloge atomique passive est de transférer cette stabilité naturelle des atomes à un oscillateur local asservi, généralement un oscillateur à quartz dans le cas des horloges atomiques dites micro-ondes.

La première horloge atomique à jet de césium a été mise au point en 1955 par Essen et Parry au *National Physical Laboratory* du Royaume-Uni [3]. Cette famille d'horloge atomique à jet thermique est basée sur la méthode de Ramsey pour sonder la transition d'horloge de l'atome de

césium [4].

Cette famille est composée de deux types d'horloges [5]. Le premier type, appelé horloge à déflexion magnétique, utilise la méthode de Stern-Gerlach pour la sélection magnétique des états atomiques permettant de séparer spatialement le jet atomique en fonction des états énergétiques E_1 et E_2 de l'état fondamental des atomes [6]. Les étalons CS1 et CS2 de la *Physikalisch-Technische Bundesanstalt*, en Allemagne, sont de ce type [7, 8]. Ils fonctionnent en continu depuis des années.

Le second type utilise un pompage et une détection optique comme l'avait proposé Kastler [9]. Nous retrouvons dans ce type d'horloge les étalons NRLM-4 [10] et CRL-01 [11] du Japon, JPO du LNE-SYRTE [12] et NIST-7 des États-Unis [13]. Le pompage et la détection optique permettent d'améliorer la stabilité court-terme de ces étalons, ainsi que leur exactitude. En effet, la sélection magnétique impose par principe de diviser le jet atomique de moitié et donc le nombre d'atomes utiles. De plus, la sélection magnétique occasionne une sélection en vitesse des atomes du jet et des déplacement de fréquences inhérents à cette méthode [14].

Nous pouvons également citer un troisième type qui utilise cette fois non plus un jet thermique horizontal mais une mélasse optique d'atomes refroidis via 3 paires de faisceaux laser à une température de l'ordre de 1 μ K. En désaccordant les lasers, les atomes sont propulsés à la verticale à une vitesse de l'ordre de quelques m/s. Ce type d'horloge porte le nom de fontaine atomique et regroupe notamment les étalons FO1 au LNE-SYRTE [15] ou encore NIST-F1 aux États-Unis [16]. Les fontaines atomiques présentent une stabilité court-terme et une exactitude meilleures que celles d'un jet thermique grâce notamment à la vitesse réduite des atomes qui permet de diminuer considérablement la largeur de raie Δv . La stabilité de fréquence court-terme de JPO est à $3.5 \times 10^{-13} \tau^{-1/2}$ [5] et celle de FO2 (fontaine à césium et rubidium en parallèle) atteint $1.6 \times 10^{-14} \tau^{-1/2}$ [17].

Nous allons décrire l'architecture et le fonctionnement d'une horloge à jet thermique de césium à pompage optique (JPO) (voir figure 1.1) [5].

CRÉATION DU JET ATOMIQUE

Un four chauffe quelques grammes de Cs 133 à environ 90°C et laisse échapper un jet thermique à une vitesse moyenne d'environ 240 m/s dans un vide très poussé. Les atomes sont répartis équitablement sur les 16 sous-niveaux Zeeman de l'état fondamental. De plus, le dispositif offre la possibilité de renverser le jet atomique, de manière à pouvoir mesurer les différences de phase introduites par une dissymétrie de la cavité de Ramsey. L'ensemble du tube est placé dans trois blindages magnétiques en mu-métal pour protéger les atomes des perturbations du champ magnétique terrestre.

POMPAGE OPTIQUE

Le pompage optique (et la détection) se fait sur la raie D_2 du césium à 852,3 nm. L'annexe B donne plus de détails sur la répartition énergétique de l'atome de césium. Le jet balistique d'atomes de césium passe au travers un faisceau laser accordé sur la transition $|F = 4\rangle \rightarrow |F = 4'\rangle$, ce qui va vider le sous-niveau fondamental $|F = 4\rangle$ au profit du sous-niveau fondamental $|F = 3\rangle$. Ce processus prépare les atomes dans un sous-niveau fondamental en vue de leur interrogation dans la cavité de Ramsey. Un champ magnétique statique contrôlé est nécessaire pour lever la dégénérescence des sous-niveaux Zeeman m_F. Celui-ci est parallèle au champ magnétique oscillant dans la cavité de Ramsey.



Figure 1.1 – Schéma de principe d'une horloge atomique à jet de césium à pompage optique. CP : cube polariseur. LR : lame à retard. MAO : modulateur acousto-optique. Schéma repris de [5].

INTERROGATION MICRO-ONDE

Les atomes sont ensuite interrogés par la méthode introduite par Norman Ramsey dans une cavité à deux zones dite cavité de Ramsey [18, 4]. Ceux-ci interagissent une première fois durant une durée τ avec le champ micro-onde v_{LO} injecté dans le premier bras. Les atomes évoluent ensuite librement durant un temps $T \gg \tau$. Ils interagissent de nouveau avec le même champ microonde v_{LO} dans le second bras pendant la même durée τ . Cette méthode permet d'obtenir, via un processus d'interférences entre les deux zones d'interaction, une largeur de raie Δv inversement proportionnelle au temps de libre propagation T.

Ainsi, si la fréquence micro-onde injectée vaut exactement la fréquence de transition v_{at} entre les deux sous-niveaux de l'état fondamental du césium alors le désaccord Raman $\delta_R = v_{LO} - v_{at}$ est nul et la probabilité de transition est maximale : les atomes préparés sur le sous-niveau fondamental $|F = 3\rangle$ effectuent leur transition d'horloge et passent sur le sous-niveau fondamental $|F = 4\rangle$.

Cette fréquence est généralement issue d'un quartz ultra-stable à 5 ou 10 MHz puis multipliée dans une synthèse de fréquence bas-bruit pour obtenir une fréquence proche de la transition d'horloge $v_{at} = 9,192\,631\,770$ GHz.

DÉTECTION OPTIQUE

Une partie du faisceau issue du laser stabilisé passe à travers un modulateur acousto-optique pour décaler la fréquence du laser de 251 MHz, correspondant à la transition $|F = 4\rangle \rightarrow |F = 5'\rangle$. La transition $|F = 5'\rangle \rightarrow |F = 3\rangle$ étant interdite, la transition de détection va donc donner lieu à un grand nombre de photons de fluorescence proportionnel au temps d'interaction. Ces photons sont recueillis sur une photodiode. La méthode d'interrogation de Ramsey produit un spectre en fréquence caractéristique composé de franges d'interférences, *les franges de Ramsey*, reposant sur un

socle plus large, *le piédestal de Rabi* (voir figure 1.2). La largeur à mi-hauteur de la frange centrale est inversement proportionnelle au temps de libre parcours T et mesure typiquement 100 Hz pour une durée moyenne T = 5 ms.



Figure 1.2 – Spectre Ramsey typique issu de la détection de fluorescence dans une horloge atomique pompée optiquement à interrogation de Ramsey [19]. On distingue les franges de Ramsey resserrées sur le piédestal de Rabi plus large.

Asservissement

La boucle d'asservissement utilise un signal d'erreur généré à partir du signal optique. Grâce à ce signal d'erreur, la fréquence du quartz, qui génère le signal micro-onde interrogeant les atomes, peut être ajustée pour obtenir un maximum de photons de fluorescence correspondant au sommet de la frange centrale de Ramsey. La fréquence du quartz est ainsi asservie sur la fréquence de la transition d'horloge des atomes. De ce fait, la stabilité court-terme du signal d'horloge sera celle du quartz et la stabilité long-terme sera dictée par les atomes. L'horloge atomique JPO décrite ici présente une stabilité de fréquence de 3, $5 \times 10^{-13} \tau^{-1/2}$ et une exactitude de 6×10^{-15} .

1.2/ OUTILS DE CARACTÉRISATION

La caractérisation des performances d'une référence de temps ou de fréquence se fait via deux grandeurs : la stabilité relative de fréquence et l'exactitude. L'exactitude représente la propension du système à produire un signal au plus près de sa définition. La stabilité relative représente la qualité du dispositif à fournir la même fréquence sur un intervalle de temps τ . On peut représenter la fréquence v(t) du signal issu de l'horloge par :

$$v(t) = v_0 \times [1 + \epsilon + y(t)] \tag{1.6}$$

avec v_0 la fréquence d'horloge non perturbée, ϵ un déplacement de fréquence relatif par rapport à la fréquence d'horloge et y(t) les fluctuations relatives de fréquence du signal. La figure 1.3 représente de manière schématique ces deux grandeurs.



Figure 1.3 – *Représentation schématique des concepts de stabilité et d'exactitude. (a) : mauvaise stabilité et mauvaise exactitude. (b) : bonne stabilité et mauvaise exactitude. (c) : mauvaise stabilité et relativement bonne exactitude. (d) : bonne stabilité et bonne exactitude.*

1.2.1/ Stabilité relative de fréquence

L'étude des bruits dans le domaine fréquentiel se fait au travers de la mesure des densités spectrales de puissance (DSP) de bruit de phase $S_{\varphi}(f)$ ou de bruit de fréquence $S_y(f)$. La stabilité des fluctuations relatives de fréquence y(t) se mesure dans le domaine temporel via un outil statistique : la variance à deux échantillons nommée variance d'Allan [20, 21]. Nous pourrons nous reporter au cours de F. Vernotte [22, 23] pour plus de détails.

La DSP d'un processus aléatoire se traduit comme la Transformée de Fourier de sa fonction d'autocorrélation de puissance :

$$S_x(f) \propto \text{TF}[R_x(t)]$$
 (1.7)

La fonction d'autocorrélation est définie comme :

$$R_x(t) = x(t) \otimes x(t) = \int_{-\infty}^{\infty} x(\theta) x(\theta - t) \,\mathrm{d}\theta \tag{1.8}$$

Après simplifications, la DSP peut s'exprimer comme :

$$S_x(t) = \left\langle \lim_{T \to \infty} \left[\frac{1}{T} \left| \int_{-T/2}^{T/2} x(t) e^{-j2\pi f t} dt \right|^2 \right] \right\rangle$$
(1.9)

La densité spectrale de puissance se mesure généralement via un analyseur de spectre.

Une quantité couramment utilisée pour la mesure de la stabilité relative de fréquence est l'écart de fréquence instantané normalisé y(t). Celui-ci représente les fluctuations relatives à la fréquence nominale délivrée par l'horloge et il est défini comme :

$$y(t) = \frac{v(t) - v_0}{v_0} \tag{1.10}$$

avec v_0 la fréquence propre du signal.

L'écart de fréquence instantané normalisé est relié au bruit de phase $\varphi(t)$ de l'équation (1.3) par :

$$y(t) = \frac{1}{2\pi\nu_0} \frac{\mathrm{d}\varphi(t)}{\mathrm{d}t} \tag{1.11}$$

Nous pouvons également relier la DSP de bruit de phase à la DSP de bruit de fréquence par :

$$S_{y}(f) = \frac{f^{2}}{v_{0}^{2}} S_{\varphi}(f)$$
(1.12)

Les deux spectres $S_{\varphi}(f)$ et $S_{y}(t)$ peuvent être décomposés sur un polynôme suivant une "loi en puissance" qui discrimine les types de bruits suivant leur pente. Nous obtenons ainsi pour le spectre en bruit de phase :

$$S_{\varphi}(f) = \sum_{i=-4}^{0} b_i f^i$$
(1.13)

et pour le spectre de bruit de fréquence :

$$S_{y}(f) = \sum_{i=-2}^{2} h_{i} f^{i}$$
(1.14)

Pour réaliser l'étude dans le domaine temporel, nous utilisons la variance d'Allan. Nous définissons tout d'abord l'échantillon \bar{y}_k comme étant la moyenne de l'écart instantané de fréquence y(t)sur un intervalle de temps τ commençant à l'instant t_k :

$$\bar{y}_k = \langle y(t) \rangle_{t_k,\tau} = \frac{1}{\tau} \int_{t_k}^{t_k+\tau} y(t) \,\mathrm{d}t \tag{1.15}$$

La variance d'Allan s'exprime alors comme :

$$\sigma_{y}^{2}(\tau) = \frac{1}{2} \left\langle (\bar{y}_{k+1} - \bar{y}_{k})^{2} \right\rangle$$

= $\frac{1}{2(M-1)} \sum_{k=1}^{M-1} (\bar{y}_{k+1} - \bar{y}_{k})^{2}$ (1.16)

avec *M* le nombre d'échantillons.

En pratique, la stabilité de fréquence d'un signal se mesure en le faisant battre contre un autre signal plus stable ayant une fréquence proche (voir figure 1.4). Ces deux signaux sont envoyés sur un mélangeur qui va générer le produit des deux signaux. Le signal de sortie du mélangeur est filtré par un filtre passe-bas de manière à ne récupérer que la différence de fréquence. Un compteur de fréquence, lui-même piloté par une référence stable (par exemple un maser à hydrogène) vient compter la fréquence du signal de battement de l'horloge avec l'oscillateur local.

Nous pouvons faire le lien entre domaine fréquentiel (densité spectrale) et temporel (variance d'Allan) par :

$$\sigma_y^2(\tau) = 2 \int_0^\infty S_y(f) |\mathbf{H}(f)|^2 \frac{\sin^4(\pi f \tau)}{(\pi f \tau)^2} \,\mathrm{d}f$$
(1.17)

avec $|\mathbf{H}(f)|^2 = \frac{1}{1 + (f/f_c)^2}$ représentant la fonction de transfert du filtre passe-bas utilisé pour mesurer la stabilité de fréquence.

La stabilité relative de fréquence est couramment donnée en terme de déviation (ou écart-type) d'Allan par :

$$\sigma_y(\tau) = \sqrt{\sigma_y^2(\tau)} \tag{1.18}$$



Figure 1.4 – Schéma simplifié du banc de mesure de bruit de fréquence.

Tout comme le développement des spectres $S_{\varphi}(f)$ et $S_y(t)$ en loi de puissance, la variance (ou déviation) d'Allan va discriminer les types de bruits en fonction de leur pente. La variance d'Allan ne peut pas différencier le bruit blanc de phase du bruit de scintillation de phase, correspondant tous deux à une pente en τ^{-2} . Pour pallier ce désagrément, la *variance d'Allan modifiée* peut être utilisée, celle-ci introduisant le bruit blanc de phase avec une pente en τ^{-3} et le bruit de scintillation de phase avec une pente en τ^{-2} .

La figure 1.5 représente les différents bruits en fonction de leurs pentes sur un tracé bilogarithmique pour les spectres $S_{\varphi}(f)$, $S_{y}(t)$ et la déviation d'Allan.

Dans la plupart des horloges atomiques passives, les fluctuations des échantillons \bar{y}_k ne sont pas corrélées par le système d'asservissement pour des durées comprises entre 1 et 10 000 secondes. Dans ce cas, la stabilité court-terme est limitée par un bruit blanc de fréquence de pente $\tau^{-1/2}$ tel que [21] :

$$\sigma_y(\tau) \sim \frac{\Delta \nu}{\nu_0} \frac{1}{S/B} \tau^{-1/2} \tag{1.19}$$

avec *S*/*B* le *rapport signal à bruit* dans une bande de 1 Hz du signal détecté et τ est le temps d'intégration. Ainsi, pour améliorer la stabilité court-terme de l'horloge, outre d'augmenter le rapport *signal à bruit*, il est nécessaire de diminuer la largeur de raie Δv ou encore d'augmenter la fréquence d'horloge. Cette dernière technique est mise à profit dans les horloges optiques de nouvelle génération opérant à des transitions optiques de plusieurs centaines de térahertz [24, 25, 26, 27].

1.2.2/ Exactitude

Nous avons vu dans l'équation (1.6) une grandeur ϵ représentant un déplacement relatif de fréquence par rapport à la fréquence nominale v_0 de l'horloge. Ce déplacement provient de mécanismes déterministes et systématiques comme par exemple, la présence du champ magnétique, qui perturbe la fréquence d'horloge, ou encore le rayonnement lumineux. Ces effets sont contrôlés et corrigés le mieux possible de manière à réduire le décalage ϵ . L'incertitude sur ϵ décrit l'inexactitude de l'horloge (nous parlons d'exactitude par abus de langage). Cette exactitude est donnée par la racine carrée de la somme des carrés des différentes incertitudes de chaque effet systématique



Figure 1.5 – *Représentation schématique des différents bruits en fonction de leurs pentes sur un graphique bi-logarithmique. (a) : représentation du spectre de bruit de phase. (b) : représentation du spectre de bruit de fréquence. (c) : représentation de la déviation d'Allan.*

agissant sur l'horloge.

1.3/ Applications

Les horloges atomiques, et les références de temps ou de fréquence en général, sont utilisées dans nombre de domaines allant de la recherche fondamentale à la métrologie en passant par des domaines plus appliqués. Nous ne présentons ici que les applications les plus courantes.

Définition de l'unité de temps

En 1967, lors de la 13^e Conférence Internationale des Poids et Mesures (CGPM), la seconde fut redéfinie, passant d'une définition astronomique à une définition atomique [3] :

"La seconde est la durée de 9 192 631 770 périodes de la radiation correspondant à la transition entre les deux niveaux hyperfins de l'état fondamental de l'atome de Césium 133 en champ

magnétique nul, isolé et au repos".

Ainsi, la seconde est l'unité du Système International (SI) que l'on sait le mieux réaliser avec une exactitude en 2013[28] à 10^{-16} soit une incertitude de 1 seconde sur un temps mesuré de près de 320 millions d'années.

ÉCHELLE DE TEMPS [28]

Le but primaire d'une horloge est de donner une échelle de temps stable et exacte permettant de dater les événements. Le Temps Atomique International (TAI), adopté en 1971, se base sur la comparaison et le moyennage de près de 420 étalons de fréquences répartis dans environ 70 laboratoires de métrologie. Parmi ces horloges, on peut distinguer les étalons primaires et secondaires de fréquence. Les étalons secondaires, principalement des horloges atomiques à jet de césium, fonctionnent en continu et assurent la stabilité de l'échelle de temps mais ne garantissent pas son exactitude. Les étalons primaires, que représentent une dizaine de fontaines à césium à fonctionnement pulsé, réalisent la seconde au plus près de sa définition. Ces horloges sont extrêmement complexes et ne peuvent fonctionner en permanence. Elles sont donc utilisées ponctuellement pour calibrer les étalons secondaires et ainsi garantir l'exactitude de l'échelle de temps. En 2013, l'exactitude des étalons primaires a été estimée à 10^{-16} . De plus, le moyennage des étalons secondaires permet d'obtenir une stabilité de l'ordre de 3×10^{-16} pour des durées de quelques mois. L'échelle de temps UTC (Temps Universel Coordonné) est basée sur le TAI avec un léger décalage de manière à tenir compte des irrégularités de la rotation terrestre. Depuis le 1^{er} Juillet 2012, ce décalage était de 35 secondes et une seconde sera rajoutée dans la nuit du 30 Juin au 1^{er} Juillet 2015 [29].

Système de positionnement [3]

Le système de positionnement par satellites (GNSS pour Global Navigation Satellite System) repose sur la mesure des distances via le temps de transit de l'onde électromagnétique envoyée par le satellite vers le récepteur au sol. Ainsi, en comparant les écarts relatifs des horloges d'émission de 4 satellites avec l'horloge de réception, il est possible de remonter à la position de l'utilisateur. Les satellites de la constellation GPS (Global Positioning System), au nombre de 32 actuellement [30], embarquent chacun deux horloges compactes à césium, deux horloges compactes à rubidium ainsi que des oscillateurs à quartz ultra stables de secours. Les stabilité de ces horloges à césium sont de l'ordre de 10^{-12} (10^{-11} pour les horloges à rubidium) à 1 seconde et 10^{-14} sur une dizaine de jours [31].

Les deux principaux effets limitant la précision du système vont être l'inhomogénéité du milieu de propagation (notamment l'ionosphère et la troposphère) et la désynchronisation des satellites : une erreur d'une microseconde conduit à une imprécision de 300 m. Les satellites n'étant pas synchronisés physiquement entre eux, il est nécessaire de mesurer le décalage temporel entre chacun d'eux et de recalibrer les horloges une fois par jour lorsque le satellite passe au dessus de la station de base au sol. L'espérance de vie d'un satellite GNSS est d'environ 8 à 10 ans, les horloges embarquées doivent donc présenter une excellente tenue de la stabilité long terme. De plus, les satellites GNSS participent au TAI en permettant les comparaisons des horloges des

différents laboratoires de métrologie.

PHYSIQUE FONDAMENTALE [3]

La seconde étant l'unité SI que l'on mesure avec le plus de précision, il semble naturel d'essayer de redéfinir les autres unités en lien avec la mesure de la seconde. Ce fut chose faite en 1983 lors de la 17^e CGPM où le mètre a été redéfini comme étant la distance parcourue par la lumière en 1/299 792 458 seconde.

De nombreuses constantes fondamentales peuvent être déterminées en mesurant la fréquence d'un phénomène physique. Citons entre autres la constante de Rydberg R_{∞} , le facteur de Landé g de l'électron ou encore la constante de structure fine α . De plus, la détermination exacte des ces constantes physiques permettra de redéfinir toutes les unités SI sur la base de valeurs numériques exactes.

Enfin, les références de temps ou de fréquence sont également utilisées dans des expériences de relativité. Effectivement, les effets de dilatation/contraction du temps entre différentes horloges en mouvement entrainent une désynchronisation de ces horloges.

Il est également possible de mesurer la variation de l'accélération de la pesanteur terrestre en fonction de l'altitude de l'horloge. À l'heure actuelle, cette variation peut être mesurée pour des différences d'altitude de moins d'un mètre.

1.4/ Horloges atomiques compactes

Il existe de nombreux types de références de temps ou de fréquence. Les étalons primaires sont constitués principalement de fontaines atomiques à césium [32, 17] et participent à la définition la plus exacte de la seconde avec une exactitude de l'ordre de 10^{-16} et une stabilité atteignant 3×10^{-16} sur la journée.

D'autres références, n'utilisant pas l'atome de césium ou de rubidium, possèdent des stabilités pouvant rivaliser avec les meilleures horloges atomiques sur le très court-terme. On peut citer les maser (Microwave Amplification by Stimulated Emission of Radiation) à hydrogène, atteignant une stabilité de 7×10^{-14} à 1 seconde et un palier inférieur à 10^{-15} à une journée, ou encore les oscillateurs à saphir cryogéniques, utilisant la résonance des modes électro-magnétiques d'ordre élevé, dits modes de galerie, dans un mono-cristal de saphir refroidi à quelques Kelvin. Ces oscillateurs atteignent des stabilités court-termes inégalées à 5×10^{-16} pour des temps compris entre 30 et 300 secondes et $4,5 \times 10^{-15}$ à une journée d'intégration [33, 34, 35, 36].

Dans le domaine optique, les horloges de nouvelle génération à strontium revendiquent des stabilités records de l'ordre $2,2 \times 10^{-16}$ à 1 seconde [37] et une exactitude de $1,6 \times 10^{-18}$ après 6 heures [24].

Ces horloges, bien que présentant des performances exceptionnelles, ne sont pas destinées à la miniaturisation pour des applications embarquées par exemple. En effet, la nécessité de travailler dans des environnements de quelques Kelvin (pour les oscillateurs cryogéniques), en ultra-vide ou tout simplement de par leur architecture (les fontaines atomiques notamment), demande un équipement conséquent.

La réduction du volume des horloges atomiques passe potentiellement par le confinement de la vapeur alcaline dans une cellule de taille millimétrique ou centimétrique. Il existe également d'autres techniques pour réduire la taille des horloges. Elles reposent sur le piégeage d'atomes ou d'ions dans un piège magnétique sur puce (*Trapped Atom Clock on a Chip* - TACC) [38] ou dans un piège de Paul comme dans les horloge Hg⁺ par exemple [39, 40, 41].

Parmi les horloges compactes à cellules, on distingue deux grandes familles : les horloges

reposant sur le principe de la double-résonance (D-R) optique-micro-onde et les horloges utilisant le principe physique de piégeage cohérent de population (CPT).

La première famille utilise une cellule contenant la vapeur alcaline (généralement du rubidium) en mélange avec du gaz tampon, pompée optiquement via un laser ou une lampe spectrale et placée dans une petite cavité micro-onde [42, 43]. Le pompage optique permet de réaliser une inversion de population entre les sous-niveaux de l'état fondamental. Simultanément, un champ micro-onde est envoyé dans la cavité contenant la cellule et va permettre aux atomes de réaliser la transition d'horloge entre les deux sous-niveaux de l'état fondamental. La correction sur le champ micro-onde se fait par la détection de la puissance optique en sortie de la cellule comme une fonction de la fréquence micro-onde. Ces horloges constituent la majeure partie des horloges compactes commerciales. Mais de par la présence d'une cavité micro-onde, ces horloges ne sont pas disposées à être totalement miniaturisées. De plus, leur consommation de plusieurs watts rend difficile leur utilisation embarquée.

La seconde grande famille utilise le principe physique CPT. Cet effet requiert la présence de deux champs optiques dont la séparation en fréquence égale la fréquence d'horloge de l'espèce alcaline. Ces deux champs vont venir connecter les deux sous-niveaux de l'état fondamental à un niveau excité commun. Les atomes se retrouvent comme piégés entre les deux sous-niveaux de l'état fondamental et ils ne peuvent plus absorber le rayonnement optique. La correction sur la séparation fréquentielle des champs optiques se fait par la détection du pic de transmission CPT. La différence majeure par rapport aux horloges D-R est l'absence de la cavité micro-onde. En effet, les deux raies optiques stimulant la transition d'horloge sont portées optiquement. Cette famille est plus susceptible d'être miniaturisée par des techniques MEMS (MicroElectroMechanical Systems) dont la consommation en puissance est de l'ordre de quelques centaines de milliwatts [44].

Ces deux familles d'horloges compactes peuvent fonctionner en mode continu (interrogation de Rabi) ou en mode pulsé (interrogation Ramsey). Le tableau 1.1 résume les performances des meilleures horloges atomiques compactes micro-onde à cellule.

Le confinement de la vapeur alcaline dans une cellule provoque un élargissement de la transition d'horloge par dépolarisation des atomes. Ceux-ci sont perturbés lorsqu'ils viennent percuter les parois de la cellule et cet effet est d'autant plus important que la taille des cellules est réduite. Pour pallier ce problème, un gaz tampon ou un mélange de gaz tampon est introduit dans la cellule de manière à augmenter le temps entre chaque collision (et donc retarder leur dépolarisation) en rendant le mouvement des atomes alcalins diffusif au travers des atomes de gaz tampon. De plus, la présence de gaz tampon permet de supprimer l'effet Doppler au premier ordre via l'effet Dicke.

L'objet de cette thèse est l'étude de gaz tampon utilisés pour confiner les atomes de césium dans des cellules constituant le coeur d'horloges atomiques CPT. Cette étude se porte principalement sur la caractérisation de la dépendance en température de la fréquence d'horloge du césium en fonction du gaz tampon introduit.

Horloge	FWHM (Hz)	S/B	C (%)	$\sigma_y(1 s)$	$\sigma_y(10000 \ s)$	LF (1 s)
CW D-R Rb (UNINE) [45, 46]	361	$2,2 \times 10^{5}$	25	$2,4 \times 10^{-13}$	7×10^{-15}	$5,5 imes 10^{-14}$
POP D-R Rb (UNINE) [47]	160	3×10^4	35	$2,1 \times 10^{-13}$	-	$1,7\times10^{-14}$
POP D-R Rb μ (INRIM) [48]	54	-	-	$1,2 \times 10^{-12}$	3×10^{-14}	1×10^{-12}
POP D-R Rb opt (INRIM) [49]	150	-	33	$1,7 \times 10^{-13}$	6×10^{-15}	2×10^{-14}
POP CPT Rb (Chine) [50]	125	840	90	2×10^{-12}	$2,5 \times 10^{-14}$	$< 1 \times 10^{-13}$
CPT maser Rb (INRIM) [51]	210	21×10^{3}	-	3×10^{-12}	4×10^{-12}	7×10^{-13}
CW CPT Cs (Bonn) [52]	100	1100	-	1×10^{-11}	2×10^{-12}	-
POP CPT Cs (LNE-SYRTE) [53]	125	4×10^{4}	12	$3,2 \times 10^{-13}$	3×10^{-14}	2×10^{-14}
PPOP CPT Cs (FEMTO-ST) [54]	450	-	26	3×10^{-13}	-	-

Tableau 1.1 – Résumé des performances des meilleures horloges atomiques compactes à cellule de laboratoire au monde. FWHM : largeur de raie du signal d'horloge. S/B : rapport signal à bruit dans une bande de 1 Hz. C : Contraste de la résonance. LF : limite fondamentale théorique. - : non connu ou non mesuré. CW : interrogation continue (Continuous Wave). POP : interrogation pulsée (Pulsed Optical Pumped). PPOP : interrogation type Push-Pull(Push-Pull Optical Pumping). D-R : double resonance. μ : détection micro-onde. Opt : détection optique. Rb : rubidium. Cs : césium. UNINE : université de Neuchatêl, Suisse. INRIM : istituto nazionale di ricerca metrologica, Turin, Italie. Bonn : université de Bonn, Allemagne. LNE-SYRTE : laboratoire national de métrologie et d'essais - Systèmes de Référence Temps-Espace, Paris, France.

HORLOGES CPT

La préparation et l'interrogation « tout optique » des espèces atomiques des horloges compactes à piégeage cohérent de population (CPT) en fait un choix particulièrement adapté à la miniaturisation.

Dans ce second chapitre, nous décrivons plus en détail l'architecture et le fonctionnement des horloges atomiques compactes CPT au césium, aperçues dans le premier chapitre.

Nous donnons également un bref aperçu théorique du principe de piégeage cohérent de population ainsi que des limitations propres à ce type d'horloge.

«La politique c'est éphemère mais une équation est éternelle.» Albert Einstein

2.1/ VERS UNE HORLOGE COMPACTE

Le développement des horloges atomiques à cellules a progressé dans les années 1950-1960. Au cours des dernières décennies, divers champs de recherche, directs ou indirects, ont contribué à diminuer l'encombrement des horloges atomiques pour les rendre compactes.

Dès 1950, l'idée fut lancée d'utiliser le pompage optique pour réaliser l'inégalité de population des niveaux d'énergie d'espèces atomiques [9]. Une autre idée très intéressante fut d'encapsuler l'espèce atomique dans une cellule de verre ou de quartz. Le pompage optique d'une cellule à vapeur de mercure fut réalisée par Kastler et Brossel [55], sans succès. En effet, ils mirent en avant les collisions du gaz avec les parois de la cellule : ces collisions détruisent la cohérence de l'état atomique et la distribution des vitesses des atomes élargit les transitions optiques par effet Doppler. Ce problème fut résolu grâce à l'introduction d'un gaz neutre supplémentaire dans la cellule [56]. En effet, les atomes alcalins polarisés acquièrent un mouvement de diffusion à travers le gaz tampon (et non plus balistique), augmentant ainsi leur temps de vol sans se dépolariser. Lorsque le libre parcours moyen des atomes dans le gaz tampon est plus court que la demi-longueur d'onde de la transition radiative, l'atome alcalin change alors suffisamment sa vitesse et sa direction à chaque collision avec le gaz tampon pour annuler l'effet Doppler. Cet effet, connu sous le nom d'effet Dicke [57, 3], permet de réduire la largeur de raie de manière significative.

Les horloges à cellules à vapeur de rubidium commencèrent à atteindre des performances honorables grâce notamment au filtre isotopique des lampes spectrales, permettant de sélectionner finement la longueur d'onde. Ce filtre n'étant pas disponible pour le césium, les cellules utilisant cette espèce étaient pompées par des lasers aux performances moindres par rapport aux lampes spectrales [58]. Il faudra attendre le développement de lasers à semi-conducteur pour voir des prototypes performants d'horloges compactes à base de césium.

Un autre fait marquant dans le développement des horloges atomiques à cellules a eu lieu en 1993 où le principe de piégeage cohérent de population (CPT) a été mis en oeuvre dans une horloge [59]. L'effet CPT permet de réaliser une interrogation purement optique, en utilisant deux champs laser dont la séparation en fréquence correspond à la transition d'horloge. De ce fait, la cavité micro-onde présente dans les horloges à double-résonance optique-micro-onde n'est plus nécessaire et laisse entrevoir une miniaturisation des horloges CPT.

2.2/ Piégeage cohérent de population

L'effet de piégeage cohérent de population fut découvert par Alzetta en 1976 [60] lors d'une expérience de mesure de fluorescence dans une cellule de vapeur de sodium pompée par un laser à colorant multi-modes. Dans ce type d'expérience, un champ magnétique statique est utilisé pour orienter les atomes suivant l'axe de propagation de la lumière. Or, il est apparu que lorsque la différence de fréquence entre les modes du laser prenaient des valeurs bien particulières, des lignes noires apparaissaient dans le spectre de fluorescence. Ces lignes noires ont une largeur typique des résonances radiofréquences correspondant aux transitions entre les niveaux Zeeman des sousniveaux de l'état fondamental de l'atome [61]. Elles peuvent être interprétées comme des interférences quantiques destructives liées à la superposition d'états atomiques produites par la présence simultanée de deux champs laser. Cette superposition d'état, appelé état noir, est un état piège où les atomes se retrouvent dans un état non couplé à l'état excité : ils ne peuvent plus absorber le rayonnement lumineux ni émettre de fluorescence d'où la notion d'état noir.

2.2.1/ Principe physique

Nous pouvons modéliser et comprendre l'effet de piégeage cohérent de population à l'aide d'un système atomique à trois niveaux. Les niveaux $|1\rangle$ et $|2\rangle$ constituent les deux niveaux fondamentaux et le niveau $|3\rangle$ constitue le niveau excité. Un champ laser bi-chromatique interagit de manière à coupler les niveaux $|1\rangle$ et $|2\rangle$ avec le niveau $|3\rangle$; le système ainsi formé se nomme communément un système- Λ (système-lambda, figure 2.1).



Figure 2.1 – Système atomique Λ à trois niveaux. E_1 , E_2 et E_3 sont les énergies des niveaux $|1\rangle$, $|2\rangle$ et $|3\rangle$. ω_1 et ω_2 sont les pulsations du champ laser bi-chromatique, Ω_1 et Ω_2 sont les pulsations de Rabi. ω_{HFS} est l'écart entre les niveaux $|1\rangle$ et $|2\rangle$. δ_{ω} est le désaccord de la différence des fréquences ($\omega_1 - \omega_2$) de l'écart ω_{HFS} . Δ_0 est le désaccord optique. Le taux de relaxation de l'état excité est $\Gamma^* = \Gamma_{31} + \Gamma_{32}$.

Pour les atomes alcalins (Na, Rb, Cs, ...), les deux niveaux $|1\rangle$ et $|2\rangle$ sont généralement les deux sous-niveaux hyperfins de l'état fondamental. Ces deux niveaux sont supposés posséder une durée de vie infinie.

Le champ laser bi-chromatique excite les transitions $|1\rangle \rightarrow |3\rangle$ et $|2\rangle \rightarrow |3\rangle$, et est représenté comme deux ondes planes co-propageantes :

$$\mathbf{E}(t) = \mathbf{E}_1 \cdot exp[-i(\omega_1 t - \varphi_1)] + \mathbf{E}_2 \cdot exp[-i(\omega_2 t - \varphi_2)]$$
(2.1)

avec les pulsations ω_1 et ω_2 , les amplitudes \mathbf{E}_1 et \mathbf{E}_2 et les phases φ_1 et φ_2 . Nous définissons les pulsations de Rabi Ω_1 et Ω_2 de ces deux ondes comme étant :

$$\Omega_{1} = \sqrt{\frac{\langle 3|\hat{\mathbf{d}} \cdot \mathbf{E}_{1}|1 \rangle}{\hbar^{2}} + \Delta_{1}^{2}}$$

$$\Omega_{2} = \sqrt{\frac{\langle 3|\hat{\mathbf{d}} \cdot \mathbf{E}_{2}|2 \rangle}{\hbar^{2}} + \Delta_{2}^{2}}$$
(2.2)

avec $\hat{\mathbf{d}}$ l'opérateur moment dipolaire, $\Delta_1(\Delta_2) = \omega_1 - \omega_{31}(\omega_2 - \omega_{32})$ le désaccord optique entre les pulsations optiques $\omega_1(\omega_2)$ et les transitions atomiques $\omega_{31}(\omega_{32})$ respectivement, et $\hbar = h/2\pi$ la constante de Planck normalisée. La pulsation de Rabi décrit le couplage du champ optique avec la

transition atomique.

Dans la représentation des ondes tournantes ¹, l'hamiltonien du système s'écrit :

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{H}_{int} \tag{2.3}$$

avec \hat{H}_0 l'hamiltonien non perturbé :

$$\hat{H}_0 = E_1 |1\rangle \langle 1| + E_2 |2\rangle \langle 2| + E_3 |3\rangle \langle 3|$$
 (2.4)

et \hat{H}_{int} l'hamiltonien d'interaction de l'atome avec le champ :

$$\hat{H}_{int} = -\frac{\hbar}{2} \cdot \left(\Omega_1 \left[\left| 3 \right\rangle \langle 1 \right| + \left| 1 \right\rangle \langle 3 \right| \right] + \Omega_2 \left[\left| 3 \right\rangle \langle 2 \right| + \left| 2 \right\rangle \langle 3 \right| \right] \right)$$
(2.5)

Nous définissons une nouvelle base orthogonale { $|\psi_C\rangle$, $|\psi_{NC}\rangle$, $|3\rangle$ } composé d'un état "couplé", d'un état "non-couplé" et de l'état excité. Ces états ψ_C et ψ_{NC} sont des superpositions des états $|1\rangle$ et $|2\rangle$ et sont états propres de l'hamiltonien d'interaction \hat{H}_{int} :

$$\begin{split} |\psi_{C}\rangle &= \frac{1}{\sqrt{\Omega_{1}^{2} + \Omega_{2}^{2}}} \left(\Omega_{1} e^{-i\frac{E_{1}}{\hbar}t} |1\rangle + \Omega_{2} e^{-i(\frac{E_{2}}{\hbar}t - (\varphi_{2} - \varphi_{1}))} |2\rangle) \right) \\ |\psi_{NC}\rangle &= \frac{1}{\sqrt{\Omega_{1}^{2} + \Omega_{2}^{2}}} \left(\Omega_{2} e^{-i\frac{E_{1}}{\hbar}t} |1\rangle - \Omega_{1} e^{-i(\frac{E_{2}}{\hbar}t - (\varphi_{2} - \varphi_{1}))} |2\rangle) \right) \end{split}$$
(2.6)

Nous pouvons calculer l'amplitude de transition à partir des nouveaux états $|\psi_C\rangle$ et $|\psi_{NC}\rangle$ vers l'état excité $|3\rangle$ [62] :

$$\langle 3|\hat{H}_{int}|\psi_C\rangle = \frac{\hbar}{2\sqrt{\Omega_1^2 + \Omega_2^2}} e^{-i(\frac{E_1}{\hbar} + \omega_1)t + i\varphi_1} \cdot \left(\Omega_1^2 + \Omega_2^2 e^{i(\delta_R t + \delta_\varphi)}\right)$$

$$\langle 3|\hat{H}_{int}|\psi_{NC}\rangle = \frac{\hbar \cdot \Omega_1 \Omega_2}{2\sqrt{\Omega_1^2 + \Omega_2^2}} e^{-i(\frac{E_1}{\hbar} + \omega_1)t - i\varphi_1} \cdot \left(1 - e^{i(\delta_R t - \delta_\varphi)}\right)$$

$$(2.7)$$

où $\delta_R = (\omega_1 - \omega_2) - \omega_{HFS}$ est le désaccord des fréquences Raman, et $\delta_{\varphi} = \varphi_1 - \varphi_2$ est la différence de phase des lasers.

Ainsi, lorsque nous sommes à la résonance ($\delta_R = 0$) et que les deux champs lasers sont en phase ($\delta_{\varphi} = 2n\pi$, avec n entier), l'amplitude de transition $\langle 3|\hat{H}_{int}|\psi_{NC}\rangle = 0$ et donc, aucune excitation de l'état $|\psi_{NC}\rangle$ vers l'état excité $|3\rangle$ n'est possible. Le système est alors découplé de la lumière incidente. Autrement dit, les atomes n'absorbent plus les photons incidents et un minimum de fluorescence est observé : cet état est appelé un "état noir" [63]. Le système se retrouve dans une sorte de superposition d'états des deux niveaux fondamentaux, les atomes sont comme "piégés entre les niveaux" $|1\rangle$ et $|2\rangle$. Si nous observons le spectre d'absorption, nous détectons un pic de transmission très étroit lorsque la différence de fréquence entre les deux lasers est exactement égale à la fréquence de transition hyperfine des atomes (figure 2.2).

