HAL
open science

Lasers ultra-stables asservis sur trous-brûlés spectraux ; développement en vue d'une application aux horloges optiques

Olivier Gobron

▶ **To cite this version:**

Olivier Gobron. Lasers ultra-stables asservis sur trous-brûlés spectraux ; développement en vue d'une application aux horloges optiques. Physique [physics]. Université Pierre et Marie Curie, 2017. Français. NNT : . tel-01501185

HAL Id: tel-01501185

https://theses.hal.science/tel-01501185v1

Submitted on 3 Apr 2017

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

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

THÈSE DE DOCTORAT
DE L'UNIVERSITÉ PIERRE ET MARIE CURIE

École Doctorale « Physique en Île-de-France » :
Spécialité : Physique Quantique

réalisée
au Laboratoire SYstèmes de Référence Temps-Espace
de l'Observatoire de Paris

présentée par

Olivier GOBRON

pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ PIERRE ET MARIE CURIE

Sujet de la thèse :

Lasers ultra-stables asservis sur trous-brûlés spectraux ; développement en vue d'une application aux horloges optiques

soutenue le 03/03/2017

devant le jury composé de :

Mme	Saïda	GUELLATI-KHELIFA	Présidente du jury
M.	Yann	KERSALE	Rapporteur
M.	Thierry	CHANELIERE	Rapporteur
M.	Stefano	BARBIERI	Examinateur
M.	Yann	LE COQ	Directeur de thèse

À mes parents,

Remerciements

Ce travail de thèse a été effectué au laboratoire SYRTE à l'Observatoire de Paris, laboratoire des SYstèmes de Référence Temps-Espace. Je voulais exprimer ici mes remerciement à ses directeurs, Noël Dimarcq et Arnaud Landragin, pour m'avoir accueilli au sein du laboratoire.

Je voulais remercier les membres du jury : Saïda Guellati-Khélifa, Yann Kersalé, Thierry Chanelière, et Stéfano Barbieri, d'avoir participé à l'évaluation de mon travail et pour l'intérêt qu'ils y ont porté. Je remercie ici plus particulièrement Yann Kersalé et Thierry Chanelière pour le temps qu'ils ont consacré à la lecture rigoureuse du manuscrit et pour leurs rapports.

Durant ces 3 années, j'ai été encadré par Yann Le Coq. Je tiens à le remercier pour m'avoir permis de réaliser cette thèse sous sa supervision et pour m'avoir fait confiance pour mener à bien ce projet. Je lui exprime ma gratitude pour le temps qu'il m'a consacré, notamment le temps qu'il a passé à répondre à mes nombreuses interrogations. La clarté de ses explications m'ont permis de mieux appréhender un domaine de la physique auquel je n'étais pas familier au début de ma thèse. J'ai aussi apprécié ses encouragements qui m'ont permis d'avancer lorsque les difficultés associées à la pratique expérimentale de la physique entachaient mon moral.

J'ai intégré pendant trois ans l'équipe de métrologie des fréquences optiques, domaine où la compétition internationale est rude et exige un environnement scientifique d'excellence. Je tiens à remercier l'ensemble de l'équipe pour m'avoir fait bénéficié de cadre de travail exceptionnel, autant sur le plan humain que scientifique. Je remercie ainsi Sébastien Bize, Luigi De Sarlo, Ouali Acef, Paul-Eric Pottie, Peter Wolf. Je remercie chaleureusement Rodolphe Le Targat, pour son implication, son soutien, et pour son aide précieuse pour la poursuite de ma carrière. Je tiens à remercier les personnes avec qui j'ai eu le plaisir de partager mon bureau, Chunyan Shi pour sa gentillesse, et Jérôme Lodewyck pour sa bonne humeur communicative. Ses discussions avec Rodolphe ont grandement contribué à la bonne ambiance qui y régnait.

J'ai eu le plaisir de travailler avec deux postdocs et un thésard sur l'expérience. J'ai tout d'abord eu le grand plaisir de côtoyer Katharina Predehl depuis le premier jour de ma thèse jusqu'à la moitié. Je tiens à la remercier premièrement pour la patience dont elle a due faire preuve face à un thésard débutant sur une nouvelle thématique de recherche. Les conseils qu'elle m'a donné ont grandement contribué à ma progression rapide sur l'expérience. Je veux la remercier également pour son soutien moral face un cryostat quelque peu dissident. La culture bavaroise et les "bierrolux" vont me manquer. J'ai ensuite travaillé avec Kangyun Jung à la fin de ma thèse. Je veux le remercier pour sa gentillesse et son efficacité qui ont permis d'avoir des échanges scientifiques constructifs. L'œil neuf qu'il a apporté sur l'expérience m'a permis de progresser davantage. Même si ce fut bref, j'ai eu aussi plaisir à travailler avec Nicolas Galland. Je lui souhaite le meilleur pour la poursuite de sa thèse.

Je tiens à souligner le travail des équipes techniques du SYRTE qui contribuent largement aux bonnes performances de l'ensemble des expériences du laboratoire. Pour la partie électronique, je pense notamment à José Pinto et ses doigts de fée qui nous ont sorti de situations désespérées. Je le remercie également pour sa bonne humeur permanente. Je tiens à remercier Michel Lours, pour sa gentillesse et son humour qui m'ont permis de relativiser lorsque l'expérience ne fonctionnait pas. Je le remercie également pour son implication dans la réussite de ma thèse. Je remercie aussi l'équipe de mécanique du laboratoire qui nous a fournis certaines pièces pour des tests en milieu cryogénique. J'aimerais également remercier le service d'administration et de gestion (Marine Pailler, Francia Decostier, Christel Comte) pour leur efficacité et leur gentillesse qui ont grandement facilité les démarches administratives.

Pendant ma deuxième et troisième année de thèse, j'ai eu la chance d'enseigner à l'école Centrale Paris. Je voudrais donc remercier Gloria Foulet pour son encadrement, Delphine pour ses conseils avisés, Cyrille, Alexis, et les autres chargés d'enseignement pour les journées passées à discuter, plaisanter, et partager nos misères sur nos expériences respectives.

J'aimerais remercier d'autres membres du SYRTE qu'ils soient permanents, étudiants en thèse, ou postdocs, et que j'ai eu le plaisir de croiser de nombreuses fois au cours de ma thèse. Ainsi, j'aimerais remercier François, Maxime, Cyrille, Eric, Charles, Rinat, Nicolas, Jean, Marc-Antoine, Mehdi, Jean-Marie, Edouard, Romain, Ramon, Satya, Sinda, Ralf, Indranil, Bess, Alexis, Xavier, Daniele, Grégoire, Jean-Luc, Ulrich, Xiaopeng, Eva, Slawomir, qui ont tous apporté un petit quelque chose a cette atmosphere propice à l'épanouissement personnel et scientifique. En particulier, je voudrais remercier Maxime Favier pour son soutien lorsque tard dans la nuit nous étions toujours 6 mètres sous terre au laboratoire et qu'il venait me rendre visite au bout du couloir, François Tricot pour sa joie de vivre et les fous-rires que nous avons partagés, Sinda Mejri pour les diverses sorties (restaurants, cinés, festivals...) à travers lesquelles j'ai fabriqué de bons souvenirs, Cyrille Solaro pour son soutien moral sans faille et son esprit de camaraderie. Je remercie également Franck Pereira Dos Santos pour avoir su trouver les mots pour me remotiver lors des moments de doute, Émeric Declercq et Stephane Guerandel, pour les discussions scientifiques ou non que nous avons eu.

Je ne voudrais surtout pas oublier mes amis qui m'ont soutenu et encouragé au cours de ces trois années, Olivier, Kévin, Antoine, Laure, Audrey, Marine, Adrien pour les diverses soirées que vous avez organisé et qui m'ont permis de me changé les idées. Je remercie également mes amis d'enfance, Vincent pour avoir été un colocataire exemplaire pendant sa formation à Paris, Marc pour toutes les conversations nocturnes que nous avons eu et qui m'ont changé les idées lorsque le moral était en baisse, et Philippe pour les footings et autres activités sportives qui m'ont permis de garder un semblant de condition physique au cours de la thèse.

Enfin, je tiens à remercier ma famille qui a suivi de prés l'évolution de mes travaux, que cela soit au cours de la thèse ou avant. Mes parents surtout qui ont toujours fait le maximum afin que je puisse étudier dans les meilleures conditions, et pour avoir poussé parfois l'adolescent que j'étais à faire de grandes études. Mon frère, pour m'avoir montré la voie depuis mon plus jeune âge. Je le remercie ainsi que ma belle sœur, pour leur soutien. Enfin, je voudrais remercier Julie qui mériterait bien plus que quelques lignes pour m'avoir soutenu et supporté (notamment pendant la période de rédaction) et pour avoir décidé de m'accompagner dans une nouvelle aventure, cette fois-ci au Danemark.

Table des matières

Remerciements **iii**

Introduction **1**

I État de l'art des étalons de fréquence **5**

I.1 Bref historique de la mesure du temps 5

I.2 Performance d'un oscillateur pour la mesure du temps 6

I.3 Méthodes de détection d'une transition atomique 7

I.3.1 Méthode de Rabi 7

I.3.2 Méthode de Ramsey 8

I.3.3 Méthode Hyper - Ramsey 9

I.3.4 Choix de la méthode 9

I.4 Horloge de référence actuelle : Horloges atomique Césium 10

I.4.1 Choix de la transition atomique 10

I.4.2 Horloge Césium à sélection magnétique 10

I.4.3 Horloge à Césium pompée optiquement 11

I.4.4 Fontaine atomique 11

I.4.5 Exactitude et stabilité d'une fontaine atomique 13

I.5 Nouvelles générations d'horloges : Les Horloges optiques 14

I.5.1 Motivations 14

I.5.2 Horloges à atomes neutres non piégés 14

I.5.3 Horloges à ions piégés 15

I.5.4 Horloge à atomes neutres piégés 15

I.5.5 Stabilité des horloges à réseau optique 16

I.5.6 Peignes de fréquences 17

I.6 Conclusion 18

II Stabilisation du laser horloge et apport des terres rares **19**

II.1 Stabilisation d'un laser sur une cavité ultra-stable 19

II.1.1 Description de la méthode Pound Drever Hall 19

II.1.2 Limite ultime des cavités ultra-stables 22

II.1.3 États de l'art des cavités ultra-stables 22
II.2 Intérêt des cristaux dopés terres-rares pour la stabilisation d'un laser 23
II.2.1 Bref historique des terres-rares 23
II.2.2 Structure énergétique et Hamiltonien d'une terre rare dans une maille cristalline 23
II.2.3 Largeur homogène et inhomogène 29
II.2.4 Technique de mesure de la largeur homogène 29
II.2.5 Processus d'élargissement spectral 33
II.2.6 Temps de vie d'un trou brûlé spectral 36
II.2.7 "Side Holes" et "Anti-Holes" 37
II.3 Conclusion 38

III Construction d'un laser asservi sur trou brûlé spectral 39
III.1 Fabrication du cristal 39
III.2 Refroidissement du cristal à température cryogénique 40
III.2.1 Description détaillée du cycle de Gifford-McMahon 41
III.2.2 Mesure du niveau de vibrations de l'enceinte à vide du cryocooler 44
III.3 Description des sources laser à 1160 nm 45
III.3.1 Choix de la longueur d'onde 45
III.3.2 Diodes lasers en cavité étendue 46
III.3.3 Sauts de modes 47
III.3.4 Fabrication d'une DLCE en configuration Littman-Metcalf 48
III.3.5 Réglage de la longueur d'onde 49
III.4 Génération de seconde harmonique 49
III.5 Préstabilisation du laser maître sur la cavité ultra-stable 51
III.5.1 Description de la cavité ultra-stable 51
III.5.2 Mise en place de la cavité ultra-stable 52
III.5.3 Finesse de la cavité ultra-stable 56
III.6 Optimisation du montage PDH 57
III.6.1 Réduction de la Modulation d'Amplitude Résiduelle (MAR) 57
III.6.2 Point d'inversion de la cavité 59
III.6.3 Influence de la dilatation thermique de la monture sur la cavité 60
III.7 Stabilisation du laser esclave sur le laser maître 62
III.8 Compensation des fluctuations de phase dans les fibres optiques 63
III.8.1 Origine des fluctuations 64
III.8.2 Technique de stabilisation d'une fibre optique 66

III.8.3 Performances des fibres stabilisées 67
III.9 Réglage fin de la fréquence envoyée vers le cristal 68
III.10 Description du montage global 70
III.11 Conclusion 72

IV Spectroscopie à haute résolution de trous brûlés spectraux 73
IV.1 Mesure de la largeur inhomogène 73
IV.2 Nombre d'ions contribuant à la formation d'un trou brûlé spectral 74
IV.3 Processus de brûlage et d'interrogation d'un trou brûlé spectral 75
IV.4 Puissance et temps de brûlage optimaux d'un trou brûlé spectral 76
IV.5 Largeur homogène d'un trou brûlé spectral étroit 78
IV.6 Influence de la température du cristal sur la largeur homogène et le contraste . . 80
IV.7 Sensibilité des trous brûlés à l'environnement du cristal 81
IV.8 Étude de l'influence du cryocooler sur la stabilité des trous brûlés spectraux . . . 82
IV.8.1 Interrogation en continu d'un trou brûlé spectral 82
IV.8.2 Étude des fluctuations de température sur le cristal 82
IV.8.3 Étude des fluctuations du champ magnétique 85
IV.8.4 Étude des fluctuations électriques sur le cristal 87
IV.8.5 Étude des vibrations sur le cristal 88
IV.9 Visualisation temporelle de l'effet des vibrations sur un trou brûlé spectral 90
IV.10 Conclusion 91

V Stabilisation d'un laser sur trou brûlé spectral 93
V.1 Performance du laser pré-stabilisé 93
V.2 État de l'art des asservissements d'un laser sur trous brûlés spectraux 94
V.2.1 Détection homodyne 94
V.2.2 Détection par méthode PDH 95
V.2.3 Formation d'un régime continu 96
V.3 Nouvelle méthode d'asservissement d'un laser sur trou brûlé spectral : La détection hétérodyne 97
V.3.1 Absorption et dispersion dans un matériau 97
V.4 Signal d'absorption et de dispersion d'un trou brûlé spectral obtenu par détection hétérodyne 100
V.5 Système d'asservissement numérique 102
V.5.1 Description de la partie hardware 102
V.5.2 Description de la partie Software 104
V.6 Performance du verrouillage sur trou brûlé spectral 110

V.6.1 Avantages de la méthode hétérodyne pour les trous brûlés spectraux . . . 110
V.6.2 Comparaison cavité - SHB 110
V.6.3 Vitesse de dégradation du trou brûlé spectral 111
V.6.4 Paramètres limitant la stabilité du laser verrouillé sur trou brûlé spectral 111
V.7 Réduction du bruit sur la détection 113
V.7.1 Stabilisation de la puissance des deux lasers 113
V.7.2 Effet des fluctuations de l'alignement optique 114
V.8 Multi-trou brûlé spectral 115
V.8.1 Génération d'un peigne de fréquences dans un MAO en double passage . 115
V.8.2 Potentiel d'une interrogation multi-trous brûlés spectraux 116
V.9 Conclusion 116
V.10 Perspectives 117

Conclusion **119**

A Présentation des différents types de cryocoolers **123**
A.1 Généralités sur les cryocoolers 123
A.2 Description des différents types de cryocoolers 125
A.2.1 Joule-Thomson 125
A.2.2 Stirling 126
A.2.3 Gifford McMahon 126
A.2.4 Tube Pulsé 127
A.2.5 Avantages et Inconvénients 127
A.3 Choix du cryocooler pour l'expérience 127
A.3.1 Performances du cryostat 128

B Principe de la génération de seconde harmonique **131**
B.1 Quasi-accord de phase 132

Bibliographie **143**

Introduction

Toute mesure physique doit être comparée à une référence pour pouvoir avoir un sens. Ces références sont des unités de mesure. Pour faciliter leur usage, plusieurs systèmes d'unités ont été créés. De nos jours, le plus utilisé est le système international d'unités (SI), adopté en 1960 lors de la 11e Conférence Générale des Poids et Mesures (CGPM), composé de sept unités de base regroupées dans le tableau suivant avec leur grandeur physique respective :

Grandeur Physique	Unité SI	Symbole
Masse	kilogramme	kg
Longueur	mètre	m
Temps	seconde	s
Température	kelvin	K
Intensité électrique	ampère	A
Quantité de matière	mole	mol
Intensité lumineuse	candela	cd

Les autres unités, appelées unités dérivées, sont des combinaisons des unités de base du système SI. Les unités de base ont d'abord été déterminées au moyen d'objets macroscopiques. Ainsi en 1889, lors de la première CGPM, le mètre est défini par rapport à la longueur d'une barre étalon. Le kilogramme est la seule unité déterminée encore de nos jours par un Prototype international du kilogramme qui est un cylindre en platine iridié. Ce type de référence se détériore avec le temps à cause des interactions de ces objets avec leur environnement et manque également cruellement d'"universalité". C'est pourquoi la métrologie moderne cherche à mesurer ces unités en utilisant des constantes naturelles plutôt que des artefacts matériels fabriqués par l'Homme, susceptibles d'être dégradés.

La durée d'une seconde a d'abord été définie lors de la 11e CGPM comme 1/86400ème de la durée du jour solaire moyen. Cette définition souffre du fait que la vitesse de rotation de la Terre sur elle-même n'est pas constante dans le temps et diminue notamment par effet de marée, dû principalement à la présence de la lune. Les progrès des appareils de mesure et des horloges sondant la fréquence de transitions atomiques ont permis des progrès importants dans la mesure du temps. En 1967, lors de la 13e CGPM, la seconde a été redéfinie comme étant "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". Les fontaines atomiques au césium constituent aujourd'hui les étalons primaires de fréquence pour la mesure du temps et montrent une exactitude de quelques 10^{-16}. La seconde est aujourd'hui l'unité mesurée avec la meilleure exactitude. Dès lors, l'unité du mètre a pu être améliorée en la reliant à la mesure de la seconde. En effet, depuis 1983, la mesure du mètre est définie comme "la longueur du trajet parcouru dans le vide par lumière pendant une durée de 1/299792458 de seconde".

La présence d'étalons primaires à travers le monde permet, grâce à la stabilité des signaux produits, la construction d'échelles de temps internationales, par exemple le temps atomique international (TAI) ou bien l'"Universal Time Coordinate" (UTC). Les performances des étalons de fréquence permettent à la fois la mise en place d'applications, mais aussi la mesure et l'étude des variations de constantes fondamentales. En effet, les systèmes de positionnement par satellites (GPS, Galiléo, GLONASS, Beidou) utilisent un ensemble de satellites munis chacun d'un étalon de fréquence qui permet de synchroniser les satellites pour mesurer le temps mis par un signal pour parcourir un aller-retour entre 3 d'entre eux et un récepteur portable. D'autre part, la mesure de nombreuses constantes fondamentales telles que la constante de Rydberg [1], les masses de l'électron et du proton [2] ou bien la constante de structure fine [3] nécessitent une mesure de fréquence. Les étalons de fréquences permettent donc de mesurer les variations de ces constantes dans le temps et l'espace.

L'exactitude des étalons de fréquence primaires est actuellement limitée à quelques 10^{-16} par le contrôle de certains effets systématiques et il devient extrêmement difficile d'améliorer les performances de ces horloges. Il est néanmoins possible d'améliorer les performances ultimes des horloges en augmentant la fréquence des transitions atomiques utilisées. C'est pourquoi la mesure du temps est en train de s'orienter vers des horloges dites optiques qui utilisent une transition dans le domaine optique. Les performances de ces nouvelles générations d'horloges commencent à dépasser celles des étalons primaires de fréquence, ce qui soulève la question de la redéfinition de la seconde [4].

Les lasers ultra-stables sont nécessaires dans des domaines variés de la physique pour, par exemple, tester les lois de la relativité générale avec la détection d'ondes gravitationnelles [5] ou en géodésie relativiste [6]. Les lasers ultra-stables sont en particulier au cœur des nouvelles générations d'horloges puisqu'ils servent d'oscillateur local pour sonder les transitions atomiques étroites. La fréquence de ces lasers est actuellement asservie sur des cavités Fabry-Pérot de très haute finesse (environ 1 000 000) maintenues sous vide et isolées au maximum de leur environnement pour diminuer l'influence des vibrations et des fluctuations thermiques sur la cavité. Cependant, ces dispositifs atteignent actuellement leur limite fondamentale notamment causée par l'agitation thermique des atomes sur les surfaces des miroirs à température ambiante. Les stabilités atteintes avec ce genre de dispositif sont de l'ordre de $3 - 4 \times 10^{-16}$ à 1 seconde de temps d'intégration. La stabilité court terme des oscillateurs locaux constitue aujourd'hui un facteur limitant des horloges optiques à réseau développées au SYRTE et ailleurs dans le monde. Ces horloges ne peuvent ainsi pas atteindre leur limite de stabilité déterminée par le "Bruit de projection quantique" lors de l'interrogation des atomes. En augmentant la stabilité court terme des oscillateurs locaux, on pourrait observer des progrès spectaculaires en terme de performances de ce type d'horloge.

Plusieurs pistes sont développées de façon à améliorer la stabilité ultime des cavités Fabry-Pérot, notamment en augmentant la longueur de la cavité pour moyenner davantage le bruit thermique ou bien en travaillant avec des cavités refroidies à température cryogénique. Depuis quelques années, les lasers asservis sur "trous brûlés spectraux" dans des matrices cristallines dopées terres-rares à température cryogénique (quelques kelvins) sont étudiés. On peut en effet s'attendre à ce que, sur le long terme, les performances de ce type de dispositif surpassent celles des systèmes à base de cavité Fabry-Pérot.

Ce manuscrit s'inscrit dans le cadre de ces nouveaux dispositifs, basés sur les "trous brûlés spectraux" pour stabiliser un laser en fréquence. Le premier chapitre replace le contexte métrologique dans lequel se déroule cette thèse et développe le fonctionnement des étalons primaires de fréquences ainsi que les différents types d'horloges optiques, avant de mettre en évidence la limite fondamentale de la stabilité des horloges à réseau optique. Dans le second chapitre, les propriétés spectroscopiques des cristaux dopés terres-rares sont décrites pour comprendre ce qu'est un "trou brûlé spectral" et le potentiel d'une telle référence de fréquence pour dépasser les performances des dispositifs basés sur les cavités Fabry-Pérot. Le chapitre 3 décrit en détail la construction de l'expérience, ce qui constitue la partie majeure de cette thèse. Le chapitre 4 montre l'étude faite pour optimiser le protocole utilisé afin d'obtenir une référence de fréquence fine et la spectroscopie à haute résolution des trous brûlés spectraux obtenus. Le chapitre 5 est consacré aux différentes techniques d'asservissement d'un laser sur un trou brûlé spectral et montre les premiers résultats de la stabilité du laser sur un trou brûlé spectral en utilisant une méthode d'interrogation originale.

Chapitre I

État de l'art des étalons de fréquence

Le temps est actuellement la quantité physique mesurée avec la meilleure exactitude et la meilleure stabilité. Dans ce premier chapitre, nous placerons le contexte métrologique dans lequel se déroule cette thèse afin de comprendre l'amélioration que peut apporter l'expérience décrite dans ce manuscrit à la mesure du temps.

I.1 Bref historique de la mesure du temps

La mesure d'une seconde utilise la stabilité et l'exactitude de la périodicité de systèmes physiques appelés oscillateurs. Différents types d'oscillateurs ont été utilisés pour la mesure du temps. Il a tout d'abord été mesuré grâce à des observations célestes périodiques : rotation de la Terre sur son axe, position de la lune, position du soleil etc... Ces observations ont permis de former le calendrier que nous connaissons aujourd'hui, divisé en années, mois, jours. Cependant, la stabilité et l'exactitude de ces oscillateurs sont aujourd'hui considérées comme modestes car les observations célestes, telle que la rotation de la Terre se sont montrées irrégulières dans de récentes études géodésiques [7] [8]. Des oscillateurs mécaniques (clepsydres, pendules...) ont alors commencé à être développés de façon à améliorer la mesure du temps en la découplant des variations célestes. Ces oscillateurs restent cependant fortement dépendants des fluctuations de leur environnement (température, vibrations etc...). Dans les années 1930, les oscillateurs utilisant des quartz ont été développés. Ils sont basés sur l'effet piézo-électrique et montrent une stabilité bien meilleure que les premiers oscillateurs mécaniques, mais sont encore dépendants des fluctuations des grandeurs physiques de leur environnement telles que les fluctuations de température, de champ électrique, de champ magnétique ainsi que les vibrations sur le système. Leur stabilité est par conséquent limitée par la capacité à contrôler ces fluctuations. La mécanique quantique, développée au 20e siècle, a mis en évidence le fait que les atomes peuvent être très fortement découplés des fluctuations de leur environnement et possèdent des fréquences entre deux niveaux énergétiques de grande exactitude. Ils sont donc utilisés depuis les années 1960 et encore de nos jours comme références de fréquence pour la mesure du temps. Les principaux oscillateurs sont regroupés sur la figure (I.1), accompagnés de leur exactitude. On remarque que l'exactitude de la mesure du temps a grandement évolué ce dernier siècle. Dix ordres de grandeur ont été gagnés.

Types d'oscillateur	Inventeur	Période historique	Exactitude
Mécanique	Foliot	1400-1500	10^{-2}
	Huygens	1656	10^{-4}
	Graham	1721	10^{-5}
	Harrison	1761	$2-3\times10^{-6}$
	Riefer	1889	10^{-7}
	Shortt	1920	2×10^{-8}
Quartz	TCXO	1930 - 1960	10^{-9}
	MCXO		3×10^{-10}
	OCXO		10^{-12}
Atomique	Cs Rb	1950 - ...	10^{-16}
Optique		2000 - ...	10^{-18}

Tableau I.1 – Évolution de l'exactitude de la mesure du temps (Données adaptées de [9])

I.2 Performance d'un oscillateur pour la mesure du temps

De façon générale, un oscillateur parfait délivre le signal suivant :

$$S(t) = A\cos(2\pi\nu_0 t + \phi) \tag{I.1}$$

où A est l'amplitude du signal S, ν_0 sa fréquence, et ϕ sa phase à l'origine. En réalité, les fluctuations de l'environnement de l'oscillateur vont modifier la fréquence de l'oscillateur au cours du temps. La fréquence est alors définie comme :

$$\nu(t) = \nu_0(1 + \epsilon + y(t)) \tag{I.2}$$

où $\nu(t)$ est la fréquence délivrée par l'horloge, ν_0 est la fréquence de l'oscillateur idéal, ϵ l'inexactitude de l'horloge, et y(t) la stabilité de l'horloge.

L'inexactitude est un biais de fréquence inconnu ajouté par des perturbations sur la fréquence de l'oscillateur idéal. Dans le cas d'une horloge atomique, la fréquence de résonance idéale est celle d'un seul atome immobile dans le vide. Les perturbations qui dégradent l'inexactitude sont l'environnement électrique et magnétique de l'atome, le rayonnement du corps noir, les effets Doppler résiduels etc... L'inexactitude est évaluée via l'incertitude sur la valeur de ϵ.

La stabilité d'une horloge est sa capacité à garder la même fréquence au cours du temps. Elle est généralement donnée par l'écart type d'Allan $\sigma_y(\tau)$. Dans le cas d'une horloge atomique, la stabilité est définie par [10] :

$$\sigma_y(\tau) = \frac{\eta}{Q_{at}SNR}\sqrt{\frac{T_c}{\tau}} \tag{I.3}$$

où η est un coefficient proche de l'unité dépendant de la méthode d'interrogation des atomes. Dans le cas d'une interrogation de type Ramsey, ce coefficient est égal à $1/\pi$. Q_{at} est le facteur de qualité de la transition atomique,

$$Q_{at} = \frac{\nu}{\Delta\nu} \tag{I.4}$$

SNR le rapport signal sur bruit pour un oscillateur limité par le bruit de projection quantique,

$$SNR \approx \sqrt{N_{\mathrm{at}}} \tag{I.5}$$

τ le temps de mesure, T_c le temps de cycle de l'horloge, N_{at} le nombre d'atomes interrogés, $\Delta\nu$ la largeur de raie de la transition atomique, et ν la fréquence de la transition atomique.

Deux objectifs indispensables sont donc nécessaires pour obtenir un étalon de fréquence servant à la mesure de la seconde : réduire l'inexactitude d'une part et accroître la stabilité de l'oscillateur d'autre part, de façon à se rapprocher le plus possible de l'oscillateur idéal. Plus la stabilité de l'horloge sera bonne, plus le niveau d'exactitude de l'horloge sera atteint rapidement. De plus, les effets systématiques d'une horloge pourront être évalués plus facilement.

I.3 Méthodes de détection d'une transition atomique

Les progrès de la mécanique quantique au cours du 20e siècle ont permis de montrer que les fréquences auxquelles un atome absorbait ou émettait un rayonnement pouvaient servir de référence de fréquence pour les oscillateurs. L'influence des paramètres physiques de l'environnement de l'atome n'ont en effet qu'une faible influence sur la fréquence d'émission ou d'absorption de l'atome. Une telle référence de fréquence peut donc être utilisée pour stabiliser en fréquence un oscillateur macroscopique avec une stabilité bien meilleure que celle des oscillateurs mécaniques, ou bien des quartz. Un deuxième avantage à utiliser des atomes comme référence de fréquence est l'universalité de la fréquence à laquelle ces systèmes oscillent. En effet, les niveaux d'énergie de deux atomes de césium seront identiques. Autrement dit, les oscillateurs utilisant les atomes comme référence de fréquence auront une meilleure exactitude. Plusieurs méthodes ont été mises au point pour détecter la fréquence centrale d'une transition énergétique. Elles se basent sur les fluctuations des populations de deux états énergétiques couplés observées par Rabi.

I.3.1 Méthode de Rabi

La méthode de Rabi consiste à envoyer sur les atomes un pulse π, c'est a dire un pulse lumineux à la fréquence de Rabi Ω_{R} pendant un temps d'interaction τ tel que $\Omega_{\mathrm{R}}\tau = \pi$. La probabilité de transition par la méthode de Rabi représentée sur la figure (I.2) est donnée par [11] :

$$P_{\mathrm{Rabi}} = \frac{\Omega_R^2}{\Omega_R'^2} \sin^2\left(\frac{\Omega_R'}{2}t\right) \tag{I.6}$$

où Ω_{R} est la pulsation de Rabi et Ω'_{R} est la pulsation effective de Rabi dans le cas d'une interrogation non résonante avec la transition considérée :

$$\Omega_R' = \sqrt{(\omega_0 - \omega)^2 + \Omega_R^2} \tag{I.7}$$

où Ω_0 est la fréquence angulaire résonante de la transition et Ω la fréquence angulaire d'interrogation.

On voit que la probabilité de transition est maximale pour une impulsion π et que la largeur

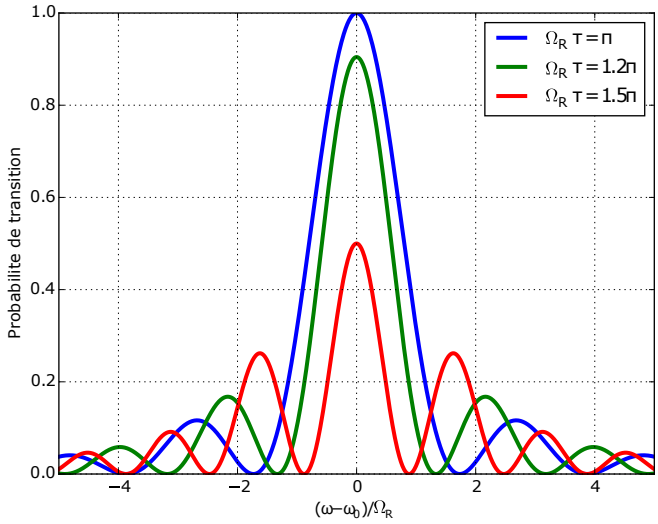

FIGURE I.2 – Probabilité de transition - Méthode de Rabi

à mi-hauteur du pic de résonance dans le domaine spectral est définie par :

$$\Gamma_{\text{Rabi}} = \frac{0.94\Omega_R}{2\pi} = \frac{0.47}{\tau} \tag{I.8}$$

où τ est le temps d'interaction.

I.3.2 Méthode de Ramsey

L'interrogation des atomes par la méthode de Ramsey comprend cette fois deux pulses $\pi/2$ séparés par un temps T pendant lequel le faisceau d'atomes n'interagit pas avec le champ magnétique. La probabilité d'une transition résonante par la méthode de Ramsey représentée sur la figure (I.3) est donnée pour une transition dans le domaine des radio-fréquences par [11] :

$$P_{\text{Ramsey}} = \frac{4\Omega_R^2}{\Omega_R'^2}\sin^2\left(\frac{\Omega_R'}{2}\tau\right)\left[\cos\left(\frac{\Omega_R'\tau}{2}\right)\cos\left(\frac{\Delta\omega T}{2}\right) - \frac{\Delta\omega}{\Omega_R'}\sin\left(\frac{\Omega_R'\tau}{2}\right)\sin\left(\frac{\Delta\omega T}{2}\right)\right]^2 \tag{I.9}$$

On retrouve la formule de probabilité pour la méthode de Rabi multipliée par un facteur qui prend en compte le temps T durant lequel les atomes ne sont pas interrogés. La première impulsion $\pi/2$ met les atomes dans une superposition entre l'état fondamental et l'état excité. Le nombre d'atomes dans les deux niveaux oscille à la fréquence de Rabi. Si la deuxième interaction Ramsey est en phase avec la première, alors le processus d'excitation des atomes se complète. En revanche, si la fréquence d'oscillation est telle que $\Delta\omega\tau \geq \pi$, alors la probabilité de transition devient nulle. La largeur à mi-hauteur du pic à la résonance est :

$$\Gamma_{\text{Ramsey}} = \frac{\pi}{T} \tag{I.10}$$

La largeur à mi-hauteur peut être diminuée en augmentant le temps T entre les deux impulsions $\pi/2$. La sensibilité est potentiellement plus fine qu'avec la méthode de Rabi.

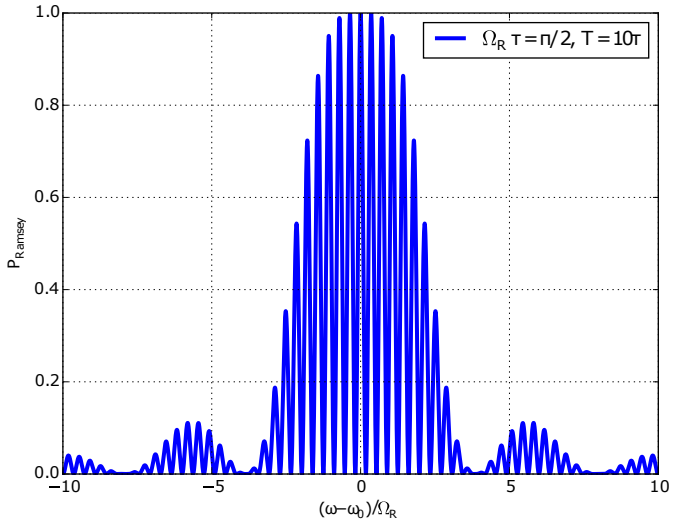

FIGURE I.3 – Probabilité de transition - Méthode de Ramsey

I.3.3 Méthode Hyper - Ramsey

Certaines transitions atomiques sont totalement interdites ou très faiblement permises. Une haute puissance optique est donc requise pour interroger les atomes, ce qui induit des décalages des niveaux d'énergie de la transition mesurée par effet Stark AC (autrement appelé "light shift") non négligeables. Cet effet dégrade alors l'exactitude de la fréquence mesurée. Il est néanmoins possible de paramétrer les différents pulses de l'interrogation de type Ramsey pour diminuer cet effet en modifiant les durées, les fréquences et les phases de chaque impulsion. Ces méthodes d'interrogation sont regroupées sous le nom de méthodes "Hyper - Ramsey" [12] [13], notamment la méthode Hyper-Ramsey généralisée proposée par Zanon et al. [14] qui théoriquement supprime entièrement le light shift induit par l'interrogation des atomes par la lumière.

I.3.4 Choix de la méthode

Le choix de la méthode d'interrogation des atomes est fonction de la configuration de l'horloge. Plusieurs paramètres sont à prendre en compte notamment l'effet Doppler des atomes sur leur fréquence de résonance ou bien la sensibilité de la méthode d'interrogation à l'effet Dick (cf. partie I.5.5).
En envoyant sur des atomes de la lumière résonante avec une transition énergétique, d'après la loi de conservation du moment cinétique, les atomes qui absorbent la lumière ont un effet de recul qui cause un effet Doppler sur la fréquence de résonance. Pour une transition RF, cet effet de recul est raisonnable bien qu'il doit être pris en compte. En revanche pour une transition optique, cet effet de recul fait totalement sortir les atomes de la résonance. La méthode de Ramsey-Borde [15] permet de corriger cet effet.
Une méthode d'interrogation de type Rabi est beaucoup plus sensible à l'effet Doppler. La largeur de la résonance obtenue sera fonction de la vitesse des atomes. Cependant, en diminuant le temps d'interaction avec les atomes, on peut faire une sélection en vitesse.

La méthode de Rabi nécessite d'avoir un signal ayant une phase constante sur une grande distance, tandis que la méthode de Ramsey nécessite deux impulsions plus courtes, ce qui diminue les contributions de l'effet Doppler à l'élargissement de la largeur de raie de la transition.
Pour l'effet Dick, les fonctions de sensibilité des probabilités de transition aux fluctuations de phase du laser sonde selon la méthode d'interrogation ont été détaillées dans la thèse de Quessada-Vial [16].

De nombreux atomes montrent des transitions énergétiques avec des propriétés intéressantes pour obtenir des étalons de fréquence. Dans la suite, nous ne décrirons que les horloges atomiques césium, et les horloges optiques de façon à comprendre l'apport de cette thèse dans le contexte métrologique actuel.

I.4 Horloge de référence actuelle : Horloges atomique Césium

Parmi les horloges atomiques, l'horloge au césium est celle sur laquelle est basée la mesure de la seconde depuis la 13e conférence de poids et mesures ayant eu lieu en 1967. En effet, la mesure d'une seconde est définie comme la durée de 9 192 631 770 périodes d'oscillation entre deux niveaux hyperfins du niveau fondamental de l'atome de césium 133. Plusieurs configurations d'horloge fonctionnant avec des atomes de césium ont été développées depuis 1950.

I.4.1 Choix de la transition atomique

La transition utilisée pour ce type d'horloge est la transition entre deux états hyperfins F = 4 et F = 3 du niveau fondamental $6S_{1/2}$ de l'atome de césium. Sous l'action d'un champ magnétique, ces deux niveaux se séparent par effet Zeeman en $|F = 4, m_F = -4..4>$ et $|F = 3, m_F = -3..3>$. Les niveaux d'énergie ($|F = 4, m_F = 0>$ et $|F = 3, m_F = 0>$) sont insensibles aux fluctuations du champ magnétique au premier ordre. C'est pourquoi ils sont utilisés pour l'horloge atomique césium, de façon a obtenir une transition la plus stable possible.

I.4.2 Horloge Césium à sélection magnétique

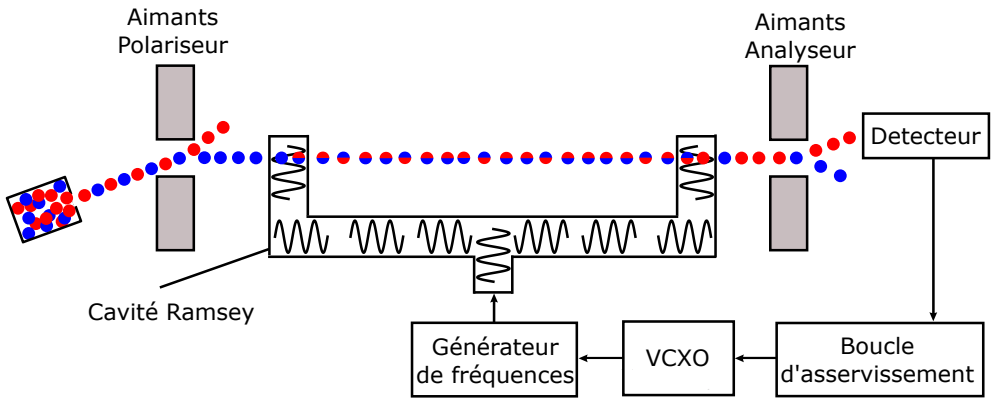

FIGURE I.4 – Schéma d'une horloge césium à sélection magnétique

Dans la première génération d'horloge à césium schématisée sur la figure (I.4), les atomes

sont expulsés d'un four chauffé à une centaine de degrés. Du fait du faible écart énergétique des niveaux hyperfins, les atomes sont dans une superposition des deux états. L'application d'un premier champ magnétique permet de séparer spatialement les deux états. Une fois qu'un seul état énergétique est isolé, les atomes sont interrogés par la méthode de Ramsey pour déterminer la fréquence de résonance de la transition entre les états F = 3 et F = 4. L'oscillateur d'interrogation est un cristal de quartz dont la fréquence de résonance peut être modulée. Cette fréquence est multipliée de façon à atteindre la fréquence de résonance de la transition. En appliquant un deuxième champ magnétique après la cavité Ramsey, les atomes dans l'état F = 4 sont détectés. Un signal d'erreur est traité par un boîtier d'asservissement dont le signal en sortie module la fréquence du quartz de façon à maintenir sa fréquence multipliée à la résonance. On obtient un oscillateur macroscopique asservi en fréquence sur la transition hyperfine F = 3 - F = 4 de l'atome de césium 133. La fréquence de l'oscillateur sera donc celle du résonateur à quartz, corrigée par le résonateur atomique. En comptant les oscillations à cette fréquence, on détermine la durée d'une seconde.

I.4.3 Horloge à Césium pompée optiquement

Les états énergétiques de la structure hyperfine sont statistiquement également peuplés du fait de leur faible écart énergétique. La sélection par champ magnétique isole donc seulement $1/16^e$ des atomes présents. Pour augmenter le nombre d'atomes interrogés et ainsi augmenter le contraste de la détection, il est possible de préparer les atomes dans un état particulier en effectuant des mécanismes de pompage par lasers.

Pour détecter les atomes qui sont dans l'état F = 4, une transition cyclante dont la désexcitation est radiative permet de détecter le nombre d'atomes résonants par fluorescence. Une stabilité relative de fréquence de $3.5 \times 10^{-13}\sqrt{\tau}$ a été atteinte avec ce type d'horloge [17].

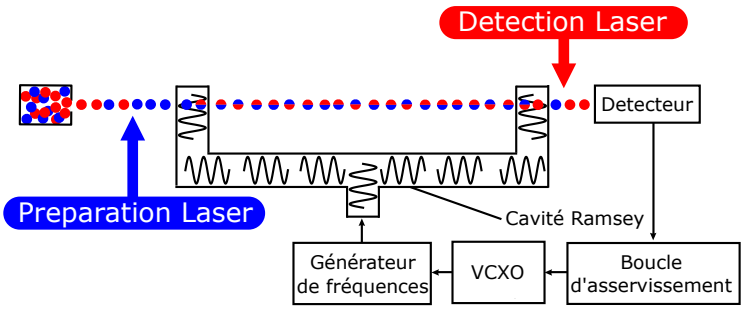

FIGURE I.5 – Schéma d'une horloge césium à pompage optique

Deux lasers servent donc à préparer les atomes dans l'état F = 3, et à les détecter dans l'état F = 4 avant et après l'interrogation de type Ramsey (cf. figure (I.5)).

I.4.4 Fontaine atomique

Les horloges atomiques au césium actuelles atteignent une stabilité relative de fréquence d'environ $10^{-14}/\sqrt{\tau}$. Le facteur de qualité de la transition hyperfine sur un faisceau d'atome de

césium est :

$$Q = \frac{\nu}{\Gamma} \approx 10^8 \tag{I.11}$$

où ν est la fréquence de la transition et Γ sa largeur à mi-hauteur. Il faut donc détecter le centre de la transition avec une exactitude de 10^{-6}, ce qui ne laisse d'autre choix que d'augmenter davantage le temps d'interaction T de la méthode de Ramsey, afin d'affiner la largeur de raie de la transition hyperfine, ce qui est difficilement réalisable avec les horloges décrites précédemment. En effet, du fait de la faible vitesse des atomes, augmenter le temps T en agrandissant la distance entre les deux impulsions $\pi/2$ de la méthode de Ramsey augmente l'effet de la gravité sur les atomes, qui chutent alors vers le sol. Une architecture verticale de l'horloge est maintenant employée pour palier ce problème. On parle alors de fontaine atomique.

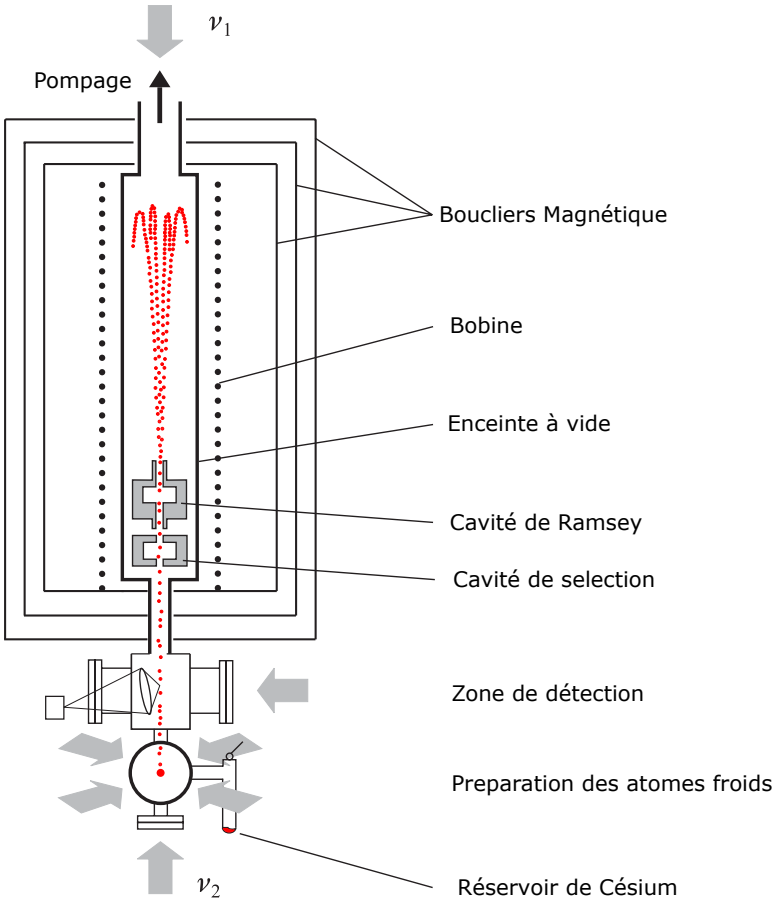

FIGURE I.6 – Schéma d'une fontaine atomique (extrait de [9])

Les atomes sont d'abord refroidis de façon à réduire leur vitesse. Pour cela des pièges magnéto-optiques sont utilisés sur une transition résonante du césium à la fréquence ν_{cooling}. Les atomes de césium atteignent une température de quelque μK. Ils forment alors une mélasse et sont ensuite expulsés verticalement sans chauffer grâce aux deux champs électromagnétiques verticaux qui sont légèrement désaccordés par rapport à ν_{cooling}. Le champ sous la mélasse est désaccordé à une fréquence $\nu_{cooling} - \delta\nu$ tandis que le champ au dessus de la mélasse est

désaccordé à une fréquence supérieure à $\nu_{cooling} + \delta\nu$:

$$E(z,t) = E_0 e^{i[(\omega+\delta\omega)t-kz]} + E_0 e^{i[(\omega-\delta\omega)t+kz]} \tag{I.12}$$
$$= 2E_0 e^{i\omega t}\cos(\delta\omega t - kz) \tag{I.13}$$

Les fronts de phase telle que $\sigma\omega$t − kz = 0 se déplacent à une vitesse égale à :

$$v = z/t = \lambda\delta\nu \tag{I.14}$$

La mélasse, refroidie par cette onde, se déplace alors également vers le haut à une vitesse égale à celle des fronts de phase. Les atomes sont préparés dans l'état voulu par la cavité de sélection et une première interaction avec un pulse $\pi/2$ dans la cavité de Ramsey a lieu. Les atomes, dans une superposition des deux états hyperfins s'élèvent alors à une hauteur H de quelques mètres. Soumis à la gravité, ils redescendent. Si les vitesses transverses des atomes ont été suffisamment réduites, ils repassent à travers la cavité de Ramsey, et interagissent avec la seconde impulsion $\pi/2$. L'état voulu est sélectionné par la cavité de sélection puis la détection a lieu. Le temps d'interaction de la méthode de Ramsey est alors amélioré et vaut :

$$T = 2\sqrt{\frac{H}{g}} \tag{I.15}$$

où g est l'accélération de la pesanteur $\approx 9.81\text{m.s}^{-2}$

I.4.5 Exactitude et stabilité d'une fontaine atomique

L'exactitude d'une horloge est en réalité limitée du fait que les atomes ne sont pas totalement isolés de leur environnement. Ainsi, la fréquence à laquelle fonctionne l'horloge est décalée par rapport à la fréquence théorique. Tous ces effets sont regroupés sous le terme "effets systématiques". Parmi eux, on distingue les effets de l'environnement magnétique et thermique de l'atome, mais aussi des collisions entre atomes, des fluctuations de la phase du signal micro-onde servant à interroger les atomes, les effets relativistes. L'exactitude de ces horloges est limitée à quelques 10^{-16} [18] [19].

La stabilité des fontaines atomiques actuelles atteint $1.6 \times 10^{-14}/\sqrt{\tau}$ [20]. Elle peut encore être améliorée en augmentant le nombre d'atomes N_{at} interrogés (voir l'équation I.3) ou bien en améliorant le facteur de qualité atomique en augmentant la finesse de la résonance observée sur la transition horloge. Pour la méthode d'interrogation de Ramsey, cette finesse est déterminée par la transformée de Fourrier du temps de vol des atomes entre les deux interrogations. Cependant plus le temps de vol est long, plus le confinement transverse des atomes doit être performant.

Les performances en terme de stabilité de ces horloges sont déjà proches de leur limite fondamentale qui est le bruit de projection quantique [21] (cf. partie I.5.5).

I.5 Nouvelles générations d'horloges : Les Horloges optiques

I.5.1 Motivations

Le facteur de qualité d'une transition atomique au césium utilisant une transition à une fréquence micro-onde (quelques GHz) est égal à :

$$Q_{\text{Cesium}} \approx 10^{10} \tag{I.16}$$

Pour des largeurs de transitions égales, plus la fréquence de la transition considérée est grande, plus le facteur de qualité de la transition est élevé (cf. formule I.4). Par conséquent, la stabilité que peut atteindre l'horloge en 1 seconde devient plus grande (cf. formule I.3). Ainsi, travailler avec des transitons dans le domaine des fréquences optiques (quelques centaines de THz) permet d'augmenter ce facteur de qualité et accroît ainsi la stabilité de l'oscillateur verrouillé sur la transition.

$$Q_{\text{Optique}} \approx 10^{14} \tag{I.17}$$

C'est donc naturellement que plusieurs types d'horloges utilisant des transitions dans le domaine optique de quelques centaines de THz ont été développés et sont regroupés dans le tableau suivant :

Type d'horloge optique	Atome utilisé	Stabilité $\sigma_y(\tau) \times 1/\sqrt{\tau}$	Exactitude
Ions piégés	Hg^+ [22]		7.2×10^{-17}
	Yb^+ [23]		3×10^{-18}
	Sr^+ [24]		1.2×10^{-17}
	Ca^+ [25]	2.4×10^{-14}	2.3×10^{-15}
	Al^+ [26]	2.8×10^{-15}	8.6×10^{-18}
Atomes neutres non piégés	^{24}Mg [27]	8×10^{-14}	
	^{40}Ca [28]		7.5×10^{-15}
Atomes neutres piégés	^{199}Hg [29]		7.2×10^{-17}
	^{171}Yb [30]	$\approx 10^{-16}$	1.6×10^{-18}
	^{87}Sr [31]		6.4×10^{-18}
	^{171}Yb [32]	6×10^{-17}	

Tableau I.7 – Stabilité et exactitude des différents types d'horloges optiques

I.5.2 Horloges à atomes neutres non piégés

Depuis 1980, les atomes de césium ont commencé à être remplacés par des atomes neutres utilisant des transitions dans le domaine optique. Les atomes qui sont utilisés pour ce type d'horloges optiques sont principalement le magnésium et le calcium. Le principe est le même que celui des fontaines atomiques à l'exception que ce sont des lasers stabilisés en fréquence qui sont utilisés pour sonder la transition optique. Les atomes sont refroidis dans un piège magnéto-optique puis envoyés verticalement et soumis à la gravité terrestre. Pour compenser l'effet de recul photonique des atomes, non négligeable lorsqu'ils sont interrogés à des fréquences optiques, de nouvelles techniques de détection basées sur la méthode de Ramsey-Bordé [15] ont été mises au point. L'exactitude de ce type d'horloges est néanmoins limitée à 10^{-16} [33] [28]. Ces horloges

bénéficient d'une bonne stabilité court terme grâce au fait qu'un grand nombre d'atomes peut être interrogé simultanément.

Pour contrer l'effet Doppler qui dégrade les performances des horloges optiques, des techniques de piégeage sont utilisées. En particulier, si les atomes sont confinés dans une longueur inférieure à la longueur d'onde du laser d'interrogation, les effets dus aux mouvements des particules deviennent négligeables. Ce régime est appelé régime de Lamb-Dicke [34] et est connu depuis 1953.

I.5.3 Horloges à ions piégés

Les horloges à ions ont été développées en parallèle des horloges césium et utilisent les techniques de piégeage de Penning [35] [36] et de Paul [37] développées dans les années 1950-1960. Les pièges de Paul sont néanmoins préférés puisque contrairement aux pièges de Penning, ils ne nécessitent pas un fort champ magnétique qui crée un effet Zeeman considérable sur la transition atomique et dégrade ainsi l'exactitude de l'horloge. Les effets systématiques des horloges à ions sont mesurés avec une excellente exactitude. Une horloge Al^+ a obtenu une exactitude de 3×10^{-17} [38]. En revanche, la répulsion coulombienne des ions empêche d'interroger beaucoup d'ions à la fois. En général, un seul ion est interrogé par cycle, ce qui limite le rapport signal sur bruit à 1. De ce fait, la stabilité court terme de ces horloges n'est pas optimale, ce qui motive la création d'un troisième type d'horloge optique : les horloges à atomes neutres piégés.

I.5.4 Horloge à atomes neutres piégés

Les horloges à atomes neutres piégés tentent d'atteindre l'exactitude des horloges à ions, et la stabilité des horloges à atomes neutres non piégés. En effet, il est possible dans ce type d'horloges de piéger un nombre important d'atomes et de les interroger simultanément, ce qui augmente la stabilité de l'horloge. De plus, le fait de piéger les atomes dans un régime de Lamb-Dicke diminue drastiquement l'effet Doppler présent dans les horloges à atomes non piégés et donc augmente l'exactitude de l'horloge.

Leur développement tardif s'explique par le fait que la technique de piégeage des atomes neutres, développée dans les années 1980 [39], utilise l'interaction du moment dipolaire avec le champ électrique d'une onde lumineuse pour générer une force sur l'atome dépendant du gradient de l'intensité de l'onde lumineuse. Cette technique requiert l'action d'une forte puissance laser sur les atomes. Les deux niveaux d'énergie constituant la transition dite "horloge" subissent alors des décalages différentiels, ce qui rend la transition horloge non exploitable pour la métrologie. Néanmoins, il a été proposé par Katori et al. en 2001 [40], la réalisation d'une horloge strontium dans laquelle les atomes sont piégés à une longueur d'onde dite magique, pour laquelle le décalage différentiel des deux niveaux d'énergie de la transition horloge devient négligeable au premier ordre. Depuis, les longueurs d'ondes magiques ont été déterminées pour d'autres atomes. L'exactitude des horloges strontium est passée de 5×10^{-11} en 2003 [41] à 6.4×10^{-18} [31] en 2014 en contrôlant davantage les effets systématiques tels que, par exemple, le rayonnement du corps noir.

La stabilité des horloges à réseau optique atteint aujourd'hui $10^{-16}/\sqrt{\tau}$. Elle est limitée par la stabilité court terme du laser d'interrogation.

I.5.5 Stabilité des horloges à réseau optique

Limite fondamentale : le bruit de projection quantique

La stabilité ultime d'une horloge à réseau optique est limitée par le bruit de projection quantique. Les atomes détectés sont dans une superposition d'états entre l'état fondamental $|f\rangle$ et l'état excité $|e\rangle$ d'un système à deux niveaux.

$$|\psi\rangle = C_f\,|f\rangle + C_e\,|e\rangle \tag{I.18}$$

avec $|C_f|^2$ et $|C_e|^2$ les probabilités de trouver le système dans l'état $|f\rangle$ et $|e\rangle$ avec :

$$|C_f|^2 + |C_e|^2 = 1 \tag{I.19}$$

La mesure consiste à projeter l'état du système sur un des deux états du système à deux niveaux. On ne peut déterminer avec certitude dans quel état va se trouver le système en l'interrogeant. La dispersion sur la mesure suit une loi binomiale telle que le rapport signal sur bruit SNR est égal à $\sqrt{N}$ où N est le nombre d'atomes interrogés. L'écart type d'Allan du bruit de fréquence d'une horloge optique limitée par le bruit de projection quantique est donné par la formule I.3 que nous rappelons ici :

$$\sigma_{y,QPN}(\tau) = \frac{\eta}{Q_{at}SNR}\sqrt{\frac{T_c}{\tau}}$$

En prenant des paramètres réalistes pour une horloge à réseau optique, avec une largeur spectrale du laser d'interrogation de 1 Hz, on obtient un facteur de qualité $Q_{at} \approx 10^{14}$. Si on interroge $N_{at} = 10^4$ atomes, en supposant un temps de cycle d'horloge $T_c \approx 1$ seconde, on obtient :

$$\sigma_{y,QPN}(\tau) \approx 3 \times 10^{-17}/\sqrt{\tau} \tag{I.20}$$

Les stabilités actuelles des horloges à réseau optique ne dépassent pas les quelques $10^{-16}/\sqrt{\tau}$ et sont limitées par l'effet Dick [42].

Effet Dick

Lorsque le laser interroge les atomes, les fluctuations de phase du laser induisent des fluctuations de la probabilité de transition. Si l'horloge ne fonctionne pas de façon continue (temps d'interrogation des atomes inférieur au temps de cycle de l'horloge), la sensibilité des atomes aux fluctuations de phase du laser se traduit par un échantillonnage du bruit de fréquence du laser aux fréquences multiples de la fréquence du cycle de l'horloge égale à $1/T_c$. Le bruit de fréquence du laser d'interrogation autour des harmoniques de la fréquence du cycle de l'horloge est converti par repliement de spectre vers les basses fréquences et ajoute ainsi une composante de bruit blanc de fréquence au bruit de fréquence du laser d'interrogation. La stabilité d'une horloge limitée par l'effet Dick s'écrit :

$$\sigma_{y,Dick}(\tau) = \frac{1}{\nu}\sqrt{\frac{1}{\tau}\sum_{n=1}^{n}\left|\frac{g_n}{g_0}\right|^2 S_y\left(\frac{n}{T_c}\right)} \tag{I.21}$$

avec ν la fréquence du laser d'interrogation, τ le temps de mesure, T_c le temps de cycle de l'horloge, $S_y(n/t_c)$ la densité spectrale de bruit de fréquence relative du laser non asservi sur la transition atomique aux fréquences multiples de la fréquence du cycle de l'horloge, et g est un facteur de sensibilité calculable via la relation :

$$g(t) = 2 \lim_{\delta\phi \to 0} \frac{\delta P(\delta\phi, t)}{\delta\phi} \tag{I.22}$$

qui représente la variation de la probabilité de transition P en fonction de la fluctuation de phase $\delta\phi$ du laser d'interrogation. Il dépend de la méthode d'interrogation des atomes [43].

Il existe deux possibilités pour diminuer cet effet et ainsi atteindre potentiellement un niveau de stabilité limité par le bruit de projection quantique. On peut augmenter le temps pendant lequel le laser d'interrogation est verrouillé sur la transition en optimisant la séquence de l'horloge [44]. Ou bien, on peut augmenter la stabilité court terme du laser d'interrogation. Les différentes techniques employées pour stabiliser le laser d'interrogation seront développées dans le chapitre II de cette thèse.

I.5.6 Peignes de fréquences

La comparaison d'étalon de fréquence est extrêmement importante puisqu'elle permet de détecter les effets systématiques en comparant deux horloges identiques ou de relier la stabilité d'un étalon de fréquence à celle des fontaines atomiques au césium, étalon de fréquence primaire pour la mesure de la seconde.

Comparer des fréquences micro-ondes et optiques a été un vrai challenge puisqu'elles sont extrêmement éloignées ($\nu_{\text{optique}} \approx 10^5 \nu_{\text{RF}}$). En effet, aucun détecteur n'est assez rapide pour détecter directement une fréquence de quelques centaines de THz. Des chaines de mesure de fréquences ont d'abord été développées, basées sur la division et la multiplication de fréquences afin de comparer les étalons de fréquences entre eux. Ces dispositifs étaient extrêmement complexes et ne permettaient que de comparer deux fréquences définies entre elles.

Les lasers femto-secondes ont été une révolution dans ce domaine depuis les années 2000. Ces lasers émettent des pulsations de lumière très courtes dans le domaine temporel, ce qui dans le domaine spectral équivaut à un peigne de fréquences optiques régulièrement espacées (cf. figure (I.8)). L'écart entre les dents du peigne est défini par la fréquence de répétition f_{rep} des impulsions. Il existe également une fréquence d'offset f_0 qui est due au décalage entre la vitesse de phase et la vitesse de groupe d'une impulsion.

Il est possible de stabiliser la fréquence de répétition en utilisant une référence de fréquence telle qu'une cavité ultra-stable ou un maser et de supprimer la fréquence d'offset dans la mesure grâce à la méthode f-2f dans laquelle on fait battre une des dents du peigne et son octave. On dispose ainsi d'un outil très pratique pour relier les fréquences micro-ondes aux fréquences optiques. La stabilité des nouvelles générations d'horloges optiques se montre déjà meilleure que les fontaines atomiques. Grâce aux peignes de fréquences, des comparaisons entre horloges à réseau optique très performantes et horloge micro-onde au césium définissant la durée d'une seconde ont déjà été faites dans le but de redéfinir la seconde SI dans un futur proche [45].

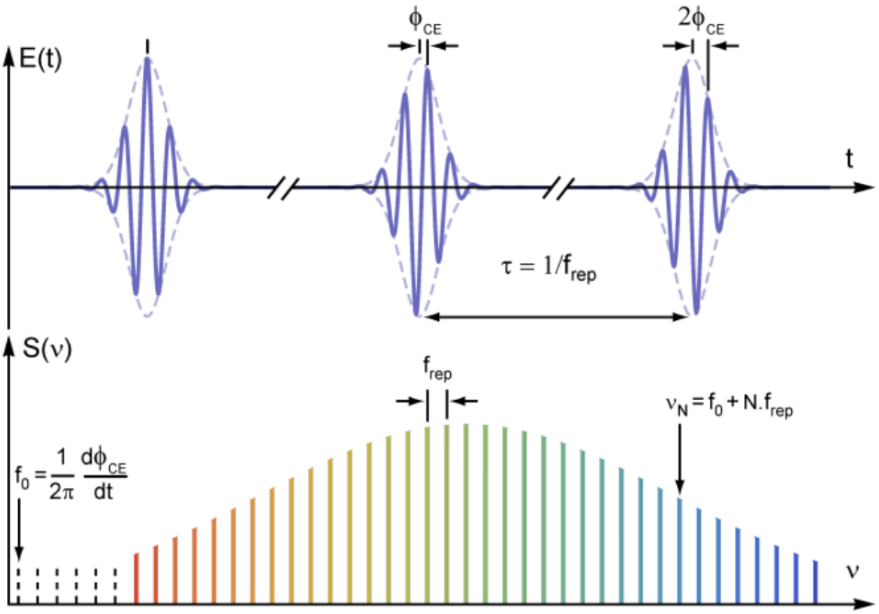

FIGURE I.8 – Laser femto-seconde dans le domaine temporelle et spectral

Le peigne de fréquence permet également de transférer la pureté spectrale d'une fréquence à une autre. Il a notamment été démontré expérimentalement qu'il est possible d'effectuer un transfert de pureté spectrale entre deux longueurs d'ondes avec un peigne de fréquence à un niveau de 10^{-18} à 1 seconde d'intégration [46], soit une stabilité meilleure que n'importe quel oscillateur existant. On peut donc créer un oscillateur extrêmement stable à une longueur d'onde quelconque, et transférer la pureté spectrale de cet oscillateur vers les oscillateurs qui interrogent les atomes d'une horloge optique fonctionnant à une longueur d'onde différente, ce qui peut être une bonne piste pour diminuer les fluctuations de phase du laser d'interrogation dans les horloges optiques et ainsi diminuer l'effet Dick qui limite actuellement leur stabilité.

I.6 Conclusion

Nous avons dans ce chapitre placé le contexte métrologique dans lequel se déroule cette thèse. Les horloges à réseau optique montrent d'excellentes performances, alliant l'exactitude d'une horloge à ions et la stabilité des horloges à atomes neutres non piégés et semblent être d'excellents candidats pour remplacer les fontaines atomiques et ainsi redéfinir la seconde SI dans les années à venir. Ces horloges sont actuellement limitées par l'effet Dick qui peut être diminué en augmentant la stabilité de l'oscillateur d'interrogation sur les temps courts. Dans le chapitre suivant, nous verrons comment les lasers d'interrogations sont stabilisés dans ces horloges optiques et nous développerons l'intérêt des terres-rares dans ce contexte métrologique.

Chapitre II

Stabilisation du laser horloge et apport des cristaux dopés terres rares

Les lasers horloges sont actuellement stabilisés en fréquence en utilisant un mode fondamental d'une cavité ultra-stable de haute finesse. Différentes pistes tentent d'améliorer la stabilité court terme des lasers d'interrogation (aussi nommés "lasers horloges") sur les cavités ultra-stables. Cependant, depuis les années 2000, les lasers stabilisés sur des trous brûlés spectraux étroits dans des cristaux dopés terres-rares présentent des propriétés intéressantes pour être une alternative aux cavités ultra-stables.

Ce chapitre décrit dans un premier temps la méthode Pound Drever Hall (PDH), actuellement utilisée sur les horloges optiques pour stabiliser en fréquence les lasers d'interrogation. Puis, dans un second temps, l'intérêt des cristaux dopés terres-rares comme nouvelle référence de fréquences des lasers d'interrogation sera développé. En particulier, nous nous intéresserons aux propriétés spectrales du cristal $Eu^{3+} : Y_2SiO_5$. Le but de ce chapitre est de comprendre en quoi ce cristal pourrait être une bonne alternative pour stabiliser les lasers d'interrogation des horloges optiques.

II.1 Stabilisation d'un laser sur une cavité ultra-stable

II.1.1 Description de la méthode Pound Drever Hall

La méthode Pound Drever Hall (PDH) utilise la spectroscopie par modulation de fréquence qui est une méthode efficace pour détecter le centre d'une référence de fréquence fine. D'abord étudiée par Pound en 1946 dans le domaine des radio fréquences en utilisant des cavités micro-ondes [47], cette technique à été transposée au domaine des fréquences optiques par Drever et Hall en 1980 [48] dans le cadre des boucles d'asservissement d'un laser verrouillé sur une cavité optique de type Fabry-Pérot de haute finesse.

La méthode PDH consiste à stabiliser la fréquence d'un laser à la fréquence de résonance d'un des modes fondamentaux d'une cavité Fabry-Pérot de haute finesse. Les fréquences de résonance des modes fondamentaux TEM_{00} sont séparées par l'Intervalle Spectral Libre (ISL) de la cavité, égal à la fréquence à laquelle la lumière revient sur elle-même dans la cavité, soit c/2L, ou c/4L pour une cavité confocale, avec c la vitesse de la lumière dans le vide, et L la longueur de la cavité.

On considère un champ électrique incident sur la cavité, ayant une fréquence angulaire $\omega = 2\pi\nu$, modulée en phase à une pulsation $\Omega = 2\pi\nu_{mod}$. Nous utiliserons les fonctions de Bessel et nous nous arrêterons à l'ordre 2 pour une profondeur de modulation de phase β faible :

$$E_i = E_0 e^{i(\omega t + \beta \sin(\Omega t))} \tag{II.1}$$
$$\approx E_0[J_0(\beta) + 2iJ_1(\beta)\sin(\Omega t)]e^{i\omega t} \tag{II.2}$$
$$= E_0 J_0(\beta) + E_0 J_1(\beta) e^{i(\omega+\Omega)t} - E_0 J_1(\beta) e^{i(\omega-\Omega)t} \tag{II.3}$$

On a donc un champ de fréquence angulaire ω et deux bandes latérales créées par la modulation de phase $\omega + \Omega$ et $\omega - \Omega$. La cavité est un élément sélectif en fréquence ayant une fonction de transfert égale à :

$$F(\omega) = \frac{E_r(\omega)}{E_i(\omega)} = \frac{r(1 - e^{i\omega/ISL})}{1 - r^2 e^{i\omega/ISL}} \tag{II.4}$$

où r est le coefficient de réflexion en amplitude des miroirs de la cavité. Il est lié à la finesse de la cavité.

$$\text{finesse} = \pi \frac{\sqrt{\mathrm{r}}}{(1 - \mathrm{r})} \tag{II.5}$$

On en déduit donc le champ réfléchi par la cavité égal à :

$$E_r(\omega) = E_0[F(\omega)J_0(\beta)e^{i\omega t} + F(\omega+\Omega)J_1(\beta)e^{i(\omega+\Omega)t} + F(\omega-\Omega)J_1(\beta)e^{i(\omega-\Omega)t}] \tag{II.6}$$

Une photodiode rapide détecte le carré du module du champ électrique réfléchi par la cavité :

$$P_r(\omega) = |E_r(\omega)|^2 \tag{II.7}$$
$$\begin{aligned} &= P_c|F(\omega)|^2 \\ &\quad + P_s[|F(\omega+\Omega)|^2 + F(\omega-\Omega)|^2] \\ &\quad + 2\sqrt{P_c P_s}\{\mathrm{Re}[\chi(\omega,\Omega)]\cos(\Omega \mathrm{t}) + \mathrm{Im}[\chi(\omega,\Omega)]\sin(\Omega \mathrm{t})\} \\ &\quad + \text{termes}(2\Omega)... \end{aligned} \tag{II.8}$$

avec $\mathrm{P_c}$ et $\mathrm{P_s}$ les puissances dans le champ et dans les bandes latérales formées par la modulation de phase, et :

$$\chi(\omega,\Omega) = F(\omega)F^*(\omega+\Omega) - F^*(\omega)F(\omega-\Omega) \tag{II.9}$$

Le signal est ensuite démodulé à Ω

$$\epsilon = P_r(\omega)\sin(\Omega t + \phi) \tag{II.10}$$
$$= 2\sqrt{P_c P_s}\{\mathrm{Re}[\chi(\omega,\Omega)]\cos\Omega \mathrm{t} + \mathrm{Im}[\chi(\omega,\Omega)]\sin\Omega \mathrm{t}\}\sin(\Omega \mathrm{t} + \phi) \tag{II.11}$$

La forme du signal d'erreur dépend de la phase ϕ de la démodulation. Si $\phi = \pi/2\ [2\pi]$ on a :

$$\epsilon = 2\sqrt{P_c P_s}\left\{\mathrm{Re}[\chi(\omega,\Omega)]\cos(\Omega \mathrm{t}) + \mathrm{Im}[\chi(\omega,\Omega)]\sin(\Omega \mathrm{t})\right\}\sin\left(\Omega t + \frac{\pi}{2}\right) \tag{II.12}$$
$$= 2\sqrt{P_c P_s}\left\{\mathrm{Re}[\chi(\omega,\Omega)]\cos^2(\Omega \mathrm{t}) + \frac{1}{2}\mathrm{Im}[\chi(\omega,\Omega)]\sin(2\Omega \mathrm{t})\right\} \tag{II.13}$$
$$= 2\sqrt{P_c P_s}\left\{\frac{1}{2}\mathrm{Re}[\chi(\omega,\Omega)] + \frac{1}{2}\mathrm{Re}[\chi(\omega,\Omega)]\sin(2\Omega \mathrm{t}) + \frac{1}{2}\mathrm{Im}[\chi(\omega,\Omega)]\cos(2\Omega \mathrm{t})\right\} \tag{II.14}$$

Le signal filtré passe-bas pour éliminer les composantes à 2Ω est :

$$\epsilon_{\text{filtré}} = \sqrt{P_c P_s}\text{Re}[\chi(\omega, \Omega)] \tag{II.15}$$

Si $\phi = 0\ [2\pi]$ on a :

$$\begin{aligned}
\epsilon &= 2\sqrt{P_c P_s}\left\{\text{Re}[\chi(\omega,\Omega)]\cos(\Omega\text{t}) + \text{Im}[\chi(\omega,\Omega)]\sin(\Omega\text{t})\right\}\sin(\Omega t) && \text{(II.16)}\\
&= 2\sqrt{P_c P_s}\left\{\frac{1}{2}\text{Re}[\chi(\omega,\Omega)]\sin(2\Omega\text{t}) + \text{Im}[\chi(\omega,\Omega)]\sin^2(\Omega\text{t})\right\} && \text{(II.17)}\\
&= 2\sqrt{P_c P_s}\left\{\frac{1}{2}\text{Re}[\chi(\omega,\Omega)]\sin(2\Omega\text{t}) + \frac{1}{2}\text{Im}[\chi(\omega,\Omega)]\cos(2\Omega\text{t}) + \frac{1}{2}\text{Im}[\chi(\omega,\Omega)]\right\} && \text{(II.18)}
\end{aligned}$$

Le signal filtré passe-bas pour éliminer les composantes à 2Ω est :

$$\epsilon_{\text{filtré}} = \sqrt{P_c P_s}\text{Im}[\chi(\omega, \Omega)] \tag{II.19}$$

En pratique, on règle la phase ϕ tel que $\phi = \pi/2$. Ce signal présente un point de verrouillage et est utilisé comme signal d'erreur pour maintenir la fréquence du laser à la résonance de la cavité. Les parties réelle et imaginaire de $\chi(\omega, \Omega)$ sont représentées sur la figure (II.1). Proche de la résonance de la cavité, le signal d'erreur est proportionnel à l'écart de phase entre le laser et la résonance d'un des modes de la cavité Fabry-Pérot.

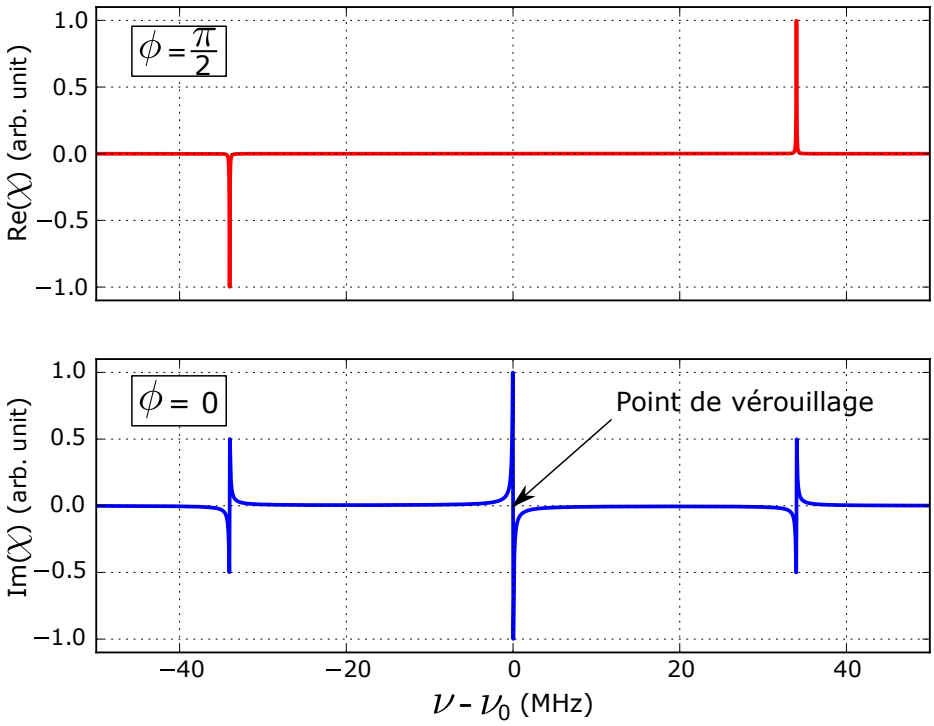

FIGURE II.1 – Signal d'erreur PDH
Simulation d'un signal d'erreur PDH avec une cavité de longueur 50 mm et de finesse 100000 et une fréquence de modulation de phase à 34 MHz

II.1.2 Limite ultime des cavités ultra-stables

La stabilité en fréquence du laser verrouillé sur la résonance de la cavité est fixée par la stabilité de la longueur de la cavité.

$$\frac{\Delta\nu}{\nu} = \frac{\Delta L}{L} \tag{II.20}$$

La limite ultime d'un laser verrouillé sur une cavité ultra-stable est le bruit thermique, et plus particulièrement le mouvement brownien des atomes sur la surface des deux miroirs de la cavité qui modifie légèrement la longueur de la cavité [49]. Cette limite peut être diminuée en utilisant des matériaux à haut facteur de qualité Q pour les miroirs et la partie sur laquelle ils sont fixés appelée spacer. Les miroirs de la cavité sont en silice fondue car ce matériau possède un facteur de qualité élevé. En revanche, son coefficient d'expansion thermique est égale à 5×10^{-7}/K tandis que celui du verre ULE (Faible expansion thermique) vaut $\pm5\times10^{-8}$/K. Le spacer est donc en ULE plutôt qu'en silice fondue. Ce type de cavité possède un point d'inversion pour lequel la longueur de la cavité est insensible aux fluctuations de température au premier ordre.

II.1.3 États de l'art des cavités ultra-stables

En raison des multiples applications qui utilisent des lasers stabilisés en fréquence sur des cavités ultra-stables, de nombreuses études ont été faites depuis les années 2000 pour améliorer leur stabilité, actuellement limitée à quelques 10^{-16} à une seconde de temps d'intégration pour des cavités de grande finesse et longue d'une dizaine de centimètres. Ces études peuvent se diviser en trois axes.
Des études ont été concentrées sur le design de la cavité pour permettre de moyenner davantage le mouvement brownien des atomes sur la surface des miroirs. En particulier, une cavité plus longue permet de moyenner davantage les fluctuations relatives de la longueur de la cavité [50]. D'autre part, si le mode du faisceau sur les miroirs a une taille plus grande, alors le mouvement brownien des atomes sur les miroirs est également moyenné davantage, ce qui améliore la stabilisé du laser [51]. Une stabilité court terme de 8×10^{-17} a été obtenue avec une cavité de longueur 48 cm[52].
Le mouvement brownien des atomes est lié à la température. Ainsi, plus on se rapproche d'une température de 0 K, plus le mouvement brownien des atomes est faible. C'est pourquoi les cavités placées en milieu cryogénique sont également une piste pour diminuer la limite fondamentale des cavités ultra-stables. Pour avoir un point d'inversion accessible à ces températures, les cavités cryogéniques sont en silicium car ce matériau possède un point d'inversion autour de 124 K. La stabilité atteinte sur des temps courts pour ce type de cavité est de 1×10^{-16} [53].
Des matériaux cristallins sont également étudiés pour les traitements de surface des miroirs, afin de diminuer leur contribution au mouvement brownien [54].

II.2 Intérêt des cristaux dopés terres-rares pour la stabilisation d'un laser

II.2.1 Bref historique des terres-rares

Les terres-rares regroupent les éléments du tableaux de Mendeleïev avec un numéro atomique Z compris entre 57 et 71 auxquels on ajoute le scandium (Z=21) et l'yttrium (Z=39). Le terme terre ≪ rare ≫ à été donné en raison de l'unique lieu de provenance de ces éléments aux XVIIIème siècle à Ytterby en Suède. Le développement des lasers a accompagné la spectroscopie des terres-rares, du fait de la capacité du laser à sonder des transitions énergétiques de plus en plus fines. La finesse spectrale des transitions et la durée de vie des niveaux d'énergie mis en jeu dans les terres-rares a grandement contribué à leur étude. Elles interviennent aujourd'hui dans de très nombreux domaines parmi lesquels la fabrication des lasers utilisant comme milieu amplificateur des cristaux dopés terres-rares tels que le laser Nd^{3+} : YAG. On les utilise également dans le domaine des télécommunications pour amplifier la lumière dans les fibres optiques. En effet, la transition énergétique $^4I_{15/2}$ et $^4I_{13/2}$ de l'ion Er^{3+} est à une fréquence située dans la fenêtre de transparence de la silice, matériau à la base des fibres optiques [55]. Les terres-rares sont également très étudiées en tant que support de stockage pour l'information quantique [56][57] [58] [59] dans le but de créer un réseau d'information quantique. Enfin, les propriétés spectrales des terres-rares sont également utilisées pour la réalisation d'étalons de fréquence secondaires [60] [61] [62] [63] [64] ou bien l'analyse spectrale large bande [65].

De façon plus générale, les terres rares sont aujourd'hui utilisées dans des domaines clés tels que les applications militaires, médicales, automobiles, écologiques... Les applications sont si nombreuses que leur production et leur approvisionnement sont devenus un enjeu économique mondial [66].

II.2.2 Structure énergétique et Hamiltonien d'une terre rare dans une maille cristalline

Propriétés physiques et chimiques

Les terres-rares font principalement partie de la famille des lanthanides dans le tableau de Mendeleïev. La configuration électronique de ces atomes est de la forme :

$$[\mathrm{Xe}]4\mathrm{f}^{\mathrm{n}}5\mathrm{d}^1 6\mathrm{s}^2 \quad \text{avec n} = 1..13 \tag{II.21}$$

En général, ces atomes se ionisent en se séparant des électrons des couches 5d et 6s de sorte que les électrons présents sur la couche 4f soient les plus internes spatialement (cf. figure (II.2)). Ils sont ainsi le plus souvent triplement ionisés. Le fait que les couches f soient spatialement très peu étirées et qu'elles soient écrantées par les orbitales 5s et 5p confère aux orbitales 4f une largeur spectrale particulièrement fine puisque très peu perturbée par l'environnement extérieur. Même lorsque ces atomes sont dopés dans des cristaux, les couches électroniques 5d et 6s restent une excellente protection. Les interactions avec le cristal n'ont alors qu'une faible influence sur les niveaux d'énergie de l'ion libre. Notamment, l'ion Eu^{3+} possède des transitions des couches internes 4f particulièrement étroites spectralement [67]. Pour l'ensemble des terres-rares, ces

transitions couvrent un spectre large s'étendant de l'ultraviolet à l'infrarouge lointain.

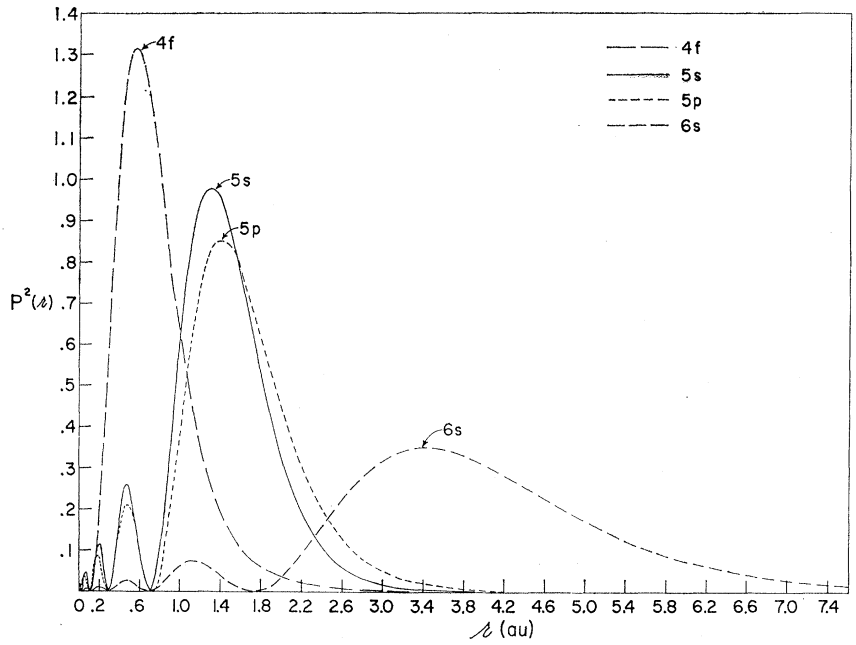

FIGURE II.2 – Densité radiale des orbitales 4f, 5s, 5d, et 6s de l'ion Gd^{3+} (figure extraite de [68])

Dans un cristal dopé terres-rares, l'ensemble des transitions optiques possibles respecte les règles de sélection et sont déterminées par les niveaux énergétiques des ions ou des molécules. Ces niveaux d'énergies sont principalement déterminés par la structure électronique de l'ion et par les différentes interactions qui ont lieu avec leur environnement local.

Structure énergétique et Hamiltonien d'une terre rare dans une maille cristalline

Déterminer la structure énergétique d'un ion en maille cristalline revient à résoudre l'équation de Schrödinger indépendante du temps avec le Hamiltonien correspondant. Nous procédons ici par étape en nous intéressant d'abord au cas de l'ion libre, puis en ajoutant les contributions du champ cristallin et enfin celles des perturbations dans une maille cristalline.

Le Hamiltonien d'une terre-rare souvent triplement ionisée dans une matrice cristalline peut être décomposé en 6 composantes. Le Hamiltonien est alors la somme des Hamiltoniens d'une particule libre, auquel s'ajoutent l'effet du champ cristallin, l'effet Zeeman électronique, l'interaction quadripolaire, l'interaction hyperfine et l'effet Zeeman nucléaire.

$$\widehat{H} = + \underbrace{\widehat{H}_0}_{\text{Ion libre}} + \underbrace{\widehat{H}_{CC} + \widehat{H}_{\text{ZeemanE}} + \widehat{H}_{\text{Hyperfine}} + \widehat{H}_{\text{Quadripolaire}} + \widehat{H}_{\text{ZeemanN}}}_{\text{Ions dans un cristal}} \tag{II.22}$$

Chaque composante du Hamiltonien va lever la dégénérescence et séparer la structure énergétique de la particule en sous-niveaux comme représentés sur la figure (II.3).

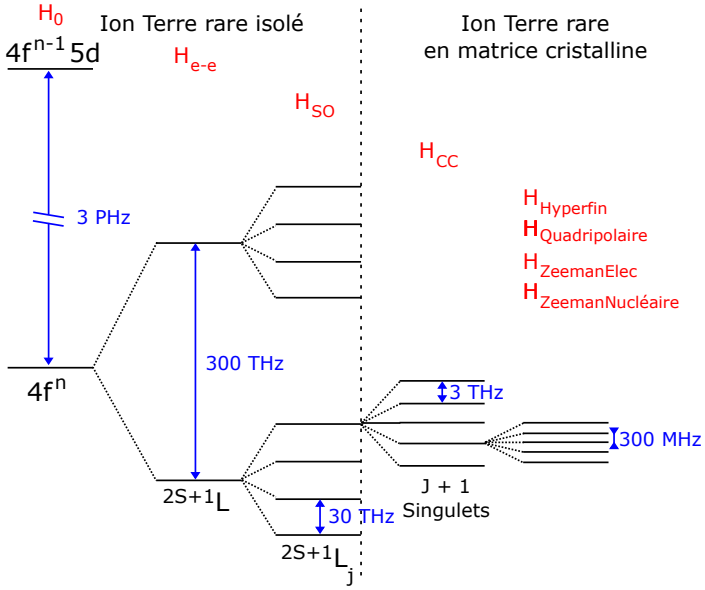

FIGURE II.3 – Schéma des dégénérescences énergétiques d'une terre rare dans un cristal

Considérons tout d'abord l'atome terre-rare isolé. Ses niveaux énergétiques sont déterminés par sa configuration électronique, définie par le champ électrostatique central de l'atome, par l'influence des autres électrons qui vont créer un champ électrostatique non central, par le couplage spin orbite. La configuration des terres-rares étant $[Xe]4f^n5d^16s^6$, la dégénérescence est de $\binom{14}{n}$. Cette dégénérescence est partiellement levée par la répulsion coulombienne qui sépare $4f^n$ en niveaux d'énergie distincts notés ^{2S+1}L, où L est le moment angulaire orbital (noté s,p,d,f pour "sharp", "principal", "diffuse", et "fundamental" [69]) qui définit la forme de l'orbitale, S le spin électronique. La dégénérescence vaut alors (2S+1)(2L+1). Le couplage spin-orbite, représentant l'interaction dipôle-dipôle magnétique qui existe entre le spin de l'électron et le champ magnétique, créé par son mouvement autour du noyau, lève la dégénérescence des niveaux ^{2S+1}L et forme les niveaux énergétiques $^{2S+1}L_J$ dégénérés 2J+1 fois où J est le moment angulaire total. La faible expansion spatiale des orbitales 4f rend les ions moins sensibles au champ cristallin qu'au couplage spin orbite lorsqu'ils sont dopés dans un cristal. Chacune de ces interactions est mise en évidence dans le Hamiltonien de l'ion libre H_0 à N électrons qui se décompose en 4 composantes : l'énergie cinétique, l'interaction avec le noyau, la répulsion coulombienne entre les électrons, et le couplage spin orbite.

$$\widehat{H}_0 = \widehat{H}_{\mathrm{Ec}} + \widehat{H}_{\mathrm{Z-e}} + \widehat{H}_{\mathrm{e-e}} + \widehat{H}_{\mathrm{SO}} \tag{II.23}$$

avec

$$\widehat{H}_{\mathrm{Ec}} = \sum_{i=1}^{N} -\frac{\hbar^2}{2m}\nabla^2(r_i) \tag{II.24}$$

$$\widehat{H}_{\mathrm{Z-e}} = \sum_{i=1}^{N} -\frac{Ze^2}{4\pi\epsilon_0 r_i} \tag{II.25}$$

$$\widehat{H}_{\mathrm{e-e}} = \sum_{i<j=1} \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 r_{ij}} \tag{II.26}$$

$$\widehat{H}_{\mathrm{SO}} = \sum_{i} \zeta_i(r_i)\widehat{l_i}\widehat{s_i} \tag{II.27}$$

où ϵ_0 est la permittivité du vide, m est la masse de l'électron, e la charge de l'électron, Z × e la charge du noyau, r_i le rayon de l'orbite de la particule i par rapport à son noyau, r_{ij} la distance entre deux électrons i et j, $\zeta_i(r_i)$ la constante de couplage spin-orbite, $\widehat{l_i}$ le moment angulaire orbital, et $\widehat{s_i}$ le moment cinétique de spin de l'électron i.

Lorsqu'on substitue les ions terres-rares dans la matrice cristalline, leur interaction avec les atomes de la matrice cristalline se fait via une interaction électrostatique entre l'électron et le champ cristallin. Cette interaction va lever la dégénérescence des niveaux $^{2S+1}L_J$ et les décomposer en sous-niveaux par effet Stark. Le résultat de cette interaction dépend du nombre d'électrons de l'atome considéré sur les couches 4f. Parmi les lanthanides, on distingue les ions qui ont un nombre impair d'électrons sur les couches 4f, appelés ions Kramers et les ions ayant un nombre pair d'électrons sur les couches 4f appelés ions non-Kramers. Les tableaux suivant listent les ions dits Kramers et non Kramers parmi les lanthanides.
Les ions de Kramers ont un nombre quantique J demi-entier dans la décomposition des termes

Electrons 4f	Ions Kramers
1	Ce
3	Nd
5	Sm
7	Gd
9	Dy
11	Er
13	Yb

Electrons 4f	Ions Non Kramers
2	Pr
4	Pm
6	Eu
8	Tb
10	Ho
12	Tm

Tableau II.4 – Classement de ions Kramers et Non Kramers

spectroscopiques lorsqu'on prend en compte l'interaction spin-orbite. Le théorème de Kramers stipule que pour ces ions, les niveaux $^{2S+1}L_J$ sont au moins doublement dégénérés en l'absence de champ magnétique pour lever la dégénérescence par effet Zeeman. Chaque niveau d'énergie sera au moins un doublet appelé doublet de Kramers. Le doublet est donc séparé dans deux états de spin $m_s = +/-1/2$. Si la symétrie du site dans lequel est placé l'ion est élevée, alors la décomposition spectrale avec le champ cristallin donnera une dégénérescence plus grande. Les ions dit non-Kramers ne présentent pas cette dégénérescence et le champ cristallin forme 2J+1 états singulets. La présence de doublets appelés doublets non-Kramers dépend de la symétrie du site [70].

Lorsque les ions sont dans un cristal, de nouvelles composantes s'ajoutent dans le Hamiltonien. Ces composantes représentent l'influence du champ cristallin d'une part, mais aussi des différentes interactions sur les ions. Ces interactions vont être responsables de nouvelles levées de dégénérescence, notamment les interactions Zeeman électronique, Zeeman nucléaire, quadripolaire, et hyperfine. Les ions terres-rares étant naturellement protégés par les orbitales 5s et 5p, les interactions avec la maille cristalline peuvent être traitées comme des perturbations. On trouve l'expression des Hamiltoniens des différentes composantes :

$$\widehat{H}_{\text{ZeeemanE}} = g_j \mu_B \widehat{B}.\widehat{J} \tag{II.28}$$

$$\widehat{H}_{\text{ZeeemanN}} = -\hbar\gamma_n \widehat{B}.\widehat{I} \tag{II.29}$$

$$\widehat{H}_{\text{Hyperfine}} = -A_j \widehat{I}.\widehat{J} \tag{II.30}$$

$$\widehat{H}_{\text{Quadripolaire}} = \tilde{P}[I_z^2 - \frac{(I(I+1)}{3} + \frac{\eta}{3}(I_x^2 - I_y^2)] \tag{II.31}$$

où μ_B est le magnéton de Bohr, $\widehat{J}$ le moment angulaire électrique total, B le champ magnétique, g_j est le facteur de Landé dans le cas d'un couplage spin-orbite, γ_n le facteur gyromagnétique du noyau, I le spin nucléaire, $\tilde{P}$ la constante de couplage quadripolaire, et η le coefficient d'asymétrie du gradient de champ électrique dont les directions principales sont x', y' et z'.

L'interaction hyperfine est une interaction magnétique entre l'électron et le moment magnétique nucléaire s'il est non nul. Les niveaux sont à nouveau éclatés. La durée de vie et les temps de cohérence très longs de ces niveaux hyperfins présentent des avantages notables pour le stockage d'information quantique, et, plus particulièrement pour les trous brûlés spectraux [71] [72] [73] [74] [75].

Une dernière interaction peut avoir lieu entre le spin nucléaire d'un ion hôte et de le moment angulaire orbital électronique de l'ion terre-rare appelé interaction superhyperfine. Cette interaction sépare les niveaux hyperfins. La largeur spectrale de ces transitions a été mesurée par écho de photon et trou brûlé spectral [76] [77].

Les différentes composantes du Hamiltonien montrant la structure énergétique des ions terres-rares en matrice cristalline sont représentés sur la figure (II.5). La longueur d'onde des transitions va donc à la fois dépendre de la terre-rare mais aussi de la matrice cristalline dans laquelle est dopée la terre-rare. Les transitions qui sont utilisés dans le domaine optique sont des transitions entre deux sous-niveaux Stark fondamentales $^{2S+1}L_J$. Les longueurs d'ondes de certaines transitions utilisées dans certaines terres rares sont regroupées dans la figure (II.6).

La théorie de Judd-Ofelt [79][80] décrit les règles de sélection pour les transitions entre niveaux des orbitales 4f des ions terres-rares en matrice cristalline. Dans cette théorie, les transitions dipolaires électriques entre niveaux de même parité sont normalement interdites. Des mécanismes additionnels [81][82] rendent cependant ce type de transition possible dans de nombreux matériaux. La transition est alors permise avec une largeur de raie très fine. C'est le cas par exemple de la transition $^7F_0 -^5 D_0$ des ions Eu^{3+} dans la matrice cristalline Y_2SiO_5.

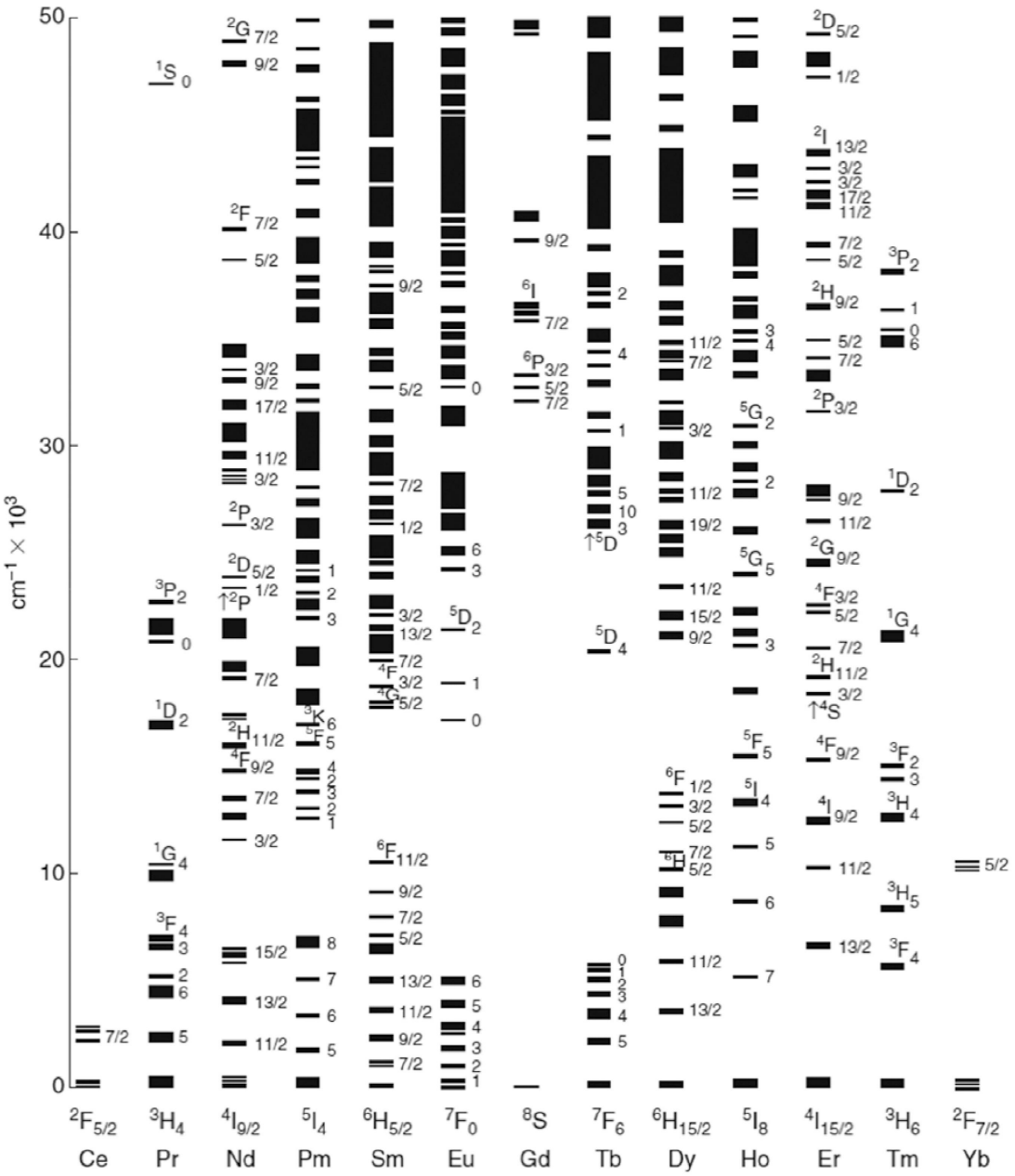

FIGURE II.5 – Niveaux d'énergie des lanthanides (figure extraite de [78])

Ions	Transition	Longueur d'onde λ
Eu^{3+}	${}^7F_0 - {}^5D_0$	580 nm
Pr^{3+}	${}^3P_0 - {}^3H_6$	606 nm
Tm^{3+}	${}^3F_4 - {}^3H_4$	793 nm
Nd^{3+}	${}^4F_{3/2} - {}^4I_{9/2}$	880 nm
Yb^{3+}	${}^2F_{5/2} - {}^2F_{7/2}$	980 nm
Er^{3+}	${}^4I_{15/2} - {}^4I_{13/2}$	1532 nm

Tableau II.6 – Longueur d'onde de certaines transitions utilisés dans les terres-rares

II.2.3 Largeur homogène et inhomogène

La largeur homogène d'une transition atomique est la largeur de la transition d'un atome ou d'un ion isolé. Cette largeur est élargie de façon inhomogène lorsqu'on sonde un ensemble d'atomes, et ceci est dû au fait que leurs environnements sont distincts. Pour comprendre ce phénomène, nous prendrons l'exemple d'un ensemble d'atomes en milieu gazeux, puis d'un ensemble d'ions terres-rares en matrice cristalline.

En milieu gazeux, les atomes sont animés d'un mouvement désordonné. L'interrogation d'une transition donnée pour chaque atome aura donc une fréquence légèrement différente d'un atome à l'autre, car la vitesse et la direction de tous les atomes ne sont pas identiques. Les niveaux d'énergie observés de chaque atome sont décalés par effet Doppler. La distribution des vitesses obéit à une statistique gaussienne. Ainsi, si on sonde une transition dans un milieu gazeux absorbant avec une source spectralement large, on observe un spectre d'absorption de forme gaussienne d'autant plus large par rapport à la largeur homogène que la distribution des vitesses est grande. On a donc un spectre élargi de façon inhomogène puisque le spectre d'absorption résulte des différentes fréquences d'excitation d'une même transition pour des atomes ayant des vitesses différentes.

Pour les terres-rares dopées dans des cristaux, les atomes sont immobiles. Il n'y a donc pas d'élargissement inhomogène du spectre d'absorption causé par effet Doppler. Cependant, lors du processus de fabrication d'un cristal dopé terres-rares, notamment lors du processus de dopage, des contraintes statiques, provoquées par des dislocations, des impuretés présentes dans le cristal (y compris les ions dopants), viennent perturber localement la matrice cristalline en modifiant légèrement sa géométrie. Ainsi, les ions terres-rares sont positionnés différemment par rapport à leurs plus proches voisins qui vont décaler les niveaux d'énergie des ions par effet Stark. De façon analogue au paragraphe précédent, on obtient un spectre d'absorption élargi de façon inhomogène, cette fois ci par effet Stark (cf. figure (II.7)). Il a été montré que la forme de la largeur inhomogène des résonances des ions dopés dans des cristaux a une forme lorentzienne [83] et non gaussienne comme pour les atomes en milieu gazeux. Le spectre d'absorption inhomogène lorentzien résulte de la superposition des raies d'absorption lorentziennes de chaque ion terre-rare.

La largeur homogène correspond à la largeur d'une raie d'absorption pour un unique atome, ou plus précisément pour l'ensemble des atomes qui sont dans la même configuration (même vitesse dans les milieux gazeux ou bien même champ cristallin perçu pour les terres rares dans les cristaux).

II.2.4 Technique de mesure de la largeur homogène

La largeur inhomogène est de quelques GHz. Elle est mesurable avec des lasers non stabilisés en fréquence. En revanche, mesurer la largeur homogène requiert l'utilisation de techniques de pointe en spectroscopie telles que l'écho de photon dans le domaine temporel, ou bien le brûlage spectral (spectral hole burning) dans le domaine spectral.

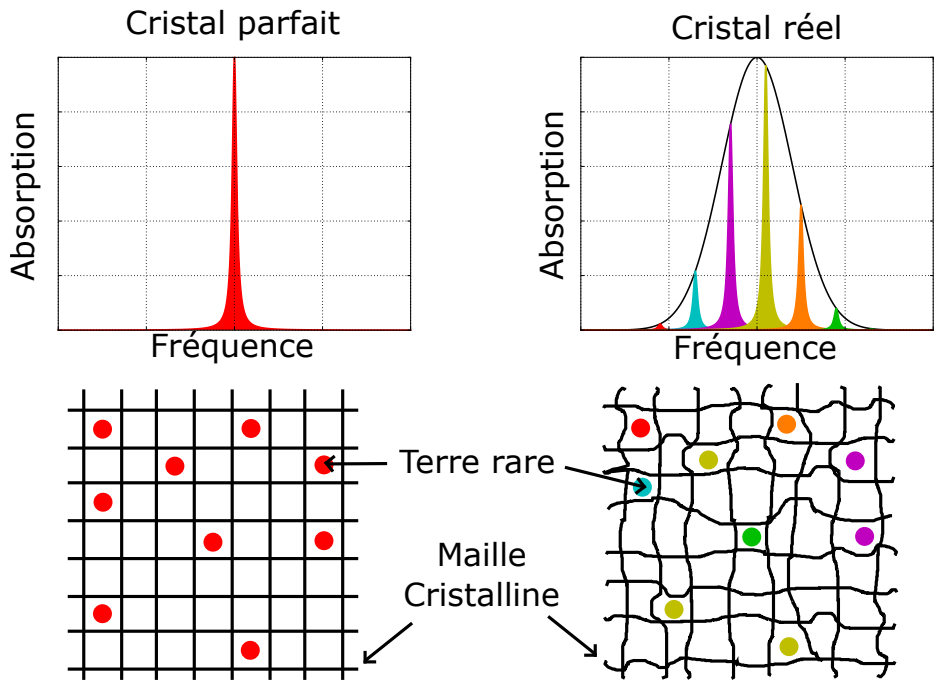

FIGURE II.7 – Elargissement inhomogène du spectre d'absorption dans un cristal dopé terres rares

Mesure de largeur homogène par écho de photon

La plupart des mesures de largeur spectrale de transitions optiques dans les terres-rares sont faites avec la méthode de l'écho de photon à deux impulsions. Cette méthode permet de mesurer le temps de cohérence d'une transition, et ainsi de remonter au temps T_2, et donc à la largeur homogène d'une transition. Cette méthode est équivalente à l'écho de spin nucléaire utilisé en Résonance Magnétique Nucléaire (RMN) pour sonder des transitions hyperfines dans le domaine RF [84] [85].

Si la fonction d'onde $|\psi\rangle$ est une superposition des états $|a\rangle$ et $|b\rangle$,

$$|\psi\rangle = C_a \exp(-iE_a t/\hbar\,|a\rangle + C_b \exp(-iE_b t/\hbar)\,|b\rangle \tag{II.32}$$

alors la matrice densité associée, dans l'espace de Hilbert des deux états s'écrit :

$$\rho = \begin{pmatrix} \rho_{aa} & \rho_{ab} \\ \rho_{ba} & \rho_{bb} \end{pmatrix} \tag{II.33}$$

$$= \begin{pmatrix} |C_a|^2 & C_a C_b^* exp[i(E_a - E_b)t/\hbar] \\ C_a C_b^* exp[-i(E_a - E_b)t/\hbar] & |C_b|^2 \end{pmatrix} \tag{II.34}$$

La cohérence entre les deux états est marquée par la présence d'éléments non nuls hors de la diagonale de la matrice densité.

Si on applique sur la transition entre les états $|a\rangle$ et $|b\rangle$ une impulsion laser $\pi/2$ à un temps t_0, une superposition cohérente des deux états est créée. Un moment dipolaire macroscopique

apparaît. Ce moment dipolaire va cependant disparaître au bout d'un certain temps, et ceci est dû au fait que les atomes n'ont pas tout à fait la même fréquence de résonance et vont donc se déphaser les uns par rapport aux autres. En appliquant une impulsion laser π à un temps $t_0 + \tau$, on inverse le système. Le processus de diffusion des phases s'inverse et éventuellement, au bout d'un temps $t_0 + 2\tau$, les moments dipolaires de chaque atome sont à nouveau en phase, comme avant la première impulsion. Le dipôle macroscopique ainsi reformé permet au système d'émettre une impulsion lumineuse appelé écho de photon [86](voir figure (II.8)).

Plus les atomes du cristal sont perturbés par leur environnement local, plus la relation de phase qui existe entre les différents atomes disparaît rapidement, ce qui a comme conséquence de diminuer l'amplitude de l'écho de photon, et donc d'élargir la largeur spectrale de la transition considérée.

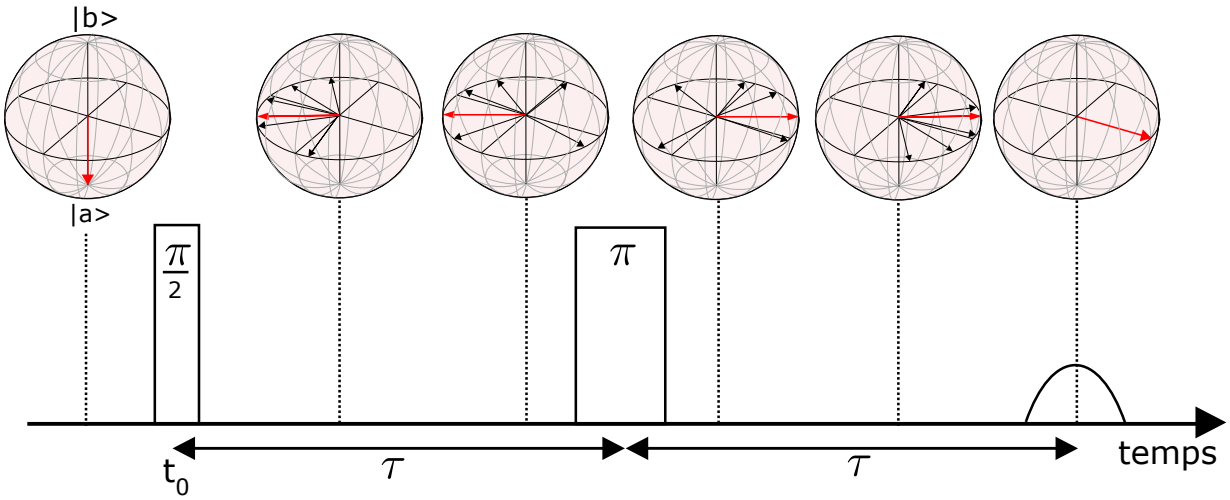

FIGURE II.8 – Principe de l'écho de photon à deux impulsions
Un premier pulse $\pi/2$ à un temps t_0 crée une superposition d'états $|a\rangle$ et $|b\rangle$. Un pulse π à un temps $t_0 + \tau$ permet d'inverser la diffusion de phase des atomes, et ainsi les rephaser. Le moment dipolaire ainsi reformé permet au système d'émettre une impulsion lumineuse, appelée écho de photon.

L'apparition d'un écho de photon se fait uniquement si la transition possède un temps de cohérence long. En pratique, ce temps de cohérence T_2 est limité, ce qui explique la diminution d'amplitude de l'écho de photon lorsqu'on augmente le temps τ qui sépare les impulsions $\pi/2$ et π.

Mesure de la largeur homogène par Spectral Hole Burning (SHB)

Ce manuscrit utilise un cristal $Eu^{3+} : Y_2SiO_5$ pour brûler des trous spectraux. Aussi, nous utiliserons l'exemple de ce cristal pour expliquer en quoi consiste la méthode du Spectral Hole Burning.

Lorsqu'on interroge une transition de façon résonnante, les ions excités redescendent généralement dans l'état fondamental. Mais dans certains cas, notamment dans les cristaux dopés terres-rares, en raison de la présence d'une structure hyperfine, les atomes ne redescendent pas

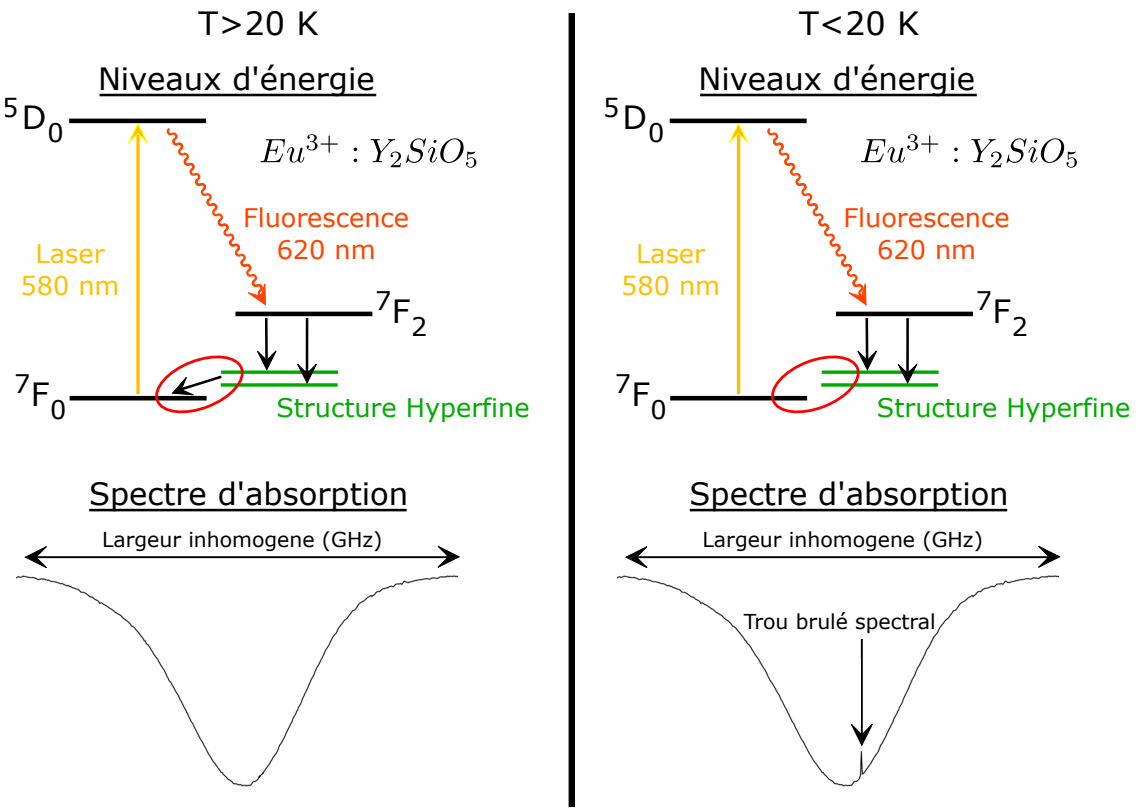

FIGURE II.9 – Principe de la formation d'un trou brûlé spectral

directement dans le niveau fondamental mais transitent dans un des niveaux de la structure hyperfine du niveau fondamental. Si on envoie un laser dont la largeur spectrale est étroite (inférieure à la largeur inhomogène du spectre d'absorption au minimum) sur des ions terres-rares dont la fréquence est résonante avec celle du laser pour la transition considérée, les ions passent dans le niveau excité de la transition puis se désexcitent dans les niveaux de la structure hyperfine avant de revenir dans le niveau fondamental par désexcitation non radiative assistée par les phonons présents dans la maille cristalline.