Les atomes se retrouvent piégés dans cet état noir par émission spontanée. Ainsi, après plusieurs cycles de pompage optique, presque tous les atomes se retrouvent pris au piège dans cet état. Bien sûr, cette vision concerne un système idéal, et les effets des différentes relaxations doivent être pris en compte pour décrire réellement le phénomène CPT.

^{1.} Nous considèrons que la pulsation optique est suffisamment proche de la pulsation atomique et que l'intensité laser est faible ; cela permet de négliger les termes $(\omega_1 + \omega_{31})$ et $(\omega_2 + \omega_{32})$ oscillant rapidement.



Figure 2.2 – Spectre d'une résonance CPT au fond d'un creux d'absorption (spectre en unité arbitraire).

2.2.2/ CPT dans les systèmes réels

Un système atomique réel comporte bien plus que 3 niveaux. De plus, de nombreux éléments viennent perturber la résonance CPT, notamment les collisions des atomes de césium avec les parois de la cellule et avec les atomes de gaz tampon. De plus, le champ lumineux lui-même vient déplacer les niveaux d'énergie atomiques et élargir les transitions.

Le césium possède deux groupes de niveaux excités pouvant potentiellement servir à créer une résonance CPT : les raies D_1 et D_2 . La structure énergétique de ces raies est décrite plus en détail dans l'annexe B.

La raie D_1 correspond à la transition $6^2S_{1/2} \rightarrow 6^2P_{1/2}$. Le niveau excité d'arrivé comporte deux sous-niveaux ayant un moment angulaire total F' = 3 et F' = 4. Ces niveaux se décomposent en sous-niveaux Zeeman m_F dont le nombre est compris entre -F et +F par pas entier, soit 9 sous-niveaux Zeeman pour F' = 4 et 7 sous-niveaux Zeeman pour F' = 3 (voir figure 2.6).

La raie D_2 correspond à la transition $6^2S_{1/2} \rightarrow 6^2P_{3/2}$. Ce niveau excité comporte quatre sousniveaux de moment angulaire total F' = 2, 3, 4 et 5. Ces quatre sous-niveaux se décomposent respectivement en 5, 7, 9 et 11 sous-niveaux Zeeman. Les transitions vers les états excités $|F = 3\rangle \rightarrow |F' = 2\rangle$ et $|F = 4\rangle \rightarrow |F' = 5\rangle$ sont des transitions cyclantes où les atomes sont piégés dans un cycle de pompage et de désexcitation et ceux-ci ne pourront pas participer aux transitions CPT. De plus, l'écart hyperfin entre les sous-niveaux de la raie D_2 est de l'ordre de 150 à 250 MHz alors que l'écart hyperfin des sous-niveaux de la raie D_1 est de l'ordre de 1168 MHz. Si la largeur Doppler et l'élargissement des raies dus à la présence de gaz tampon sont plus grands que l'écart hyperfin, les transitions se recouvrent et les atomes peuvent fuir vers des des niveaux voisins.

La raie D_1 est préférentiellement choisie pour les applications CPT car elle présente moins de niveaux énergétiques susceptibles de réduire l'amplitude et d'augmenter la largeur de la résonance CPT en distribuant les atomes sur des niveaux non utilisés [64]. La figure 2.3 montre une résonance CPT dans des conditions expérimentales similaires pour la raie D_1 et D_2 .

LARGEUR DE LA RÉSONANCE CPT

L'équation (1.19) nous montre que la stabilité court-terme de l'horloge est directement dépendante de la largeur du signal CPT observé : plus la résonance sera étroite, meilleure sera la stabilité. La forme de la résonance CPT est généralement décrite par une fonction lorentzienne. La largeur



Figure 2.3 – Détection du contraste CPT en fonction du désaccord Raman dans des conditions expérimentales similaires pour la raie D_1 (A) et D_2 (B) du rubidium (ces observations peuvent être étendus au césium). Image extraite de la publication de Stähler et al.[64].

à mi-hauteur (FWHM - Full Width at Half Maximum) de la résonance CPT Δv_{CPT} extrapolée à puissance optique nulle est définie comme :

$$\Delta v_{CPT} = \frac{\gamma_2}{\pi} \tag{2.8}$$

avec γ_2 le taux de relaxation de la cohérence hyperfine CPT en l'absence de rayonnement laser. Le temps de vie T_2 de la cohérence CPT est donné par :

$$T_2 = \frac{1}{\gamma_2} \tag{2.9}$$

En présence d'un champ laser, et dans l'hypothèse d'un milieu optiquement mince et des intensités lasers faibles, la largeur à mi-hauteur Δv_{CPT} s'exprime comme [65] :

$$\Delta \nu_{CPT} = \frac{1}{\pi} \cdot \left(\gamma_2 + \frac{\Omega_1^2 + \Omega_2^2}{2\Gamma^*} \right) = \frac{1}{\pi} \cdot \left(\gamma_2 + \frac{\Omega_R^2}{\Gamma^*} \right)$$
(2.10)

où Ω_1 et Ω_2 sont les fréquences de Rabi des champs laser 1 et 2 définies à l'équation (2.2), et Γ^* est le taux de relaxation de l'état excité avec $\Gamma^* = \Gamma_{31} + \Gamma_{32}$. Le taux de relaxation de l'état excité correspond à la largeur du signal d'absorption de la transition optique. Dans le cas où les rayonnements lasers ont la même intensité, nous avons $\Omega_1 = \Omega_2 = \Omega_R$.

Lorsque le milieu devient optiquement dense, l'équation (2.10) n'est plus valable. Pour estimer la largeur de la résonance CPT dans ce type de milieu, il faut résoudre les équations de Maxwell-Bloch et calculer la largeur du signal de transmission en sortie de cellule [66].

- Gaz tampon

D'après l'équation (2.10), la largeur de la résonance CPT augmente linéairement avec l'intensité laser suivant une pente inversement proportionnelle à la largeur de la transition optique. La largeur de la résonance à champ laser nul est déterminée uniquement par T_2 .

Dans une cellule qui ne contient que des atomes alcalins, le temps de vie T_2 est limité par les
collisions des atomes contre les parois de la cellule et les collisions entre atomes alcalins; cet effet est d'autant plus marqué que la cellule est petite. Pour augmenter le temps de vie de la cohérence CPT, et ainsi diminuer la largeur de résonance, un gaz tampon ou un mélange de gaz tampon est généralement introduit dans la cellule [21]. L'introduction d'un gaz tampon a deux effets bénéfiques; tout d'abord, il rend le mouvement des atomes alcalins diffusif et non plus balistique, augmentant ainsi le temps de transit avant une collision avec la paroi de la cellule. En effet, à température ambiante, la vitesse moyenne d'agitation thermique des atomes est de l'ordre de 240 m/s. Dans une cellule cylindrique de dimensions 1×1 cm, le temps moyen mis par un atome pour traverser la cellule est de l'ordre de 45 μ s, conduisant à une largeur de résonance de quelques 22 kHz. L'ajout de gaz tampon réduit cette largeur à quelques centaines, voire quelques dizaines de Hertz [67, 68]. Ensuite, le confinement des atomes alcalins par les atomes de gaz tampon permet de supprimer au premier ordre l'élargissement Doppler de la transition micro-onde par effet Dicke [57].

Malheureusement l'introduction de gaz tampon conduit également à un déplacement et un élargissement des transitions optiques ainsi qu'à un déplacement de la fréquence d'horloge, appelé déplacement collisionnel, comme étudié dans le chapitre 5.

En supposant que le faisceau lumineux possède le même diamètre que la cellule, la résonance n'est pas limitée par le temps de vol des atomes dans le faisceau, et le taux de relaxation de la cohérence γ_2 des atomes alcalins dans une cellule avec du gaz tampon, s'exprime alors comme :

$$\gamma_2 = \gamma_w + \gamma_{se} + \gamma_{bg} \tag{2.11}$$

avec γ_w le taux de relaxation par les collisions sur les parois (*Wall*), γ_{se} le taux de relaxation par les collisions entre atomes alcalins avec échange de spin (*Spin Exchange*) et γ_{bg} le taux de relaxation par les collisions des atomes alcalins avec les atomes de gaz tampon (*Buffer Gas*).

Nous pouvons réduire le nombre de collisions avec les parois de la cellule en augmentant la pression de gaz tampon et ainsi diminuer la largeur de raie correspondante. Dans le cas d'une cellule cylindrique, le terme γ_w peut être écrit comme [31] :

$$\gamma_{w} = \left[\left(\frac{2.405}{r} \right)^{2} + \left(\frac{\pi}{L} \right)^{2} \right] D_{0} \frac{P_{0}}{P} \left(\frac{T}{T_{0}} \right)^{3/2}$$
(2.12)

où *r* est le rayon de la cellule, *L* est la longueur de la cellule, D_0 est une constante de diffusion d'atomes alcalins dans le gaz tampon, $P_0 = 101.3$ kPa (759.8 Torr) est la pression de référence, $T_0 = 273$ K est la température de référence et *P* est la pression dans la cellule à la température *T*. Ce terme est dominant si la pression de gaz tampon n'est pas trop élevée.

Un échange de spin $|F = 3\rangle \iff |F = 4\rangle$ a lieu lors de la collision entre atomes alcalins, ce qui relaxe la cohérence CPT. L'expression de γ_{se} est donnée par [69] :

$$\gamma_{se} = \frac{6I+1}{8I+4} \overline{v_r} n_{Cs} \sigma_{se} \tag{2.13}$$

avec I = 7/2 le moment angulaire nucléaire de l'atome de césium, σ_{se} est la section efficace d'échange de spin, n_{Cs} est la densité atomique de césium (voir annexe B), $\overline{v_r}$ est la vitesse relative moyenne des atomes de césium donnée par :

$$\overline{v_r} = \sqrt{\frac{8k_BT}{\pi\mu_{1-2}}} \tag{2.14}$$

où k_B est la constante de Boltzmann, T est la température et $\mu_{1-2} = \frac{m_1 m_2}{m_1 + m_2}$ est la masse réduite du système (1)-(2), m étant la masse de l'atome considéré dans le système (ici, (1) et (2) sont des atomes de césium). La contribution du terme γ_{se} devient importante pour des températures élevées.

Les atomes alcalins entrent également en collision avec les atomes de gaz tampon, conduisant ici aussi à une relaxation de la cohérence CPT. Le terme γ_{bg} est défini comme [69] :

$$\gamma_{bg} = L_0 \overline{v_{r,bg}} \sigma_{bg} \frac{P}{P_0}$$
(2.15)

où L_0 est la constante de Loschmidt, $\overline{v_{r,bg}}$ est la vitesse relative des atomes de césium par rapport aux atomes de gaz tampon, σ_{bg} est la section efficace de collision entre atomes alcalins et gaz tampon, P est la pression dans la cellule et P_0 la pression de référence. Ce terme devient dominant à forte pression de gaz tampon.

Ainsi, à basse pression, la largeur de la résonance CPT est déterminée par les collisions avec les parois, alors qu'à haute pression, elle est limitée par les collisions avec les atomes de gaz tampon.

La figure 2.4 montre les différentes contributions sur l'évolution de l'élargissement de la raie CPT.



Figure 2.4 – Contribution des différents termes d'élargissement sur la largeur de raie CPT en fonction de la pression de néon dans le cas d'une microcellule de longueur 1,4 mm et de diamètre 2 mm chauffée à 60 °C. (a) : collisions atomes/parois. (b) : collisions atomes/gaz tampon. (c) : collisions Cs-Cs (Spin Exchange). (d) : largeur totale.

Les valeurs des coefficients D_0 , σ_{se} , σ_{bg} sont données dans l'annexe B pour le césium mélangé à différents gaz tampon.

- Matériaux anti-relaxants

Une technique alternative ou complémentaire à l'utilisation d'un gaz tampon pour réduire la largeur de la résonance CPT est l'utilisation d'un dépôt de couches anti-relaxantes sur les parois internes de la cellule. Cette technique fut proposée par Ramsey dans les années 50-60 pour le développement de masers à hydrogène de haute performance [70, 71]. La collision atome-surface est un processus adiabatique de transfert d'énergie cinétique entre l'atome et la surface qui perturbe les sous-niveaux Zeeman. Les matériaux anti-relaxants autorisent l'atome alcalin à effectuer un certain nombre de collisions avant sa dépolarisation complète. Les matériaux classiquement utilisés sont la paraffine [72] et des matériaux à base d'alcènes [73].

Ces matériaux ont des points de fusion de l'ordre de 60 à 100°C, ce qui les rend impossible à utiliser dans des micro-cellules où les températures de scellement lors de la fabrication atteignent 300-400°C (voir chapitre 6 pour plus de détails sur la fabrication des microcellules). Toutefois, certains composés organo-métalliques tel l'octadecyltrichlorosilane (OTS, de formule $CH_3(CH_2)_{17}SiCl_3$) ont montré de bonnes performances tout en supportant les hautes températures [74]. Ces nouveaux matériaux anti-relaxants laissent entrevoir une potentielle utilisation en micro-cellule en remplacement ou complément du gaz tampon.

Amplitude de la résonance CPT

L'amplitude de la résonance CPT A_{CPT} est déterminée par la différence de population du niveau excité en résonance et hors résonance. Dans le cas d'un système idéal à 3 niveaux excité par des champs laser ayant les mêmes fréquences de Rabi, l'amplitude est proportionnelle à [31] :

$$A_{CPT} \propto n_{Cs} \cdot \frac{\Omega_R^4}{4\Gamma^*} \cdot \left(\frac{1}{\frac{\Gamma^*}{2} + \Delta_0^2}\right) \cdot \left(\frac{1}{\gamma_2 + \frac{\Omega_R^2}{\Gamma^*}}\right)$$
(2.16)

avec n_{Cs} la densité d'atomes de césium, Ω_R la fréquence de Rabi telle que $\Omega_1 = \Omega_2 = \Omega_R$, Δ_0 le désaccord optique, Γ^* le taux de relaxation de l'état excité et γ_2 le taux de relaxation de la cohérence hyperfine CPT.

L'amplitude du signal CPT est proportionnelle à la densité d'atome de césium. Ainsi, l'amplitude CPT va augmenter avec la température. Or, pour des températures trop élevées, le milieu devient optiquement dense et les niveaux d'énergie autres que ceux participant à l'effet CPT absorbent le rayonnement.

Ainsi, la puissance optique en sortie de cellule P_{out} est liée en partie à la puissance d'entrée P_{in} par la loi de Beer-Lambert mais reste dépendante du régime de pompage optique. À faible puissance laser, nous avons [75] :

$$P_{out} = P_{in} e^{-\xi n_{Cs}} \tag{2.17}$$

avec ξ le coefficient d'absorption défini comme :

$$\xi = \frac{\omega_L}{c\Gamma^*} \cdot \frac{d_{13}^2}{\epsilon_0 \hbar} \cdot L \tag{2.18}$$

où ω_L est la pulsation laser, c est la célérité de la lumière, d_{13} est un élément de la matrice dipolaire électrique de la transition optique, ϵ_0 est la permittivité du vide et L est la longueur de la cellule. Il existe une température optimale pour obtenir une amplitude du signal maximale.

L'amplitude du signal CPT augmente également avec l'intensité laser. Mais pour une forte intensité laser, les effets de pompage optique deviennent importants, ce qui limite le nombre d'atomes participant à l'effet CPT. De plus, d'après l'équation (2.10), l'augmentation de l'intensité laser conduit à un élargissement du signal CPT.

Contraste de la résonance CPT

La stabilité court-terme d'une horloge atomique met également en jeu le rapport *signal à bruit* de la résonance CPT (voir équation 1.19). Le contraste *C* est défini comme :

$$C = \frac{S}{y_0} \tag{2.19}$$

avec S l'amplitude du signal et y_0 la valeur du fond du creux d'absorption (voir figure 2.5).



Figure 2.5 – Représentation schématique d'une résonance CPT.

Le contraste est généralement donné en pourcentage et quantifie la hauteur du pic CPT.

Le rapport signal à bruit limité par le bruit de grenaille est défini par [76] :

$$S/B_{shot} = C \sqrt{\frac{P_{out}}{2h\nu_{opt}}}$$
(2.20)

avec *C* le contraste précédemment défini, P_{out} la puissance optique en sortie de cellule, *h* la constante de Planck et v_{opt} la fréquence optique.

2.2.3/ Schémas d'excitation CPT

Génération des deux champs laser

- *avec deux lasers* : cette méthode est la plus lourde à mettre en place mais elle donne d'excellents résultats. Elle est surtout utilisée dans un cadre de recherche métrologique. L'intérêt majeur est de n'avoir que les deux raies laser nécessaires à l'interaction CPT. De plus, il est possible de pouvoir contrôler finement le déséquilibre entre les puissances optiques de chaque raie.

Un premier laser *maître* est asservi sur une transition atomique du césium généralement via une méthode d'absorption saturée (voir chapitre 3 pour plus de détails) permettant au laser d'obtenir une très bonne stabilité de fréquence. Un second laser *esclave* est asservi en phase sur le laser *maître* via une boucle à verrouillage de phase et décalé de la fréquence d'horloge par rapport au laser *maître*. Cette méthode est utilisée, par exemple, au LNE-SYRTE, Observatoire de Paris [31].

- *avec un seul laser* : dans une optique de simplicité et compacité, il est possible de générer deux champs laser en utilisant une seule source laser. En effet, la fréquence laser dépendant du courant d'injection, en modulant ce dernier, nous pouvons générer les deux raies laser nécessaires à la création de l'effet CPT. Ainsi, les deux bandes latérales créées sont séparées de la porteuse de la fréquence de modulation. Cette méthode est utilisée, notamment, avec les lasers type VCSEL utilisés dans les horloges miniatures.

Il est également possible de générer les deux raies optiques par une modulation "externe" en envoyant le faisceau sur un modulateur électro-optique de phase ou d'amplitude. Le modulateur d'amplitude (type Mach-Zehnder) permet la suppression de la porteuse en appliquant une tension continue adéquate sur le cristal, de manière à ne garder que les bandes latérales. Celui-ci est plus difficile à stabiliser que le modulateur de phase, où le contrôle de la tension continue est absent. En effet, le point de fonctionnement de suppression de porteuse est sujet à dériver à cause des variations de température, du vieillissement et des effets photoréfractifs dans le guide d'onde.

Enfin, deux fréquences de modulation sont possibles. Nous pouvons, dans un cas, moduler à la fréquence d'horloge, et utiliser la porteuse et une bande latérale pour réaliser l'effet CPT (fréquence utilisée préférentiellement pour un modulateur électro-optique de phase). Dans un second cas, nous pouvons également moduler à la moitié de la fréquence d'horloge. Dans ce cas, nous utilisons les deux bandes latérales séparées de la fréquence d'horloge pour réaliser l'effet CPT. Le modulateur électro-optique d'intensité de type Mach-Zehnder est adapté à la modulation à cette fréquence grâce à la possibilité de supprimer la porteuse en ajustant le trajet optique entre les deux bras via une tension continue.

EFFET DE LA POLARISATION

Dans la structure hyperfine des atomes, chaque niveau hyperfin est composé de sous-niveaux Zeeman dont la dégénérescence est levée par l'application d'un champ magnétique statique (voir l'annexe B pour plus de détails sur la structure atomique de l'atome de césium). Les sous-niveaux Zeeman $m_F = 0$ sont insensibles au champ magnétique au premier ordre, ce qui constitue des niveaux de choix pour la transition d'horloge.

La condition de Planck-Einstein (équation 1.5) est nécessaire mais non suffisante pour obtenir l'effet CPT. Les règles de sélection du moment angulaire de l'atome doivent aussi être respectées ce qui limite les transitions permises.

Deux types de transitions sont permises [3] :

 $\langle \Delta F = \pm 1 \text{ et } \Delta m_F = 0 \rangle$ nécessitant un champ magnétique très haute fréquence parallèle au champ magnétique statique. La transition $\Delta m_F = 0$ se nomme transition π pour une excitation dipolaire électrique et σ pour une excitation dipolaire magnétique.

 $-\langle \Delta F = 0 \text{ et } \Delta m_F = \pm 1 \rangle$ ou $\langle \Delta F = \pm 1 \text{ et } \Delta m_F = \pm 1 \rangle$ nécessitant un champ magnétique basse fréquence ($\Delta F = 0$) ou très haute fréquence ($\Delta F = \pm 1$) perpendiculaire au champ magnétique statique. La transition $\Delta m_F \pm 1$ se nomme transition σ pour une excitation dipolaire électrique et π pour une excitation dipolaire magnétique.

Traditionnellement, une polarisation circulaire du champ laser est utilisée pour provoquer les transitions entre sous-niveaux Zeeman $\Delta m_F = \pm 1$. Cette technique est très simple car elle ne nécessite qu'une lame quart d'onde $(\lambda/4)$ pour réaliser la polarisation circulaire. Elle est

couramment utilisée pour la réalisation de micro-horloges CPT [77, 78, 79].

Malheureusement, ce schéma d'excitation va piéger des atomes dans les sous-niveaux Zeeman extrêmes $m_F = \pm F$ qui ne participeront pas à la transition d'horloge (voir figure 2.6). Le contraste résultant est de l'ordre de 1 à 2 %.



Figure 2.6 – Schéma d'excitation CPT en polarisation circulaire droite (σ_+). Les barres représentent la proportion d'atomes participant à la transition d'horloge 0-0 et les atomes piégés dans le sous-niveaux Zeeman $m_F = 4$.

Ainsi, l'augmentation du nombre d'atomes participant à la transition d'horloge est un point clé pour augmenter le signal et le contraste du signal d'horloge. Dans cette optique, plusieurs groupes de recherche ont mis au point différents schémas d'excitation. La figure 2.7 décrit les schémas les plus utilisés.



Figure 2.7 – Principaux schémas d'excitation CPT. (a) : schéma type Push-Pull avec deux lasers en polarisation σ_+ et σ_- par alternance. (b) : schéma type Lin⊥Lin avec deux faisceaux lasers en polarisation linéaire croisée. (c) : schéma type Lin || Lin avec deux faisceaux lasers en polarisation linéaire parallèle.

Le schéma type *Push-Pull* consiste en une alternance de polarisations circulaires gauche et droite du champ laser au rythme de la fréquence d'horloge [80]. Un système *double*-A est ainsi créé pour lequel les atomes sont pompés quelque soit leur état initial sur la transition d'horloge. Ce schéma a démontré l'obtention de forts contrastes comparativement à la polarisation circulaire simple [81].

Le schéma type Lin || Lin (Lin par Lin) fait interagir deux faisceaux de polarisations linéaires parallèles [82]. Ce schéma très particulier fait intervenir des transitions avec $\Delta m_F = \pm 2$ et il ne peut produire de cohérence CPT entre les sous-niveaux Zeeman $m_F = 0$. En effet, des interférences destructives interviennent entre les composantes de polarisations circulaires censées peupler les niveaux $m_F = 0$. Cependant, dans le cas d'un atome présentant un moment angulaire nucléaire I = 3/2 (comme l'atome de rubidium), une résonance CPT à fort contraste se forme entre les niveaux $m_F = \pm 1$ [83, 84]. Bien que ce schéma soit optimisé pour l'atome de rubidium, il a été montré des contrastes de l'ordre de 10% dans le cas du césium dont le moment angulaire nucléaire vaut 7/2 [85].

Le schéma type $Lin \perp Lin$ (Lin per Lin) met en jeu deux raies optiques de polarisations linéaires croisées [86]. Ce schéma permet une circulation des atomes sur tous les niveaux Zeeman sans s'accumuler sur les niveaux extrêmes ce qui augmente le contraste jusqu'à plus de 50 % [87]. Ce schéma d'excitation, bien que très performant, est limité en terme d'intégration pour des horloges compactes.

Il est également possible de moduler la polarisation d'un laser bi-fréquence entre deux polarisations circulaires [88]. Dans ce schéma, un changement du déphasage Raman entre les deux raies optiques CPT est opéré en synchronisation avec l'alternance des polarisations circulaires. Cette technique de pompage permet la construction successive de deux états noirs interférant constructivement et conduisant à favoriser la transition d'horloge.

Divers groupes de recherche développent des sources laser bi-fréquences et bi-polarisations dans le but d'appliquer ces schémas optimisés aux horloges compactes à hautes-performances [89, 90, 91, 92, 93].

INTERROGATION CONTINUE OU PULSÉE

Le schéma d'interrogation peut se faire en continu (interrogation de Rabi) ou en pulsé (interrogation de Ramsey). L'interrogation continue est la plus simple à mettre en oeuvre mais nécessite de fortes puissances laser pour être efficace en terme de contraste CPT. Ceci conduit à un élargissement de la résonance CPT (équation 2.10) diminuant la stabilité de l'horloge (équation 1.19). De plus, la présence du champ laser conduit à un déplacement lumineux (ou *light shift*) de la fréquence d'horloge. Ce déplacement est d'autant plus conséquent que l'interrogation se fait en illumination continue.

Pour contourner ce problème, il est possible de réaliser une interrogation pulsée de type Ramsey conduisant à la détection de franges de Raman-Ramsey à fort contraste. Le principe repose sur l'envoi d'une séquence d'impulsions lumineuses de durée τ séparées d'un temps d'évolution libre T. Chaque impulsion est utilisée pour pomper les atomes dans l'état CPT et détecter le signal d'horloge par transmission. La largeur de ces franges ne dépend plus de l'intensité laser mais du temps d'évolution libre dans le noir entre deux impulsions lumineuses. De plus, le temps limité d'exposition au champ laser réduit de manière considérable les déplacements lumineux. Cette technique d'interrogation couplée à un schéma $Lin \perp Lin$ associé à un modulateur acousto-optique

dans le rôle de l'obturateur lumineux, permet des résultats très prometteurs [53]. La largeur de frange $\Delta v = 1/(2T)$ est de l'ordre de 500 Hz pour des temps noirs équivalents à la durée de vie de la cohérence hyperfine CPT T_2 , soit 1 ms. Ces largeurs sont toutefois du même ordre de grandeur qu'une interrogation de Rabi bien optimisée à faible intensité laser.

2.3/ Micro-horloges

En 2004, des chercheurs du NIST ont démontré pour la première fois un assemblage miniature et opérationnel d'une horloge atomique reposant sur la technologie MEMS [1]. Ce type d'horloge atomique miniature présente des enjeux civils et militaires stratégiques. Par la suite, la DARPA (Defense Advanced Research Projects Agency) a lourdement financé le projet, ce qui conduit à la mise sur le marché, en 2011, de la CSAC SA.45s par le groupe industriel Microsemi [2]. Cette micro-horloge remarquable présente un poids de 35 g, un volume inférieur à 17 cm³, une consommation inférieure à 120 mW, une inexactitude à $\pm 5 \times 10^{-11}$ et une stabilité de 5×10^{-12} à 1 heure d'intégration.

Une horloge atomique miniature présentant de tels niveaux de performances est un enjeu stratégique majeur. En réponse à cette micro-horloge américaine, des groupes en Europe travaillent depuis quelques années à développer leur propre horloge atomique miniature. Récemment, d'autres pays se sont également lancés dans le développement de micro-horloges, notamment la Suisse [94, 95] et la Chine [96, 97].

2.3.1/ Projet MAC-TFC

En 2005, grâce aux financements et soutiens de la DGA (Direction Générale de l'Armement), du CNES (Centre National d'Études Spatiales) et de la région Franche-Comté, des travaux furent entrepris sur le développement d'une micro-horloge, au laboratoire FEMTO-ST à Besançon. Fin 2008, le laboratoire a obtenu le pilotage d'un projet européen nommé MAC-TFC (MEMS Atomic Clocks for Timing, Frequency controls & Communications). Le but était de démontrer un proto-type de micro-horloge européenne. La figure 2.8 montre une photographie du dernier prototype en date de la micro-horloge MAC-TFC.

Outre le pilotage du projet, le laboratoire FEMTO-ST était chargé de réaliser le coeur de cette micro-horloge, constitué par la micro-cellule. La description des micro-cellules utilisées sera détaillée dans le chapitre 6.

2.3.2/ Architecture

Une micro-horloge atomique CPT est constituée de deux blocs principaux, le bloc "module physique" et le bloc "électronique". Le module physique est miniaturisé par des techniques MEMS et l'électronique est entièrement intégrée. Nous prendrons comme exemple la micro-horloge MAC-TFC. **Module physique**

Ce bloc est constitué de la partie optique et micro-cellule et l'ensemble est placé dans un blindage magnétique en mu-métal.

- VCSEL (Vertical-Cavity Surface-Emitting Laser) : ce type de diode laser à semi-conducteur présente de nombreux avantages pour la miniaturisation. La VCSEL utilisée a été développée

2.3. MICRO-HORLOGES



Figure 2.8 – Photographies du démonstrateur MAC-TFC. (a) : micro-horloge avec sa carte électronique de contrôle. (b) : module physique de la micro-horloge sans le couvercle blindé. La partie à l'intérieur du blindage comprend la micro-cellule, le laser, le système de chauffage, etc. [98].

par l'université de Ulm, en Allemagne [99]. Elle présente une taille réduite de l'ordre de $300 \times 300 \ \mu\text{m}^2$ (la surface active ne fait que 3 μ m de diamètre), un courant de seuil d'environ 0,3 mA et un courant de fonctionnement d'environ 2,1 mA, atteignant ainsi à 23 °C une puissance optique d'environ 900 μ W. De plus, elle est modulable en courant à des fréquences de plusieurs GHz. Durant ce travail de thèse, nous avons participé à la caractérisation métrologique de ces diodes VCSEL (voir la section 6.2).

- *Té de polarisation* : le té de polarisation permet d'injecter à la fois le courant DC de bias, nécessaire pour rendre la fréquence du rayonnement laser émis par la VCSEL résonant avec la transition atomique, et la modulation micro-onde, essentielle à l'obtention des bandes latérales de modulation pour l'excitation CPT.

- *Mise en forme du faisceau* : le faisceau en sortie de VCSEL diverge fortement, de l'ordre de 10 à 20°. Il est donc parfois collimaté via une petite lentille convergente, pour atteindre un diamètre d'environ 2 mm. Une densité neutre vient ensuite atténuer la puissance optique de manière à atteindre environ 10 à 40 μ W en entrée de cellule. Nous pouvons également remplacer la densité neutre par un polariseur si la polarisation en sortie de la VCSEL n'est pas suffisamment rectiligne. Enfin, une lame quart-d'onde permet d'obtenir une polarisation circulaire.

- *Cellule* : la micro-cellule constitue le coeur de la micro-horloge et définit une bonne partie des performances de l'horloge. En effet, la cellule doit pouvoir être chauffée à une température élevée pour avoir une densité atomique suffisante, et ainsi un signal d'horloge conséquent, tout en étant hermétique pour assurer une bonne stabilité de l'atmosphère interne. La fabrication et les caractéristiques des micro-cellules fabriquées à FEMTO-ST seront décrites dans le chapitre 6. La cellule contient la vapeur de césium, ainsi qu'une centaine de torrs d'un gaz tampon (ici du néon) nécessaire à la réduction des collisions du césium avec les parois de la cellule (effet Dicke, voir la section 2.1 de ce chapitre). Le néon présente une température d'inversion à environ 80 °C [100, 101]. La cellule est donc chauffée et régulée à cette température d'inversion. Elle est plongée dans un champ magnétique statique de quelques microTesla pour lever la dégénérescence Zeeman. Le faisceau laser est ensuite détecté par une photodiode.



Figure 2.9 – Représentation schématique des constituants et du fonctionnement d'une microhorloge atomique. DN : densité neutre. $\lambda/4$: lame quart d'onde. Det. Syn. : détection synchrone. OL VCO : oscillateur local contrôlé en tension.

Bloc électronique

Ce bloc est constitué de tout le nécessaire au verrouillage du laser sur la transition CPT, au chauffage de la cellule, au contrôle du champ magnétique, à la détection et au traitement des signaux.

- Verrouillage de la fréquence laser : la fréquence du rayonnement laser issu de la diode VCSEL est fonction du courant d'injection. Il est alors possible de sonder les creux d'absorption en modulant le courant d'injection du laser. Le signal d'absorption issu de la photodiode est alors envoyé dans une détection synchrone A qui, par un procédé de modulation-démodulation, produit un signal d'erreur. Celui-ci passe par zéro lorsque la valeur de la fréquence laser (et donc du courant laser) correspond à la valeur de la fréquence nécessaire pour atteindre le fond du creux d'absorption. Ainsi, en maintenant le signal d'erreur à zéro, nous pouvons verrouiller la fréquence laser sur cette fréquence d'absorption.

La source de courant est modulée typiquement à 50 kHz avec une profondeur de modulation de quelques MHz en régime asservi. Le courant DC est envoyé sur le té de polarisation.

- *Verrouillage de l'oscillateur local* : l'oscillateur local est un oscillateur à quartz contrôlé en tension dont la fréquence (typiquement 5 ou 10 MHz) est multipliée dans une synthèse de fréquence bas bruit de manière à obtenir une fréquence voisine de 4,6 GHz. Cette fréquence est envoyée sur le té de polarisation de manière à moduler le courant d'injection. Le signal de résonance CPT issu de la photodiode est envoyé sur une détection synchrone B et, d'une manière similaire à la boucle de verrouillage de la fréquence laser, la tension du signal d'erreur passe par zéro lorsque que la fréquence laser correspond cette fois au sommet du pic de résonance. Cette tension d'erreur est utilisée pour contrôler et ajuster la fréquence délivrée par le VCO. L'oscillateur local est modulé typiquement à 500 Hz avec une profondeur de modulation correspondant à la largeur à mi-hauteur du signal CPT, soit environ quelques kHz.

L'intégration de la partie électronique représente un défi de taille. En effet, elle doit contenir la source de courant laser, le contrôle de températures du laser et de la micro-cellule, les détections synchrones, le courant de champ magnétique statique, la gestion de la photodiode, la gestion de l'oscillateur local, les boucles d'asservissements de température, de fréquence laser et CPT, etc., au moyen de convertisseurs analogique/numérique, micro-contrôleurs, entre autres.

2.4/ Bruits limitants à court-terme

Stabilité court-terme

Nous rappelons l'expression de la stabilité de fréquence relative court-terme d'une horloge atomique [21] :

$$\sigma_y(\tau) \sim \frac{\Delta v}{v_0} \frac{1}{S/B} \tau^{-1/2}$$
 (1.19)

où Δv est la largeur de la résonance atomique, v_0 est la fréquence de la transition d'horloge, S/B est le rapport *signal à bruit* dans une bande de 1 Hz du signal détecté et τ est le temps d'intégration. Le bruit de tension du signal en sortie de la photodiode est mesuré pour la fréquence de modulation f_m de l'oscillateur local. La pente du discriminateur de fréquence D est défini comme étant :

$$D = \frac{S}{\Delta v} \tag{2.21}$$

avec S l'amplitude du signal de résonance et Δv sa largeur.

Les principaux bruits qui limitent le rapport *signal à bruit* sont le bruit de grenaille des photons (*shot noise*), le bruit du détecteur, le bruit de phase de l'oscillateur local, le bruit d'amplitude (AM) du laser et le bruit de fréquence (FM) du laser via les conversions de bruit FM-AM dans la cellule.

BRUIT DE GRENAILLE

Nous supposons une puissance laser en sortie de cellule P_0 , l'impact du bruit de grenaille des photons arrivant sur le détecteur sur la stabilité de la fréquence d'horloge est donnée par [49] :

$$\sigma_{y,shot}(\tau = 1s) = \frac{1}{\pi} \frac{1}{Q} \frac{1}{C \sqrt{\eta_q N_p}}$$
(2.22)

avec Q le facteur de qualité de la résonance atomique défini à l'équation (1.4), $N_p = \frac{P_0}{h\nu}$, avec ν la fréquence optique et h la constante de Planck, est le nombre de photons arrivant sur le détecteur par seconde et η_q est le rendement quantique du détecteur. Pour une micro-horloge, la puissance optique utilisée en entrée de la cellule est de l'ordre de 10 à 40 μ W.

Bruit du détecteur

Le détecteur consiste en une photodiode silicium et un montage type transimpédance à amplificateur opérationnel. Nous définissons la résistance de contre-réaction R et la capacité de contreréaction C. Si nous négligeons le bruit de tension en entrée de l'amplificateur opérationnel, le bruit de tension du détecteur N_{det} est donné par :

$$N_{det} = \sqrt{N_R^2 + N_{I_dR}^2}$$
(2.23)

où $N_R = 4k_BTR$, avec k_B la constante de Boltzmann et T la température du détecteur, est le bruit thermique de la résistance de contre-réaction de l'amplificateur transimpédance, et N_{I_dR} est le bruit de tension en sortie du détecteur avec I_d le bruit de courant pris à la fréquence de modulation en entrée de l'amplificateur opérationnel. L'effet du bruit du détecteur sur la stabilité de fréquence est donné par [102, 43] :

$$\sigma_{y,det}(\tau = 1s) = \frac{1}{\sqrt{2}} \frac{N_{det}}{Dv_0}$$
(2.24)

Bruit de l'oscillateur local

La stabilité de fréquence court-terme de l'horloge atomique peut être dégradée par une conversion du bruit de fréquence de l'oscillateur dans la bande de réponse en fréquence du résonateur atomique par un effet d'intermodulation ou effet Dick [103, 104, 105]. Pour une horloge atomique en régime continu avec une fréquence de résonance v_0 et dont l'oscillateur local est modulé à la fréquence f_m , la limitation de la stabilité en fréquence due à ce repliement spectral est donnée par :

$$\sigma_{y,LO}(\tau = 1s) \sim \frac{f_m}{\nu_0} \sqrt{S_{\varphi}(2f_m)}$$
(2.25)

où $S_{\varphi}(2f_m)$ est la densité spectrale de puissance des fluctuations de phase de l'oscillateur local en régime libre à la fréquence de Fourier $f = 2f_m$.

Bruit d'amplitude (AM) du laser

Le bruit de fond sur le signal d'horloge est directement affecté par les fluctuations de puissance de la source laser. À basse fréquence, le bruit AM de la diode laser est généralement un bruit de scintillation. Le bruit relatif en intensité (RIN, *Relative Intensity Noise*) est mesuré directement en envoyant le faisceau sur une photodiode et en mesurant le bruit de tension en sortie de la photodiode.

Bruit de fréquence (FM) du laser

Le bruit de fréquence du laser est un point critique. Cette source de bruit est connue comme étant la limite principale à la stabilité de fréquence court-terme des micro-horloges atomiques [106, 107]. Le bruit de fréquence du laser est mesuré en utilisant la pente du creux d'absorption atomique comme discriminateur de fréquence. Le bruit FM est déduit du bruit de tension de la photodiode.

Le bruit de fréquence se répercute sur le signal d'horloge par un processus de conversion FM-AM. Ce mécanisme de conversion est dû à la résonance même des atomes [78]. En effet, en mode

horloge, le laser est asservi sur le maximum du pic de la résonance atomique. L'absorption des atomes dépend fortement de la fréquence du laser. Ainsi, une fluctuation de fréquence du laser provoquera une fluctuation d'amplitude du signal transmis [108] (voir figure 2.10).



Figure 2.10 – Principe de la conversion de bruit FM-AM.

2.5/ Problématique et objectif de thèse

Les micro-cellules utilisées dans la micro-horloge MAC-TFC contiennent du néon comme gaz tampon. Le néon présente une température d'inversion d'environ 80 °C, c'est-à-dire qu'à cette température la fréquence d'horloge devient insensible au premier ordre aux petites variations de température. Cette température est un point de fonctionnement de choix pour les micro-horloges car elle permet de considérablement relâcher les contraintes sur la régulation en température de la cellule. Malheureusement, celle-ci est trop basse pour des applications à contraintes environnementales sévères, notamment les applications embarquées comme celles proposées par Thales Avionics ou encore l'utilisation de ces micro-horloges dans des stations de base en milieu désertique. Le procédé de fabrication des micro-cellules réalisées au sein de l'Institut FEMTO-ST (décrit plus en détail dans le chapitre 6) interdit l'utilisation du diazote classiquement utilisé dans les mélanges Ar-N₂ (comme la CSAC SA.45s par exemple).

Les applications courantes nécessitent une plage d'utilisation en température de -40 à +85 °C alors que les applications à contraintes environnementales sévères requièrent une plage de température de -40 à +120 °C. Le défi réside dans la partie haute température de la plage d'utilisation. Plusieurs solutions ont été envisagées pour résoudre ce problème.

Une première solution consisterait à utiliser une microcellule au néon et à la refroidir à sa température d'inversion alors que l'horloge évolue dans un environnement plus chaud. Dans ce cas, il est nécessaire d'utiliser un élément type Peltier, gros consommateur d'énergie. Cette solution n'est pas envisageable compte-tenu des spécifications basse consommation de la micro-horloge (~ 150 mW).

Une autre solution possible serait de faire travailler la microcellule à base de néon directement à la température nécessaire. Dans ce cas, nous nous éloignons de la température d'inversion et introduisons une dépendance thermique d'autant plus forte que la température est éloignée de l'optimum. Nous pouvons estimer la valeur du contrôle en température nécessaire pour obtenir une stabilité donnée grâce à la courbure de la courbe de déplacement collisionnel. En effet, dans le cas général, le déplacement collisionnel peut être approximé par une parabole (voir équation 5.7). La courbure C d'une parabole d'équation $y = ax^2 + bx + c$ est couramment assimilée à sa dérivée seconde y'' parr rapport à x. Dans le cas du déplacement collisionnel du césium, la courbure vaut :

$$C = \frac{2P_0 \cdot \gamma}{\gamma_0} \tag{2.26}$$

avec P_0 la valeur de la pression de gaz tampon à la température de référence de 0 °C, γ le coefficient quadratique en température du déplacement collisionnel et ν_0 la fréquence d'horloge non perturbée du césium.

En développant l'équation du déplacement collisionnel en série de Taylor, nous obtenons la valeur du contrôle en température nécessaire pour maintenir une stabilité donnée en fonction de l'écart entre la température d'inversion et la température recherchée :

$$dT = \frac{\sigma_y}{C \cdot \Delta T} \tag{2.27}$$

où dT est la valeur des fluctuations de température, ΔT est l'écart entre la température recherchée et la température d'inversion et σ_y est la stabilité relative de fréquence voulue.

Prenons l'exemple d'une microcellule à vapeur de césium remplie avec 100 Torr de néon et présentant une température d'inversion à 79,2 °C (valeur calculée avec les coefficients de déplacement collisionnel issus de [101]). Dans ce cas, la courbure du néon vaut $C = -3,655 \cdot 10^{-11} \text{ K}^{-2}$. À une température de 79 °C, les fluctuations en température maximales pour obtenir une stabilité de l'ordre de 10^{-11} à 1 seconde sont de l'ordre de 1,4 °C. À 80 °C, le contrôle de la température passe au niveau de 340 mK et à la température de 100 °C, ce contrôle tombe au niveau de 13 mK. Cette solution impose donc un contrôle de température d'autant plus fin que la température recherchée s'éloigne de la température d'inversion du néon.

De plus, en définissant le gain thermique G comme étant le rapport des variations de la température extérieure ΔT_{ext} sur les variations de la température de la cellule dT, nous voyons que pour une plage d'utilisation de -40 à 120 °C (soit $\Delta T_{ext} = 160$ °C), il est nécessaire d'avoir un gain thermique de l'ordre de 500 pour des fluctuations en température de l'ordre de 340 mK, alors que pour des fluctuations de l'ordre de 13 mK, le gain thermique passe à 10000. Rappelons que le gain thermique de la micro-horloge MAC-TFC est estimée à 1000.

Ainsi, gagner un facteur 10 sur le gain thermique pour permettre à l'horloge de travailler à 100 °C avec une microcellule à base de néon est un défi technologique de taille. Cette solution ajoute une nouvelle couche technologique non-compatible avec les spécifications bas-coût de la micro-horloge.

Enfin, la solution envisagée pour augmenter la température de fonctionnement de l'horloge est l'étude de nouveaux gaz ou mélange de gaz tampon, autorisant une température d'inversion plus élevée. Dans le cas d'un mélange de gaz tampon, la température d'inversion dépend du rapport des pressions partielles des gaz tampon.

L'objectif de ce travail de thèse est donc l'étude du déplacement collisionnel de la fréquence d'horloge provoqué par les gaz tampon hélium ou xénon en fonction de la température. Cette étude nous permettra d'extraire les coefficients de déplacement collisionnel qui sont nécessaires à l'ajustement du rapport des pressions partielles des gaz tampon en fonction de la température d'inversion souhaitée. Le chapitre suivant décrira le banc de mesure utilisé pour la caractérisation des gaz tampon retenus.

BANC DE CARACTÉRISATION CPT CONTINU

Dans ce troisième chapitre, nous décrivons plus en détail le banc de mesure qui sera utilisé pour la caractérisation des coefficients de déplacement collisionnel des gaz tampon hélium et xénon dans des cellules à vapeur de césium de taille centimétrique.

Nous décrivons également la conception et la caractérisation d'un nouveau module physique pour accueillir ces cellules.

Enfin, pour valider notre banc de mesure, nous effectuons des mesures sur une cellule de césiumdiazote déjà caractérisée par le SYRTE.

> «La connaissance s'acquiert par l'expérience, tout le reste n'est que de l'information.» Albert Einstein

3.1/ Principe et aperçu général

Dans un esprit de simplicité et d'intégration possible dans une horloge compacte, l'horloge repose sur une architecture simple avec des composants commerciaux. Elle fonctionne en régime de Rabi (régime continu) qui est moins efficace en terme de performances d'horloge mais beaucoup plus simple à intégrer dans une horloge compacte. Les résultats présentés dans ce travail ont été mesurés avec une horloge présentant une stabilité d'environ 10^{-11} à une seconde soit une résolution d'environ 0,1 Hz.

Choix de la raie D_1

La raie D_1 est préférentiellement choisie pour des applications CPT car elle possède moins de sous-niveaux susceptibles de réduire le contraste et augmenter la largeur CPT. De plus la raie D_2 possède des transitions cyclantes. Celles-ci peuvent empêcher certains aux atomes de participer au processus CPT. La section 2.2.2 donne plus de détails sur les raisons de ce choix.

SCHÉMA D'EXCITATION

Le schéma d'excitation est le plus simple possible : les atomes de césium sont illuminés par un faisceau laser bi-fréquence, générées par un modulateur externe, présentant une polarisation circulaire (voir sous-section 2.2.3). Le nombre d'atomes présents sur les sous-niveaux Zeeman $m_F = 0$ n'est pas maximisé mais est suffisant en terme de contraste. La polarisation circulaire est générée par une simple lame quart-d'onde ($\lambda/4$).

3.2/ BANC DE MESURE

Le banc de mesure général utilisé pour la caractérisation des cellules césium - gaz tampon est présenté figure 3.1. Il est composé d'une diode laser type DFB (Distributed FeedBack) stabilisée sur un dispositif d'absorption saturée, d'un modulateur électro-optique (EOM, Electro-Optic Modulator) de phase servant à la génération des bandes latérales de modulation, une cellule de césium pur jouant le rôle de référence pour la mesure de la pression de gaz tampon, de l'optique de mise en forme du faisceau et de la cellule à tester contenue dans un module physique. Les spectres sont recueillis sur des photodiodes puis envoyés sur divers oscilloscopes et détections synchrones.

3.2.1/ PARTIE OPTIQUE

Source laser

Le système laser est présenté figure 3.2. Il est composé de la source laser, d'une lentille de collimation, d'un isolateur optique et d'une lame demi-onde de manière à ajuster la répartition de puissance grâce au cube polarisant en sortie du système.

La source laser est une diode à semi-conducteur GaAs monomode type DFB *Eagleyard Photonics* (référence : EYP-DFB-0895) en boîtier TO-3 émettant à 894,6 nm. La diode laser est régulée en température au niveau du mK via un système thermoélectrique type Peltier présent dans



Figure 3.1 – Schéma du banc de mesure utilisé. Abs. Sat. : absorption saturée. DFB : Distributed Feedback laser. EOM : Electro-Optic Modulator. La trajet du faisceau en tiret correspond à la fibre optique.

le boîtier. Le contrôle en température est assuré par un contrôleur *Laserlabs* inspiré du contrôleur de Libbrecht et Hall [109]. La puissance maximale en sortie est d'environ 100 mW et le courant de seuil est à environ 50 mA. La diode laser est pilotée par un contrôleur en courant bas-bruit *Laserlabs* dont le bruit de courant à 50 mA est inférieur à 40 pA/ \sqrt{Hz} sur une bande de 30 Hz à 1 MHz. La longueur d'onde présente une sensibilité en température de 0.06 nm/K, soit ~ 22,5 GHz/K, et une sensibilité en courant de 0.003 nm/mA, soit ~ 1,12 GHz/mA. La largeur de raie du laser a été mesurée en effectuant un battement de fréquence entre cette source et une seconde source laser identique. L'ajustement lorentzien du battement donne une largeur à mi-hauteur $\Delta v_{batt} = 2,25 \pm 0,01$ MHz soit 1,125 MHz par laser. Le battement de fréquence est représenté figure 3.3.

STABILISATION DE LA FRÉQUENCE LASER

La laser est stabilisé sur la transition hyperfine $|F = 4\rangle \rightarrow |F = 4'\rangle$ de la raie D_1 du césium grâce à une technique dite d'absorption saturée. Une partie du faisceau est envoyée sur une cellule de césium pur via un cube polarisant. Le faisceau aller, dit faisceau pompe, va exciter les atomes de césium sur le niveau excité en saturant leur absorption. Le faisceau réfléchi a le rôle de faisceau sonde et ne sera pas absorbé par les atomes déjà saturés. Seuls les atomes de classe de vitesse



Figure 3.2 – Photographie du système laser. (a) : lame demi-onde. (b) : isolateur optique. (c) : lentille de collimation. (d) : source laser.



Figure 3.3 – Battement de fréquence entre deux diodes DFB à 894,6 nm. L'ajustement lorentzien du battement conduit à une largeur à mi-hauteur de 2,25 MHz, soit 1,125 MHz par diode laser.

nulle ou ayant une trajectoire perpendiculaire au trajet du faisceau laser sont concernés ; en effet, les autres atomes (et notamment ceux évoluant le long du trajet du faisceau) verront une fréquence laser qui est légèrement déplacée par effet Doppler, ce qui élargira le pic d'absorption saturée. Cette technique permet de s'affranchir de l'élargissement Doppler, causé par le mouvement thermique des atomes. Nous récupérons sur la photodiode *PD3* un spectre typique d'absorption saturée avec un pic de transmission proche de la largeur naturelle du césium ($\Delta v_{nat} \approx 4,56$ MHz pour la raie D_1) au fond du creux d'absorption Doppler ($\Delta v_D \approx 358$ MHz à 23 °C). La figure 3.4 représente les spectres d'absorption saturée pour les 4 transitions de la raie D_1 du césium.

Le signal issu de la photodiode *PD3* est envoyé dans une détection synchrone numérique qui par un procédé de modulation-démodulation sur le courant de la diode laser (et donc sur la fréquence laser) permet de produire un signal d'erreur. En maintenant ce signal d'erreur à zéro, nous pouvons asservir la fréquence laser sur le sommet du pic de transmission.

La sinusoïde de référence de la détection synchrone est cadencée à 156 kHz. En jouant sur le gain d'entrée de la détection synchrone, le gain de boucle et l'amplitude de modulation, nous pouvons optimiser la bande passante de l'asservissement et son efficacité. La figure 3.5 montre l'efficacité du verrouillage de la fréquence laser sur le pic d'absorption saturée du césium. La bande passante de la boucle d'asservissement est d'environ 1 kHz et le niveau de bruit à 1 Hz de la porteuse est réduit d'environ 63 dB.

Nous avons également fait battre la diode laser DFB contre une autre diode laser DFB similaire. La mesure de stabilité issue de ce battement est donnée figure 3.6. Nous obtenons une stabilité



Figure 3.4 – Spectres typiques d'absorption saturée (images extraites de [110]. Nous notons une petite dissymétrie sur la transition 4-3' due à un léger défaut d'alignement.



Figure 3.5 – Spectre de bruit de tension en sortie de l'analyseur FFT. La courbe rouge est le bruit de fréquence du laser libre au fond du creux d'absorption. La courbe noire est le bruit de fréquence du laser verrouillé sur la transition hyperfine $|F = 4\rangle \rightarrow |F = 4'\rangle$ de la raie D_1 du césium.

du battement des deux lasers asservis à $1,2 \times 10^{-11}$ à 1 s d'intégration, en bon accord avec [111] (le laser en mode libre possède une stabilité à 1 seconde de l'ordre 10^{-9}). Ceci correspond à une stabilité pour un laser seul à $1,2 \times 10^{-11} / \sqrt{2} = 8,5 \times 10^{-12}$ à 1 seconde. Dans ces conditions, le laser asservi se déplace d'environ 2,8 kHz par seconde. Connaissant le déplacement de fréquence typique dans une horloge CPT, environ $2 \times 10^{-12}/MHz$ [112], nous pouvons estimer la stabilité relative de fréquence de l'horloge limitée par les seules fluctuations de fréquence du laser asservi à environ 5×10^{-15} à 1 seconde.

GÉNÉRATION DU CHAMP LASER BI-FRÉQUENCE

Le champ laser bi-fréquence nécessaire à la création de l'effet CPT est généré via un modulateur électro-optique de phase externe fibré modulé à $f_{RF} \sim 9,192$ GHz. La modulation de phase du signal lumineux permet de générer les deux bandes latérales de modulation (BLM) autour de la



Figure 3.6 – Déviation d'Allan du battement de fréquence entre deux diodes lasers DFB émettant à 894,6 nm. La dérive après 100 s vient de l'influence des fluctuations de la température extérieure.

porteuse, séparées de cette dernière de la fréquence de modulation. Ainsi dans notre cas, nous nous servons de la porteuse et d'une bande latérale pour l'interaction CPT, l'autre bande est supposée être suffisamment éloignée en fréquence pour ne pas perturber la cohérence CPT. Le modulateur utilisé est un modulateur en niobate de lithium provenant de chez *Photline* (référence NIR-MPX-800-LN-10). L'entrée et la sortie sont connectées par des fibres optiques à maintien de polarisation type "Panda". Le modulateur supporte une puissance micro-onde maximale de 28 dBm. Le modulateur se trouve sur un support en duralumin régulé en température par un régulateur PID réglable commercial *Lakeshore 330*. La température est contrôlée par une thermistance en platine PT100 et monitorée par une thermistance à coefficient de température négatif (CTN) 10 k Ω à 25 °C. Le tout est installé dans une boîte d'isolation thermique.

Le modulateur électro-optique présente une fonction de transfert de forme sinusoïdale de la puissance optique transmise en fonction de sa température (voir figure 3.7). Ce phénomène se rencontre également pour les modulateurs électro-optiques d'intensité.



Figure 3.7 – Puissance optique transmise par le modulateur électro-optique de phase en fonction de sa température. La période vaut environ 2,2 °C.

Notre modulateur présente une période $\tau_{EOM} \approx 2, 2$ °C pour une variation de puissance optique transmise $\Delta P_{opt} \approx 25 \ \mu$ W. La sensibilité maximale sur la partie linéaire vaut $\Delta P_{opt} / \Delta \tau_{EOM} \sim$

34, 3 μ W/°C. Pour obtenir une puissance optique transmise maximale et une sensibilité aux variations de température minimale, nous faisons travailler le modulateur autour d'un maximum de la fonction de transfert, en l'occurrence $T_{EOM} = 39, 4$ °C. La figure 3.8 montre la déviation d'Allan des fluctuations de puissance optique en sortie du modulateur régulé à sa température de travail. La mesure s'est faite sur une période de 10 heures. Les fluctuations de puissance lumineuse sont sous le niveau du μ W sur plusieurs heures.



Figure 3.8 – Déviation d'Allan des fluctuations relatives de puissance optique en sortie du modulateur à son point de fonctionnement en température ($T = 39, 4 \, ^{\circ}C$) pour une puissance moyenne $P_{opt} = 537 \, \mu$ W. La mesure a été réalisée sur une durée de 10 heures.

La figure 3.9 représente les fluctuations de la température du modulateur à son point de fonctionnement à T = 39, 4 °C et les fluctuations de la température extérieure à une température de 22,2 °C.



Figure 3.9 – Fluctuations de la température du modulateur électro-optique de phase (T_{EOM} = 39,4 °C) en rouge et fluctuations de la température extérieure (T_{ext} = 22,2 °C) en bleu.

Nous obtenons une atténuation des fluctuations de température d'un facteur 1000 pour des temps de 100 secondes.

Analyse des bandes latérales de modulation

La fréquence RF modulant l'EOM est délivrée par un synthétiseur commercial *Agilent* E8254A. Le bruit de phase du synthétiseur non référencé à $f_{RF} = 9$, 192631770 GHz est montré figure 3.10.



Figure 3.10 – Bruit de phase du synthétiseur non référencé Agilent E8254A à 9,192 631 770 GHz.

La puissance est amplifiée en sortie du synthétiseur par un amplificateur *Microsemi* AML812PNB2401 dont la courbe de gain est présentée figure 3.11. Celui-ci délivre un gain G = 26 dB.



Figure 3.11 – Courbe de gain de l'amplificateur AML812PNB2401. L'amplificateur délivre un gain $G = 26 \ dB$.

On caractérise la répartition des bandes latérales de modulation en fonction de la puissance RF qui attaque le modulateur électro-optique. Pour cela, nous envoyons le faisceau laser modulé sur un interféromètre de Fabry-Perot *Thorlabs* SA210-8B présentant un intervalle spectral libre de 10 GHz et une résolution de 67 MHz. La figure 3.12 montre la répartition, en pourcentage, de la puissance optique entre la porteuse et les BLM en fonction de la puissance RF arrivant sur le modulateur pour une fréquence de modulation $f_{RF} = 9$, 191631770 GHz. Puisque l'interaction CPT sera générée par la porteuse et les BLM, nous nous plaçons au point où la répartition de puissance optique est la même pour la porteuse et les BLM ; ici, la puissance RF nécessaire en entrée du modulateur est



Figure 3.12 – Répartition de la puissance optique entre la porteuse et les bandes latérales de modulation en sortie du modulateur en fonction de la puissance RF entrée pour une fréquence $f_{RF} = 9,191\ 631\ 770\ GHz$. La porteuse est en noir, les bandes latérales de modulation du premier ordre en bleu, les bandes latérales de modulation du second ordre en vert et les bandes latérales de modulation du troisième ordre en orange.

de l'ordre de 22 dBm. Nous notons, à cette puissance RF, la présence des BLM du second ordre qui commencent à apparaître. Nous remarquons également une légère dissymétrie de la répartition de la puissance optique entre et les bandes latérales de modulation et la porteuse (voir figure 3.13).



Figure 3.13 – Spectre de répartition des bandes latérales de modulation autour de la porteuse en sortie du Fabry-Perot pour une puissance RF injectée dans le modulateur de 22 dBm et à une fréquence de modulation de 9,192 631 770 GHz.

MISE EN FORME DU FAISCEAU

La fibre en sortie du modulateur est connectée à un collimateur à triplet de lentilles *Thorlabs* TC12APC-780 dont le diamètre à $1/e^2$ du faisceau en sortie vaut 2,64 mm. La faisceau est ensuite grossi 10 fois par l'utilisation de deux lentilles, de manière à obtenir un faisceau qui couvrira toute la surface de la cellule. Les lentilles ont une focale de 15 et 150 mm et ont une forme plan-convexe. L'utilisation d'un triplet à la place d'un doublet produit une forme de faisceau se rapprochant plus

du profil d'un faisceau gaussien. La figure 3.14 montre une comparaison de la forme du faisceau avec l'utilisation d'un doublet et d'un triplet.



Figure 3.14 – Forme du faisceau en sortie du système grossissant. (a) : utilisation d'un collimateur à doublet de lentilles en sortie de fibre. (b) : utilisation d'un collimateur à triplet de lentilles en sortie de fibre. Le faisceau est visualisé à travers une visionneuse infrarouge. La forme légèrement ovale du faisceau vient de l'angle de prise de vue.

Un diaphragme est placé en sortie du système grossissant pour ajuster le diamètre du faisceau qui entrera dans le module physique.

3.2.2/ MODULE PHYSIQUE

Pour accueillir les cellules centimétriques, nous avons conçu et réalisé un module physique. La conception s'est effectuée sur le logiciel de CAO 3D *SolidWorks*. Le module se compose globalement d'un berceau en cuivre, pour tenir la cellule, qui est imbriqué dans un four en cuivre. L'ensemble est inséré dans un support de solénoïde en duralumin (voir figure 3.15). Enfin, le tout est placé dans un double blindage magnétique en μ -métal.



Figure 3.15 – Schéma 3D du module physique utilisé pour accueillir les cellules. Le support de cellule et le four sont en cuivre (pièces orangées), les bagues de support sont en Macor®(pièces blanches de part et d'autres du four), le support de solénoïde et la porte sont en duralumin (cy-lindre gris). La cellule est au centre du module.

3.2. BANC DE MESURE

CELLULES UTILISÉES

Les cellules que nous utilisons ont été achetées chez *Triad Technologies Inc.* à Longmont, Colorado, Etats-Unis. Elles sont en quartz et les fenêtres sont traitées anti-reflet à 894,6 nm. La cuve contenant le gaz mesure 25 mm pour un diamètre extérieur de 25 mm. Le restant de queusot mesure environ 7 mm. La longueur totale (en comptant l'épaisseur des fenêtres) varie entre 31 et 33 mm. Le traitement anti-reflet couvre un diamètre de 20 mm. La figure 3.16 montre une des cellules que nous avons commandées.



Figure 3.16 – *Photographie représentant deux des cellules utilisées. Les cellules proviennent de* Triad Technologies Inc.. *La partie violette est le traitement anti-reflet.*

Support de cellule et four

L'introduction de gaz tampon, pour réduire la largeur Doppler et augmenter le temps de vie de la cohérence hyperfine, produit un déplacement de fréquence dépendant de la température (voir chapitre 5). Afin de contrôler avec précision la température de la cellule, nous la plaçons dans un four. Celui-ci fait 58 mm de diamètre externe, 46 mm de diamètre interne et a une profondeur de 36 mm. Le berceau fait le même diamètre que la cellule (avec une tolérance de quelques centaines de microns) et épouse la forme de la cellule jusqu'au queusot de manière à assurer le meilleur contact thermique possible. Le support de cellule et le four sont en cuivre car ce matériau présente une très bonne diffusivité thermique, c'est-à-dire la capacité du matériau à transmettre la chaleur d'un point A à un point B. Le tableau 3.1 donne quelques caractéristiques physiques et thermiques du cuivre, aluminium, alumine, duralumin¹ et du Macor®.

Initialement, le four était chauffé par un film chauffant, de référence HK5390R7.8L12D, manufacturé par *Minco*. Le film, bien que très performant, provoquait un champ magnétique parasite, venant perturber voire brouiller totalement le signal CPT. Nous avons donc décidé de chauffer le four par un fil résistif coaxial (voir figure 3.17).

L'architecture coaxiale, composée de l'âme, d'une première gaine, d'une tresse métallique et d'une seconde gaine, permet de réduire de manière significative le champ magnétique provoqué par le déplacement des électrons dans le fil. De plus, le fil est enroulé en boucle longitudinalement sur la surface du four pour réduire la création d'un champ magnétique résiduel qui se propagerait le long de l'axe du four.

La chauffe est assurée par un régulateur de température conçu et fabriqué à l'Institut FEMTO-ST par M. Cyrus Rocher. Le régulateur se compose d'un contrôleur PI dont le gain proportionnel et la

^{1.} Les caractéristiques du duralumin peuvent varier en fonction de sa composition (principalement de l'aluminium, du cuivre, du magnésium et du manganèse.); les valeurs retenues sont des valeurs moyennes.

Matériaux	ρ (kg.m ⁻³)	$\hat{C}(J.K^{-1}.kg^{-1})$	$\lambda \left(W.m^{-1}.K^{-1} \right)$	$D(.10^{-6} m^2.s^{-1})$	$\alpha (.10^{-6} K^{-1})$
Cuivre	8960	385	401	116	17
Aluminium	2700	900	237	97,5	23,5
Alumine (Al_2O_3)	3985	875	30	8,6	8
Duralumin	2800	880	147	59,7	22,5
Macor®	2520	790	1,5	0,75	13

Tableau 3.1 – Résumé de quelques propriétés physiques et thermiques du cuivre, de l'aluminium, de l'alumine, du duralumin et du Macor®. ρ est la masse volumique, \hat{C} est la chaleur spécifique, λ est la conductivité thermique, D est la diffusivité thermique et α est le coefficient de dilatation thermique. La diffusivité thermique se calcule comme $D = \lambda/(\rho\hat{C})$.



Figure 3.17 – Photographie de l'ensemble {four-bague de maintien-porte}. (a) : Le four est entouré d'un film chauffant. (b) : Le four est entouré d'un fil résistif coaxial.

constante de l'intégrateur et le courant limite sont réglables (voir figure 3.18). Les sondes de température pour le contrôle et la visualisation sont placées de part et d'autre du four. Les sondes sont des thermistances CTN amagnétiques *Betatherm* 10K3A1B 10 k Ω à 25 °C. Une troisième sonde est placée dans le lit de la cellule de manière à lire la température de la cellule le plus fidèlement possible.

Le régulateur présente d'excellentes performances en terme de stabilité de température avec une régulation en température sous le niveau du mK pour des durées allant jusqu'à 2000 s. La figure 3.19 montre la stabilité de la température du lit de la cellule sur une mesure d'une durée de 20 heures.

BAGUES DE MAINTIEN

Les bagues de maintien sont constituées de Macor®. C'est une céramique de verre blanche facilement usinable. Elle est constituée en majeure partie de silice, d'oxyde de magnésium, d'oxyde de potassium, d'oxyde d'aluminium, de trioxyde de bore et de fluorine. Le Macor® présente une faible dilatation thermique et une très faible diffusivité thermique, ce qui en fait un très bon isolant. La bague avant supporte l'ensemble four-berceau de cellule et le tout est vissé sur la porte.



Figure 3.18 - (a): photographie du contrôleur de température utilisé pour réguler la température du four. (b): photographie de l'emplacement de la sonde de lecture de la température de la cellule.



Figure 3.19 – Fluctuations de la température du lit de la cellule à T = 47, 7 °C.

Solénoïde de champ magnétique

Pour lever la dégénérescence Zeeman et ainsi séparer la transition d'horloge des autres transitions Zeeman, il est nécessaire d'appliquer un champ magnétique statique le long de l'axe de propagation du laser. Le solénoïde de champ magnétique réalise cette fonction. Le corps est en duralumin et supporte l'enroulement du fil de cuivre émaillé constituant la bobine. Pour assurer une bonne homogénéité du champ magnétique, une attention particulière a été portée sur l'enroulement du fil de manière à éviter les trous ou espaces entre les boucles. La bobine a un rayon $R_B = 4,3$ cm pour une longueur $L_B = 13,4$ cm. Nous mesurons la valeur du champ magnétique induit par la bobine en fonction du courant circulant dans le fil à l'aide d'un gaussmètre. La sonde est placée au centre de la bobine. Celle-ci induit un champ magnétique de 23,5±1,6 mG/mA.

Il est possible de mesurer de manière très précise le champ magnétique en utilisant le déplacement en fréquence des transitions Zeeman $|F = 3, m_F = -1\rangle - |F = 4, m_F = -1\rangle$ et $|F = 3, m_F = +1\rangle - |F = 4, m_F = +1\rangle$. En effet, celles-ci sont très sensibles au champ magnétique et se déplacent de ±700, 840 kHz/G par rapport à la transition 0-0 alors que les transitions Zeeman $m_F = 0$ se déplacent de 427,45 Hz.G².

Ainsi, en traquant le déplacement des transitions Zeeman ± 1 par rapport à la transition 0-0, nous pouvons remonter à la valeur du champ magnétique induit par la bobine en fonction du courant

d'injection (voir figure 3.20). Nous arrivons à une mesure affinée du champ magnétique induit par la bobine $B_{B,Z} = 25,2 \pm 0,4$ mG/mA, avec une incertitude sur le courant $\Delta I_B = \pm 0,01$ mA et une incertitude sur le déplacement en fréquence $\Delta f_Z = 5$ Hz.



Figure 3.20 – Variation de la fréquence de déplacement des transitions Zeeman ± 1 en fonction du courant d'injection de la bobine.

Une cartographie du champ magnétique induit par la bobine est effectuée à l'aide du gaussmètre. La forme et les valeurs correspondent aux simulations numériques. Pour un courant d'injection de 9 mA, un champ magnétique d'environ 235 mG et un gradient de l'ordre de 2 mG sur la longueur de la cellule sont obtenus (voir figure 3.21). Ce gradient entraîne un élargissement de la raie CPT de l'ordre de 0,4 Hz, ce qui est négligeable devant des largeurs attendues de l'ordre de plusieurs centaines de Hz.



Figure 3.21 – Cartographie 1D du champ magnétique produit par la bobine pour un courant d'injection de 9 mA. Le modèle théorique est en noir. Les points de mesure sont en rouge. Le léger décalage provient des fuites du champ magnétique par les cheminées du blindage.

La stabilité du champ magnétique dépend directement de la stabilité de la source de courant utilisée :

$$\frac{\Delta B}{B} = \frac{\Delta I}{I} \tag{3.1}$$

avec ΔB (I) les fluctuations du champ magnétique (courant). Notre source de courant présente une instabilité au niveau de 10^{-2} mA, ce qui conduit à une stabilité relative de fréquence limitée à environ 5×10^{-12} à une seconde.

3.2. BANC DE MESURE

BLINDAGES MAGNÉTIQUES

Pour protéger les atomes du champ magnétique parasite (terrestre et ambiant), le module physique est placé dans un ensemble de deux blindages en μ -métal, fabriqués par les ateliers *Soudupin*. Pour information, la valeur du champ magnétique terrestre varie de 300 à 600 mG, avec une valeur de l'ordre de 470 mG en France, ce qui provoque un déplacement de la fréquence d'horloge de l'ordre de 94 Hz.

Les blindages intègrent de petites cheminées autour des ouvertures laissant passer le faisceau laser. Ces cheminées réduisent la fuite du champ magnétique [113]. Les blindages sont ouverts sur l'avant à l'aide d'une porte qui se glisse sur le corps du blindage. Le module physique est maintenu dans le premier blindage par deux bagues en nylon et l'ensemble est disposé dans le second blindage à l'aide, également, de deux bagues en nylon. La figure 3.22 montre une photographie du solénoïde de champ magnétique et des deux blindages utilisés.



Figure 3.22 – Photographie du solénoïde de champ magnétique et des deux blindages en mu-métal. Les portes ne sont pas représentées.

Pour mesurer l'efficacité de l'atténuation du blindage, nous déposons celui-ci au centre de bobines de Helmholtz. Celles-ci, au nombre de 3 paires, produisent un champ magnétique relativement uniforme entre-elles suivant les 3 directions de l'espace X, Y et Z, l'axe Y correspondant à l'axe de révolution du blindage. La sonde du gaussmètre est placée au centre du blindage pour mesurer l'atténuation sur chaque axe. Le tableau 3.2 résume les différentes valeurs mesurées.

	Axe X (dB)	Axe Y (dB)	Axe Z (dB)
Petit blindage	55	32	54
Grand blindage	43	33	43
Ensemble	98	65	97

Tableau 3.2 – Résumé des mesures d'atténuation des blindages magnétiques. La valeur de l'ensemble est extrapolée comme étant le produit des atténuations du petit et du grand blindage. Les valeurs sont données en décibel.

Ainsi, avec un champ magnétique terrestre moyen de 470 mG, le champ magnétique résiduel au centre des blindages sera, dans le pire des cas, de l'ordre de 0,3 mG et, au mieux, de l'ordre de 6μ G, soit un déplacement de la fréquence d'horloge de $3,8.10^{-5}$ Hz et $1,5.10^{-8}$ Hz respectivement.

Mesure des pressions et dépendance Thermique

Ce quatrième chapitre se concentre sur la mesure des pressions internes de gaz tampon. En effet, la détermination des coefficients de déplacement collisionnel nécessite la connaissance de la valeur de la pression de gaz tampon le plus précisément possible.

L'introduction d'un gaz tampon provoque un déplacement et un élargissement des transitions hyperfines optiques. Nous étudions la dépendance thermique de ce déplacement et élargissement pour les gaz tampon que nous avons choisis.

> «La nature est remplie d'une infinité de raisons dont l'expérience n'a jamais vu la trace.» Léonard de Vinci

4.1/ Cellules à disposition

Dans l'optique d'augmenter la température de fonctionnement de la micro-horloge MAC-TFC, notre choix s'est porté sur deux gaz tampon : un gaz léger, l'hélium, et un gaz lourd, le xénon. Le choix de ces gaz tampon sera explicité dans le chapitre 5 lors de l'étude des coefficients de déplacement collisionnel.

Nous disposons de 3 cellules provenant de chez *Triad Technologies Inc.* (voir chapitre 3). Nous avons commandé une cellule à vapeur de césium contenant 50 Torr d'hélium et deux cellules à vapeur de césium contenant respectivement 30 et 50 Torr de xénon. Le fabricant nous assure une pression demandée à ±0, 25 Torr et à une température de remplissage $T_r = 22, 7$ °C. Nous verrons que nos mesures remettent en cause ces spécifications.

Nous disposons également d'une cellule à vapeur de césium contenant $22, 2 \pm 0, 3$ Torr de diazote à la température de référence $T_0 = 273$ K. Cette cellule a été caractérisée par Kozlova *et al.* [31] et nous servira de cellule de référence pour la validation de nos résultats.

4.2/ Mesure des pressions

Il est très difficile de contrôler finement la pression introduite dans la cellule lors du scellement où des températures élevées sont mises en jeu et donc, l'apparition de gradients de pression. De plus, il est impossible de mesurer la pression interne dans une cellule scellée à l'aide de méthodes directes non destructives (comme l'ouverture de la cellule dans un spectromètre de masse). Pour mesurer la pression de gaz tampon, nous utilisons une méthode indirecte de spectroscopie laser. En effet, le gaz tampon, en plus de déplacer les transitions hyperfines, déplace et élargit les transitions optiques à cause des collisions entre les atomes du gaz tampon et les atomes alcalins. Le déplacement et l'élargissement proviennent de la différence des potentiels inter-atomiques entre l'état fondamental et l'état excité de l'atome alcalin perturbé par l'atome de gaz tampon. Cette différence de potentiel entre l'état excité e et l'état fondamental f est traditionnellement représentée par un potentiel de Lennard-Jones [114] :

$$[V_e(R) - V_f(R)] = \frac{C_{12}}{R^{12}} - \frac{C_6}{R^6}$$
(4.1)

où V_i est l'énergie potentielle de l'état i, R est la distance inter-atomique, C_{12} est le terme répulsif (ou terme de Pauli) dû au recouvrement des orbitales électroniques et C_6 est le terme attractif (ou terme de van der Waals) qui est déterminé par la polarisabilité de l'atome de gaz tampon.

L'élargissement se traduit par une augmentation de la gamme d'énergie des transitions "état fondamental - état excité" dépendant de la distance inter-atomique R. Le déplacement en fréquence s'explique par le fait que le potentiel V_e de l'état excité est plus attractif que le potentiel V_f de l'état fondamental. Pour le cas des gaz lourds (comme le xénon), le terme de van der Waals domine et déplace la fréquence de transition optique vers les plus grandes longueurs d'onde (ou basses énergies) alors que pour les gaz légers (comme l'hélium), c'est le terme de Pauli qui l'emporte et les fréquences sont déplacées vers les petites longueurs d'onde (ou hautes énergies). Le déplacement et l'élargissement dépendent linéairement de la pression de gaz tampon :

$$S = P_{gt} \cdot \kappa^{opt} \tag{4.2}$$

$$\Delta v_L = P_{gt} \cdot \xi^{opt} \tag{4.3}$$

avec *S* le déplacement mesuré, Δv_L l'élargissement dû au gaz tampon, P_{gt} la pression de gaz tampon, κ^{opt} le coefficient de déplacement collisionnel des transitions optiques et ξ^{opt} le coefficient d'élargissement collisionnel des transitions optiques. Les coefficients κ^{opt} et ξ^{opt} sont donnés pour une température de mesure, les mesures de déplacement et d'élargissement se feront donc à ces températures. La pression est ensuite ramenée de cette température de mesure à la température de référence $T_0 = 273$ K en utilisant la loi des gaz parfaits :

$$P_0 = P_1 \cdot \frac{T_0}{T_1}$$
(4.4)

où P_0 et P_1 sont les pressions aux températures T_0 et T_1 .

Historiquement, le rubidium fut utilisé dans diverses applications (horloges atomiques compactes, production de gaz neutres hyperpolarisés pour la recherche médicale [114], ...) grâce notamment à la disponibilité de sources optiques capables de venir exciter ses transitions optiques et notamment sa raie D_1 à 795 nm. Puis le développement des télécommunications optiques a apporté de nombreuses améliorations au niveau des sources optiques utilisées dans la première fenêtre des télécommunications entre 800 et 900 nm. Ainsi, le développement de sources lasers sur la raie D_2 du césium, à 852 nm, a permis de mener de nombreuses études spectroscopiques.

Malheureusement, les sources lasers sur la raie D_1 du césium, à 895 nm, ont été développées relativement tard et restent assez rares, conduisant à un certain manque d'informations sur les propriétés spectroscopique de la raie D_1 .

Dans les années 2000, des travaux menés par Andalkar et Warrington [115], Couture *et al.* [114] et Pitz *et al.* [116], sont venus enrichir et améliorer la précision des bases de données des coefficients κ^{opt} et ξ^{opt} . En effet, les précédentes données, datant d'avant 2000, souffraient d'une incertitude allant de 10 à 20%, notamment à cause d'un manque de précision sur la mesure de la pression de gaz tampon dans les cellules.

4.2.1/ PRINCIPE

La détermination spectroscopique de la pression de gaz tampon repose sur la mesure du déplacement et/ou de l'élargissement causé(s) par le gaz tampon lui-même. Pour cela, nous comparons le spectre d'absorption du mélange césium-gaz tampon avec le spectre d'absorption du césium pur. Le schéma expérimental est décrit figure 4.1.

MONTAGE

Nous envoyons une rampe de courant lente sur la source laser de manière à balayer une fenêtre en fréquence de plusieurs GHz. Nous recueillons simultanément les spectres d'absorption en sortie des cellules de césium pur et césium - gaz tampon sur les photodiodes PD1 et PD2. Les photodiodes utilisées sont des *Thorlabs* PDA-36A-EC à gain variable. Le faisceau laser entrant dans la cellule de référence fait 2,6 mm de diamètre et le faisceau entrant dans la cellule test recouvre l'ensemble de la partie traitée anti-reflet, soit 19 mm de diamètre. L'intensité optique du faisceau laser devant les cellules est grandement atténuée, atteignant typiquement 1 μ W/cm², de manière à éviter tout phénomène d'élargissement par saturation optique et à rester dans les conditions de la loi d'absorption de Beer-Lambert-Bouguer [117] :

$$I(z) = I_0 e^{-\alpha(\omega)z} \tag{4.5}$$



Figure 4.1 – Schéma expérimental de la détermination de la pression de gaz tampon par mesure du déplacement de fréquence S induit par la présence du gaz tampon. PD : photodiode. Cs : cellule de césium pur. Cs + GT : cellule de césium et gaz tampon.

où I_0 est l'intensité en entrée de la cellule, α est le coefficient d'absorption du milieu, ω est la pulsation optique et z est la distance parcourue.

Le coefficient d'absorption pour une transition atomique $|i\rangle \rightarrow |k\rangle$ s'exprime comme :

$$\alpha_{ik}(\omega) = \sigma_{ik}(\omega) \left[N_i - \frac{g_i}{g_k} N_k \right]$$
(4.6)

où σ_{ik} est la section efficace d'absorption optique pour chaque atome absorbant le rayonnement, N_i et N_k sont les densités de population des niveaux $|i\rangle$ et $|k\rangle$, et g_i et g_k sont les coefficients de dégénérescence de ces niveaux.

Dans le cas d'une intensité optique suffisamment faible, la population sur le niveau $|i\rangle$ est bien plus élevée que sur le niveau $|k\rangle$ et le taux d'absorption est petit comparé au taux de repopulation du niveau $|i\rangle$. De plus, la densité de population N_i ne dépend plus de l'intensité *I*. L'absorption devient donc linéaire pour les petites intensités optiques. Le coefficient d'absorption $\alpha(\omega)$ traduit le profil d'absorption du milieu.

Au voisinage d'une transition atomique centrée en ω_0 , la relaxation naturelle des niveaux d'énergie induit un profil d'absorption Lorentzien :

$$\alpha_L(\omega) \approx \frac{\Delta \omega_L}{(\omega_0 - \omega)^2 + (\Delta \omega_L/2)^2}$$
(4.7)

où $\Delta\omega_L$ est la largeur à mi-hauteur (FWHM) du profil d'absorption, qui est égale à la largeur naturelle. Dans le cas de la raie D_1 du césium, le temps de vie du niveau excité vaut $\tau \sim 34,89$ ns conduisant à une largeur naturelle $\Delta\omega_L = \Delta\omega_{nat} \sim 2\pi \cdot 4,56$ MHz.