A température ambiante, l'activité des phonons est grande et les atomes redescendent de façon quasi-instantanée dans le niveau fondamental. En revanche, à température cryogénique, l'activité des phonons peut être nettement réduite et l'atome qui se désexcite reste par conséquent bloqué dans la structure hyperfine du niveau fondamental. Le dépeuplement du niveau fondamental diminue le nombre d'absorption de photons résonants avec la transition par les ions. La lumière n'est donc plus absorbée et passe à travers le cristal. Dans le domaine spectral, un pic de transmission apparaît dans le spectre d'absorption inhomogène. Un trou spectral est brûlé dans le spectre d'absorption. Si la largeur du trou brûlé spectral n'est pas limitée par la largeur spectrale du laser qui interroge les atomes, alors la largeur du trou brûlé spectral correspond à la largeur homogène.

Dans notre cas, en envoyant un laser à 580 nm et étroit spectralement, une partie des ions Eu^{3+} passe du niveau fondamental $^7F_0$ au niveau excité $^5D_0$, puis redescend dans la structure hyperfine. En dessous de 20 K, l'activité des phonons est suffisamment réduite pour qu'un trou brûlé spectral se forme et apparaisse dans le spectre d'absorption du cristal (cf. figure (II.9)).

Deux effets distincts élargissent le spectre d'absorption des cristaux dopés terres-rares : L'élargissement homogène et l'élargissement inhomogène. Dans la suite de ce manuscrit, nous limiterons l'étude de ces effets au cristal utilisé dans le cadre de cette thèse : $Eu^{3+} : Y_2SiO_5$ et mettrons en évidence les propriétés particulières de ce cristal pour des applications métrologiques.

II.2.5 Processus d'élargissement spectral

Processus d'élargissement inhomogène

Dans le processus de dopage du cristal $Eu^{3+} : Y_2SiO_5$, une petite quantité d'ions Eu^{3+} remplace des ions Y^{3+} dans la matrice cristalline Y_2SiO_5. Le fait que les ions Eu^{3+} et Y^{3+} ne soient pas exactement de la même taille induit une contrainte statique dans la maille cristalline. Plus le nombre de dopants est élevé, plus les amplitudes des contraintes induites sont variées. Le spectre inhomogène sera alors d'autant plus large car les ions Eu^{3+} auront des environnements locaux plus variés. Une dépendance linéaire de 21 GHz/(mol %) a été montrée entre le nombre de dopants injectés dans la matrice cristalline et la largeur inhomogène du spectre d'absorption [87].

Processus d'élargissement homogène

Le but de cette thèse est d'exploiter la finesse de la largeur homogène des ions europium Eu^{3+} sur la transition $^7F_0 -^5 D_0$ dans la maille cristalline Y_2SiO_5. Cette largeur spectrale va en effet servir de référence pour stabiliser le laser. La largeur homogène est donc le paramètre le plus important pour des applications métrologiques. Il est important de comprendre les mécanismes qui influencent la finesse de cette référence de fréquence.

La largeur d'une raie d'absorption d'un atome est liée au temps de cohérence T_2 de la transition optique considérée :

$$T_2 = \frac{1}{\pi\Gamma} \tag{II.35}$$

où Γ est la largeur de raie de la transition correspondante au temps de cohérence T_2. Les ions terres rares possèdent, grâce à leur propriétés particulières, des temps de cohérences longs et donc des largeurs de raie très fines. La limite maximale du temps de déphasage T_2 est donnée par la limite d'Heisenberg :

$$T_{2,max} = 2T_1 \tag{II.36}$$

où T_1 est le temps de vie d'un ion dans l'état excité de la transition considérée. Cette relation est valable pour un atome isolé dans le vide. Des mesures de temps de fluorescence T_1 ont été effectués pour différentes concentrations de dopants Eu^{3+} dans le cristal Y_2SiO_5 [87]. On en déduit les largeurs homogènes minimales pour différentes concentrations de dopants dans deux sites d'absorptions distincts récapitulées dans le tableau suivant :

Cette limite n'est en pratique jamais atteinte car le temps de déphasage fait toujours intervenir les interactions avec l'environnement de l'atome qui élargissent la largeur de raie de la

Concentration	$\Gamma_{\text{Site1,min}}$ (Hz)		$\Gamma_{\text{Site2,min}}$ (Hz)	
	2 K	300 K	2 K	300 K
0.1%	80.8	87.4	98.2	101.4
0.5%	81.6	91.0	97.6	101.4
1%	82.0	94.2	98.2	101.4

Tableau II.10 – Largeurs homogènes minimales pour plusieurs taux de dopage dans le cristal $Eu^{3+} : Y_2SiO_5$ (d'après données extraites de [87])

transition et donc diminuent son temps de cohérence. Dans le cas du cristal Eu^3+ : Y_2SiO5, ces interactions sont :

- - les interactions entre les ions Eu^{3+}
- - les interactions entre les ions Eu^{3+} et la maille cristalline Y_2SiO_5
- - les interactions entre les ions Eu^{3+} et les phonons présents dans le cristal

La largeur de raie est donc en pratique la somme de la largeur de raie d'un atome isolé dans le vide (limite d'Heisenberg) et des élargissements dus aux différentes interactions :

$$\Gamma = \underbrace{\Gamma_{\text{Heisenberg}}}_{\text{Largeur Minimale}} + \underbrace{\Gamma_{Eu^{3+}-Eu^{3+}} + \Gamma_{Eu^{3+}-Y_2SiO_5} + \Gamma_{Eu^{3+}-\text{Phonons}}}_{\text{Elargissements}} \tag{II.37}$$

Des mesures de temps de cohérence T_2 par écho de photon dans différents cristaux dopés terres-rares à température cryogénique [67] [88] [89] [74] sont regroupées dans le tableau II.11. On remarque l'influence importante du type de cristal pour la largeur homogène d'une transition. Le cristal $Eu^{3+} : Y_2SiO_5$ affiche la plus fine largeur spectrale jamais mesurée dans un cristal dopé terres-rares, d'où son utilisation pour la réalisation d'une référence de fréquence étroite.

Cristal	Transition	Temps de cohérence T_2 (μs)	Largeur spectrale
$Tm^{3+} : LaF_3$	$^3H_6 -^3 H_4$	105	3.0 kHz
$Tb^{3+} : LiYF_4$	$^7F_6 -^5 D_4$	1.7	187 MHz
$Pr^{3+} : YAlO_3$	$^3H_4 -^3 P_0$	16.5	19 kHz
$Pr^{3+} : YAlO_3$	$^3H_4 -^1 D_2$	32	9.9 kHz
$Eu^{3+} : YAlO_3$	$^7F_0 -^5 D_0$	53	6.0 kHz
$Eu^{3+} : Y_2SiO_5$	$^7F_0 -^5 D_0$	2600	122 Hz

Tableau II.11 – Mesure de largeurs spectrales dans des cristaux dopés terres rares à température cryogénique par écho de photon (Données extraites de [67] [88] [89] [74])

La contribution $\Gamma_{Eu^{3+}-Eu^{3+}}$ représente l'élargissement de la largeur homogène dû à des interactions entre dopants dans la matrice cristalline. Ces élargissements sont liés à des fluctuations du champ magnétique local, causées par des fluctuations de spin nucléaires des autres terres-rares [90] [91] provocant ainsi une diffusion spectrale. Des basculements de spin ont lieu selon deux processus. Le premier, appelé processus direct, est assisté par phonon(s). Le basculement du

spin s'accompagne d'une émission/absorption de phonon(s) présent(s) dans le réseau cristallin. Le deuxième, appelé processus flip-flop, est un basculement de deux spins inverses de façon simultanée dans deux ions distincts. Ces processus peuvent être diminués en appliquant un champ magnétique sur le cristal qui va lever la dégénérescence par effet Zeeman et ainsi diminuer le nombre de flip-flop [91]. Des largeurs de raie très fines vont pouvoir être ainsi obtenues, notamment dans le cristal $Eu^{3+} : Y_2SiO_5$ avec lequel une largeur spectrale de 122 Hz a été mesurée par écho de photon pour la transition $^7F_0 -^5 D_0$ [74]. On peut également agrandir la distance moyenne entre les ions dopants en diminuant leur concentration dans la matrice cristalline de façon à minimiser l'élargissement dû aux interactions entre ions dopants.

L'élargissement homogène dû aux interactions entre les ions dopants et la matrice cristalline $\Gamma_{Eu^{3+}-Y_2SiO_5}$ se manifeste également via les interactions des ions avec le spin nucléaire des atomes de la maille cristalline hôte. Les deux processus (direct et flip-flop) sont là aussi possibles. En choisissant une matrice cristalline constituée d'atomes avec de faibles spins I et de faibles moments magnétiques μ, on contribue à diminuer les interactions entre les ions et les fluctuations magnétiques des atomes constituant la maille cristalline. On remarque dans le tableau II.12 que les atomes ^{89}Y, ^{28}Si, ^{30}Si, $^{16}0$ possèdent des moments magnétiques nucléaires faibles sinon nuls. En particulier, l'atome Si possède un moment magnétique non nul, mais seulement pour une abondance de 4.68%, ce qui rend cet atome tout de même intéressant pour minimiser l'élargissement spectral homogène. Les cristaux composés de ces atomes sont donc d'excellents candidats pour minimiser les interactions ions dopants - matrice cristalline, ce qui dans notre cas a un impact sur la largeur homogène de la transition $^7F_0 -^5 D_0$ des ions Eu^{3+} dopés dans le cristal.

Element	I	μ (μ_N)	Abondance (%)
^{183}W	1/2	0.12	14.31
^{89}Y	1/2	-0.14	100
^{139}La	7/2	2.78	99.91
^{16}O	0	0	99.76
^{28}Si	0	0	92.23
^{29}Si	1/2	0.55	4.68
^{30}Si	0	0	3.09
^{9}F	1/2	2.63	100
^{39}K	3/2	0.39	93.26
^{7}Li	3/2	3.26	92.41
^{35}Cl	3/2	0.82	75.78
^{169}Tm	1/2	-0.23	100
^{27}Al	5/2	3.64	100
^{69}Ga	3/2	2.02	60.11

Dopant	I	μ (μ_N)	Abondance (%)
^{151}Eu	5/2	3.47	47.81
^{153}Eu	5/2	1.53	52.19
^{59}Pr	5/2	4.14	100
^{145}Pr	7/2	-0.66	8.3
^{59}Co	7/2	4.63	100
^{77}Se	1/2	0.53	7.63
^{159}Tb	3/2	2.01	100
^{165}Ho	7/2	4.17	100

Tableau II.12 – Spins, moments magnétiques nucléaires de différents dopants utilisés dans les cristaux dopés terres rares

$\Gamma_{Eu^{3+}-Phonon}$ représente l'élargissement de la largeur homogène causée par le réseau de vibrations du cristal. Les niveaux énergétiques des ions sont couplés avec les phonons excités thermiquement qui dégradent la largeur homogène. Deux processus interviennent ici.
Dans le processus direct, appelé aussi le processus d'Orbach à un phonon [92], un phonon est

résonant avec une transition énergétique. Il y a alors émission ou absorption d'un phonon. La probabilité de ce processus diminue avec l'écart énergétique des deux niveaux couplés. Ainsi, on ne considère que les phonons résonants avec la transition $^7F_0 -^7 F_1$ de plus faible énergie. Cet effet est très faible et négligeable dans le cas du cristal $Eu^{3+} : Y_2SiO_5$ [87].
Le deuxième processus est la diffusion Raman à deux phonons. La contribution de ce processus est donnée par la formule [93] :

$$\Gamma_{\text{Raman,2}} = \alpha_{\text{width}} \left(\frac{T}{T_D}\right)^7 \int_0^{T_D/T} \frac{x^6}{(e^x - 1)^2} dx \tag{II.38}$$

où T_D est la température de Debye, α_{width} le coefficient de couplage, et T la température du cristal.
La température de Debye correspond à la température maximale atteinte par le cristal soumis à un mode de vibration de fréquence μ_D appelé fréquence de Debye. C'est la fréquence maximale du mode de vibration pouvant être ressenti par le cristal. En effet, au dessus d'une certaine fréquence, la distance entre deux atomes du cristal est supérieure à la longueur d'onde de la vibration. Elle dépend donc des dimensions du cristal et de la densité d'atomes présents dans le cristal.
Pour $T \gg T_D$, on obtient :

$$\Gamma_{\text{Raman,2}} = \frac{\alpha_{\text{width}}}{5T_D^2} T^2 - \frac{\alpha_{\text{width}}}{84} \tag{II.39}$$

et pour $T \ll T_D$:

$$\Gamma_{\text{Raman,2}} = \frac{\alpha_{\text{width}} 16\pi^6}{21T_D^7} T^7 \tag{II.40}$$

La température, définie selon les lois de la thermodynamique, représente l'agitation des particules. Le phonon étant une quasi-particule, la diminution de la température diminuera l'activité des phonons et réduira ainsi la contribution du processus Raman à 2 phonons. Le fait que cette contribution dépende aussi fortement de la température montre ici l'importance de refroidir le cristal à température cryogénique, en particulier pour des applications métrologiques comme dans le cas de cette thèse.

Les mesures de largeur homogène dans les cristaux dopés terres-rares peuvent être faites dans le domaine spectral (Spectral Hole Burning) ou bien dans le domaine temporel (Echo de photon). Pour réaliser des mesures dans le domaine spectral, la source utilisée doit être plus fine que la largeur homogène, ce qui n'est pas trivial. C'est pourquoi la mesure des largeurs homogènes est faite dans le domaine temporel dans une grande partie de la littérature.

II.2.6 Temps de vie d'un trou brûlé spectral

Trois phénomènes sont à l'origine de la désexcitation non radiative des niveaux hyperfins vers le niveau fondamental $^7F_0$: Le processus d'Orbach à un phonon, le processus d'Orbach à deux phonons décrit dans la partie II.2.5, et le processus Raman à deux phonons.
Le processus direct ou processus d'Orbach à un phonon, qui occasionne l'émission ou l'absorption d'un phonon, a une probabilité très faible du fait de la faible quantité de phonons avec une énergie égale aux écarts énergétiques entre les niveaux de la structure hyperfine.
Le processus d'Orbach à 2 phonons consiste en l'absorption d'un phonon du niveau $^7F_0$ au niveau

$^7F_1$ puis sa désexcitation vers un autre niveau de la structure hyperfine. La probabilité de ce processus montre une dépendance au nombre de phonons résonants avec la transition $^7F_0 -^7 F_1$, et à la température.
La diffusion Raman inélastique montre quant à elle une dépendance très forte à la température en $1/T^7$ à basse température.
Ainsi, la durée de vie d'un trou brûlé spectral peut être donné par la formule [87] :

$$t_{Hole} = \left[\frac{A}{e^{\delta E/kT} - 1} + BT^7\right]^{-1} \tag{II.41}$$

où A et B sont respectivement les coefficients du processus Orbach à 2 phonons et de la diffusion Raman inélastique, δE est l'écart énergétique entre les niveaux ^{7}F$_0$ et ^{7}F$_1$, k la constante de Boltzmann, et T la température du cristal.

La probabilité de ces processus dépend, de façon critique, de la température du cristal. Ainsi, on observe des trous brûlés spectraux avec une durée de vie de 23 $\pm$ 5 jours à 2 K et de quelques secondes à 15 K.

Comme nous l'avons vu au chapitre I, l'effet Dick peut être amélioré en augmentant la stabilité du laser d'interrogation pour les temps courts. Ainsi, un temps de vie conséquent pour les trous brûlés spectraux est confortable au niveau expérimental mais n'est pas forcément nécessaire pour obtenir une référence de fréquence utile aux horloges optiques. On peut imaginer fonctionner par cycle, comme pour les horloges, et rebrûler un trou spectral à chaque cycle sur lequel le laser se verrouillera. Si on forme un trou brûlé spectral avec un laser dont la largeur spectrale est inférieure à la largeur homogène, alors nous avons accès à une référence de fréquence dont la finesse est déterminée par la largeur homogène des ions dopants.

II.2.7 "Side Holes" et "Anti-Holes"

La formation d'un trou brûlé spectral s'accompagne de la formation d'anti-trous brûlés spectraux. En effet, la formation d'un trou brûlé spectral consiste à peupler la structure hyperfine du niveau fondamental. Si on envoie maintenant un laser résonant avec une transition entre un niveau hyperfin peuplé et le niveau $^5D_0$, on observe une absorption de la lumière. On a donc la formation d'anti-trous brûlés spectraux car leurs fréquences de résonance correspondent maintenant à une augmentation de l'absorption de la lumière.

Pour notre cristal, les niveaux d'énergie de la structure hyperfine sont séparés de quelques dizaines de MHz [94]. Les anti-trous brûlés spectraux seront donc formés à quelques dizaines de MHz du trou brûlé spectral. Sur la figure (II.14) sont représentées les structures hyperfines des ions Eu^{3+} dans la maille cristalline Y_2SiO_5 pour les deux sites cristallographiques non équivalents où ils peuvent être dopés.

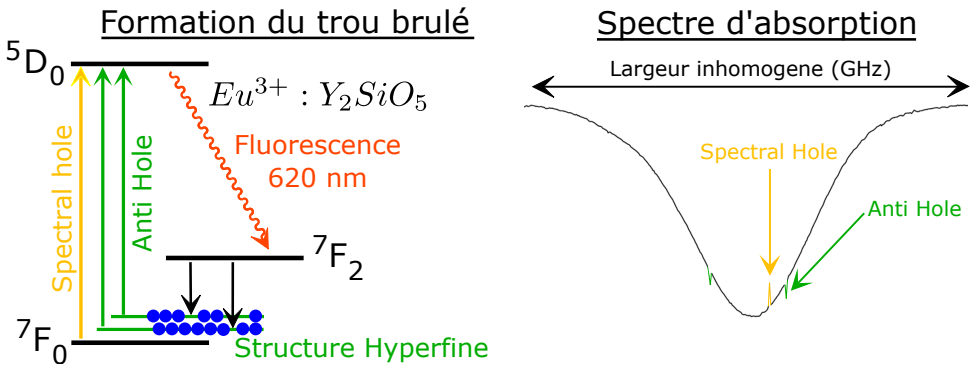

FIGURE II.13 – Principe de la formation d'anti-trous brûlés spectraux

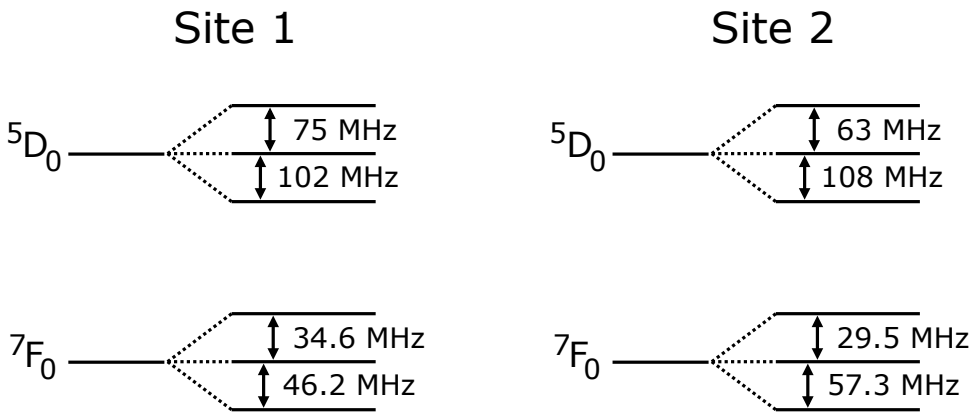

FIGURE II.14 – Structure Hyperfine des ions Europium dans le cristal Y_2SiO_5 sur le Site 1 et le Site 2 (Données extraites de [95][96]).

Comme le niveau $^5D_0$ possède également une structure hyperfine, il est possible d'obtenir des trous brûlés entre le niveau fondamental $^7F_0$ et un des niveaux de la structure hyperfine du niveau $^5D_0$. Ces trous brûlés sont appelés side-holes. Des processus de conversion de side-holes en anti-holes existent [97] [98].

II.3 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons décrit les propriétés spectrales des terres-rares dopées dans une matrice cristalline bien choisie. Nous avons constaté que les trous brûlés spectraux permettaient d'exploiter la finesse des largeurs homogènes qui pourraient être utilisées en tant que référence de fréquence. Le cristal $Eu^{3+} : Y_2SiO_5$ possède actuellement les meilleures propriétés pour obtenir un temps de cohérence long, et montre actuellement les plus fines largeurs homogènes mesurées par écho de photon, d'où son utilisation pour obtenir un laser ultra-stable asservi sur trou brûlé spectral. Enfin, nous avons vu les effets qui pouvaient dégrader la finesse de la largeur homogène, de façon à pouvoir en tenir compte lors de la construction de l'expérience.

Chapitre III

Construction d'un laser asservi sur trou brûlé spectral

Cette thèse, à forte dominante expérimentale a principalement consisté en la construction de l'expérience. Nous tâcherons dans ce troisième chapitre de décrire les différentes parties du montage et de comprendre l'utilité et le choix des différents composants, notamment en se basant sur les propriétés du cristal décrites dans le chapitre II.

Le but de ces travaux est de stabiliser un laser sur une référence de fréquence. Cette référence de fréquence est ici un trou brûlé spectral créé dans la matrice cristalline d'un cristal dopé terres-rares refroidi à température cryogénique. Une fois stabilisé, la pureté spectrale du laser devra pouvoir être transférée, via un peigne de fréquences, aux longueurs d'ondes des lasers d'interrogation qui sondent les transitions "horloges" des atomes de mercure et strontium piégés dans un réseau optique, présents au laboratoire. Des expériences de principe ont été réalisées en ce sens au SYRTE. Les résultats semblent encourageants pour que cette étape ne constitue pas une limite réelle en pratique [46].

III.1 Fabrication du cristal

Pour cette thèse, un cristal d'orthosilicate d'yttrium (Y_2SiO_5) dopé avec des ions europium Eu^{3+} est utilisé. Le dopage consiste à ajouter des impuretés en faible quantité dans un cristal pur, de façon à modifier ses propriétés, notamment ses propriétés spectrales. Dans le cas de cette thèse, des ions Eu^{3+} remplacent des ions Y^{3+} dans la maille cristalline Y_2SiO_5. Plusieurs processus sont possibles pour réaliser un cristal dopé terres-rares, tels que les processus, Bridgeman, Czochralski Kyropoulos ,Verneuil [99]. Le processus de fabrication est fondamental puisque cette étape a une grande influence sur les propriétés spectroscopiques du cristal. Pour obtenir un cristal qui a des propriétés spectrales utiles pour la métrologie, il faut choisir une méthode qui ajoute le moins de contraintes statiques dans la maille cristalline, mais aussi soigner le processus de fabrication pour ne pas induire un désordre, ce qui peut entraîner une modification considérable des largeurs homogènes, inhomogènes et leur dépendances respectives par rapport à la température du cristal [100].

Le cristal utilisé dans cette thèse a été fabriqué à l'Institut de Recherche de Chimie Paris par l'équipe de P. Goldner et A. Ferrier. Il est de forme parallélépipédique rectangle de dimen-

sions 4 x 4 x 5 mm. Cette forme a été choisie par facilité d'usinage. Le taux de dopage des ions europium à été choisi 0.1% de façon à limiter l'élargissement spectral des trous brûlés causés par les interactions entre dopants décrites dans le chapitre II, tout en maintenant une densité optique correcte, proche de l'unité.

Pour fabriquer le cristal $Eu^{3+} : Y_2SiO_5$, le procédé de Czochralski a été utilisé [101][102][103]. Ce processus est en effet celui qui induit le moins de contrainte statique dans la maille cristalline. Dans ce processus de fabrication, le cristal est formé en tirant un cristal à partir d'un mélange entre des ions Eu^{3+} et une céramique d'orthosylicate d'yttrium Y_2SiO_5 (ou YSO), placés dans un creuset d'iridium chauffé par induction. La fabrication du cristal à été faite sous atmosphère d'azote pour éviter toute oxydation au cours du processus. Une céramique de Y_2SiO_5 est utilisée comme matériau primaire.

Dans le processus de Czochralski, la céramique est chauffée juste au dessus de son point de fusion et mélangée avec les ions Eu^{3+} en proportion contrôlée. Un cristal d'amorce vient au contact du mélange en fusion et va tirer tout doucement selon l'axe [010] du cristal tout en effectuant une rotation lente pour modifier le moins possible la maille cristalline. Lorsque le cristal n'est plus au contact du mélange en fusion, il passe en dessous de son point de fusion et se solidifie. Le cristal dopé terres-rares est, à la fin de ce processus, dressé en un cylindre de 2,5 cm de diamètre (cf figure (III.1)). Il est ensuite caractérisé par rayon X pour vérifier la position des axes cristallographiques du cristal, puis coupé perpendiculairement à l'axe [010], et enfin poli sur deux faces opposées. La découpe du cristal est faite de telle façon que les deux faces en regard, traversées par la lumière, ne soient pas parallèles mais forment un petit angle, de façon à éviter toutes réflexions parasites de la lumière entre ces deux surfaces.

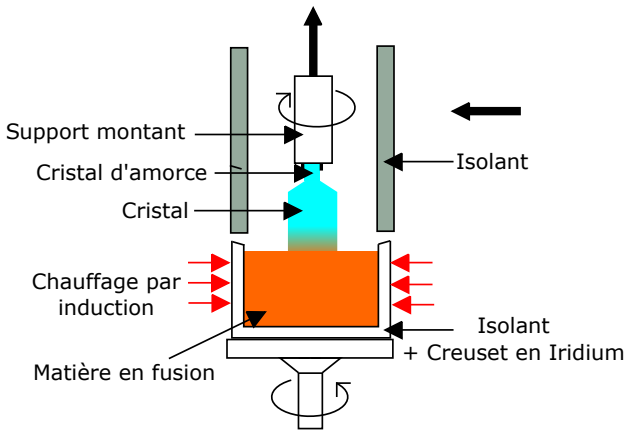

FIGURE III.1 – Schéma du processus de Czochralski

III.2 Refroidissement du cristal à température cryogénique

Pour brûler des trous spectraux dans le cristal, celui-ci a besoin d'atteindre une température cryogénique inférieure à 20K au minimum. Nous utilisons pour cela un cryocooler de type Gifford-MacMahon commercialisé par Montana Instrument. Le choix de ce type de cryocooler a été motivé par le faible coût de maintenance et le faible niveau de vibrations affiché, ainsi que

sa facilité d'utilisation pour des non-spécialistes. La maintenance est d'autant plus importante que le système doit pouvoir fonctionner en permanence à terme. On trouvera une description des différents types de cryocoolers accompagnée de leurs avantages et de leurs inconvénients en annexe A ainsi que les performances d'un cryocooler similaire à celui mis en place sur l'expérience mesurées par Montana Instrument.

III.2.1 Description détaillée du cycle de Gifford-McMahon

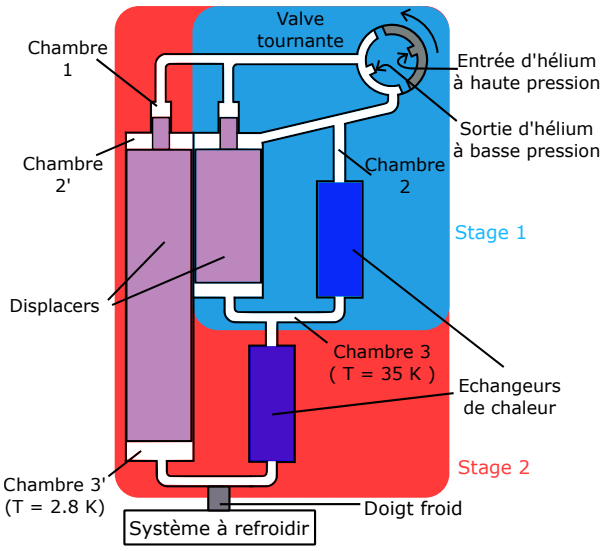

FIGURE III.2 – Schéma détaillé du cryocooler de type Gifford MacMahon à 2 étages (refait à partir de [104])

Le cryocooler de type Gifford-McMahon à été introduit en 1959 [104]. Il fonctionne avec un cycle fermé d'hélium 4 et est composé d'une valve tournante, d'un compresseur (non représenté ici) permettant d'avoir une entrée d'hélium à haute pression et une sortie d'hélium à basse pression, d'un piston et d'un échangeur de chaleur. Dans le cas de cette thèse, nous disposons d'un cryocooler de type GM à deux étages commercialisé par Montana Instrument. Ce cryocooler utilise de l'Hélium 4 comme fluide de refroidissement et permet d'atteindre une température de quelques kelvins, ce qui est suffisant dans un premier temps pour l'expérience (cf. figure (III.2)).

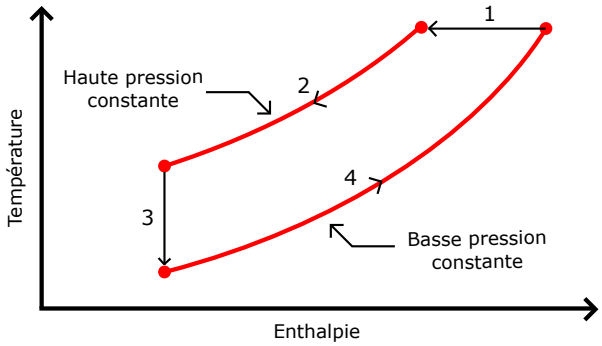

FIGURE III.3 – Cycle thermodynamique du cryocooler Gifford-McMahon (chambre 3 sur la figure (III.2))

Dans la suite, nous ne décrirons que le processus du premier étage, sachant que celui du second est analogue. Le cycle thermodynamique (cf. figure (III.3)) permettant de refroidir la chambre d'expérience (en contact thermique avec la chambre 3) se déroule en 4 étapes. Les lignes basse pression et haute pression sont alternées grâce à la rotation d'une valve tournante dans le sens des aiguilles d'une montre. Chacune des étapes est représentée sur la figure (III.4).

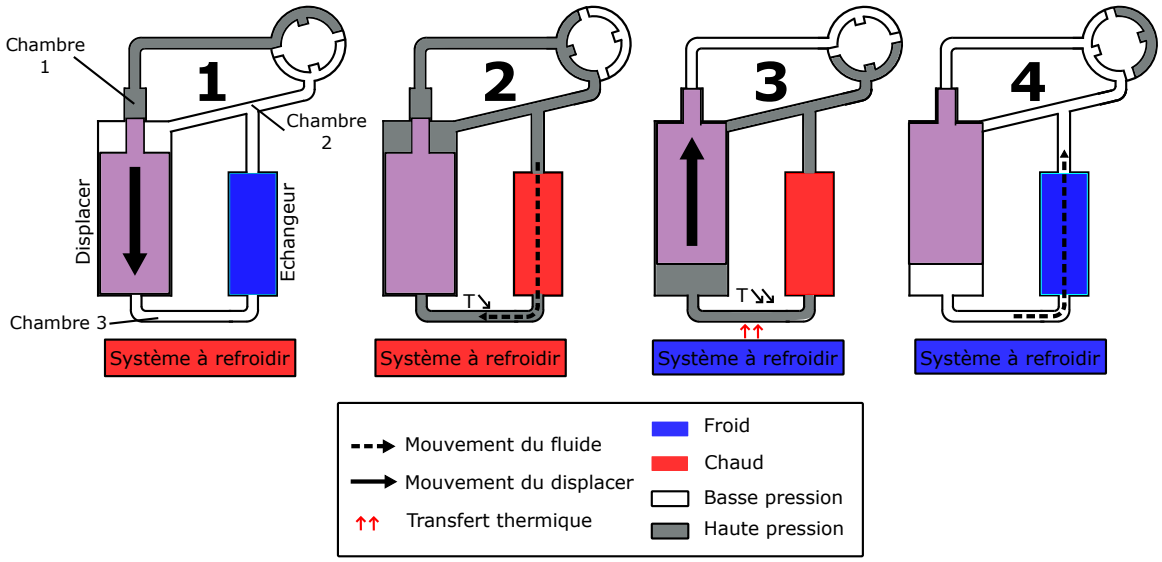

FIGURE III.4 – Etapes du cycle thermodynamique du cryocooler de type Gifford MacMahon

- Etape 1 : Une haute pression d'hélium est envoyée vers la chambre 1. Le displacer s'abaisse. La température reste constante au cours de ce processus.
- Etape 2 : Une haute pression est envoyée vers la chambre 2 en plus de la chambre 1. En passant à travers l'échangeur de chaleur (refroidi lors du cycle précédent), le fluide est refroidi avant d'arriver à la chambre 3. Il y a un rééquilibrage de pression des chambres 1, 2 et 3 mais le piston ne bouge pas car la chambre 1 est déjà sous haute pression.
- Etape 3 : La pression de la chambre 1 diminue tandis que les chambres 2 et 3 sont sous pression constante. Le piston remonte et le fluide dans la chambre 3 se dilate et se refroidit encore un peu plus. C'est le moteur de ce type de cryocooler. Le système à refroidir transfère de la chaleur au fluide. La température du système à refroidir diminue.
- Etape 4 : Une basse pression est appliquée à la chambre 2. Le fluide froid de la chambre 3 repasse à travers l'échangeur de chaleur et le refroidit avant d'être évacué vers le compresseur proche de la température ambiante.

Ce cycle se répète à chaque tour complet de la valve tournante, environ 50 fois par minute. La chambre 3 est donc constamment refroidie. Dans le cas de notre système à deux étages, un contact thermique entre la chambre 3' (cf. figure (III.2)) et le cristal est effectué via un doigt froid situé dans la chambre d'expérience.

La chambre d'expérience du cryocooler est composée d'une enceinte à vide dans laquelle le cristal est placé sur une monture qui est directement en contact thermique avec le doigt froid du cryocooler. Un bouclier thermique est placé tout autour de la monture et est en contact thermique avec le premier étage du cryocooler à environ 35 K de façon à ce que le cristal ne se réchauffe pas à cause des radiations thermiques extérieures au système (cf. figure (III.5)). Le cristal atteint une température de 4 K après quelques heures de refroidissement par ce processus. Une résistance chauffante est également placée autour du doigt froid du cryocooler de façon à pouvoir remonter rapidement à une température de consigne plus haute, mais aussi à asservir la température du doigt froid grâce à un asservissement de type PID. On atteint une stabilité en température affichée à 2,8 K ± 2,12 mK d'après les mesures faites par Montana Instrument avec une fréquence d'échantillonnage de 1 Hz grâce à cet asservissement.

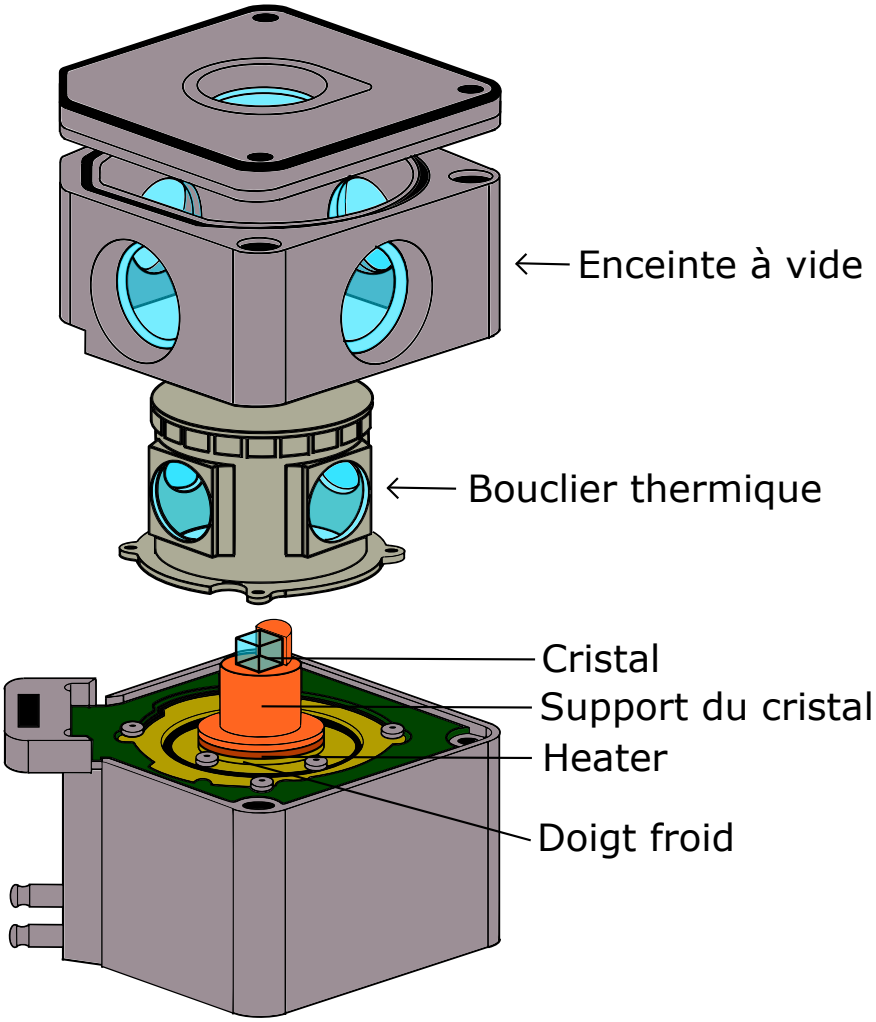

FIGURE III.5 – Le cristal $Eu^{3+}Y_2SiO_5$ est posé sur une monture en contact avec le doigt froid du cryocooler. Un bouclier thermique empêche les radiations extérieures de réchauffer le cristal. L'ensemble est placé sous vide. Une résistance chauffante permet de réchauffer le cristal plus rapidement et permet également de stabiliser la température du doigt froid et donc du cristal.

III.2.2 Mesure du niveau de vibrations de l'enceinte à vide du cryocooler

Nous n'avons pas accès expérimentalement aux vibrations à l'intérieur de la chambre d'expérience. Cependant, nous avons effectué une mesure de l'accélération de l'enceinte à vide du cryocooler dans laquelle est placé le cristal avec un accéléromètre tri-axe de bande passante DC - 430 Hz. Les mesures sont faites avec le cryocooler éteint et allumé pour les trois axes (cf. figure (III.6)), de façon à voir l'effet du fonctionnement du cryocooler sur les vibrations. La

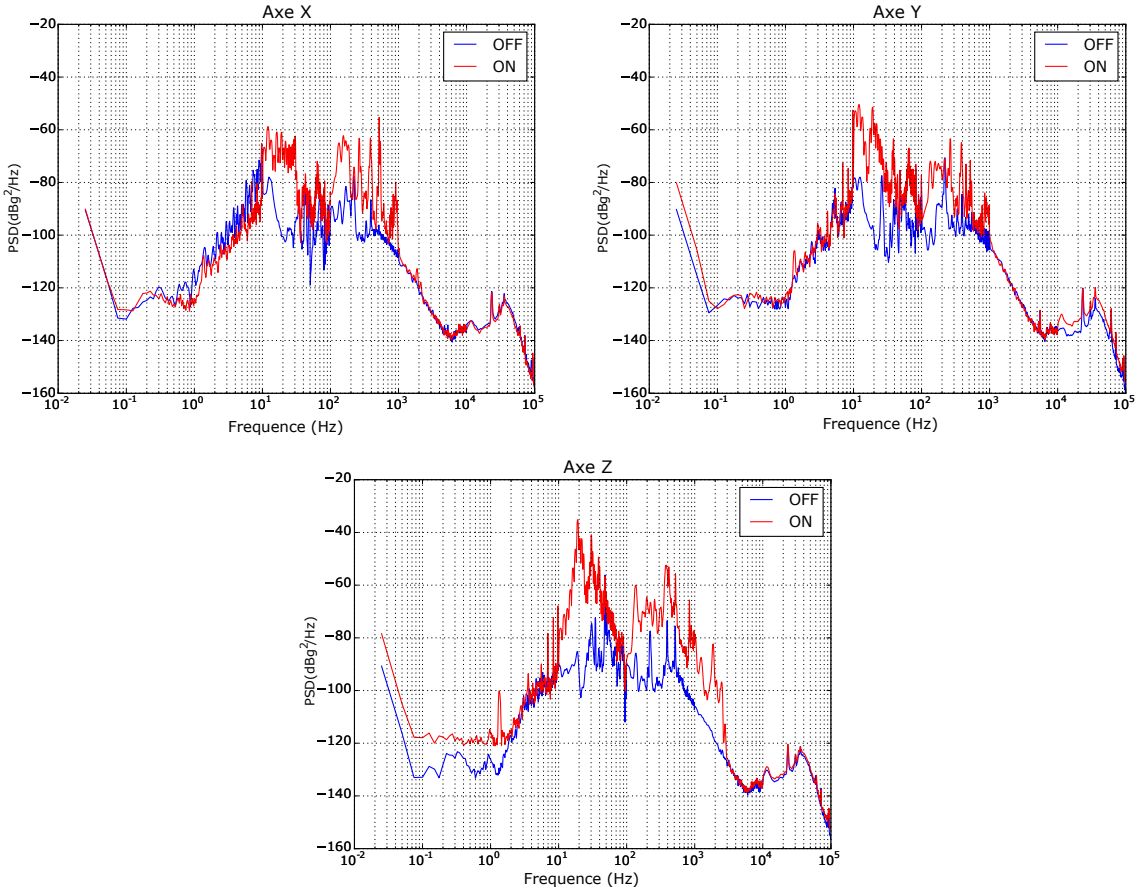

FIGURE III.6 – Densité spectrale de bruit d'accélération du cryostat

tension délivrée par l'accéléromètre est reliée à un FFT de façon à obtenir la densité spectrale de bruit d'accélération. Les résultats montrent une différence notable sur l'axe vertical z à basses fréquences de Fourier. Ces mesures ne permettent pas de déterminer les vibrations à hautes fréquences. Elles montrent néanmoins que le fonctionnement du cryocooler a une vraie influence sur l'amplitude des vibrations de la chambre d'expérience donc potentiellement du cristal, et en particulier selon l'axe vertical z.

III.3 Description des sources laser à 1160 nm

III.3.1 Choix de la longueur d'onde

Le centre d'absorption du cristal est situé à environ 580 nm. Il n'existe actuellement aucune diode laser à 580 nm. Des diodes lasers à une longueur d'onde de 1160 nm sont donc utilisées sur l'expérience. Un doublage de fréquence est nécessaire pour atteindre 580 nm. Cependant, nous utilisons cette longueur d'onde uniquement pour brûler des trous spectraux. Autrement, nous utilisons la lumière non doublée en fréquence pour plusieurs raisons. Premièrement, à terme, la stabilité du laser ultra-stable doit pouvoir être mesurée avec un peigne de fréquences. Or, à 580 nm, le peigne à fibre dopé erbium utilisé principalement au laboratoire ne possède pas de dents avec un gain suffisant pour effectuer une mesure de stabilité en faisant battre la fréquence de notre laser à 580 nm avec une dent du peigne, à moins d'utiliser un doubleur de fréquences sur le peigne.
Deuxièmement, avant de stabiliser notre laser sur un trou brûlé spectral, le laser est pré-stabilisé sur une cavité Fabry-Pérot de haute finesse. Or, stabiliser un laser sur une cavité ultra-stable à 1160 nm est plus efficace que de stabiliser un laser à 580 nm sur la même cavité ultra-stable. En effet, la surface éclairée des deux miroirs de la cavité est dépendante de la longueur d'onde utilisée. La surface éclairée sur le miroir plan d'entrée de la cavité correspond à la surface d'un cercle de rayon égal au waist w_0 du faisceau, calculé pour que le rayon de courbure du miroir de sortie de la cavité soit égal au rayon de courbure du faisceau gaussien se propageant dans la cavité (mode-matching spatial).

$$S_{entrée} = \pi w(0)^2 = \lambda L \alpha \tag{III.1}$$

avec

$$\alpha = \sqrt{(\frac{R_c}{L} - 1)} \tag{III.2}$$

où w_0 est la largeur du faisceau sur le miroir d'entrée de la cavité, λ est la longueur d'onde du faisceau, R_c est le rayon de courbure du miroir de sortie, et L est la longueur de la cavité.

La surface éclairée du miroir concave de sortie peut être approximée à la surface du cercle de rayon égale à la largeur du faisceau gaussien ayant parcouru la longueur de la cavité $w(L_{cavité})$.

$$S_{sortie} = \pi w(L) = \lambda L(\alpha + \frac{1}{\alpha}) \tag{III.3}$$

Donc la surface éclairée totale sur les deux miroirs est proportionnelle à λ.

$$S = S_{entrée} + S_{sortie} = \lambda L(2\alpha + \frac{1}{\alpha}) \tag{III.4}$$

Ainsi, le mouvement brownien des atomes sur la surface des deux miroirs, qui limite l'efficacité des cavités ultra-stables, se moyenne davantage pour une plus grande longueur d'onde. La stabilité ultime sera donc meilleure si, pour une cavité identique, la longueur d'onde est 1160 nm plutôt que 580 nm.

III.3.2 Diodes lasers en cavité étendue

Les sources lasers utilisées dans cette thèse sont des Diodes Laser en Cavité Etendue (DLCE) à 1160 nm. Ce type de source laser possède une largeur de raie relativement fine en comparaison avec une diode laser simple typiquement de quelques megahertz. En effet, la largeur spectrale minimum d'une diode laser est fixée par la limite Schawlow-Townes, liée à l'émission spontanée dans le milieu actif. On peut montrer que les fluctuations de phase causées par l'émission spontanée peuvent être diminuées en augmentant le nombre de photons dans la cavité [105]. On peut ainsi diminuer la largeur de raie en augmentant la taille de la cavité ou en ajoutant une cavité dite externe. La largeur de raie dépend également des vibrations sur la cavité. La limite Schawlow-Townes ne peut donc pas être atteinte pour une cavité trop longue. Dans les DLCE, une cavité dite interne est formée par les surfaces en regard de la diode laser qui sont clivées, et une cavité dite externe est formée par la rétro-réflexion de premier ordre de diffraction d'un réseau positionné de façon oblique. La présence d'éléments sélectifs en longueur d'onde permet de rendre ce type de laser accordable sur une grande gamme de fréquences.

Le mode longitudinal émis par une DLCE est celui qui remplit toutes les conditions de sélectivité en longueur d'onde (cf. figure (III.7)). Sa fréquence est réglable via plusieurs actuateurs qui modifient le centre de la courbe de gain des différents filtres sélectifs en fréquence.

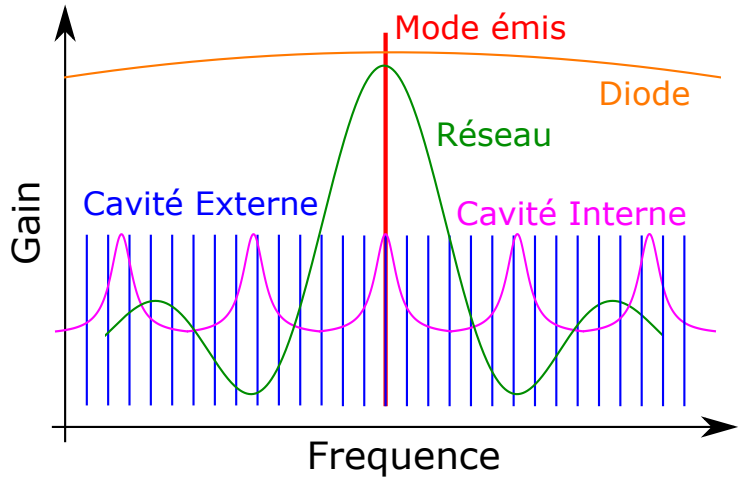

FIGURE III.7 – Selection du mode d'emission d'une DLCE

Deux configurations existent pour former une DLCE : la configuration Litmann-Metcalf et la configuration Littrow représentées sur la figure (III.8).

La configuration Littrow est la plus simple à mettre en place puisque le montage ne comprend qu'une diode laser, une lentille qui collimate le faisceau émis par la diode et un réseau oblique réglé de telle façon que la rétro-réflexion de l'ordre 1 forme la cavité externe (cf. figure (III.8)). L'ordre zéro de diffraction du réseau est utilisé comme faisceau de sortie. En modifiant l'orientation du réseau dans cette configuration, on ne modifie pas seulement la longueur d'onde, mais aussi l'alignement du faisceau de sortie, ce qui peut induire des problèmes de fluctuations d'alignement sur l'ensemble du montage et donc potentiellement des fluctuations de phase du signal lumineux. On dispose cependant avec cette configuration d'une bonne puissance optique en sortie car le faisceau n'est réfracté qu'une seule fois par le réseau. Des largeurs de raie de quelques dizaines de kilohertz ont été observées dans cette configuration.

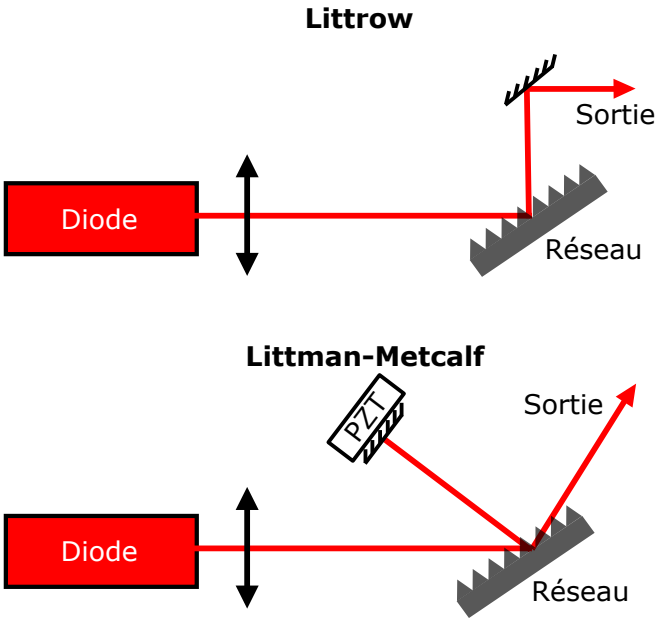

FIGURE III.8 – Schéma d'une diode en cavité étendue en configuration Littman-Metcalf et Littrow)

La configuration Littman-Metcalf comprend également une lentille pour collimater le faisceau de la diode, un réseau oblique réglé cette fois-ci de telle façon que l'ordre 1 soit réfléchi sur un miroir qui réfléchit le faisceau sur lui-même. La diode, le réseau et le miroir forment la cavité externe de la DLCE. Dans cette configuration, le faisceau passe deux fois par le réseau au lieu d'une, comme dans la configuration Littrow. On peut régler la longueur d'onde en modifiant l'orientation du miroir, ce qui ne modifie pas l'alignement de l'ordre zéro du réseau. Cette configuration permet d'obtenir un faisceau en sortie moins puissant puisque le faisceau est réfracté deux fois par le réseau au lieu d'une pour la configuration Littrow. Mais en contrepartie, la largeur de raie et la stabilité de l'alignement sont meilleures. Des largeurs de raie émises par des DLCE en configuration Littman-Metcalf inférieures 10 kHz ont été observées [106].

Les DLCE sont adaptées à la métrologie puisque leur fréquence peut être contrôlée en agissant sur différents actuateurs. On peut donc asservir la fréquence d'un tel laser sur une référence de fréquence grâce à des boucles d'asservissement agissant sur les différents actuateurs. Pour des corrections à hautes fréquences de Fourier, le courant de la diode laser est utilisé car cet actuateur possède une bande passante élevée. Pour les fluctuations basses fréquences, la tension envoyée sur le PZT du miroir de la cavité externe (dans le cas de la configuration Littman-Metcalf) ou bien la température de la diode peuvent être utilisées car la bande passante de ces actuateurs est plus limitée.

III.3.3 Sauts de modes

Ce type de laser est susceptible d'avoir sa fréquence qui "saute" d'un mode à un autre en raison du décalage de la courbe de gain d'un des filtres sélectifs. Par exemple, sur la figure

(III.7), si on change la tension envoyée sur le PZT du miroir de la cavité externe (configuration Littman-Metcalf), on décale la courbe de gain de la cavité externe. Si on continue à décaler cette courbe de gain, le mode de la cavité interne qui possède le plus de gain change alors brusquement et on observe un saut de fréquence du laser, appelé "saut de mode". Pour palier ce problème, on peut ajouter un "feed-foward", c'est à dire un courant sur la diode laser qui est proportionnel à la tension envoyée sur le PZT. Cela permet aux courbes de gain des cavités interne et externe de se suivre et ainsi d'éviter les sauts de modes. En pratique, on arrive à avoir une gamme de fréquence réglable avec le feed foward de quelques GHz. Cependant, pour un meilleur contrôle au niveau des boucles de rétroaction sur le laser, on préfère séparer la correction des hautes fréquences et des basses fréquences de Fourier, en coupant le feed-foward. Des techniques existent pour étendre la gamme de fréquences sans saut de mode sur des dizaines de GHz [107].

III.3.4 Fabrication d'une DLCE en configuration Littman-Metcalf

Une diode à 1160 nm, commercialisée par Innolume est alimentée par un boîtier de courant fait maison comprenant un courant ajustable et une entrée de modulation. La température de la diode est ajustable et régulée par un boîtier d'asservissement agissant sur un Peltier en contact avec la diode. Le faisceau émis par la diode laser est collimaté par une lentille de courte focale puis envoyé sur un réseau optique. L'ordre 1 de ce réseau est rétro-réfléchi par un miroir. En ajustant correctement l'orientation du miroir, le faisceau est à nouveau diffracté par le réseau et retourne vers la diode laser. L'ensemble diode-réseau-miroir forme ainsi la cavité externe de la DLCE. Le miroir utilisé est un miroir collé à 3 PZT de façon à pouvoir modifier la longueur de la cavité externe, mais aussi modifier le feed-back en disposant d'un réglage fin de l'angle θ et ϕ du miroir. L'alignement de la lentille, du réseau et du miroir est optimisé de façon à avoir un maximum de lumière qui revient vers la diode. L'ordre 0 du réseau permet d'obtenir une lumière filtrée spectralement avec une puissance de 150 mW réglable sur quelques GHz sans saut de mode.
Malheureusement, le laser devient multi-modes au bout de quelques jours. On observe également

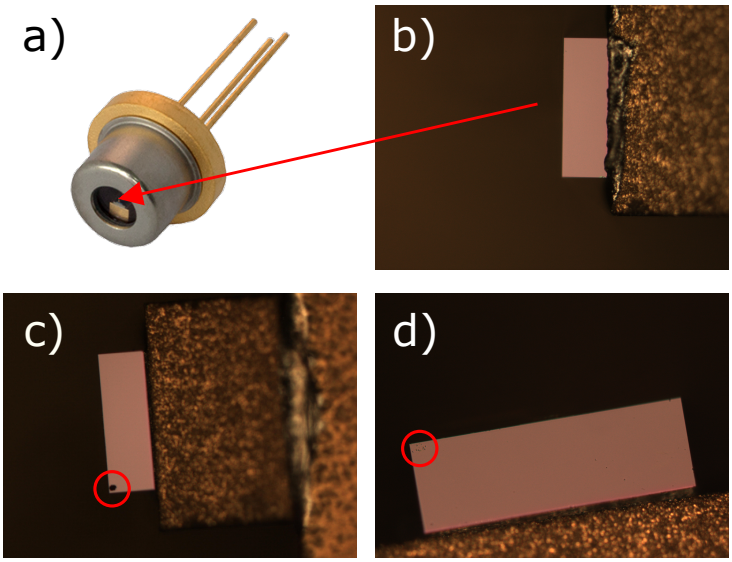

FIGURE III.9 – Image de la surface de la diode laser a) Image globale de la diode (extrait du site Innolume) b) Diode neuve c) Diode avec poussière d) Diode après nettoyage mécanique

une diminution importante de la puissance disponible en sortie. L'ensemble des composants a pourtant été placé en salle blanche avant de fermer l'enceinte du laser. Un système de filtration de l'air en cycle fermé a été ajouté par la suite pour éviter qu'une éventuelle poussière présente dans l'enceinte de la DLCE ne brûle sur la surface de la diode, entraînant ainsi un comportement multi-mode du laser. La diode a été retirée et sa surface a été observée au microscope (cf. figure (III.9)). On aperçoit une poussière brûlée sur la surface de la diode laser (cf. image c) de la figure (III.9)). Cette poussière augmente la réflexion de la lumière sur la surface de sortie de la diode et crée ainsi une compétition entre les modes de la cavité externe et ceux de la cavité interne. Malgré plusieurs tentatives, nous observons un comportement multi-modes et une chute de la puissance optique disponible en sortie au bout de quelques jours/semaines après l'installation d'une nouvelle diode. Nous avons tenté d'enlever la poussière présente sur une des diodes à l'aide d'un pinceau en coton pour ne pas rayer la surface de la diode. Le résultat de cette opération est visible sur l'image d) de la figure (III.9). Hélas, le comportement du laser reste multi-modes.