Pour un gaz à basse pression, le déplacement thermique des atomes induit un profil d'absorption Gaussien, dit élargissement Doppler, autour de la transition centrée en ω_0 [117] :

$$\alpha_G(\omega) = -\frac{(\omega - \omega_0)^2}{0.36 \cdot \Delta \omega_D^2}$$
(4.8)

où $\Delta \omega_D$ est la largeur Doppler à mi-hauteur définie comme :

$$\Delta\omega_D = 2\frac{\omega_0}{c}\sqrt{2\ln 2\frac{RT}{M}} \tag{4.9}$$

avec c la célérité de la lumière, R la constante des gaz parfaits, T la température du gaz et M la masse d'une mole de ce gaz. La largeur Doppler peut être exprimée directement en terme de fréquence :

$$\Delta \nu_D = 7,16 \times 10^{-7} \nu_0 \sqrt{\frac{T}{M}}$$
(4.10)

où v_0 est la fréquence optique de la transition. À une température de 296 K (23 °C), la raie D_1 du césium ($v_0 \sim 335$, 116 THz et M = 133 g.mol⁻¹) a une largeur Doppler $\Delta v_D \sim 358$ MHz.

Dans le cas d'un gaz pur, la largeur naturelle est négligeable devant l'élargissement Doppler. Le profil d'absorption est considéré comme Gaussien. Dans le cas d'un mélange de gaz, l'élargissement Lorentzien causé par la relaxation des niveaux d'énergie due aux collisions entre les différentes espèces atomiques n'est plus négligeable et le profil d'absorption est un profil de Voigt. Le profil de Voigt est défini comme la convolution d'un profil Lorentzien avec un profil Gaussien :

$$V(\omega; \Delta\omega_D, \Delta\omega_L) = \int_{-\infty}^{+\infty} G(\omega'; \Delta\omega_D) L(\omega - \omega'; \Delta\omega_L) \,\mathrm{d}\omega'$$
(4.11)

où $G(\omega; \Delta \omega_D)$ est le profil Gaussien et $L(\omega; \Delta \omega_L)$ est le profil Lorentzien. La largeur à mi-hauteur du profil de Voigt (avec une précision de 0,02%) est défini comme [118] :

$$\Delta v_V \approx 0,5346 \cdot \Delta v_L + \sqrt{0,2166 \cdot \Delta v_L^2 + \Delta v_D^2}$$
(4.12)

où Δv_V , Δv_L et Δv_D sont la largeur à mi-hauteur du profil de Voigt, Lorentzien et Gaussien respectivement.

Pour extraire les largeurs et positions des profils d'absorption, les ajustements sont réalisés sur le logarithme de la transmission comme l'indique l'équation (4.5). Nous utilisons le logiciel commercial *Wavemetrics* IGOR Pro pour réaliser les ajustements sur les spectres d'absorption. Les paramètres sont laissés libres. Nous vérifions que le profil Gaussien du spectre d'absorption du césium pur correspond bien à l'élargissement Doppler. De plus, l'élargissement Lorentzien (ou élargissement collisionnel), provoqué par les collisions entre les atomes de césium et les atomes du gaz tampon et qui nous renseigne sur la pression de gaz tampon via l'équation (4.3), est issu de l'équation (4.12) en calculant la largeur Doppler pour la température considérée. Ceci évitera des erreurs d'ajustement du logiciel. Pour la mesure de l'élargissement Lorentzien, la largeur naturelle de la raie D_1 du césium ainsi que la largeur spectrale du laser (~ 1 MHz) sont déduites. La mesure de la largeur du profil d'absorption (et les valeurs renseignées dans la littérature pour le coefficient d'élargissement collisionnel) étant sujette à une incertitude plus élevée que la mesure du déplacement, la mesure des pressions se fera préférentiellement sur la mesure moyenne du déplacement collisionnel des quatre transitions optiques.

La cellule de césium pur est laissée à température ambiante (~ $23,0 \pm 0,5$) °C, sans protection magnétique. Nous avons vérifié que la présence ou non d'un blindage magnétique ne perturbait pas de manière significative le déplacement des transitions optiques. La cellule de césium - gaz tampon à tester est dans le module physique blindé et régulé en température.

VARIATION D'INTENSITÉ

Le balayage en fréquence du laser via sa source de courant induit une variation de l'intensité laser. Une méthode possible pour corriger cet effet est d'asservir l'intensité laser à l'aide d'un modulateur acousto-optique. En récupérant l'ordre diffracté, il est possible d'ajuster la puissance RF reçue par le cristal pour corriger les variations d'intensité du faisceau transmis. Cette méthode présente l'avantage de pouvoir travailler à puissance optique constante en réalisant un véritable asservissement de puissance laser. Malheureusement, cette boucle d'asservissement ajoute du bruit sur le signal et ne permet pas de corriger les variations d'intensité propres aux différents chemins optiques empruntés par les faisceaux allant sur les cellules.

La méthode utilisée ici est plus simple et consiste à enregistrer le spectre d'absorption avec et sans cellule. En effet, en retirant la cellule, nous avons accès directement aux variations d'intensité du fond continu propre à chaque chemin optique. Le spectre d'absorption avec cellule est divisé par le spectre sans cellule de manière à normaliser le fond en supprimant de manière efficace les variations d'intensité optique propre à chaque trajet [115].

D'autres variations d'intensité, de type sinusoïdal, peuvent apparaître à la traversée des différents éléments optiques, provoquant des interférences. Ces variations peuvent être limitées en simplifiant le montage et en réduisant les éléments optiques.

La figure 4.2 montre l'effet de normalisation du spectre d'absorption en divisant celui-ci par le fond continu.



Figure 4.2 – Spectres d'absorption du césium pur. (a) : spectre brut enregistré directement sur la photodiode. (b) : fond continu lorsque la cellule est retirée du trajet optique. (c) : spectre normalisé en divisant par le fond continu.
ÉTALONNAGE DE L'AXE DES FRÉQUENCES

Pour étalonner l'axe x des fréquences, nous utilisons la séparation en fréquence bien connue des niveaux d'énergie du césium pur [119, 120] (voir annexe B).

En effet, les transitions { $|F = 3(4)\rangle \rightarrow |F = 4'\rangle$ et $|F = 3(4)\rangle \rightarrow |F = 3'\rangle$ } sont séparées de 1167, 680 ± 0,078 MHz et les transitions { $|F = 3\rangle \rightarrow |F = 4'\rangle$ et $|F = 4\rangle \rightarrow |F = 4'\rangle$ } sont séparées de 9 192,63770 MHz par définition [120]. La figure 4.3 représente le spectre d'absorption normalisé du césium pur.



Figure 4.3 – Spectre d'absorption normalisé du césium pur. La rampe appliquée sur le courant de diode laser permet de balayer une fenêtre de 15 GHz de manière à obtenir les 4 transitions optiques. La valeur du courant de diode augmente vers la droite et a valeur de la fréquence diminue vers la droite.

Nous avons remarqué que le balayage en courant du laser donne une réponse non-linéaire en fréquence. Ceci a également été constaté par O. Kozlova [31].

Pour limiter les effets de cette réponse non-linéaire, nous étalonnons l'axe des fréquences à partir des deux sous-groupes de transitions (3-4') - (3-3') et (4-4') - (4-3') et non pas du groupe complet des 4 transitions. Nous obtenons une résolution de 2 MHz sur le spectre d'absorption. Le profil d'absorption est considéré comme purement Gaussien mais nous avons vérifié que les mesures de largeur et position sont les mêmes dans le cas d'un ajustement avec un profil de Voigt.

Nous avons également remarqué une discordance entre les valeurs théoriques de l'amplitude des creux d'absorption et leurs valeurs expérimentales. La force des transitions optiques est quantifiée par le facteur de couplage $S_{FF'}$ défini comme [120] :

$$S_{FF'} = (2F'+1) \cdot (2J+1) \cdot \left\{ \begin{array}{cc} J & J' & 1 \\ F' & F & I \end{array} \right\}^2$$
(4.13)

où J(J') est le moment angulaire de l'électron du niveau fondamental (excité), I est le moment angulaire nucléaire, F(F') est le moment angulaire atomique du sous-niveau de l'état fondamental (excité) défini comme F = J + I et la partie entre accolades est *le symbole 6j* de Wigner.

De plus, la somme des S_{FF'} est indépendante du sous-niveau de l'état fondamental choisi condui-

sant à :

$$\sum_{F'} S_{FF'} = 1 \tag{4.14}$$

Pour la raie D_1 (J = J' = 1/2) du césium (I = 7/2) nous obtenons les valeurs des $S_{FF'}$ pour les quatre transitions hyperfines :

S 34	S 33	S 44	S ₄₃
3/4	1/4	5/12	7/12

Tableau 4.1 – Valeurs des coefficients de couplage des transitions hyperfines de la raie D_1 du césium.

Ramenés au même dénominateur, les facteurs $S_{FF'}$ valent 9, 3, 5 et 7 pour les transitions (3-4'), (3-3'), (4-4') et (4-3'), respectivement. Les amplitudes des transitions sont en accord avec les valeurs théoriques pour des transitions séparées de 1,16 GHz mais les amplitudes des transitions séparées de 9,192 GHz ne sont plus en accord. En effet, nous voyons sur la figure 4.3 que l'absorption de la transition (4-3') est plus forte que l'absorption de la transition (3-4'), alors que, théoriquement, les coefficients $S_{FF'}$ valent respectivement 7 et 9. Ceci peut s'expliquer par la méthode de balayage en fréquence du laser. En effet, lorsque que le courant de diode augmente, l'intensité augmente mais la largeur spectrale du laser diminue. Diviser le spectre d'absorption par le fond continu corrige les variations d'intensité mais pas les variations de largeur spectrale. Ce phénomène a également été observé par Kozlova *et al.* [31].

4.2.2/ Résultats des mesures de pression

CELLULE CS-N₂

Cette cellule provient du SYRTE et a été caractérisée par Dr. Kozlova [31]. Elle nous servira de cellule de référence pour valider notre dispositif expérimental.

Cette cellule est légèrement différente de nos cellules. Elle est en Pyrex®, possède un diamètre de 22 mm pour une longueur de 20 mm et n'a pas de traitement anti-reflet sur les fenêtres optiques. Du fait de ses dimensions différentes des cellules Triad, nous avons fabriqué un nouveau berceau en cuivre pour accueillir cette cellule.

Cette cellule a été remplie avec une pression supposée de 30 Torr de diazote. La mesure de pression effectuée par le SYRTE révèle une pression $P_{N_2} = 22, 2 \pm 0, 3$ Torr à la température de référence $T_0 = 273$ K [31].

Nous trouvons dans la littérature plusieurs valeurs pour les coefficients $\kappa_{N_2}^{opt}$ et $\xi_{N_2}^{opt}$. Ces valeurs sont résumées dans le tableau 4.2. De plus, les incertitudes plus élevées pour le coefficient d'élargissement collisionnel montrent que la mesure de pression par cette méthode sera plus incertaine que par la mesure du déplacement.

Les coefficients sont donnés à une température bien définie, nous choisissons les coefficients mesurés à 318 K (45 °C). En effet, une température plus élevée provoque une opacité du milieu conduisant à un signal transmis plus faible (la température ambiante étant de l'ordre de 23 °C, nous ne pouvons utiliser les coefficients aux températures 294 K (21 °C) et 295 K (22 °C)).

4.2. MESURE DES PRESSIONS

Référence	$\kappa_{N_2}^{opt}$ (MHz/Torr)	$\xi_{N_2}^{opt}$ (MHz/Torr)	$T(\mathbf{K})/(^{\circ}\mathbf{C})$
	-7,69 ± 0,01	$15,82 \pm 0,05$	318 / 45
[116]	$-7,71 \pm 0,01$	$16,36 \pm 0,02$	323 / 50
	$-7,41 \pm 0,01$	$15,66 \pm 0,08$	333 / 60
[114]	$-8,90 \pm 0,69$	$14,73 \pm 0,69$	393 / 120
[115]	$-8,23 \pm 0,02$	$19,51 \pm 0,06$	294 / 21
[121]	$-7,38 \pm 0,11$	$30,93 \pm 5,71$	295 / 22

Tableau 4.2 – Résumé des valeurs des coefficients de déplacement $\kappa_{N_2}^{opt}$ et d'élargissement $\xi_{N_2}^{opt}$ collisionnel des transitions optiques pour le gaz tampon diazote. Les valeurs en gras sont les valeurs retenues pour notre mesure de pression.

Le mesure du déplacement moyen nous donne $S_{N_2} = 200 \pm 2$ MHz, soit une pression $P_{N_2} = 25, 9 \pm 0, 3$ Torr à 318 K (45 °C).

La pression mesurée ramenée à la température de référence $T_0 = 273$ K (0 °C) devient $P_{0,N_2} = 22, 3 \pm 0, 3$ Torr ce qui correspond à la pression initialement mesurée par le SYRTE.

Ainsi, notre banc de mesure dispose de la résolution suffisante pour la mesure spectroscopique de la pression de gaz tampon.

CELLULE CS-HE

La cellule Cs-He a été commandée avec une pression demandée $P_{T,He} = 50 \pm 0,25$ Torr à la température de remplissage du fabricant $T_T = 295,7$ K (22,7 °C) soit une pression $P_{0,He} = 46, 2 \pm 0, 3$ Torr à la température de référence de 0 °C.

Les coefficients de déplacement et d'élargissement collisionnels des transitions optiques pour l'hélium sont reportés dans le tableau 4.3.

Référence	κ_{He}^{opt} (MHz/Torr)	ξ_{He}^{opt} (MHz/Torr)	$T(\mathbf{K})/(^{\circ}\mathbf{C})$
[116]	$4{,}24\pm0{,}02$	$24,13 \pm 0,07$	323 / 50
[114]	$4,45 \pm 0,69$	$28,42 \pm 1,03$	393 / 120
[115]	$4,46 \pm 0,03$	$26,21 \pm 0,31$	294 / 21
[121]	$-6,61 \pm 1,00$	$19,49 \pm 1,35$	295 / 22

Tableau 4.3 – Résumé des valeurs des coefficients de déplacement κ_{He}^{opt} et d'élargissement ξ_{He}^{opt} collisionnels des transitions optiques pour le gaz tampon hélium. Les valeurs en gras sont les valeurs retenues pour notre mesure de pression.

- Fuite d'hélium

La pression d'hélium a été mesurée le 16/10/2013. Le déplacement mesuré à T = 323 K valait $S_{He} = 142 \pm 3$ MHz conduisant à une pression $P_{0,He} = 28, 3 \pm 1, 4$ Torr à la température de référence. La différence avec la pression demandée au fabricant révèle la difficulté du contrôle de pression lors du remplissage et scellement des cellules. Mais un autre effet vient expliquer cette différence avec la valeur de pression demandée.

En effet, nous nous sommes rendus compte que la pression d'hélium diminuait au cours du temps. Une mesure de pression effectuée le 03/03/2014, révèle une pression $P_{0,He} = 25, 4 \pm 1, 4$ Torr et une mesure de pression datant du 19/05/2014 révèle une pression $P_{0,He} = 23, 6 \pm 1, 4$ Torr.

Nous avons donc une fuite moyenne de l'ordre de ~ 22 mTorr/jour. La figure 4.4 montre le déplacement de fréquence relatif théorique attendu d'une horloge provoqué par une fuite d'hélium au cours du temps.



Figure 4.4 – Évolution au cours du temps du déplacement de fréquence relatif provoqué par la fuite d'hélium à travers deux types de verre (calcul réalisé par E. de Clercq).

Cette diminution de la pression peut s'expliquer soit par un mauvais scellement de la cellule, soit par une fuite d'hélium à travers les parois en quartz de la cellule. La piste de la perméation d'hélium est privilégiée car il est bien connu que ce gaz léger est très volatil. De plus, une étude réalisée récemment montre que le néon, plus lourd que l'hélium, fuit également par perméation [122]. Cependant, nous n'excluons pas un mauvais scellement de la cellule. En effet, la fuite observée est estimée à environ 1000 fois plus qu'une simple fuite par perméation. Les cellules fabriquées par *Triad Technologies Inc.* sont composées d'une cuve où les deux fenêtres venant fermer la cuve sont collées sur cette dernière (voir figure 3.16). Il est possible que l'hélium puisse s'échapper par cet interface.

La figure 4.5 montre le spectre d'absorption à une température T = 323 K (50 °C) du mélange césium-hélium à une pression $P_{0,He} = 28, 3 \pm 1, 4$ Torr et à une pression $P_{0,He} = 23, 6 \pm 1, 4$ Torr.

Une mesure de l'élargissement collisionnel à T = 323 K (50 °C), réalisée le 16/10/2013, donne un élargissement Lorentzien $\Delta v_L = 887 \pm 10$ MHz, conduisant à une pression d'hélium $P_{0,He} = 31, 1 \pm 2, 2$ Torr.

La mesure de pression via l'élargissement, bien que moins précise, nous donne bien une pression proche de celle mesurée par le déplacement collisionnel.



Figure 4.5 – Spectres d'absorption des transitions optiques (4-4') et (4-3') à une température $T = 323 \text{ K} (50 \,^{\circ}\text{C})$ dans la cellule césium-hélium à deux pressions différentes. Le spectre d'absorption du césium pur est en violet et le spectre d'absorption du césium dans l'hélium est en vert. (a) : pression d'hélium $P_{0,He} = 28, 3 \pm 1, 4$ Torr. (b) : pression d'hélium $P_{0,He} = 23, 6 \pm 1, 4$ Torr. La différence de 4,7 Torr se ressent visuellement sur l'élargissement de la transition optique.

CELLULES CS-XE

Nous disposons de deux cellules Cs-Xe contenant respectivement une pression demandée de $50 \pm 0, 25$ Torr et $30 \pm 0, 25$ Torr à la température de remplissage $T_T = 295, 7$ K (22,7 °C) soit une pression $P_{0,Xe} = 46, 2 \pm 0, 3$ Torr et $P_{0,Xe} = 27, 7 \pm 0, 3$ Torr à la température de référence de 0 °C.

Les coefficients de déplacement et d'élargissement collisionnels des transitions optiques pour le xénon sont reportés dans le tableau 4.4.

Référence	κ_{Xe}^{opt} (MHz/Torr)	ξ_{Xe}^{opt} (MHz/Torr)	$T(\mathbf{K}) / (^{\circ}\mathbf{C})$
[116]	$-6,43 \pm 0,01$	$19,74 \pm 0,08$	313 / 40
[121]	$-8,09 \pm 1,2$	-	295 / 22
[123]	-	$21,49 \pm 2,60$	295 / 22
[124]	-6,3	17,09	295 / 22

Tableau 4.4 – Résumé des valeurs des coefficients de déplacement κ_{Xe}^{opt} et d'élargissement ξ_{Xe}^{opt} collisionnels des transitions optiques pour le gaz tampon xénon. Les valeurs en gras sont les valeurs retenues pour notre mesure de pression. Les incertitudes de la référence [124] ne sont pas disponibles.

La mesure du déplacement collisionnel des transitions optiques dans la cellule Cs-Xe50T vaut $S_{Xe50} = -258 \pm 2$ MHz, conduisant à une pression $P_{0,Xe,50} = 35, 0 \pm 1, 7$ Torr.

La mesure du déplacement collisionnel dans la cellule Cs-Xe30T vaut $S_{Xe30} = -132 \pm 2$ MHz, révélant une pression $P_{0,Xe30} = 17,9 \pm 1,0$ Torr. La figure 4.6 montre le spectre d'absorption à une température T = 313 K (40 °C) du mélange Cs-Xe à une pression $P_{0,Xe30} = 35,0 \pm 1,7$ Torr et à une pression $P_{0,Xe30} = 17,9 \pm 1,0$ Torr.



Figure 4.6 – Spectres d'absorption des transitions optiques (4-4') et (4-3') à une température T = 313 K (40 °C) du mélange césium-xénon. Le spectre d'absorption du césium pur est en violet et le spectre d'absorption du césium dans le xénon est en vert. (a) : cellule Cs-Xe contenant $P_{0,Xe} = 35, 0 \pm 1, 7$ Torr de xénon. (b) : cellule Cs-Xe contenant $P_{0,Xe} = 17, 9 \pm 1, 0$ Torr de xénon.

Une mesure de l'élargissement collisionnel provoqué par le gaz tampon xénon révèle un élargissement Lorentzien $\Delta v_{L,Xe50} = 833 \pm 14$ MHz, soit une pression $P_{0,Xe,50} = 36, 8 \pm 1, 8$ Torr, et $\Delta v_{L,Xe30} = 407 \pm 8$ MHz, soit une pression $P_{0,Xe,30} = 18, 1 \pm 1, 1$ Torr. Les résultats de mesure de pression avec les deux méthodes sont en bon accord.

Encore une fois, la différence des valeurs mesurées de pression avec les valeurs demandées montrent la difficulté à maintenir une valeur correcte de pression durant le procédé de remplissage/scellement des cellules. Nous remarquons qu'aucune variation de pression dans les cellules Cs-Xe n'a été observée, éliminant un potentiel mauvais scellement.

4.3/ Dépendance thermique

Les valeurs des coefficients de déplacement et d'élargissement collisionnels des transitions optiques sont données à une température particulière. Pour obtenir cette valeur à n'importe quelle température, il est nécessaire d'étudier la dépendance thermique de ces coefficients.

En 1976, Kielkopf a étudié de manière théorique la dépendance thermique des coefficients de déplacement et d'élargissement collisionnels des transitions optiques de plusieurs métaux alcalins dans différents gaz tampon, dont le césium mélangé à de l'hélium et du xénon [125].

4.3.1/ Déplacement des transitions optiques

La dépendance thermique des déplacements collisionnels des transitions optiques peut être écrite sous la forme [125] :

$$\frac{S_m}{S_r} = \left(\frac{T_m}{T_r}\right)^n \tag{4.15}$$

où S_m et S_r sont les déplacements collisionnels aux températures T_m et T_r et n est le coefficient de dépendance thermique.

La valeur du coefficient de dépendance thermique des déplacements collisionnels est déterminée

4.3. DÉPENDANCE THERMIQUE

par la dépendance thermique de la section efficace de collision entre le métal alcalin et le gaz tampon. La dépendance thermique des coefficients de déplacement et d'élargissement collisionnels a été étudiée expérimentalement pour le diazote [31], le néon et l'argon en mélange avec du césium [101]. À notre connaissance, cette étude n'a pas encore été menée pour l'hélium et le xénon dans du césium.

L'équation (4.15), portant sur le déplacement, peut être reliée directement au coefficient de déplacement collisionnel en utilisant la loi des gaz parfaits $P_{gt} = n_{gt}k_BT$ (où P_{gt} est la pression de gaz tampon, n_{gt} est la densité atomique de gaz tampon, k_B est la constante de Boltzmann et T la température de la cellule) :

$$\frac{\kappa_m^{opt}}{\kappa_r^{opt}} = \left(\frac{T_m}{T_r}\right)^{n-1} \tag{4.16}$$

où κ_m^{opt} et κ_r^{opt} sont les coefficients de déplacement collisionnel des transitions optiques aux températures T_m et T_r .

PRINCIPE DE LA MESURE

Pour mesurer la dépendance thermique des coefficients de déplacement collisionnel, nous utilisons le même montage que pour la mesure de pression (figure 4.1). Le faisceau entrant dans la cellule de référence fait 2,6 mm de diamètre et le faisceau entrant dans la cellule à tester fait 19 mm de diamètre. Pour éviter les phénomènes de saturation optique, le faisceau a une intensité optique inférieure à 1 μ W/cm². Le déplacement provoqué par le gaz tampon est mesuré dans une gamme de température allant de 303 à 333 K (30 à 60 °C). La température est contrôlée à hauteur de 0,3 K et les déplacements sont mesurés avec une précision de 2 MHz. Nous traçons le logarithme du déplacement en fonction du logarithme de la température. D'après l'équation (4.15), la pente de la droite obtenue donne la valeur du coefficient *n*.

Nous précisons que la durée de l'étude est suffisamment courte pour que la fuite d'hélium ne vienne pas perturber les résultats obtenus. En effet, les mesures de pression effectuées au début et à la fin de l'étude sont l'intervalle d'incertitude.

Résultats

Kielkopf prédit théoriquement une valeur $n_{He}^{K} = 1, 10$ pour l'hélium et $n_{Xe}^{K} = 0, 31$ pour le xénon [125]. Ses calculs utilisent les potentiels inter-atomiques semi-empiriques et ils sont basés sur l'approximation d'impact, c'est-à-dire que le temps entre les collisions est beaucoup plus grand que la durée de la collision elle-même.

D'après lui, les valeurs de *n* sont plus incertaines pour les gaz tampon légers, comme l'hélium, alors que pour les gaz lourds, comme le xénon, les valeurs de *n* sont plus fiables car, pour ces gaz, les interactions attractives en R^{-6} (voir équation (4.1)) sont dominantes par rapport au facteur répulsif empirique introduit dans les calculs. Ainsi, une valeur de 0,3 est attendue pour *n*. Il est important de remarquer que Kielkopf ne distingue pas les raies D_1 et D_2 .

Couture *et al.*, en utilisant les mesures de Andalkar et Warrington [115], trouve deux valeurs différentes pour l'hélium, à savoir $n_{He}^C = 1, 6 \pm 0, 5$ pour la raie D_1 et $n_{He}^C = 2, 6 \pm 0, 6$ pour la raie D_2 [114]. De plus, Pitz *et al.* indique que la section efficace de collision a une très grande dépendance à l'énergie [116]. Or les raies D_1 et D_2 ont une répartition énergétique différente conduisant ainsi à des potentiels différents. Il paraît donc nécessaire de différencier les deux raies

du césium.



La figure 4.7 montre la dépendance thermique issue de nos mesures pour les gaz tampon hélium et xénon.

Figure 4.7 – Dépendance thermique du déplacement collisionnel des transitions optiques de la raie D_1 du césium pour les gaz tampon hélium et xénon. En noir : cellule Cs-He avec 28, 3 ± 1, 4 Torr à T_0 . En rouge : cellule Cs-Xe avec 17, 9±1, 0 Torr à T_0 . En bleu : cellule Cs-Xe avec 35, 0±1, 7Torr à T_0 .

Nous obtenons pour l'hélium une valeur de $n_{He} = 0, 34 \pm 0, 17$. Pour le xénon, nous obtenons une valeur $n_{Xe} = 0, 63 \pm 0, 07$ pour la cellule contenant $17, 9 \pm 1, 0$ Torr et $n_{Xe} = 0, 64 \pm 0, 17$ pour la cellule contenant $35, 0 \pm 1, 7$ Torr. Nous remarquons que notre valeur pour un gaz léger est inférieure à celle prédite par Kielkopf et notre valeur pour un gaz lourd est supérieure à la valeur également prédite par Kielkopf. Kozlova *et al.* a également mesuré une valeur de dépendance thermique du déplacement optique pour un gaz lourd, l'argon, supérieure à la valeur prédite [101]. De plus, si nous considérons le diazote comme un gaz léger, leur valeur mesurée est également inférieure à la valeur prédite. Nos valeurs se comportent comme celles de Kozlova *et al.*

Notre valeur n_{He} est très éloignée de la valeur prédite par Kielkopf ($n_{He}^{K} = 1, 10$). De plus, Couture *et al.* trouve une valeur encore plus éloignée de la nôtre ($n_{He}^{C} = 1, 6 \pm 0, 5$). Si nous ramenons le coefficient de Pitz *et al.* ($\kappa_{He,50}^{P} = 4, 24 \pm 0, 02$ MHz/Torr) à la température

Si nous ramenons le coefficient de Pitz *et al.* ($\kappa_{He,50}^{P} = 4, 24 \pm 0, 02$ MHz/Torr) à la température de mesure de Andalkar et Warrington ($\kappa_{He,21}^{A} = 4, 46 \pm 0, 03$ MHz/Torr) à l'aide de notre valeur mesurée, nous obtenons $\kappa_{He,21}^{P} = 4, 51 \pm 0, 05$ MHz/Torr, les deux coefficients sont en accord.

Si nous ramenons le coefficient de Pitz *et al.* à la température de mesure de Couture *et al.* ($\kappa_{He,120}^C = 4,45 \pm 0,69$ MHz/Torr), nous obtenons $\kappa_{He,120}^P = 3,73 \pm 0,14$ MHz/Torr, ce qui ne correspond plus. Ceci peut venir du fait que Couture *et al.* effectue ses mesures à 120 °C. Le coefficient de déplacement collisionnel des transitions optiques est provoqué par les collisions des atomes alcalins avec les atomes de gaz tampon. À ces températures élevées, l'agitation thermique des atomes favorise ces collisions mais peut également favoriser les collisions entre atomes alcalins et la formation de molécules de van der Waals Cs-He, pouvant introduire des déplacements supplémentaires.

Concernant le coefficient de Pitz *et al.* ramené à la température de mesure de Bernabeu *et al.* ($\kappa_{He,22}^B = 6,61 \pm 1,00$ MHz/Torr), nous trouvons $\kappa_{He,22}^P = 4,50 \pm 0,05$ MHz/Torr, ce qui ne correspond pas non plus. Toutefois il est important de noter que le coefficient de Bernabeu *et al.*

est lui-même très éloigné des autres coefficients. D'après Pitz *et al.*, cette mesure a une incertitude d'environ 20%, celle-ci datant d'avant 1990 [116].

Néanmoins, la correspondance entre le coefficient de Pitz *et al.* et le coefficient d'Andalkar et Warrington montre que notre valeur de la dépendance thermique de l'hélium est correcte.

4.3.2/ ÉLARGISSEMENT DES TRANSITIONS OPTIQUES

De manière similaire au déplacement collisionnel, la dépendance thermique de l'élargissement collisionnel des transitions optiques peut se mettre sous la forme [125] :

$$\frac{\Delta \nu_{L,m}}{\Delta \nu_{L,r}} = \left(\frac{T_m}{T_r}\right)^p \tag{4.17}$$

où $\Delta v_{L,m}$ et $\Delta v_{L,r}$ sont les élargissements collisionnels aux températures T_m et T_r et p est le coefficient de dépendance thermique. En utilisant la loi des gaz parfaits, cette dernière équation peut se mettre sous la même forme que (4.16) :

$$\frac{\xi_m^{opt}}{\xi_r^{opt}} = \left(\frac{T_m}{T_r}\right)^{p-1} \tag{4.18}$$

où ξ_m^{opt} et ξ_r^{opt} sont les coefficients d'élargissement collisionnel des transitions optiques aux températures T_m et T_r .

Bien que la détermination de l'élargissement collisionnel soit sujette à plus d'incertitude que la mesure du déplacement, il nous a semblé intéressant d'étudier la dépendance thermique de l'élargissement de manière à compléter cette étude.

PRINCIPE DE LA MESURE

La mesure de l'élargissement se fait en même temps que la mesure de déplacement. Les creux d'absorption sont ajustés avec une somme de profil de Voigt dont la largeur Gaussienne est fixée par la température (voir équation (4.10)). La largeur Lorentzienne, correspondant à l'élargissement collisionnel, est obtenue en utilisant l'équation (4.12) après avoir déduit la largeur naturelle de la raie D_1 du césium (~4,56 MHz) et la largeur spectrale du laser (~1 MHz) et en supposant que les phénomènes d'élargissement par saturation optique sont négligeables. Nous traçons le logarithme d'élargissement en fonction du logarithme de la température. D'après l'équation (4.17), la pente de la droite obtenue nous donne la valeur du coefficient p.

Résultats

Kielkopf prédit théoriquement une valeur $p_{He}^{K} = 0,43$ pour l'hélium et $p_{Xe}^{K} = 0,32$ pour le xénon [125].

Comme pour le déplacement collisionnel, la dépendance thermique de l'élargissement collisionnel serait plus fiable pour les gaz lourds à cause des interactions attractives dominantes entre les atomes. p tendrait lui aussi vers une valeur de 0,3. Couture *et al.*, en utilisant les mesures de Andalkar et Warrington [115], trouve pour l'hélium $p_{He}^{C} = 0,92 \pm 0,12$ pour la raie D_1 et $p_{He}^{C} = 0,3 \pm 0,2$ pour la raie D_2 [114].

Pitz *et al.* suppose que la section efficace de collision est indépendante de la vitesse des atomes [116]. Dans ce cas, le coefficient p tendrait vers une valeur de 0,5, quelque soit le gaz.

La figure 4.8 montre la dépendance thermique pour les gaz tampon hélium et xénon.



Figure 4.8 – Dépendance thermique de l'élargissement collisionnel des transitions optiques de la raie D_1 du césium pour les gaz tampon hélium et xénon. En noir : cellule Cs-He avec 28,3 ± 1,4 Torr à T_0 . En bleu : cellule Cs-Xe avec 35,0 ± 1,7Torr à T_0 .

Nous obtenons pour l'hélium une valeur de $p_{He} = 0,62 \pm 0,12$ et pour le xénon une valeur $p_{Xe} = 0,82 \pm 0,2$ pour la cellule en contenant 35,0 ± 1,7 Torr. La mesure de dépendance thermique dans la cellule contenant 17,0 ± 1,0 Torr n'a pas pu être définie clairement à cause d'une dispersion trop importante des mesures. Ici encore, notre valeur pour un gaz lourd est supérieur à celle prédite par Kielkopf mais notre valeur pour un gaz léger est supérieure à la valeur prédite.

Kozlova *et al.* ont mesuré une valeur de dépendance thermique de l'élargissement optique pour un gaz léger, le néon, supérieure à celle prédite par Kielkopf, tout comme celle d'un gaz lourd, l'argon [101]. Encore une fois, nos valeurs se comportent comme celles mesurées par Kozlova *et al.*.

Si nous ramenons le coefficient d'élargissement collisionnel de l'hélium de Pitz *et al.* $(\xi_{He,50}^{P} = 24, 13 \pm 0, 07 \text{ MHz/Torr})$ à la température du coefficient d'Andalkar et Warrington $(\xi_{He,21}^{A} = 26, 21 \pm 0, 31 \text{ MHz/Torr})$, nous obtenons $\xi_{He,21}^{P} = 25, 0 \pm 0, 2 \text{ MHz/Torr}$. Ces coefficients sont du même ordre de grandeur et leur sens de variation est le même, la valeur du coefficient augmente en diminuant la température. Mais Couture *et al.* trouve un coefficient plus élevé pour une température plus forte, et Bernabeu *et al.* trouve un coefficient plus faible pour une température plus basse.

Autrement dit, le peu de données existantes sont trop disparates, ce qui rend le positionnement de notre résultat très délicat. Néanmoins, la bonne concordance entre les valeurs de Pitz *et al.* et Andalkar et Warrington est rassurante.

Concernant le xénon, le positionnement de nos résultats est rendu encore plus difficile, les données existantes étant encore plus rares.

Kielkopf ne différencie pas les raies D_1 et D_2 du césium alors que leur répartition énergétique (et donc le potentiel atomique) est différente.

Pitz *et al.* considère le coefficient *p* identique quelque soit le gaz tampon alors que le potentiel est différent suivant le gaz tampon. Ceci doit donc modifier la section efficace de collision et donc ce coefficient.

Une étude plus approfondie est nécessaire pour déterminer de manière plus précise et moins ambiguë les coefficients de dépendance thermique.

4.4/ Résumé

En conclusion de ce chapitre, nous dressons un résumé des résultats de mesure de pression via l'élargissement et le déplacement collisionnel ainsi que les résultats de mesure de dépendance thermique, dans le tableau 4.5. La valeur de la pression d'hélium donnée ici est celle mesurée pour cette étude.

Cellules	P ₀ demandée (Torr)	P ₀ mesurée (déplacement) (Torr)	Dépendance thermique n	P ₀ mesurée (élargissement) (Torr)	Dépendance thermique <i>p</i>
Cs-He	$46, 2 \pm 0, 3$	28,3 ± 1,4	$0,34 \pm 0,17$	31, 1 ± 2, 2	$0,62 \pm 0,12$
Cs-Xe	$46, 2 \pm 0, 3$	35,0±1,7	$0,64 \pm 0,17$	36, 8 ± 1, 8	$0,82 \pm 0,2$
Cs-Xe	$27,7 \pm 0,3$	17,9 ± 1,0	$0,63 \pm 0,07$	18, 1 ± 1, 1	_

Tableau 4.5 – *Résumé des valeurs de pression de gaz tampon dans nos trois cellules via la mesure du déplacement et de l'élargissement collisionnels des transitions optiques, ainsi que les valeurs des coefficients de dépendance thermique du déplacement et de l'élargissement collisionnels pour les gaz tampon hélium et xénon. Les pressions sont ramenées à la température de référence T*₀ = 273 *K*.

La valeur de la pression de gaz tampon étant connue précisément, nous allons mesurer la valeur des coefficients de déplacement collisionnel de la transition d'horloge du césium. Ces coefficients sont indispensables pour déterminer la valeur de la température d'inversion du déplacement collisionnel en ajustant le ratio du mélange de gaz tampon.

Etude du déplacement collisionnel césium-gaz tampon

Ce chapitre traite d'un point clé pour la réalisation de micro-horloges atomiques à cellule travaillant à haute température. En effet, la connaissance du déplacement de fréquence provoqué par l'introduction du gaz ou du mélange de gaz tampon permet d'ajuster la pression et / ou le ratio de gaz pour obtenir la valeur du déplacement et/ou la température d'inversion où la variation de la fréquence d'horloge est insensible au premier ordre à la température.

Nous étudions le déplacement collisionnel de la transition d'horloge du césium en fonction de la température de la cellule pour en déduire la valeur des coefficients de déplacement collisionnel des gaz tampon hélium et xénon.

Nous reportons également une étude spectroscopique du pic de transmission CPT.

«Le contraire d'une vérité banale, c'est une erreur stupide. Le contraire d'une vérité profonde, c'est une autre vérité profonde.» Niels Bohr

5.1/ Déplacements de la fréquence d'horloge

La fréquence d'horloge que nous mesurons en sortie de l'horloge est déplacée par rapport à la fréquence d'horloge non perturbée du césium. Ces déplacements proviennent notamment de la présence du champ magnétique statique indispensable à la levée de la dégénérescence Zeeman, de la présence du champ laser nécessaire à l'effet CPT et de la présence du gaz tampon. Ainsi la fréquence mesurée v de la transition d'horloge $|F = 3, m_F = 0\rangle \rightarrow |F = 4, m_F = 0\rangle$ peut

$$v = v_0 + \Delta v_Z + \Delta v_{LS} + \Delta v_{bg} \tag{5.1}$$

où v_0 est la fréquence d'horloge non perturbée, Δv_Z est le déplacement Zeeman, Δv_{LS} est le déplacement lumineux et Δv_{bg} est le déplacement collisionnel. C'est ce déplacement qui nous intéresse plus spécifiquement dans cette étude.

5.1.1/ Déplacement Zeeman

être décrite par :

Les sous-niveaux de l'état fondamental de l'atome de césium $|F = 3\rangle$ et $|F = 4\rangle$ sont constitués respectivement de 7 et 9 sous-niveaux Zeeman. L'annexe B donne plus de détails sur la répartition énergétique de l'atome de césium.

À champ magnétique nul, ces sous-niveaux Zeeman sont tous confondus. Pour lever cette dégénérescence il est nécessaire d'appliquer un champ magnétique statique. Les sous-niveaux Zeeman $m_F = 0$ utilisés pour la mesure métrologique de la fréquence d'horloge sont insensibles au premier ordre au champ magnétique. Néanmoins, la transition d'horloge métrologique $|F = 3, m_F = 0\rangle$ et $|F = 4, m_F = 0\rangle$ se déplace de 427,45 Hz/G² au deuxième ordre [120].

5.1.2/ Déplacement lumineux

Le déplacement lumineux (*light shift* ou encore *AC-Stark shift*) provient du déplacement des niveaux de transition d'horloge dû à l'interaction du moment atomique dipolaire avec le champ électromagnétique rayonnant. Le déplacement lumineux peut être approximé par une Lorentzienne dispersive qui est fonction de la fréquence du champ optique et de son intensité.

Dans le cas d'un système atomique simplifié à trois niveaux (voir figure 5.1), le déplacement lumineux causé par chaque champ lumineux monochromatique peut être décrit comme [126] :

$$\Delta v_{LS,1}(v_{L,1}, I_1) = \frac{1}{4} |\Omega_1|^2 \frac{(v_{L,1} - v_{|1\rangle})}{(v_{L,1} - v_{|1\rangle})^2 + (\Gamma^*/2)^2}$$

$$\Delta v_{LS,2}(v_{L,2}, I_2) = \frac{1}{4} |\Omega_2|^2 \frac{(v_{L,2} - v_{|2\rangle})}{(v_{L,2} - v_{|2\rangle})^2 + (\Gamma^*/2)^2}$$
(5.2)

où Ω_1 et Ω_2 sont les fréquences de Rabi des champs optiques 1 et 2 (les fréquences de Rabi sont proportionnelles à l'intensité laser), $\nu_{|1\rangle}$ et $\nu_{|2\rangle}$ sont les fréquences des transitions atomiques des niveaux $|1\rangle \rightarrow |3\rangle$ et $|2\rangle \rightarrow |3\rangle$, $\Gamma^* = \Gamma_{31} + \Gamma_{32}$ est le taux de relaxation de l'état excité, $\nu_{L,1}$ et $\nu_{L,2}$ sont les fréquences des champs optiques 1 et 2. $\Delta \nu_{0,i} = (\nu_{L,i} - \nu_{|i\rangle})$ est le désaccord optique entre le champ laser *i* et la fréquence de transition du niveau $|i\rangle \rightarrow |3\rangle$.

Le déplacement lumineux dépend donc de l'intensité optique de chaque champ laser. Il est linéaire avec l'intensité et dépend également du déséquilibre des fréquences de Rabi.



Figure 5.1 – Système atomique Λ à trois niveaux. E_1 , E_2 et E_3 sont les énergies des niveaux $|1\rangle$, $|2\rangle$ et $|3\rangle$. ω_1 et ω_2 sont les pulsations du champ laser bi-chromatique, Ω_1 et Ω_2 sont les fréquences de Rabi. ω_{HFS} est l'écart entre les niveaux $|1\rangle$ et $|2\rangle$. δ_{ω} est le désaccord de la différence des fréquences ($\omega_1 - \omega_2$) de l'écart ω_{HFS} . Δ_0 est le désaccord optique. Le taux de relaxation de l'état excité est $\Gamma^* = \Gamma_{31} + \Gamma_{32}$.

Ainsi, le déplacement lumineux de la transition atomique micro-onde d'horloge est la différence des déplacements lumineux des deux niveaux impliqués :

$$\Delta \nu_{LS}(\nu_L, I) = \Delta \nu_{LS,2}(\nu_{L,1}, I_1) - \Delta \nu_{LS,1}(\nu_{L,2}, I_2)$$
(5.3)

Dans le cas d'un spectre polychromatique, comme celui issu de la modulation d'une diode laser, le déplacement lumineux total est obtenu en sommant la contribution de chacune des raies de fréquence $v_{L,i}$ avec leurs intensités respectives I_i tel que :

$$\Delta v_{LS}(v_L, I) = \sum_{j} \left[\Delta v_{LS,2}(v_{L,j}, I_j) - \Delta v_{LS,1}(v_{L,j}, I_j) \right]$$
(5.4)

Ce modèle de déplacement lumineux, basé sur celui développé par J. Vanier à partir d'un calcul de perturbation pour l'état stationnaire, ne rend pas compte de tous les effets associés au déplacement lumineux. En effet, bien que la partie linéaire du déplacement lumineux en fonction du désaccord optique Δ_0 est annulée pour des intensités lasers égales, une dépendance thermique reste inexpliquée [69]. De plus, une dissymétrie de la raie CPT apparaît avec l'augmentation du désaccord optique, sans toutefois déplacer le maximum de la résonance CPT [65].

M. Zhu et L.S. Cutler ont fait la remarque que la description du déplacement lumineux devait prendre en compte la cohérence hyperfine, qui peut changer complètement la forme et la grandeur du déplacement [127]. T. Zanon a proposé une expression analytique dans laquelle apparaît la relaxation de la cohérence hyperfine [128]. Ainsi, ce déplacement ne serait pas seulement dû au déplacement des niveaux d'énergie mais également au déplacement du minimum de fluorescence (ou maximum de transmission). Ce modèle devient très compliqué et nous ne présentons ici qu'un aperçu simplifié dans le cas d'un atome alcalin [31] :

$$\Delta v_{LS max} \sim \Delta_0 \frac{\gamma_2}{2\gamma_{opt}} \cdot \frac{2\gamma_2 \Gamma^* S - (\Omega_1^2 - \Omega_2^2)}{2\gamma_{opt} \gamma^* + \Gamma \gamma_2 S}$$
(5.5)

où Ω_1 et Ω_2 sont les fréquences de Rabi, $\Gamma^* = \Gamma_{31} + \Gamma_{32}$ est le taux de relaxation du niveau excité, γ_2 est le taux de relaxation de la cohérence hyperfine, γ_{opt} est le taux de relaxation de la cohérence optique (ici le taux de relaxation vers les deux états $|1\rangle$ et $|2\rangle$ est supposé être le même, soit $\gamma_{opt} = \gamma_{opt 31} = \gamma_{opt 32}$), $\gamma^* = \frac{\Omega_1^2 + \Omega_2^2}{4\gamma_{opt}}$ est un élargissement de la puissance et $S = \frac{\Omega_1^2 \Omega_2^2}{\gamma_{opt} \Gamma(\Omega_1^2 + \Omega_2^2)}$ est le paramètre de saturation.

Cette expression donne bien un déplacement nul dans le cas dans un état noir pur ($\gamma_2 = 0$), c'est-à-dire complètement découplé de la lumière. Le déplacement est linéaire en fonction du désaccord optique. De plus, dans le cas où les deux puissances sont égales ($\Omega_1^2 = \Omega_2^2$), le déplacement lumineux varie faiblement en fonction de l'intensité totale.

La modélisation théorique du déplacement lumineux est très compliquée en raison du nombre de niveaux atomiques impliqués dans la structure énergétique de l'atome. En effet, chaque raie de chaque champ laser, en plus de perturber son niveau associé, vient perturber les autres niveaux. Les expressions présentées ici sont valables pour les cas les plus simples. De plus, les résultats observés sont grandement dépendants des conditions expérimentales et des caractéristiques de la diode laser utilisée.

Avec des diodes lasers modulées, il est possible de trouver des points de fonctionnement particuliers où le déplacement lumineux est annulé par ajustement de la puissance RF de modulation [129], de la température de la cellule [130] ou de la fréquence laser. Des techniques de réduction de bruit avancées permettent alors de faire opérer l'horloge en permanence dans des conditions où le déplacement lumineux en intensité est soit annulé, soit fortement réduit [79, 131]. La mise en place de ces techniques est bien souvent indispensable pour obtenir de bonnes performances de stabilité de fréquence moyen et long-terme sur des horloges atomiques CPT miniatures. Il est également important de noter que de nombreux travaux ont été réalisés par Kozlova *et al.* mettant en évidence d'autres "types" de déplacements lumineux provenant, par exemple, de la dissymétrie entre les bandes latérales optiques générant l'état CPT [31].

Néanmoins, malgré un modèle théorique très complexe, le déplacement lumineux peut être exprimé localement, à une fréquence laser v_L et une intensité laser *I* fixées), par un coefficient en intensité α_i , traduisant une variation de fréquence de l'horloge en fonction d'une variation d'intensité laser, et un coefficient en fréquence β_i , traduisant une variation de fréquence en fonction d'une variation de fréquence laser. Ces coefficients s'expriment comme [130] :

$$\alpha_{i}(v_{L}, I) = \frac{\Delta v_{LS}}{\Delta I}$$

$$\beta_{i}(v_{L}, I) = \frac{\Delta v_{LS}}{\Delta v_{L}}$$
(5.6)

Nous voyons ainsi que le déplacement lumineux se comporte linéairement avec les variations d'intensité et de fréquence laser. Ce comportement a été observé expérimentalement pour les très faibles intensités laser de l'ordre de quelques centaines de μ W/cm² [112, 132].

5.2/ Déplacement collisionnel de fréquence hyperfine

La fréquence d'horloge est perturbée par la présence du gaz tampon; celui-ci, en plus de déplacer et d'élargir les transitions optiques (de l'ordre de quelques unités à quelques dizaines

de MHz/Torr), déplace également la transition d'horloge [133]. En effet, durant la collision d'un atome alcalin avec un atome de gaz tampon, le nuage électronique de ce dernier perturbe les niveaux énergétiques de l'électron de valence de l'atome alcalin, déplaçant les niveaux des transitions hyperfines. Le déplacement de fréquence résulte de la compétition entre deux forces atomiques [21].

Tout d'abord, la force de van der Waals a tendance à attirer l'électron de valence de l'atome alcalin vers l'atome de gaz tampon, réduisant ainsi l'interaction hyperfine. Lorsque l'atome alcalin se rapproche de l'atome de gaz tampon, les nuages électroniques se recouvrent et les forces d'exclusion repoussent l'électron de valence vers le noyau de l'atome alcalin : ceci augmente l'interaction hyperfine. Cette compétition des forces est responsable de la valeur positive ou négative des déplacements de fréquence. Plusieurs paramètres sont à prendre en compte pour déterminer quelle force sera dominante, comme par exemple la température, la nature du gaz tampon, la densité atomique, etc.

Les mesures expérimentales ont révélé que la présence d'un gaz tampon léger, comme l'hélium, le néon ou le diazote, produit un déplacement de fréquence positif puisque les forces d'exclusion de Pauli sont dominantes, alors que la présence d'un gaz tampon lourd, comme l'argon, le krypton ou le xénon, produit un déplacement de fréquence négatif, dû aux forces de van der Waals dominantes [133, 134].

5.2.1/ Cellules mono-gaz

Le déplacement collisionnel de fréquence hyperfine est de l'ordre de quelques centaines de Hz/Torr et sa variation avec la température atteint quelques Hz/(Torr.K). Il n'existe pas d'expression théorique exacte pour décrire ce déplacement, seules des approximations sont utilisées sur une certaine gamme de température et de pression.

Par, exemple, sur une plage de quelques centaines de Kelvin, Bean et Lambert utilisent un polynôme du cinquième ordre pour approximer la dépendance en température [135]. Dorenburg *et al.*, quant à eux, utilisent un polynôme du second ordre pour la pression et du premier ordre pour la température [136]. De plus, il a été montré que dans le cas de gaz tampon lourds, comme l'argon, le krypton et le xénon, les collisions à trois corps pouvaient créer des molécules transitoires, dites molécules de van der Waals, conduisant à l'apparition d'un terme non-linéaire supplémentaire [137, 138].

Pour les applications aux horloges atomiques, à savoir une plage de pression de quelques dizaines de Torr et une plage de températures de quelques dizaines de Kelvin, il est courant d'approximer le déplacement collisionnel par un polynôme du second ordre pour la température et du premier ordre pour la pression [21, 139].

Ainsi, dans le cas d'un gaz tampon ne contenant qu'une seule espèce atomique, et en tenant compte de la dépendance quadratique en pression [136] et du déplacement non-linéaire provoqué par les molécules de van der Waals [137, 138], le déplacement collisionnel de fréquence hyperfine peut s'écrire :

$$\Delta v_{bg}(T) = P_0 \left| \beta + \delta (T - T_0) + \gamma (T - T_0)^2 \right| + \Delta^2 \nu + b \cdot P_0^2$$
(5.7)

où *T* est la température de la cellule, P_0 est la pression de gaz tampon à la température de référence $T_0 = 273$ K, β est le coefficient linéaire en pression (en Hz/Torr), δ est le coefficient linéaire en température (en Hz/(Torr/K)), γ est le coefficient quadratique en température (en Hz/(Torr.K)²), $\Delta^2 \nu$ est le déplacement non-linéaire provoqué par les molécules de van der Waals (en Hz) et le terme *b* est le terme quadratique en pression (en Hz/Torr²).

Pour les gaz tampon présentant un coefficient quadratique en température γ élevée, il est possible d'annuler la dépendance thermique du déplacement de la fréquence d'horloge à une température donnée. La température d'inversion T_{inv} s'exprime comme :

$$T_{inv} - T_0 = -\frac{\delta}{2\gamma} \tag{5.8}$$

Cette température d'inversion a la particularité d'être indépendante de la pression de gaz tampon et reste spécifique à chaque espèce de gaz tampon.

5.2.2/ Cellules à mélange de gaz

Il est possible d'obtenir une température d'inversion à l'aide de deux gaz tampon ayant des dépendances thermiques opposées. Lorsque plusieurs espèces de gaz tampon sont en mélange, il est nécessaire de tenir compte de leur ratio dans la détermination du déplacement collisionnel de la fréquence d'horloge et de la température d'inversion.

Dans ce cas le déplacement collisionnel de la fréquence d'horloge devient :

$$\Delta v_{bg}(T) = P_{1,0} \left[(\beta_1 + r \beta_2) + (\delta_1 + r \delta_2)(T - T_0) + (\gamma_1 + r \gamma_2)(T - T_0)^2 \right] + \Delta^2 v_1 + \Delta^2 v_2 + b_1 \cdot (P_{1,0})^2 + b_2 \cdot (r P_{1,0})^2$$
(5.9)

où $r = P_{2,0}/P_{1,0}$ est le ratio des pressions partielles $P_{1,0}$ et $P_{2,0}$ des deux gaz à la température de référence T_0 .

La température d'inversion s'exprime comme :

$$T_{inv} - T_0 = -\frac{\delta_1 + r \,\delta_2}{2(\gamma_1 + r \,\gamma_2)} \tag{5.10}$$

Il est également possible d'établir le mélange de gaz tampon en fonction de la température d'inversion souhaitée. Ce ratio se calcule comme :

$$r(P_{2,0}/P_{1,0}) = -\frac{\delta_1 + 2\gamma_1(T_{inv} - T_0)}{\delta_2 + 2\gamma_2(T_{inv} - T_0)}$$
(5.11)

5.3/ CHOIX DES GAZ TAMPON

Comme nous l'avons vu dans l'équation (5.7), le déplacement collisionnel de la fréquence d'horloge est décrit, de manière phénoménologique, par un polynôme du second ordre en température. L'extremum de cette parabole (en l'occurrence un maximum) nous permet d'obtenir une température, dite d'inversion, où la fréquence d'horloge devient insensible au premier ordre aux variations de température.

Grâce à la mesure des coefficients de déplacement collisionnel, Kozlova *et al.* ont prédit une température d'inversion pour le néon à 79 ± 3 °C et pour le diazote à 164 ± 13 °C [31]. À l'heure actuelle, seule la température d'inversion du néon autour de 80 °C a été observée [100, 140]. Dans le cas du diazote, la température d'inversion est très élevée et la cellule devient optiquement opaque, rendant sa mesure impossible. Pour l'argon, Kozlova *et al.* ont montré que le déplacement collisionnel de fréquence est linéaire.

Un mélange classiquement utilisé est le diazote-argon, autorisant une vaste plage de températures

d'inversion en modifiant le rapport des pressions partielles des deux gaz. Mais notre procédé de fabrication des micro-cellules nous interdit d'utiliser le diazote comme gaz tampon car celui-ci est absorbé par le composé zirconium présent dans le dispenser à césium [141].

En 1961, Arditi et Carver ont étudié le déplacement collisionnel provoqué par l'hélium sur le césium et ont trouvé $\beta_{He}^{A} = 1200$ Hz/Torr et $\delta_{He}^{A} = -1,44$ Hz/(Torr.K), le coefficient γ n'ayant pas été mesuré [142].

En 1979, Dorenburg *et al.* ont obtenu pour ces mêmes coefficients $\beta_{He}^D = 1231 \pm 6$ Hz/Torr et $\delta_{He}^D = 1,27 \pm 0,07$ Hz/(Torr.K) [136], prédisant ainsi un comportement totalement différent. L'hélium pourrait donc convenir à un mélange avec du néon.

Les mesures réalisées par Beverini et Strumia en 1981 vont dans ce sens. Ils ont obtenu $\beta_{He}^{B} = 1185 \pm 46$ Hz/Torr et $\delta_{He}^{B} = 1,49 \pm 0,15$ Hz/(Torr.K) [143]. La figure 5.2 montre la courbe de déplacement collisionnel de fréquence pour un mélange Ne-He en utilisant les coefficients de Beverini et Strumia pour l'hélium [143] et ceux de Kozlova *et al.* pour le néon [101]. Nous obtiendrions une température d'inversion à 101 °C pour une cellule contenant 10 Torr de néon et 0,5 Torr d'hélium (soit un mélange à 5% d'hélium).



Figure 5.2 – Déplacement collisionnel attendu de la fréquence d'horloge du césium en fonction de la température pour un mélange de gaz tampon à base de 95% de néon et 5% d'hélium. Les coefficients de déplacement collisionnel de l'hélium sont tirés de [142] et ceux du néon sont tirés de [101]. La température d'inversion se situe à 101 °C.

Concernant le xénon, Arditi et Carver ont trouvé $\beta_{Xe}^A = -2350$ Hz/Torr et $\delta_{Xe}^A = +3, 68$ Hz/(Torr.K) [142]. Tout comme l'hélium, le xénon pourrait fonctionner en mélange avec du néon. La figure 5.3 montre la courbe de déplacement collisionnel de fréquence pour un mélange Ne-Xe en utilisant les coefficients de Arditi et Carver pour le xénon [142] et ceux de Kozlova *et al.* pour le néon [101]. Nous obtiendrions une température d'inversion à 101 °C pour une cellule contenant 10 Torr de néon et 0,2 Torr de xénon (soit un mélange à 2% de xénon).

Si nous comparons les valeurs mesurées par Arditi et Carver pour le diazote et l'argon aux mesures réalisées par Kozlova *et al.* sur ces mêmes gaz, nous remarquons que le coefficient δ de Arditi et Carver est très éloigné de celui mesuré par Kozlova *et al.* Nous pouvons donc émettre un doute sur la validité du coefficient δ_{Xe}^A mesuré par Arditi et Carver pour le xénon.

Ainsi, seule la mesure des coefficients de déplacement collisionnel permettra de savoir si le xénon est un gaz tampon qui autorise une température d'inversion supérieure à 80 °C.

De plus, le xénon se trouve au coeur de différentes études menées par Happer et al. sur la forma-



Figure 5.3 – Déplacement collisionnel attendu de la fréquence d'horloge du césium en fonction de la température pour un mélange de gaz tampon à base de 98% de néon et 2% de xénon. Les coefficients de déplacement collisionnel du xénon sont tirés de [142] et ceux du néon sont tirés de [101]. La température d'inversion se situe à 101 °C.

tion de molécules de van der Waals [137, 138]. Ce gaz présente donc un intérêt scientifique certain.

Cog tompon	β	δ	γ	Référence
Gaz tampon	(Hz/Torr)	(Hz/(Torr.K))	(mHz/(Torr.K) ²)	/ Année
	1200	-1,44	-	[142] / 1961
Hálium	1231 ± 6	$1,27\pm0,07$	-	[136] / 1979
<u>Henum</u>	1185 ± 46	$1,49\pm0,15$	-	[143] / 1981
	1141,9	-	-	[138] / 2011
	652 ± 20	$0, 14 \pm 0, 10$	-	[143] / 1981
Néon	-579,9	-	-	[138] / 2011
	686 ± 14	$0,266 \pm 0,006$	$-1,68 \pm 0,05$	[101] / 2011
Argon	-212	-0,435	-	[142] / 1961
	-194,3	-	-	[137] / 2008
	$-194, 4 \pm 1, 6$	$-1,138 \pm 0,010$	$0, 0 \pm 0, 3$	[101] / 2011
Xénon	-2350	+3,68	-	[142] / 1961
	820	-0,74	-	[142] / 1961
Diazote	$924, 7 \pm 7$	$0,623 \pm 0,050$	-	[143] / 1981
	$922, 5 \pm 4, 8$	$0,824 \pm 0,006$	$-2,51 \pm 0,03$	[101] / 2011

Le tableau 5.1 donne un résumé des valeurs des coefficients de déplacement collisionnel pour différents gaz tampon.

Tableau 5.1 – Résumé des valeurs des coefficients de déplacement collisionnel de la fréquence d'horloge du césium pour différents gaz tampon référencés dans la littérature. Les valeurs de [136], initialement référencée à T = 80 °C, sont ramenées à $T_0 = 0$ °C.

5.4/ Principe de mesure

L'équation (5.1) nous montre que la fréquence d'horloge que l'on mesure est décalée par la présence du champ magnétique statique. Pour corriger la fréquence d'horloge du déplacement Zeeman, il faut calculer la valeur de ce déplacement. Notre bobine produit un champ magnétique $B_Z = 25,2 \pm 0,4$ mG/mA. Nous injectons typiquement un courant $I_B = 10$ mA dans la bobine, produisant un champ magnétique $B = 252 \pm 4$ mG. Le déplacement Zeeman de la transition d'horloge produit par ce champ magnétique vaut $\Delta v_Z = 27,1 \pm 0,9$ Hz.

Pour obtenir la valeur du déplacement collisionnel de la fréquence d'horloge provoqué par le gaz tampon, il faut également corriger la fréquence mesurée du déplacement induit par le champ lumineux. Cette correction est un peu plus compliquée à effectuer que la correction Zeeman. Pour des intensités lumineuses de l'ordre de quelques centaines de μ W/cm², l'équation (5.6) montre que le déplacement lumineux augmente linéairement avec l'intensité lumineuse. Ainsi pour une température de cellule fixée, nous mesurons la fréquence d'horloge pour plusieurs valeurs de puissance lumineuse. Une extrapolation des résultats à champ lumineux nul nous permet d'obtenir la valeur du déplacement de fréquence provoqué seulement par le gaz tampon. Nous répétons ce procédé de mesures pour chaque température. La figure 5.4 montre un exemple de mesure de déplacement lumineux dans la cellule Cs-N₂.



Figure 5.4 – Déplacement lumineux de la fréquence d'horloge du césium en fonction de la puissance optique dans la cellule Cs-N₂ à une température de 42 °C. Les incertitudes sont comprises dans les points de mesure. Nous obtenons, par extrapolation, une valeur de déplacement collisionnel à puissance optique nulle $\Delta v_{bg} = 20909 \pm 3$ Hz.

Le banc de mesure utilisé est celui présenté dans le chapitre 3. La température de la cellule est mesurée par des thermistances CTN *Betatherm* 10K3A1B amagnétiques ayant une exactitude de 0,2 °C. La température de la cellule est régulée autour du mK. Entre chaque point de mesure en température, nous attendons quelques heures pour que celle-ci soit bien stabilisée. De plus, pour éviter un quelconque biais lié à la stabilisation en température, une partie des points est prise en augmentant la température et l'autre partie est prise en la diminuant.

Le faisceau recouvre la surface traitée anti-reflet de la cellule, soit un diamètre de 19 mm. À l'aide d'une lame demi-onde et d'un cube polariseur, nous faisons varier la puissance lumineuse en entrée de la cellule sur une plage de 100 à 1000 μ W. Nous avons également vérifié qu'il n'y avait

pas de biais en prenant les points de mesure en augmentant la puissance optique ou en la diminuant. Une lame quart-d'onde est utilisée pour générer une polarisation circulaire et peupler les sous-niveaux Zeeman suivant le schéma représenté figure 2.6.

La puissance RF du signal délivré par l'oscillateur local est ajustée pour obtenir un contraste CPT maximal (voir section 5.6). La fréquence RF de l'oscillateur local est balayée à hauteur de quelques Hz pour visualiser la résonance CPT. Le signal de transmission CPT issu de la photodiode *PD*₁ est utilisé dans une détection synchrone *Stanford Research Systems* SR800 qui, par un procédé de modulation-démodulation de la fréquence RF envoyée sur la modulateur électro-optique, permet de produire un signal d'erreur image du désaccord de fréquence entre les deux bandes latérales de modulation et la fréquence de résonance CPT. Dans ces conditions, lorsque le signal d'erreur est à zéro nous sommes à la résonance CPT et nous pouvons directement lire la valeur de la fréquence d'horloge correspondante. L'incertitude sur la fréquence d'horloge mesurée est de l'ordre de quelques Hz.

5.5/ Résultats de la mesure de déplacement collisionnel

Les résultats présentés ici montrent la valeur du déplacement collisionnel de fréquence Δv_{bg} corrigée du déplacement Zeeman Δv_Z et du déplacement lumineux Δv_{LS} tel que :

$$\Delta v_{bg} = v - v_0 - \Delta v_Z - \Delta v_{LS} \tag{5.12}$$

avec v_0 la fréquence d'horloge non perturbée.

5.5.1/ Diazote

Cette cellule, fournie et caractérisée par le LNE-SYRTE, nous sert de cellule de référence pour assurer la validité de nos résultats. Nous avons mesuré une pression $P_{0,N_2} = 22,3 \pm 0,3$ Torr à la température de référence $T_0 = 273$ K. Les valeurs des coefficients de déplacement collisionnel mesurés par Kozlova *et al.* sont présentées dans le tableau 5.1.

Pour la mesure du déplacement collisionnel de fréquence, nous ne tenons pas compte des termes supplémentaires de l'équation 5.7. En effet, le terme $\Delta^2 v_{N_2}$ est nul [137] et le coefficient b_{N_2} est inconnu. Ce terme devenant significatif pour les hautes pressions de gaz tampon, il est probablement négligeable dans notre cas où la pression de gaz tampon est relativement faible.

La figure 5.5 montre la courbe de déplacement collisionnel de fréquence obtenue pour le gaz tampon diazote.

Nous obtenons les coefficients $\beta_{N_2} = 907 \pm 12 \text{ Hz/Torr}$, $\delta_{N_2} = 0.82 \pm 0.011 \text{ Hz/(Torr.K)}$ et $\gamma_{N_2} = -2.11 \pm 0.03 \text{ mHz/(Torr.K^2)}$. Nos coefficients β et δ sont dans les intervalles d'incertitudes des valeurs mesurées par Kozlova *et al.* mais notre coefficient γ se retrouve un peu éloigné. Ceci est probablement dû à un manque de points de mesure à haute température. En effet, les mesures de Kozlova *et al.* montaient à environ 63 °C. Au delà de 47 °C, notre signal CPT n'est plus exploitable, celui-ci étant de plus en plus atténué dans ces conditions. De plus, si nous regardons les valeurs du coefficient γ mesurées durant la thèse d'Olga Kozlova pour les différentes cellules contenant du diazote, nous notons une petite dispersion des valeurs allant de -2.25 à $-2.77 \text{ mHz/(Torr.K^2)}$, la valeur la plus basse mesurée étant $-2.20 \text{ mHz/(Torr.K^2)}$ en tenant compte des incertitudes.

Ainsi, notre valeur se rapproche de la limite basse des coefficients mesurés sans toutefois l'atteindre. Cela montre la difficulté pour mesurer précisément ce coefficient quadratique en



Figure 5.5 – Déplacement collisionnel de la fréquence d'horloge du césium en fonction de la température dans la cellule Cs-N₂ avec une pression de gaz tampon $P_{0,N_2} = 22,3 \pm 0,3$ Torr.

température.

En conclusion, notre banc possède la résolution nécessaire à la caractérisation des coefficients de déplacement collisionnel. Il est important de noter que nos mesures portent sur un nombre restreint de cellules (1 pour l'hélium et 2 pour le xénon). Ainsi, les valeurs données ci-après ne sont qu'une première estimation de ces coefficients. Pour affiner nos résultats et notamment diminuer les barres d'erreurs, il sera nécessaire de répéter ces mesures sur un plus grand nombre de cellules dans une future étude plus approfondie.

5.5.2/ Hélium

Nous avons vu dans la sous-section 4.2.2 que la cellule Cs-He souffre d'une fuite d'hélium qui passe au travers des parois de la cellule. Afin de limiter l'incertitude de mesure des coefficients de déplacement collisionnel liée à la fuite, une mesure de la pression d'hélium est effectuée au début et à la fin des mesures de déplacement de fréquence d'horloge. La pression mesurée à ce moment est $P_{0,He} = 25.4 \pm 1.4$ Torr.

La mesure de la fréquence d'horloge révèle de manière plus précise la fuite d'hélium. À une température de 28 °C, nous relevons une fuite provoquant une dérive de l'ordre de 1 Hz/h. À 45 °C, cette dérive est de l'ordre de 2 Hz/h. Les mesures de déplacement collisionnel s'étendant sur plusieurs jours, nous compensons cette dérive en mesurant la variation de fréquence d'horloge à une température fixée d'un jour à l'autre.

Dans le cas de l'hélium, nous ne tenons pas compte des termes supplémentaires dans l'équation 5.7. Le terme $\Delta^2 v_{He}$ est nul [137] et le coefficient b_{He} vaut 0,43 mHz/Torr² [136], ce qui rend le terme $b_{He} \cdot P_{0He}^2 = 0,28$ Hz négligeable.

La figure 5.6 montre le déplacement collisionnel, compensé de la dérive, en fonction de la température pour le gaz tampon hélium.

Nous obtenons les coefficients β_{He} = 1233 ± 32 Hz/Torr, δ_{He} = 2,01 ± 0,12 Hz/(Torr.K) et



Figure 5.6 – Déplacement collisionnel de la fréquence d'horloge du césium en fonction de la température dans la cellule Cs-He avec une pression de gaz tampon $P_{0,He} = 25.4 \pm 1.4$ Torr. Les incertitudes sont confondues avec les points de mesure.

 $\gamma_{He} = -7,51 \pm 0,44 \text{ mHz/(Torr.K}^2)$. Les incertitudes relativement élevées sur ces coefficients viennent principalement de l'incertitude sur la mesure de la pression interne d'hélium. Des mesures effectuées sur d'autres cellules à base d'hélium permettraient de diminuer l'erreur statistique.

Notre coefficient β_{He} est dans l'intervalle d'incertitude des coefficients répertoriés dans le tableau 5.1. Notre coefficient δ_{He} , quant à lui, est plus élevé que la valeur mesurée par Beverini et Strumia, et les intervalles d'incertitude ne se coupent pas. Néanmoins, il s'avère que les intervalles d'incertitude des coefficients mesurés par Kozlova *et al.* et Beverini et Strumia ne se croisent pas non plus pour les gaz tampon néon et diazote, révélant probablement un manque de précision dans la mesure de Beverini et Strumia.

Nous mesurons un coefficient quadratique en température élevé en comparaison des autres gaz tampon caractérisés par Kozlova *et al.*, ce qui autoriserait une température d'inversion $T_{inv} = 134 \pm 16$ °C. Comme pour le diazote, cette température d'inversion élevée n'est pas mesurable car le milieu atomique devient optiquement dense et la lumière transmise est quasi-nulle rendant la détection du pic CPT impossible.

Nos mesures révèlent qu'un mélange de gaz tampon néon et hélium permettrait d'atteindre des températures d'inversion supérieures à 80 °C. Des températures de l'ordre de 100 °C seraient atteintes avec un mélange à hauteur de 14% d'hélium et 86% de néon (voir équation (5.10)), pour des horloges atomiques compactes fonctionnant dans des environnements à contraintes environnementales sévères.

Malheureusement, une fuite d'hélium, à travers la paroi de la cellule, signifie une perte de pression d'hélium et donc une dérive du ratio des deux gaz tampon, entrainant de ce fait une dérive de la température d'inversion. Pour qu'un mélange de gaz tampon Ne-He soit viable, il faut absolument stabiliser l'atmosphère interne dans la cellule. Une solution possible est d'utiliser un autre matériau pour les parois de la cellule. Dans ce sens, un groupe de chercheurs du NIST a mesuré la perméabilité à l'hélium d'un verre aluminosilicate (ASG - *AluminoSilicate Glass*). Les premiers résultats montrent une perméabilité 100 fois plus basse que pour du Pyrex® porté à 90 °C [144].

5.5.3/ Xénon

Les signaux CPT mesurés dans les cellules remplies avec du xénon présentent un contraste très faible, de l'ordre de 0,1 à 0,3%, et la largeur CPT vaut typiquement une dizaine de kHz (voir la section suivante 5.6). Ceci rend les mesures de fréquence d'horloge très délicates et moins précises.

De plus, lorsque la fréquence laser est verrouillée sur la cellule de référence au césium pur, le signal CPT se trouve brouillé, le désaccord de fréquence se trouvant trop important. Pour pallier ce problème, le laser est verrouillé en fréquence sur la transition $|F = 4\rangle \rightarrow |F = 4'\rangle$ de la cellule césium-xénon.

Dans le cas du xénon, le coefficient b_{Xe} n'est pas connu. Les valeurs renseignées par Dorenburg *et al.* [136] pour l'hélium ($b_{He} = 0.43 \text{ mHz/Torr}^2$) et pour l'argon ($b_{Ar} = 1 \text{ mHz/Torr}^2$) montrent qu'a priori, plus le gaz est lourd, plus ce coefficient est important. Notre incertitude sur la mesure de la fréquence d'horloge est de l'ordre d'une dizaine de Hz. Pour une pression maximale de xénon de 35 Torr, il faudrait un coefficient de l'ordre de 10 mHz/Torr² pour venir influencer nos mesures. Ce coefficient étant inconnu dans la littérature, nous faisons le choix de le négliger.

Le terme $\Delta^2 v_{Xe}$, quant à lui, n'est pas négligeable. En effet, d'après le groupe de Happer *et al.* le xénon a tendance à former des molécules transitoires de van der Waals [138], tout comme l'argon et le krypton [137]. Une molécule de van der Waals est un complexe faiblement lié composé d'au moins deux atomes ou molécules liés par des forces de polarisation. Ces molécules se forment grâce à une collision à trois corps du type : Cs+Xe+Xe \longrightarrow CsXe+Xe. Elles sont ensuite détruites par une collision à deux corps avec un atome de xénon libre : CsXe + Xe \longrightarrow Cs + Xe + Xe. La durée de vie d'une molécule de van der Waals est typiquement $\tau = 1$ ns alors que la durée d'une collision à deux corps est de l'ordre de $\tau_{dc} = 1$ ps. L'effet de ces molécules transitoires sur la variation de la fréquence d'horloge peut donc devenir significatif. Pour un gaz tampon à basse pression, l'évolution de la densité de molécules de van der Waals M_{vdW} peut s'écrire comme [145] :

$$\frac{dM_{vdW}}{dt} = \frac{1}{T}[Cs] - \frac{1}{\tau}M_{vdW}$$
(5.13)

avec 1/T le taux de formation des molécules par atome alcalin, τ la durée de vie d'une molécule et [Cs] la densité d'atomes de césium.

En faisant apparaître les paramètres TP^2 et τP indépendants de la pression de gaz tampon P, l'équation (5.13) devient :

$$\frac{dM_{vdW}}{dt} = \frac{P^2}{TP^2}[Cs] - \frac{P}{\tau P}M_{vdW}$$
(5.14)

Nous voyons ainsi que le taux de formation des molécules de van der Waals est proportionnel à P^2 et le taux de destruction de ces molécules est proportionnel à *P*. L'équilibre satisfaisant à $dM_{vdW}/dt = 0$ se trouve pour :

$$M_{vdW} = \frac{(\tau P)P}{TP^2} [Cs]$$
(5.15)

Cet équilibre évolue linéairement avec la pression de gaz tampon.

Pour avoir un ordre de grandeur, Bouchiat *et al.* donnent les valeurs $TP^2 = 4,29 \pm 0,23$ ms.Torr² et $\tau P = 34 - 61$ ns.Torr dans le cas du xénon dans du rubidium. Nous trouvons ainsi le ratio entre les atomes de rubidium liés à un atome de xénon et les atomes de rubidium libres $[RbXe]/[Rb] \approx 1,1 \times 10^{-5} \times P$. Ainsi, à une pression de 1 Torr de xénon, ce ratio est d'environ

 10^{-5} et à une pression de 100 Torr, ce ratio passe à 10^{-3} . Le nombre de molécules de van der Waals est donc significatif et peut venir perturber les mesures de fréquence d'horloge. Cette perturbation liée à ces molécules présente une signature bien particulière car le déplacement de fréquence induit est non-linéaire en fonction de la pression de gaz tampon.

Gong *et al.* modélise ce déplacement non-linéaire $\Delta_0^2 v$ comme [137] :

$$\Delta_0^2 \nu = -\left(\frac{1}{2\pi T}\right) \frac{\phi^3}{1+\phi^2}$$
(5.16)

où T est le taux de formation des molécules et ϕ est un décalage de la phase de la cohérence atomique dû à la formation des molécules.

Ce modèle fonctionne bien pour l'argon ou le krypton mais dans le cas du xénon, un déplacement de fréquence résiduel apparaît. Ainsi, un nouveau modèle est proposé par McGuyer *et al.* qui tient compte des interactions spin-rotation dans le cas de molécules de van der Waals présentant un seul niveau de vibration [138] :

$$\Delta_1^2 \nu = -\left(\frac{1}{2\pi T}\right) \sum_{\sigma=-2I}^{2I} \frac{W_{\sigma}(1+r_1\sigma)^3 \phi^3}{1+(1+r_1\sigma)^2 \phi^2}$$
(5.17)

où r_1 est un paramètre sans dimension caractérisant la force des interactions spin-rotation des transitions hyperfines, W_{σ} est un coefficient pondérateur des transitions hyperfines tel que $[W_{-7}, ..., W_7] = [245, 245, 425, 425, 659, 659, 1231, 1231, 1231, 659, 659, 425, 425, 245, 245]/9009$ dans le cas du césium, et I = 7/2 est le spin nucléaire du césium.

Le tableau 5.2 résume les valeurs des paramètres $r_1\phi P$, TP^2 et ϕP intervenant dans les modèles $\Delta_0^2 \nu$ et $\Delta_1^2 \nu$ [138].

Modèle	$r_1 \phi P$	TP^2	ϕP
	(rad.Torr)	(s.Torr ²)	(rad.Torr)
$\Delta_0^2 \nu$	-	$0,059 \pm 0,006$	$-15,8 \pm 1,3$
$\Delta_1^2 \nu$	2,79	0,0185	-5,96

Tableau 5.2 – Résumé des valeurs des paramètres intervenants dans les modèles de déplacement non-linéaire de la fréquence d'horloge dû à la formation de molécules de van der Waals du césium en mélange avec du xénon à 35 °C et sous un champ magnétique $B_0 = 0,2$ G.

Cellule CsXe30T

Nous avons mesuré dans cette cellule une pression de xénon $P_{0,Xe30} = 17,9 \pm 1,0$ Torr. Nous obtenons une courbe de déplacement collisionnel de la fréquence d'horloge en fonction de la température très particulière. En effet, d'après l'équation (5.7), nous nous attendions à obtenir une courbe de type parabolique. Or, nous obtenons une courbe présentant un caractère cubique marqué. La figure 5.7 montre le déplacement collisionnel obtenu avec une température d'inversion à environ 37 °C.



Figure 5.7 – Déplacement collisionnel de la fréquence d'horloge du césium en fonction de la température dans la cellule CsXe30T avec une pression de gaz tampon $P_{0,Xe30} = 17,9 \pm 1,0$ Torr. La courbe verte est un ajustement cubique de la courbe de déplacement collisionnel. La droite noire est un ajustement sur la partie linéaire. Nous remarquons une température d'inversion à environ 37 °C.

Kozlova *et al.* ont montré que pour un gaz lourd comme l'argon, le déplacement collisionnel évolue de manière linéaire. Ainsi, si nous effectuons un ajustement linéaire sur les premiers points de la courbe, nous obtenons $\beta_{Xe30} = -2731 \pm 162$ Hz/Torr et $\delta_{Xe30} = -0.70 \pm 0.15$ Hz/(Torr.K). Les incertitudes élevées viennent à la fois de l'incertitude sur la mesure de pression et de l'incertitude sur l'ajustement réalisé sur un nombre restreint de points. Bien que l'incertitude sur le coefficient linéaire en pression soit très élevé, nous sommes dans le même ordre de grandeur que la valeur donnée par Arditi et Carver. Nous remarquons que leur étude portait sur une plage de température de 40 à 60 °C. Nous voyons qu'à partir de 40 °C notre déplacement de la fréquence d'horloge change de pente, pouvant expliquer le signe positif du coefficient δ_{Xe} mesuré par Arditi et Carver.

CELLULE CSXE50T

Dans cette cellule, nous avons mesuré une pression de xénon $P_{0,Xe50} = 35,0 \pm 1,7$ Torr. Nous retrouvons ici aussi un comportement cubique du déplacement collisionnel mesuré similaire au cas précédent mais avec une température d'inversion autour de 44 °C qui est différente du cas précédent. La figure 5.8 montre le déplacement collisionnel obtenu.

L'ajustement linéaire réalisé sur le début de courbe révèle les coefficients $\beta_{Xe50} = -2684 \pm 137 \text{ Hz/Torr et } \delta_{Xe50} = -1,27 \pm 0,13 \text{ Hz/(Torr.K)}.$

Comme précédemment, les incertitudes élevées proviennent de l'erreur de mesure sur la pression de gaz tampon et l'efficacité réduite de l'ajustement sur un nombre de points limités.