Ce laser a par la suite été remplacé par une DLCE dans une configuration Littrow commercialisée par Toptica. En ouvrant le boitier de ce laser, on voit que la partie diode laser-lentille-réseau est scellée, pour éviter que des poussières soit présentes dans le système. La température de la diode, le courant envoyé sur la diode, la tension envoyé sur le miroir PZT, sont contrôlés par un boîtier commercial de Toptica. Chaque module comprend une entrée de modulation permettant d'asservir les différents actuateurs.

III.3.5 Réglage de la longueur d'onde

Pour un réglage grossier de la longueur d'onde, l'orientation du réseau peut être modifiée manuellement. Pour un réglage plus fin, la tension envoyée sur le piézo-electrique situé derrière le miroir externe est réglable, ainsi que le courant et la température de la diode laser, via un Peltier placé contre la diode qui influe sur les modes d'émission de la cavité interne. Avant d'être réglée par rapport au spectre d'absorption du cristal, une partie de la lumière est couplée dans une fibre optique. Un analyseur de spectre optique permet de monitorer la longueur d'onde du laser à 1160 nm avec une résolution de 0.02 nm et de vérifier le comportement monomode du laser. Pour obtenir une résolution supérieure, une partie de la lumière est envoyée vers un mesureur de longueur d'onde commercial avec une résolution de quelques dizaines de MHz via une fibre optique. Dans un premier temps, la longueur d'onde est modifiée en variant l'orientation du réseau ce qui modifie la position du filtre fréquentiel correspondant. Dans un second temps, la longueur d'onde est affinée en modifiant le courant et la température de la diode, de façon à être dans une zone stable, sans saut de mode. En pratique, une plage de fréquences accordable de 3 GHz peut être atteinte sans feed-foward.

III.4 Génération de seconde harmonique

Pour atteindre le centre du spectre d'absorption du cristal situé à environ 580 nm, dans lequel les trous spectraux sont brûlés, la fréquence du laser doit être doublée. Pour cela, un cristal non-linéaire PPLN (Periodically Poled Lithium Niobate ($LiNbO_3$)) commercialisé par NTT-photonics est utilisé pour produire de la génération de seconde harmonique. Le doublage de

fréquence est un effet non linéaire du second ordre qui provient de l'interaction lumière-matière entre un faisceau lumineux de haute intensité d'une part, et d'un cristal non-linéaire d'autre part. Une description de ce phénomène ainsi que la condition du quasi-accord de phase dans les cristaux PPLN pourront être trouvées en annexe B. On ne décrira ici que l'asservissement de température qui a été mis en place de façon à garantir la condition du quasi-accord de phase.

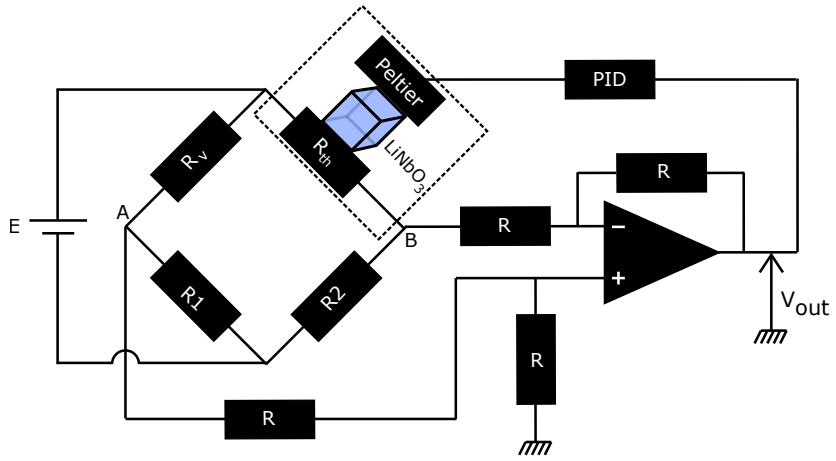

FIGURE III.10 – Schéma électronique de l'asservissement de température du cristal doubleur

La phase relative du faisceau doublé et du faisceau de pompe dépend de la température du cristal. Cette température est réglée et stabilisée à l'aide d'un boîtier d'asservissement de température, qui mesure la température du cristal grâce à un thermistor de résistance R_{th}, et qui contrôle la température d'un Peltier fixé contre le cristal. Le boîtier d'asservissement de température est composé d'un pont de Wheastone alimenté par une tension E, et d'un amplificateur opérationnel en configuration amplificateur différentiel (cf. figure (III.10)). La tension entre les points A et B est ainsi mesurée et égale à :

$$V_{out} = V_{AB} = E\frac{R_V R_2 - R_{th} R_1}{(R_{th} + R_2)(R_V + R_1)} \tag{III.5}$$

Lorsque le cristal est à la température de consigne T_0 ($R_{th} = R(T_0)$), alors le pont de Wheastone affiche une tension nulle entre les points A et B et on a :

$$R_{th} R_1 = R_V R_2 \Rightarrow V_{out} = 0 \tag{III.6}$$

La résistance variable R_V permet de régler la température de consigne finement. Elle est optimisée de façon à ce que la température de consigne corresponde à la température du quasi-accord de phase pour la longueur d'onde voulue. Le signal d'erreur est ensuite amplifié, intégré et dérivé dans un PID dont les paramètres ont été ajustés grâce à la méthode de Ziegler–Nichols [108].

La lumière est injectée dans les cristaux doubleurs via une fibre à maintien de polarisation. La polarisation est fixée selon l'axe lent du cristal. La température du cristal a été optimisée pour avoir le maximum de conversion grâce au quasi-accord de phase. La sortie du doubleur de fréquence est en espace libre. De façon à disposer d'une puissance optique doublée en fréquence suffisante pour brûler des trous spectraux dans le cristal $Eu^3+ : Y_2Si0_5$, la totalité de la puissance optique délivrée par le laser esclave à 1160 nm est injectée dans le doubleur de fréquence, soit 30

mW. En sortie du doubleur, nous obtenons 2 mW de puissance à 580 nm. La lumière à 1160 nm qui n'a pas été doublée en fréquence est utilisée pour d'autres parties du montage. L'efficacité de doublage de fréquence pour le laser esclave à la longueur d'onde voulue est :

$$\eta = \frac{P_{2\omega,Out}}{P_{\omega,In} * P_{\omega,In}} = 220\ \%/W \tag{III.7}$$

Ce résultat est en accord avec le fabricant qui garantit une efficacité de doublage supérieure à 100%/W.

III.5 Préstabilisation du laser maître sur la cavité ultra-stable

Pour pouvoir brûler des trous spectraux fins (non limité par la largeur spectrale du laser), la lumière envoyée sur le cristal Eu^{3+} : Y_2SiO_5 doit avoir une largeur de raie au plus égale à la largeur du trou brûlé spectral. Pour cette raison, le laser est pré-stabilisé sur une cavité ultra-stable de haute finesse en utilisant la méthode PDH, mise au point par Pound, Drever, et Hall [48].

III.5.1 Description de la cavité ultra-stable

Une cavité dite ultra-stable est une cavité dont la longueur ne fluctue que très peu. Celle utilisée sur l'expérience est une cavité Fabry-Pérot commercialisée par Stable Laser Systems de finesse compris entre 100000 et 150000. Elle est composée de deux miroirs en silice fondue collés optiquement à un spacer.
Le spacer est une sphère en verre à faible expansion thermique (Ultra-Low Expansion : ULE)

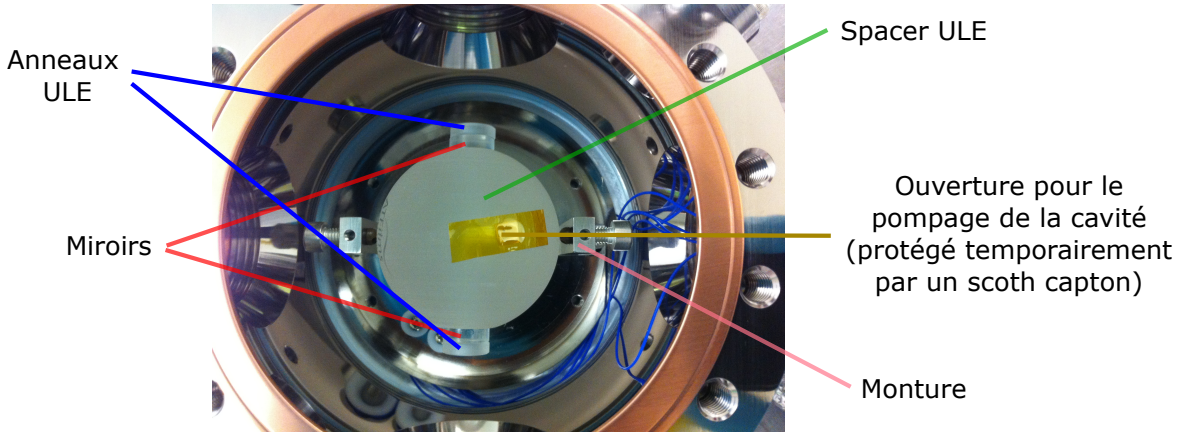

FIGURE III.11 – Image du spacer de la cavité Fabry Pérot sur laquelle nous pré-stabilisons le laser. Les miroir ULE sont collés optiquement de part et d'autre du spacer.

de 50 mm de diamètre. Il est de forme sphérique pour diminuer la sensibilité aux accélérations verticales et horizontales de la cavité. La sensibilité accéléromètrique d'une cavité similaire a été mesurée à $4.0 \times 10^{-12}/g$ verticalement, et $1.6 \times 10^{-10}/g$ et $3.1 \times 10^{-10}/g$ pour les deux directions horizontales. La cavité est maintenue par une monture en U en invar qui forme avec l'axe de la cavité un angle proche de 90°. Pour un certain angle entre l'axe optique de la cavité et l'axe de la monture, environ égal à 37 °[109], la longueur de la cavité reste insensible au premier ordre

aux variations de la force de maintien de la monture exercée sur la cavité. Comme le montre la figure (III.11), l'angle que nous avons est proche de 90°et non pas 37°. Cela est dû à une erreur de conception de la part du fabricant.

La cavité est placée sous-vide dans une enceinte en acier inoxydable qui comprend deux fenêtres traitées anti-reflet pour la longueur d'onde du laser, à savoir 1160 nm.
Une valve permet d'utiliser une pompe turbomoléculaire pour atteindre un vide secondaire dans l'enceinte. La cavité est également sous vide grâce à deux trous percés dans le spacer, perpendiculairement à l'axe optique. Une fois le vide secondaire atteint, la cavité est étuvée pendant quelques heures durant lesquelles nous chauffons la cavité par radiation en même temps que nous faisons le vide pour chasser les impuretés. Puis, après avoir refermé la valve de la pompe turbo, une pompe ionique est activée. Nous atteignons un vide de 10^{-8} mbar dans la cavité après étuvage à 80°C pendant 2 jours.

La température de la cavité est asservie au millikelvin près grâce à un thermistor et un Peltier relié à un boîtier commercial d'asservissement de température dont le fonctionnement est similaire à celui sur la figure (III.10). Un filtrage thermique passif est également réalisé par la monture en Invar, qui est un matériau à très grande capacité calorifique, et qui limite l'effet des fluctuations résiduelles de la température du Peltier sur la cavité. Deux boules de torlon percées, servant également de filtre thermique, sont placées entre la monture en Invar et la cavité et exercent sur celle-ci une force de maintien selon un des diamètres du spacer.

L'intervalle spectral libre de la cavité à été mesuré à 3,15 GHz, correspondant à une longueur de cavité $L_{exp} = 4,76$ cm, ce qui est cohérent avec les données du fabricant (L = 47.632 mm). Les deux miroirs sont collés optiquement au spacer. Ce sont tous les deux des miroirs en silice fondue de 1/2 pouce de diamètre et 4,2 mm d'épaisseur. Le miroir d'entrée est un miroir plan-plan tandis que le miroir de sortie est un miroir concave-plan avec un rayon de courbure de 50 cm. Les deux miroirs sont pris en sandwich entre le spacer et un anneau en verre ULE à expansion thermique très faible. Les miroirs sont traités de façon à avoir une cavité de finesse comprise entre 100000 et 150000 garantie par le constructeur.

III.5.2 Mise en place de la cavité ultra-stable

Diminution du bruit acoustique et vibratoire sur la cavité

A basses fréquences de Fourier (f<100Hz), les fluctuations de longueur de la cavité sont dominées par le bruit acoustique et les vibrations sur la cavité. C'est pourquoi la cavité est placée sur une table anti-vibrations qui stabilise activement la cavité pour des fréquences de Fourier entre 0.7 Hz et 1 kHz et passivement au delà. Pour mesurer l'influence de la table anti-vibrations sur la stabilité de la longueur de la cavité, des mesures de vibrations et de variations angulaires de la table optique sur laquelle est placée le montage PDH ont été effectuées (cf. figure (III.12) et (III.13)).

Les mesures de variations angulaires pour chaque axe de rotation ont à chaque fois été

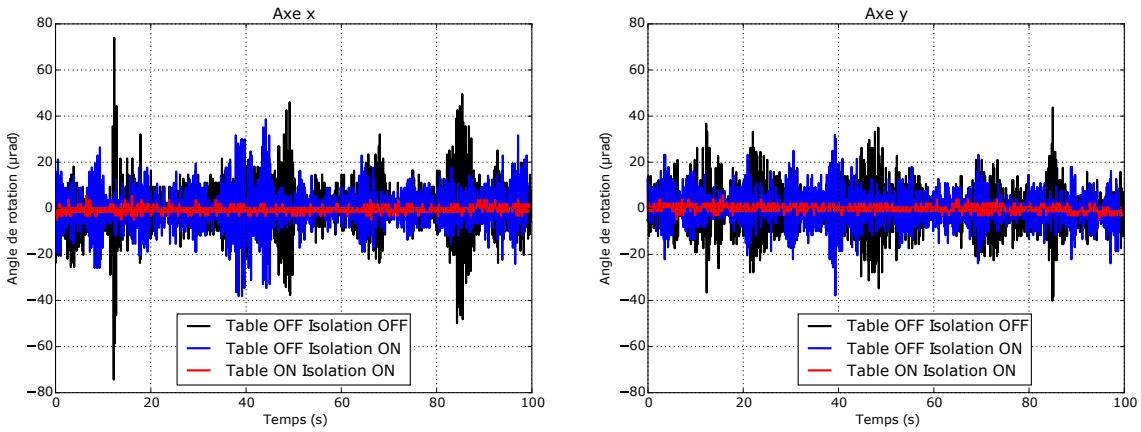

FIGURE III.12 – Mesure des variations angulaires de la table anti-vibrations

effectuées simultanément dans différentes conditions. Lorsque la table anti-vibrations est éteinte, elle est directement en contact avec le sol. Lorsqu'elle est activée et que l'isolation ne l'est pas, la cavité est uniquement stabilisée passivement, ce qui correspond aux fréquences de Fourier supérieures à 1 kHz. La faible bande passante du tiltmeter bi-axe explique les résultats similaires entre les deux courbes lorsque l'isolation n'est pas activée. Avec une isolation active, la cavité est stabilisée pour les basses fréquences de Fourier et passivement pour les plus hautes fréquences. La vitesse de rotation de la cavité selon l'axe x, parallèle à l'axe optique de la cavité, pour une cavité non stabilisée, montre un maximum de 1,3 $mrad.s^{-1}$ au cours de la mesure. On observe une nette diminution des variations angulaires lorsque la cavité est stabilisée activement et on atteint la résolution maximale du tiltmeter qui est de 4 μrad. La sensibilité de la longueur de la cavité aux vitesses de rotation de la cavité montre des résultats du même ordre de grandeur pour les trois axes de rotation :

$$\frac{\Delta L}{L} \approx 10^{-12}\dot{\omega} \tag{III.8}$$

où $\dot{\omega}$ est la vitesse angulaire de la cavité dans une direction. Pour une vitesse angulaire de la cavité de 1 $mrad.s^{-1}$, nous obtenons donc une fluctuation relative de la longueur de la cavité d'environ 10^{-15}, ce qui peut dégrader la stabilité du laser verrouillé sur la cavité. En revanche, avec une stabilisation active de la table optique, la vitesse angulaire est majorée par le bruit de détection à 40 $\mu rad.s^{-1}$, ce qui équivaut à une fluctuation de la longueur de la cavité de 4×10^{-17}, ce qui est en dessous du niveau de bruit fondamental de la cavité. L'utilisation de la table anti-vibrations est donc nécessaire et permet de bénéficier des meilleures performances de la cavité ultra-stable.

Pour les mesures de vibrations, un accéléromètre tri-axe de bande passante DC - 430 Hz a été utilisé. Les mesures sont faites lorsque la boîte acoustique est fermée. On remarque pour les trois axes une nette diminution des vibrations pour des fréquences de Fourier allant jusqu'à 20 Hz lorsque la table anti-vibrations est activée. Les performances basses fréquences de la table anti-vibrations atteignent la limite de bruit de détection du FFT. Les sensibilités des variations de longueur relative de la cavité sur les trois axes ont été mesurées pour une cavité similaire avec un angle entre l'axe optique de la cavité et l'axe de la monture environ égal à 37°[109] :

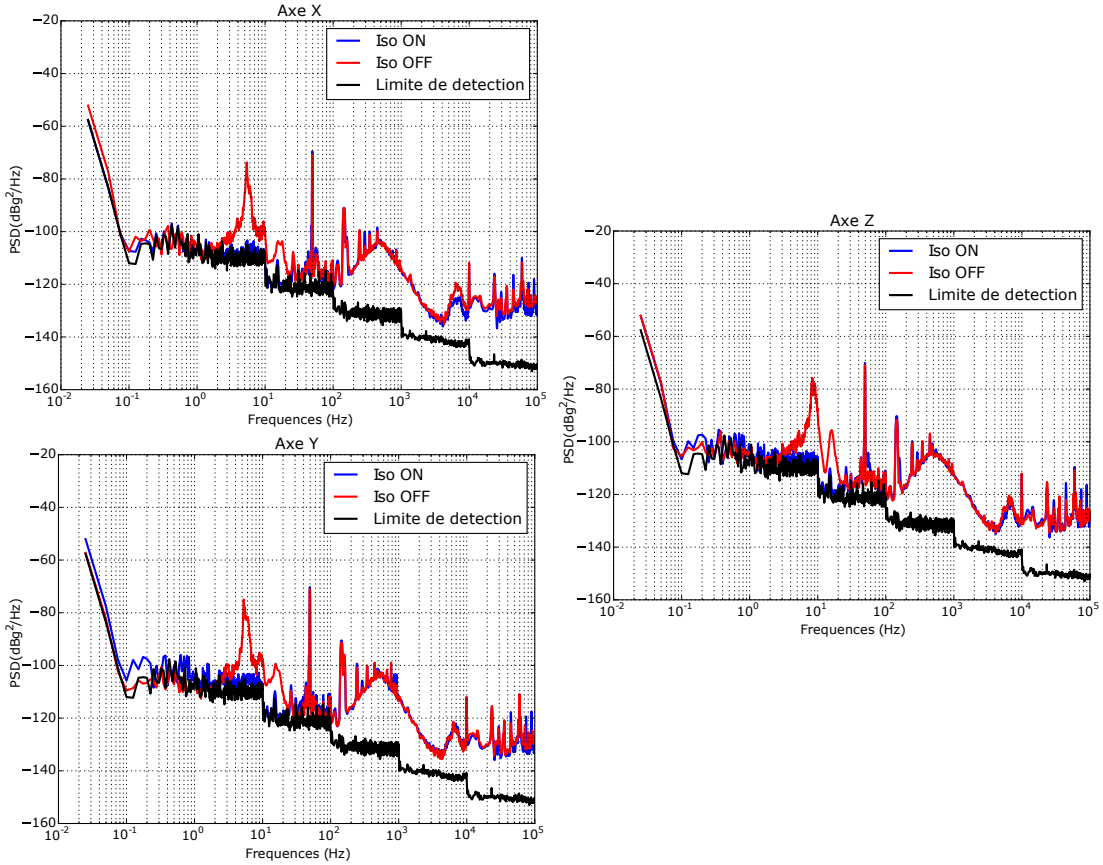

FIGURE III.13 – Densité spectrale de bruit d'accélération de la table anti-vibrations

Axe	$(\Delta L/L)/g$
X	1.6×10^{-10}
Y	3.1×10^{-10}
Z	4.0×10^{-11}

Description du banc optique du PDH

Une partie de la lumière émise par le laser maître est amenée par une fibre optique stabilisée en fréquence au PDH (cf.figure (III.14)). Cette fibre optique ne maintient pas la polarisation incidente du faisceau. La lumière en sortie du coupleur est d'abord collimatée grâce à un système de deux lentilles convergentes L1 et L2. Le séparateur de faisceau BS1 et la photodiode PD1 permettent d'optimiser le contrôleur de polarisation situé en amont de la fibre pour envoyer assez de puissance vers la cavité. Une lame demi-onde à un angle fixe est placée après le séparateur de faisceau de façon à envoyer de la lumière à travers le deuxième séparateur de faisceau BS2. La photodiode PD2 sert à asservir la puissance envoyée sur la cavité. En effet, une puissance trop grande peut faire chauffer les miroirs de la cavité ultra-stable et ainsi dégrader sa stabilité. Pour cette raison, une puissance optique de seulement 20 μW est envoyée sur la cavité. Le mode du faisceau est adapté à la forme de la cavité ultra-stable grâce à un système de deux lentilles L3 et L4 placées judicieusement pour obtenir la condition de mode-matching spatial de la cavité. Deux miroirs sont utilisés pour optimiser l'orientation du faisceau dans la cavité.
Un polariseur de Glan (PG) est placé juste avant un modulateur électro-optique (MEO) pour

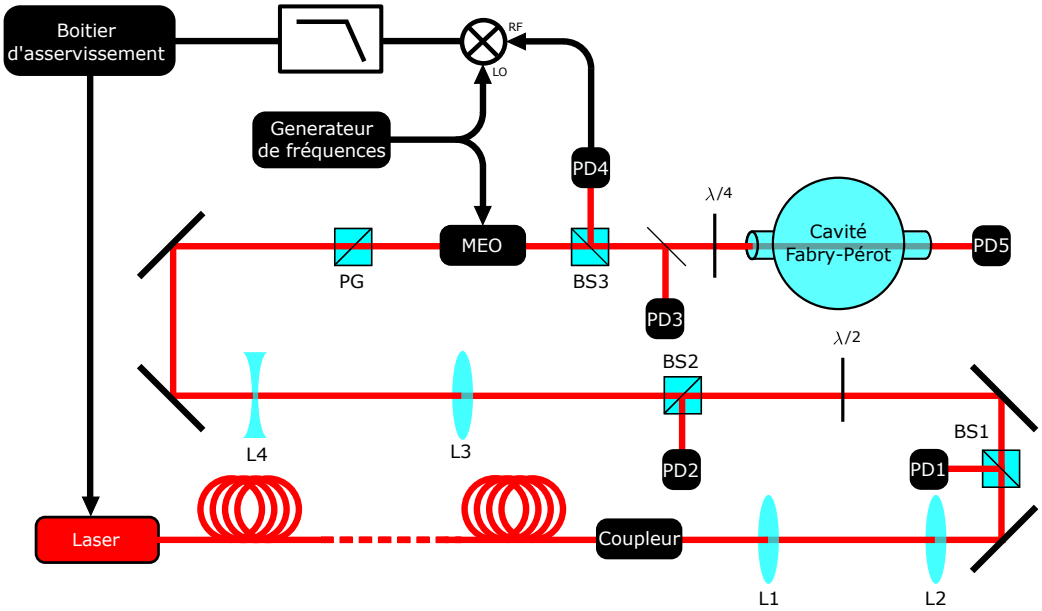

FIGURE III.14 – Schéma du banc optique PDH

avoir une grande pureté de la polarisation incidente sur le MEO qui module la phase du faisceau optique avec une fréquence Ω. Cette fréquence est générée par une DDS référencée sur un signal 10 MHz issu d'un des masers du SYRTE. Le faisceau passe à travers un dernier séparateur de faisceau SP3 et une lame quart d'onde. Le faisceau optique non résonant avec la cavité est réfléchi par le miroir d'entrée de la cavité puis par le séparateur de faisceau SP3 après être repassé à travers la lame quart d'onde. Le signal d'erreur est capté par la photodiode rapide PD4, démodulé à la fréquence Ω et filtré passe-bas avec une fréquence de coupure de 15 MHz pour supprimer la composante à 2Ω amenée par le mélangeur.

Le signal est ensuite envoyé vers un boîtier d'asservissement schématisé sur la figure (III.15) qui

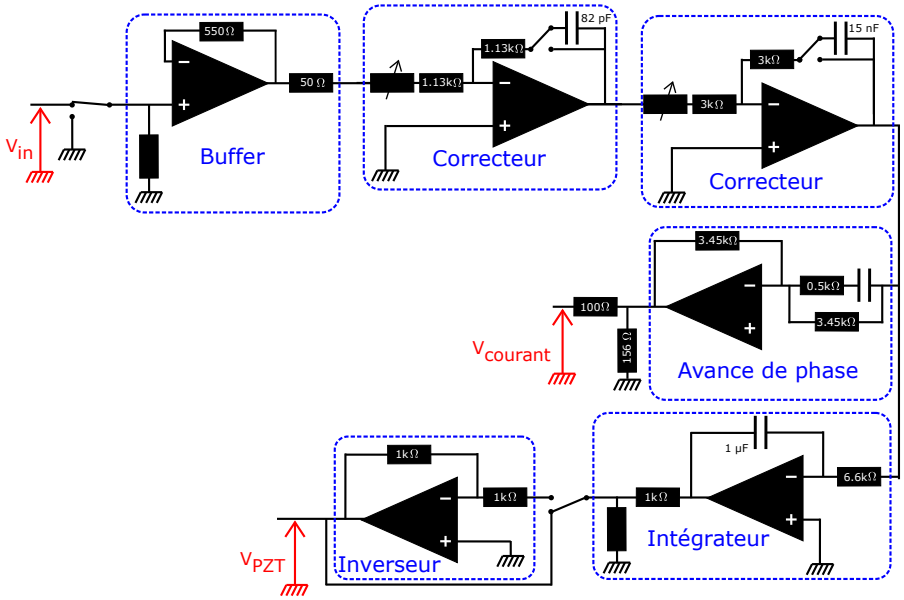

FIGURE III.15 – Schéma du boitier d'asservissement PDH

comprend deux sorties : une pour la correction aux hautes fréquences de Fourier appliquée sur le courant de la diode et une autre pour la correction aux basses fréquences de Fourier appliquée sur le miroir piezo-électrique de la cavité externe du laser esclave. Ce boîtier est composé d'un buffer pour l'adaptation d'impédance puis de deux correcteurs dont on a maximisé la bande passante, auxquels nous avons ajouté un circuit d'avance de phase de façon à augmenter davantage la bande passante pour la correction appliquée sur le courant et d'un intégrateur pur pour la correction appliquée sur le miroir piézo-électrique. Nous obtenons alors une bande passante pour le système d'asservissement qui est de 500 kHz.

III.5.3 Finesse de la cavité ultra-stable

Le facteur de qualité de la cavité ultra-stable peut être mesuré. Il peut en effet s'exprimer en fonction d'un paramètre accessible expérimentalement : la finesse de la cavité.

$$Q = \frac{\mathscr{F}\nu_0}{ISL} \tag{III.9}$$

où $\mathscr{F}$ est la finesse de la cavité, ν_0 la fréquence du laser stabilisé sur la cavité et ISL l'intervalle spectral libre de la cavité. La finesse de la cavité a été garantie entre 100 000 et 150 000 par le fabricant et est définie par :

$$\mathscr{F} = \frac{\pi\sqrt{R}}{1-R} \tag{III.10}$$

ou R est le coefficient de réflexion en intensité des miroirs. Plus les miroirs sont traités de façon efficace, plus la finesse est grande et donc la sélectivité spectrale de la cavité est meilleure.

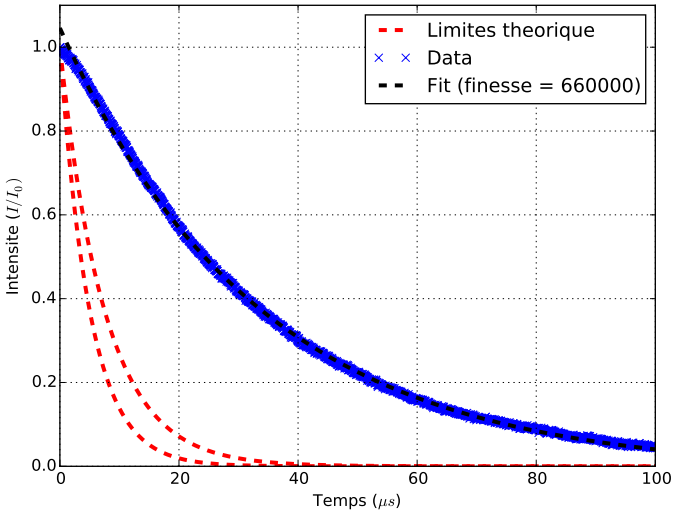

FIGURE III.16 – Ring-down de la cavité

Pour mesurer la finesse de la cavité, on mesure le ring-down de la cavité. Le nombre d'allers-retours que font les photons dans la cavité dépend des coefficients de réflexions des miroirs. Lorsqu'on éteint subitement le signal optique avant la cavité, on observe une diminution exponentielle de l'intensité lumineuse après la cavité dont le temps caractéristique τ permet de

calculer la finesse.

$$I(t) = I_0 e^{-t/\tau} \tag{III.11}$$

Le temps caractéristique de l'exponentielle s'exprime en fonction du coefficient de réflexion des miroirs de la cavité :

$$\tau = \frac{L/c}{1-R} \Leftrightarrow R = \frac{\tau - L/c}{\tau} \tag{III.12}$$

La photodiode utilisée pour cette mesure est une phtotodiode rapide avec une bande passante de 9 GHz (soit un temps de réponse d'une nano-seconde) et couplée DC pour ne pas être limité par le temps de réponse de la photodiode lors de la décroissance exponentielle de l'intensité lumineuse. Malgrés ces précautions, la mesure du ring down donne un résultat non compatible avec les données du fabricant (cf. figure (III.16)). Le temps caractéristique n'est visiblement pas celui lié à la finesse de la cavité. Lors de cette mesure, la puissance optique reçue par la photodiode après la cavité était faible (quelques μW). L'impédance de l'oscilloscope était donc réglée sur 1 MΩ, ce qui, avec la capacité du câble, crée un filtre RC qui empêche de voir le ring down convenablement. Une amplification du signal de la photodiode avant de l'envoyer sur un oscilloscope dont l'entrée est paramétrée en 50Ω aurait permis de mesurer la finesse. D'autres problèmes ont été rencontrés par la suite sur la cavité et refaire cette mesure n'a pas été jugé nécessaire.

III.6 Optimisation du montage PDH

III.6.1 Réduction de la Modulation d'Amplitude Résiduelle (MAR)

Origine de la MAR dans un Modulateur Electro-Optique (MEO)

Le MEO utilisé sur le PDH est un cristal MgO : $LiNbO_3$ de longueur L et de largeur transverse D. Ce cristal possède des propriétés biréfringentes. On définit l'axe extraordinaire du cristal selon l'axe z et l'axe ordinaire selon l'axe y. Lorsqu'on module la phase d'un signal optique de pulsation $\omega_0 = 2\pi c/\lambda_0$ se propageant selon x en alimentant le modulateur électro-optique avec un signal électrique $E_{RF} = (V_{RF}/D)\sin(\Omega t)$, on obtient en sortie dans le repère xyz le champ complexe :

$$E = E_0 e^{i\omega_0 t} \times \begin{bmatrix} 0 \\ \alpha e^{i(\phi_o + \beta_o \sin(\Omega t))} \\ \gamma e^{i(\phi_e + \beta_e \sin(\Omega t))} \end{bmatrix} \tag{III.13}$$

avec

$$\beta_{o,e} = -\frac{\pi}{\lambda}\frac{L}{D} n_{o,e}^3 r_{o,e} V_{RF} \tag{III.14}$$

$$\phi_{o,e} = \frac{2\pi L}{\lambda} n_{o,e} \tag{III.15}$$

où α et γ sont les coefficients de projection du champ électrique incident sur l'axe ordinaire et extra-ordinaire du cristal, $n_{o,e}$ et $r_{o,e}$ sont les indices de réfraction et les coefficients électro-optiques des axes ordinaire et extra-ordinaire du cristal. Une photodiode juste après le MEO (PD3 sur la figure (III.14)), avant la cavité, détecte le carré du module du champ électrique

après le MEO :

$$I_{PD3} = |EE^*|^2 \tag{III.16}$$
$$= |E_0|^2 \left[\alpha^2 + \gamma^2 + 2\alpha\gamma e^{i(\Delta\phi + \beta\sin(\Omega t))}\right] \tag{III.17}$$
$$= |E_0|^2 \left[\alpha^2 + \gamma^2 + 2\alpha\gamma \sum_{n=-\infty}^{+\infty} J_n(\beta)\cos(\Delta\phi + n\Omega t)\right] \tag{III.18}$$

avec $\beta = \beta_0 - \beta_e$ et $\Delta\phi = \phi_o - \phi_e$. La puissance dans les bandes latérales est :

$$I_{PD3}(n\Omega) = 2|E_0|^2\alpha\gamma\left[J_n(\beta)\cos(\Delta\phi + n\Omega t) + (-1)^n J_n(\beta)\cos(\Delta\phi - n\Omega t)\right] \tag{III.19}$$

Pour la première harmonique :

$$I_{PD3}(\Omega) = 2|E_0|^2\alpha\gamma J_1(\beta)\left[\cos(\Delta\phi + \Omega t) - \cos(\Delta\phi - \Omega t)\right] \tag{III.20}$$
$$= 4|E_0|^2\alpha\gamma J_1(\beta)\sin(\Omega t)\sin(\Delta\phi) \tag{III.21}$$

Ainsi, le MEO fait apparaître, en plus de la modulation de phase, une modulation d'amplitude résiduelle à la pulsation Ω. Cette modulation d'amplitude ajoute une composante en phase aux bandes latérales de la modulation de phase qui sont en opposition de phase l'une de l'autre. Une composante DC est ajoutée au signal d'erreur PDH. Cette composante DC peut varier dans le temps et ainsi dégrader la stabilité du laser verrouillé sur le mode fondamental de la cavité ultra-stable.

Afin de monitorer le niveau de la MAR amené par le MEO, une lame de verre est placée juste devant la cavité (cf figure (III.14)). La réflexion sur cette lame est envoyée vers la photodiode rapide PD3 (cf. figure (III.14)) et un pic à $f = \Omega/2\pi$ est détecté. Son amplitude est proportionnelle à l'amplitude de la MAR. Des fluctuations importantes de l'amplitude de ce pic et de la composante DC sur le signal d'erreur ont été observées lorsqu'on modifie l'orientation de la polarisation du faisceau en entrée du MEO ou bien lorsqu'on modifie la température du cristal electro-optique. Plusieurs précautions ont été prises de façon à minimiser ces effets, notamment l'augmentation de la pureté de polarisation en entrée du MEO et l'ajout d'un asservissement de température sur le MEO.

Pureté de la polarisation à l'entrée du MEO

Si la polarisation à l'entrée du MEO est parfaitement fixée selon l'axe extraordinaire du cristal et purement linéaire, alors le coefficient α de l'équation (III.21) est nul, et il n'y a pas de MAR. En pratique, la polarisation n'est jamais linéaire à 100%. Sur l'expérience, dans le but d'augmenter la linéarité de la polarisation à l'entrée du MEO, un prisme de Glan est fixé sur une monture tournante de façon à pouvoir optimiser l'orientation de la polarisation du faisceau lumineux à l'entrée du MEO. Les polariseurs de type Glan possèdent en effet une pureté de polarisation 10 à 100 fois supérieure à celle des séparateurs de faisceaux diélectriques. Il est placé juste devant le MEO de façon à ce qu'aucune réflexion ne détériore la polarisation du faisceau avant le MEO. L'orientation de la polarisation a été optimisée en minimisant le signal de la MAR sur la photodiode PD3 (cf. figure (III.14)) et en réduisant ainsi l'amplitude de la MAR à son minimum.

Asservissement en température du MEO

Les fluctuations de température du cristal électro-optique modifient les indices de réfraction de l'axe ordinaire et extraordinaire. Le terme $\Delta\phi$ fluctue ainsi avec la température. La stabilité du laser est ainsi dégradée. Le MEO a été remplacé par un MEO commercial avec un Peltier et un thermistor inclus dans son boitier pour permettre un asservissement de température efficace du cristal électro-optique. L'asservissement de température du boîtier commercial est similaire à celui décrit pour les doubleurs de fréquences (cf. figure (III.10)).

Il est également possible d'ajouter une composante DC au signal envoyé sur le cristal électro-optique de façon à garder le terme $\sin(\Delta\phi)$ de l'équation (III.21) nul, et ainsi maintenir activement la MAR à son minimum [110][111]. Nous avons observé expérimentalement l'effet d'une tension DC sur le MEO mais nous n'avons pas mis en place cette technique à l'heure actuelle.

III.6.2 Point d'inversion de la cavité

Le fait d'utiliser deux matériaux différents pour le spacer et les miroirs décale le point d'inversion par rapport à celui de l'ULE pur et le rend ainsi non accessible expérimentalement. Pour palier ce problème, des anneaux en verre ULE sont placés sur l'extérieur des miroirs en silice de façon à compenser l'expansion thermique différentielle de la silice et de l'ULE, et rendre ainsi le point d'inversion accessible expérimentalement. Il a été estimé par le constructeur autour de 7 +/- 3^0C.

Le point d'inversion de la cavité ultra-stable utilisé sur l'expérience a été mesuré. Pour cela, nous avons mesuré la fréquence absolue du laser verrouillé sur un mode fondamental de la cavité ultra-stable pour différentes températures de la cavité, en réalisant un battement avec une des dents du peigne de fréquences. Chaque mesure à été espacée de 24 heures pour laisser le temps à la cavité de se stabiliser thermiquement après chaque changement de température. Deux séries de mesures ont été effectuées. La cavité sphérique est maintenue de deux manières différentes au sein de l'enceinte à vide entre les deux séries de mesure. Dans la première série de mesures, la force exercée sur la cavité pour la maintenir est environ égale à 10 N, tandis que pour la seconde série de mesures, la force de maintien de la cavité est supérieure à 10 N.

Le point d'inversion est situé plus bas que ce qu'avait annoncé le constructeur, ce qui d'un point de vue expérimental ajoute des difficultés. L'isolation thermique de l'enceinte est suffisante pour ne pas provoquer de condensation lorsque la cavité est refroidie à 0°C. En revanche, la température limite que peut atteindre la cavité avec la puissance du Peltier installé par le fabricant est de 6,2°C. Pour atteindre une température plus basse, des Peltiers et des radiateurs ont été ajoutés autour de l'enceinte à vide. De plus, un système de refroidissement à eau relié à un chiller avec un température de consigne à 15°C est placé dans la boite acoustique au dessus du banc optique de la cavité, de façon à évacuer la chaleur en dehors de la boîte acoustique. Ce système de refroidissement n'est pas en contact avec le banc optique pour éviter de ramener des vibrations sur la cavité. Malgré cela, on atteint une température minimale de 3.9°C pour la cavité lorsque la boîte acoustique reste fermée, ce qui induit sur la cavité une sensibilité aux variations de température non nulle au premier ordre correspondant à la dérivée des courbes de la figure (III.17) à T = 3.9°C valant respectivement 1.42 MHz.K^{-1} et 0.99 MHz.K^{-1} pour

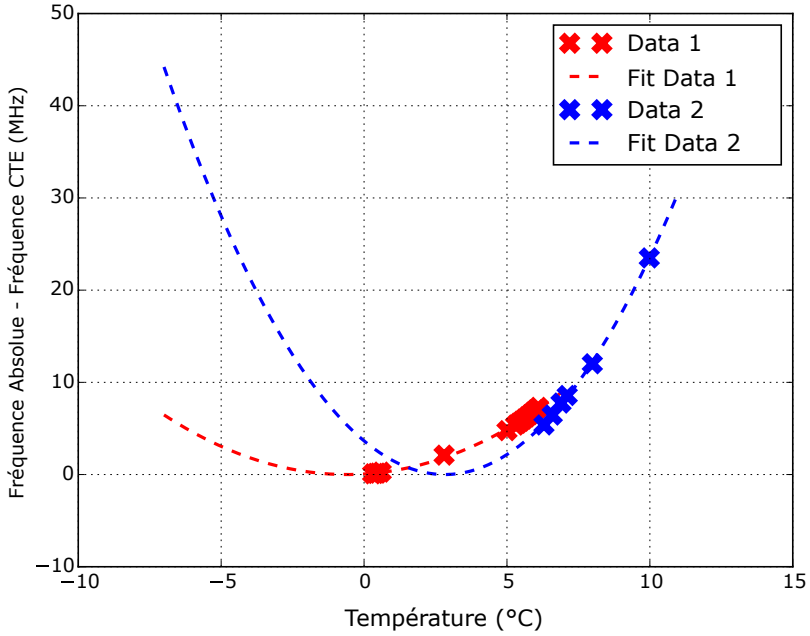

FIGURE III.17 – Mesures du point d'inversion de la cavité ultra-stable
La première série de mesure est réalisée pour une force de maintien de la cavité supérieure à 10 N tandis que la deuxième série de mesure correspond à une force de maintien de la cavité d'environ 10 N

les courbes bleue et rouge. Cela correspond à une sensibilité thermique pour la longueur de la cavité égale pour les deux courbes à :

$$\left.\frac{\Delta\nu}{\nu}\right|_{T=3.9°C,bleu} = 5.5 \times 10^{-9}\ K^{-1} \qquad \left.\frac{\Delta\nu}{\nu}\right|_{T=3.9°C,rouge} = 3.8 \times 10^{-9}\ K^{-1} \tag{III.22}$$

Les deux mesures ont été prises lorsque la cavité était maintenue de façons différentes. En effet, lors de la première mesure, les billes de torlon exercent une plus grande force de pression sur la cavité que lors de la deuxième configuration. D'autre part, la température du point d'inversion a changé entre les deux mesures, ce qui indique un problème sur la cavité ultra-stable.

III.6.3 Influence de la dilatation thermique de la monture sur la cavité

La cavité est maintenue grâce à une monture en forme de U qui exerce deux forces de pression sur la cavité selon deux extrémités d'un diamètre de la sphère en verre ULE. La longueur de la cavité dépend de la direction et la norme de la force exercée par la monture sur le spacer pour la maintenir en place. En effet, si une force est exercée perpendiculairement à l'axe de la cavité, la cavité aura tendance à s'allonger. Au contraire, si une force est exercée dans l'axe de la cavité, celle-ci aura tendance à se contracter. La norme de cette force est d'environ 10 Newtons mais peut fluctuer dans le temps. Le design de notre cavité est sphérique et possède un angle de maintien défini par rapport à l'axe des deux miroirs pour lequel la variation de la norme de la force appliquée sur le spacer ne modifie pas la longueur de la cavité au premier ordre du fait que l'effet de la compression et de l'extension de la cavité se compensent. Cet angle vaut 37,31(40)°

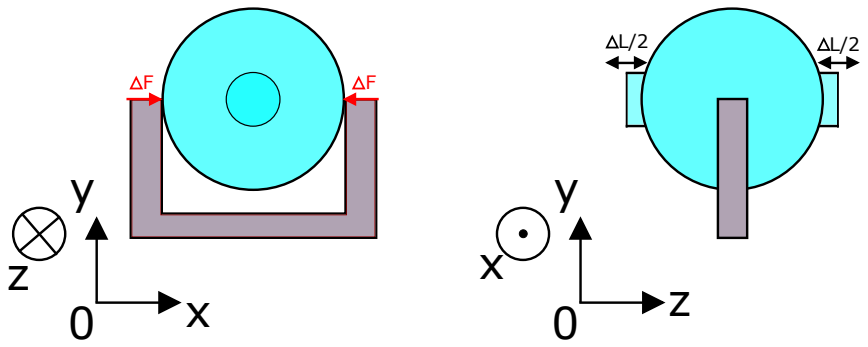

FIGURE III.18 – Schéma de la monture de la cavité
Une monture en U exerce une pression dans la direction Ox de part et d'autre du spacer. Une variation de température de la monture entraîne une dilatation thermique de la monture différente de celle du spacer en ULE, et donc une variation de la force F appliquée sur le spacer.

[112]. Il nous est cependant impossible de fixer la cavité à cet angle expérimentalement à cause d'une erreur de conception du fabricant pour positionner l'enceinte à vide avec cet angle. Par conséquent, la cavité est fixée avec un angle de $\theta = 90°$ par rapport à l'axe des miroirs (cf. figure (III.11)). A cet angle, la sensibilité de la longueur de la cavité aux forces de pression exercées sur la cavité est donnée par [112] :

$$\sigma_P = 3.279 - 2.200 \times 10^{-3}\theta^2 - 3.410 \times 10^{-8}\theta^4 - 5.559 \times 10^{-11}\theta^6 = -46.32 \times 10^{-9} N^{-1} \quad \text{(III.23)}$$

On peut se demander si la dilatation thermique du matériau de la monture causée par les fluctuations de température de la monture peut provoquer une variation de la force de maintien de la cavité assez conséquente pour que la longueur de la cavité fluctue et dégrade ainsi la stabilité du laser verrouillé sur la cavité.

Dans le cas général, la loi de Hooke permet de connaître la force de pression exercée par un solide en fonction de sa déformation. Elle fait intervenir le module de Young qui représente la contrainte mécanique qui doublerait la longueur initiale d'un matériau. La loi de Hooke s'écrit :

$$\sigma = E\frac{\Delta l}{l_0} \quad \text{(III.24)}$$

avec σ la force de pression exercée par la monture sur le spacer dans la direction Ox, E le module de Young de l'invar, Δl la variation d'épaisseur de la monture dans la direction Ox, et l_0 l'épaisseur de la monture à la température T dans la direction Ox. Lors d'une variation de température dans l'enceinte à vide, la température de la monture varie également, ce qui engendre une dilatation ou une compression du matériau. L'extension de la monture dans la direction Oy en fonction de la variation de température est donnée par :

$$\Delta l = l_0 \alpha_{\text{Invar}} \Delta T \quad \text{(III.25)}$$

avec $\text{alpha}_{\text{Invar}}$ le coefficient de dilatation thermique de l'Invar, et ΔT la variation de température de la monture. Si on considère que l'extrémité de la monture qui maintient la cavité a le même comportement qu'une tige élastique linéaire, alors on peut dire que la force F appliquée sur le spacer dans la direction Ox est proportionnelle à l'extension relative du matériau dans la direction Oy. On a donc :

$$F = k * \Delta l \quad \text{(III.26)}$$

avec k la constante de raideur de la monture. Ce problème est ramené à celui d'une déformation de poutre en son extrémité dont la solution est :

$$k = \frac{Ewl_0^3}{4H^3}$$

avec w, l et H qui sont les dimensions des deux parties verticales de la monture qui maintiennent la cavité, respectivement selon les Oz, Ox, et Oy. En combinant l'équation (III.25), et (III.26), on obtient :

$$F = \frac{Ewl_0^3}{4H^3}\Delta l \tag{III.27}$$

En prenant les valeurs suivantes qui sont des paramètres réalistes sur l'expérience :

E = 140 GPa = 140 N.m^{-2}

w = 7.2 mm

l_0 = 4.5 mm

H = 50 mm

α_{Invar} = $24 * 10^{-6}[K^{-1}]$

ΔT = 0.5 mK

On obtient, pour des fluctuations de 0.5 mK du matériau, des fluctuations relatives de la longueur de cavité de $\Delta L/L$ de $4.6 * 10^{-14}$, ce qui est compatible avec nos observations sur la stabilité du laser.

La cavité a été renvoyée au fabricant, qui a admis ce problème. Plutôt que d'ajouter des ressorts à la monture, de façon à amortir la dilatation thermique de l'Invar, une nouvelle cavité ultra-stable de longueur 10 centimètres avec un bruit thermique spécifié à quelques 10^{-16} sera mise en place. Il sera normalement possible, avec cette nouvelle cavité, de stabiliser le laser en atteignant la limite de bruit thermique. L'ensemble des expériences décrites dans cette thèse a néanmoins été faite avec la cavité sphérique.

III.7 Stabilisation du laser esclave sur le laser maître

Le spectre d'absorption du cristal Eu^{3+} : Y_2SiO_5 étant situé entre deux résonances de la cavité ultra-stable, un laser esclave est utilisé. Ce laser est identique au laser maître : c'est un laser de type DLCE en configuration Littrow commercialisé par Toptica. Il est pré-stabilisé sur le laser maître, lui-même stabilisé sur la cavité ultra-stable. Pour cela, nous réalisons une boucle à verrouillage de phase décalée en fréquence. Une partie de la puissance optique à 1160 nm qui n'a pas été convertie par les doubleurs de fréquences de chaque laser à 580 nm est utilisée pour faire le battement entre les deux lasers (cf figure (III.27)). Le battement est fait en espace libre pour minimiser les fluctuations de phase qui auraient lieu dans une fibre optique. Le battement à une

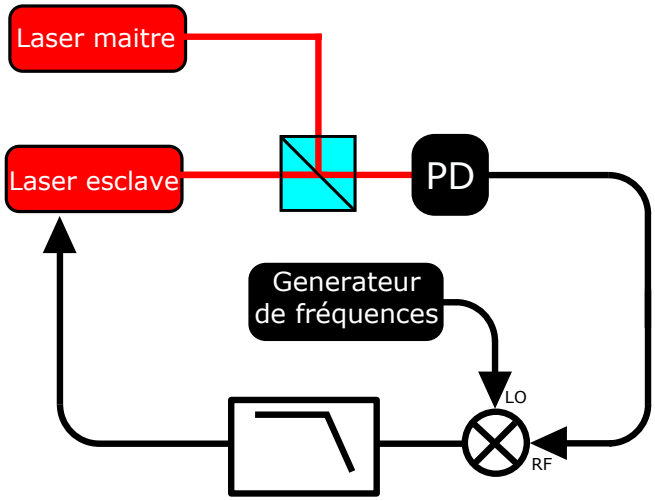

FIGURE III.19 – Schéma de la boucle à verrouillage de phase décalé en fréquence

fréquence de 1.06 GHz est détecté par une photodiode InGaAs rapide avec une bande passante de 1,5 GHz. Il est ensuite amplifié, puis mélangé avec un générateur de fréquences. Le signal est ensuite filtré passe-bas, puis envoyé vers un boîtier d'asservissement composé d'un buffer pour l'adaptation d'impédance, d'un correcteur pour la correction sur le courant aux hautes fréquences de Fourier et d'un intégrateur pur pour la correction sur le PZT du laser esclave pour corriger les basses fréquences de Fourier (cf. figure (III.20)).

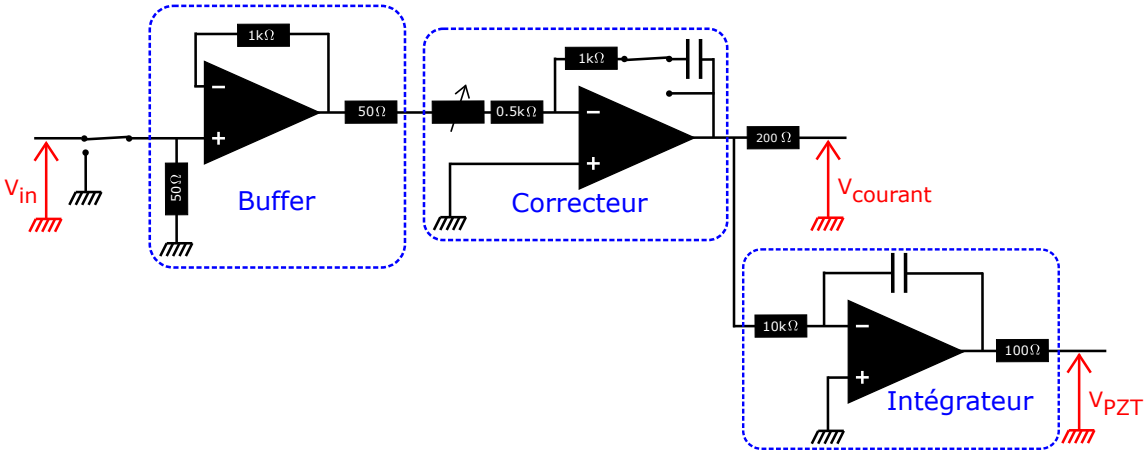

FIGURE III.20 – Schéma du boitier d'asservissement du laser esclave sur le laser maître

III.8 Compensation des fluctuations de phase dans les fibres optiques

Du laser maître à la cavité et du laser esclave jusqu'au peigne de fréquences du laboratoire, la lumière est injectée dans des fibres optiques pour faciliter la propagation du signal sur des distances de quelques dizaines de mètres. Ces fibres optiques sont soumises à des bruits acoustiques et thermiques qui font fluctuer la phase de la lumière se propageant à l'intérieur. En métrologie,

le niveau de ces fluctuations doit être pris en compte et corrigé.

III.8.1 Origine des fluctuations

La longueur du chemin optique de la lumière traversant une fibre optique de longueur L varie avec les fluctuations de température ainsi qu'avec les vibrations de la fibre. Ces perturbations vont en effet modifier la longueur de la fibre et l'indice de réfraction de la silice, matériau utilisé pour fabriquer le cœur des fibres optiques, à travers lequel la lumière est guidée. La lumière se propageant dans une fibre optique accumule une phase ϕ égale à :

$$\phi = \frac{2\pi}{\lambda} nL \tag{III.28}$$

Dans la suite, nous négligerons les fluctuations de la source. Nous considérons ici les fluctuations de température et les vibrations assimilées à des variations de pression sur la fibre, comme paramètres agissant sur les fluctuations de phase du signal optique.

$$\frac{d\phi}{dt} = \frac{d(nL)}{dt} \tag{III.29}$$

$$= \frac{dn}{dt}L + n\frac{dL}{dt} \tag{III.30}$$

$$= (\frac{dn}{dT}L + n\frac{dL}{dT})\frac{dT}{dt} + (\frac{dn}{dP}L + n\frac{dL}{dP})\frac{dP}{dt} \tag{III.31}$$

$$d\phi = (\frac{dn}{dT}L + n\frac{dL}{dT})\delta T + (\frac{dn}{dP}L + n\frac{dL}{dP})\delta P \tag{III.32}$$

La dépendance en température et en longueur d'onde de l'indice de la silice est calculée à partir du modèle de Sellmeier développé dans l'article [113].

$$n^2(\lambda, T) - 1 = \sum_{i=1}^{3} \frac{S_i(T).\lambda^2}{\lambda^2 - \lambda_i^2(T)} \tag{III.33}$$

$$S_i(T) = \sum_{j=0}^{4} S_{ij}T^j \tag{III.34}$$

$$\lambda_i(T) = \sum_{j=0}^{4} \lambda_{ij}T^j \tag{III.35}$$

Où S_{ij} et λ_{ij} sont des coefficients adaptant le modèle aux mesures.
A 300 K, et pour une longueur d'onde de 1160 nm, l'indice de la silice vaut 1,448951. La sensibilité de l'indice de réfraction à la température à 300 K et à la longueur d'onde à 1160 nm sont données par les dérivées des courbes représentées sur la figure (III.21) :

$$\frac{\partial n}{\partial T_{|300K}} = 8.38 \times 10^{-6} K^{-1} \tag{III.36}$$

$$\frac{\partial n}{\partial \lambda_{|1160nm}} = -2.60 \times 10^{-8} nm^{-1} \tag{III.37}$$

D'autre part, d'après la littérature,

$$\frac{dL}{dT} = 6 \times 10^{-7} m.K^{-1} \tag{III.38}$$

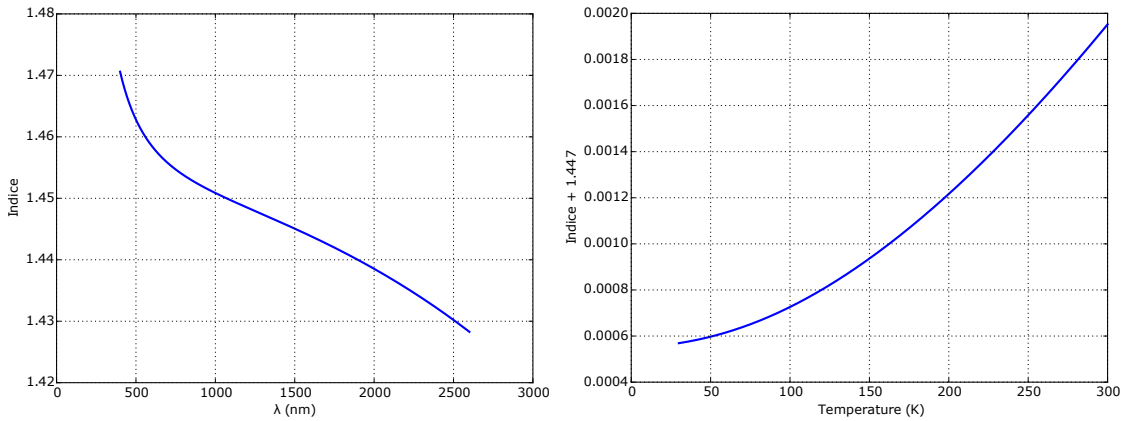

FIGURE III.21 – Variation de l'indice de la silice en fonction de la longueur d'onde et de la température (faites à partir du modèle de Seillmeier développé dans l'article [113])

$$\frac{dn}{dP} = 5 \times 10^{-11} Pa^{-1} \tag{III.39}$$

$$\frac{dL}{dP} \approx 10^{-11} m.Pa^{-1} \tag{III.40}$$

La fibre allant vers le peigne de fréquences mesure 30 mètres. En négligeant l'influence des vibrations et en considérant que la température de la fibre fluctue de 0.01 K en 1 seconde,

$$\frac{d\phi_T}{dt} = \frac{2\pi}{\lambda_0}\frac{d(nL)}{dt} \tag{III.41}$$

$$\approx 13.6\ mrad \tag{III.42}$$

ce qui correspond à une stabilité en fréquence de :

$$y(t) = \frac{1}{2\pi\nu_0}\frac{d\phi_T}{dt} \tag{III.43}$$

$$\approx 8.4 \times 10^{-15} \tag{III.44}$$

Si maintenant, on néglige les fluctuations de température de la fibre, mais que le bruit autour de la fibre exerce une pression acoustique de 0.02 Pa (bruit d'une conversation), on a :

$$\frac{d\phi_P}{dt} = \frac{2\pi}{\lambda_0}\frac{d(nL)_P}{dt} \tag{III.45}$$

$$\approx 0.02\ mrad \tag{III.46}$$

Pour des fréquences comprises entre 20 et 20 kHz, la fréquence varie de :

$$0.6\ mHz < \delta\nu < 0.6\ Hz \tag{III.47}$$

ce qui correspond à une stabilité en fréquence de :

$$y(t) = \frac{1}{2\pi\nu_0}\frac{d\phi_T}{dt} \tag{III.48}$$

$$\approx 2.2 \times 10^{-15} \tag{III.49}$$

Dans le domaine de la métrologie, où les stabilités relatives en fréquence atteignent parfois les 10^{-17}, ces fluctuations de phase à l'intérieur des fibres dégradent grandement les stabilités mesurées des lasers verrouillés en fréquence. C'est pourquoi elle doivent être prises en compte et

être compensées.

En réalité, le déphasage accumulé le long de la fibre ne dépend pas seulement des fluctuations de longueur et d'indice de la silice, mais aussi de l'effet du guidage. Ce modèle simple permet néanmoins de rendre compte de la sensibilité de la phase aux fluctuations de température de la fibre optique et des vibrations.

III.8.2 Technique de stabilisation d'une fibre optique

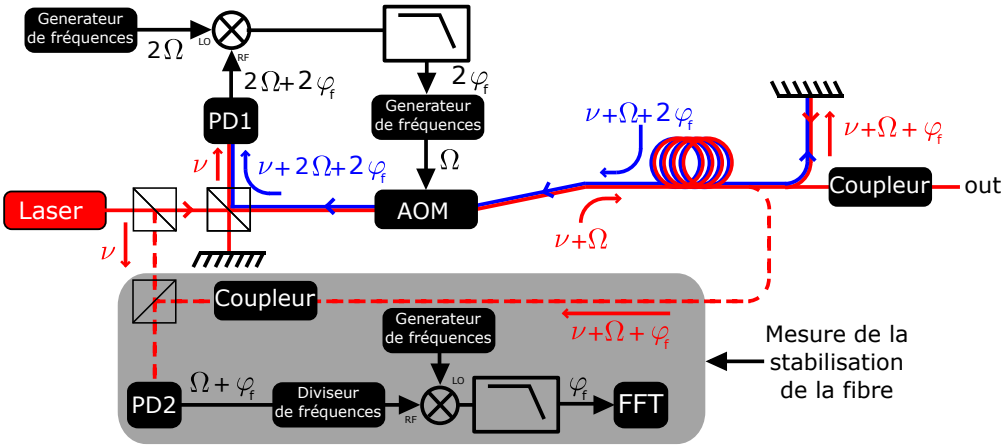

FIGURE III.22 – Schéma d'une fibre stabilisée

La technique a été inventée en 1994 [114]. Le but est d'avoir la même fréquence optique aux deux extrémités d'une fibre optique. Pour cela, on mesure le bruit de phase accumulé sur un aller-retour à l'intérieur de la fibre et on corrige ces fluctuations en agissant sur un modulateur acousto-optique placé avant la fibre optique (cf. figure (III.22)).

La photodiode PD1 reçoit le signal suivant :

$$I(t) = |E|^2 \tag{III.50}$$

$$= E_1 e^{i(\nu t)} E_2^* e^{-i((\nu+2\Omega)t+2\phi_f)} \tag{III.51}$$

$$= E_1 E_2^* \cos(2\Omega + 2\phi_f) \tag{III.52}$$

Après le filtre passe bas, l'intensité reçue par la photodiode est :

$$I(t) = E_1 E_2^* cos(2\phi_f) \tag{III.53}$$

Ce signal est ensuite utilisé pour verrouiller en phase le générateur de fréquence qui génère le signal RF du modulateur acousto-optique MAO.
Il est possible que le battement se fasse entre deux signaux qui ne traversent pas la fibre. En effet, les réflexions sur les faces du MAO et du coupleur ou de toute connexion de fibre intermédiaire qui ajoute une réflexion supplémentaire peuvent induire un battement parasite. Le signal d'erreur ainsi formé ne prend pas en compte les fluctuations de phase dans la fibre optique. Pour s'assurer que le point de réflexion soit situé après la fibre, on pourrait placer le MAO après la fibre optique, mais cela obligerait à avoir des signaux RF dans de longs câbles qui seraient également responsables de fluctuations de phase du signal par les vibrations et les

fluctuations de température du câble. En général, deux MAO sont positionnés avant et après la fibre et l'utilisation du battement entre le signal avant le premier MAO et le faisceau décalé de $\pm\Omega_1 \pm \Omega_2$ ($\Omega_{1,2}$ les fréquences de modulations des deux MAO) permet de s'assurer que le point de réflexion est situé après la fibre tout en raccourcissant la longueur des câbles RF utilisés.

Enfin, il est possible que le bruit de phase dans la fibre soit trop important pour que la boucle de rétroaction accroche le point de verrouillage du signal d'erreur. Cette difficulté peut être dépassée en divisant la fréquence du signal RF capté par la photodiode avant le mélangeur. En effet, si on regarde le rapport entre la densité spectrale de bruit de phase et la densité spectrale de bruit de fréquence défini pour les fréquences de Fourier f :

$$S_\phi(f) = \frac{S_\nu(f)}{f^2} \tag{III.54}$$

on voit que en divisant la fréquence du signal par N, on divise le bruit de phase par N^2. En revanche, la stabilisation de la fibre sera moins performante, car la pente du discriminateur de phase qui permet de verrouiller la phase du laser sera moins grande. La sensibilité aux fluctuations de phase sera donc plus faible.

III.8.3 Performances des fibres stabilisées

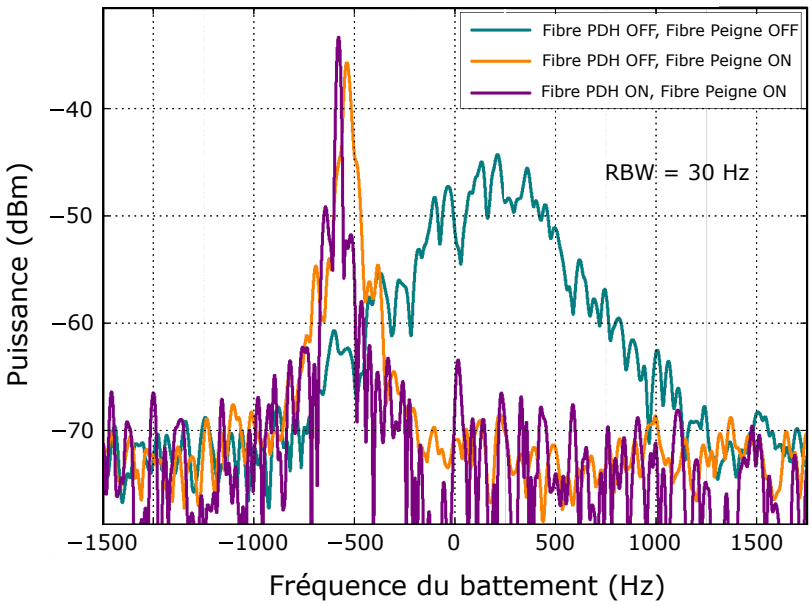

FIGURE III.23 – Efficacité des fibres stabilisées sur le battement du laser avec le peigne de fréquences (centre arbitraire différent pour chaque courbe)

Deux fibres stabilisées sont installées sur l'expérience. La première est une fibre de 10 mètres

qui traverse la salle d'expérience, reliant le laser maître au banc optique du PDH. La seconde est une fibre de 30 mètres reliant le laser esclave au peigne de fréquences en traversant plusieurs autres salles d'expérience pour permettre d'effectuer des mesures de stabilité et à l'avenir d'effectuer un transfert de pureté spectral vers les longueurs d'ondes des lasers horloges. Pour chacune des fibres stabilisées, un MAO est placé après les deux doubleurs de fréquences. Un signal RF à $\Omega = 80$ MHz, généré par la voie 1 d'une DDS référencée sur un signal à 10 MHz, provenant d'un des masers du SYRTE, est amplifié par un amplificateur de puissance et délivré au MAO. Le battement entre le signal bruité ayant parcouru un aller-retour dans la fibre de fréquence $\nu + 2\Omega + 2\phi_f$ et le signal de référence ν est formé à l'aide d'un cube séparateur de faisceau. Les deux polarisations orthogonales des deux faisceaux sont projetées sur un même axe, grâce à un polariseur, puis le signal est capté par une photodiode rapide. Le signal de fréquence $2\Omega + 2\phi_f$ est mélangé avec un signal à 2Ω, généré par la voie 2 de la DDS et filtré passe-bas avec un filtre dont la fréquence de coupure est 5 MHz. On obtient un signal d'erreur qui est envoyé sur l'entrée de modulation de la voie 1 de la DDS. Le gain est réglable sur la DDS. La boucle d'asservissement possède une bande passante de 2 MHz.

On peut voir sur la figure (III.23) que la fibre vers le peigne est beaucoup plus bruitée que la fibre vers le PDH. Cela peut s'expliquer tout d'abord par la différence de longueur des deux fibres, mais aussi par le fait que la fibre qui va vers le peigne traverse trois salles d'expériences différentes, ce qui amène d'avantages de bruits acoustiques et thermiques sur la plus longue fibre optique.

La performance de la stabilisation du bruit de phase sur la fibre allant vers le PDH a été mesurée (cf. figure (III.22)). Pour cela, un battement est effectué entre le faisceau incident sur la fibre ayant une fréquence ν, et le faisceau qui a traversé le MAO et la fibre de fréquence $\nu + \Omega + \phi_f$. Le battement est démodulé puis envoyé sur un analyseur de spectre FFT pour mesurer la densité spectrale de bruit de phase. Un diviseur de fréquence par 16 est ajouté lors de cette mesure de façon à ce que la phase du signal d'erreur reste entre $-\pi$ et π pendant le temps de la mesure. En effet, 2 mètres de fibre ne sont pas compensés, ce qui induit des fluctuations qui empêchent la mesure sans le diviseur de fréquence. La densité de bruit de phase obtenue sur la fibre stabilisée est montrée sur la figure (III.24). Cette mesure équivaut à avoir une stabilité relative de la fréquence du laser après la fibre de 10^{-15} à une seconde de temps d'intégration. Ce résultat peut s'expliquer par le fait que lorsque, lors de cette mesure, environ 2 mètres supplémentaires de fibre ne sont pas compensés après le séparateur de faisceau fibré dont l'autre bras va vers le miroir de Faraday. De plus, le MAO utilisé ici est traité anti-reflet pour 1064 nm. Une réflexion parasite sur l'une des faces du MAO à 1160 nm peut entraîner une perturbation du signal d'erreur qui va se traduire par une stabilité plus basse après la fibre optique. Ce système est également améliorable en ajoutant un deuxième MAO après la fibre optique pour s'assurer que le point de réflexion du battement est situé après la fibre.

III.9 Réglage fin de la fréquence envoyée vers le cristal

Pour avoir un contrôle fin de la fréquence ainsi que de la durée pendant laquelle la lumière est envoyée sur le cristal $Eu^{3+} : Y_2SiO_5$, nous devons disposer d'un réglage précis et pratique. L'offset phase lock entre les deux lasers ne permet pas de modifier facilement la fréquence envoyée vers le cristal. En effet, un changement de fréquence peut facilement déverrouiller la boucle de

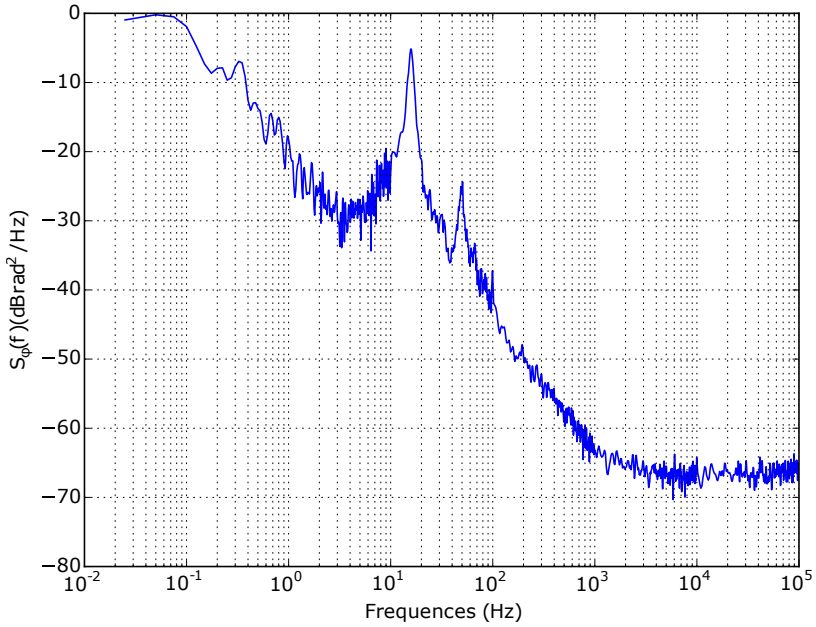

FIGURE III.24 – Densité spectrale de bruit de phase de la fibre stabilisée allant vers le PDH

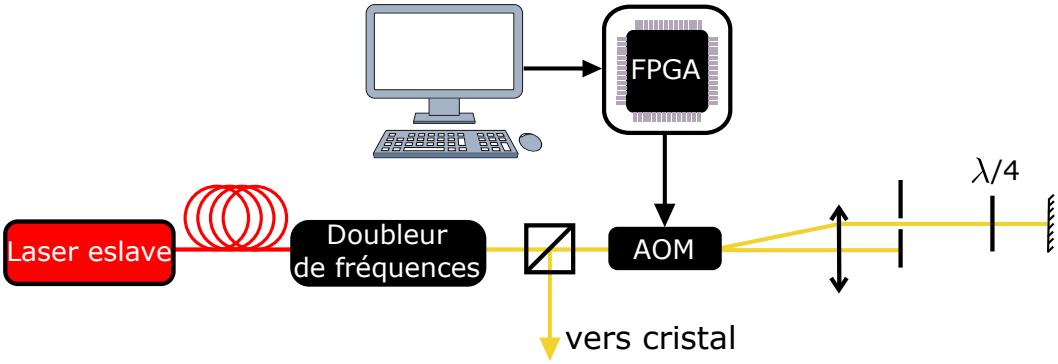

FIGURE III.25 – Schéma du MAO double passage contrôlé par ordinateur

rétro-action sur le laser esclave. De plus, la durée pendant laquelle la lumière va au cristal ne peut pas être contrôlée avec une durée précise. C'est pourquoi la lumière est modulée par un acousto-optique en double passage, contrôlé par un programme utilisant un FPGA juste avant d'envoyer la lumière vers le cristal. Comme le montre la figure (III.25), la lumière de fréquence ν est diffractée à l'ordre -1 du MAO avec une fréquence $\nu - \Omega$, puis collimatée à l'aide d'une lentille convergente. Elle est rétro-réfléchie en passant deux fois à travers une lame quart d'onde de sorte que les faisceaux aller et retour soient polarisés orthogonalement l'un par rapport à l'autre. La lumière est à nouveau diffractée à l'ordre -1 par le MAO et possède donc une fréquence égale à $\nu - 2\Omega$. Le faisceau ayant fait un aller-retour à travers le MAO est réfléchi par le séparateur de faisceau et se propage vers le cristal $Eu^{3+} : Y_2SiO_5$. L'utilisation d'un montage en double passage permet, d'une part, d'accroître la gamme de fréquences accordable par 2, mais aussi de pouvoir moduler la fréquence de la lumière sans modifier l'alignement du faisceau, comme pour le cas d'un MAO en simple passage.

Le programme qui contrôle le FPGA permet d'envoyer un signal Ω_{RF} avec une amplitude et une fréquence variables pendant une durée choisie. Il peut également être modulé pour permettre

de balayer une certaine gamme de fréquences avec un temps défini. Il permet donc de brûler et de sonder les trous brûlés spectraux de façon modulable et précise. Il ne comprend, dans un premier temps, qu'une seule voie qui contrôle le MAO. La partie du programme qui est utilisée ici sera décrite au chapitre V.

III.10 Description du montage global

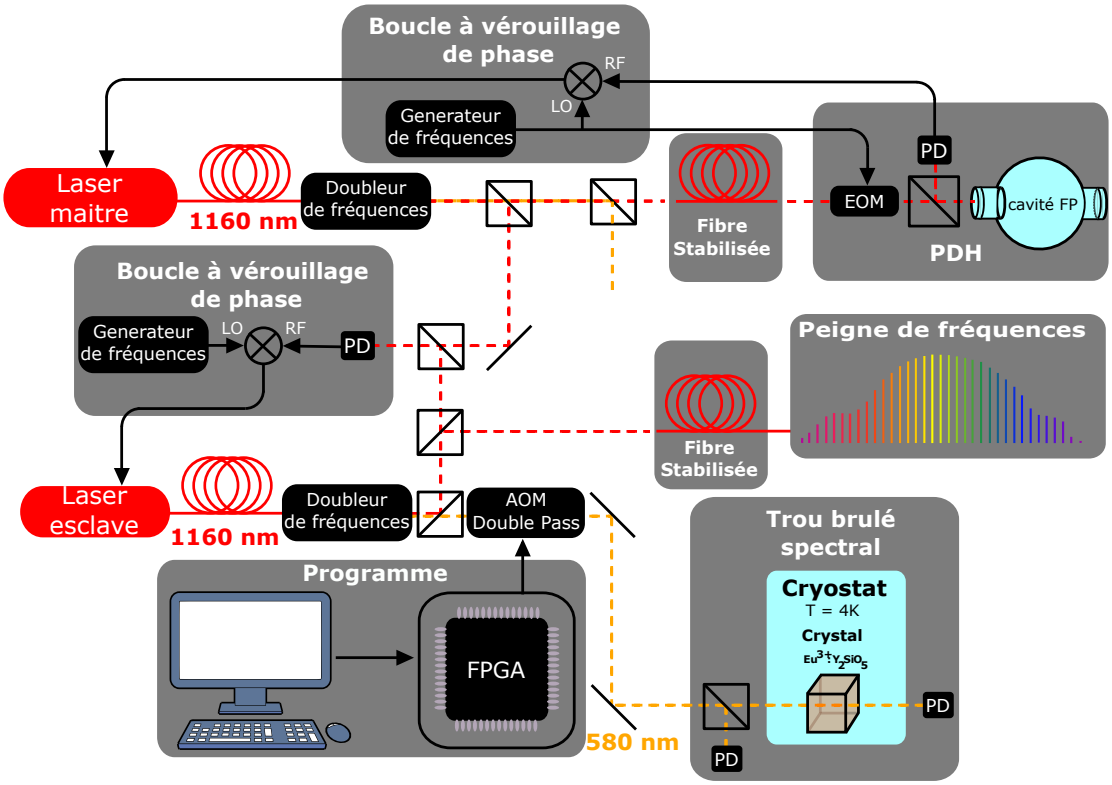

FIGURE III.26 – Schéma simplifié de l'expérience

On trouve le schéma détaillé du montage final sur la figure (III.27). La figure (III.26) est un schéma simplifié pour permettre une meilleure synthèse de ce chapitre.
Deux DLCE à 1160 nm sont doublées en fréquence. La lumière non doublée du laser maître est couplée dans une fibre stabilisée pour aller vers la cavité ultra-stable. La fréquence du laser maître est ainsi stabilisée sur un des modes fondamentaux TEM_{00} de la cavité. Une partie des lumières non doublée du laser maître et du laser esclave forme un battement afin de réaliser une boucle à verrouillage de phase du laser esclave sur le laser maître. Le laser esclave est décalé en fréquence de façon à être au centre de la largeur inhomogène de la transition $^7F_0 -^5 D_0$ du cristal $Eu^{3+} : Y_2SiO_5$ refroidi dans un cryocooler à quelques Kelvins. Dans un premier temps, on considérera que seul le laser esclave doublé en fréquence est envoyé sur le cristal. Pour contrôler précisément la lumière allant sur le cristal, le MAO double passage reçoit une fréquence RF qui provient d'un FPGA contrôlé par programme de façon à régler avec précision les paramètres tels que la fréquence, la puissance optique et le temps d'interaction de la lumière allant vers le cristal. On pourra ainsi envoyer une fréquence fixe ou bien balayer une certaine gamme de fréquences pour faire de la spectroscopie de trous brûlés spectraux. Le programme qui permet de générer et moduler le MAO en double passage sera décrit dans le chapitre V. Un système

de deux photodiodes, dans un premier temps couplées DC, l'une placée avant et l'autre après le cristal, permet de mesurer l'absorption. Afin de réaliser des mesures de stabilité du laser esclave, mais aussi à l'avenir pour réaliser un transfert de pureté spectral, une partie de la lumière non doublée du laser esclave est couplée dans une fibre optique stabilisée et envoyée vers un peigne à fibre dopée erbium présent au laboratoire.

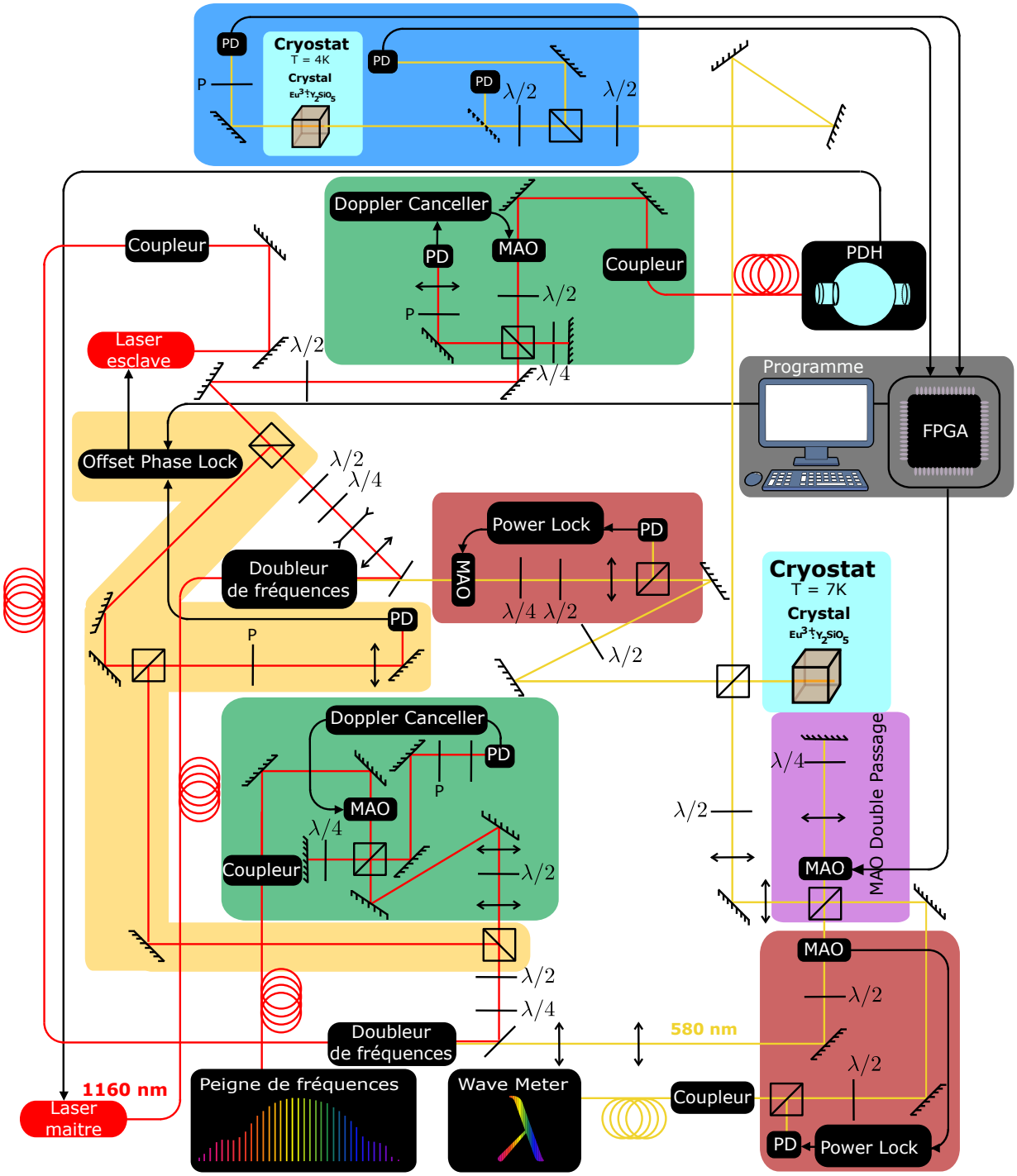

FIGURE III.27 – Schéma détaillé de la partie optique de l'expérience

III.11 Conclusion

Dans ce chapitre les principales composantes de la construction de l'expérience, telles que le cristal, le cryocooler, les lasers, la cavité ultra-stable, ainsi que les asservissements de fréquences et de températures ont été décrites. Nous avons justifié le choix des composants dans le but d'obtenir un laser ultra-stable de type métrologique. Des détails sur l'expérience seront décrits dans les chapitres ultérieurs. Dans la configuration schématisée sur la figure (III.26), nous pouvons réaliser de la spectroscopie haute résolution de trous brûlés spectraux afin de connaître la qualité et le comportement de la référence de fréquence qui sera utilisée pour stabiliser le laser.

Chapitre IV

Spectroscopie à haute résolution de trous brûlés spectraux

L'expérience ainsi construite (cf. chapitre III) permet de faire de la spectroscopie de haute résolution pour étudier l'influence de différents paramètres sur les trous brûlés spectraux. Nous mesurerons la largeur homogène obtenue et étudierons également l'influence du cryocooler sur leur stabilité.

IV.1 Mesure de la largeur inhomogène

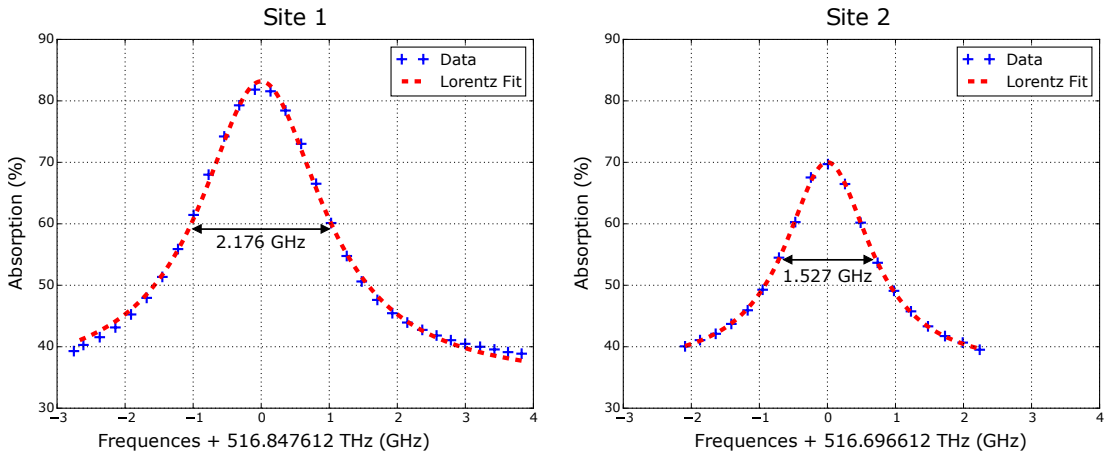

Figure IV.1 – Spectres d'absorption du cristal $Eu^{3+}Y_2SiO_5$

Comme mentionné dans le chapitre II, le cristal possède deux raies principales dans son spectre d'absorption car les ions Eu^{3+} dopant le cristal peuvent remplacer les ions Y^{3+} dans deux sites cristallographiques non équivalents. Ainsi les ions Eu^{3+} des deux sites vont voir des champs cristallins différents, ce qui va décaler les niveaux d'énergie des ions Eu^{3+} par effet Stark. Pour mesurer les largeurs inhomogènes des deux sites pour la transition $^7F_0 -^5 D_0$, la température du cryocooler est remontée à 20 K, température à laquelle les états hyperfins du niveau fondamental $^7F_0$ ne sont pas stables et ne peuvent donc pas permettre la formation de trous brûlés spectraux.

La lumière d'un laser non stabilisé à 580 nm est envoyée sur le cristal et monitorée à l'aide

d'un analyseur de spectre optique avec une résolution de l'ordre du MHz. Deux photodiodes couplées DC sont placées respectivement avant et après le cristal et permettent de mesurer le pourcentage de lumière absorbée par le cristal. La polarisation de la lumière est orientée par une lame demi-onde placée avant le cristal de façon à obtenir un maximum d'absorption. Pour changer la longueur d'onde du laser, on agit sur la tension envoyée sur le miroir piézo-électrique de la cavité externe du laser. Les deux largeurs inhomogènes observées correspondent aux spectres d'absorption de la figure (IV.1). On constate que la largeur à mi-hauteur Γ du site 1 est supérieure à celle du site 2. On en déduit que les contraintes statiques sont plus grandes sur le site 1 que sur le site 2. Cependant, il a été montré que la limite fondamentale de la largeur des trous spectraux était plus fine sur le site 1. De plus, le contraste maximal est moins grand sur le site 2. C'est pourquoi on préférera travailler avec des trous brûlés sur le site 1 plutôt que sur le site 2 pour des applications métrologiques.

IV.2 Nombre d'ions contribuant à la formation d'un trou brûlé spectral

Les deux courbes des largeurs inhomogènes du site 1 et 2 (cf. figure (IV.1)) peuvent être modélisées par une lorentzienne de formule :

$$L_{1,2}(\nu) = \beta_{1,2} + \frac{\alpha_{1,2}}{\pi} \frac{\frac{1}{2}\Gamma_{1,2}}{(\nu - \nu_{c1,c2})^2 + (\frac{1}{2}\Gamma_{1,2})^2} \tag{IV.1}$$

avec $\alpha_{1,2}$ les aires des courbes entre le minimum et le maximum de transmission, $\beta_{1,2}$ les maxima de transmission, $\nu_{c1,c2}$, les fréquences centrales des largeurs inhomogènes, et $\Gamma_{1,2}$ les largeurs à mi-hauteurs des lorentziennes. Les valeurs de ces paramètres ont été obtenues par la méthode des moindres carrés et sont regroupées dans le tableau suivant pour chacune des courbes.

	Site 1	Site 2
α	167.9	81.31
$\beta(\%)$	34.05	36.13
ν_c (GHz)	516847.612	516696.612
Γ_{inh} (GHz)	2.176	1.527

Tableau IV.2 – Valeurs des paramètres de la formule IV.1 pour la modélisation des largeurs inhomogènes

La largeur inhomogène permet de déduire le pourcentage d'ions dopants dans le cristal grâce à un coefficient de proportionnalité établi expérimentalement pour le site 1 [87] :

$$K_{\text{inh}} = 21\text{GHz/mole\%} \tag{IV.2}$$

Ainsi, le taux de dopage τ_D du cristal est :

$$\tau_D = \Gamma_{\text{inh},1}/K_{\text{inh}} = 0.1 \text{ mole.\%} \tag{IV.3}$$

soit

$$N_{\text{Eu}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5} = \tau_D \frac{2\rho_{\text{Y}_2\text{SiO}_5}}{(2\rho_{\text{Y}} + \rho_{\text{Si}} + 5\rho_{\text{O}})m_{\text{p+}}} \approx 2 \times 10^{19} \text{ dopants/cm}^{-3} \tag{IV.4}$$

où $\rho_{Y_2SiO_5}$ est la masse volumique du cristal, Y, Si, O les masses molaires des atomes constituant le cristal, et m_{p+} la masse du proton. Le 2 au numérateur montre qu'il y a deux possibilités par maille cristalline pour qu'un ion Eu^{3+} remplace un ion Y^{3+}. Le volume du cristal ayant un volume $V = 0.5 \times 0.5 \times 0.4 = 0.1\text{cm}^{-3}$, le nombre d'ions Eu^{3+} présents dans le cristal est environ égal à :

$$N_{Eu^{3+}} \approx 2 \times 10^{18} \tag{IV.5}$$

Le nombre total des ions Eu^{3+} est proportionnel à la somme des aires sous les deux lorentziennes représentant l'absorption sur les deux sites cristallographiques :

$$\alpha_1 + \alpha_2 = K.N_{Eu^{3+}} \Rightarrow K = 7.45 \times 10^{16} \tag{IV.6}$$

Le nombre d'ions Eu^{3+} résonants dans un intervalle de fréquences $\Delta\nu$ centré autour d'une fréquence ν_0 est égal à :

$$N_{Eu^{3+}}(\Delta\nu)|_{\nu_0} = \sum_{i=1,2} \int_{\nu_0-\Delta\nu/2}^{\nu_0+\Delta\nu/2} L_i(\nu)\mathrm{d}\nu \tag{IV.7}$$

$$= \sum_{i=1,2} \frac{2\alpha_i}{\pi\Gamma_i} \int_{\nu_0-\Delta\nu/2}^{\nu_0+\Delta\nu/2} \frac{1}{1+\left(\frac{\nu-\nu_c}{\Gamma_i/2}\right)^2}\mathrm{d}\nu \tag{IV.8}$$

On effectue le changement de variable :

$$X_i(\nu) = \frac{\nu - \nu_{c,i}}{\Gamma_i/2} \tag{IV.9}$$

$$N_{Eu^{3+}}(\Delta\nu)|_{\nu_0} = \sum_{i=1,2} \frac{\alpha_i}{\pi} \int_{X_i(\nu_0-\Delta\nu/2)}^{X_i(\nu_0+\Delta\nu/2)} \frac{1}{1+X^2}\mathrm{d}X \tag{IV.10}$$

$$= \frac{\alpha_1}{\pi}\left[arctan\left(\frac{\nu_0+\Delta\nu/2-\nu_{c,1}}{\Gamma_1/2}\right) - arctan\left(\frac{\nu_0-\Delta\nu/2-\nu_{c,1}}{\Gamma_1/2}\right)\right]$$
$$+ \frac{\alpha_2}{\pi}\left[arctan\left(\frac{\nu_0+\Delta\nu/2-\nu_{c,2}}{\Gamma_2/2}\right) - arctan\left(\frac{\nu_0-\Delta\nu/2-\nu_{c,2}}{\Gamma_2/2}\right)\right] \tag{IV.11}$$

Ainsi, si on considère un trou brûlé spectral de $\Delta\nu = 3\text{kHz}$ de large dont la fréquence centrale est au centre du site 1, dans des conditions telles que la formation de trous brûlés spectraux est possible, alors un trou brûlé spectral avec un contraste maximum correspond à l'excitation d'environ 10^{13} ions Eu^{3+}.

Pour avoir un laser le plus stable possible, le contraste doit être maximum de façon à améliorer le rapport signal à bruit du signal d'erreur qui va servir à stabiliser la fréquence du laser sur la fréquence du trou brûlé spectral. Des mesures préliminaires ont été effectuées de façon à déterminer les paramètres de brûlage qui permettent d'obtenir le trou spectral le plus fin possible avec un contraste aussi grand que possible.

IV.3 Processus de brûlage et d'interrogation d'un trou brûlé spectral

Faire de la spectroscopie de trous brûlés est un processus qui se décompose en deux étapes : La création du trou brûlé spectral puis son interrogation. Pendant ces deux étapes, le laser maître

est pré-stabilisé sur la cavité ultra-stable et le laser esclave est stabilisé sur le laser maître. Seul le laser esclave est envoyé sur le cristal. Deux photodiodes sont placées respectivement avant et après le cristal pour effectuer une détection homodyne du pourcentage de lumière transmise à travers le cristal.

Pour brûler un trou brûlé spectral, il faut pomper un nombre conséquent d'ions Eu^{3+} dans la structure hyperfine du niveau fondamental de la transition $^7\mathrm{F}_0 -^5 \mathrm{D}_0$. Pour cela, il faut envoyer une lumière d'intensité relativement forte sur le cristal (quelques dizaines de μW.cm^{-2}), dont la fréquence est résonante avec la transition $^7\mathrm{F}_0 -^5 \mathrm{D}_0$ des ions voyant un champ cristallin identique.

Pour effectuer l'interrogation du trou brûlé formé, on doit diminuer fortement la puissance du laser sonde et mesurer l'absorption du cristal lorsqu'on module la fréquence du laser de façon à ne pas sur-brûler le nouveau spectre d'absorption du cristal, modifié par la présence du trou brûlé. En effet, dès que des photons sont résonants avec la transition, des atomes sont envoyés dans la structure hyperfine. Trop de puissance saturera le trou brûlé et aura comme conséquence un élargissement de la largeur homogène. Il est en fait impossible de ne pas brûler des trous lorsqu'on envoit une lumière à une fréquence résonante, quelle que soit l'intensité lumineuse, ce qui est une difficulté expérimentale importante à prendre en compte, car les largeurs homogènes sont dégradées dès qu'on interroge la fréquence du trou brûlé spectral.

IV.4 Puissance et temps de brûlage optimaux d'un trou brûlé spectral

De façon à brûler les trous les plus fins possibles, et avoir un contraste maximum, l'étape du brûlage doit être maîtrisée. Pour cela, le programme contrôlant le MAO en double passage est utilisé. Nous nous plaçons toujours au centre du spectre d'absorption du site 1. Si trop de puissance est envoyée sur le cristal, alors le trou brûlé sera saturé et sa largeur spectrale n'en sera que plus grande. De plus, si le trou spectral est brûlé pendant un temps trop long, la fréquence du laser pré-stabilisé sur la cavité ultra-stable risque de fluctuer pendant le temps de brûlage, ce qui peut élargir le trou brûlé spectral. Il est donc important d'optimiser ces paramètres pour obtenir une référence de fréquence la plus fine possible.

Le temps de brûlage optimal dépend également de la température du cristal. En effet, en brûlant un trou pour différentes températures du cristal, la constante de temps τ correspondant au temps mis pour obtenir 67% du contraste maximal varie fortement, ainsi que le contraste maximal (cf. figure (IV.3)). Les mesures sont effectuées en envoyant une puissance optique de 20 μW sur le cristal. La température est mesurée à l'aide d'un thermistor de type Cernox placé sur la face supérieure du cristal. Nous reviendrons en détail sur les fluctuations rapides de la transmission observées lorsque la température de cristal est inférieure à 10 K. On constate que le contraste maximum est d'environ 40% et est atteint à basse température. Pour les plus hautes températures, les temps caractéristiques et le contraste maximum dépendent également du temps mis par les ions Eu^{3+} à se désexciter depuis les niveaux hyperfins vers le niveau fondamental qui est alors comparable à la constante de temps τ.

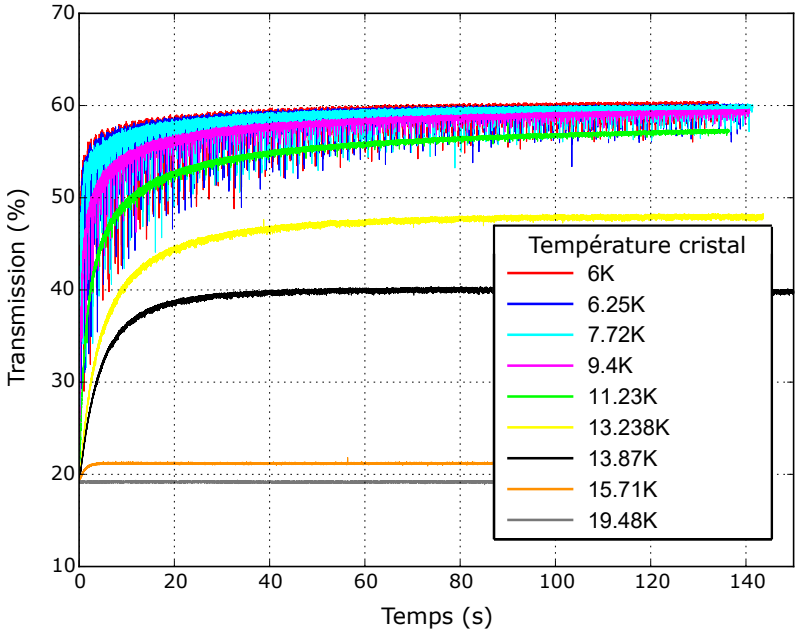

FIGURE IV.3 – Temps de brûlage d'un trou spectral en fonction de la température du cristal

Température Cristal (K)	Contraste Max (%)	τ (s)
15.71	2.05	1.155
13.87	20.64	3.53
13.238	28.86	6.30
11.23	37.72	3.48
9.4	39.95	1.04
7.72	40.5	0.53
6.25	40.63	0.44
6	41.11	0.36

Tableau IV.4 – Valeurs des constantes de temps et des contrastes maximaux des différentes courbes de la figure (IV.3)

Pour une température de cristal donnée, le contraste d'un trou brûlé spectral dépend du pourcentage d'ions Eu^{3+} qui restent dans la structure hyperfine. L'expérience a montré (cf. figure (IV.5)) que brûler un trou avec un faisceau résonant d'intensité I pendant un temps t ou bien avec un temps t/10 et une intensité optique $10 \times$ I ne modifie pas le contraste ou la largeur spectrale du trou brûlé. On préfère utiliser un temps assez court de quelques dizaines de millisecondes pour limiter les fluctuations de fréquence du laser pendant le temps de brûlage. On ne peut pas réduire indéfiniment le temps en augmentant la puissance du laser car plus l'impulsion lumineuse envoyée sur le cristal est courte, plus sa largeur spectrale est importante. Pour des largeurs homogènes de 1 kHz, il faut que l'impulsion lumineuse ait une durée temporelle supérieure à 1 ms. En pratique, on brûle avec une intensité optique I = 20 μW.cm^{-2} pendant un temps t = 120 ms, ce qui correspond à un nombre de photons par seconde égal à :

$$N_{h\nu} = \frac{P}{hc/\lambda} = 5.83 \times 10^{13}/seconde \tag{IV.12}$$

soit $\approx 7 \times 10^{12}$ photons potentiellement résonants avec la transition des ions Eu^{3+} pour un

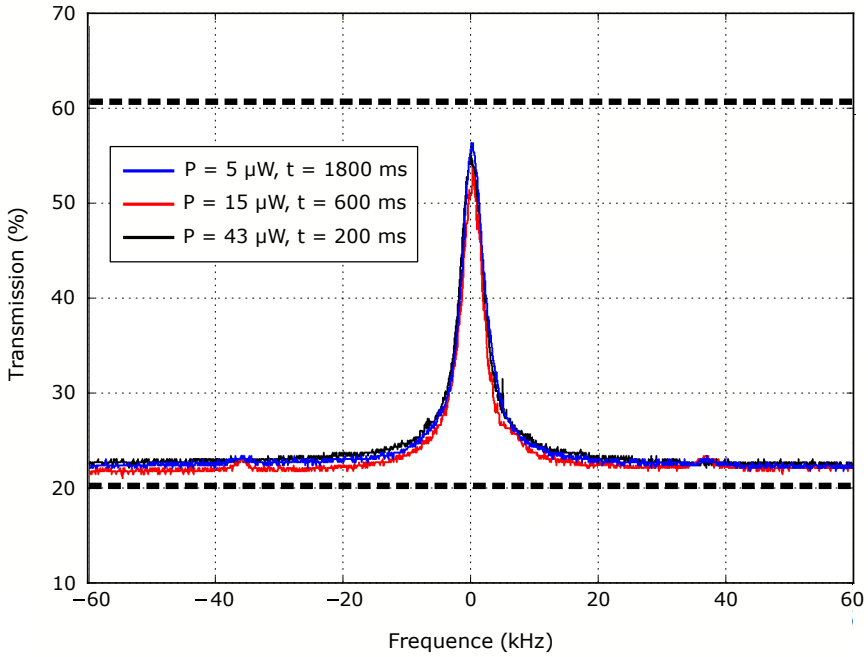

FIGURE IV.5 – Variation du temps et de la puissance de brûlage sur un trou brûlé spectral étroit

temps t = 120 ms.

Pour interroger un maximum des ions Eu^{3+} contenus dans le cristal, un système de lentilles placées avant le cristal collimate le faisceau optique de façon à ce que son front d'onde soit plan et ainsi que les photons soient uniformément répartis sur toute la surface incidente du cristal.

IV.5 Largeur homogène d'un trou brûlé spectral étroit

Le trou est brûlé avec une intensité de 20 $\mu W.cm^{-2}$ pendant 122 ms. Puis, l'absorption est mesurée aux fréquences voisines du trou brûlé spectral dans une plage de 50 kHz en prenant un point tous les kilohertz. Pour chaque point, une intensité lumineuse de 2 μW.cm^{-2} pendant 122 ms est envoyée sur le cristal. De façon à augmenter le faible rapport signal/bruit dû à la faible puissance du faisceau d'interrogation, chaque point est la moyenne de l'absorption mesurée pendant ces 122 ms. La largeur spectrale du trou brûlé, qui correspond à la largeur homogène des ions Eu^{3+} est alors mesurée. La largeur homogène peut, comme la largeur inhomogène, être modélisée par une lorentzienne de formule équivalente à la formule IV.1 :

$$L(\nu) = \beta + \frac{\alpha}{\pi} \frac{\frac{1}{2}\Gamma_h}{(\nu - \nu_c)^2 + (\frac{1}{2}\Gamma_h)^2} \tag{IV.13}$$

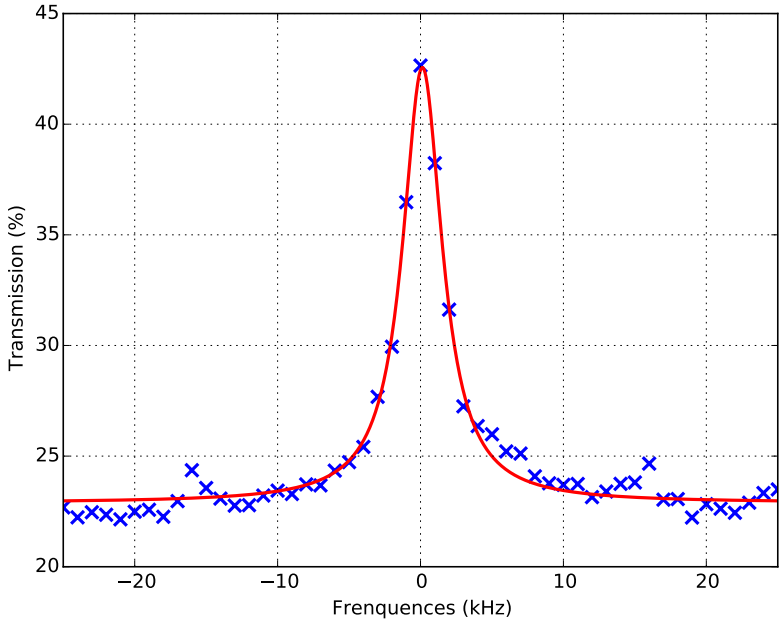

FIGURE IV.6 – Mesure de la largeur spectrale d'un trou brûlé spectral étroit (T = 3.2K)

Un ajustement par rapport à une lorentzienne a été effectué en utilisant la méthode des moindres carrés et donne les valeurs des paramètres suivants :

Γ_h(kHz)	α(%.kHz)	β (%)
3.36	104.1	22.89

Tableau IV.7 – Valeurs des paramètres de la formule (IV.13) pour la modélisation de la courbe de la figure (IV.6)

La largeur à mi-hauteur du trou ainsi formé est estimée à 3.37 kHz par la méthode des moindres carrés. Cette largeur est parmi les plus fines jamais observées expérimentalement sur ce type de cristal.

Lors de cette mesure, les interrogations aux différentes fréquences autour de la fréquence centrale du trou brûlé sont synchronisées avec le mouvement du displacer présent dans le cryocooler, aux moments où les niveaux de vibration du doigt froid sont minimaux. Pour cela, un senseur magnétique de type Hall a été placé sur la tête du cryocooler (dans laquelle est enfermée le displacer). Un petit aimant est placé au sommet du displacer, ce qui permet de capter un champ magnétique lorsque celui-ci se rapproche de la sonde magnétique. Cette variation de champ magnétique est détectée et permet ainsi une synchronisation des mesures en générant un signal carré.

IV.6 Influence de la température du cristal sur la largeur homogène et le contraste

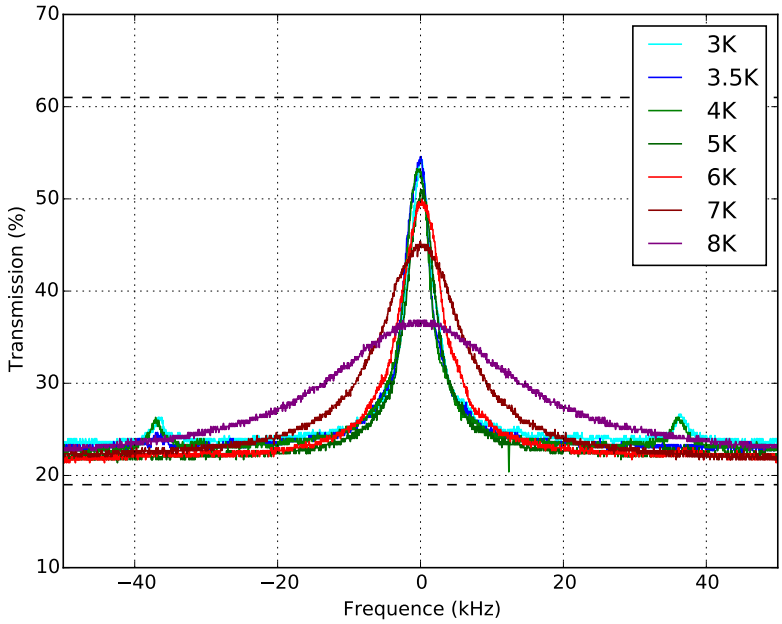

FIGURE IV.8 – Interrogation d'un trou brûlé spectral pour différentes températures de cristal

Des mesures de largeur homogène à différentes températures ont été effectuées. Les résultats sont regroupés sur la figure (IV.8). Ces courbes ont également été ajustées par une courbe lorentzienne dont l'équation est donnée par la formule (IV.13). Les paramètres pour les différentes températures sont regroupés dans le tableau ci-dessous.

Température	Γ_h(kHz)	α(%.kHz)	β (%)
3 K	4.62	212.9	23.4
3.5 K	4.66	227.5	22.8
4 K	4.64	221.0	22.8
5 K	5.05	227.6	22.13
6 K	7.30	319.0	21.9
7 K	13.8	504.7	21.7
8 K	31.3	733.2	21.6

Tableau IV.9 – Valeurs des paramètres de la formule IV.13 pour la modélisation des courbes des largeurs homogènes à différentes températures (cf. figure (IV.8))

Les largeurs homogènes montrées ici pour les plus faibles températures du cristal sont supérieures à celle du trou brûlé étroit, mesurée précédemment (cf. figure (IV.6)). Cela peut s'expliquer par le fait que ces mesures ne sont ici plus synchronisées avec le moment où les vibrations sont minimales. La monture utilisée sur ces mesures est décrite sur la figure (IV.21). On voit donc ici directement l'influence des vibrations du cryocooler appliquées au cristal sur la largeur spectrale minimale du trou brûlé spectral.

IV.7 Sensibilité des trous brûlés à l'environnement du cristal

Le laser doit être verrouillé sur un trou brûlé spectral étroit et dont la fréquence reste stable dans le temps. Cependant, le centre des trous brûlés spectraux est sensible aux fluctuations de l'environnement du cristal telles que la pression, la température, le champ électrique et le champ magnétique. En raison des différents champs cristallins perçus par les ions europium des deux sites cristallographiques non équivalents, les sensibilités des trous brûlés dans chaque site seront différentes. Ces sensibilités typiques ont été mesurées [64] et sont regroupées dans le tableau suivant :

	Site 1	Site 2	Unité
Centre du spectre d'absorption	580.039	580.211	nm
Module d'élasticité isostatique	134.8	134.8	GPa
Champ magnétique	1.4	/	$Hz.G^{-2}$
Champ electrique	<0.2	/	$Hz(V.m^{-1})^{-2}$
Temperature (à 3.7K et 270Pa)	6.2	21	$kHz.K^{-2}$
Pression	-211.4	-52.0	$Hz.Pa^{-1}$
Intensité lumineuse	<0.2	/	$Hz/(\mu W/cm^2)$

Tableau IV.10 – Propriétés du cristal Eu^{3+} : Y_2SiO_5 et sensibilités des trous brûlés spectraux à leur environnement pour le site 1 et 2 (Données extraites de [64])

La sensibilité du trou brûlé spectral en fonction de la température dépend également de la pression autour du cristal (cf. figure (IV.11)). On constate que le site 1 possède une sensibilité plus faible aux fluctuations de température que le site 2, ce qui est un autre avantage du site 1 en vu de stabiliser le laser sur un trou brûlé spectral. D'autre part, le coefficient de sensibilité à la température étant positif entre 0 et 7 K et le coefficient de sensibilité à la pression étant négatif, il est possible de trouver un point (P,T) dit "magique" pour lequel le trou brûlé est insensible aux fluctuations de température au premier ordre.

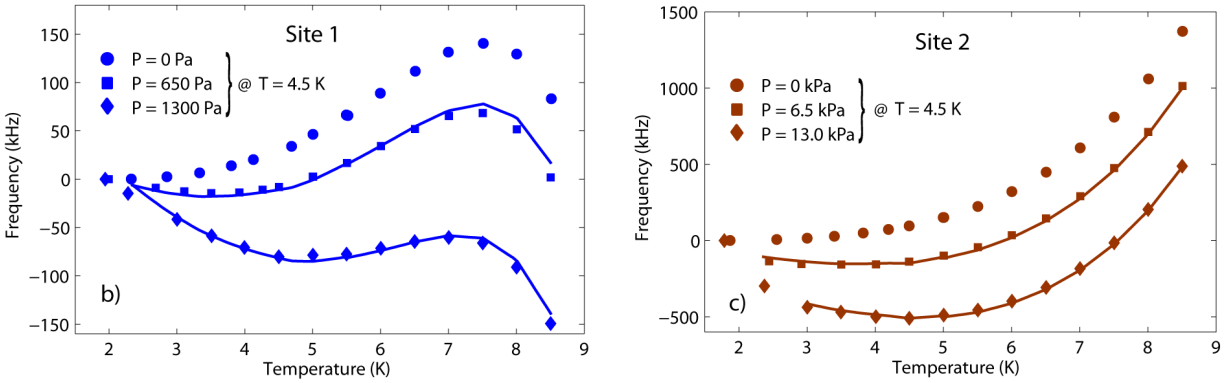

FIGURE IV.11 – Sensibilité d'un trou brûlé en fonction de la température (Figure extraite de [64])

Nous avons essayé de mettre en place un module sur le cryocooler permettant d'injecter de l'hélium gazeux autour du cristal dont on peut contrôler la pression. Cependant, le contact

thermique du module avec le doigt froid n'est pas suffisant et ne permet pas au cristal d'atteindre une température assez basse pour brûler des trous brûlés spectraux étroits. Nous avons péniblement atteint une température de 12 K. Le module a donc été retiré. Nous travaillons actuellement sous vide. Notre sensibilité aux fluctuations de température α_{T} est alors de :

$$\alpha_T = 17.6 \ \mathrm{kHz.K^{-1}} \tag{IV.14}$$

ce qui est loin d'être optimal.

IV.8 Étude de l'influence du cryocooler sur la stabilité des trous brûlés spectraux

IV.8.1 Interrogation en continu d'un trou brûlé spectral

Afin de créer un laser le plus stable possible, la référence sur laquelle il sera verrouillée doit être interrogée de façon continue.