Dans ces conditions, la valeur du coefficient linéaire en température est différente de la valeur mesurée précédemment et reste donc indéterminée. Toutefois, dans les deux cas, le coefficient linéaire en pression est le même aux incertitudes près, ce qui est rassurant.

À ce stade, nous pouvons tout de même tirer quelques conclusions sur les mesures de déplacement collisionnel. Si nous considérons que le xénon induit un déplacement collisionnel linéaire de la fréquence d'horloge du césium, alors celui-ci ne peut convenir pour obtenir une température d'inversion supérieure à 80 °C.



Figure 5.8 – Déplacement collisionnel de la fréquence d'horloge du césium en fonction de la température dans la cellule CsXe50T avec une pression de gaz tampon $P_{0,Xe50} = 35,0 \pm 1,7$ Torr. La courbe verte est un ajustement cubique de la courbe de déplacement collisionnel. La droite bleue est un ajustement sur la partie linéaire. Nous remarquons une température d'inversion à environ 44 °C.

Le comportement cubique étant présent pour les deux cellules, il reste à déterminer si celui-ci provient de notre banc de mesure (un effet de saturation optique dû au fort diamètre de notre faisceau est à envisager) ou si ce comportement est propre au xénon.

De plus, nous constatons que la température d'inversion varie avec la pression de gaz tampon passant d'environ 37 °C pour une pression de 17,9 Torr à environ 44 °C pour une pression de 35,0 Torr de xénon. Ce comportement est totalement différent que celui observé dans le cas de néon seul où la température d'inversion est indépendante de la pression de néon.

Cette variation de la température d'inversion du xénon pourrait être due à une interaction avec les molécules de van der Waals. En effet, le xénon est étudié par le groupe de Happer et ceux-ci notent des effets non-linéaires dans la mesure de la fréquence d'horloge en fonction de la pression de gaz tampon introduite dans la cellule [138]. Leurs mesures se font à température fixe (35 °C) et le changement de pression de xénon se fait directement en augmentant la quantité de xénon. Dans notre cas, la quantité de xénon reste fixe mais l'agitation thermique des atomes augmente, pouvant modifier la formation des molécules de van der Waals de manière différente de celle observée par le groupe de Happer.

Le tableau 5.3 donne un résumé des valeurs des coefficients de déplacement collisionnel que nous avons mesurés pour l'hélium et le xénon.

5.6/ Spectroscopie CPT

Dans cette section, nous étudions expérimentalement l'évolution du pic CPT en fonction de la température, de la puissance optique et de la puissance RF injectée dans le modulateur électrooptique. Ces informations sont intéressantes pour ajuster les boucles d'asservissement sur le pic CPT dans l'horloge en fonctionnement.

Nous mesurons l'évolution de la largeur, de l'amplitude, du contraste et du rapport largeur/contraste du signal CPT en fonction des différentes variables expérimentales.

Collulos	β	δ	γ
Cenules	(Hz/Torr)	(Hz/(Torr.K))	(mHz/(Torr.K ²))
Hélium	1233 ± 32	2.01 ± 0.12	-7.51 ± 0.44
$(25,4 \pm 1,4 \text{ Torr})$	1233 ± 32	2,01 ± 0,12	-7,51 ± 0,++
Xénon	_2731 ± 162	-0.70 ± 0.15	
$(17,9 \pm 1,0 \text{ Torr})$	-2751 ± 102	$-0,70 \pm 0,13$	-
Xénon	-2684 + 137	-1.27 ± 0.13	
(35,0 ± 1,7 Torr)	-2004 ± 157	$-1,27 \pm 0,15$	-

Tableau 5.3 – Résumé des valeurs mesurées des coefficients de déplacement collisionnel de la fréquence d'horloge du césium pour les gaz tampon hélium et xénon. Ces valeurs sont données pour la température de référence $T_0 = 273$ K.

5.6.1/ Hélium

La figure 5.9 représente un signal CPT obtenu dans la cellule contenant 25,4 Torr d'hélium à une température de 40 °C. La puissance optique en entrée de la cellule vaut 400 μ W. L'ajustement Lorentzien nous donne une largeur à mi-hauteur à 399 ± 5 Hz et le contraste, défini dans la soussection 2.2.2, est mesuré à 2,4 %.



Figure 5.9 – Résonance CPT obtenu dans la cellule d'hélium chauffée à 40 °C. Les points rouges sont les données expérimentales. La courbe bleue est un ajustement Lorentzien réalisé sur ces données.

Évolution en fonction de la puissance RF

Ces mesures ont été réalisées à une température de 45 °C et à une puissance optique de 500 μ W. Les valeurs de puissance RF reportées correspondent à la puissance en sortie directe du synthétiseur de fréquence. Pour obtenir la puissance effective en entrée du modulateur, il faut ajouter le gain de l'amplificateur (G = 26 dB) et retrancher les pertes dans le câble (~ 3 dB). La figure 5.10 montre les résultats obtenus.



Figure 5.10 – Évolution du spectre CPT en fonction de la puissance RF injectée dans le modulateur électro-optique. (a) : largeur CPT. La droite rouge est un ajustement linéaire. (b) : amplitude CPT. (c) : contraste. (d) : rapport largeur sur contraste

Nous mesurons un contraste maximal et un ratio largeur/contraste minimal atteints pour une puissance $P_{RF} \sim -1$ dBm. En prenant en compte le gain de l'amplificateur et les pertes dans le câble, nous arrivons à une puissance injectée dans le modulateur $P_{RF} \sim 22$ dBm. Si nous comparons ces valeurs avec la figure 3.7, nous remarquons que cette puissance RF correspond bien à la puissance qui égalise l'amplitude des bandes latérales de modulation avec celle de la porteuse. De plus, nous notons que la largeur CPT diminue avec l'augmentation de la puissance RF, en bon accord avec le comportement observé dans [52].

5.6. SPECTROSCOPIE CPT

Évolution en fonction de la température

Nous nous plaçons à une puissance optique $P_{opt} = 200 \,\mu\text{W}$ pour limiter tout phénomène de saturation optique causée par une puissance optique trop élevée. Les résultats obtenus sont représentés figure 5.11.



Figure 5.11 – Évolution du spectre CPT en fonction de la température pour une puissance optique $P_{opt} = 200 \,\mu\text{W}$ en entrée de la cellule. (a) : largeur CPT. (b) : amplitude CPT. (c) : contraste. (d) : rapport largeur sur contraste.

Nous constatons des optima en contraste et en rapport largeur/contraste autour de 40 °C. Le maximum en amplitude provient de la compétition entre l'augmentation de la densité d'atome de césium avec la température, favorisant le signal CPT, et l'augmentation de l'épaisseur optique provoquée l'agitation thermique et les collisions, atténuant le signal CPT. L'augmentation de la largeur CPT est expliquée par l'augmentation du nombre de collisions des atomes entre eux et avec les parois.

Évolution en fonction de la puissance lumineuse

Ces mesures sont réalisées à la température maximisant le contraste CPT, soit 40°C. La figure 5.12 montre les résultats obtenus.

À l'aide d'un ajustement linéaire sur la largeur CPT, nous obtenons une largeur à puissance op-



Figure 5.12 – Évolution du spectre CPT en fonction de la puissance optique en entrée de la cellule à une température T = 40 °C. (a) : largeur CPT. La droite rouge est un ajustement linéaire. (b) : amplitude CPT. (c) : contraste. (d) : rapport largeur sur contraste.

tique nulle $\Delta v_{CPT} = 150 \pm 8$ Hz. Sur cette plage de mesure, nous n'atteignons pas le maximum d'amplitude CPT. Le contraste maximum est atteint pour une puissance optique $P_{opt} \sim 500 \,\mu\text{W}$ et le rapport largeur/contraste atteint son minimum pour une puissance optique $P_{opt} \sim 250 \,\mu\text{W}$.

Résumé des mesures spectroscopiques de l'hélium

Pour cette cellule remplie d'hélium, nous obtenons un contraste maximal de l'ordre de 2,4% atteint à une température de 40 °C et une puissance optique de 500 μ W. Le rapport largeur/contraste atteint son minimum à environ 250 μ W pour cette même température. La largeur CPT à puissance optique nulle vaut 150 ± 8 Hz.

Ces mesures sont réalisées pour une puissance RF, attaquant le modulateur électro-optique, de l'ordre de 22 dBm. Ce niveau de puissance permet d'obtenir une amplitude égale entre la porteuse et la bande latérale de modulation réalisant l'interrogation CPT.

5.6.2/ Xénon à 17,9 Torr

La figure 5.13 représente un signal CPT obtenu dans la cellule de xénon contenant 17,9 Torr de xénon, chauffée à une température de 40 °C. La puissance optique en entrée de la cellule vaut 700 μ W. L'ajustement Lorentzien nous donne une largeur à mi-hauteur à 10 169 ± 228 Hz et un contraste à 0,2 %. Nous constatons que cette largeur est plus de 25 fois supérieure à la largeur mesurée dans la cellule d'hélium.



Figure 5.13 – Résonance CPT obtenu dans la cellule contenant 17,9 Torr de xénon, chauffée à 40 °C. Les points rouges sont les données expérimentales. La courbe bleue est un ajustement Lorentzien réalisé sur ces données.

Évolution en fonction de la puissance RF

Ces mesures ont été réalisées à une température de 40 °C et à une puissance optique de 700 μ W. Comme précédemment, les valeurs de puissance RF reportées correspondent à la puissance en sortie du synthétiseur de fréquence. Dans ce cas-ci les pertes dans le câble s'élèvent à ~ 1 dB. Les résultats obtenus sont visibles sur la figure 5.14.

Nous mesurons un contraste maximal et un ratio largeur/contraste minimal atteints pour une puissance $P_{RF} \sim -3$ dBm. En prenant en compte le gain de l'amplificateur et les pertes dans le câble, nous arrivons à une puissance injectée dans le modulateur $P_{RF} \sim 22$ dBm. Comme précédemment, cette valeur de puissance correspond à une amplitude de la porteuse égale à l'amplitude des bandes latérales de modulation.

Le contraste maximal est de l'ordre de 0,3%, ce qui est extrêmement faible. De plus, la largeur moyenne du signal CPT est de l'ordre de 10 kHz. Ceci s'explique par une section efficace de collision du xénon très élevé ($\sigma_{sr} = 2,3 \times 10^{-19}$ cm²[146]). Ce coefficient traduit la capacité de l'atome de gaz tampon à entrer en collision avec l'atome de césium. Dans le cas du xénon, sa taille élevée augmente les chances de collision et donc la dépolarisation l'atome alcalin. Ceci va élargir la transition CPT dans une mesure plus élevée que dans le cas d'un gaz tampon plus léger comme le néon ou l'hélium. Tout ceci fait que les mesures spectroscopiques dans le xénon deviennent très délicates, souffrant d'une précision de mesure bien moindre par rapport à l'hélium.



Figure 5.14 – Évolution du spectre CPT en fonction de la puissance RF injectée dans le modulateur électro-optique. (a) : largeur CPT. (b) : amplitude CPT. (c) : contraste. (d) : rapport largeur sur contraste.

5.6. SPECTROSCOPIE CPT

Évolution en fonction de la température

Nous nous plaçons à une puissance optique $P_{opt} = 500 \,\mu$ W. Au-dessous de cette puissance optique, le signal CPT est trop petit pour être étudié proprement. La figure 5.15 montre les résultats obtenus.



Figure 5.15 – Évolution du spectre CPT en fonction de la température pour une puissance optique $P_{opt} = 500 \,\mu\text{W}$ en entrée de la cellule. (a) : largeur CPT. (b) : amplitude CPT. (c) : contraste. (d) : rapport largeur sur contraste.

Nous obtenons des largeurs CPT de l'ordre de 10 kHz. Nous constatons des optima en contraste et en ratio largeur/contraste autour de 38 °C. Le contraste maximal atteint 0,16%.

Évolution en fonction de la puissance lumineuse

Les mesures sont réalisées à une température de 38 °C. Les résultats obtenus sont représentés figure 5.16.



Figure 5.16 – Évolution du spectre CPT en fonction de la puissance optique en entrée de la cellule à une température T = 38 °C. (a) : largeur CPT. (b) : amplitude CPT. (c) : contraste. (d) : rapport largeur sur contraste.

Notre plage de mesure à cette température ne nous permet pas d'atteindre les optima en contraste et rapport largeur/contraste. Néanmoins, par extrapolation, ces optima devraient se trouver à une puissance optique d'environ 800 μ W. Les mesures de largeur CPT ne suivent pas une tendance linéaire classique, le xénon perturbe beaucoup trop les atomes de césium. Nous estimons la largeur CPT à puissance optique nulle à $\Delta v_{CPT} = 8630 \pm 1194$ Hz.
5.6.3/ Xénon à 35,0 Torr

Les mesures réalisées dans cette cellule sont très bruitées rendant leur exploitation difficile. Ceci vient de la pression de xénon plus élevée, perturbant de ce fait très fortement les atomes de césium et donc la cohérence CPT.

La figure 5.17 représente un signal CPT obtenu dans la cellule de xénon contenant 35,0 Torr de xénon, chauffée à une température de 40 °C. La puissance optique en entrée de la cellule vaut 700 μ W. L'ajustement Lorentzien nous donne une largeur à mi-hauteur à 17 329 ± 361 Hz et un contraste à 0,08 %. La largeur est près de fois plus élevée que dans la cellule contenant 17,9 Torr de xénon. Ceci peut être expliqué par une présence plus élevée d'atomes de xénon et donc un pouvoir dépolarisant plus élevé.



Figure 5.17 – Résonance CPT obtenu dans la cellule contenant 35,0 Torr de xénon, chauffée à 40 °C. Les points rouges sont les données expérimentales. La courbe bleue est un ajustement Lorentzien réalisé sur ces données.

Évolution en fonction de la température

Nous nous plaçons à une puissance optique de 700 μ W. La pression de xénon plus élevée nous force à attaquer la cellule avec une puissance optique plus élevée pour obtenir un signal CPT significatif. La figure 5.18 montre les résultats obtenus.

Nous obtenons des largeurs CPT de l'ordre de 17 à 20 kHz. Nous constatons des optima en contraste et en ratio largeur/contraste autour de 42 °C. Le contraste maximal atteint 0,08%.



Figure 5.18 – Évolution du spectre CPT en fonction de la température pour une puissance optique $P_{opt} = 700 \,\mu\text{W}$ en entrée de la cellule. (a) : largeur CPT. (b) : amplitude CPT. (c) : contraste. (d) : rapport largeur sur contraste.

Évolution en fonction de la puissance lumineuse

Les mesures sont réalisées à une température de 42 °C. Les résultats obtenus sont visibles figure 5.19.



Figure 5.19 – Évolution du spectre CPT en fonction de la puissance optique en entrée de la cellule à une température T = 42 °C.(a): largeur CPT. (b): amplitude CPT. (c): contraste. (d): rapport largeur sur contraste.

Encore une fois, notre plage de mesure à cette température ne nous permet pas d'atteindre les optima en contraste et rapport largeur/contraste situés bien au-delà une puissance optique de 800 μ W. Nous estimons la largeur CPT à puissance optique nulle à $\Delta v_{CPT} = 12445 \pm 3537$ Hz. Compte tenu des barres d'erreurs extrêmement élevées, les valeurs de largeur CPT à puissance optique nulle mesurées dans les deux cellules se rejoignent.

Résumé des mesures spectroscopiques du xénon

D'après nos mesures, nous constatons que le xénon ne peut être utilisé comme gaz tampon pour des applications d'horloge. En effet, les contrastes très faibles, atteignant 0,3% dans le meilleur cas, et les largeurs CPT extrêmement élevées, de l'ordre de 10 à 20 kHz, rendent impossible toute utilisation dans une horloge atomique.

Néanmoins, le xénon n'est pas dénué d'intérêt scientifique. En effet, nous avons observé un comportement type cubique du déplacement collisionnel de la fréquence d'horloge avec une température d'inversion se déplaçant avec la pression de xénon. Ce comportement est différent de celui observé dans le cas mono-gaz tampon où la température d'inversion devrait rester fixe.

100 CHAPITRE 5. ETUDE DU DÉPLACEMENT COLLISIONNEL CÉSIUM-GAZ TAMPON

Les mesures spectroscopiques ont révélé que le rapport de la largeur de la résonance CPT sur son contraste en fonction de la température (figures 5.15(d) et 5.18(d)) est minimisé autour de la température d'inversion mesurée. Ce minimum traduit une résolution optimale du signal CPT. De plus, ce rapport varie d'un facteur 1,5 à 3 sur la plage de mesure. Dans ces conditions, ce comportement type cubique ne pourrait être expliqué par une simple erreur de mesure ou un manque de précision de notre banc de mesure.

Le xénon étant au coeur de recherches sur la formation de molécules de van der Waals, notamment par le groupe de Happer, nous pensons fortement à une interaction supplémentaire avec ces molécules qui viendrait perturber la fréquence d'horloge. Des mesures plus poussées seront réalisées en collaboration avec Salvatore Micalizio de l'INRIM, Italie, pour tenter d'expliquer plus en détails ce comportement.

5.7/ Conclusion sur les gaz tampon hélium et xénon

Nous avons étudié le déplacement collisionnel de la fréquence d'horloge du césium en présence d'hélium et de xénon. Nos mesures ont montré que l'hélium serait un bon candidat pour obtenir une température d'inversion supérieure à 80 °C. De plus, l'étude spectroscopique montre que le contraste (quelques pour-cent) et la largeur CPT (quelques centaines de Hz) obtenus sont compatibles avec une utilisation en micro-cellule.

Le xénon, quant à lui, perturbe énormément le césium, réduisant les contrastes mesurés à une fraction de pour-cent et les largeurs CPT à quelques dizaines de kHz. De plus, les coefficients de déplacement collisionnel mesurés, dans le cas d'un déplacement linéaire, montrent que ce gaz tampon déplace la température d'inversion en-dessous de 80 °C. La figure 5.20 montre la stabilité de fréquence à 1 seconde limitée par le bruit de grenaille du détecteur suivant les équations (1.19) et (2.20).



Figure 5.20 – Estimation de la stabilité de fréquence court-terme limitée par le bruit de grenaille du détecteur. Le trait pointillé correspond à la stabilité de 10^{-11} recherchée dans les microhorloges.

Nous constatons que la stabilité de fréquence estimée pour le gaz tampon hélium serait compatible

avec une utilisation en micro-horloge. Cette stabilité est du même ordre de grandeur que celles mesurées dans [81] dans le cas du néon. Le xénon, quant à lui, limiterait la stabilité à quelques 10^{-10} à 1 seconde dans les meilleurs des cas, et pour une cellule de taille centimétrique. Ainsi, de par sa capacité à dépolariser l'atome de césium, produisant des signaux d'horloges extrêmement faibles et larges et la limitation de stabilité estimée, le xénon ne semble pas un gaz tampon intéressant pour des applications d'horloges.

6

Mesures sur microcellules He-Ne

Ce chapitre se focalise sur le coeur de micro-horloges atomiques, la microcellule. Nous détaillerons la méthode de fabrication ainsi que la structure des micro-cellules fabriquées à l'Institut FEMTO-ST.

Le prototype MAC-TFC présente une température d'inversion proche de 80 °C grâce au néon utilisé comme gaz tampon. Nous avons déterminé que l'hélium pourrait potentiellement augmenter cette température d'inversion en mélange avec le néon.

Dans ce chapitre, nous présentons le banc de mesure CPT à base de VCSEL utilisé pour la caractérisation classique des microcellules ainsi que le banc de mesure à schéma de pompage optimisé utilisé pour la mesure des températures d'inversion dans le cas d'un mélange d'un gaz tampon néon-hélium.

> «Ne tirez pour certain que ce qui est démontré.» Isaac Newton

6.1/ LA MICROCELLULE

6.1.1/ Description générale

La microcellule constitue le coeur des micro-horloges atomiques. Elle présente un véritable enjeu stratégique pour les performances de la micro-horloge. En effet, la microcellule doit permettre une interaction aisée avec le faisceau laser tout en étant compacte : la cavité interne, contenant la vapeur alcaline, possède des dimensions de l'ordre de quelques millimètres. La figure 6.1 représente la stabilité de fréquence accessible en fonction des dimensions de la cellule.



Figure 6.1 – Stabilité de fréquence à 1 seconde en fonction des dimensions de la cellule à vapeur de césium dans le cas d'une cellule contenant 75 Torr de N_2 (courbe en tiret) et dans le cas d'une cellule contenant sur ses parois (courbe pleine). Image extraite de [44].

La microcellule doit pouvoir également opérer à température élevée (au moins 80 °C) pour assurer une densité atomique suffisante et donc un signal d'horloge conséquent. Elle doit être amagnétique et scellée hermétiquement pour assurer une bonne stabilité de l'atmosphère interne. Les retombées industrielles étant potentiellement élevées, les microcellules doivent pouvoir être fabriquées et remplies par des techniques de microfabrication permettant ainsi une production de masse avec une reproductibilité et uniformité compatibles avec les cahiers des charges industriels.

Une microcellule est composée, dans sa plus simple expression, d'une unique cavité contenant la vapeur alcaline et un seul ou un mélange de gaz tampon. La cavité est réalisée dans du silicium et du verre forme les fenêtres. La pression de gaz tampon doit être relativement élevée, de l'ordre de quelques dizaines à une centaine de Torr. En effet, la cavité étant de l'ordre du millimètre, les atomes de césium se retrouvent confinés. Ainsi, pour satisfaire à la condition de Dicke $d < \lambda/2$ où d est le libre parcours moyen et λ la longueur d'onde de la transition d'horloge, la pression de gaz tampon doit être augmentée pour favoriser le mouvement diffusif des atomes alcalins.

La première microcellule a été développée au NIST au début des années 2000 [44, 147]. Elle repose sur un procédé de fabrication qui est utilisé encore aujourd'hui de manière quasi-similaire à travers le monde. La figure 6.2 décrit cette méthode. Un réseau de trous est gravé par gravure KOH (hydroxyde de potassium) ou DRIE (*Deep Reactive Ion Etching* - gravure à ion profonde) dans un wafer de silicium poli double face. Les wafers de verre sont collés au wafer de silicium par soudure anodique.



Figure 6.2 – Méthode de fabrication de microcellule développée au NIST. (a) : wafer de silicium. (b) : réalisation de la cavité par techniques MEMS. (c) : première soudure anodique d'un wafer de verre (300 °C et 1000 V). (d) : remplissage de la cavité par pipetage. (e) : seconde soudure anodique du deuxième wafer de verre. (f) : microcellule scellée. Image extraite de [148].

Bien que le procédé de fabrication reste sensiblement le même, les procédés de remplissage diffèrent. Une méthode simple et peu chère est l'injection de césium avant la seconde soudure anodique scellant la cellule. Cependant, l'oxygène résiduel dans la chambre oxyde le césium et limite sa durée de vie. De plus, d'autres impuretés présentes dans la chambre se retrouvent dans la cellule après scellement.

Une seconde méthode consiste à déposer dans la cellule de l'azoture de baryum et un composé de chlorure de césium et à décomposer ce dernier pour obtenir le césium et le gaz tampon diazote suivant la réaction [148] :

 $BaN_6 + CsCl \longrightarrow BaCl + 3N_2 + Cs$

La décomposition s'effectue en chauffant le composé à environ 200 °C dans une chambre UHV (Ultra High Vaccum). Le principal obstacle à cette méthode est la difficulté de pomper le diazote tout en gardant une quantité de césium suffisante. De plus, cette méthode produit des résidus de baryum et de chlorure de baryum significatifs. Le baryum absorbe le diazote provoquant également un déplacement de la fréquence d'horloge. Comme le diazote possède un coefficient linéaire en pression élevé $\beta_{N_2} = 922,5 \pm 4,8$ Hz/Torr, il est nécessaire de contrôler la pression à hauteur de 10^{-4} Torr pour obtenir une stabilité relative de fréquence de l'ordre de 10^{-11} .

Aujourd'hui, les groupes américains utilisent une méthode améliorée de la précédente [149]. La figure 6.3 décrit cette méthode. Cette fois, la réaction à base d'azoture de baryum et de chlorure alcalin est réalisée dans une ampoule séparée. Le diazote est pompé hors de l'ampoule. Le bec de l'ampoule est chauffé de manière à obtenir une boule d'atomes alcalins qui est ensuite déposée dans la cavité. Ceci permet de limiter les résidus présents dans la microcellule. Le diazote peut être réinjecté dans la chambre ou laisser la place à un autre gaz tampon. Cette microcellule fut insérée dans une micro-horloge atomique CPT permettant de démontrer une stabilité relative de fréquence de 6×10^{-12} à 1000 s.

Cette méthode de remplissage avant scellement de la cellule présente le défaut de réaliser la se-



Figure 6.3 – Méthode de fabrication de microcellule développée au NIST. La réaction chimique produisant le césium se fait dans une ampoule séparée. Image extraite de [149].

conde soudure anodique, réclamant des températures élevées, en présence de l'alcalin volatil et réactif. Cette opération de soudure anodique doit donc être réalisée dans des conditions non optimales (température et rampe de tension faibles) pouvant provoquer un mauvais scellement de la cellule. De plus, l'utilisation d'un bec verseur est peu compatible avec une utilisation de masse au niveau wafer.

6.1.2/ Microcellules développées à FEMTO-ST

Pour contourner le problème de remplissage avant scellement définitif de la cellule, nous avons développé, au sein de l'Institut FEMTO-ST, une nouvelle méthode de fabrication de microcellules utilisant une pastille "dispenser" à césium, générant la vapeur alcaline, qui est activée après scellement [150, 141, 151]. Ce procédé évite la présence de césium volatile dans la chambre lors de la seconde soudure anodique, permettant ainsi d'assurer cette dernière dans des conditions améliorées pour un scellement robuste et hermétique. Cette technologie est par ailleurs entièrement compatible avec une production industrielle de masse. La figure 6.4 montre un aperçu général des microcellules fabriquées à l'Institut FEMTO-ST.

FABRICATION ET REMPLISSAGE

La microcellule est composée de deux cavités gravées par un procédé de photolitographie et gravure DRIE dans un wafer de silicium. Les fenêtres sont constituées par deux wafers de verre collés au wafer de silicium par soudure anodique. La première cavité, de forme rectangulaire, est dite cavité "dispenser". Celle-ci possède des dimensions 1,65 mm × 1,65 mm pour une profondeur de 1,4 mm. Elle contient la pastille métallique "dispenser" de césium fournie par la société *SAES Getters* en Italie. Ce "dispenser" est constitué de chromate de césium Cs₂CrO₄ (représentant 20% de la masse totale) contenu dans un agent réducteur à base de 16% d'aluminium et 84% de zirconium.

La seconde cavité, de forme cylindrique, est la cavité d'interaction CPT. Elle possède un diamètre de 2 mm et une profondeur de 1,4 mm. Les deux cavités sont reliées par d'étroits canaux permettant au césium de migrer vers la cavité d'interaction CPT.



Figure 6.4 – (a) : Architecture générale d'une microcellule à vapeur de césium développée à l'Institut FEMTO-ST. La cellule est formée par un empilement verre-silicium-verre. Elle est composée de deux cavités connectées par d'étroits canaux. La première cavité contient une pastille "dispenser" de césium. L'interaction CPT se déroule dans la seconde cavité. (b) : Vue en coupe de la microcellule. La vapeur de césium est générée en chauffant localement la pastille à l'aide d'un faisceau laser de forte puissance après scellement de la cellule.

La figure 6.5 résume les différentes étapes de la fabrication d'une microcellule.

Avant la première soudure anodique, le wafer de silicium est poli et plongé dans une solution d'hydroxyde de potassium pour réduire les défauts de surface pouvant potentiellement piéger les atomes alcalins ou des contaminants. La rugosité obtenue est inférieure à 10 nm. Les wafers de silicium et de verre sont nettoyés dans une solution piranha (H_2SO_4 et H_2O_2) puis rincés et chauffés pour éliminer toutes traces d'eau résiduelles. La figure 6.6 montre l'état de surface des cavités obtenu par DRIE et immersion en solution piranha.

La soudure anodique est réalisée à l'aide d'une machine de soudure anodique (EVG501, groupe EV) dans une chambre à vide (10^{-3} Pa) à 350 °C. Les deux substrats sont mis en contact avec une pression de l'ordre de 10 à 20 MPa. La température élevée favorise la mobilité des ions positifs dans le verre. Pour effectuer la soudure, un champ électrostatique est appliqué entre les deux substrats, la rampe de potentiel étant augmentée graduellement de 300 à 900 V. Le champ électrostatique génère alors la diffusion des ions sodium Na⁺ du verre vers la cathode et des ions oxygène vers le silicium. Le bloc de silicium étant chargé positivement, des liaisons covalentes SiO₂ se créent à l'interface silicium-verre. Pour finaliser le processus de soudure, la rampe de potentiel est tenue à valeur maximum pendant 20 minutes. Le "dispenser" à césium est alors placé dans la cavité.

La microcellule peut être remplie avec tous types de gaz nobles, mais la présence du "dispenser" à césium utilisé dans nos microcellules rend impossible l'utilisation du diazote comme gaz tampon. En effet, celui-ci est absorbé par le composé en zirconium du "dispenser" [141]. Le gaz tampon est introduit dans la chambre de soudure à la pression voulue. Cependant, la présence de gaz limite la tension maximale applicable pour la seconde soudure anodique, et le scellement définitif de la cellule, par un phénomène d'ionisation du gaz. Ceci réduit la qualité de la soudure et peut provoquer des défauts de scellement. Pour une pression de gaz tampon de l'ordre de 75 Torr, la tension maximale, ou tension de claquage, est mesurée dans le cas de l'argon à 450 V et dans le cas du néon à 300 V. Dans le cas de l'hélium, la tension de claquage est légèrement inférieure à celle du néon, soit environ 250 V.



Figure 6.5 – Étapes du processus de fabrication et remplissage en gaz tampon de la microcellule. 1) Départ d'un wafer de silicium. 2) Photolithographie. 3) Gravure SiO_2 . 4) Première étape de gravure des cavités dans le wafer de silicium par DRIE. 5) Seconde étape de DRIE. 6) Séparation des wafers pour mise en évidence des cavités. 7-8) Nettoyage des cavités pour amélioration de l'état de surface à l'aide de solutions KOH en particulier. 9) Soudure anodique du premier wafer en verre. 10) Mise en place du "dispenser" à césium. 11) Remplissage de la cellule par une atmosphère de gaz tampon et opération de soudure anodique du second wafer de verre en deux étapes. 12) Activation de la vapeur alcaline par focalisation et chauffage du "dispenser" de césium à l'aide d'un faisceau laser de forte puissance.



Figure 6.6 – État de surface des cavités obtenu par DRIE et immersion dans une solution piranha. Images MEB.

Une innovation pour réaliser un scellement de qualité est de réaliser une pré-soudure en présence de gaz tampon avec une tension inférieure à la tension de claquage. Une fois la cellule pré-scellée, la seconde soudure anodique est réalisée sous vide avec un potentiel de 900 V. Cette soudure anodique en deux parties permet d'obtenir une qualité de scellement supérieure.

6.1. LA MICROCELLULE

Dépôt de films minces "getters"

Dans l'optique d'améliorer notre technologie de cellule, des films minces "getters" (technologie *PageWafer* de *SAES Getters*) de 2 μ m au sein du wafer de verre supérieur. Le but de ces "getters" est de capturer tous les résidus gazeux autres que le césium et le gaz tampon désiré. La figure 6.7 montre la présence des films "getters" dans une microcellule.



Figure 6.7 – (a) : principe des microcellules à vapeur de césium avec présence d'un film "getter" pour améliorer la pureté de l'atmosphère interne en supprimant certains résidus gazeux. (b) : photographie d'une microcellule avec film "getter". Ceux-ci sont visibles par leur couleur orangée sur la photographie.

L'effet de ces "getters" sur la qualité de l'atmosphère interne a été évaluée par des mesures de spectrométrie de masse et spectroscopie optique CPT. La spectrométrie de masse a révélé que la quantité de résidus gazeux tels que H_2 , O_2 , N_2 et CO_2 est réduite de manière significative en présence d'un film "getter" tandis que celle du gaz tampon désiré (du néon dans notre cas) reste non affectée. La pression d'impuretés au sein de la cellule a ainsi été mesurée 50 fois inférieure à celle mesurée dans une cellule sans "getter", représentant une bonne amélioration de la pureté de l'atmosphère interne [152] (voir figure 6.8).



Figure 6.8 – Effet de la présence de film "getter" dans une microcellule Cs-Ne sur la quantité des résidus gazeux. En blanc : cellule sans getters. En noir : cellule avec getters

L'activation de ces films "getters" se fait thermiquement lors de la soudure anodique.

Activation du "dispenser" à césium

Le césium contenu dans la pastille "dispenser" est libéré sous forme de vapeur en chauffant localement le "dispenser" après le scellement définitif de la cellule. Ceci assure d'avoir assez de césium dans la cellule pour obtenir des signaux conséquents. L'activation du césium se fait, à l'heure actuelle, cellule par cellule grâce à l'utilisation d'un laser infra-rouge de forte puissance. Les paramètres d'activation typiques sont une durée de 20 s pour une puissance laser de 2 W. Le césium ainsi libéré migre dans la cavité d'interaction CPT par le biais des canaux liant les deux cavités. La figure 6.9 montre une photographie de gouttelettes de césium qui ont migré de la cavité "dispenser" vers la cavité d'interaction.



Figure 6.9 – Photographie zoomée du contenu de la cellule après une activation prolongée. La présence de gouttelettes de césium, invisibles à l'oeil nu en général, dans la cavité d'interaction, confirme le régime de pression de vapeur saturante.

Tests de contrôle de pression de gaz tampon et vieillissement

Afin de vérifier l'uniformité de la pression de gaz tampon sur un wafer complet, la pression de gaz tampon est mesurée par spectroscopie CPT pour plusieurs cellules à différentes placement au sein du wafer. La figure 6.10 montre la pression de néon mesurée pour deux wafers différents (Axx et Bxx). Exceptée une cellule pour chaque wafer, la pression de néon est similaire pour



Figure 6.10 – Pression de gaz tampon estimée à une température de 65 °C à l'aide de mesure déplacement collisionnel de fréquence d'horloge pour deux wafers différents. La pression de consigne durant la fabrication est fixée à 100 Torr (133 mbar) pour les deux wafers.

toutes les cellules. La pression moyenne des cellules Axx est mesurée à 104,6 mbar (~ 78,6 Torr) avec une déviation de 4,5%. Pour les cellules Bxx, la pression moyenne est mesurée à 122,1 mbar

(~ 91,8 Torr) avec une déviation de 7,7%. Cette déviation serait réduite à 3,7% sans la cellule B02. La pression moyenne mesurée est respectivement inférieure de 28,4 et 10,9 mbar par rapport à la pression de consigne. La différence de pression entre les deux wafers est de 15% et est attribuée aux incertitudes de notre système de remplissage.

Des tests de vieillissement sont également entrepris pour évaluer l'évolution de l'atmosphère interne. La fréquence d'horloge au sein d'une cellule Cs-Ne est mesurée à 80 °C. Les cellules sont ensuite placées dans un four à 110 °C pendant 240 heures, soit 10 jours. En utilisant la méthode $Q_{10} = 2$ [153], cette période est considérée comme un vieillissement de 1920 heures à 80 °C, soit 2,6 mois. À l'issue de cette période, la fréquence d'horloge est de nouveau mesurée à 80 °C avec les mêmes paramètres expérimentaux.

Pour atteindre une stabilité relative de fréquence de 10^{-11} à une heure d'intégration, le décalage de fréquence doit être inférieur à 0,1 Hz par heure, soit 192 Hz en 1920 heures. Les cellules mesurées ont un décalage de fréquence bien inférieur, respectivement 53, 1 et 35 Hz pour les cellules A01, B03 et B05.

Ces microcellules semblent donc être compatible pour atteindre une stabilité relative de fréquence $< 10^{-11}$ à l'heure. Néanmoins, des tests plus longs doivent être menés pour évaluer le vieillissement de ces microcellules et leur dérive intrinsèque typique à une journée. Récemment, Abdullah *et al.* [122] ont reporté des tests de vieillissement de microcellules Cs-Ne présentant une dérive intrinsèque de 5×10^{-11} /jour, due, a priori, à la perméation du gaz néon à travers le verre *borofloat*.

CONCLUSION SUR NOTRE TECHNOLOGIE DE MICROCELLULE

Notre technologie de microcellule est aujourd'hui assez mâture et présente des résultats encourageants. La présence de films "getters" permet de purifier l'atmosphère interne et la seconde soudure anodique en deux parties assure une qualité de scellement et une bonne robustesse. De plus, la libération de césium après scellement définitif est un avantage majeur pour éviter de polluer l'atmosphère interne réaliser la soudure anodique dans de bonnes conditions.

Notre technologie de microcellule a également été récompensée par le Micron d'Or du Salon International des Microtechniques Micronora en 2012.

6.2/ BANC DE MESURE VCSEL - CPT

Nous disposons d'un banc de mesure compact, se rapprochant de l'architecture de la microhorloge MAC-TFC, pour tester nos microcellules. Ce banc est constitué basiquement d'une VCSEL D_1 modulée à 4,56 GHz, d'une lentille de collimation, d'une lame quart d'onde, du module physique, comprenant le blindage magnétique, le système de chauffe de la microcellule et la bobine de champ magnétique, et une photodiode. Une cellule de césium pur nous sert de référence pour la mesure de pression de gaz tampon par comparaison des spectres d'absorption (voir section 4.2). La figure 6.11 montre notre banc de mesure VCSEL - CPT. Le banc est placé dans une boîte d'isolation thermique pour éviter les perturbations provoquées par la climatisation.

La source laser est un prototype de VCSEL émettant sur la raie D_1 du césium (894,6 nm) fourni par l'Université d'Ulm en Allemagne. Les caractéristiques de cette diode VCSEL sont décrites plus en détail dans la sous-section suivante. Elle opère à un courant de 1,3 mA à une température de 30 °C. Le faisceau est collimaté et sa puissance est atténuée par une densité optique. Un polariseur permet de polariser le faisceau linéairement. Un ensemble lame demi-onde et cube



Figure 6.11 – Banc de mesure VCSEL - CPT pour microcellules. (a) : té de polarisation. (b) : VC-SEL D_1 . (c) : lentille de collimation. (d) : densité optique. (e) : polariseur. (f) : lame demi-onde. (g) : cube polariseur. (h) : lame quart-d'onde. (i) : module physique comprenant la microcellule, la chauffe de celle-ci, le solénoïde de champ magnétique et le blindage magnétique. (j) : photodétecteur 1. (k) cellule de césium pur. (l) : photodétecteur 2.

polarisant permet d'envoyer une partie d'un faisceau sur une cellule de référence à base de césium pur. Enfin, une lame quart-d'onde vient polariser le faisceau circulairement. La puissance optique typique en entrée de cellule est de l'ordre de 20-40 μ W.

Le courant d'injection est directement modulé à 4,596 GHz pour générer les deux bandes latérales de modulation séparées de 9,192 GHz nécessaires à l'interaction CPT.

Le signal issu de la photodiode est envoyé dans deux détections synchrones *Stanford Research Systems* SR800, l'une pour verrouiller la fréquence laser sur le fond du creux d'absorption du césium élargi par le gaz tampon (via une modulation-démodulation sur le courant du laser) et l'autre pour verrouiller la fréquence de l'oscillateur local sur la transition atomique CPT via une modulation-démodulation sur la fréquence délivrée par le synthétiseur avec une rétroaction directement sur le quartz.

L'oscillateur local est constitué d'un quartz à 10 MHz, multiplié en fréquence par un synthétiseur commercial *Rhode & Schwarz* SMB100A. Le signal généré à \sim 4,596 GHz est envoyé sur le té de polarisation de manière à maximiser la hauteur du pic CPT. Le signal à 10 MHz provenant du quartz est comparé avec le signal issu d'un maser à hydrogène converti, à une fréquence de 10,190 MHz à l'aide d'un synthétiseur commercial *Marconi Instruments* 2042. Le signal à 190 kHz en sortie du mélangeur est filtré, amplifié et compté via un compteur de fréquence *Hewlett-Packard* 53132A.

6.2.1/ ÉTUDE DE LA VCSEL D_1

L'Université d'Ulm, en Allemagne, nous a fourni des prototypes de VCSEL émettant sur la raie D_1 du césium (894,6 nm). Il est important de noter qu'il n'existe pas de telles VCSELs sur le marché, contrairement aux VCSELs émettant sur la raie D_2 du césium (852,3 nm). Ainsi, les

6.2. BANC DE MESURE VCSEL - CPT

seules VCSELs disponibles proviennent de laboratoires de recherche. Pourtant, le développement de sources laser miniatures émettant sur la raie D_1 est un enjeu stratégique pour l'amélioration de la stabilité des micro-horloges CPT à césium [78].