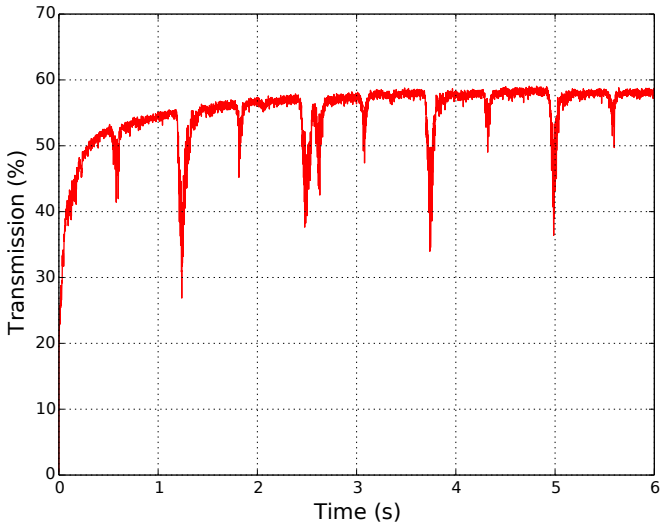

FIGURE IV.12 – Spectroscopie continu du centre d'un trou brûlé

La figure (IV.12) est le résultat de la même expérience que la figure (IV.3), c'est à dire la transmission à travers le cristal à une température de 3K. En interrogeant en continu le centre d'un trou brûlé, nous observons une chute brutale de la transmission pendant environ 200 ms. On remarque sur la figure (IV.12) que deux phénomènes d'amplitudes différentes alternent périodiquement dans le temps. Chacun des deux phénomènes est synchronisé avec le cycle du cryocooler. Ce phénomène empêche le verrouillage d'un laser sur le trou brûlé en continu.

IV.8.2 Étude des fluctuations de température sur le cristal

On suppose ici que ces fluctuations ont lieu lorsque de l'hélium froid est amené au doigt froid du cryocooler sur lequel repose le cristal, et après transfert thermique entre l'hélium et le doigt

froid lorsque celui-ci est récupéré. Des fluctuations rapides de température pourraient induire un décalage brutal du trou brûlé spectral car nous ne sommes pas au point (P,T) "magique". Connaissant notre sensibilité aux fluctuations de température α_T et la largeur du trou brûlé spectral Γ_h, nous pouvons déduire le changement de température ΔT nécessaire pour observer une telle chute de la transmission :

$$\Delta T = \frac{\Gamma_h}{\alpha_T} = \frac{3.36kHz}{17.6kHz/K} = 0.19K \tag{IV.15}$$

De telles fluctuations nécessitent une variation de température du cristal de 0.19 K. Un thermistor est placé au niveau du doigt froid. Néanmoins, la chute de la transmission de la lumière à travers le cristal est trop rapide pour que la variation de température puisse être détectée à l'aide d'un thermistor. Une solution pour étudier l'effet des fluctuations rapides de température est de réaliser un filtrage thermique entre le doigt froid et le cristal.
Par analogie avec l'électronique, tous les matériaux possèdent une résistance thermique R qui représente la résistance au passage d'un flux de conduction thermique. Cette résistance est caractérisée par la résistivité thermique qui est une propriété physique intrinsèque de chaque matériau et par la géométrie de la pièce.

$$R = \frac{L}{\rho S} \tag{IV.16}$$

Chaque matériau possède également une capacité calorifique C qui est la capacité d'un matériau à garder de la chaleur, avant de la restituer par échange thermique. Elle dépend du volume de la pièce considérée.
En plaçant différents matériaux entre le doigt froid du cryocooler et le cristal, on crée ainsi un filtrage thermique de type passe-bas qui modifie la fréquence de coupure $1/2\pi RC$ à partir de laquelle les fluctuations thermiques du doigt froid ne sont pas transmises au cristal. Les fluctuations de température du cristal peuvent ainsi être atténuées, voir supprimées. Pour choisir des matériaux adaptés à un filtrage passe-bas performant, il faut d'abord connaître les résistivités thermiques et les capacités calorifiques des différents matériaux à température cryogénique.

Matériau	ρ (K.m.W^{-1})	C (J.m^{-3}.K^{-1}))
Cuivre-Beryllium	0.53	/
Cuivre	0.03	887.01
Invar	4.13	7921.33
Nylon	80.3	1934.58
Acier inoxidable	3.31	15494.89
Plomb	0	/
Kapton	92.68	1124.02

Tableau IV.13 – Résistivités thermiques et capacités calorifiques volumiques de différents matériaux à 4 K

Quatre montures différentes, représentées sur la figure (IV.14) ont été réalisées pour effectuer des filtrages thermiques avec différentes fréquences de coupure. Le cuivre a d'abord été choisi pour assurer une bonne conduction thermique entre le doigt froid et le cristal. Une fois les fluctuations de la figure (IV.12) découvertes, l'acier a semblé être la meilleure option pour un filtrage thermique, en raison de sa capacité calorifique très grande à 4 K et de sa facilité d'usinage. Une extension en acier a été ensuite rajoutée pour pouvoir agrandir encore la capacité calorifique du filtre thermique. Enfin, une plaque d'1 mm d'épaisseur en nylon entre le doigt

froid et la monture en acier à été ajoutée pour augmenter la résistance thermique de la monture. L'ajout de cette résistance thermique élevée a cependant empêché le cristal de descendre à une température suffisante pour pouvoir brûler des trous spectraux. Un second bouclier thermique en cuivre percé de deux trous pour laisser passer la lumière a donc été ajouté sur le second étage du cryocooler qui est à 4 K afin que le cristal atteigne une température assez faible pour permettre la spectroscopie des trous brûlés spectraux étroits.

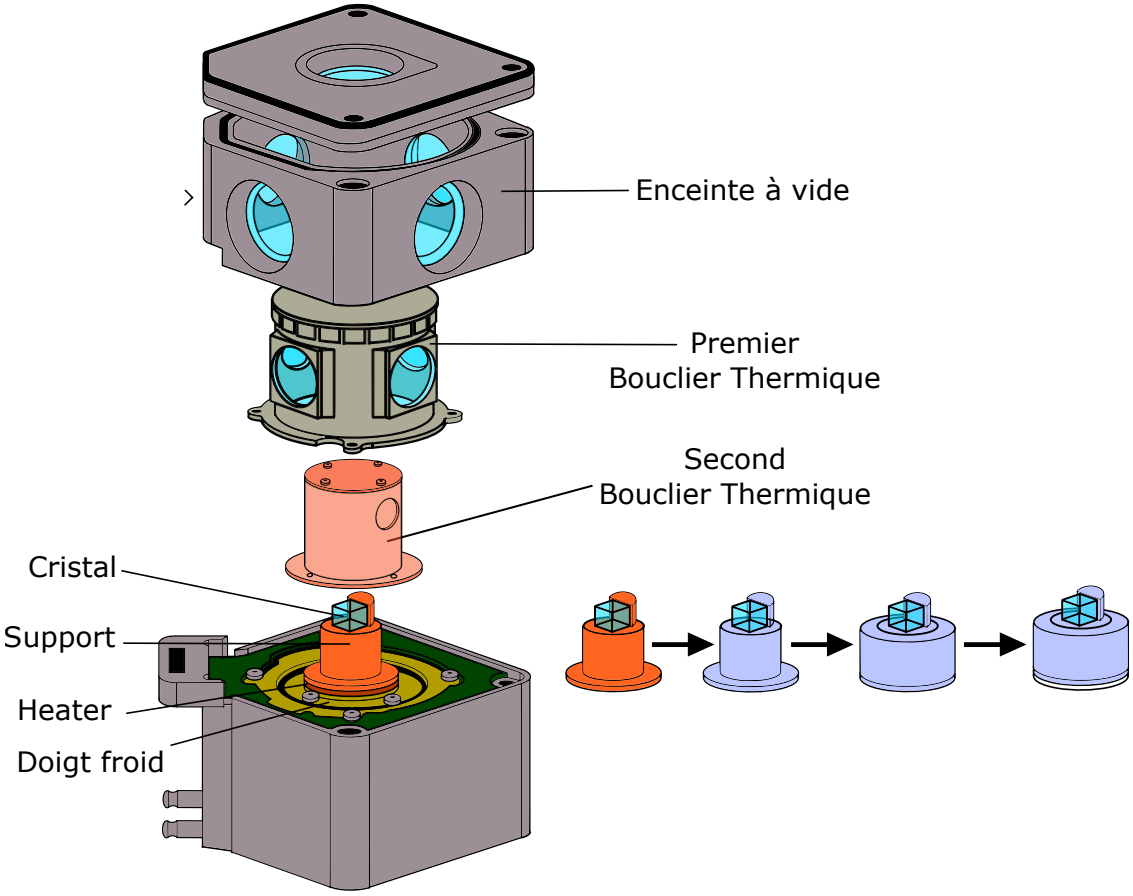

FIGURE IV.14 – Schéma de la chambre d'expérience

Pour chaque monture, la capacité calorifique et la résistance thermique ont été calculées. On en déduit ainsi la fréquence de coupure du filtre passe-bas correspondant :

$$f_c = \frac{1}{2\pi RC} \tag{IV.17}$$

On en déduit le diagramme de Bode associé à chaque filtre (cf. figure (IV.15)) d'après les valeurs de R et C regroupées dans le tableau (IV.16).

Sur la figure (IV.12), on remarque que la chute de transmission est très rapide et correspond à une fréquence de l'ordre de la dizaine de kHz, tandis que la remontée de la transmission à travers le cristal possède une constante de temps de 200 ms ce qui correspond à une fréquence de 5 Hz. En changeant la monture, une variation de cette constante de temps aurait due être

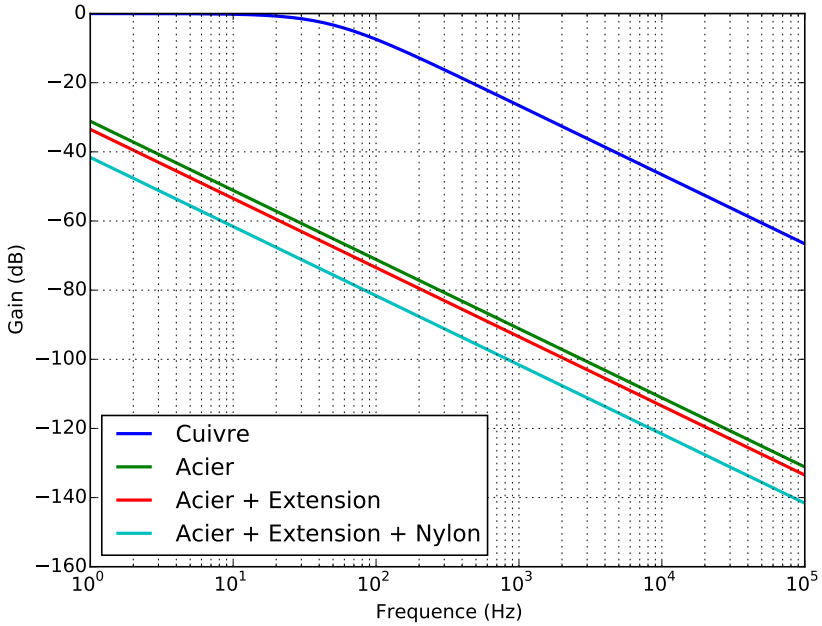

FIGURE IV.15 – Diagramme de Bode des différents filtres thermiques correspondant à chaque monture

Monture	R (K.W^{-1})	C (J.K^{-1}))	f$_c$ (Hz)
Cuivre	0.71	0.00479	47.06
Acier	68.34	0.084	0.028
Acier + Extension	68.34	0.11	0.021
Acier + Extension + Plaque Nylon	171.88	0.1115	0.008

Tableau IV.16 – Tableau des résistances thermiques et capacités thermiques des différentes montures à 4K

observée. Cela n'a pas été le cas, ce qui met en défaut la possibilité que les fluctuations observées sur la figure (IV.12) soient causées par une fluctuation de température du doigt froid.

IV.8.3 Étude des fluctuations du champ magnétique

On suppose ici que ce sont des fluctuations du champ magnétique autour du cristal qui seraient responsables des fluctuations rapides de la transmission à travers le cristal. Le displacer du cryocooler est une partie métallique mobile sur laquelle est fixé un petit aimant servant à la synchronisation des mesures si besoin. Cette partie du cryocooler est proche de la chambre d'expérience dans laquelle est placé le cristal. Des fluctuations de champs magnétiques pourraient alors se propager jusqu'au cristal et induire une séparation des niveaux d'énergie des ions Eu^{3+} par effet Zeeman. Le trou brûlé se séparerait alors en plusieurs trous brûlés temporairement lorsque le cristal verrait un champ magnétique. L'influence du champ magnétique a déjà été étudiée par le NIST [64] et montre un éclatement du trou brûlé en plusieurs composantes symétriques par rapport à la fréquence à laquelle le trou spectral a été brûlé.

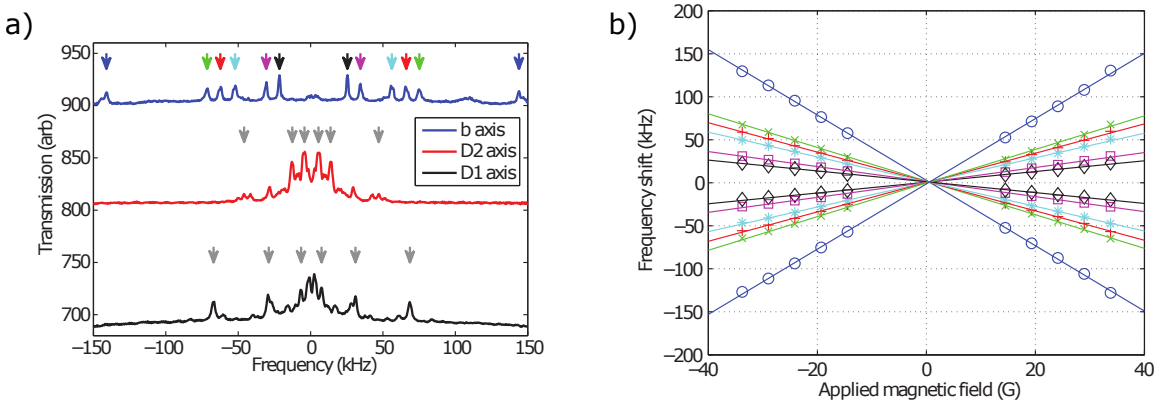

FIGURE IV.17 – Etude de l'influence du champ magnétique sur un trou brûlé (extrait de [64])

Pour étudier le champ magnétique présent sur le cristal, un magnétomètre à saturation comprenant trois sondes pour chacun des axes x y z est utilisé. Chaque sonde est placée autour de la chambre d'expérience. Les variations du champ magnétique sont mesurées avec une bande passante de 3 kHz, ce qui permet de voir des variations de champ magnétique de quelques milisecondes qui pourraient expliquer les chutes de transmission du trou brûlé (cf figure (IV.12)). Les mesures obtenues sont regroupées sur la figure (IV.18) et ont été effectuées lorsque le cryocooler est stabilisé à 3 K.

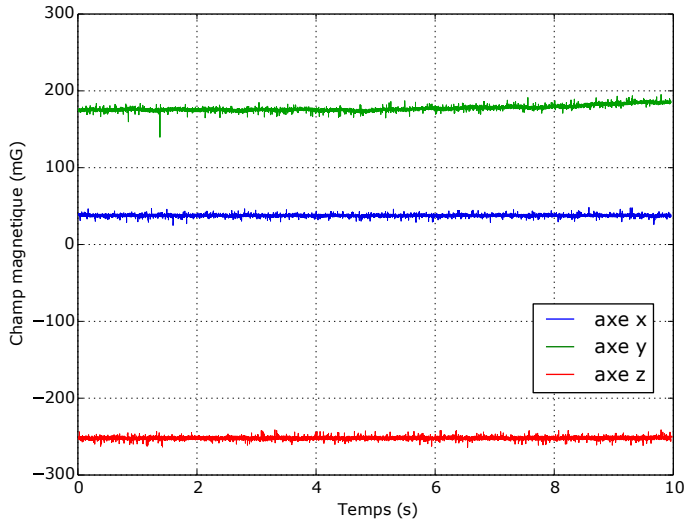

FIGURE IV.18 – Fluctuations du champ magnétique autour de la chambre d'expérience

Nous remarquons que le champ magnétique fluctue avec une amplitude de 10 mG crête à crête. La sensibilité au champ magnétique de la première composante spectrale est de 120 Hz.G^{-1} (cf. figure (IV.17)). En utilisant ce coefficient de sensibilité magnétique, une fluctuation de 10 mG entraîne un décalage de la première composante spectrale de 1,2 Hz. Le trou brûlé a une largeur de 3,36 kHz. La chute de transmission qui apparaît sur la figure (IV.12) indique que la première composante spectrale aurait un offset de 3.36 kHz au moins ce qui correspondrait à un champ magnétique de 28 G. Les ordres de grandeur mesurés ne permettent donc pas d'ex-

pliquer une telle chute de transmission.

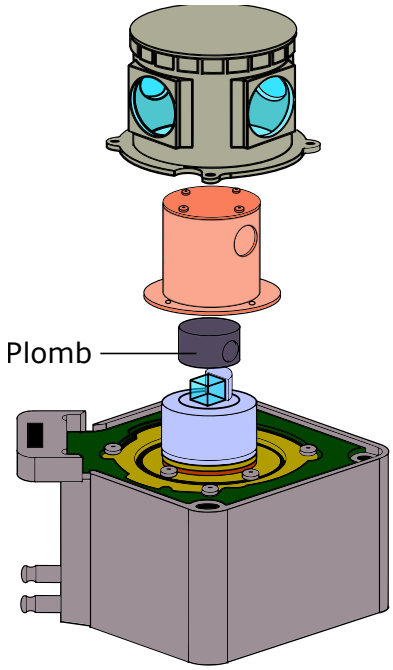

FIGURE IV.19 – Schéma de la chambre d'expérience pour l'étude des fluctuations électriques

Néanmoins, comme pour le cas de la température, la vitesse de réponse des sondes magnétiques est faible, et les temps caractéristiques de quelques millisecondes sont filtrés. Pour vérifier que les fluctuations du champ magnétique autour du cristal ne sont pas la cause de la chute brutale de la transmission du trou brûlé spectral, une deuxième expérience a été faite. La chambre d'expérience a été modifiée comme représenté sur la figure (IV.19). Un capuchon en plomb percé de deux trous permettant de faire passer la lumière à travers le cristal est fixé sur la monture en acier et recouvre le cristal. La résistance thermique du plomb devient très faible à 4 K, la transition supraconductrice du plomb se faisant à 7.2 K. Un matériau supraconducteur émet des courants d'écrantage qui induisent un champ magnétique qui s'oppose exactement avec le champ magnétique appliqué. Autrement dit, aucun champ magnétique ne peut atteindre le cristal si celui ci est placé à l'intérieur d'un bouclier en plomb si la température du plomb est inférieure à 7.2 K, ce qui est le cas lorsque des trous spectraux sont brûlés. En faisant l'expérience, la chute de transmission du trou brûlé n'est pas modifiée par rapport à la figure (IV.12), ce qui exclut totalement l'hypothèse que ces fluctuations soient causées par une fluctuation de champ magnétique créée par le mouvement du displacer.

IV.8.4 Étude des fluctuations électriques sur le cristal

Des fluctuations du champ électrique autour du cristal pourraient également séparer les niveaux d'énergie par effet Stark et ainsi induire une séparation spectrale du trou brûlé symétriquement par rapport à la fréquence de brûlage.

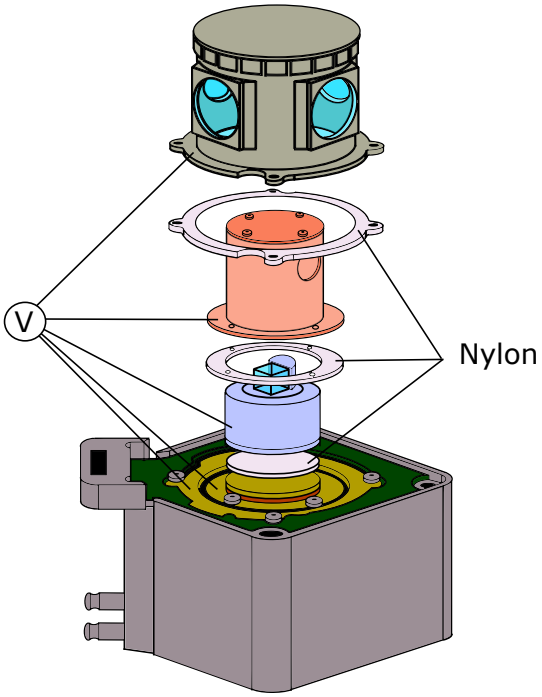

FIGURE IV.20 – Schéma de la chambre d'expérience pour l'étude des fluctuations electriques

Pour étudier cette hypothèse, nous avons modifié la chambre d'expérience comme indiqué sur la figure (IV.20). Des plaques de nylon (matériau isolant) sont placées sous le premier et deuxième bouclier thermique ainsi que sous la monture du cristal de façon à ce que les deux boucliers thermiques, la monture, le doigt froid et le deuxième étage du cryocooler soient électriquement isolés les uns des autres. Chaque partie est connectée à un fil qui va vers l'extérieur du cryocooler. Aucune différence de potentiel n'est détectée à l'oscilloscope entre deux parties électriquement isolées lorsque le cryocooler est en fonctionnement. Les fluctuations sur la transmission du trou brûlé sont toujours visibles. En reliant toutes les parties électriquement isolées à la masse du laboratoire, aucune différence n'est observée. L'hypothèse d'un champ électrique autour du cristal est donc écartée pour expliquer les fluctuations sur la transmission du cristal.

IV.8.5 Étude des vibrations sur le cristal

On suppose ici que la valve tournante du cryocooler qui alterne la ligne haute pression et basse pression crée des vibrations qui se propagent, par l'intermédiaire du doigt froid, jusqu'au cristal. Montanta Instrument a caractérisé ses vibrations avec une bande passante de 500 Hz et a optimisé le système pour que ces vibrations soient réduites. En revanche, aucun travail n'a été fait pour les vibrations à plus hautes fréquences sur le cryocooler. Il est donc possible que des vibrations à plus hautes fréquences provoquent une séparation des niveaux d'énergie, ce qui cause un éclatement spectral du trou brûlé.

Nous avons la possibilité de synchroniser nos mesures pour ne pas avoir ces vibrations, mais cela ajoute des difficultés à long terme pour stabiliser le laser sur le trou brûlé spectral. Pour amortir les vibrations qui ont lieu pendant les pulses du cryocooler, une nouvelle monture a été

conçue. Elle comprend trois ressorts placés en triangle. Ces ressorts sont en cuivre-bérillium car ce matériau possède les bonnes propriétés mécaniques à 4 K pour rester relativement élastique et faire fonction de ressort. Pour assurer un bon contact thermique entre le doigt froid et le cristal, de la tresse thermique en cuivre relie le doigt froid et le dessus de la monture.

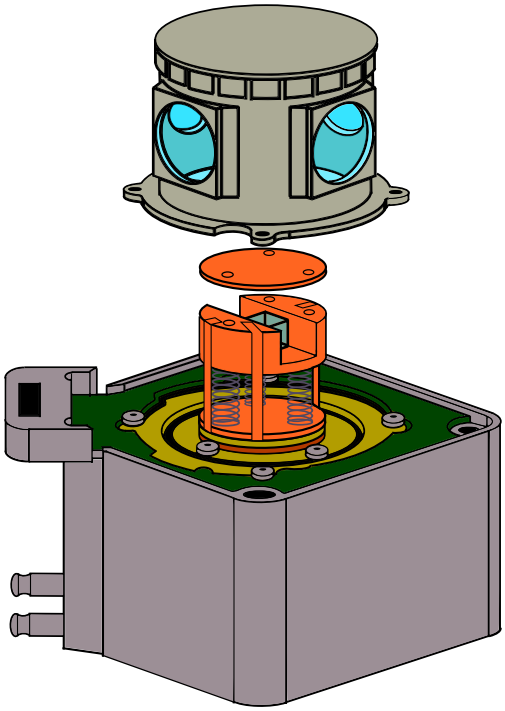

FIGURE IV.21 – Schéma de la chambre d'expérience - Atténuation des vibrations

Dans ces conditions, un trou spectral a été brûlé avec un cristal à une température de 5 K. A cette température, l'effet des vibrations est visible (cf. figure (IV.3)). On peut voir sur la figure (IV.22) que la transmission reste plus stable dans le temps lorsqu'on brûle un trou spectral. Grâce à cette expérience, nous avons identifié que le cristal ressentait des vibrations provenant de l'alternance des lignes hautes pressions et basses pressions du cryocooler qui n'étaient pas compensées à des fréquences de Fourier supérieures à 500 Hz par la configuration du cryocooler. Les vibrations ont été amorties à l'aide de ressorts en cuivre-bérillium. Nous supposons que ces vibrations sont à une fréquence plus élevée que 500 Hz puisque Montana Instrument a mesuré des niveaux de vibrations avec une bande passante de 500 Hz qui ne permettent pas d'expliquer l'amplitude du phénomène observé. Cependant, on peut toujours voir, en observant le speckle du faisceau laser sur le mur après le cristal, que les vibrations ne sont pas supprimées. Elle sont ramenées à une fréquence plus basse. L'amplitude des accélérations appliquées sur le cristal est donc moins grande. L'offset de fréquence des différentes composantes spectrales est devenu inférieur à la largeur du trou brûlé mesuré. Les vibrations appliquées sur le cristal semblent être la limite de la largeur de nos trous brûlés spectraux.

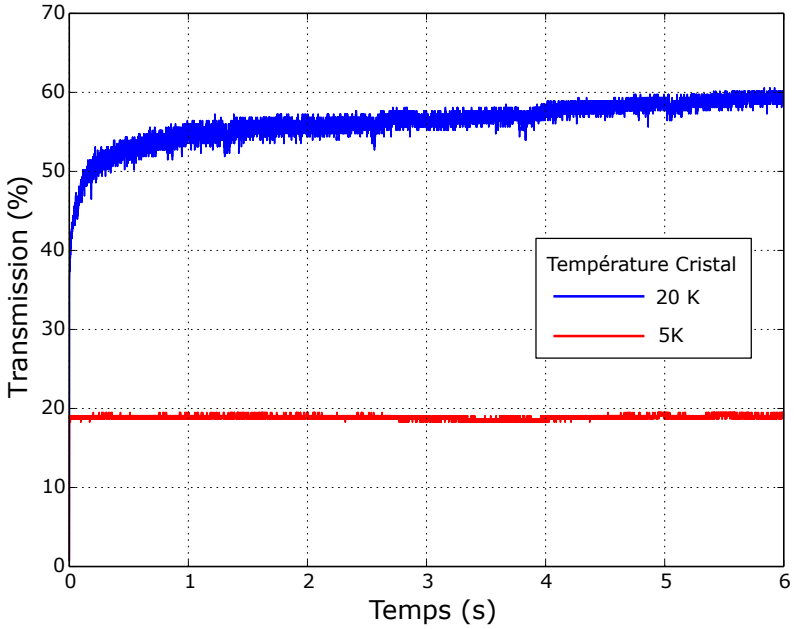

FIGURE IV.22 – Brûlage d'un trou spectral avec monture à ressort

IV.9 Visualisation temporelle de l'effet des vibrations sur un trou brûlé spectral

Nous utilisons ici une monture autre que celle avec des ressorts. L'amplitude des vibrations est alors suffisante pour voir leur effet sur le trou brûlé spectral. Il n'est pas possible d'observer l'ensemble du trou spectral de façon continue. Afin de voir l'évolution temporelle du trou brûlé dans le domaine spectral, nous effectuons une série d'interrogations, durant chacune 30 ms, décalées dans le temps avec un pas temporel ajouté entre chaque interrogation de 10 ms. On brûle un nouveau trou brûlé pour chaque acquisition de façon à ne pas perdre en contraste par sur-brûlage au fur et à mesure des acquisitions. Un nouveau trou est brûlé lorsque les vibrations sont minimales puis interrogé à un temps $t_0 + n * \Delta t$, où t_0 est un temps de référence synchronisé sur le cycle du cryocooler et Δt le pas temporel ajouté à chaque interrogation. Comme ce phénomène dure 200 ms, le décalage temporel entre chaque acquisition est fixé à 10 ms pour être sûr d'observer le phénomène voulu. On répète cette opération n fois, de façon à obtenir le trou brûlé dans le domaine spectral à chaque instant du cycle thermodynamique du cryocooler. Entre chaque acquisition, le trou spectral est effacé en remontant la température du cristal à 20K, puis en la redescendand à 3K. Seul le moment où le trou spectral est soumis à une vibration est tracé sur la figure (IV.23).

L'expérience est reproduite 150 fois de façon à pouvoir décrire l'évolution spectrale du trou brûlé sur une période temporelle du cryostat. La durée d'un scan est de 30 ms. Le résultat de ces expériences pour 7 temps t est tracé sur la figure (IV.23) et permet de voir la décomposition spectrale du trou brûlé lorsque le cryostat vibre. L'éclatement spectral dû aux vibrations a une amplitude supérieure à la gamme de fréquence interrogée. On observe bien que la transmission au centre du trou brûlé s'effondre puis se reforme lorsque les vibrations redeviennent minimales.

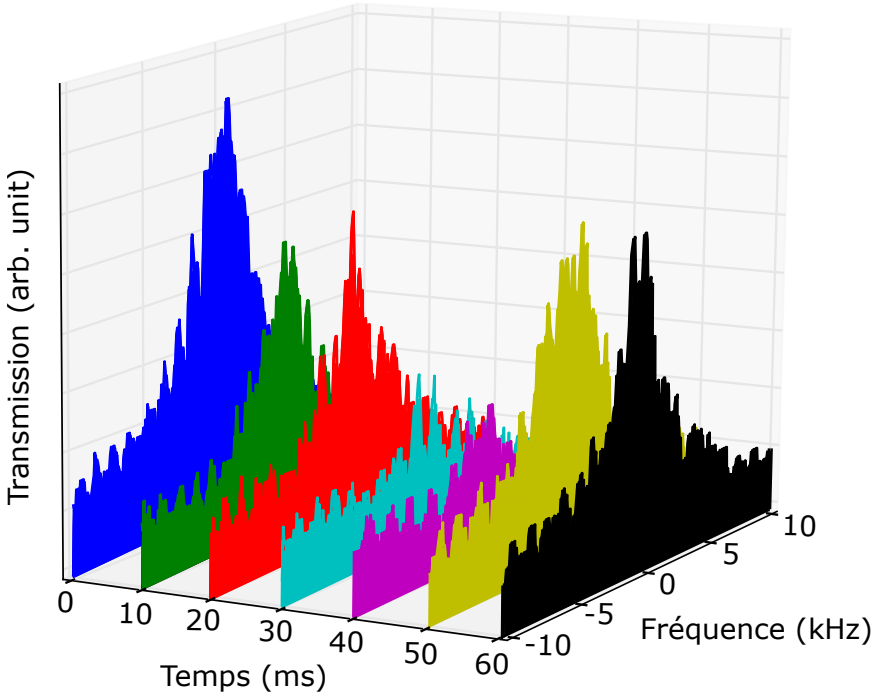

FIGURE IV.23 – Evolution temporelle d'un trou brûlé spectral soumis à des vibrations

La largeur homogène d'un trou brûlé spectral avec la monture à ressorts est mesurée à 4.2 kHz, ce qui est supérieur au résultat mesurée de façon synchrone avec une monture rigide. La monture à ressort est donc une solution imparfaite. Une solution plus efficace devra être trouvée à l'avenir.

IV.10 Conclusion

Nous avons dans ce chapitre étudié les conditions pour obtenir un trou brûlé spectral aussi fin que possible avec un contraste aussi grand que possible. Nous avons rappelé les sensibilités de la fréquence des trous brûlés spectraux aux différentes grandeurs physiques dans le but de pouvoir augmenter la stabilité du trou brûlé sur lequel le laser doit être verrouillé en fréquence. Enfin, nous avons identifié et solutionné un problème de vibrations induit par le design du cryocooler, en plaçant le cristal sur une monture à ressorts. Le trou spectral est maintenant assez fin et stable pour permettre un verrouillage efficace du laser sur le trou brûlé spectral.

Chapitre V

Stabilisation d'un laser sur trou brûlé spectral

Dans le chapitre IV, la spectroscopie des trous brûlés spectraux a mis en évidence leur potentiel pour être utilisés comme référence de fréquence. Cette référence de fréquence ayant été grandement améliorée grâce à une diminution des vibrations sur le cristal, il est maintenant possible de stabiliser le laser sur un trou brûlé spectral de façon continue et d'étudier les performances et les limitations de la stabilité du laser verrouillé sur cette nouvelle référence de fréquence.

V.1 Performance du laser pré-stabilisé

Pour connaître la stabilité de la fréquence du laser esclave référencé sur la cavité ultra-stable ou bien sur un trou brûlé spectral, la fréquence absolue du battement entre le laser esclave et une dent du peigne de fréquences présent au laboratoire est mesurée. Il est composé d'un laser femtoseconde, verrouillé en phase sur un laser à 1,54 μm, lui-même asservi sur une cavité ultra-stable, en utilisant la méthode PDH. La cavité ultra-stable à 1.54 μm montre une stabilité supérieure à celle de notre cavité ultra-stable ($5-6\times10^{-16}$ à une seconde de temps d'intégration [115]), de sorte que les fluctuations du peigne de fréquences sont négligeables devant la stabilité de notre laser esclave. La mesure de la fréquence absolue du battement permet donc de connaitre la stabilité en fréquence du laser esclave.

Lorsque le laser esclave n'est pas verrouillé sur le trou brûlé spectral, sa stabilité est déterminée par les fluctuations de la longueur de la cavité ultra-stable. Le montage expérimental est celui décrit sur la figure (III.26). Le laser esclave est stabilisé sur le laser maître, lui-même étant stabilisé sur la cavité ultra-stable. L'écart-type d'Allan de la fréquence absolue du battement entre le laser esclave et une dent du peigne de fréquence est représentée sur la figure (V.1).

Lorsque le laser maître est asservi sur la cavité-ultra stable, la stabilité du laser esclave est de 4×10^{-14} à 1 seconde de temps d'intégration, ce qui est bien supérieur à la limite fondamentale de la cavité ultra-stable, spécifiée inférieure à 10^{-15} à une seconde de temps d'intégration.

La pré-stabilisation du laser esclave est nécessaire si on veut brûler des trous spectraux étroits. En effet, la largeur de raie naturelle d'une diode laser en cavité étendue est de l'ordre

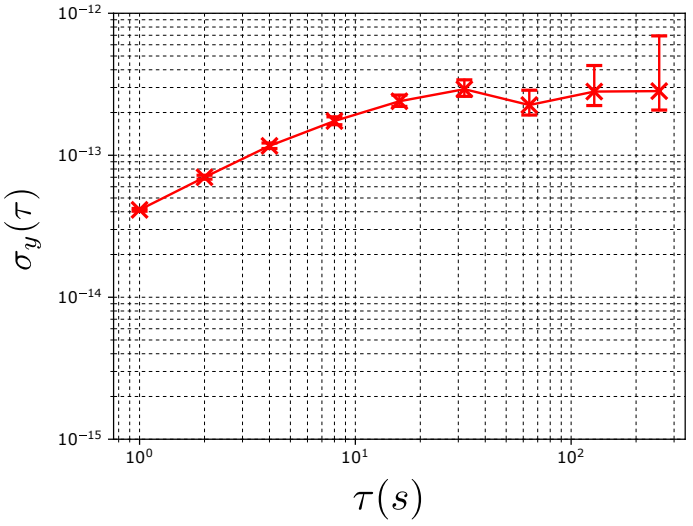

FIGURE V.1 – Ecart-type d'Allan du laser esclave préstabilisé

de la centaine de kHz, donc bien supérieure à la largeur des trous brûlés spectraux étroits. Le laser stabilisé sur la cavité ultra-stable possède une largeur de raie d'environ 50 Hz, ce qui rend le brûlage de trous brûlés spectraux étroits possible. On pourrait imaginer également utiliser un laser non pré-stabilisé pour brûler des trous nettement plus larges, puis stabiliser la fréquence du laser sur ces trous spectraux, permettant ainsi de brûler des trous plus étroits et ainsi de suite pour amorcer puis affiner la stabilisation du laser, jusqu'à obtenir une référence de fréquence dont la largeur spectrale est limitée par les vibrations sur le cristal $Eu^{3+}Y_2SiO_5$. Une telle technique pourra faire lieu d'une recherche future. Il est cependant plus facile expérimentalement de pré-stabiliser le laser d'interrogation avant de brûler un trou spectral étroit et de l'utiliser comme référence de fréquence pour stabiliser le laser.

V.2 État de l'art des asservissements d'un laser sur trous brûlés spectraux

Plusieurs méthodes ont déjà été explorées pour verrouiller un laser sur un trou brûlé spectral. Toutes ces méthodes utilisent un système à deux niveaux dans lequel le laser d'interrogation est d'abord pré-stabilisé. Après avoir décrit l'état de l'art de la stabilisation d'un laser sur trou brûlé spectral, une méthode de détection originale des trous brûlés spectraux, mise en place sur notre expérience, sera décrite. La méthode de détection est un choix important puisqu'elle détermine la vitesse de dégradation des trous brûlés spectraux lorsqu'ils sont interrogés, et influe donc grandement sur les performances de la stabilisation du laser.

V.2.1 Détection homodyne

La détection homodyne consiste à interroger un trou brûlé avec la fréquence d'un seul laser, et faire une détection DC de l'absorption du trou brûlé spectral à flans de trou. Cette technique a l'inconvénient de détériorer rapidement leur largeur homogène, du fait que ce sont les cotés du trou brûlé qui sont interrogés pour déterminer le minimum d'absorption.

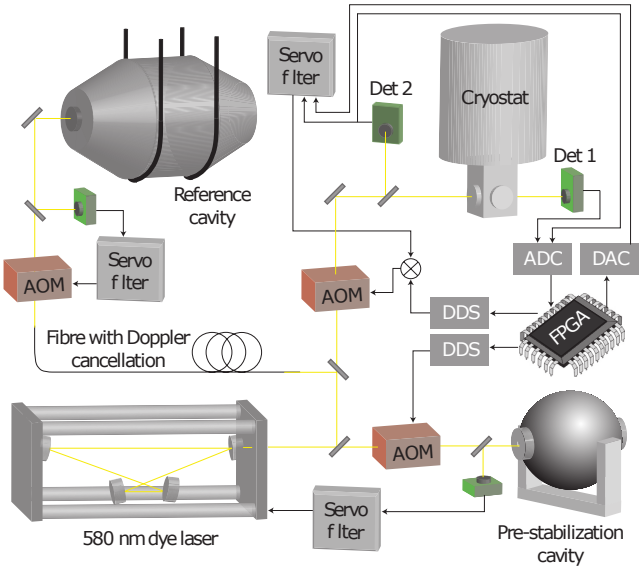

FIGURE V.2 – Verrouillage homodyne d'un laser sur un trou brûlé spectral (extrait de [62])

Dans les expériences décrites dans l'article [62], afin de limiter dans le temps la vitesse de dégradation des trous, un ensemble de trous brûlés spectraux, partiellement brûlés avec un contraste d'environ 30% par rapport au contraste maximum, sont créés. Les trous brûlés sont interrogés successivement pendant 1 milliseconde, en mesurant l'absorption de part et d'autre de leur centre, au 2/3 du maximum d'absorption. Les deux tensions DC sont soustraites afin de détecter le décalage en fréquence par rapport au centre du trou brûlé spectral. Le laser est ensuite asservi numériquement en appliquant une modulation sur la fréquence RF envoyée sur un MAO placé avant le cristal. Pour compenser la détérioration du trou brûlé spectral due à cette méthode d'interrogation, son centre est également brûlé à chaque cycle de façon à ce que celui-ci continue d'avoir une forme lorentzienne. Lorsque le contraste du trou brûlé arrive à son maximum, un autre trou brûlé spectral est utilisé comme référence de fréquence (cf. figure (V.2)). Cette méthode a montré une stabilité relative de 6×10^{-16} pour un temps d'intégration compris entre 2 et 8 secondes sur l'écart-type d'Allan [62].

V.2.2 Détection par méthode PDH

La méthode PDH a été mise en place pour stabiliser un laser sur des trous brûlés spectraux dans plusieurs expériences [116] [63].

La méthode PDH par rapport à la détection homodyne apporte un asservissement avec une plus grande bande passante et une sensibilité aux fluctuations d'amplitude basse fréquence moindre. Pour moduler la phase du faisceau incident, un modulateur électro-optique est placé devant le cristal (cf figure (V.3)). La présence de MEO implique la présence de MAR qui peut dégrader la stabilité du laser. Il est néanmoins possible de réduire cet effet, en asservissant une composante DC envoyée sur le MEO [111] pour minimiser la MAR. Le signal d'erreur obtenu par cette méthode est similaire au signal d'erreur obtenu sur la figure (II.1) représentant le signal d'erreur du PDH. L'équipe de D. R. Leibrandt et al. au NIST a mis au point une méthode

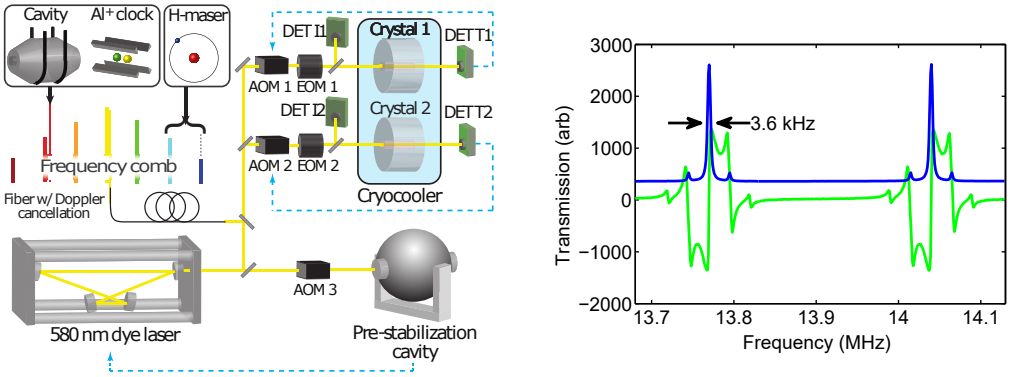

FIGURE V.3 – Verrouillage par méthode PDH d'un laser sur un trou brûlé spectral (extrait de [63])

qui interroge un ensemble de 201 trous brûlés spectraux successivement [63]. Un élargissement de 1.6 kHz sur chaque trou brûlé est constaté après T = 110 minutes d'asservissement en interrogeant les trous brûlés avec une intensité optique de 2 μW.cm^{-2} [63]. Les N = 201 trous spectraux sont interrogés successivement pendant t = 1 ms avec un rapport cyclique de τ = 85 %. Chaque trou brûlé a donc été interrogé pendant une durée moyenne $t_{\text{interrogation}}$ au court de cette élargissement :

$$t_{\text{interrogation}} = T\frac{\tau}{N} = 27.9 \text{ secondes} \tag{V.1}$$

ce qui correspond à une vitesse d'élargissement spectral pour un trou brûlé spectral $\Delta\Gamma$ de :

$$\Delta\Gamma = 57.3Hz/s \tag{V.2}$$

La dégradation du trou brûlé spectral vient du fait que, même si l'essentiel de la puissance optique est appliquée au centre des trous, des excitations non résonantes vont néanmoins progressivement élargir les trous. Par ailleurs, les bandes latérales nécessaires à l'asservissement PDH vont elles aussi provoquer des transitions et donc progressivement brûler leurs propres trous.

V.2.3 Formation d'un régime continu

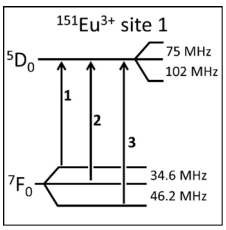

FIGURE V.4 – Structure des niveaux hyperfins de la transition $^7F_0 - ^5D_0$ (extrait de [94])

Il est possible de limiter la dégradation de la largeur spectrale des trous brûlés au fur et à mesure de leur interrogation. Pour cela, chaque ion Eu^{3+} stocké dans la structure hyperfine du niveau d'énergie $^7F_0$ est repompé régulièrement, avant de se désexciter dans le niveau fondamental de façon à ce que la diffusion spectrale ne dégrade pas la largeur ou le contraste des trous

brûlés spectraux. Le régime continu à montré des largeurs spectrales des trous brûlés spectraux de 3.3 kHz, et a été atteint dans la référence [94] au bout de 10h d'interrogation.

V.3 Nouvelle méthode d'asservissement d'un laser sur trou brûlé spectral : La détection hétérodyne

La détection hétérodyne est similaire à une détection par méthode PDH, à ceci près que la méthode hétérodyne ne comprend qu'une seule grande bande latérale au lieu de deux petites. Cela permet entre autres, d'obtenir un meilleur rapport signal à bruit tout en utilisant peu de puissance pour l'interrogation du trou brûlé spectral puisque l'essentiel de la puissance du battement sera hors du spectre d'absorption.

Pour effectuer une détection hétérodyne, le laser maître et le laser esclave sont doublés en fréquence et envoyés sur le cristal. Le battement entre les deux lasers permet d'accéder à la phase du laser esclave, dépendante de la dispersion du trou brûlé spectral, et ainsi verrouiller le laser esclave sur la fréquence centrale du trou brûlé spectral.

Pour comprendre la formation d'un signal dispersif par méthode hétérodyne, il faut d'abord comprendre l'interaction qui existe lorsque la lumière traverse un matériau qui absorbe sélectivement la lumière ou bien, dans le cas de cette thèse, un trou brûlé spectral.

V.3.1 Absorption et dispersion dans un matériau

Modèle de Lorentz

La propagation de la lumière dans la matière, notamment dans les solides, comprend un bon nombre de phénomènes, parmi lesquels l'absorption et la dispersion sélective.

En prenant le modèle de l'oscillateur de Lorentz, le milieu est considéré comme un ensemble d'atomes résonants, dans lequel la polarisation d'un seul atome, dû à la déformation du nuage électronique causée par le champ électrique d'une onde lumineuse traversant le milieu répond à l'équation :

$$\frac{\mathrm{d}^2P}{\mathrm{d}t^2} + \sigma\frac{\mathrm{d}P}{\mathrm{d}t} + \omega_0^2 P = \omega_0^2\epsilon_0\chi_0\epsilon \tag{V.3}$$

C'est l'équation d'un oscillateur harmonique si on considère que le déplacement du nuage électronique x(t) d'un atome est causé par une force de rappel F :

$$\frac{\mathrm{d}^2x}{\mathrm{d}t^2} + \sigma\frac{\mathrm{d}x}{\mathrm{d}t} + \omega_0^2 x = \frac{F}{m} \tag{V.4}$$

avec $\omega_0 = \sqrt{\frac{\kappa}{m}}$ la fréquence angulaire résonante, m la masse du nuage électronique, κ la constante

élastique de la force de rappel et σ le coefficient d'amortissement de l'oscillateur. Si on considère maintenant l'ensemble des atomes qui voient le champ électrique de l'onde lumineuse, la densité de polarisation est alors la somme des moments dipolaires $p = -ex$ de chaque atome résonant. Le champ électrique et la force F sont reliés par l'équation de la force de Lorentz pour un champ électrique seul :

$$F = qE \tag{V.5}$$

En comparant maintenant les deux equations différentielles, on trouve :

$$\chi_0 = \frac{Nq^2}{\epsilon_0 m \omega_0^2} \tag{V.6}$$

En résolvant la première équation différentielle pour un champ électrique de la forme $E = Re[Ee^{i\omega t}]$ et une polarisation $P = Re[Pe^{i\omega t}]$, on obtient :

$$P = \epsilon_0 \chi_0 \frac{\omega_0^2}{\omega_0^2 - \omega^2 + i\sigma\omega} E \tag{V.7}$$

La susceptibilité électrique du milieu $\chi(\omega)$ est donc complexe. Elle dépend de la fréquence d'excitation lumineuse $\omega = 2\pi\nu$:

$$\chi(\omega) = \chi_0 \frac{\omega_0^2}{\omega_0^2 - \omega^2 + i\omega\Gamma} \tag{V.8}$$

La susceptibilité électrique du milieu comprend une partie imaginaire et une partie réelle.

$$Re[\chi(\omega)] = \chi'(\omega) = \chi_0 \frac{\omega_0^2(\omega_0^2 - \omega^2)}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + (\omega\Gamma)^2} \tag{V.9}$$

$$Im[\chi(\omega)] = \chi''(\omega) = -\chi_0 \frac{\omega_0^2 \omega\Gamma}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + (\omega\Gamma)^2} \tag{V.10}$$

Proche de la résonance, on peut faire l'approximation :

$$\omega_0^2 - \omega^2 = (\omega_0 - \omega)(\omega_0 + \omega) \approx 2\omega_0(\omega_0 - \omega) \tag{V.11}$$

Les parties réelle et imaginaire de la susceptibilité électrique deviennent :

$$\chi'(\omega) \approx -\chi_0 \frac{\omega_0(\omega - \omega_0)}{2} \frac{1}{(\omega_0 - \omega)^2 + (\frac{\Gamma}{2})^2} \tag{V.12}$$

$$\chi''(\omega) \approx -\chi_0 \frac{\omega_0\Gamma}{4} \frac{1}{(\omega_0 - \omega)^2 + (\frac{\Gamma}{2})^2} \tag{V.13}$$

L'indice de réfraction n et le coefficient d'absorption α sont liés à la susceptibilité électrique du milieu par les relations :

$$\alpha(\omega) = -\frac{\omega}{n_0 c_0} \chi''(\omega) \approx \frac{\omega_0 \chi_0 \Gamma}{4 n_0 c_0} \frac{\omega}{(\omega_0 - \omega)^2 + (\frac{\Gamma}{2})^2} \tag{V.14}$$

$$n(\omega) = n_0 + \frac{\chi'(\omega)}{2n_0} \approx n_0 - \frac{\omega_0 \chi_0}{4n_0} \frac{(\omega - \omega_0)}{(\omega_0 - \omega)^2 + (\frac{\Gamma}{2})^2} \tag{V.15}$$

Une représentation graphique des équations (V.14) et (V.15) est visible sur la figure (V.5).

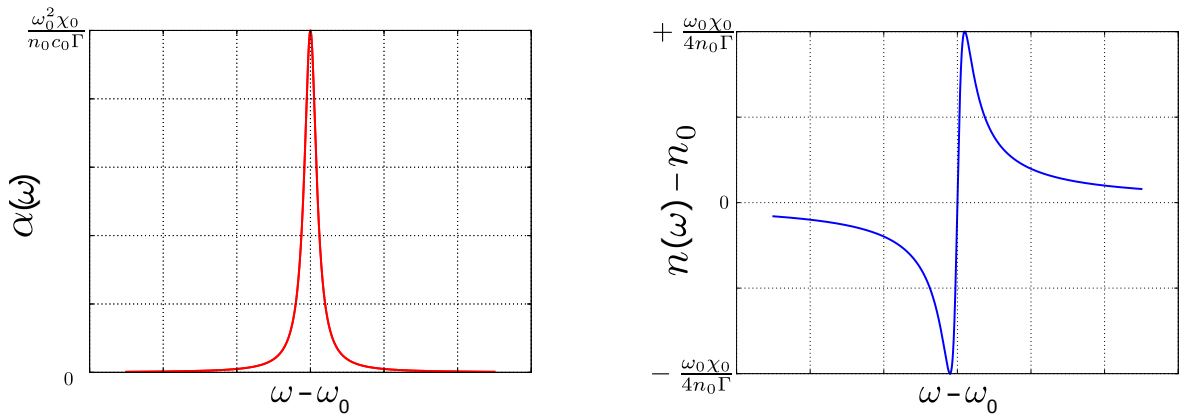

FIGURE V.5 – Courbe d'absorption et de dispersion théorique d'un milieu absorbant

Ainsi, lorsqu'une onde lumineuse traverse un milieu absorbant, son amplitude et sa phase sont déterminées par la réponse du matériau à la fréquence d'excitation.

Avec une détection hétérodyne, il est possible d'extraire la phase de la source lumineuse traversant le milieu absorbant et ainsi d'observer la dispersion du milieu. Si on considère un trou brûlé spectral, il est donc possible d'utiliser le signal dispersif engendré par la présence du trou brûlé spectral comme signal d'erreur pour stabiliser un laser sur le maximum de transmission du trou brûlé spectral.

Pente du signal de dispersion

Pour verrouiller le laser sur le trou brûlé spectral, sa courbe de dispersion est utilisée comme un discriminateur de fréquences pour le laser esclave. Être au centre du trou brûlé spectral revient à avoir une transmission maximale et une phase au point d'inflexion du signal dispersif. Plus la pente du discriminateur de fréquences sera grande, plus le laser restera verrouillé sur le centre du trou spectral de façon solide et durable, empêchant ainsi l'élargissement spectral du trou brûlé dû au sur-brûlage. Il est intéressant d'étudier la pente théorique de ce discriminateur de façon à connaître les paramètres dont elle dépend.

Nous avons vu précédemment que $n(\omega)$ et $\alpha(\omega)$ sont reliés à la susceptibilité électrique du matériau $\chi(\omega)$. En dérivant n par rapport à ω, on trouve que le maximum et le minimum du signal dispersif correspondent respectivement à $\omega = \omega_0 + \frac{\Gamma}{2}$ et $\omega = \omega_0 - \frac{\Gamma}{2}$.

$$n_{min} = n(\omega - \frac{\Gamma}{2}) = n_0 - \frac{\omega_0\chi_0}{4n_0\Gamma} \tag{V.16}$$

$$n_{max} = n(\omega + \frac{\Gamma}{2}) = n_0 + \frac{\omega_0\chi_0}{4n_0\Gamma} \tag{V.17}$$

L'amplitude du signal dispersif est :

$$\Delta n = n(\omega + \frac{\Gamma}{2}) - n(\omega - \frac{\Gamma}{2}) = \frac{\omega_0\chi_0}{2n_0\Gamma} \tag{V.18}$$

La pente du signal dispersif évaluée pour le point de verrouillage $\omega = \omega_0$, en dérivant $n(\omega)$ par

rapport à ω, vaut :

$$\left.\frac{dn(\omega)}{d\omega}\right|_{\omega=\omega_0} = \frac{\omega_0\chi_0}{n_0\Gamma^2} = \frac{2\Delta n}{\Gamma} \propto \frac{\alpha(\omega_0)}{\Gamma} \tag{V.19}$$

La pente du discriminateur de fréquence au point de verrouillage est proportionnelle au contraste et à l'inverse de la largeur à mi-hauteur du trou brûlé spectral. Ce sont donc des paramètres capitaux pour les performances de la stabilité du laser verrouillé sur le trou brûlé spectral.

V.4 Signal d'absorption et de dispersion d'un trou brûlé spectral obtenu par détection hétérodyne

Pour obtenir expérimentalement ce signal d'erreur, nous effectuons un battement entre les lasers maître et esclave doublés en fréquence à 580 nm (cf. figure (III.27)). Le laser maître est pré-stabilisé sur la cavité ultra-stable à une fréquence éloignée du centre du spectre d'absorption du cristal et le laser esclave est stabilisé sur le laser maître mais décalé en fréquence au centre du spectre d'absorption du cristal (cf. figure (V.6)).
Dans cette configuration, il est préférable d'avoir le laser maître totalement hors du spectre d'absorption et donc d'utiliser une photodiode avec une grande bande passante. Cependant, l'intensité du laser maître envoyée sur le cristal est d'environ 2 mW.cm^{-2}. Même si la fréquence du laser maître est située sur les ailes du spectre d'absorption, la puissance du laser maître brûle des trous spectraux larges très rapidement et sa transmission reste maximale. Les fluctuations de puissance ou de phase du laser maître dues à l'absorption et à la dispersion du cristal sont donc négligeables par rapport à celles du laser esclave, dont la fréquence est située au maximum d'absorption et dont la puissance de quelques μW ne permet pas de sur-brûler des trous spectraux rapidement.

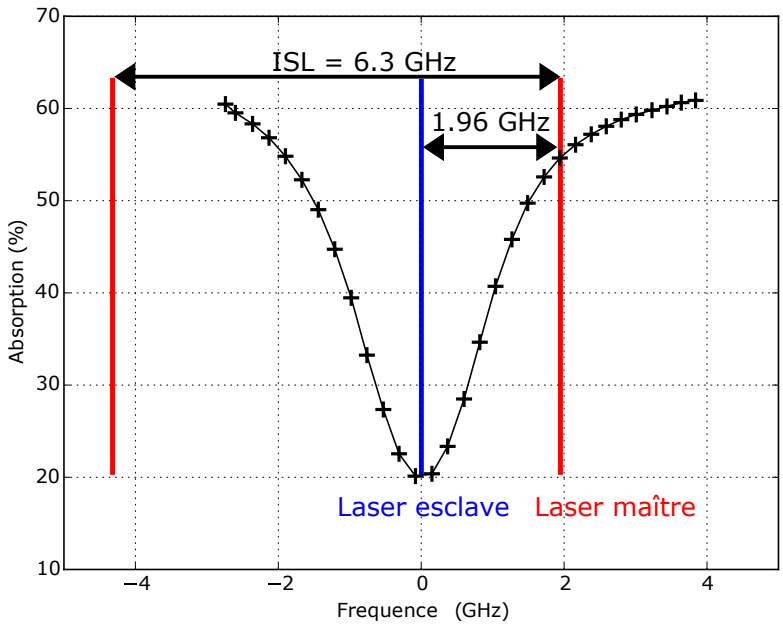

FIGURE V.6 – Configuration spectrale des lasers pour la détection hétérodyne de trou brûlé spectral à 580 nm

Deux battements optiques de fréquence 1.96 GHz sont reçus par deux photodiodes silicium rapides placées respectivement avant et après le cristal. Nous avons donc deux signaux de la forme :

$$S_{1,2} = Re[I_{1,2}e^{i(\omega t+\psi_{1,2})}] \tag{V.20}$$

La phase du premier signal est la phase due à la propagation de la lumière sans passer par le cristal ϕ_1, tandis que celle du deuxième signal est la phase due à la propagation de la lumière hors du cristal ϕ_2 à laquelle s'ajoute la phase accumulée en passant dans le cristal ϕ_{cristal}.

$$\phi_{\text{cristal}} = \frac{2\pi}{\lambda}\tilde{n}(\omega)z \tag{V.21}$$

L'indice du milieu est complexe puisque la lumière est absorbée sélectivement par le cristal d'épaisseur z.

$$\tilde{n}(\omega) = n'(\omega) + in''(\omega) \tag{V.22}$$

$n'(\omega)$ représente ici la dispersion et $n''(\omega)$ l'atténuation. On définit alors le coefficient d'absorption $\alpha(\omega)$ du cristal :

$$\alpha(\omega) = \frac{2\omega}{c}n'' \tag{V.23}$$

Les deux signaux sont finalement :

$$S_1 = I_1 e^{i(\omega t+\phi_1)} \tag{V.24}$$

$$S_2 = I_2 e^{-\alpha(\omega)z} e^{i(\omega t+\phi_2+\phi_{\text{cristal}})} \tag{V.25}$$

Les deux signaux sont divisés :

$$S = \frac{S_2}{S_1} = \frac{I_2}{I_1}e^{-\alpha(\omega)z}e^{i(\phi_2-\phi_1-\frac{2\pi}{\lambda}n'(\omega)L)} \tag{V.26}$$

La phase correspondant à la différence de phase accumulée sur la propagation des faisceaux hors du cristal peut être annulée en ajustant la position relative des photodiodes pour que $\phi_1 = \phi_2$. Ainsi la partie réelle est proportionnelle à l'absorption du trou brûlé spectral et la partie imaginaire à sa dispersion.