Durant ce travail de thèse, j'ai contribué à la caractérisation métrologiques de ce type de VCSEL [99].

Structure

Les prototypes de VCSEL sont fabriqués par épitaxie par jet moléculaire sur un substrat d'arséniure de gallium (GaAs). La région active consiste en un empilement de trois couches d'arséniure de gallium-indium (InGaAs) de 8 nm d'épaisseur chacune. La région active est isolée par deux revêtements d'arséniure de gallium-aluminium (AlGaAs). Un réseau de Bragg, présentant un diamètre de 3 μ m et une période de 0,6 μ m, est inscrit sur la surface active de manière à obtenir un faisceau mono-mode polarisé linéairement.

Cette VCSEL possède une architecture type *flip-chip bondable* permettant d'obtenir les plots de connexion sur la même face. La puce présente une surface totale de $300 \times 300 \ \mu\text{m}^2$. Les figures 6.12 et 6.13 représentent une vue de la puce réalisée avec un microscope à force atomique (AFM - *Atomic Force Microscope*) et une vue en coupe de celle-ci.



Figure 6.12 – (a) : image AFM d'une puce VCSEL avec une architecture flic-chip bondable. (b) : zoom sur la région active de la VCSEL. (c) : vue 3-D du réseau de Bragg inscrit sur la région active. Images extraites de [99].



Figure 6.13 – Schéma en coupe de la puce VCSEL. Image extraite de [99].

CARACTÉRISTIQUES ET PERFORMANCES

Ces VCSELs sont installées dans un boîtier TO-46. Elles présentent un courant de seuil de l'ordre de 0,3 mA, dépendant légèrement de la température de la VCSEL ($\leq 2 \mu$ A/K dans la gamme 15 °C - 25 °C). La raie D_1 du césium est atteinte pour un courant DC de 2,1 mA et une température de 23 °C, donnant une puissance optique de 910 μ W est un taux d'extinction mono-mode (SMSR - *Single Mode Suppression Ratio*) supérieur à 40 dB. La longueur d'onde d'émission possède une dépendance en température de l'ordre 0,06 nm/K et une dépendance en courant de l'ordre de 300 GHz/mA. La figure 6.14 représente le spectre optique à 23 °C.



Figure 6.14 – Spectre optique de la VCSEL pour un courant de 2,1 mA et une température de 23 °C. Le SMSR vaut 42 dB. Image extraite de [99].

La largeur de raie de la VCSEL est de l'ordre de 20 à 25 MHz, permettant de résoudre parfaitement un spectre d'absorption saturée. La figure 6.15 montre le spectre de la diode VCSEL mesuré à l'aide d'un interféromètre de Fabry-Perot de haute-résolution (résolution de 5 MHz).

Ces VCSELs possèdent également un très bon taux d'extinction entre les puissances optiques issues des polarisations parallèles P_{\parallel} et orthogonales P_{\perp} au réseau de Bragg (OPSR - Orthogonal Polarization Suppresion Ratio), rendant le faisceau optique polarisé orthogonalement au réseau. Ce taux d'extinction s'exprime comme $OPSR = 10 \cdot log(P_{\parallel}/P_{\perp})$ et vaut 22,7 dB. La figure 6.16 représente les caractéristiques courant-puissance optique et courant-tension, les puissances optiques P_{\perp} et P_{\parallel} , et l'OPSR.

Le courant de la VCSEL peut aisément être modulé à 4,596 GHz pour générer les bandes latérales à 9,192 GHz nécessaires à l'interaction CPT. L'asymétrie des bandes latérales peut s'exprimer comme $S = -10 \cdot log(P_{\pm 1}/P_{-1})$ où $P_{\pm 1}$ est la puissance de la bande latérale de modulation ± 1 . La figure 6.17 représente la mesure des puissance optiques de la porteuse, des bandes latérales de modulation ± 1 et de l'asymétrie entre les bandes latérales.

La limitation dans l'efficacité de modulation peut être attribuée à un mauvais couplage du signal RF de modulation dans le boîtier TO-46. En effet, environ 40% de la modulation à 4,6 GHz est réfléchi par la VCSEL et son boîtier.

La figure 6.18 reporte les mesures du bruit relatif d'intensité (RIN - *Relative intensity Noise*) et du bruit de fréquence de la diode VCSEL lorsque celle-ci émet en résonance avec la raie D_1 du



Figure 6.15 – Mesure de la largeur de raie à l'aide d'un Fabry-Perot présentant des pics de 5 MHz. La largeur Lorentzienne à mi-hauteur est mesurée 23 MHz. L'encart représente une partie de spectre d'absorption saturée. Image extraite de [99].

césium. Le RIN est mesuré à $1 \times 10^{-11} \text{ Hz}^{-1}$ à f = 10 Hz et $5 \times 10^{-15} \text{ Hz}^{-1}$ à f = 10 kHz. La bruit de fréquence d'une diode VCSEL est connu comme étant l'une des limitations majeures de la stabilité de fréquence court-terme d'une micro-horloge atomique [154]. Cette dégradation est provoquée par les phénomènes de conversion FM-AM dans la vapeur atomique, dégradant le rapport signal-à-bruit [78, 155] (voir section 2.4). De plus le bruit de fréquence du laser lui-même limite également sa stabilité de fréquence lorsque celui-ci est stabilisé sur un creux d'absorption, par exemple, ce qui peut provoquer des instabilités de l'horloge pour les temps longs via les effets de déplacement lumineux [130].

La densité spectrale de puissance (DSP) des fluctuations de fréquence $S_{\Delta\nu}(f)$ de la diode VCSEL en régime libre est mesurée telle que $S_{\Delta\nu}(10 \text{ Hz}) = 10^{12} \text{ Hz}^2/\text{Hz}$ avec une pente en 1/f, signature d'un bruit de scintillation de fréquence. La DSP des fluctuations relatives de fréquence est décrite par $S_y(f) = S_{\Delta\nu}/\nu_0^2$ avec ν_0 la fréquence laser (335 THz). En décomposant le spectre de bruit de fréquence sur une loi en puissance $S_y(f) = \sum_{i=-2}^{2} h_i f^i$, nous obtenons $h_{-1} = 10^{13}/\nu_0^2 = 8.9 \times 10^{-17}$. Cela conduit à une instabilité relative de fréquence attendue de $\sigma_y(\tau = 1s) = \sqrt{h_{-1}2ln2} = 1.1 \times 10^{-8}$ [156].

Afin de vérifier cette estimation, nous avons mesuré la stabilité relative de fréquence de la diode VCSEL par battement avec une diode DFB de largeur spectrale 1 MHz [111]. En régime libre, la stabilité relative de fréquence court-terme de la diode VCSEL est de 1×10^{-8} à 1 s, en excellent accord avec la mesure de bruit de fréquence. En asservissant la diode VCSEL sur le fond d'un creux d'absorption obtenu via une cellule de césium annexe, la stabilité relative de fréquence de la diode VCSEL est améliorée à 8×10^{-9} à 1 s et 4×10^{-9} à 10 000 s, comme le montre la figure 6.19.

Le coefficient de déplacement lumineux en fréquence typique pour une micro-horloge atomique pilotée par une diode VCSEL est tel que $\delta v_{clock}/\delta v_0 = -20 \text{ mHz/MHz} [112]$. La limitation sur la stabilité de fréquence d'horloge liée à cet effet serait donc de l'ordre de 2×10^{-12} à $\tau \approx 10\ 000$ s,



Figure 6.16 – *Caractéristiques de la VCSEL à 30 °C La puissance* P_{\parallel} *est augmentée d'un facteur 5 pour une meilleure lisibilité. Image extraite de [99].*

en accord avec les spécifications des micro-horloges.

Les résultats liés à la caractérisation métrologique de ces diodes VCSELs D_1 ont fait l'objet d'une publication dans *Optics Express* [99].

6.2.2/ Mesure du signal d'horloge

Nous avons mesuré le spectre CPT dans une microcellule Cs-Ne à l'aide ce banc. La cellule est chauffée aux alentours de 80 °C, correspondant à la température d'inversion du déplacement collisionnel de fréquence pour le néon. La figure 6.20 montre le signal d'horloge obtenu dans ce genre de microcellule.

Les largeurs typiques dans ces microcellules sont de l'ordre de 1 kHz à une température de 80 °C. Le contraste approche 1% pour une puissance optique de l'ordre de 20 μ W. Le bruit de détection N à la fréquence de modulation de l'oscillateur local $v_C = 4,596$ GHz vaut $1,7 \times 10^{-7}$ V/ \sqrt{Hz} et la pente du discriminateur de fréquence du signal d'erreur vaut 0.9×10^{-6} V/Hz. La stabilité court-terme de l'horloge attendue est $\sigma_y(\tau) = N\tau^{-1/2}/(\sqrt{2}v_C D) = 2.9 \times 10^{-11}\tau^{-1/2}$ à $\tau \approx 1$ s pour une température de cellule de 80 °C.

Nos mesures ont donc démontré que ces diodes laser type VCSEL sont parfaitement compatibles avec le développement de micro-horloges atomiques à vapeur de césium [99].

6.3/ Mesure sur microcellules Cs-Ne-He

Afin de vérifier que le mélange de gaz tampon Ne-He produit une température d'inversion supérieure à 80 °C (voir sous-section 5.5.2), nous avons fabriqué des microcellules suivant le procédé décrit dans la sous-section 6.1.2 de ce chapitre. Le remplissage de ces microcellules par un mélange de gaz représente une avancée majeure dans le développement de microcellules à l'Institut FEMTO-ST. En effet, jusqu'à maintenant seules des microcellules contenant un unique gaz tampon avaient été produites. Ces travaux de thèse se recoupent avec un aspect des travaux de thèse



Figure 6.17 – Puissance normalisée des bandes latérales de modulation et de la porteuse (échelle gauche) et indices de modulation de phase M et d'amplitude R ainsi que l'asymétrie entre les bandes latérales S (échelle droite) en fonction de la puissance du signal RF injectée. Image extraite de [99].

de Vincent Maurice¹.

6.3.1/ BANC DE MESURE À SCHÉMA CPT OPTIMISÉ

Ces microcellules ont été caractérisées sur un banc de mesure à schéma CPT optimisé. Le banc est décrit à la figure 6.21. Ce banc présentant un schéma de pompage type *Push-Pull* permet d'obtenir des contrastes CPT de l'ordre de 10 %.

La source laser est une diode DFB émettant sur la raie D_1 du césium à 894,6 nm. Un isolateur optique est placé en sortie de la diode pour éviter tout retour dans celle-ci. Le faisceau laser est ensuite injecté dans un modulateur électro-optique d'intensité fibré type Mach-Zehnder (référence : *Photline* NIR-MX800-LN-10). Les fibres sont à maintien de polarisation (PM). Le modulateur est chauffé à 40 °C et régulé en température au niveau du mK pour réduire les fluctuations de puissance laser en sortie du modulateur. Ce dernier est modulé à 4,596 GHz pour générer les bandes latérales de modulation séparées de 9,192 GHz pour réaliser l'interaction CPT. La référence de fréquence générant le signal de modulation consiste en un oscillateur à quartz à 10 MHz multiplié en fréquence à 4,596 GHz par une synthèse bas bruit [157]. Une synthèse de fréquence digitale (DDS - *Direct Digital Synthesis*) permet de modifier finement la sortie de la synthèse bas bruit.

L'architecture Mach-Zehnder nous permet de supprimer la porteuse en ajustant la tension DC envoyée sur le modulateur [81]. Cette tension est stabilisée de manière active. En sortie du modulateur, le faisceau est envoyé dans un système à retard basé sur une architecture type Michelson. Ce dispositif permet de produire un champ optique bi-fréquence dont la polarisation alterne

^{1.} Vincent Maurice, Modélisation, étude expérimentale, optimisation fonctionnelle et réalisation de cellules à vapeur alcaline originales pour les références de fréquence atomiques miniatures de nouvelle génération, Thèse de doctorat, Institut FEMTO-ST - en cours.



Figure 6.18 – Bruit relatif d'intensité (en rouge) et bruit de fréquence (en noir) de la diode VCSEL en régime libre et émettant sur la raie D_1 du césium. Image extraite de [99].



Figure 6.19 – Déviation d'Allan de la diode VCSEL en régimes libre et stabilisé (non optimisé) sur le fond Doppler d'une cellule de césium. Image extraite de [99].

entre polarisation circulaire gauche et polarisation circulaire droite au rythme de la fréquence d'horloge. Ce schéma de pompage CPT optimisé fut proposé par l'équipe de Happer en 2004 [80] et permet la détection de signaux CPT à fort contraste dans des cellules de taille centimétrique [81].

Le faisceau optique collimaté, de 2 mm de diamètre, est envoyé sur une microcellule. Nous avons caractérisé 4 microcellules, nommées simplement cellule 1, 2, 3 et 4, provenant du même wafer. La microcellule est chauffée sur une plage de température allant de 70 à 100 °C et elle est régulée au niveau du mK par un dispositif similaire à celui utilisé dans le banc décrit au chapitre 3. La microcellule est plongée dans un champ magnétique statique pour lever la dégénérescence Zeeman. Elle est protégée des perturbations du champ magnétique ambiant par un blindage double couche en mu-métal.



Figure 6.20 – Résonance CPT dans une microcellule Cs-Ne chauffée à 80 °C. Les données expérimentales (en noir) sont ajustées avec un profil Lorentzien (en rouge). La largeur à mi-hauteur est mesurée à 1,04 kHz et le contraste à 0,93%. Image extraite de [99].



Figure 6.21 – Schéma du banc de mesure utilisé pour la caractérisation des microcellules Cs-Ne-He. DFB : diode laser Distributed FeedBack. MZ EOM : modulateur électro-optique type Mach-Zehnder. Michelson : système à retard type Michelson. V_{bias} : tension continue appliquée au modulateur pour la suppression de porteuse. OL : oscillateur local. CF : collimateur fibré. PD : photodiode. D.S.1 et D.S.2 : détections synchrones.

Une photodiode bas bruit vient détecter le faisceau optique transmis par la microcellule. La diode laser est verrouillée en fréquence sur le maximum du creux d'absorption du mélange Cs-Ne-He en modulant le courant de la diode avec un signal sinusoïdal à 60 kHz. Une détection synchrone vient démoduler le signal issu de la photodiode et le signal d'erreur produit est utilisé pour corriger le courant laser et donc sa fréquence. L'oscillateur local est verrouillé sur le maximum de transmission du pic CPT par une deuxième détection synchrone qui vient corriger la fréquence du quartz à

10 MHz. Le signal de sortie du quartz est comparé avec un signal de référence d'une horloge à jet de césium.

6.3.2/ Résultats expérimentaux

Spectroscopie basique

La figure 6.22 représente un exemple de signal CPT détecté dans une microcellule Cs-Ne-He, ici la cellule 2.



Figure 6.22 – Résonance CPT détectée dans une microcellule Cs-Ne-He chauffée à 87 °C. La puissance laser en entrée est égale à 82,6 μ W. La courbe rouge est un ajustement Lorentzien des données expérimentales. La largeur à mi-hauteur vaut 7,5 kHz et le contraste vaut 9,6%.

La cellule est chauffée à 87 °C et la puissance laser en entrée vaut 82,6 μ W. Les données expérimentales sont ajustées avec une Lorentzienne dont la largeur à mi-hauteur vaut 7,5 kHz. Le contraste est mesuré à 9,6%.

La figure 6.23 montre l'évolution du contraste en fonction de la température de la cellule pour une puissance d'entrée de 55 μ W.

Nous constatons que le contraste augmente puis diminue. Ceci s'explique par une augmentation de la densité atomique avec la température mais également une augmentation de l'épaisseur optique, provoquée par l'agitation thermique qui augmente, et du nombre de collisions [112, 129]. Le contraste maximum est mesuré pour une température de 87 °C. Nous avons trouvé un optimum similaire pour les autres microcellules.

La figure 6.24 représente l'évolution de la largeur à mi-hauteur et le ratio "contraste sur largeur à mi-hauteur" en fonction de la puissance optique P_l en entrée de la cellule pour une température de 87 °C.

La dépendance de la largeur à mi-hauteur (FWHM) avec la puissance laser est ajustée avec une droite telle que $FWHM = 2,8 + 0,05 \cdot P_l$ avec la largeur à mi-hauteur exprimée en kHz et la puissance laser en μ W. Nous trouvons ainsi une largeur à mi-hauteur à puissance optique nulle de 2,8 kHz.

Le ratio "contraste sur largeur à mi-hauteur" est maximisé pour les puissances laser inférieures à 35 μ W. Ceci indique que la stabilité de fréquence court-terme de l'horloge devrait être optimisée pour les basses puissances optiques [129, 112].



Figure 6.23 – Évolution du contraste de la résonance CPT en fonction de la température de la cellule pour une puissance laser en entrée égale à 55 μ W. Le contraste maximum est mesuré à 87 °C.



Figure 6.24 – Évolution de la largeur à mi-hauteur et du ratio "contraste sur largeur à mi-hauteur" de la résonance CPT en fonction de la puissance optique en entrée de la cellule pour une température de 87 °C.

Mesure des températures d'inversion

La figure 6.25 montre le déplacement de la fréquence d'horloge mesuré dans les 4 microcellules Cs-Ne-He.

Toutes les microcellules possèdent une température d'inversion supérieure à 80 °C. Celles-ci sont mesurées à 89,7 °C, 89,6 °C, 91,7 °C et 94,6 °C pour les cellules 1 à 4 respectivement. Le déplacement de fréquence mesuré à la température d'inversion vaut 30 260 Hz, 30 129 Hz, 31 250 Hz et 31 072 Hz pour les cellules 1 à 4 respectivement.

D'après ces données, nous pouvons estimer la pression totale de gaz tampon au sein de la cellule en utilisant l'équation (5.9). Nous pouvons également en déduire le ratio des pressions partielles



Figure 6.25 – Déplacement de la fréquence d'horloge en fonction de la température de la cellule.(a) : cellule 2. (b) : cellule 3. (c) : cellule 4.

en suivant l'équation (5.11). Pour la détermination de la pression totale et du ratio des pressions partielles, nous utilisons les coefficients de déplacement collisionnel publié par Kozlova *et al.* pour le néon [101] et nos coefficients pour l'hélium. Les résultats sont résumés dans le tableau 6.1.

Cellule	T_i (°C)	Δv_{bg} (Hz) @ T_i	P _{mes} (Torr) @0 °C	Ne (%)	He (%)
1	89,7	30 260	39,4	94,7	5,3
2	89,6	30 129	39,2	94,7	5,3
3	91,7	31 250	39,7	93,3	6,7
4	94,6	31 072	38,1	91,2	8,8

Tableau 6.1 – *Résumé des mesures des caractéristiques des microcellules Cs-Ne-He. L'incertitude* sur la température d'inversion T_i , le déplacement de fréquence Δv_{bg} , la pression totale P_{mes} et les pressions partielles sont données à ±3 °C, ±5 Hz, ±0,2 Torr et ±0,2% respectivement.

Nous constatons un écart en pression de l'ordre de 2%, ce qui montre une bonne homogénéité

de la pression au sein du wafer. Néanmoins, nous constatons une certaine disparité au niveau du rapport des pressions partielles et donc de la température d'inversion, notamment avec la cellule 4. En effet, celle-ci était placée sur le pourtour du wafer. Ceci peut s'expliquer par la grande volatilité de l'hélium qui provoque des gradients du rapport des pressions partielles. En effet, le remplissage de la chambre se fait à environ 45 °C. Au moment de la soudure anodique, les deux wafers sont mis en contact et la température est augmentée à environ 350 °C. À ce moment là, nous ne sommes plus en mesure de contrôler ni de savoir ce qui se passe exactement au niveau de la répartition des gaz tampon au sein de la chambre et donc des microcellules.

Il est important de noter que la température d'inversion augmente avec la pression partielle d'hélium, ce qui nous conforte dans la détermination des coefficients de déplacement collisionnel de l'hélium.

Nous avons également constaté une dérive du déplacement de la fréquence d'horloge de l'ordre de 2 Hz/heure. Cette dérive est stable dans le temps et possède les mêmes caractéristiques que celle observée dans les cellules de taille centimétrique. Nous pensons donc fortement à une fuite d'hélium à travers les parois de la cellule ou à l'interface verre-silicium. En effet, ces cellules ont été réalisées avec un procédé de soudure anodique optimisé pour le néon seul et non pas en mélange avec l'hélium. Cette dérive traduirait une fuite de l'ordre $1,6 \times 10^{-3}$ Torr/heure ce qui limiterait la stabilité à environ 5×10^{-9} /jour. Une étude menée récemment montre que le néon, bien que plus lourds que l'hélium, fuit également par perméation [122]. Il existe néanmoins des solutions, telle l'utilisation de verre de type ASG ou Pyrex®, pour limiter cette fuite.

Nonobstant cette fuite d'hélium, nous sommes confiants dans le mélange néon-hélium pour obtenir des températures d'inversion supérieures à 80 °C. Ce mélange a fait l'objet d'un dépôt de brevet le 17 octobre 2014 sous le numéro d'enregistrement national 14/02343. Un article sur le sujet a été publié dans la revue *Optics Express* [158].

7

Conclusion générale

Ce mémoire de thèse résume nos travaux de recherche sur les gaz tampon contenus dans les cellules à vapeur de césium, destinées aux horloges atomiques compactes et miniatures, et plus particulièrement l'hélium et le xénon.

L'objectif principal de cette thèse était la recherche de nouveaux gaz ou mélanges de gaz tampon de manière à obtenir une température d'inversion supérieure à 80 °C pour les horloges CPT miniatures à césium. En effet, notre procédé de fabrication des microcellules nous interdit l'utilisation du diazote, classiquement utilisé en mélange avec de l'argon. Pour remplir cet objectif, nous avons recherché les coefficients de déplacement collisionnel de différents gaz tampon dans la littérature. Il s'est avéré que ces coefficients disponibles ont été mesurés dans le cas du césium, contrairement au rubidium. Les coefficients disponibles ont été mesurés dans les années 1980, voire 1960 pour certains, et ceux-ci souffrent d'une certaine dispersion. Néanmoins, notre choix s'est porté sur deux espèces atomiques, l'hélium et le xénon, qui, au vu des coefficients publiés, pouvaient convenir à l'obtention de températures d'inversion élevées.

Pour mesurer les coefficients de déplacement collisionnel du xénon et de l'hélium, nous avons commandé 3 cellules, de tailles centimétriques, à vapeur de césium remplies respectivement avec une pression de gaz tampon de 30 et 50 Torr de xénon et 50 Torr d'hélium.

Nous avons monté un banc de mesure basé sur une horloge CPT. De manière synthétique, le banc comprend une diode laser DFB émettant sur la raie D_1 du césium stabilisée en fréquence sur un dispositif d'absorption saturée, un modulateur électro-optique de phase modulé à 9,192 GHz de manière à générer les raies optiques nécessaires à l'interaction CPT. Le faisceau optique est grossi et polarisé circulairement pour la réalisation du pompage des atomes dans l'état CPT.

Nous avons également conçu un module physique pour accueillir ces cellules. Ce module comprend un four pour chauffer la cellule, un solénoïde de champ magnétique pour lever la dégénérescence Zeeman et un double blindage magnétique.

Les différents éléments du banc de mesure ont été caractérisés de manière à obtenir les meilleurs paramètres expérimentaux pour assurer une bonne stabilité de l'horloge et donc une bonne précision de mesure. Cette stabilité est estimée à 10^{-11} à 1 seconde soit une précision de 0,1 Hz sur la mesure de la fréquence d'horloge.

La détermination des coefficients de déplacement collisionnel de la fréquence d'horloge passe par une étape préliminaire de mesure de la pression de gaz interne. Cette mesure est basée sur une méthode spectroscopique par comparaison du déplacement et/ou de l'élargissement des spectres d'absorption du césium pur et du césium en présence de gaz tampon. Les mesures de pression ont révélé des différences avec les pressions demandées au fabricant. Les mesures par déplacement des spectres d'absorption ont révélé des pressions, à la température de référence $T_0 = 273$ K, de $35,0 \pm 1,7$ et $17,9 \pm 1,0$ Torr pour les cellules devant contenir initialement, toujours à la température de référence, respectivement $46,2 \pm 0,3$ et $27,7 \pm 0,3$ Torr de xénon et $28,3 \pm 1,4$ Torr pour la cellule devant contenir $46,2 \pm 0,3$ Torr d'hélium. Nos mesures de déplacement ont été confirmées par des mesures d'élargissement.

Nous avons également caractérisé la dépendance thermique du déplacement et de l'élargissement des transitions optiques en présence de ces gaz tampon. Nous obtenons, pour le xénon, un coefficient $n = 0.63 \pm 0.07$ pour le déplacement et un coefficient $p = 0.82 \pm 0.20$ pour l'élargissement. Concernant l'hélium, nous obtenons $n = 0.34 \pm 0.17$ et $p = 0.62 \pm 0.12$. Ces valeurs sont, à notre connaissance, les premières valeurs expérimentales de n et p reportées pour les gaz hélium et xénon avec du césium.

Nous avons réalisé des mesures de déplacement collisionnel de la fréquence d'horloge du césium en présence de xénon ou d'hélium. Ces mesures consistent, à une température donnée, à extrapoler la valeur du déplacement de fréquence à puissance optique nulle, de manière à s'affranchir du déplacement lumineux provoqué par le laser. Ces mesures ont révélé le caractère quadratique du déplacement collisionnel provoqué par l'hélium, comme le prévoit l'équation (5.7).

Concernant le xénon, nous avons obtenu un caractère cubique du déplacement collisionnel qui n'est toujours pas expliqué. Différentes pistes s'ouvrent à nous pour expliquer ce caractère, notamment la formation de molécules de van der Waals Cs–Xe qui viendraient perturber les niveaux d'énergie du césium et donc la fréquence d'horloge. Un effet de saturation optique provoqué par le diamètre élevé du faisceau est également à envisager.

Connaissant précisément la valeur de la pression de gaz tampon, nous avons pu déterminer une première estimation des coefficients de déplacement collisionnel. Pour l'hélium nous obtenons un coefficient linéaire en pression $\beta_{He} = 1233 \pm 32$ Hz/Torr, un coefficient linéaire en température $\delta_{He} = 2,01 \pm 0,12$ Hz/(Torr.K) et un coefficient quadratique en température $\gamma_{He} = -7,51 \pm 0,44$ mHz/(Torr.K). À notre connaissance, le coefficient γ_{He} n'a encore jamais été reporté dans la littérature.

Concernant le xénon, la détermination des coefficients est sujette à plus de difficultés. En effet, le comportement cubique du déplacement de la fréquence d'horloge n'est pas prévu par l'équation (5.7). Nous observons notamment une température d'inversion qui dépend de la valeur de la pression de xénon dans les cellules. Il a été montré que les gaz tampon lourds, comme l'argon et le xénon, ont tendance à provoquer un déplacement collisionnel linéaire. Nous avons donc fait le choix de ne garder que la partie linéaire du déplacement mesuré. Ce choix nous a conduit aux coefficients suivants; pour la cellule contenant 17,9 ± 1,0 Torr de xénon, nous mesurons $\beta_{Xe} = -2731 \pm 162 \text{ Hz/Torr et } \delta_{Xe} = -0.70 \pm 0.15 \text{ Hz/(Torr.K)}$. Pour la cellule contenant 35,0 ± 1,7 Torr de xénon, nous mesurons $\beta_{Xe} = -1.27 \pm 0.13 \text{ Hz/(Torr.K)}$. Ces différences dans les coefficients mesurés proviennent directement de ce caractère cubique qui pourrait être lié aux faibles amplitudes des signaux CPT relevés. Dans le but de confirmer ces observations, de nouvelles mesures avec du xénon seront refaites avec un schéma de pompage type Push-Pull de manière à augmenter le signal CPT. De plus, une collaboration avec Salvatore Micalizio de l'INRIM, Italie, sera réalisée pour étudier de manière plus théorique les effets provoqués par les gaz tampon lourds sur le césium.

Néanmoins, nous avons pu déterminer que l'hélium est un bon candidat en mélange avec du néon pour obtenir des températures d'inversion supérieures à 80 °C. Un article reportant ces résultats à été soumis à *Optics Express* [158]. Une demande de brevet, pour la protection du mélange Ne-He, a également été déposée sous le numéro d'enregistrement national 14/02343. De plus, les résultats liés aux mesures optiques et aux coefficients collisionnels sont l'objet de la rédaction d'un article

à soumettre prochainement dans *Physical Review A*. Cependant, nous voulons mener quelques investigations supplémentaires avant la soumission.

Nous avons également constaté une fuite de l'hélium à travers les parois des cellules. En effet, l'hélium est extrêmement léger (0,169 kg/m³) et volatil et celui-ci parvient à passer à travers les parois des cellules. Cette fuite a été confirmée par des mesures de fréquence d'horloge sur des microcellules remplies d'un mélange néon et hélium, révélant une dérive de la fréquence d'horloge de l'ordre 2 Hz/heure soit une fuite d'hélium d'environ 1,6 mTorr/heure. Cette valeur est anormalement élevée compte tenu du facteur de perméation de l'hélium dans du Pyrex® [122]. Ceci peut être expliqué par un défaut de soudure anodique lors de la fabrication de ces microcellules, la soudure n'étant pas optimale dans le cas d'un mélange Ne-He. De plus, cette étude récente a montré que le néon peut également fuir par perméation.

En l'état, cette fuite rend le mélange Ne-He inutilisable pour une horloge atomique CPT. Une piste possible pour stabiliser le mélange serait d'utiliser un autre type de verre constituant les parois de la cellules. Du verre aluminosilicate (ASG - *AluminoSilicate Glass*) ou du Pyrex® est à envisager. Ce verre est, d'ailleurs, au coeur des recherches d'une équipe du NIST travaillant à la réduction des fuites d'hélium dans des cellules destinées aux horloges atomiques [144].

Pour valider l'obtention de températures d'inversion supérieures à 80 °C grâce à un mélange néon-hélium, nous avons fabriqué des microcellules en utilisant une technologie de fabrication originale où la vapeur de césium est libérée après le scellement définitif de la cellule. Ces microcellules ont été remplies pour l'occasion avec un mélange de néon et d'hélium. Nous avons mesuré des températures d'inversion à $(89,7 \pm 3,0)$, $(89,6 \pm 3,0)$, $(91,0 \pm 3,0)$ et $(94,6 \pm 3,0)$ °C dans quatre microcellules issues du même wafer. La disparité des températures d'inversion provient de la présence de gradients de quantité d'hélium qui se forment lors du scellement à haute température des cellules.

La mesure des coefficients de déplacement collisionnel s'est faite sur un nombre restreint de cellules. Par manque de temps nous n'avons pu commander ou même fabriquer d'autres cellules, remplies avec du xénon ou de l'hélium. Il serait intéressant dans un futur travail, de poursuivre ces mesures sur un plus grand nombre de cellules de manière à diminuer l'erreur statistique sur la mesure des coefficients. Ces nouvelles mesures nous permettraient également de trancher sur la valeur des coefficients associés au xénon et d'étudier ce comportement cubique du déplacement collisionnel de la fréquence d'horloge.

Enfin, il semble également primordial de mener des études sur différents types de verres pour réduire la fuite d'hélium et néon, et notamment sur les verres ASG ou Pyrex® qui, a priori, présentent un bon potentiel. Cette fuite est le dernier obstacle majeur à la réalisation d'horloges atomiques CPT miniatures travaillant à haute température grâce à l'utilisation d'un mélange de gaz tampon à base de néon et d'hélium, voire de néon seul.

«Tout obstacle renforce la détermination. Celui qui s'est fixé un but n'en change pas.» Léonard de Vinci

A

Constantes fondamentales et unités

Constante physique	Symbole	Valeur	Unité
Célérité de la lumière	С	299 792 458	$m.s^{-1}$
Constante de Planck	h	$6,626\ 069\ 57(29) \times 10^{-34}$	J.s
Perméabilité magnétique du vide	μ_0	$4\pi \times 10^{-7}$	$N.A^{-2}$
Permittivité diélectrique du vide	$\epsilon_0 = \frac{1}{\mu_0 c}$	$8,854\ 187\ 817 \times 10^{-12}$	$F.m^{-1}$
Impédance du vide	$Z_0 = \mu_0 \cdot c$	376,730 313 461	Ω
Constante de Coulomb	$\kappa = \frac{1}{4\pi\epsilon_0}$	$8,987\ 551\ 787 imes 10^{16}$	J
Charge élémentaire	$e = sqrt\frac{2h\alpha}{\mu_0 c}$	$1,602\ 176\ 565(35) \times 10^{-19}$	С
Magnéton de Bohr	$\mu_B = \frac{eh}{4\pi m_e}$	$927,400\ 968(20) \times 10^{-26}$	$J.T^{-1}$
Magnéton nucléaire	$\mu_N = \frac{eh}{4\pi m_p}$	5,050 783 53(11) $\times 10^{-27}$	$J.T^{-1}$
	×		
Constante de structure fine	$\alpha = \frac{e^2 \mu_0 c}{2h}$	7,297 352 596 8(24) × 10^{-3}	-
Constante de Rydberg	$R_{\infty} = \frac{m_e \alpha^2 c}{2h}$	10 973 731,568 539(55)	m^{-1}
Rayon de Bohr	$a_0 = \frac{\alpha}{4\pi R_\infty}$	$0,529\ 177\ 210\ 92(17) \times 10^{-10}$	m
Masse de l'électron	m_e	9,109 382 91(40) $\times 10^{-31}$	kg
Masse du proton	m_p	$1,672\ 621\ 777(74) \times 10^{-27}$	kg
		(- 1
Nombre d'Avogadro	N_A	$6,022\ 141\ 29(27) \times 10^{23}$	mol ⁻¹
Constante des gaz parfaits	R	8,314 462 1(75)	$J.mol^{-1}.K^{-1}$
Constante de Boltzmann	$k_B = \frac{R}{N_A}$	$1,380\ 648\ 8(13) \times 10^{-23}$	$J.K^{-1}$
Unité de masse atomique	m_{ν}	$1.660538921(73) \times 10^{-27}$	kg
Électron-Volt	eV	$1.602\ 176\ 565(35) \times 10^{-19}$	J
Atmosphère	atm	101 325	Pa

Tableau A.1 – Résumé des valeurs de quelques constantes physiques [159].

Unités de base du Système International

Les unités de base du Système International (SI) sont au nombre de 7 [160] :

- LE MÈTRE (M)

Le mètre est la distance parcourue par la lumière dans le vide pendant 1/299 792 458 seconde (17^e Conférence Générale des Poids et Mesures, 1983).

- LE KILOGRAMME (KG)

Le kilogramme est défini comme étant la masse du prototype international du kilogramme crée lors de la 1^{re} Conférence Général des Poids et Mesures en 1889. (3^e Conférence Générale des Poids et Mesures, 1901).

- LA SECONDE (S)

La seconde est la durée de 9 192 631 770 périodes de la radiation correspondant à la transition entre les deux niveaux hyperfins de l'état fondamental de l'atomes de césium 133 (13^e Conférence Générale des Poids et Mesures, 1967).

- l'ampère (A)

L'ampère est l'intensité d'un courant constant qui, maintenu dans deux conducteurs parallèles, rectilignes, de longueur infinie, de section circulaire négligeable et placés à une distance de 1 mètre l'un à l'autre dans le vide, produirait entre ces conducteurs une force égale à 2×10^{-7} newton par mètre de longueur (9^e Conférence Générale des Poids et Mesures, 1948).

- LE KELVIN (K)

Le kelvin, unité de température thermodynamique, est la fraction 1/273,16 de la température thermodynamique du point triple de l'eau (13^e Conférence Générale des Poids et Mesures, 1967).

- LA MOLE (MOL)

La mole est la quantité de matière d'un système contenant autant d'entités élémentaires qu'il y a d'atomes dans 0,012 kilogramme de carbone 12 (14^e Conférence Générale des Poids et Mesures, 1971).

- LE CANDELA (CD)

Le candela est l'intensité lumineuse, dans une direction donnée, d'une source qui émet un rayonnement monochromatique de fréquence 540×10^{12} hertz et dont l'intensité énergétique dans cette direction est 1/683 watt par stéradian (16^e Conférence Générale des Poids et Mesures, 1979).

Remarque

Le kilogramme est encore la seule unité basée sur un artéfact. La masse du prototype varie au cours du temps, influençant les unités basées sur le kilogramme sur le long terme. En 2005, le Comité International des Poids et Mesures recommande de redéfinir le kilogramme en termes de constante fondamentale de la nature et plus particulièrement la constante de Planck h.

En 2014, lors de la 25^e Conférence Générale des Poids et Mesures, il a été décidé de réviser le SI en proposant de relier la définition du kilogramme, de l'ampère, du kelvin et la mole à des valeurs numériques exactes, respectivement, de la constante de Planck h, de la charge élémentaire e, de la constante de Boltzmann k_B et du nombre d'Avogadro N_A [161].

Nom	Symbole	Unité dérivée	Unité de base
herz	Hz	-	s^{-1}
newton	Ν	-	m.kg.s ⁻²
pascal	Ра	$N.m^{-2}$	$kg.m^{-1}.s^{-2}$
joule	J	N.m	m ² .kg.s ⁻²
watt	W	$J.s^{-1}$	$m^2.kg.s^{-3}$
coulomb	С	-	A.s
volt	V	$W.A^{-1}$	$m^2.kg.A^{-1}.s^{-3}$
farad	F	$C.V^{-1}$	s4.A2.kg-1.m-2
ohm	Ω	$V.A^{-1}$	$m^2.kg.A^{-2}.s^{-3}$
webber	Wb	V.s	$m^2.kg.A^{-1}.s^{-2}$
tesla	Т	Wb.m ⁻²	$kg.A^{-1}.s^{-2}$

Unités dérivées du Système International

Tableau A.2 – Résumé de quelques grandeurs dérivées du Système International.

Conversion d'unités

- GAUSS / TESLA

 $1 \text{ G} = 10^{-4} \text{ T}$ $1 \text{ T} = 10\ 000 \text{ G}$

- pascal / torr (mmHg)

1 Pa ~ 0,0075 Torr 1 Torr ~ 133,322 Pa
B

Atome de césium et gaz tampon

L'ATOME DE CÉSIUM

Généralités et caractéristiques physiques

L'atome de césium est l'élément numéro 55 du tableau périodique des éléments. Il fait partie du 1^{er} groupe (atome alcalin), 6^e période, bloc s. Le seul isotope stable est le ${}^{133}Cs$.

Sa découverte est attribuée à Gustav Kirchoff et Robert Bunsen en 1860, bien que Carl Plattner l'ait "presque" découvert en 1846, le prenant en fait pour du sodium et du potassium. Le nom césium vient du latin "caesius" et signifie "bleu ciel", en référence à sa couleur de flamme. Il présente une couleur argentée-dorée.

La figure B.1 représente une photo d'une ampoule remplie de césium et un pictogramme résumant quelques caractéristiques du césium.



Figure B.1 – (a) : ampoule contenant du césium à l'état liquide. (b) : pictogramme compilant quelques informations sur le césium (numéro atomique, nom, masse atomique, structure électronique, température de fusion, température d'ébullition et masse volumique).

La table B.1 résume quelques caractéristiques physiques de l'atome de césium.

Masse volumique	1,873 g·cm ⁻³ (à 20 °C)
Volume molaire	$70,94 \times 10^{-6} \text{ m}^3 \cdot \text{mol}^{-1}$
Température de fusion	28,44 °C
Température d'ébullition	671 °C
Énergie de fusion	2,092 kJ·mol ^{-1}
Énergie de vaporisation	$67,74 \text{ kJ} \cdot \text{mol}^{-1}$
Chaleur massique	242 J·kg ⁻¹ ·K ⁻¹
Chaleur molaire	$32,210 \text{ J} \cdot \text{mol}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$
Conductivité électrique	$4,89 \times 10^{6} \text{ S} \cdot \text{m}^{-1}$
Conductivité thermique	$35,9 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$
Pression vapeur (25 °C)	$1,3 \times 10^{-6}$ Torr
	1.7×10^{-4} Pa
Numéro CAS	7440-46-2

Tableau B.1 – Résumé des valeurs de quelques caractéristiques physiques de l'atome de césium [162, 163, 120].

Les pressions vapeurs du césium sous sa phase solide P_v^S et liquide P_v^L sont données par [120] :

$$log_{10} P_{\nu}^{S} = -219,482\ 00 + \frac{1088,676}{T} - 0,083\ 361\ 85 \cdot T + 94,887\ 52 \cdot log_{10}T$$

$$log_{10} P_{\nu}^{L} = 8,221\ 27 - \frac{4006,048}{T} - 0,000\ 601\ 94 \cdot T + 0,196\ 23 \cdot log_{10}T$$
(B.1)

où P_v est la pression vapeur en Torr et T est la température en K.