En effectuant ces opérations par une méthode numérique, nous obtenons le signal d'absorption et le signal de dispersion correspondant au passage de la lumière dans un trou brûlé spectral (cf. figure (V.7)). La pente du signal dispersif au point de verrouillage est de 0.23 mrad/Hz.

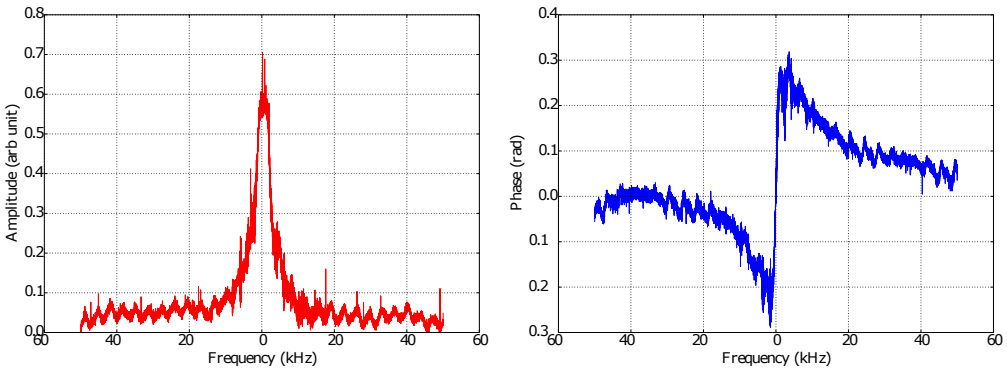

FIGURE V.7 – Absorption et dispersion d'un trou brûlé spectral par détection hétérodyne

V.5 Système d'asservissement numérique

Afin d'avoir un meilleur contrôle de l'expérience et d'obtenir un verrouillage numérique du laser esclave sur le trou brûlé spectral, un radio-logiciel, contrôlé par une interface graphique a été programmé. L'utilisation d'un système d'asservissement numérique présente quelques avantages pour stabiliser le laser sur le trou brûlé spectral. En effet, un asservissement analogique fait intervenir des mélangeurs de fréquence qui peuvent apporter une contribution de bruit AM/PM sur la détection. Même si une étude quantitative d'effets de ce type n'a pas été effectuée au cours de cette thèse, on peut s'attendre à ce que le traitement digital hétérodyne utilisé soit largement exempt de tels effets, comme par exemple dans l'article [117]. Mais surtout, un asservissement numérique permet de pouvoir faire une interrogation sur plusieurs trous brûlés spectraux en parallèle.

V.5.1 Description de la partie hardware

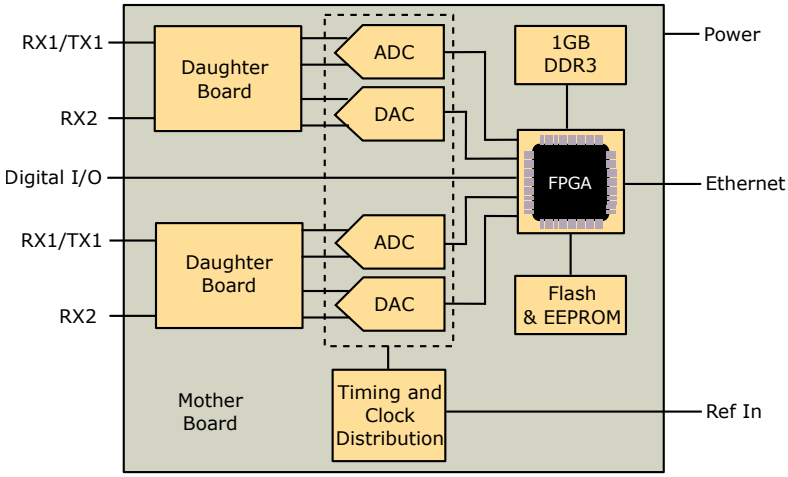

FIGURE V.8 – Plate-forme mère Ettus X310

Pour la partie hardware, nous utilisons une plate-forme de radio-logiciel Ettus Research USRP X310 appelée Ettus dans la suite de ce manuscrit (cf. figure (V.8)), composée de 2 voies de réception RX et de 2 voies de transmission TX. Les signaux sont digitalisés en entrée grâce à des convertisseurs Analogique-Digital (ADC) et sont convertis en signaux analogiques en sortie grâce à des Convertisseurs Digital-Analogique (DAC). Les convertisseurs DAC et ADC sont synchronisés avec le signal de référence à 10 MHz distribué dans le laboratoire. L'Ettus et le FPGA sont configurés avec une image via le bloc Flash & EEPROM.

La vitesse des convertisseurs est de 200 $\times 10^6$ échantillons/seconde, ce qui est insuffisant d'après le théorème de Shanon pour échantillonner un signal avec une fréquence supérieure à 100 MHz. Pour pouvoir digitaliser un signal à une fréquence supérieure à cette limite, l'ajout de cartes-filles sur la carte-mère de la plate-forme radio-logicielle permet d'effectuer une conversion du signal radio-fréquence en entrée/sortie, vers une bande de fréquences dite intermédiaire adaptée à la vitesse des convertisseurs ADC et DAC. Plusieurs types de cartes filles sont proposées, telles que, par exemple, deux cartes filles de type UBX comportant chacune une voie de récep-

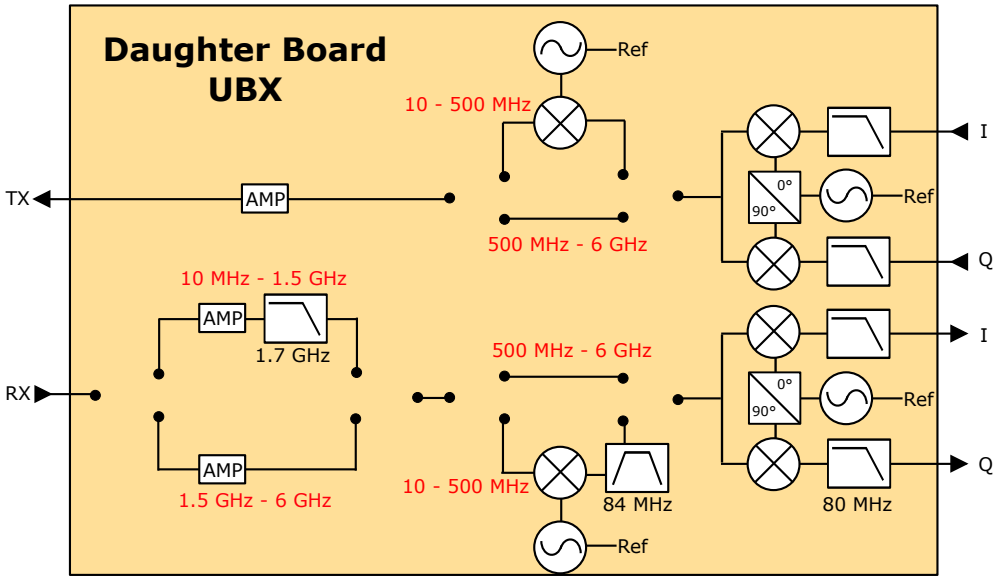

FIGURE V.9 – Carte fille UBX

tion et une voie de transmission (cf. figure (V.9)). On notera que selon les fréquences demandées en entrée et en sortie, des conversions sont faites entre les fréquences RF et les fréquences intermédiaires adaptées pour les convertisseurs DAC et ADC. D'autre part, on remarque que les signaux sont digitalisés sous la forme de signaux IQ (I pour In phase Q pour Quadrature). Le programme fonctionne donc avec des signaux complexes. On note également que la carte fille UBX fait intervenir des oscillateurs locaux verrouillés en phase sur une référence extérieure. Cependant, après utilisation initiale des cartes UBX dans notre application, nous avons observé que ces boucles de verrouillage de phase intégrées ne sont pas suffisamment performantes pour négliger les fluctuations de phase des oscillateurs locaux au niveau requis. On préfère donc utiliser des cartes de type Basic RX et Basic TX pour la réception et la transmission, ne comprenant pas d'oscillateurs locaux intégrés, et démoduler nous-mêmes les signaux analogiquement vers une bande de fréquences adaptée aux CAD à l'aide de circuits plus optimisés. En particulier, nous mettons en place un oscillateur local commun pour la démodulation des deux voies de réception (cf. figure (V.10)), avant d'envoyer les signaux RF sur le boîtier Ettus, contrairement aux cartes UBX qui comprennent un oscillateur local différent pour chaque voie de réception, ce qui n'est pas utile pour notre application et peut ramener un bruit de phase supplémentaire.

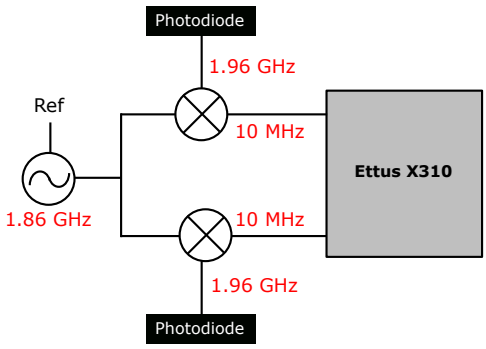

FIGURE V.10 – Schéma de la démodulation des signaux RF analogiques avant l'Ettus

Le FPGA effectue également une conversion digitale vers une gamme de fréquences adaptée

au traitement numérique des signaux pouvant être effectués par le processeur d'un ordinateur relié à l'Ettus via un câble ethernet dans notre cas.

V.5.2 Description de la partie Software

Présentation de Gnuradio

Les données numériques reçues par l'ordinateur ou émises par celui-ci sont traitées par un programme contrôlé par une interface graphique. Pour coder le programme qui utilise les données transmises depuis l'Ettus vers l'ordinateur via le port ethernet, nous utilisons un ensemble de programmes libres, utilisés pour les radio-logiciels, rassemblés dans une bibliothèque appelé Gnuradio. Chaque fonction est symbolisée par un bloc qui va lire les données numériques en entrée, appliquer une fonction de traitement du signal telle qu'une modulation, une FFT, une décimation, un filtrage etc... et écrire les nouvelles données en sortie du bloc. Chaque bloc est codé en C++ pour bénéficier d'une rapidité optimale et ainsi diminuer le temps de latence entre l'entrée et la sortie de chaque bloc. Le langage Python ou bien le langage C++ permettent de choisir les paramètres de chaque bloc, de les assembler et ainsi de créer une architecture permettant un traitement du signal complexe avec une vitesse d'exécution optimale.

Il est notamment possible de modifier les données de la majorité des blocs en temps réel, ce qui permet d'avoir une grande modularité. Une interface graphique utilisant la bibliothèque Qt a été créée en parallèle du programme afin d'interagir facilement avec celui-ci, et ainsi permettre à l'utilisateur de contrôler et monitorer les fréquences émises et reçues par l'Ettus, mais aussi de former le signal d'erreur et régler les paramètres de l'asservissement qui vont permettre de verrouiller le laser esclave sur le trou brûlé spectral. L'architecture du programme peut se décomposer en 6 parties (cf. figure (V.11)) qui seront, chacune, décrites en détail.

Les systèmes de Digital Up Conversion (DUC) et les Convertisseurs Digital-Analogique (DAC) intégrés aux FPGA permettent de translater la fréquence des signaux fournis vers des dizaines de MHz avant d'être convertis en signaux analogiques. A l'inverse, les signaux reçus sont convertis en signaux digitaux par les Convertisseurs Analogique-Digital (ADC), puis translatés vers une fréquence plus basse avec une Digital Down Conversion (DDC) pour obtenir un taux d'échantillonage τ_{ech} égale à 2×10^6 échantillons / seconde utilisé au sein du programme.

Le programme a été conçu dès l'origine dans la perspective de pouvoir interroger plusieurs trous brûlés en parallèle, ce qui complique un peu les choses mais devrait être bénéfique à moyen terme.

Génération de fréquence

La partie "génération de fréquence" (cf. figure (V.12)) permet de contrôler avec précision le signal RF envoyé vers le MAO en double passage de fréquence centrale 80 MHz et ainsi de choisir les fréquences du laser esclave envoyées vers le cristal.
Pour permettre l'envoi simultané de plusieurs fréquences pour une interrogation de plusieurs trous en parallèle, un vecteur source de 128 éléments, correspondant aux amplitudes des fré-

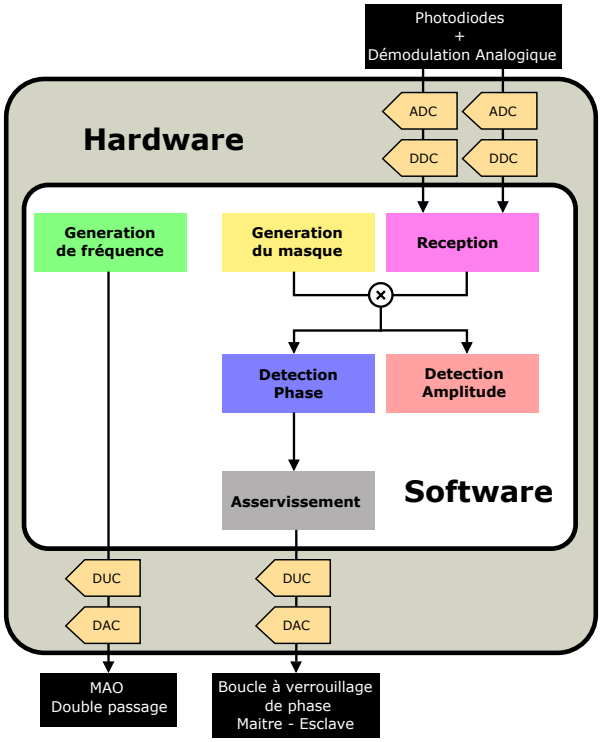

FIGURE V.11 – Organigramme du programme

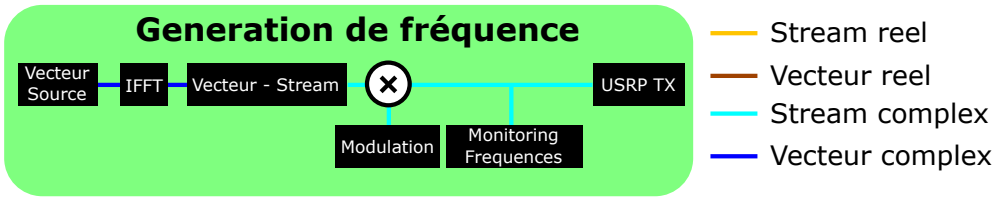

FIGURE V.12 – Organigramme de la partie génération de fréquence

quences +/- 500 kHz autour de la fréquence centrale du MAO est créée. Un ou plusieurs zéros sont remplacés par des uns pour les éléments du vecteur représentant les fréquences les plus proches des fréquences désirées. Ce vecteur correspond à la transformée de Fourier du signal RF voulu. On effectue la transformée de Fourier inverse (IFFT) de ce vecteur pour obtenir le signal RF complexe S_{source} dans le domaine temporel.

$$S_{\text{source}} = \sum_p \exp(2i\pi f_p \frac{k}{\tau_{ech}}) \tag{V.27}$$

où k est le numéro d'échantillon et p l'indice des composantes spectrales du signal. On note que, pour ne rien envoyer sur le MAO en double passage, il suffit de ne mettre que des zéros dans le vecteur source, ce qui est faisable à tout instant. On note aussi qu'on peut individuellement mettre en chaque point du vecteur une valeur complexe $\alpha_{\text{j}} \exp(\text{i}\phi_{\text{j}})$ qui permet de modifier l'amplitude et la phase relative de chaque composante. On peut ainsi paramétrer le temps de brûlage des trous spectraux, par exemple. Le bloc modulation permet d'effectuer des balayages en fréquence autour des fréquences choisies. Chaque composante se déplace alors en continu et en parallèle avec les autres. Cette fonction est par exemple utilisée pour obtenir les courbes de

spectroscopie des trous brûlés (cf. figure (IV.8)). Le signal généré par ce bloc est de la forme :

$$S_{mod} = \exp(i\phi_{\mathrm{mod,k}}) \tag{V.28}$$

avec deux niveaux d'incrémentation pour l'accumulateur de phase $\phi_{\mathrm{mod,k}}$:

$$\phi_{\mathrm{mod,k+1}} = \phi_{\mathrm{mod,k}} + \phi_{\mathrm{incr,k}} \tag{V.29}$$

$$\phi_{\mathrm{incr,k+1}} = \phi_{\mathrm{incr,k}} + \phi_{\mathrm{incr,incr}} \tag{V.30}$$

L'incrément ϕ_{incr} ajouté à chaque échantillon permet de paramétrer un offset de fréquence égal à $\Delta\mathrm{f} = \phi_{\mathrm{incr}}/(2\pi\tau_{\mathrm{ech}})$. Cela permet en particulier de démarrer le balayage en fréquence avant la fréquence centrale du trou brûlé spectral préalablement formé. Cet offset est calculé à l'aide des paramètres fixés par l'utilisateur via l'interface graphique tels que la gamme de fréquences interrogées autour du trou brûlé spectral ou le taux d'échantillonnage du programme. L'incrément $\phi_{\mathrm{incr,incr}}$ ajoute une phase supplémentaire à chaque échantillon et permet ainsi le balayage de la fréquence du signal de modulation (rampe linéaire de fréquence équivalente à une rampe quadratique de phase). Ce paramètre est également calculé en fonction des paramètres fixés par l'utilisateur tels que la vitesse de balayage, la gamme de fréquence balayée et le taux d'échantillonnage du programme. Le signal source et le signal de modulation sont multipliés de façon à obtenir le signal $\mathrm{S_{MAO}}$:

$$S_{\mathrm{MAO}} = \sum_p \exp[i(2\pi f_p \frac{k}{\tau_{ech}} + \phi_{\mathrm{mod}})] \tag{V.31}$$

Ce signal est monitoré dans le domaine spectral via l'interface graphique. Après avoir été converti en signal analogique autour de 80 MHz par l'Ettus (DUC + DAC), ce signal est envoyé vers le MAO en double passage. On obtient ainsi un peigne de fréquences dont on peut paramétrer le nombre de dents, l'amplitude de chaque dent, la présence d'une modulation ou non, ainsi que la gamme de fréquences balayées et la vitesse de balayage à tout instant. Cette partie du programme permet donc d'interroger ou de brûler le trou spectral en son centre, ou bien de faire de la spectroscopie en balayant la fréquence du signal envoyé autour du trou brûlé spectral. Nous reviendrons plus tard sur une subtilité lors de l'envoi de plusieurs fréquences sur un MAO en double passage.

Reception

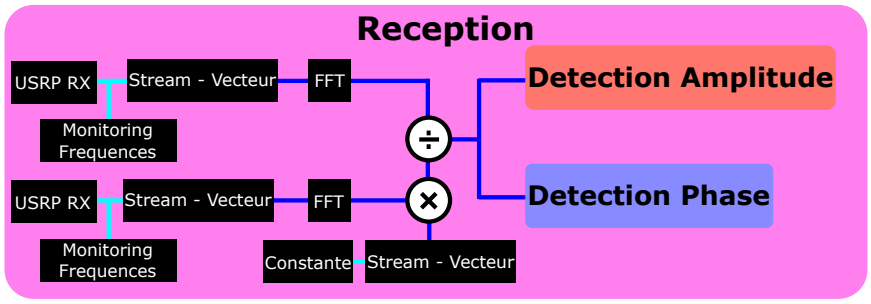

FIGURE V.13 – Organigramme de la partie réception

La partie "Reception" (cf. figure (V.13)) traite les deux signaux issus des battements optiques entre les deux lasers reçus par les deux photodiodes placées avant et après le cristal

Eu^{3+} : Y_2SiO_5 (cf. figure (III.26)), convertis en signaux digitaux complexes par l'Ettus :

$$S_{\text{avant}} = \sum_p \exp[i(2\pi f_p \frac{k}{\tau_{ech}} + \phi_{\text{mod}} + \phi_{\text{prop,avant}})] \tag{V.32}$$

$$S_{\text{après}} = \sum_p \exp[-\alpha(\omega_p)L] \exp[i(2\pi f_p \frac{k}{\tau_{ech}} + \phi_{\text{mod}} + \phi_{\text{prop,après}} + \phi_{\text{SHB}})] \tag{V.33}$$

Ces signaux, reçus dans le domaine temporel, sont échantillonnés à 2×10^6 échantillons / seconde par l'Ettus. Chaque signal est décomposé en une suite de vecteurs de 128 éléments, puis converti dans le domaine spectral avec une transformée de Fourrier effectuée 15625 fois par seconde. Après une division des deux vecteurs dans le domaine spectral, on obtient le signal suivant :

$$S_{\text{div}} = \frac{S_{\text{après}}}{S_{\text{avant}}} = \sum_p \exp[-\alpha(\omega_p)L] \exp[i(\phi_{\text{prop,après}} - \phi_{\text{prop,avant}} + \phi_{\text{SHB}})] \tag{V.34}$$

Les vecteurs S_{div} sont envoyés vers la détection d'amplitude et la détection de phase avec un taux d'échantillonnage de 15625 échantillons / seconde. En dehors des fréquences auxquelles le battement est formé entre les deux lasers, la division des deux transformées de Fourrier correspond à du bruit car il n'y a en principe pas de signal à ces fréquences, ni sur la photodiode placée avant le cristal, ni sur celle placée après. La division dans le domaine spectral résulte donc en une valeur de "0/0" indéterminée, au bruit près. On ne garde donc que les composantes spectrales correspondant aux fréquences des battements optiques en multipliant ces vecteurs par un masque généré par une autre partie du programme.

Génération du masque

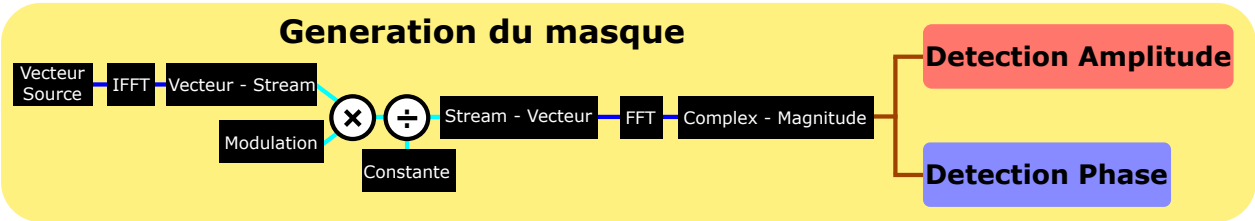

FIGURE V.14 – Organigramme de la partie génération du masque

Comme la partie génération de fréquence, le masque est créé à partir d'un vecteur source de 128 éléments, composé de zéros et de uns aux fréquences correspondant aux battements reçus par les deux photodiodes. Après une transformée de Fourrier inverse, le signal dans le domaine temporel peut être également éventuellement modulé. Parce que la lumière du laser esclave passe à travers le MAO en double passage utilisant l'ordre -1, la fréquence des battements sera balayée avec une vitesse et une amplitude doubles. Le signe de la modulation sera inversé par rapport à la modulation du signal généré pour le MAO. De façon à ce que le masque suive la fréquence des battements, la vitesse de modulation sera multipliée par -2 par rapport à celle de la partie génération de fréquences. Le signal est ensuite à nouveau découpé en vecteur de 128 éléments et repassé dans le domaine spectral grâce à une transformée de Fourrier. On ne garde que le module des vecteurs complexes ainsi formés.
On obtient donc un masque modulé de telle façon à suivre les fréquences des battements reçus par les deux photodiodes, dans le but d'éliminer le bruit amené par les transformées de Fourrier aux fréquences autres que celles des battements entre les deux lasers.

Détection d'amplitude

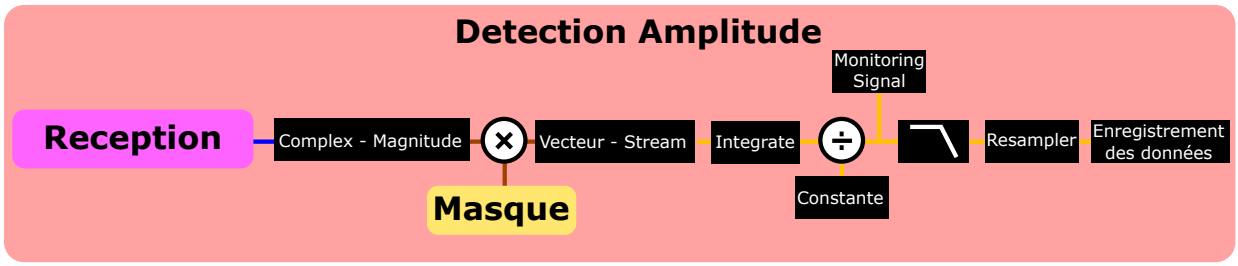

FIGURE V.15 – Organigramme de la partie détection d'amplitude

Le signal issu de la partie réception est traité de façon à ne garder que le module du vecteur complexe de 128 éléments. On obtient alors le signal S_{amp} :

$$S_{\text{amp}} = \sum_p \exp[-\alpha(\omega_p)L] \tag{V.35}$$

On élimine le bruit des composantes spectrales non nécessaires en multipliant ce vecteur par le masque. On fait la somme des éléments de chaque vecteur qui sera composé de valeurs non nulles seulement aux fréquences d'interrogations et de zéros sinon. Cette somme permet d'ajouter les signaux d'absorption de chaque composante spectrale. On obtient ainsi l'absorption de la lumière du laser esclave par le cristal 15625 fois par seconde. On divise ce signal par une constante de façon à renormaliser convenablement l'absorption. Le signal obtenu est monitoré via l'interface graphique et ensuite filtré passe-bas. Le signal est enfin re-échantilloné avec un taux d'échantillonage de 50 avant d'être sauvegardé, de façon à ne pas surcharger trop rapidement la mémoire de l'ordinateur.
La partie détection d'amplitude n'est pas utile au verrouillage du laser sur le trou brûlé spectral dans la méthode hétérodyne utilisée ici. Elle permet néanmoins de monitorer le ou les trou(s) brûlé(s) spectral(aux) lorsqu'on fait de la spectroscopie. On note que ce type de détection est possible en n'envoyant qu'un seul laser sur le trou brûlé spectral et en utilisant deux photodiodes couplées DC, comme cela a été fait pour certaines expériences au cours de cette thèse, notamment la spectroscopie de trous brûlés étroits (cf. figure (IV.8)).

Détection de la phase

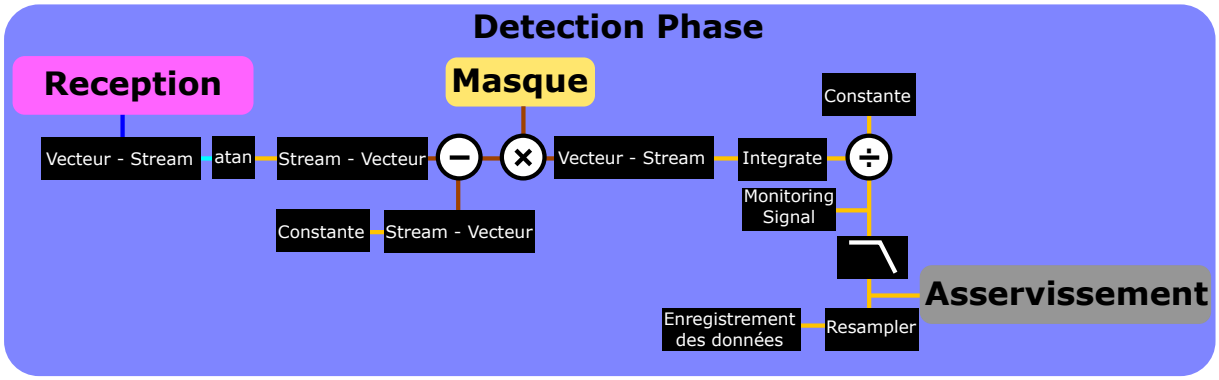

FIGURE V.16 – Organigramme de la partie détection de phase

L'argument du vecteur complexe issu de la partie réception est cette fois-ci extrait à l'aide de la fonction atan2 provenant du langage C++. Cette fonction dérive de la fonction arc tangeante mais contrairement à la fonction atan, elle garde l'information du quadrant et permet d'obtenir la phase entre $-\pi$ et π. Le signal obtenu est alors :

$$S_{\text{phase}} = \sum_p \phi_{\text{prop,après}}(\omega_p) - \phi_{\text{prop,avant}}(\omega_p) + \phi_{\text{SHB}}(\omega_p) \tag{V.36}$$

Une constante est soustraite de façon à compenser numériquement la différence de phase $\phi_{\text{prop,après}} - \phi_{\text{prop,avant}}$. Les mêmes opérations que pour la détection d'amplitude sont faites ici et on obtient à la fin la dispersion de la lumière du laser esclave par le cristal 15625 fois par seconde. Ce signal est également monitoré via l'interface graphique et sauvegardé.
On ne peut compenser exactement le déphasage $\phi_{\text{prop,après}} - \phi_{\text{prop,avant}}$ numériquement uniquement si une seule fréquence du laser esclave est envoyée sur le cristal. Autrement, la différence de phase de propagation des deux faisceaux n'est pas exactement égale pour les différentes composantes spectrales du battement. On peut néanmoins jouer sur la position relative des deux photodiodes pour compenser le déphasage causé par la différence de chemin optique hors du cristal pour toutes les fréquences du battement. On pourrait également le faire numériquement en ajustant la phase de chaque composante spectrale, en fonction des différences de marche de propagation entre les deux photodiodes.

Asservissement

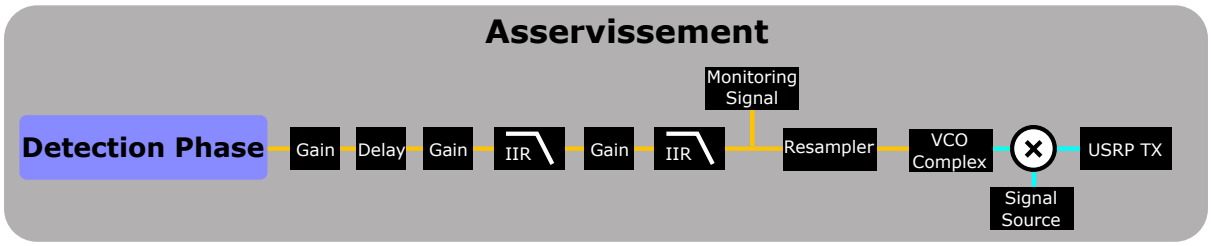

FIGURE V.17 – Organigramme de la partie asservissement

La phase, correspondant au signal dispersif du ou des trou(s) brûlé(s) spectral(aux), est envoyée vers un asservissement numérique PI_2. L'asservissement comprend deux filtres passe-bas à réponse impulsionnelle infinie dont on peut faire varier la fréquence de coupure via l'interface graphique et deux gains indépendants pour chaque filtre. Le signal de correction ainsi formé module un VCO numérique complexe dont on peut choisir la fréquence centrale.
Ce signal est envoyé vers une deuxième voie de transmission de l'Ettus et sert d'oscillateur local à la boucle de verrouillage de phase décalée en fréquence entre le laser maître, et le laser esclave. Lorsque le verrouillage sur le trou brûlé spectral est désactivé (gain d'un des deux filtres nuls), le signal émis par l'Ettus n'est pas modulé. Il est seulement généré par un signal source à une fréquence constante égale à la différence de fréquences entre les deux lasers. La boucle à verrouillage de phase asservit dans ce cas le laser esclave sur le laser maître uniquement, lui-même étant stabilisé sur la cavité ultra-stable.
Si le verrouillage sur le trou brûlé spectral est actif (gains des filtres non nuls), le signal envoyé par l'Ettus est modulé par le signal de correction issu de la dispersion du trou brûlé spectral. Le laser esclave est alors asservi sur le trou brûlé spectral pour les basses fréquences de Fourier correspondant à la bande passante du verrouillage numérique et sur le laser maître stabilisé sur la cavité ultra-stable pour les fréquences de Fourier supérieures.

V.6 Performance du verrouillage sur trou brûlé spectral

V.6.1 Avantages de la méthode hétérodyne pour les trous brûlés spectraux

Plusieurs raisons poussent à réaliser une détection hétérodyne des trous brûlés spectraux plutôt qu'une détection homodyne.
La détection hétérodyne sur la phase est insensible, pour l'essentiel, aux fluctuations de puissance du laser d'interrogation. De même, le point de verrouillage du signal d'erreur est insensible aux fluctuations éventuelles de profondeur ou de largeur du trou. D'autre part, contrairement à une détection homodyne, la détection hétérodyne permet d'obtenir un signal d'erreur sans constamment interroger les cotés du trou brûlé spectral et ainsi de diminuer l'élargissement spectral dû à une interrogation continue du trou brûlé.
Par ailleurs, la détection hétérodyne sur les trous brûlés en régime continu permet de maintenir le laser d'interrogation toujours au centre du trou. En principe, le trou brûlé peut être interrogé beaucoup plus longtemps sans "sur-brûler" et ainsi dégrader la stabilité du laser verrouillé en fréquence.

V.6.2 Comparaison cavité - SHB

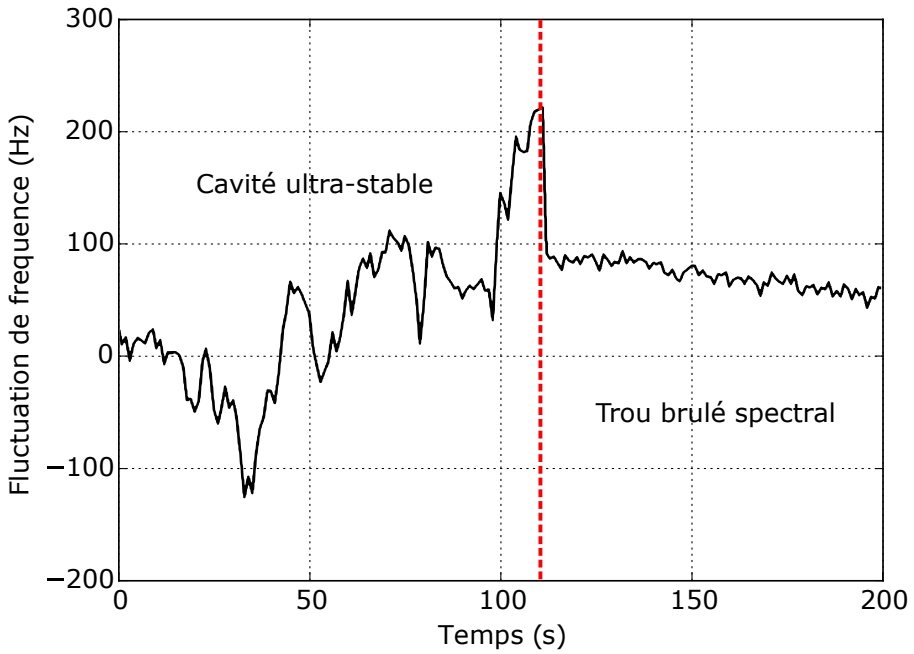

FIGURE V.18 – Comparaison Cavité - Trou brûlés spectral

Pour effectuer cette mesure, le laser esclave est tout d'abord pré-stabilisé. On mesure sa stabilité en fréquence en mesurant la fréquence absolue du battement avec une dent du peigne de fréquences présent au laboratoire. Un trou brûlé spectral est créé dans le cristal $Eu^{3+} : Y_2SiO_5$. Au bout de 110 secondes de mesure, le verrouillage sur le trou brûlé spectral est activé via le programme. La puissance envoyée sur le cristal pour interroger le trou brûlé est de 85 nW

pour éviter un sur-brûlage trop rapide. On observe une nette diminution des fluctuations de fréquence du laser esclave, notamment des excursions d'une centaine de Hz ayant lieu en quelques secondes (cf. figure (V.18)). Nous avons vu précédemment que ces fluctuations étaient dues aux fluctuations de la cavité ultra-stable causées par des variations de la force qu'exerce la monture sur la cavité ultra-stable. La dérive observée de 40 Hz en 90 secondes peut être expliquée par une variation de la température du cristal de 2.2 mK, ce qui est compatible avec les données expérimentales. On observe par ailleurs sur le battement avec le peigne une fluctuation de la fréquence synchronisée avec le cycle du cryocooler avec une amplitude d'environ 100 Hz. Cette fluctuation correspondrait à une fluctuation de la température du cristal de 5.6 mK. Des efforts supplémentaires devront donc être menés pour améliorer la stabilité thermique du cristal et/ou utiliser des méthodes de compensation. Par exemple, en utilisant le fait que les sensibilités à la pression et à la température de la fréquence d'un trou brûlé spectral sont de signe contraire, il est possible de rendre la sensibilité thermique de la fréquence des trous brûlés spectraux négligeable au premier ordre [62].

V.6.3 Vitesse de dégradation du trou brûlé spectral

Outre l'élargissement du trou spectral par excitation non résonante, celui-ci est dégradé par sur-brûlage lors de son interrogation. Malgré l'emploi d'une méthode hétérodyne pour verrouiller le laser esclave, qui normalement lui permet de rester au centre du trou brûlé spectral, la faible bande passante du verrouillage numérique, ainsi que le bruit de détection, ne permettent pas au laser d'interrogation de rester parfaitement au centre du trou brûlé. En effet, le bruit de détection est converti, via la pente du discriminateur, comme une fluctuation de fréquence sur le laser d'interrogation. Le laser d'interrogation interroge donc malgré tout les cotés du trou brûlé spectral et cause finalement son élargissement au fur et à mesure de son interrogation en plus de l'élargissement par excitation non résonante (cf. figure (V.19)). Plus la puissance du laser d'interrogation est élevée, plus cet effet sera rapide. Mais à l'inverse, plus la puissance du laser d'interrogation est faible, plus le bruit sur la détection est élevé. Il faut donc réduire d'une part le bruit sur la détection et, d'autre part, d'augmenter la bande-passante de l'asservissement sur le trou brûlé spectral.

V.6.4 Paramètres limitant la stabilité du laser verrouillé sur trou brûlé spectral

Bande-passante de l'asservissement numérique

La bande-passante de l'asservissement du laser esclave sur un trou brûlé spectral ne peut être supérieure à sa largeur à mi-hauteur. C'est pourquoi les hautes fréquences de Fourier restent stabilisées par la cavité ultra-stable. La bande-passante maximale de l'asservissement du laser sur le trou brûlé spectral est actuellement limitée à 10 Hz. Cette faible bande-passante s'explique par la vitesse du programme comportant de nombreux blocs, notamment 5 transformées de Fourier de vecteurs comportant 128 éléments 15625 fois par seconde. Cette vitesse de calcul ne permet pas d'avoir une bande passante supérieure à 10 Hz, ce qui limite les performances de l'asservissement (cf. figure (V.20)).
Des mesures de bandes-passantes ont été réalisées en l'absence de tout calcul, en reliant simplement une entrée et une sortie de l'Ettus. Un delai minimum de 2 ms à été trouvé entre les

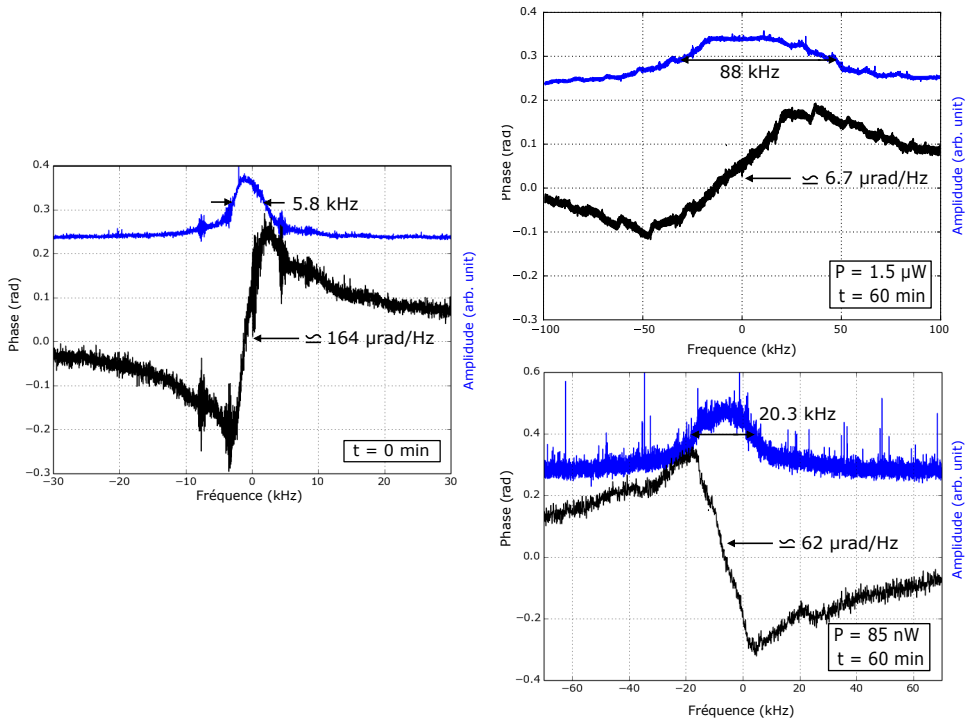

FIGURE V.19 – Élargissement du trou brûlé spectral et conséquence sur la pente du signal d'erreur

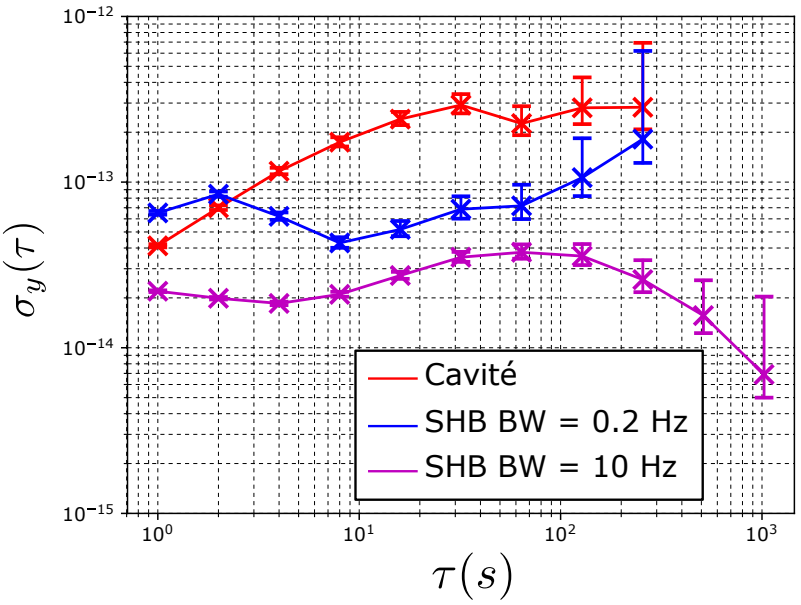

FIGURE V.20 – Stabilité relative de fréquence du laser en fonction de la bande passante de l'asservissement (BW) sur le trou brûlé spectral

données entrantes et sortantes, ce qui correspond à une bande passante maximale de 500 Hz. On pourrait donc augmenter grandement la bande-passante du verrouillage numérique en codant directement le FPGA avec un langage de programmation type VHDL. Il existe également des fonctions expérimentales RFNoC développées par Ettus qui devraient permettre de mettre

la quasi-totalité des traitements décrits sur le FPGA lui-même, sans coder de VHDL, ce qui constitue un travail à mener dans le futur.

Dégradation du trou brûlé spectral

La dégradation du trou brûlé spectral au fur et à mesure de son interrogation dégrade la stabilité du laser asservi. En effet, la référence de fréquence devient de plus en plus large. La mesure de la figure (V.21) montre l'écart-type d'Allan de la stabilité du laser verrouillé sur un trou brûlé spectral juste après sa formation et au bout de 7h40 d'interrogation continue.

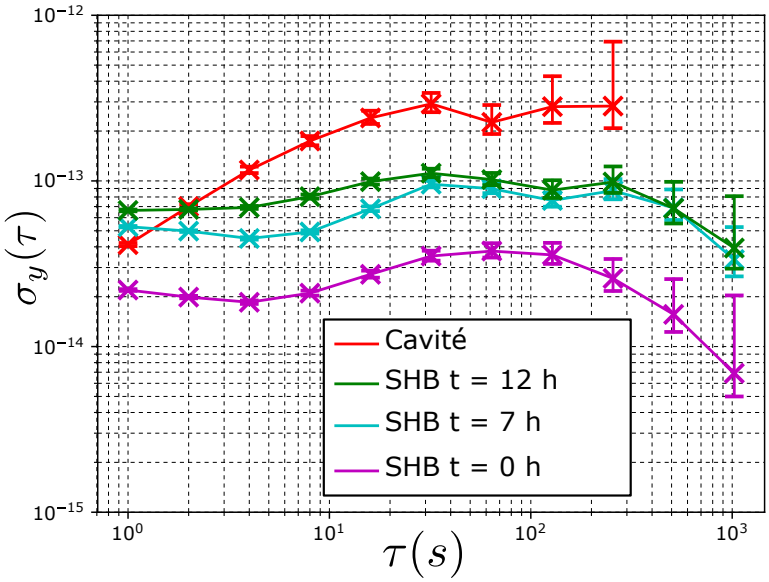

FIGURE V.21 – Stabilité relative de fréquence du laser en fonction du temps d'interrogation du trou brûlé spectral

V.7 Réduction du bruit sur la détection

Outre la pente du discriminateur de fréquence, la stabilité du laser asservi en fréquence sur le trou brûlé spectral est déterminée par le bruit de détection. Nos résultats semblent être limités par rapport au potentiel d'un verrouillage sur un trou brûlé fin. C'est pourquoi des efforts ont été faits pour réduire ce bruit de détection.

V.7.1 Stabilisation de la puissance des deux lasers

Les photodetecteurs et les mixeurs sont des sources importantes de bruit pour la détection, notamment à cause du bruit de conversion entre phase et amplitude. Il est dépendant des fluctuations de puissance du laser maître, et des fluctuations de puissance du laser esclave. Ce bruit se retrouvera alors directement sur le signal dispersif utilisé comme discriminateur de fréquence. En mesurant le RIN des deux lasers doublés en fréquence envoyés sur le cristal pour former le battement, nous remarquons que les résultats obtenus (cf. figure (V.22)) pourraient expliquer une partie du bruit de détection. C'est pourquoi un asservissement de puissance a

été ajouté sur le laser maître et le laser esclave, avant de former le battement utilisé pour la détection hétérodyne (cf. figure (III.27)).

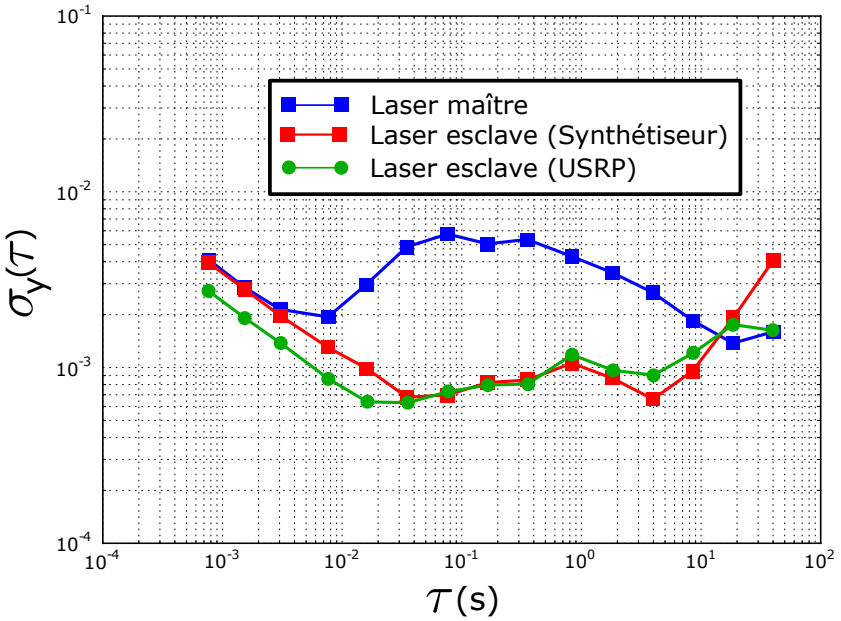

FIGURE V.22 – Ecart type d'Allan avec recouvrement du bruit d'intensité relative des deux lasers envoyées sur le cristal

Le bruit d'intensité du laser esclave est mesuré dans deux configurations réalisées successivement : Le MAO en double passage est contrôlé soit par un synthétiseur, soit par l'URSP.

V.7.2 Effet des fluctuations de l'alignement optique

Les fluctuations d'alignement optique dues à des vibrations mécaniques ou bien à des fluctuations thermiques des optiques et de la table optique sur laquelle est placée l'expérience, peuvent être la source de fluctuations de phase sur le signal dispersif du trou brûlé spectral. En effet, le battement entre les deux lasers à une fréquence de 1.96 GHz, soit une longueur d'onde de 15 cm, ce qui correspond à une variation de phase de 2π. On en déduit la sensibilité de la phase du battement aux variations de la longueur du chemin optique égale à 41.9 rad.m^{-1}. La quasi-totalité de l'expérience est en espace libre, ce qui correspond à une dizaine de mètres de propagation. On en déduit la variation d'angle qui induit une variation de phase correspondant à l'amplitude du bruit de phase observé sur le signal dispersif de la figure (V.7) de 0.03 radian :

$$\Delta\theta = 0.7° \tag{V.37}$$

Le cryocooler étant une source importante de vibrations, il a été déplacé sur une table optique séparée afin de ne pas transmettre de vibrations à la table optique principale. De plus, en couplant la lumière des deux faisceaux optiques dans une fibre optique de 15 cm placée juste avant la détection, les fluctuations de l'alignement sont grandement diminuées et le mode-matching spatial entre les deux faisceaux augmenté.

V.8 Multi-trou brûlé spectral

V.8.1 Génération d'un peigne de fréquences dans un MAO en double passage

Générer un peigne de fréquences paramétrable à l'aide d'un MAO en double passage n'est pas si trivial. Générer un peigne de fréquences en simple passage ne pose pas de difficultés majeures. La fonction de réponse du MAO sur l'ordre 1 de diffraction est de la forme :

$$E_{out} = \alpha_1 g(t) E_{in} \tag{V.38}$$

où α_1 est l'efficacité de diffraction sur l'ordre 1, g(t) est le signal de modulation RF appliqué au signal optique et E_{in} le champ optique incident. En alimentant le MAO avec un signal RF comportant plusieurs fréquences de la forme :

$$f(t) = \sum_p a_p \cos(2\pi f_p t + \phi_p) \tag{V.39}$$

le champ électrique du faisceau optique diffracté à l'ordre 1 en sortie du MAO sera bien :

$$E_{out} = \alpha_1 \sum_p a_p \cos(2\pi f_p t + \phi_p) E_{in} \tag{V.40}$$

Cependant, pour un MAO double passage, le résultat est différent, puisque la lumière peut être diffractée par deux fréquences différentes aux passages aller et retour. Sur le spectre du battement optique entre les deux lasers doublés en fréquence après le MAO en double passage, toutes les composantes spectrales résultant des combinaisons de fréquences RF apparaissent, ce qui ne permet pas un contrôle optimal.

Pour un MAO double passage, la fonction de réponse est de la forme [118] :

$$E_{out} = \alpha_1^2 g^2(t) E_{in} \tag{V.41}$$

Ainsi, pour générer un peigne de fréquence dont on peut contrôler les paramètres tels que les fréquences f_n et les amplitudes a_n des dents, autour de la fréquence centrale du MAO f_0, de la forme :

$$f(t) = \sum_p a_p \cos[2\pi(2f_0 + f_p) + \phi_p] \tag{V.42}$$

il faut faire la racine du module et diviser par deux la phase de chaque échantillon. La partie "génération de fréquence" du programme (cf. figure (V.11)) a été modifiée (cf. figure (V.23)) dans le but de générer un signal RF permettant la formation d'un peigne de fréquences en sortie du MAO en double passage.

En générant un peigne de fréquences étendu sur 2 MHz ou plus, on observe un effet de filtrage en fréquence du MAO. C'est à dire que l'efficacité de diffraction du MAO pour les les dents du peigne les plus excentrées en fréquence par rapport à la fréquence centrale du MAO est réduite. Nous corrigeons donc l'amplitude de chaque fréquence pour obtenir un peigne dont l'amplitude de chaque composante spectrale est égale en multipliant dans le programme le vecteur représentant le peigne par un masque adapté.

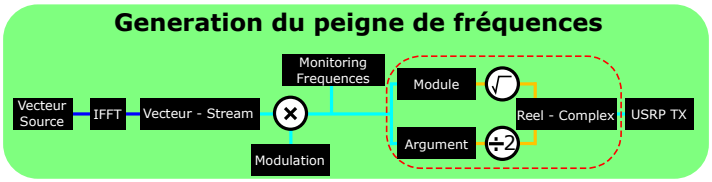

FIGURE V.23 – Organigramme pour la génération du peigne de fréquences en sortie du MAO double passage

V.8.2 Potentiel d'une interrogation multi-trous brûlés spectraux

Le but d'interroger plusieurs trous brûlés spectraux en parallèle est d'augmenter la pente du signal dispersif qui est utilisée pour verrouiller le cristal. Plus cette pente sera grande, plus le laser restera verrouillé au centre du trou brûlé spectral et limitera ainsi la dégradation de leurs largeurs homogènes. A terme, le bruit de détection amené par les photodiodes elles-mêmes peut devenir non négligeable. Or, le bruit de grenaille des photodiodes est proportionnel à $\sqrt{N}$ où N est le nombre de photons incidents sur la photodiode. En interrogeant plusieurs trous brûlés simultanément, on multiplie le nombre de photons captés par la photodiode par le nombre de trous brûlés spectraux interrogés simultanément. L'amplitude du signal est multipliée par N. Le rapport signal sur bruit est donc multiplié par $\sqrt{\mathrm{N}}$. Cette méthode permet d'envoyer une intensité optique plus grande sans augmenter la dégradation de la largeur homogène des trous brûlés puisque la puissance optique dans chacun des trous reste assez faible pour ne pas accélérer le sur-brûlage. La limite imposée par le bruit de grenaille diminuera alors comme la racine carrée du nombre de trous spectraux.

Les mesures de stabilité avec ce type de détection n'ont pas encore pu être effectuées en raison de la réparation puis finalement de la construction d'une nouvelle cavité ultra-stable chez le fabricant pour la pré-stabilisation du laser, ce qui a pris plusieurs mois. Néanmoins, ces premiers résultats de stabilité du laser en fréquence lorsqu'il est asservi sur un trou brûlé spectral sont prometteurs.

V.9 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons vu que la nature des trous brûlés impose des contraintes expérimentales qu'il faut prendre en compte pour ne pas dégrader trop rapidement la stabilité du laser, notamment à cause du sur-brûlage. Une stabilité de quelques 10^{-14} a été atteinte à une seconde de temps d'intégration, ce qui est bien supérieur aux performances ultimes de la stabilisation d'un laser sur trou brûlé spectral. Néanmoins, ces premiers résultats sont encourageants pour le projet. L'interrogation multi-trous pourrait apporter également une amélioration potentielle au niveau de la stabilité du laser asservi et une diminution du bruit de détection qu'il faudra étudier.