La figure B.2 représente la valeur de la pression vapeur en fonction de la température du césium.



Figure B.2 – Pression vapeur de césium en fonction de sa température. La ligne pointillée représente le point de fusion [120].

PROPRIÉTÉS ATOMIQUES

L'atome de césium est un métal alcalin, il possède donc un seul électron sur sa couche de valence. Sa structure électronique est [Xe]6s¹. Cet atome est une base forte. À l'état solide, il présente une structure cristalline cubique centrée.

La table B.2 résume quelques caractéristiques atomiques de l'atome de césium.

Nombre de protons	55
Nombre de neutrons (^{133}Cs)	78
Masse atomique	132,905 451 931(27) u
	2,206 946 50(17) × 10^{-25} kg
Rayon atomique	265 pm
Rayon covalent	238 pm
Rayon de van der Waals	343 pm
Spin nucléaire	7/2
Facteur de Landé nucléaire	0,000 398 853 95(52)
Facteur de Landé électronique $(6^2 S_{1/2})$	2,002 540 32(20)
Déplacement Zeeman d'ordre 1	
de la transition $ m_F = 1\rangle \rightarrow m_F = 1\rangle$	700,84 kHz·G ⁻¹
Déplacement Zeeman d'ordre 2	
de la transition $ m_F = 0\rangle \rightarrow m_F = 0\rangle$	427,45 Hz·G ⁻²
Énergie de 1 ^{re} ionisation	375,7 kJ·mol ^{−1}
Énergie de 2 ^e ionisation	2234,3 kJ·mol ⁻¹
Énergie de 3 ^e ionisation	3400,0 kJ⋅mol ⁻¹
Électronégativité	0,79 (Pauling)
État d'oxydation	+1 (-1, rare)
Abondance naturelle (^{133}Cs)	100%

Tableau B.2 – *Résumé des valeurs de quelques caractéristiques atomiques de l'atome de césium* [162, 163, 120].

TRANSITIONS OPTIQUES

Le césium possède deux transitions optiques dans le proche infrarouge. La raie D_1 lie le niveau fondamental $6^2S_{1/2}$ au premier niveau excité $6^2P_{1/2}$ avec une longueur d'onde $\lambda_{D_1} \approx 894,6$ nm. La raie D_2 lie le niveau fondamental $6^2S_{1/2}$ au second niveau excité $6^2P_{3/2}$ avec une longueur d'onde $\lambda_{D_2} \approx 852,3$ nm.

Les tables B.3 et B.4 résument quelques propriétés des raies D_1 et D_2 du césium.

Les figures B.3 et B.4 représentent la répartition énergétique des niveaux des raies D_1 et D_2 du

Fréquence	$2\pi \cdot 335,116\ 048\ 807(41)\ THz$
Énergie de transition	1,385 928 475(50) eV
Longueur d'onde (vide)	894,592 959 86(11) nm
Longueur d'onde (air)	894,353 09 nm
Nombre d'onde (vide)	11 178,268 160 7(14) cm^{-1}
Durée de vie	34,894(44) ns
Taux de décroissance	$28,659(36) \times 10^6 \text{ s}^{-1}$
Largeur naturelle	$2\pi \cdot 4,561$ 2(57) MHz

Tableau B.3 – *Résumé de quelques propriétés de la transition optique* D_1 ($6^2S_{1/2} \rightarrow 6^2P_{1/2}$) *du césium [120].*

Fréquence	$2\pi \cdot 351,725$ 718 50(11) THz
Énergie de transition	1,454 620 542(53) eV
Longueur d'onde (vide)	852,347 275 82(27) nm
Longueur d'onde (air)	852,118 73 nm
Nombre d'onde (vide)	11 732,307 104 9(37) cm^{-1}
Durée de vie	30,473(39) ns
Taux de décroissance	$32,815(41) \times 10^6 \text{ s}^{-1}$
Largeur naturelle	$2\pi \cdot 5,222$ 7(66) MHz

Tableau B.4 – *Résumé de quelques propriétés de la transition optique* D_2 ($6^2S_{1/2} \rightarrow 6^2P_{3/2}$) *du césium [120].*

césium.



Figure B.3 – *Structure énergétique de la transition D*₁ *du césium [120].*



Figure B.4 – Structure énergétique de la transition D₂ du césium [120].

Césium en présence de gaz tampons

La table B.5 donne quelques informations sur les interactions du césium avec diverses espèces de gaz tampon.

Section efficace d'échange de spin σ_{se} (27 °C) : Cs-Cs	$2,18 \pm 0,12 \times 10^{-14} \text{ cm}^2 \text{ [164]}$
Constante de diffusion D_0 du Cs ($P_0 = 1$ atm et $T_0 = 0$ °C) :	
Не	$0,204 \pm 0,014 \text{ cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ [164]
Ne	$0,153 \pm 0,04 \text{ cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ [164]
Ar	$0,134 \pm 0,02 \text{ cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ [164]
Kr	$0,138 \pm 0,025 \text{ cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ [165]
N ₂	$0,073 \pm 0,015 \text{ cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ [164]
Section efficace de collision σ_{ba} :	
He (0 °C)	$2,80 \pm 0,2 \times 10^{-23} \text{ cm}^2 \text{ [164]}$
Ne (0 °C)	$9,27 \pm 0,9 \times 10^{-23} \text{ cm}^2 \text{ [164]}$
²¹ Ne (100 °C)	$2,0 \times 10^{-23} \text{ cm}^2 \text{ [146]}$
N ₂ (0 °C)	$55,2 \pm 4,4 \times 10^{-23} \text{ cm}^2 \text{ [164]}$
Ar (0 °C)	$104 \pm 10 \times 10^{-23} \text{ cm}^2 \text{ [164]}$
³⁷ Ar (100 °C)	$79 \times 10^{-23} \text{ cm}^2 \text{ [146]}$
Kr (0 °C)	$2550 \pm 360 \times 10^{-23} \text{ cm}^2 \text{ [165]}$
⁸³ Kr (100 °C)	$2900 \times 10^{-23} \text{ cm}^2 \text{ [146]}$
¹²⁹ Xe (100 °C)	$23\ 000 \times 10^{-23}\ \mathrm{cm}^2\ [146]$
²⁰⁹ Rn (100 °C)	$130\ 000 \times 10^{-23}\ \mathrm{cm}^2\ [146]$

Tableau B.5 – Résumé de quelques données sur l'interaction césium et gaz tampons.

BIBLIOGRAPHIE

- [1] S. KNAPPE et al. : A microfabricated atomic clock. Applied Physics Letters, 85(9):1460–1462, 2004.
- [2] QuantumTM SA.45s Chip Scale Atomic Clock, Microsemi. http://www.microsemi. com/products/timing-synchronization-systems/embedded-timing-solutions/components/ sa-45s-chip-scale-atomic-clock.
- [3] C. AUDOIN et B. GUINOT : *The measurement of time : time, frequency and the atomic clock.* Cambridge University Press, 2001.
- [4] N. F. RAMSEY : A molecular beam resonance method with separated oscillating fields. *Physical Review*, 78(6):695, 1950.
- [5] E. de CLERCQ : L'étalon primaire de fréquence à jet de césium du BNM-SYRTE. *Bulletin du BNM*, 125, 2004.
- [6] W. GERLACH et O. STERN : Das magnetische moment des silberatoms. Zeitschrift für Physik A Hadrons and Nuclei, 9(1):353–355, 1922.
- [7] A. BAUCH *et al.* : Performance of the PTB reconstructed primary clock CS1 and an estimate of its current uncertainty. *Metrologia*, 35(6):829, 1998.
- [8] A. BAUCH et al. : CS2 : The PTB's new primary clock. Instrumentation and Measurement, *IEEE Transactions on*, 1001(2):613–616, 1987.
- [9] A. KASTLER : Quelques suggestions concernant la production optique et la détection optique d'une inégalité de population des niveaux de quantifigation spatiale des atomes. application à l'expérience de stern et gerlach et à la résonance magnétique. *J. phys. radium*, 11(6):255– 265, 1950.
- [10] K. HAGIMOTO *et al.* : Accuracy evaluation of the optically pumped Cs frequency standard at NRLM. *Instrumentation and Measurement, IEEE Transactions on*, 48(2):496–499, 1999.
- [11] A. HASEGAWA et al. : An improved, optically-pumped, primary frequency standard. In Precision Electromagnetic Measurements Digest, volume 1, pages 177–178, 1998.
- [12] A. MAKDISSI et E. de CLERCQ : Evaluation of the accuracy of the optically pumped caesium beam primary frequency standard of bnm-lptf. *Metrologia*, 38(5):409, 2001.
- [13] J. H. SHIRLEY *et al.* : Accuracy evaluation of the primary frequency standard NIST-7. *Metrologia*, 38(5):427, 2001.
- [14] L. S. CUTLER *et al.* : Frequency pulling by hyperfine σ transitions in cesium beam atomic frequency standards. *Journal of applied physics*, 69(5):2780–2792, 1991.
- [15] A. CLAIRON *et al.* : Preliminary accuracy evaluation of a cesium fountain frequency standard. *In Proc. 5th Symp. Frequency Standards and Metrology*, pages 49–59. Singapore : World Scientific, 1996.
- [16] D. M. MEEKHOF *et al.* : Accuracy evaluation of a cesium fountain primary frequency standard at NIST. *Instrumentation and Measurement, IEEE Transactions on*, 50(2):507–509, 2001.
- [17] J. GUÉNA et al. : Progress in atomic fountains at LNE-SYRTE. Ultrasonics, Ferroelectrics, and Frequency Control, IEEE Transactions on, 59(3):391–409, 2012.

- [18] N. F. RAMSEY: A new molecular beam resonance method. *Physical Review*, 76(7):996, 1949.
- [19] F. RIEHLE: Frequency standards : basics and applications. John Wiley & Sons, 2006.
- [20] D. W. ALLAN: Statistics of atomic frequency standards. Proceedings of the IEEE, 54(2):221– 230, 1966.
- [21] J. VANIER et C. AUDOIN : *The quantum physics of atomic frequency standards*, volume 1&2. Hilger Bristol, 1989.
- [22] F. VERNOTTE : Stabilité temporelle et fréquentielle des oscillateurs : modèles. *Techniques de l'Ingénieur*, RE1(R680):R680/1–R680/10, 2006.
- [23] F. VERNOTTE : Stabilité temporelle et fréquentielle des oscillateurs : outils d'analyse. Techniques de l'Ingénieur, RE1(R681):R681/1–R681/10, 2006.
- [24] NATIONAL INSTITUTE OF STANDARDS AND TECHNOLOGY : Yb lattice clock. http://www.nist.gov/ pml/div688/grp80/yb-lattice-clock.cfm, août 2014.
- [25] X. BAILLARD et al. : Optical lattice clock with strontium atoms. Revue française de métrologie, 2009-1(17):11–27, 2009.
- [26] I. USHIJIMA *et al.* : Cryogenic optical lattice clocks with a relative frequency difference of 1×10^{-18} . *arXiv preprint arXiv* :1405.4071, 2014.
- [27] G. E. MARTI *et al.* : A Sr clock with total uncertainty of 2×10^{-18} and development of the new apparatus. *Bulletin of the American Physical Society*, 60, 2015.
- [28] BUREAU INTERNATIONAL DES POIDS ET MESURES : Réalisation pratique de la définition de l'unité de temps. www.bipm.org/utils/fr/pdf/SIApp2_s_fr.pdf, juin 2013.
- [29] Observatoire de PARIS : International Earth rotation and reference systems service (IERS), bulletin c 49. ftp://hpiers.obspm.fr/iers/bul/bulc/bulletinc.dat, janvier 2015.
- [30] Official U.S. Government information about the Global Positioning System (GPS) and related topics. http://www.gps.gov/systems/gps/space/, décembre 2014.
- [31] O. KOZLOVA : Caractérisation d'une horloge à piégeage cohérent de population dans une vapeur thermique de césium. Principaux effets pouvant affecter la stabilité de fréquence à moyen-long terme. Thèse de doctorat, Université Pierre et Marie Curie-Paris VI, 2012.
- [32] R. WYNANDS et S. WEYERS : Atomic fountain clocks. *Metrologia*, 42(3):S64, 2005.
- [33] S. GROP *et al.* : ELISA : a cryocooled 10 GHz oscillator with 10^{-15} frequency stability. *Review of Scientific Instruments*, 81(2):025102, 2010.
- [34] S. G. GROP *et al.*: Unprecedented long-term frequency stability with a microwave resonator oscillator. *Ultrasonics, Ferroelectrics, and Frequency Control, IEEE Transactions on*, 58(8): 1694–1697, 2011.
- [35] V. GIORDANO *et al.* : New-generation of cryogenic sapphire microwave oscillators for space, metrology, and scientific applications. *Review of Scientific Instruments*, 83(8):085113, 2012.
- [36] J. G. HARTNETT et al. : Ultra-low-phase-noise cryocooled microwave dielectric-sapphireresonator oscillators. Applied Physics Letters, 100(18):183501, 2012.
- [37] T. L. NICHOLSON *et al.* : Systematic evaluation of an atomic clock at 2×10^{-18} total uncertainty. *Nature Communications*, 6, 2015.
- [38] R. SZMUK *et al.* : Stability of a trapped atom clock on a chip. *arXiv preprint arXiv*:1502.03864, 2015.
- [39] W. PAUL : Electromagnetic traps for charged and neutral particles (nobel lecture). Angewandte Chemie International Edition in English, 29(7):739–748, 1990.

- [40] T. ROSENBAND *et al.* : Frequency ratio of Al⁺ and Hg⁺ single-ion optical clocks; metrology at the 17th decimal place. *Science*, 319(5871):1808–1812, 2008.
- [41] J. D. PRESTAGE et al. : Progress on small mercury ion clock for space applications. In Frequency Control Symposium, 2009 Joint with the 22nd European Frequency and Time forum. IEEE International, pages 54–57. IEEE, 2009.
- [42] T. BANDI *et al.* : Double-resonance in alkali vapor cells for high performance and miniature atomic clocks. *In Frequency Control Symposium (FCS), 2012 IEEE International*, pages 1–6. IEEE, 2012.
- [43] M. PELLATON et al. : Study of laser-pumped double-resonance clock signals using a microfabricated cell. Physica Scripta, 2012(T149):014013, 2012.
- [44] J. KITCHING *et al.* : Miniature vapor-cell atomic-frequency references. *Applied Physics Letters*, 81(3):553–555, 2002.
- [45] T. BANDI *et al.* : High-performance laser-pumped rubidium frequency standard for satellite navigation. *Electronics letters*, 47(12):698–699, 2011.
- [46] C. STEFANUCCI *et al.* : Compact microwave cavity for high performance rubidium frequency standards. *Review of Scientific Instruments*, 83(10):104706, 2012.
- [47] S. KANG *et al.* : Demonstration of a high-performance pulsed optically pumped Rb clock based on a compact magnetron-type microwave cavity. *Journal of Applied Physics*, 117(10): 104510, 2015.
- [48] A. GODONE *et al.* : Physics characterization and frequency stability of the pulsed rubidium maser. *Physical Review A*, 74(4):043401, 2006.
- [49] S. MICALIZIO *et al.* : Metrological characterization of the pulsed Rb clock with optical detection. *Metrologia*, 49(4):425, 2012.
- [50] J. LIN *et al.* : Detection of ultrahigh resonance contrast in vapor-cell atomic clocks. *Optics letters*, 37(24):5036–5038, 2012.
- [51] A. GODONE *et al.* : Pulsed optically pumped frequency standard. *Physical Review A*, 70(2): 023409, 2004.
- [52] S. KNAPPE : Dark Resonance Magnetometers and Atomic Clocks. Thèse de doctorat, Université de Bonn, 2001.
- [53] J.-M. DANET *et al.* : Dick effect in a pulsed atomic clock using coherent population trapping. Ultrasonics, Ferroelectrics and Frequency Control, IEEE Transactions on, 61(4):567–574, 2014.
- [54] M. ABDEL-HAFIZ et R. BOUDOT : Preliminar results of a Cs vapor cell CPT clock using push-pull optical pumping. *In International Frequency Control Symposium & European Frequency and Time Forum Denver, Colorado, USA.* IEEE, 2015.
- [55] J. BROSSEL *et al.* : Gréation optique d'une inégalité de population entre les sous-niveaux Zeeman de l'état fondamental des atomes. *J. Phys. Radium*, 13(12):668–668, 1952.
- [56] J. BROSSEL et al. : Augmentation du taux d'orientation atomique de la vapeur de sodium en présence d'hydrogène. Comptes rendus hebdomadaires des séances de l'Académie des Sciences, 241(14):865–867, 1955.
- [57] R. H. DICKE : The effect of collisions upon the doppler width of spectral lines. *Physical Review*, 89(2):472, 1953.
- [58] M. ARDITI et J. L. PICQUÉ: A cesium beam atomic clock using laser optical pumping. preliminary tests. *Journal de Physique Lettres*, 41(16):379–381, 1980.

- [59] N. CYR et al. : All-optical microwave frequency standard : a proposal. Instrumentation and Measurement, IEEE Transactions on, 42(2):640–649, 1993.
- [60] G. ALZETTA *et al.* : An experimental method for the observation of RF transitions and laser beat resonances in oriented Na vapour. *Il Nuovo Cimento B Series 11*, 36(1):5–20, 1976.
- [61] G ORRIOLS : Nonabsorption resonances by nonlinear coherent effects in a three-level system. *Il Nuovo Cimento B Series 11*, 53(1):1–24, 1979.
- [62] R WYNANDS et A NAGEL : Precision spectroscopy with coherent dark states. Applied Physics B : Lasers and Optics, 68(1):1–25, 1999.
- [63] E. ARIMONDO : Coherent population trapping in laser spectroscopy. *Progress in optics*, 35:257–354, 1996.
- [64] M. STÄHLER *et al.* : Coherent population trapping resonances in thermal ⁸⁵Rb vapor : d_1 versus d_2 line excitation. *Optics letters*, 27(16):1472–1474, 2002.
- [65] J. VANIER : Atomic clocks based on coherent population trapping : a review. Applied Physics B, 81(4):421–442, 2005.
- [66] A. GODONE *et al.* : Dark-line in optically-thick vapors : inversion phenomena and line width narrowing. *The European Physical Journal D-Atomic, Molecular, Optical and Plasma Physics*, 18(1):5–13, 2002.
- [67] S. BRANDT et al. : Buffer-gas-induced linewidth reduction of coherent dark resonances to below 50 hz. Physical Review A, 56(2):R1063, 1997.
- [68] M. MERIMAA *et al.* : All-optical atomic clock based on coherent population trapping in ⁸⁵Rb. JOSA B, 20(2):273–279, 2003.
- [69] J. VANIER *et al.* : Coherent population trapping in cesium : Dark lines and coherent microwave emission. *Physical review A*, 58(3):2345, 1998.
- [70] D. KLEPPNER *et al.* : Broken atomic beam resonance experiment. *Physical Review Letters*, 1(7):232, 1958.
- [71] H. M. GOLDENBERG *et al.* : Atomic beam resonance experiments with stored beams. *Physical Review*, 123(2):530, 1961.
- [72] M. A. BOUCHIAT et J. BROSSEL : Relaxation of optically pumped Rb atoms on paraffin-coated walls. *Physical Review*, 147(1):41, 1966.
- [73] M. V. BALABAS *et al.* : Polarized alkali-metal vapor with minute-long transverse spinrelaxation time. *Physical review letters*, 105(7):070801, 2010.
- [74] S. J. SELTZER et al. : Testing the effect of surface coatings on alkali atom polarization lifetimes. Journal of Applied Physics, 104(10):103116, 2008.
- [75] A. GODONE et al. : Coherent population trapping maser, 1998.
- [76] V. SHAH et J. KITCHING : Advances in coherent population trapping for atomic clocks. Advances In Atomic, Molecular, and Optical Physics, 59:21–74, 2010.
- [77] J. KITCHING et al. : A microwave frequency reference based on VCSEL-driven dark line resonances in Cs vapor. Instrumentation and Measurement, IEEE Transactions on, 49(6): 1313–1317, 2000.
- [78] R. LUTWAK *et al.* : The chip-scale atomic clock : recent development progress. Rapport technique, DTIC Document, 2004.
- [79] V. Shah *et al.* : Compact phase delay technique for increasing the amplitude of coherent population trapping resonances in open λ systems. *Optics letters*, 31(15):2335–2337, 2006.

- [80] Y.-Y. JAU *et al.* : Push-pull optical pumping of pure superposition states. *Physical review letters*, 93(16):160802, 2004.
- [81] X. LIU *et al.* : Coherent-population-trapping resonances in buffer-gas-filled Cs-vapor cells with push-pull optical pumping. *Physical Review A*, 87(1):013416, 2013.
- [82] A. V. TAICHENACHEV *et al.* : On the unique possibility of significantly increasing the contrast of dark resonances on the d_1 line of ⁸⁷Rb. *Journal of Experimental and Theoretical Physics Letters*, 82(7):398–403, 2005.
- [83] S. A. ZIBROV *et al.* : Coherent-population-trapping resonances with linearly polarized light for all-optical miniature atomic clocks. *Physical Review A*, 81(1):013833, 2010.
- [84] E. E. MIKHAILOV *et al.* : Performance of a prototype atomic clock based on lin || lin coherent population trapping resonances in Rb atomic vapor. *JOSA B*, 27(3):417–422, 2010.
- [85] K.-I. WATABE *et al.* : High-contrast dark resonances with linearly polarized light on the D_1 line of alkali atoms with large nuclear spin. *Applied optics*, 48(6):1098–1103, 2009.
- [86] T. ZANON *et al.* : High contrast Ramsey fringes with coherent-population-trapping pulses in a double lambda atomic system. *Physical review letters*, 94(19):193002, 2005.
- [87] N. CASTAGNA et al. : Investigations on continuous and pulsed interrogation for a CPT atomic clock. Ultrasonics, Ferroelectrics and Frequency Control, IEEE Transactions on, 56(2): 246–253, 2009.
- [88] P. Yun *et al.* : Constructive polarization modulation for coherent population trapping clock. *Applied Physics Letters*, 105(23):231106, 2014.
- [89] S. H. YIM *et al.* : Polarization orthogonalizer for a pair of laser beams with nearly equal frequencies. *Review of Scientific Instruments*, 79(12):126104, 2008.
- [90] G. BAILI *et al.* : Experimental demonstration of a tunable dual-frequency semiconductor laser free of relaxation oscillations. *Optics letters*, 34(21):3421–3423, 2009.
- [91] P. YuN *et al.* : Quasi-bichromatic laser for a lin⊥lin coherent population trapping clock produced by vertical-cavity surface-emitting lasers. *Review of Scientific Instruments*, 83(9): 093111, 2012.
- [92] X. LIU et al. : Towards the detection of high-contrast Cs CPT resonances using a single modulated diode laser. In European Frequency and Time Forum (EFTF), 2012, pages 304– 308. IEEE, 2012.
- [93] P. DUMONT *et al.* : Low-noise dual-frequency laser for compact Cs atomic clocks. *Journal* of Lightwave Technology, 32(20):3817–3823, 2014.
- [94] Quantime : une horloge atomique de Cs miniature. https://www2.unine.ch/ltf/quantime_a_ cs_miniature_atomic_clock, 2014.
- [95] Y ZHAO *et al.* : CPT cesium-cell atomic clock operation with a 12-mW frequency synthesizer ASIC. *Instrumentation and Measurement, IEEE Transactions on*, 64(1):263–270, 2014.
- [96] Z. CHANG et al. : Micro Rb atomic vapor cells for the chip-scale atomic clock. In Frequency Control Symposium (FCS), 2014 IEEE International, pages 1–3. IEEE, 2014.
- [97] L. SHAO-LIANG *et al.* : Integrated physics package of a chip-scale atomic clock. *Chinese Physics B*, 23(7):074302, 2014.
- [98] MEMS Atomic Clocks for Timing, Frequency controls & Communications. http://www. mac-tfc.eu/index.php, 2012.
- [99] F. GRUET et al. : Metrological characterization of custom-designed 894.6 nm VCSELs for miniature atomic clocks. Optics express, 21(5):5781–5792, 2013.

- [100] D. MILETIC *et al.*: Quadratic dependence on temperature of Cs 0–0 hyperfine resonance frequency in single Ne buffer gas microfabricated vapour cell. *Electronics letters*, 46(15): 1069–1071, 2010.
- [101] O. Kozlova *et al.* : Temperature and pressure shift of the Cs clock transition in the presence of buffer gases : Ne, N₂, Ar. *Physical Review A*, 83(6):062714, 2011.
- [102] G. MILETI et P. THOMANN : Study of the S/N performance of passive atomic clocks using a laser pumped vapor. *In Proc. 9th Eur. Frequency and Time Forum*, pages 271–276, 1995.
- [103] G. J. DICK : Local oscillator induced instabilities in trapped ion frequency standards. Rapport technique, DTIC Document, 1987.
- [104] C. AUDOIN *et al.*: A limit to the frequency stability of passive frequency standards due to an intermodulation effect. *IEEE transactions on instrumentation and measurement*, 40(2):121– 125, 1991.
- [105] G. SANTARELLI *et al.* : Frequency stability degradation of an oscillator slaved to a periodically interrogated atomic resonator. *Ultrasonics, Ferroelectrics, and Frequency Control, IEEE Transactions on*, 45(4):887–894, 1998.
- [106] S. GUÉRANDEL *et al.* : High performance compact atomic clock based on coherent population trapping. *International Frequency Control Symposium*, 2014.
- [107] J. KITCHING *et al.* : Optical-pumping noise in laser-pumped, all-optical microwave frequency references. *JOSA B*, 18(11):1676–1683, 2001.
- [108] H. FIGGER et al. : Laser physics at the limits. Springer, 2002.
- [109] K. G. LIBBRECHT et J. L. HALL: A low-noise high-speed diode laser current controller. *Review* of scientific instruments, 64(8):2133–2135, 1993.
- [110] X. LIU: High Contrast Coherent Population Trapping Resonances in Cs Vapour Cells with A Simple-Architecture Laser System. Thèse de doctorat, Université de Franche-Comté, 2013.
- [111] X. LIU et R. BOUDOT : A Distributed-Feedback diode laser frequency stabilized on dopplerfree Cs line. *Instrumentation and Measurement, IEEE Transactions on*, 61(10):2852–2855, 2012.
- [112] S. KNAPPE *et al.* : Characterization of coherent population-trapping resonances as atomic frequency references. *JOSA B*, 18(11):1545–1553, 2001.
- [113] D. U. GUBSER *et al.* : Shielding of longitudinal magnetic fields with thin, closely spaced, concentric cylinders of high permeability material. *Review of Scientific Instruments*, 50(6): 751–756, 1979.
- [114] A. H. COUTURE *et al.* : Pressure shifts and broadening of the Cs D_1 and D_2 lines by He, N_2 , and Xe at densities used for optical pumping and spin exchange polarization. *Journal of Applied Physics*, 104(9):094912–094912, 2008.
- [115] A. ANDALKAR et R. B. WARRINGTON : High-resolution measurement of the pressure broadening and shift of the Cs D_1 and D_2 lines by N_2 and He buffer gas. *Physical review A*, 65(3):032708, 2002.
- [116] G. A. Prrz *et al.*: Pressure broadening and shift of the cesium D₁ transition by the noble gases and N₂, H₂, HD, D₂, CH₄, C₂H₆, CF₄, and ³He. *Physical Review A*, 80(6):062718, 2009.
- [117] W. DEMTRÖDER : Laser Spectroscopy : Vol. 1 : Basic Principles, volume 1. Springer, 2008.
- [118] J. J. OLIVERO et R. L. LONGBOTHUM : Empirical fits to the Voigt line width : a brief review. Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer, 17(2):233–236, 1977.

- [119] T. UDEM *et al.* : Absolute optical frequency measurement of the cesium d_1 line with a modelocked laser. *Physical review letters*, 82(18):3568, 1999.
- [120] D. A. STECK : Cesium D line data. Los Alamos National Laboratory (unpublished), 124, 2003.
- [121] E. BERNABEU et J. M. ALVAREZ : Shift and broadening of hyperfine components of the first doublet of cesium perturbed by foreign gases. *Physical Review A*, 22(6):2690, 1980.
- [122] S. ABDULLAH et al. : Aging studies on micro-fabricated alkali buffer-gas cells for miniature atomic clocks. Applied Physics Letters, 106(16):163505, 2015.
- [123] E. BERNABEU *et al.* : Pressure effects of helium, neon, and argon on the hyperfine structure of the first doublet of cesium. *JOSA*, 67(1):24–27, 1977.
- [124] H. C. JACOBSON : Moment analysis of atomic spectral lines. *Physical Review A*, 4(4):1363, 1971.
- [125] J. F. KIELKOPF : Predicted alkali collision broadening by noble gases based on semi-empirical potentials. *Journal of Physics B : Atomic and Molecular Physics*, 9(17):L547, 1976.
- [126] F. LEVI *et al.* : The light shift effect in the coherent population trapping cesium maser. *IEEE transactions on ultrasonics, ferroelectrics, and frequency control*, 47(2):466–470, 1999.
- [127] M. ZHU et L.S. CUTLER : Theoretical and experimental study of light shift in a CPT-based Rb vapor cell frequency standard. Rapport technique, DTIC Document, 2001.
- [128] T. ZANON-WILLETTE *et al.* : Ultrahigh-resolution spectroscopy with atomic or molecular dark resonances : Exact steady-state line shapes and asymptotic profiles in the adiabatic pulsed regime. *Physical Review A*, 84(6):062502, 2011.
- [129] R. BOUDOT *et al.* : Coherent population trapping resonances in Cs–Ne vapor microcells for miniature clocks applications. *Journal of Applied Physics*, 109(1):014912, 2011.
- [130] D. MILETIC *et al.* : AC Stark-shift in CPT-based Cs miniature atomic clocks. *Applied Physics B*, 109(1):89–97, 2012.
- [131] B.H. McGUYER *et al.* : Simple method of light-shift suppression in optical pumping systems. *Applied Physics Letters*, 94(25):251110, 2009.
- [132] A. NAGEL *et al.* : Light shift of coherent population trapping resonances. *EPL (Europhysics Letters)*, 48(4):385, 1999.
- [133] M. ARDITI et T. R. CARVER : Frequency shift of the zero-field hyperfine splitting of Cs 133 produced by various buffer gases. *Physical Review*, 112(2):449, 1958.
- [134] P. L. BENDER *et al.* : Optical detection of narrow ⁸⁷Rb hyperfine absorption lines. *Phys. Rev. Letters*, 1, 1958.
- [135] B. L. BEAN et R. H. LAMBERT : Temperature dependence of hyperfine density shifts. iv. ²³Na, ³⁹K, and ⁸⁵Rb in He, Ne, Ar, and N₂ at low temperatures. *Physical Review A*, 13(1):492, 1976.
- [136] K. DORENBURG *et al.* : Hyperfine structure density shift coefficients for K, Rb and Cs at high buffer gas densities. *Zeitschrift für Physik A Atoms and Nuclei*, 289(2):145–149, 1979.
- [137] F. GONG et al. : Nonlinear pressure shifts of alkali-metal atoms in inert gases. Physical review letters, 100(23):233002, 2008.
- [138] B. H. McGuyer *et al.* : Nonlinear pressure shifts of alkali-metal atoms in xenon. *In Frequency Control and the European Frequency and Time Forum (FCS), 2011 Joint Conference of the IEEE International*, pages 1–5. IEEE, 2011.

- [139] J. VANIER *et al.* : On hyperfine frequency shifts caused by buffer gases : Application to the optically pumped passive rubidium frequency standard. *Journal of Applied Physics*, 53(8):5387–5391, 1982.
- [140] O. Kozlova *et al.* : Temperature dependence cancellation of the Cs clock frequency in the presence of Ne buffer gas. *Instrumentation and Measurement, IEEE Transactions on*, 60(7):2262–2266, 2011.
- [141] L. NIERADKO *et al.*: New approach of fabrication and dispensing of micromachined cesium vapor cell. *Journal of Micro/Nanolithography, MEMS, and MOEMS*, 7(3):033013–033013, 2008.
- [142] M. ARDITI et T. R. CARVER : Pressure, light, and temperature shifts in optical detection of 0-0 hyperfine resonance of alkali metals. *Physical Review*, 124(3):800, 1961.
- [143] N. BEVERINI *et al.* : Buffer gas pressure shift in the $m_f = 0 \rightarrow m_f = 0$ ground state hyperfine line in Cs. *Optics Communications*, 37(6):394–396, 1981.
- [144] A. DELLIS *et al.* : Low He permeation cells for CSACs. *In International Frequency Control Symposium & European Frequency and Time Forum.* IEEE, 2015.
- [145] B. H. McGUYER : *Atomic physics with vapor-cell clocks*. Thèse de doctorat, Université de Princeton, 2012.
- [146] T. G. WALKER : Estimates of spin-exchange parameters for alkali-metal-noble-gas pairs. *Physical Review A*, 40(9):4959, 1989.
- [147] S. KNAPPE et al. : Atomic vapor cells for miniature frequency references. In Frequency Control Symposium and PDA Exhibition Jointly with the 17th European Frequency and Time Forum, 2003. Proceedings of the 2003 IEEE International, pages 31–32. IEEE, 2003.
- [148] L.-A. LIEW *et al.* : Microfabricated alkali atom vapor cells. *Applied Physics Letters*, 84(14): 2694–2696, 2004.
- [149] S. KNAPPE *et al.* : Atomic vapor cells for chip-scale atomic clocks with improved long-term frequency stability. *Optics Letters*, 30(18):2351–2353, 2005.
- [150] A. DOUAHI *et al.* : Vapour microcell for chip scale atomic frequency standard. *Electronics Letters*, 43(5):279–280, 2007.
- [151] M. HASEGAWA *et al.* : Microfabrication of cesium vapor cells with buffer gas for MEMS atomic clocks. *Sensors and Actuators A* : *Physical*, 167(2):594–601, 2011.
- [152] M. HASEGAWA *et al.* : Effects of getters on hermetically sealed micromachined cesium–neon cells for atomic clocks. *Journal of Micromechanics and Microengineering*, 23(5):055022, 2013.
- [153] B. J LAMBERT et F.-W. TANG : Rationale for practical medical device accelerated aging programs in AAMI TIR 17. *Radiation Physics and Chemistry*, 57(3):349–353, 2000.
- [154] R. LUTWAK et al. : CSAC : the chip-scale atomic clock. In Frequency Standards and Metrology, volume 1, pages 454–462, 2009.
- [155] J. C. CAMPARO et J. G. COFFER : Conversion of laser phase noise to amplitude noise in a resonant atomic vapor : The role of laser linewidth. Rapport technique, DTIC Document, 1999.
- [156] E. RUBIOLA : *Phase noise and frequency stability in oscillators*. Cambridge University Press, 2008.
- [157] R. BOUDOT et al. : Simple-design low-noise NLTL-based frequency synthesizers for a CPT Cs clock. Instrumentation and Measurement, IEEE Transactions on, 58(10):3659–3665, 2009.

- [158] E. KROEMER *et al.* : Cs vapor microcells with Ne-He buffer gas mixture for high operation-temperature miniature atomic clocks. *Optics express*, 23(14):18373–18380, 2015.
- [159] Fundamental Physical Constants from NIST. http://physics.nist.gov/cuu/Constants/Table/ allascii.txt, 2010.
- [160] Bureau International des Poids et Mesures. http://www.bipm.org/fr/measurement-units/ base-units.html, 2014.
- [161] Réunion de la Conférence Générale des Poids et Mesures. http://www.bipm.org/fr/ cgpm-2014/, 2014.
- [162] Royal Society of Chemistry. http://www.rsc.org/periodic-table/element/55/caesium, 2015.
- [163] W. M. HAYNES: CRC handbook of chemistry and physics. CRC press, 2013.
- [164] N. BEVERINI *et al.* : Foreign-gas-induced cesium hyperfine relaxation. *Physical Review A*, 4(2):550, 1971.
- [165] N. BEVERINI *et al.* : Optical pumping of caesium in the presence of heavy noble gases. *Zeitschrift für Physik*, 265(2):189–196, 1973.
- [166] Stanford Research Systems : "SR830 Basics", 3-1, Model SR830 DSP Lock-In Amplifier, Revision 2.5. Stanford Research Systems Inc, 1290-D Reamwood Avenue, Sunnyvale, California 94089, USA, octobre 2011.

Résumé :

Ce mémoire présente l'étude du déplacement collisionnel de la fréquence d'horloge du césium en présence du gaz tampon hélium ou xénon. L'introduction d'un gaz tampon dans les cellules à vapeur alcaline est nécessaire pour diminuer la largeur de raie de la résonance CPT par effet Dicke. Cependant, la présence de gaz tampon induit un déplacement quadratique de la fréquence d'horloge en fonction de la température de la cellule. Il est possible d'annuler la dépendance thermique du déplacement collisionnel en se plaçant à une température, dite d'inversion, déterminée par le ratio de gaz tampons introduits dans la cellule. Cette température est un point de fonctionnement de choix pour l'opération d'horloges atomiques miniatures et nécessite d'être de l'ordre de 90 voire 100 °C pour les applications à contraintes environnementales sévères.

Nous avons mesuré les valeurs des coefficients de déplacement collisionnel de l'hélium et du xénon. En première estimation, nous trouvons pour l'hélium : $\beta_{He} = 1233 \pm 32$ Hz/Torr, $\delta_{He} = 2,01 \pm 0,12$ Hz/(Torr.K) et $\gamma_{He} = -7,51 \pm 0,44$ mHz/(Torr.K²). Les gaz lourds, comme le xénon, sont supposés déplacer la fréquence d'horloge de manière linéaire. Cependant, nous observons un comportement cubique non-attendu qui traduirait une interaction avec des molécules de van der Waals. De ce fait, nous obtenons plusieurs valeurs des coefficients : $\beta_{Xe,1} = -2731 \pm 162$ Hz/(Torr.K). Ces coefficients restent, pour le moment, encore indéterminés précisément.

Nous avons établi qu'un mélange de gaz tampon néon-hélium permet d'obtenir des températures d'inversion supérieures à 80 °C. Des mesures dans des micro-cellules ont révélé des températures de l'ordre de 89 à 94 °C pour des mélanges à quelques pourcents d'hélium.

Mots-clés :

Horloge atomique compacte, piégeage cohérent de population, césium, gaz tampon, hélium, xénon, déplacement collisionnel, micro-cellule

Abstract:

This thesis presents a study on collisional shift of cesium clock frequency in the presence of helium or xenon buffer gas. Introduction of buffer gas in alkaline vapour cells is necessary to narrow the CPT linewidth by Dicke effect. Nevertheless, buffer gas induces a quadratic shift of the clock frequency versus temperature cell. Cancellation of collisional shift temperature dependence is possible at a so-called inversion temperature depending on the buffer gas ratio. This inversion temperature is great working point for micro atomic clocks. This temperature is required to be 90 or even 100 °C, especially to work in harsh environmental constraints.

We measured helium and xenon collisional shift coefficients. In a first estimation, we obtained : $\beta_{He} = 1233 \pm 32$ Hz/Torr, $\delta_{He} = 2,01 \pm 0,12$ Hz/(Torr.K) and $\gamma_{He} = -7,51 \pm 0,44$ mHz/(Torr.K²). The collisional clock frequency shift induced by heavyweight buffer gases, like xenon, is supposed to be linear. However, we observed a non-expected cubic behavior which could be linked to the interaction with van der Waals molecules. In this way, we measured several values of these coefficients : $\beta_{Xe,1} = -2731 \pm 162$ Hz/Torr and $\delta_{Xe,1} = -0,70 \pm 0,15$ Hz/(Torr.K), $\beta_{Xe,2} = -2684 \pm 137$ Hz/Torr and $\delta_{Xe,2} = -1,27 \pm 0,13$ Hz/(Torr.K). These values remain undetermined precisely.

We established that a neon-helium buffer gas mixture could allow an inversion temperature superior to more than 80 °C. Inversion temperatures from 89 to 94 °C are measured in cesium vapor microcells filled with a mixture containing a few percent of helium.

Keywords:

Compact atomic clock, coherent population trapping, cesium, buffer gas, helium, xenon, collisional shift, microcell

PIM

École doctorale SPIM 16 route de Gray F - 25030 Besançon cedex
 tél. +33 (0)3 81 66 66 02 despim@univ-fcomte.fr www.ed-spim.univ-fcomte.fr