V.10 Perspectives

Nous avons construit et fait marché ici un premier système qui fonctionne de bout en bout mais qui reste largement perfectible.
Des efforts doivent être fournis sur la partie programmation en augmentant la vitesse de calcul du programme, ce qui permettra augmenter la bande passante de l'asservissement numérique. Il est en effet possible de coder directement les fonctions voulues, notamment les transformées de Fourier sur le FPGA, soit par RFNoC actuellement développé par Ettus, soit par le langage VHDL, ce qui accélérera grandement la vitesse de calcul et améliorera ainsi la stabilité en fréquence du laser.
Il paraît plus difficile de diminuer la largeur homogène des trous brûlés spectraux. Néanmoins, un meilleur design de la chambre d'expérience pourrait permettre d'obtenir une largeur homogène plus fine et ainsi obtenir un signal dispersif avec une pente plus grande. L'ajout d'un système permettant de contrôler une pression d'hélium serait aussi un plus pour pouvoir se placer au point (P,T) magique où les fluctuations de pression et de température se compensent. La monture en cuivre devrait être remplacée par une monture dans un matériau tel que l'acier ou l'invar de façon à effectuer un filtrage passif efficace des fluctuations de température transmises depuis le doigt froid du cryocooler jusqu'au cristal. C'est dans ce but qu'un second cryocooler de type tube pulsé a été mis en place à la fin de cette thèse.
Il serait également un atout de pouvoir descendre à une température plus basse encore, en utilisant un cryocooler à dilution pouvant atteindre des températures de quelques mK. Cela réduirait l'effet des phonons dans le cristal et permettrait ainsi de réduire davantage la largeur homogène des trous brûlés spectraux. C'est pourquoi le second cryocooler dispose d'une option dilution si cela s'avère nécessaire.

Conclusion

Le premier chapitre de ce manuscrit a résumé l'évolution de la mesure du temps durant ce dernier siècle et a mis en évidence une des limites actuelles d'une nouvelle génération d'horloges dont les performances rivalisent déjà avec les étalons primaires de fréquences : Les horloges à réseau optique. Dans cette nouvelle génération d'horloges, une des limites sur la stabilité est en effet le bruit de fréquence court terme du laser "horloge" qui sonde la transition étroite entre deux niveaux d'énergie d'un ensemble d'atomes piégés dans un réseau optique. Ces horloges ont actuellement une exactitude proche des horloges à ions et une stabilité meilleure car le nombre d'atomes interrogés simultanément est beaucoup plus important. Augmenter la stabilité court terme du laser horloge permet de diminuer cette limitation et ainsi d'atteindre une stabilité limitée par leur limite fondamentale qui est le bruit de projection quantique.
Le second chapitre a décrit la méthode PDH, actuellement utilisée sur ces horloges pour stabiliser les lasers d'interrogation et montre la limite fondamentale de ce type de dispositif sur la stabilité court terme du laser horloge, causée par le bruit thermique à température ambiante de la surface des miroirs de la cavité sur laquelle est asservi le laser. Une autre approche est également décrite pour asservir le laser, basée sur les largeurs homogènes d'ions terres-rares remarquablement étroites lorsque ces ions sont dopés dans des cristaux aux propriétés particulières. Une telle approche a commencé à être évaluée à un niveau métrologique par le NIST en 2011. Ce type de dispositif pourrait éventuellement dépasser en terme de stabilité la limite fondamentale des cavités ultra-stables et les remplacer à terme. On justifie également l'utilisation du cristal Eu^{3+} : Y_2SiO_5 pour obtenir une référence de fréquence aussi fine que possible dont la largeur à mi-hauteur théorique est limitée à 122 Hz.
Le troisième chapitre décrit la construction de l'expérience en justifiant le choix des composants critiques pour réaliser un laser asservi sur trou brûlé spectral.
Le quatrième chapitre montre les résultats de l'étude spectroscopique des trous brûlés spectraux obtenus et met en évidence l'influence de différents paramètres lors du protocole de brûlage du trou spectral sur sa finesse et son contraste. La largeur des trous brûlés obtenus est de 3.2 kHz, ce qui est proche des meilleures performances mondiales sur ce type de cristal. L'influence de l'environnement du cristal sur le déplacement spectral des trous brûlés spectraux est montrée, afin d'évaluer l'impact sur la stabilité du laser asservi et les mesures à prendre pour améliorer le dispositif.
Le cinquième et dernier chapitre présente la mise en place, ainsi que les premiers résultats obtenus en terme de stabilité court terme d'une méthode d'asservissement originale du laser sur un trou brûlé spectral. Cette méthode, basée sur une détection hétérodyne est prometteuse puisqu'elle permet potentiellement de réduire la vitesse d'élargissement des trous brûlés spectraux, causée par leur interrogation, par rapport à une méthode homodyne, tout en fournissant un très bon rapport signal à bruit. Le chapitre se termine par la mise en place d'une interrogation simultanée multi-trous qui pourrait améliorer le bruit de détection et ainsi diminuer son effet sur la stabilité du laser.

Les stabilités actuelles des lasers asservis sur trous brûlés spectraux ne permettent pas encore

de remplacer les cavités ultra-stables dans les horloges optiques. En effet, la meilleure stabilité court terme de ce type de dispositif obtenue à ce jour est de 6×10^{-16} avec un temps d'intégration compris entre 2 et 8 secondes [62]. D'autres solutions sont également étudiées pour augmenter la stabilité des cavités ultra-stables soit en augmentant leur longueur, soit en agrandissant le diamètre des modes, soit en abaissant la température de la cavité ou encore en utilisant des matériaux cristallins pour la construction des miroirs de la cavité. Les meilleures cavités cryogéniques montrent actuellement une stabilité court terme de 1×10^{-16} [53]. Par ailleurs, une cavité longue de 48 cm montre une stabilité court terme de 8×10^{-17} [52].

Ce projet a démarré avec cette thèse. La construction de l'expérience a rencontré de nombreux problèmes techniques qu'il a fallu comprendre et corriger pour arriver finalement à faire fonctionner l'expérience de bout en bout, notamment pour la partie cryocooler afin de stabiliser les trous brûlés spectraux avant d'envisager tout asservissement du laser sur un trou brûlé spectral. Les performances montrées dans ce manuscrit ne permettent pas de rivaliser avec celles des cavités ultra-stables pour l'instant. On obtient une stabilité de quelques 10^{-14} après une seconde de temps d'intégration. Les premiers résultats sont cependant encourageants pour espérer atteindre une stabilité court terme en dessous de 10^{-16} car de nombreuses améliorations sont encore possibles. Deux axes principaux sont à prendre en compte. La stabilité du laser va dépendre à la fois du bruit amené par la détection, mais aussi de la largeur homogène du trou brûlé spectral et de sa stabilité. Le bruit de détection peut être amélioré via la méthode des multi-trous brûlés spectraux rendue possible grâce au programme d'asservissement numérique conçu pendant cette thèse. Cet asservissement a, pour le moment, une bande passante bien inférieure à la bande passante maximale atteignable, déterminée par le déphasage de la lumière lors de son passage dans un trou brûlé spectral. Cette bande passante est limitée pour l'instant par la vitesse de calcul du processeur de l'ordinateur. En codant directement les fonctions de traitement du signal sur le FPGA, on pourrait atteindre une bande passante bien supérieure, ce qui permettrait d'avoir un verrouillage du laser sur le trou brûlé plus performant. La largeur spectrale de la référence de fréquence peut être réduite davantage, notamment en diminuant la température du cristal et en améliorant le niveau de vibrations amenées principalement par le mécanisme du cryocooler, en aménageant la chambre d'expérience avec une monture plus sophistiquée. Les faibles dimensions de la chambre d'expérience du cryocooler utilisé lors de cette thèse ne permettent pas facilement l'installation de dispositifs plus performants pour stabiliser davantage l'environnement du cristal. La chambre d'expérience du cryocooler est actuellement sous-vide. En se plaçant au point (Pression, Température) pour lequel la sensibilité du trou brûlé spectral est nulle au premier ordre, la stabilité du trou brûlé spectral pourrait être améliorée. Le module que nous avons essayé d'installer dans ce but sur le cryocooler actuel ne permet pas d'atteindre une température assez faible pour permettre la formation de trou brûlé étroit. C'est pour ces raisons qu'un nouveau type de cryocooler a été installé à la toute fin de cette thèse, basé sur un tube pulsé et non un Gifford-McMahon pour bénéficier d'un niveau de vibrations plus faible dans la chambre d'expérience. La partie sur laquelle repose la monture du cristal est plus grande et possède une masse thermique élevée pour limiter l'effet des fluctuations résiduelles de température du doigt froid sur le cristal par filtrage passif. Ce cryocooler peut également être upgradé en cryocooler à dilution pour abaisser la température en dessous du Kelvin et réduire ainsi davantage la largeur homogène des trous brûlés spectraux.

Les horloges à ions montraient les meilleures performances en terme d'exactitude en raison de la faible incertitude des évaluations des effets systématiques. Cependant, les horloges à réseau

optique sont devenues compétitives puisqu'elles permettent d'interroger un nombre d'atomes nettement supérieur grâce à la connaissance de la longueur d'onde "magique" pour le piégeage des atomes dans le réseau, pour laquelle les déplacements relatifs des niveaux d'énergie de la transition considérée sont négligeables au premier ordre, et plus récemment grâce à l'amélioration de la stabilité court terme de leur laser d'interrogation, ce qui réduit l'effet Dick qui empêche ces horloges d'atteindre leur limite fondamentale en terme de stabilité. Bien que les lasers stabilisés sur trous brûlés spectraux ne soient pas encore assez performants pour améliorer davantage la stabilité court terme des lasers "horloges" au sein des horloges optiques, nous savons déjà qu'il est possible de transférer la pureté spectrale sans perte de stabilité à un niveau de 3×10^{-18} à une seconde de temps d'intégration [46]. L'utilisation des cavités longues, de cavités cryogéniques, de cavités munies de miroirs avec des traitements de surface cristallins, ou bien de trous brûlés spectraux dans des cristaux dopés terres-rares comme référence de fréquence pour stabiliser les oscillateurs locaux des horloges optiques sont ainsi toutes possibles en utilisant un transfert de pureté spectrale depuis ces références de fréquences vers les longueurs d'ondes des transitions horloges. Le choix de la référence n'est pas encore tranché, même si pour l'instant, les cavités longues montrent les meilleures performances.

Annexe A

Présentation des différents types de cryocoolers

Cette annexe présente les différents systèmes existants pour atteindre des températures cryogéniques qui seraient éventuellement utiles sur l'expérience décrite dans ce manuscrit. Le but est de comprendre le choix du type de cryocooler qui a été fait et de voir les éventuelles améliorations qu'un nouveau cryocooler pourraient apporter. L'étude des performances du cryocooler faite par Montana Instrument est décrite à la fin de cette annexe.

A.1 Généralités sur les cryocoolers

Un cryocooler est un système qui permet d'atteindre une température cryogénique (inférieure à 123 K). Pour cela, un système mécanique permet de générer des basses températures en utilisant la compression et la dilatation d'un gaz. Les cryocoolers sont donc basés sur le même principe que les réfrigérateurs opérant à une température supérieure à 123 K mais peuvent atteindre des températures cryogéniques. C'est pourquoi ils sont parfois appelés réfrigérateurs cryogéniques.

Les cryocoolers sont composés de quatre éléments principaux : un compresseur, un échangeur de chaleur, un système de dilatation du gaz et un évaporateur. Le froid généré par la dilatation du gaz est échangé avec le système à refroidir. L'évaporateur est un type d'échangeur de chaleur qui permet l'échange de chaleur entre le gaz dilaté et le système à refroidir. Les cryocoolers peuvent être conçus de façon à atteindre n'importe quelle température entre 120K et 4.2K, température à laquelle l'hélium devient liquide sous une pression de 1 atmosphère.

Les cryocoolers représentent une solution économique avantageuse. En effet, puisque les réserves terrestres d'hélium deviennent de plus en plus rares [119], le prix des appareils utilisant de l'hélium liquide sont de plus en plus chers. Les cryocoolers fonctionnent avec des cycles fermés, ce qui signifie qu'il n'y a pas d'échange de fluide avec l'extérieur, donc pas de perte comme dans les systèmes ouverts. Il sont donc une bonne option pour limiter la consommation d'hélium et diminuer ainsi le coût de fonctionnement des appareils cryogéniques. De plus ce sont des appareils qui deviennent de plus en plus fiables. Le coût global des cyocoolers décroît donc avec le temps. La distinction entre cryostats à cycle ouvert et cryocoolers à cycle fermé est montrée

dans la figure A.1.

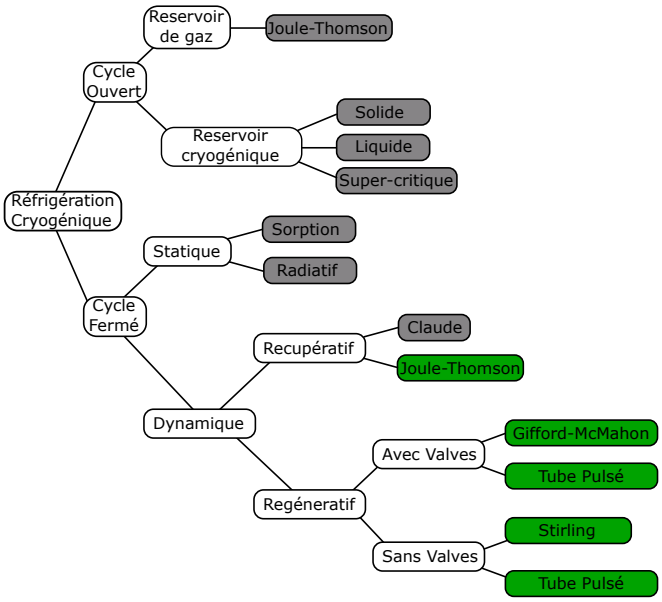

FIGURE A.1 – Classement des différents types de cryostats (refaite à partir de [120])

La puissance de froid à une certaine température, la puissance du compresseur, la présence d'un circuit de refroidissement pour le compresseur, le niveau de vibrations sont les paramètres principaux qui permettent de sélectionner le cryostat idéal pour une application donnée.

Comme montré sur la figure A.1, on distingue deux familles de cryocoolers selon le type d'échangeur de chaleur utilisé, récupératif ou bien régénératif. Un échangeur de chaleur est un composant à l'intérieur duquel un fluide tiède se refroidit grâce à un échange thermique avec le fluide froid. Ce processus a souvent lieu à pression constante. Dans les échangeurs de chaleur de type récupératif, les flux chauds et froids sont spatialement séparés. Les échanges de chaleur entre le deux flux se font par conduction à travers le "mur" qui les sépare. La direction des deux fluides peut être opposée ou non mais reste constante. A l'inverse, les échangeurs de chaleur de type régénératif utilisent une matrice composée d'un matériau poreux pour séparer les fluides chauds et froids. Ce matériau poreux va agir comme une éponge thermique pour stocker ou libérer de la chaleur.

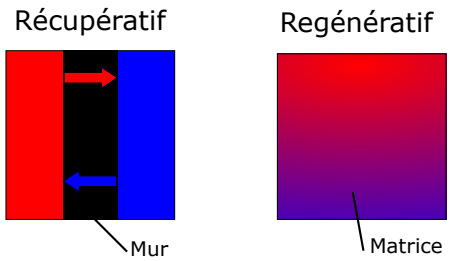

FIGURE A.2 – Les différents type d'échangeurs de chaleur dans les cryocoolers

Nous nous contenterons ici de montrer le principe des différents types de cryocooler représentés en vert sur la figure A.1, afin d'expliquer les avantages et les inconvénients de chacun

pour l'expérience.

A.2 Description des différents types de cryocoolers

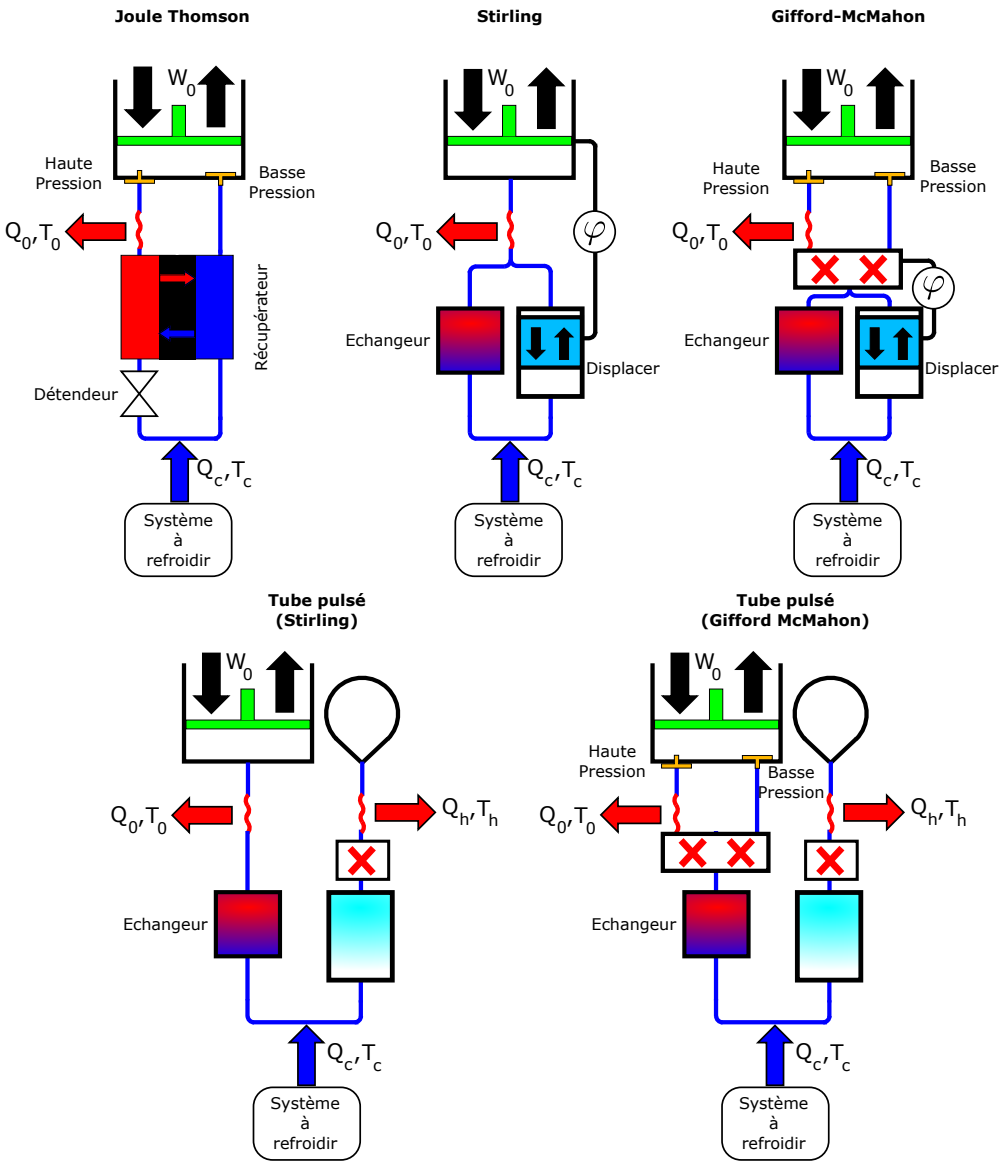

FIGURE A.3 – Schéma des différents types de cryocoolers (extrait de [121])

A.2.1 Joule-Thomson

Comme représenté sur la figure A.3, le cryocooler de type Joule-Thomson (JT) utilise un échangeur de chaleur de type récupérateur. Deux valves permettent de séparer le fluide basse pression et le fluide haute pression. Dans un premier temps, le fluide est comprimé par le compresseur de façon isenthalpique (basé sur la température d'inversion de Joule-Thomson). La chaleur Q_0 est évacuée à l'extérieur du système à une température T_0. Il est ensuite préalable-

ment refroidi par conduction en cédant de la chaleur dans le récupérateur vers le fluide refroidi au cycle précédant. Un détendeur de Joule-Thomson effectue une détente adiabatique du fluide qui est alors refroidi davantage. Le système à refroidir cède la chaleur Q_c au fluide à T_c. Le fluide est enfin refroidi à nouveau grâce à la détente adiabatique effectuée par le piston sur le fluide à basse pression.

A.2.2 Stirling

Comme montré sur la figure A.3, le cryocooler de type Stirling possède un échangeur de chaleur de type régénératif et un nouvel élément mobile appelé "Displacer". Cet élément ne bouge pas de façon synchrone avec le piston mais avec un délai fixe, de façon à générer une détente du fluide situé sous le displacer au cours du cycle. Dans un premier temps, le fluide est comprimé de façon isotherme par action du piston. La chaleur Q_0 est évacuée à l'extérieur du système à une température T_0. Au bout d'un moment, le displacer se déplace vers le haut. Le fluide est refroidi en passant à travers l'échangeur de chaleur. Le piston est alors descendu au maximum. Le displacer continue de bouger vers le haut et le fluide situé sous le displacer est détendu de façon adiabatique. Le piston commence alors à remonter. Lorsqu'il remonte, le système à refroidir donne la chaleur Q_c au fluide qui retraverse ensuite l'échangeur de chaleur en sens inverse et le pré-refroidit pour le cycle suivant. Le displacer revient à sa position initiale. La fréquence de reproduction du cycle, donc du mouvement du piston et du displacer, est de l'ordre de 100-200 Hz.

A.2.3 Gifford McMahon

Le cryocooler de type Gifford McMahon (GM) possède une ligne basse pression et une ligne haute pression comme le cryocooler de type Joule-Thomson. Il possède un displacer et un échangeur de chaleur de type régénératif comme le cryocooler de type Stirling. Sa spécificité est qu'il possède deux valves supplémentaires. Cette fois, un delai fixe est maintenu entre la position du displacer et l'ouverture et la fermeture des valves de façon à générer la détente adiabatique du fluide en dessous du displacer. Dans un premier temps, la valve haute pression est ouverte pendant que le valve basse pression est fermée. Le displacer est placé en position intermédiaire. De la même façon que pour le cryocooler Stirling, on a une compression isotherme et une évacuation de chaleur Q_0 vers l'extérieur. Le fluide est pré-refroidi en passant à travers l'échangeur de chaleur et vient se loger sous le displacer. La valve haute pression se ferme tandis que la valve basse pression s'ouvre. Au même moment, le displacer remonte et cause la détente adiabatique du fluide. Le système à refroidir donne la chaleur au fluide puis celui-ci remonte à travers l'échangeur de chaleur. La valve basse pression se ferme, le displacer se remet à sa position initiale. Contrairement au cryocooler Stirling (TP-Stirling), le cryocooler GM (TP-GM)fonctionne à une fréquence basse comprise entre 1 et 5 Hz.

A.2.4 Tube Pulsé

Le cryocooler de type tube pulsé (TP) ne présente pas de partie mobile de type displacer. A la place, le gaz agit comme un displacer. On distingue deux types de tubes pulsés. L'un est basé sur le cryocooler Stirling, sans valves. L'autre est basé sur le cryocooler GM et inclut la présence de deux valves pour les lignes basse et haute pressions. Le fonctionnement de leurs cycles est similaire au fonctionnement des cycles Stirling et GM. Un délai est fixé entre le mouvement du gaz dans le tube et le mouvement du piston ou des valves dans le cas d'un cryocooler TP-GM. Pour cela, des tubes d'inertance ou bien des valves doubles sont utilisés. De la même façon, le cryocooler TP-Stirling fonctionne à haute fréquence, tandis que le cryocooler TP-GM fonctionne à basse fréquence.

A.2.5 Avantages et Inconvénients

Maintenant que nous avons revu brièvement les différents types de cryocoolers et leur fonctionnement, nous pouvons comprendre les avantages et les inconvénients de chaque cryocooler, récapitulés dans le tableau suivant :

Cryocooler	Avantages	Inconvénients
JT	- Pas de displacer - Écoulement constant - Peu de vibrations	- Basé sur le comportement d'un gaz réel (Température d'inversion) - Haute pression (200 bar) - Fiabilité (orifice du détendeur bouché) - Efficacité faible
Stirling	- Grande efficacité - Faible taille, faible poids - Fiabilité, faible maintenance	- Vibrations (mouvement du displacer) - Fonctionne à hautes fréquences
GM	- Atteint 4 K en 2 étages - Facilité de conception - Fiabilité - Fonctionne à basse fréquence	- Vibrations - Efficacité faible - Bruyant - Joints nécessaires à basse T
TP	- Pas de displacer - Pas de joints à basse T - Moins de vibrations	- "Nouveau" (Fiabilité ?) - Sensible à l'orientation du tube

A.3 Choix du cryocooler pour l'expérience

Dans un premier temps, nous avons opté pour un cryocooler de type Gifford-McMahon pour son prix relativement bas, sa facilité d'utilisation par un non spécialiste, et la fiabilité de ce type de cryocooler. De plus, la facilité pour atteindre une température convenable pour nos applications est un autre argument qui justifie ce choix. A la fin de cette thèse, un deuxième cryocooler de type TP-GM à été installé dans la salle d'expérience de façon à pouvoir bénéficier d'un niveau de vibration moindre en raison de l'absence de displacer dans le système.

A.3.1 Performances du cryostat

La fréquence des trous brûlés est sensible aux changements de température. La largeur des trous brûlés est limitée par le niveau de vibrations appliqué sur le cristal. Le cryocooler est donc un point clé de cette expérience. C'est pourquoi il est important d'en connaître les performances à la fois thermiques et vibratoires. Le cryocooler utilisé sur l'expérience provient de Montana Instrument.

Stabilité en température

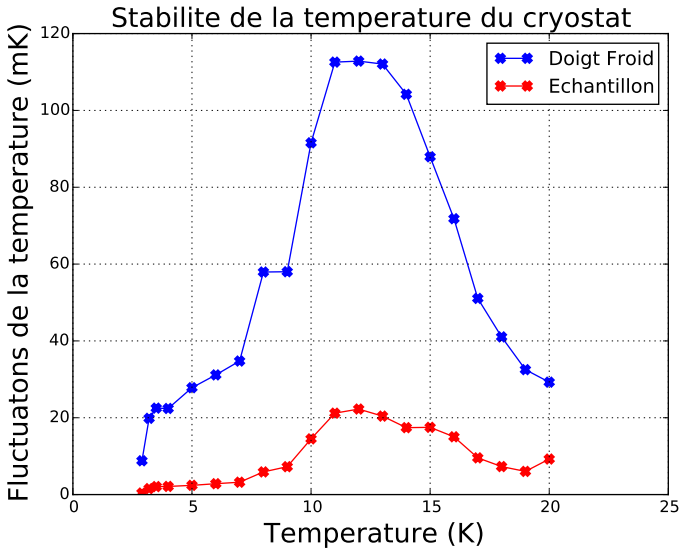

FIGURE A.4 – Stabilité en température du cryocooler (Graphique fait a partir des données de Montana Instrument)

Une grande importance à été donnée à la stabilité en température du doigt froid au moment de la conception du cryostat. Un PID agissant sur un heater placé tout autour du doigt froid et d'un thermistor placé en contact avec le doigt froid ont été ajoutés, sous la monture sur laquelle est posé le cristal (cf. figure III.5). La stabilité en température dépend de la température nominale du doigt froid du cryostat (cf. figure A.4).

Vibrations

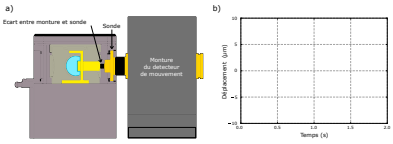

FIGURE A.5 – Mesure du déplacement de la monture (Montana Instrument)
a) Dispositif utilisé pour la mesure, b) Déplacement de la monture au cours d'un cycle du cryocooler

Les vibrations ont été étudiées par Montana Instrument à l'aide d'un capteur de mouvement de bande passante 1 kHz qui fournit une tension proportionnelle à l'écart entre la sonde et la

monture. Les mesures ont été faites dans les trois directions xyz d'un repère orthonormé.

Le capteur est fixé à travers une des fenêtres optiques via un lien hermétique et est positionné à 150 micromètres de la monture qui tient le cristal. La monture de la sonde est fixée rigidement à la table optique. Les tensions proportionnelles à la distance entre la sonde et la monture dans les 3 directions x,y et z sont mesurées et visualisées sur un oscilloscope avec une fréquence d'échantillonnage de 250 kHz. La sonde a un niveau de bruit d'environ 300 picomètres. Ces mesures ont été effectuées lorsque le cryocooler a été stabilisé en température.

Sur la figure A.5, la monture montre des vibrations d'amplitude 3 μm. Les vibrations de plus forte amplitude correspondent aux étapes du cycle thermodynamique où la pression varie brusquement sous la chambre d'expérience.

Annexe B

Principe de la génération de seconde harmonique

L'équation de propagation d'une onde lumineuse dans un milieu non linéaire est définie à partir des équations de Maxwell est :

$$\nabla^2\epsilon - \frac{1}{c^2}\frac{\partial^2\epsilon}{t^2} = \mu_0\frac{\partial^2\mathcal{P}}{\partial t^2} \tag{B.1}$$

La réponse des cristaux non linéaires à une excitation lumineuse est déterminée par leur polarisation $\mathcal{P}$ qui présente des termes non-linéaires d'ordre n. Les termes non linéaires peuvent faire apparaître des nouvelles fréquences, qui proviennent de l'interaction entre des champs lumineux de pulsations différentes. Ces interactions s'expriment à travers les tenseurs de susceptibilité du cristal non linéaire χ.

$$\mathcal{P} = \underbrace{\epsilon_0\chi^{(1)}\epsilon(\omega_1)}_{linéaire} + \underbrace{\epsilon_0\chi^{(2)}\epsilon(\omega_1)\epsilon(\omega_2) + \epsilon_0\chi^{(3)}\epsilon(\omega_1)\epsilon(\omega_2)\epsilon(\omega_3) + ...}_{non-linéaire} \tag{B.2}$$

Dans la suite, nous limiterons les calculs à une non linéarité d'ordre 2 pour expliquer le doublage de fréquence. Si on se place dans le cadre de l'approximation paraxiale dans le cas unidimensionnel, en considérant le champ comme une somme d'ondes planes monochromatiques de la forme :

$$\epsilon(r,t) = \sum_i A_i(x,y,z,\omega_i)e^{ik(\omega_i)\omega_i} \tag{B.3}$$

où A est une amplitude lentement variable selon z, alors la résolution de l'équation de propagation unidimensionnelle est un système d'équations couplées :

$$\frac{\partial A_i}{\partial z} = \frac{i\omega_i}{2n_i\epsilon_0 c}P_i^{(2)}e^{2ik_1 z} \tag{B.4}$$

Si on considère un champ incident :

$$\epsilon_1(z,t) = A_1(z)e^{-ik_1 z}e^{-i\omega_1 t} = \epsilon_1(z)e^{-i\omega_1 t} \tag{B.5}$$

La polarisation non linéaire du second ordre s'écrit alors :

$$P^{(2)} = \epsilon_0\chi^{(2)}\left(\frac{\epsilon_1+\epsilon_1^*}{2}\right) \tag{B.6}$$

$$= \frac{\epsilon_0\chi^{(2)}}{4}(\underbrace{\epsilon_1^2+\epsilon_1^{*2}}_{Doublage} + \underbrace{2\epsilon_1\epsilon_1^*}_{Redressement}) \tag{B.7}$$

Ainsi, la polarisation non linéaire d'ordre 2 pour le doublage de fréquence est :

$$P_2^{(2)} = \frac{\epsilon_0 \chi}{2} A_1^2(z) e^{2ikz} \tag{B.8}$$

On obtient donc l'équation différentielle :

$$\frac{\partial A_2}{\partial z} = \frac{i\omega_2 \chi^{(2)}}{4n_2 c} A_1^2(z) e^{i\Delta kz} \tag{B.9}$$

avec $\Delta k = k_2 - 2k_1$ qui est le désaccord de phase entre le faisceau doublé et le faisceau de pompe. En considérant que le doublage de fréquence est d'efficacité faible, on peut considérer que l'amplitude du faisceau non doublé reste constante au cours de la propagation à travers le cristal. La solution de l'équation différentielle est alors :

$$A_2(z) = \frac{i\omega_2 \chi^{(2)}}{4n_2 c} A_1^2 z e^{i\Delta kz/2} sinc\left(\frac{\Delta kz}{2}\right) \tag{B.10}$$

et donc :

$$I_2(z) \propto I_1^2(z) z^2 sinc^2\left(\frac{\Delta kz}{2}\right) \tag{B.11}$$

L'intensité de la lumière doublée en fréquence est proportionnelle au carré du faisceau de pompe et au carré de la distance parcourue dans le cristal, mais dépend aussi de l'accord de phase Δk.

B.1 Quasi-accord de phase

Le cristal de niobate de lithium utilisé pour le doublage de fréquence est un milieu dispersif. Les vitesses d'ondes de fréquences différentes se propagent donc à des vitesses différentes dans le cristal. La phase relative des deux ondes varie, ce qui a comme conséquence le déphasage des photons doublés en fréquence. Sans accord de phase, le nombre de photons doublés en sortie du cristal est alors proche de zéro.

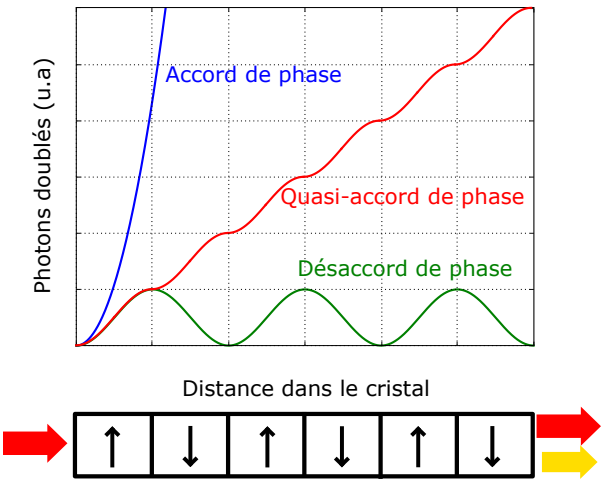

FIGURE B.1 – Quasi-accord de phase dans un cristal PPLN

Pour garantir l'accord de phase, on peut utiliser la biréfringence positive d'un cristal ($n_e > n_o$). Si le faisceau de pompe et le faisceau doublé sont polarisés perpendiculairement respectivement selon l'axe ordinaire d'indice n_o et extra-ordinaire d'indice n_e, il est possible d'orienter

le cristal avec un angle pour lequel la biréfringence du cristal compense le déphasage des deux faisceaux. Cependant, le cristal de niobate de lithium est un cristal biréfringent uniaxe négatif ($n_o > n_e$). Avec ce type de matériau, l'accord de phase n'est pas possible. Cependant, avec certains matériaux de type ferromagnétique, notamment le niobate de lithium $LiNbO_3$, il est possible de réaliser périodiquement cette condition en inversant le signe du coefficient non linéaire avec une période spatiale définie par $\Lambda = 2\pi/\Delta k$. On obtient alors le quasi-accord de phase. Un déphasage de π est appliqué au moment où le nombre de photons doublés commence à décroître. Il y aura donc un maximum de photons doublés en fréquence qui interfèreront de façon constructive (cf. figure B.1).

Bibliographie

[1] B. De Beauvoir, C. Schwob, O. Acef, L. Jozefowski, L. Hilico, F. Nez, L. Julien, A. Clairon, and F. Biraben, "Metrology of the hydrogen and deuterium atoms : determination of the rydberg constant and lamb shifts," *The European Physical Journal D-Atomic, Molecular, Optical and Plasma Physics*, vol. 12, no. 1, pp. 61–93, 2000.

[2] A. Shelkovnikov, R. J. Butcher, C. Chardonnet, and A. Amy-Klein, "Stability of the proton-to-electron mass ratio," *Physical Review Letters*, vol. 100, no. 15, p. 150801, 2008.

[3] R. Bouchendira, P. Cladé, S. Guellati-Khélifa, F. Nez, and F. Biraben, "New determination of the fine structure constant and test of the quantum electrodynamics," *Physical Review Letters*, vol. 106, no. 8, p. 080801, 2011.

[4] M. Gurov, J. McFerran, B. Nagorny, R. Tyumenev, Z. Xu, Y. Le Coq, R. Le Targat, P. Lemonde, J. Lodewyck, and S. Bize, "Optical lattice clocks as candidates for a possible redefinition of the SI second," *IEEE Transactions on Instrumentation and Measurement*, vol. 62, no. 6, pp. 1568–1573, 2013.

[5] B. Abbott, R. Abbott, R. Adhikari, P. Ajith, B. Allen, G. Allen, R. Amin, S. Anderson, W. Anderson, M. Arain, *et al.*, "Ligo : the laser interferometer gravitational-wave observatory," *Reports on Progress in Physics*, vol. 72, no. 7, p. 076901, 2009.

[6] C.-W. Chou, D. Hume, T. Rosenband, and D. Wineland, "Optical clocks and relativity," *Science*, vol. 329, no. 5999, pp. 1630–1633, 2010.

[7] C. Gattano, S. B. Lambert, and C. Bizouard, "Observation of the earth's nutation by the VLBI : How accurate is the geophysical signal," *Journal of Geodesy*, pp. 1–8, 2016.

[8] L. Zotov, C. Bizouard, and C. Shum, "A possible interrelation between earth rotation and climatic variability at decadal time-scale," *Geodesy and Geodynamics*, vol. 7, no. 3, pp. 216–222, 2016.

[9] F. Riehle, *Frequency standards : basics and applications.* John Wiley & Sons, 2006.

[10] G. Santarelli, P. Laurent, P. Lemonde, A. Clairon, A. G. Mann, S. Chang, A. N. Luiten, and C. Salomon, "Quantum projection noise in an atomic fountain : A high stability cesium frequency standard," *Physical Review Letters*, vol. 82, no. 23, p. 4619, 1999.

[11] J. Vanier and C. Audoin, "The quantum physics of atomic frequency standards," 1989.

[12] V. Yudin, A. Taichenachev, C. Oates, Z. Barber, N. Lemke, A. Ludlow, U. Sterr, C. Lisdat, and F. Riehle, "Hyper-ramsey spectroscopy of optical clock transitions," *Physical Review A*, vol. 82, no. 1, p. 011804, 2010.

[13] R. Hobson, W. Bowden, S. King, P. Baird, I. Hill, and P. Gill, "Modified hyper-ramsey methods for the elimination of probe shifts in optical clocks," *Physical Review A*, vol. 93, no. 1, p. 010501, 2016.

[14] T. Zanon-Willette, E. de Clercq, and E. Arimondo, "Probe light-shift elimination in generalized hyper-ramsey quantum clocks," *Physical Review A*, vol. 93, no. 4, p. 042506, 2016.

[15] C. J. Bordé, C. Salomon, S. Avrillier, A. Van Lerberghe, C. Bréant, D. Bassi, and G. Scoles, "Optical ramsey fringes with traveling waves," *Physical Review A*, vol. 30, no. 4, p. 1836, 1984.

[16] A. Quessada-Vial, *Developpement d'une horloge à atomes de strontium piégés : Réalisation d'un laser ultra-stable et stabilité de fréquence.* PhD thesis, Université Pierre et Marie Curie-Paris VI, 2005.

[17] A. Makdissi and E. De Clercq, "Evaluation of the accuracy of the optically pumped caesium beam primary frequency standard of bnm-lptf," *Metrologia*, vol. 38, no. 5, p. 409, 2001.

[18] R. Wynands and S. Weyers, "Atomic fountain clocks," *Metrologia*, vol. 42, no. 3, p. S64, 2005.

[19] S. Bize, P. Laurent, M. Abgrall, H. Marion, I. Maksimovic, L. Cacciapuoti, J. Grünert, C. Vian, F. P. Dos Santos, P. Rosenbusch, *et al.*, "Advances in atomic fountains," *Comptes rendus physique*, vol. 5, no. 8, pp. 829–843, 2004.

[20] C. Vian, P. Rosenbusch, H. Marion, S. Bize, L. Cacciapuoti, S. Zhang, M. Abgrall, D. Chambon, I. Maksimovic, P. Laurent, *et al.*, "BNM-SYRTE fountains : recent results," *IEEE Transactions on Instrumentation and Measurement*, vol. 54, no. 2, pp. 833–836, 2005.

[21] G. Santarelli, P. Laurent, P. Lemonde, A. Clairon, A. G. Mann, S. Chang, A. N. Luiten, and C. Salomon, "Quantum projection noise in an atomic fountain : A high stability cesium frequency standard," *Physical Review Letters*, vol. 82, no. 23, p. 4619, 1999.

[22] W. Oskay, S. Diddams, E. Donley, T. Fortier, T. Heavner, L. Hollberg, W. Itano, S. Jefferts, M. Delaney, K. Kim, *et al.*, "Single-atom optical clock with high accuracy," *Physical Review Letters*, vol. 97, no. 2, p. 020801, 2006.

[23] N. Huntemann, C. Sanner, B. Lipphardt, C. Tamm, and E. Peik, "Single-ion atomic clock with 3×10^{-18} systematic uncertainty," *Physical review letters*, vol. 116, no. 6, p. 063001, 2016.

[24] P. Dubé, A. A. Madej, M. Tibbo, and J. E. Bernard, "High-accuracy measurement of the differential scalar polarizability of a $^{88}\mathrm{S}r^{+}$ clock using the time-dilation effect," *Physical review letters*, vol. 112, no. 17, p. 173002, 2014.

[25] K. Matsubara, H. Hachisu, Y. Li, S. Nagano, C. Locke, A. Nogami, M. Kajita, K. Hayasaka, T. Ido, and M. Hosokawa, "Direct comparison of a $\mathrm{C}a^{+}$ single-ion clock against a $\mathrm{S}r$ lattice clock to verify the absolute frequency measurement," *Optics express*, vol. 20, no. 20, pp. 22034–22041, 2012.

[26] C. Chou, D. Hume, J. Koelemeij, D. Wineland, and T. Rosenband, "Frequency comparison of two high-accuracy $\mathrm{A}l^{+}$ optical clocks," *Physical Review Letters*, vol. 104, no. 7, p. 070802, 2010.

[27] J. Keupp, A. Douillet, T. Mehlstäubler, N. Rehbein, E. Rasel, and W. Ertmer, "A high-resolution ramsey-bordé spectrometer for optical clocks based on cold Mg atoms," *The European Physical Journal D-Atomic, Molecular, Optical and Plasma Physics*, vol. 36, no. 3, pp. 289–294, 2005.

[28] G. Wilpers, C. Oates, S. A. Diddams, A. Bartels, T. M. Fortier, W. Oskay, J. C. Bergquist, S. Jefferts, T. Heavner, T. Parker, *et al.*, "Absolute frequency measurement of the neutral ^{40}Ca optical frequency standard at 657 nm based on microkelvin atoms," *Metrologia*, vol. 44, no. 2, p. 146, 2007.

[29] K. Yamanaka, N. Ohmae, I. Ushijima, M. Takamoto, and H. Katori, "Frequency ratio of ^{199}Hg and ^{87}Sr optical lattice clocks beyond the SI limit," *Physical review letters*, vol. 114, no. 23, p. 230801, 2015.

[30] N. Hinkley, J. Sherman, N. Phillips, M. Schioppo, N. Lemke, K. Beloy, M. Pizzocaro, C. Oates, and A. Ludlow, "An atomic clock with 10^{-18} instability," *Science*, vol. 341, no. 6151, pp. 1215–1218, 2013.

[31] B. Bloom, T. Nicholson, J. Williams, S. Campbell, M. Bishof, X. Zhang, W. Zhang, S. Bromley, and J. Ye, "An optical lattice clock with accuracy and stability at the 10^{-18} level," *Nature*, vol. 506, no. 7486, pp. 71–75, 2014.

[32] M. Schioppo, R. Brown, W. McGrew, N. Hinkley, R. Fasano, K. Beloy, T. Yoon, G. Milani, D. Nicolodi, J. Sherman, *et al.*, "Ultrastable optical clock with two cold-atom ensembles," *Nature Photonics*, 2016.

[33] G. Wilpers, T. Binnewies, C. Degenhardt, U. Sterr, J. Helmcke, and F. Riehle, "Optical clock with ultracold neutral atoms," *Physical review letters*, vol. 89, no. 23, p. 230801, 2002.

[34] R. Dicke, "The effect of collisions upon the doppler width of spectral lines," *Physical Review*, vol. 89, no. 2, p. 472, 1953.

[35] F. M. Penning, "Die glimmentladung bei niedrigem druck zwischen koaxialen zylindern in einem axialen magnetfeld," *physica*, vol. 3, no. 9, pp. 873–894, 1936.

[36] H. G. Dehmelt, "Radiofrequency spectroscopy of stored ions i : Storage," *Advances in Atomic and Molecular Physics*, vol. 3, pp. 53–72, 1968.

[37] W. Paul and M. Raether, "Das elektrische massenfilter," *Zeitschrift für Physik*, vol. 140, no. 3, pp. 262–273, 1955.

[38] T. Rosenband, P. O. Schmidt, D. B. Hume, W. M. Itano, T. M. Fortier, J. E. Stalnaker, K. Kim, S. A. Diddams, J. Koelemeij, J. Bergquist, *et al.*, "Observation of the $^1S_0$ - $^3P_0$ clock transition in ^{27}Al^+," *Physical review letters*, vol. 98, no. 22, p. 220801, 2007.

[39] S. Chu, J. Bjorkholm, A. Ashkin, and A. Cable, "Experimental observation of optically trapped atoms," *Physical Review Letters*, vol. 57, no. 3, p. 314, 1986.

[40] H. Katori, M. Takamoto, V. Pal'Chikov, and V. Ovsiannikov, "Ultrastable optical clock with neutral atoms in an engineered light shift trap," *Physical Review Letters*, vol. 91, no. 17, p. 173005, 2003.

[41] I. Courtillot, A. Quessada, R. P. Kovacich, A. Brusch, D. Kolker, J.-J. Zondy, G. D. Rovera, and P. Lemonde, "Clock transition for a future optical frequency standard with trapped atoms," *Physical Review A*, vol. 68, no. 3, p. 030501, 2003.

[42] G. J. Dick, "Local oscillator induced instabilities in trapped ion frequency standards," tech. rep., DTIC Document, 1987.

[43] A. Quessada, R. P. Kovacich, I. Courtillot, A. Clairon, G. Santarelli, and P. Lemonde, "The Dick effect for an optical frequency standard," *Journal of Optics B : Quantum and Semiclassical Optics*, vol. 5, no. 2, p. S150, 2003.

[44] P. G. Westergaard, J. Lodewyck, and P. Lemonde, "Minimizing the Dick effect in an optical lattice clock," *IEEE transactions on ultrasonics, ferroelectrics, and frequency control*, vol. 57, no. 3, pp. 623–628, 2010.

[45] R. Le Targat, L. Lorini, Y. Le Coq, M. Zawada, J. Guéna, M. Abgrall, M. Gurov, P. Rosenbusch, D. Rovera, B. Nagórny, *et al.*, "Experimental realization of an optical second with strontium lattice clocks," *Nature communications*, vol. 4, 2013.

[46] D. Nicolodi, B. Argence, W. Zhang, R. Le Targat, G. Santarelli, and Y. Le Coq, "Spectral purity transfer between optical wavelengths at the 10^{-18} level," *Nature Photonics*, vol. 8, no. 3, pp. 219–223, 2014.

[47] R. V. Pound, "Frequency stabilization of microwave oscillators," *Proceedings of the IRE*, vol. 35, no. 12, pp. 1405–1415, 1947.

[48] R. Drever, J. L. Hall, F. Kowalski, J. Hough, G. Ford, A. Munley, and H. Ward, "Laser phase and frequency stabilization using an optical resonator," *Applied Physics B*, vol. 31, no. 2, pp. 97–105, 1983.

[49] K. Numata, A. Kemery, and J. Camp, "Thermal-noise limit in the frequency stabilization of lasers with rigid cavities," *Physical review letters*, vol. 93, no. 25, p. 250602, 2004.

[50] Y. Jiang, A. Ludlow, N. D. Lemke, R. W. Fox, J. A. Sherman, L.-S. Ma, and C. W. Oates, "Making optical atomic clocks more stable with 10^{-16} level laser stabilization," *Nature Photonics*, vol. 5, no. 3, pp. 158–161, 2011.

[51] S. Amairi, T. Legero, T. Kessler, U. Sterr, J. B. Wübbena, O. Mandel, and P. O. Schmidt, "Reducing the effect of thermal noise in optical cavities," *Applied Physics B*, vol. 113, no. 2, pp. 233–242, 2013.

[52] S. Häfner, S. Falke, C. Grebing, S. Vogt, T. Legero, M. Merimaa, C. Lisdat, and U. Sterr, "8×10^{-17} fractional laser frequency instability with a long room-temperature cavity," *Optics letters*, vol. 40, no. 9, pp. 2112–2115, 2015.

[53] T. Kessler, C. Hagemann, C. Grebing, T. Legero, U. Sterr, F. Riehle, M. Martin, L. Chen, and J. Ye, "A sub-40-mhz-linewidth laser based on a silicon single-crystal optical cavity," *Nature Photonics*, vol. 6, no. 10, pp. 687–692, 2012.

[54] G. D. Cole, W. Zhang, B. J. Bjork, D. Follman, P. Heu, C. Deutsch, L. Sonderhouse, J. Robinson, C. Franz, A. Alexandrovski, *et al.*, "High-performance near-and mid-infrared crystalline coatings," *Optica*, vol. 3, no. 6, pp. 647–656, 2016.

[55] M. Dejneka and B. Samson, "Rare-earth-doped fibers for telecommunications applications," *Mrs Bulletin*, vol. 24, no. 09, pp. 39–45, 1999.

[56] C. Thiel, T. Böttger, and R. Cone, "Rare-earth-doped materials for applications in quantum information storage and signal processing," *Journal of luminescence*, vol. 131, no. 3, pp. 353–361, 2011.

[57] M. P. Hedges, J. J. Longdell, Y. Li, and M. J. Sellars, "Efficient quantum memory for light," *Nature*, vol. 465, no. 7301, pp. 1052–1056, 2010.

[58] F. Bussières, C. Clausen, I. Usmani, A. Tiranov, N. Sangouard, H. de Riedmatten, M. Afzelius, and N. Gisin, "Quantum memories with rare-earth-ion doped crystals," in *Conference on Lasers and Electro-Optics/Pacific Rim*, p. MG2_2, Optical Society of America, 2013.

[59] R. L. Cone, C. Thiel, Y. Sun, T. Böttger, and R. Macfarlane, "Quantum information, laser frequency stabilization, and optical signal processing with rare-earth doped materials," in *Laser Science*, pp. LTu1G–3, Optical Society of America, 2013.

[60] L. Rippe, B. Julsgaard, A. Walther, and S. Kröll, "Laser stabilization using spectral hole burning," *arXiv preprint quant-ph/0611056*, 2006.

[61] B. Julsgaard, A. Walther, S. Kröll, and L. Rippe, "Understanding laser stabilization using spectral hole burning," *Optics express*, vol. 15, no. 18, pp. 11444–11465, 2007.

[62] M. J. Thorpe, L. Rippe, T. M. Fortier, M. S. Kirchner, and T. Rosenband, "Frequency stabilization to 6×10^{-16} via spectral-hole burning," *Nature Photonics*, vol. 5, no. 11, pp. 688–693, 2011.

[63] D. R. Leibrandt, M. J. Thorpe, C.-W. Chou, T. M. Fortier, S. A. Diddams, and T. Rosenband, "Absolute and relative stability of an optical frequency reference based on spectral hole burning in $Eu^{3+} : Y_2SiO_5$," *Physical review letters*, vol. 111, no. 23, p. 237402, 2013.

[64] M. J. Thorpe, D. R. Leibrandt, and T. Rosenband, "Shifts of optical frequency references based on spectral-hole burning in $Eu^{3+} : Y_2SiO_5$," *New Journal of Physics*, vol. 15, no. 3, p. 033006, 2013.

[65] I. Lorgeré, G. Gorju, L. Ménager, V. Lavielle, F. Bretenaker, J. Le Gouët, S. Molin, L. Morvan, S. Tonda-Goldstein, D. Dolfi, *et al.*, "Broadband RF Spectrum Analyzer based on Spectral Hole Burning in $Tm^{3+} : YAG$," in *International Symposium on Optical Manipulation of Quantum Information in Solids, Paris, France*, 2010.

[66] S. Massari and M. Ruberti, "Rare earth elements as critical raw materials : Focus on international markets and future strategies," *Resources Policy*, vol. 38, no. 1, pp. 36–43, 2013.

[67] R. Macfarlane and R. Shelby, "Sub-kilohertz optical linewidths of the $^7F_0 -^5 D_0$ transition in $Y_2O_3 : Eu^{3+}$," *Optics Communications*, vol. 39, no. 3, pp. 169–171, 1981.

[68] A. J. Freeman and R. Watson, "Theoretical investigation of some magnetic and spectroscopic properties of rare-earth ions," *Physical Review*, vol. 127, no. 6, p. 2058, 1962.

[69] W. B. Jensen, "The origin of the s, p, d, f orbital labels," *J. Chem. Educ*, vol. 84, no. 5, p. 757, 2007.

[70] F. De Seze, *Vers l'enregistrement d'un signal quantique dans des ions de terre rare en matrice cristalline.* PhD thesis, Université Paris Sud-Paris XI, 2005.

[71] O. Guillot-Noël, P. Goldner, Y. Le Du, E. Baldit, P. Monnier, and K. Bencheikh, "Hyperfine interaction of Er^{3+} ions in Y_2SiO_5 : An electron paramagnetic resonance spectroscopy study," *Physical Review B*, vol. 74, no. 21, p. 214409, 2006.

[72] O. Guillot-Noël, P. Goldner, Y. Le Du, P. Loiseau, B. Julsgaard, L. Rippe, and S. Kröll, "Hyperfine structure, optical dephasing, and spectral-hole lifetime of single-crystalline $Pr^{3+} : La^2(WO_4)_3$," *Physical Review B*, vol. 75, no. 20, p. 205110, 2007.

[73] K. Holliday, M. Croci, E. Vauthey, and U. P. Wild, "Spectral hole burning and holography in an $Y_2SiO_5 : Pr^{3+}$ crystal," *Physical Review B*, vol. 47, no. 22, p. 14741, 1993.

[74] R. W. Equall, Y. Sun, R. Cone, and R. Macfarlane, "Ultraslow optical dephasing in $Eu^{3+} : Y_2SiO_5$," *Physical review letters*, vol. 72, no. 14, p. 2179, 1994.

[75] P. Goldner and O. Guillot-Noël, "Calculations of rare earth hyperfine structures and application to quantum information," *Journal of Alloys and Compounds*, vol. 451, no. 1, pp. 682–685, 2008.

[76] W. Mims, "Amplitudes of superhyperfine frequencies displayed in the electron-spin-echo envelope," *Physical Review B*, vol. 6, no. 9, p. 3543, 1972.

[77] U. Ranon and J. S. Hyde, "Electron-nuclear-double-resonance and electron-paramagnetic-resonance analysis of the ytterbium-fluorine superhyperfine interaction in $CaF_2 : Yb^{3+}$," *Physical Review*, vol. 141, no. 1, p. 259, 1966.

[78] P. C. d. Sousa Filho, J. F. Lima, and O. A. Serra, "From lighting to photoprotection : Fundamentals and applications of rare earth materials," *Journal of the Brazilian Chemical Society*, vol. 26, no. 12, pp. 2471–2495, 2015.

[79] B. Judd, "Optical absorption intensities of rare-earth ions," *Physical Review*, vol. 127, no. 3, p. 750, 1962.

[80] G. Ofelt, "Intensities of crystal spectra of rare-earth ions," *The Journal of Chemical Physics*, vol. 37, no. 3, pp. 511–520, 1962.

[81] M. Downer, G. W. Burdick, and D. Sardar, "A new contribution to spin-forbidden rare earth optical transition intensities : Gd^{3+} and Eu^{3+}," *The Journal of chemical physics*, vol. 89, no. 4, pp. 1787–1797, 1988.

[82] O. Malta, W. Azevedo, E. Gouveia, and G. De Sá, "On the $^5D_0 -^7 F_0$ transition of the Eu^{3+} ion in the $((C_4H_9)_4N)_3Y(NCS)_6$ host," *Journal of Luminescence*, vol. 26, no. 3, pp. 337–343, 1982.

[83] A. Stoneham, "Shapes of inhomogeneously broadened resonance lines in solids," *Reviews of Modern Physics*, vol. 41, no. 1, p. 82, 1969.

[84] A. Abragam, *The principles of nuclear magnetism.* No. 32, Oxford university press, 1961.

[85] C. P. Slichter, *Principles of magnetic resonance*, vol. 1. Springer Science & Business Media, 2013.

[86] F. Petersen, D. McDonald, J. Cupp, B. Danielson, R. Brewer, and A. Mooradian, "Laser spectroscopy," *Plenum, New York*, pp. 171–191, 1974.

[87] F. Könz, Y. Sun, C. Thiel, R. Cone, R. Equall, R. Hutcheson, and R. Macfarlane, "Temperature and concentration dependence of optical dephasing, spectral-hole lifetime, and anisotropic absorption in $Eu^{3+} : Y_2SiO_5$," *Physical Review B*, vol. 68, no. 8, p. 085109, 2003.

[88] G. Liu, M. Joubert, R. Cone, and B. Jacquier, "Photon echo relaxation and hole burning in $Tb^{3+} : LiYF_4$ and $LiTbF_4$," *Journal of Luminescence*, vol. 40, pp. 551–552, 1988.

[89] S. Kröll, E. Xu, and R. Kachru, "Influence of excited-state Pr^{3+} on the relaxation of the $Pr^{3+} : YAlO_3$ $^3H_4 -^1 D_2$ transition," *Physical Review B*, vol. 44, no. 1, p. 30, 1991.

[90] R. Macfarlane and R. Shelby, "Magnetic field dependent optical dephasing in $LaF_3 : Er^{3+}$," *Optics Communications*, vol. 42, no. 5, pp. 346–350, 1982.

[91] T. Böttger, C. Thiel, Y. Sun, and R. Cone, "Optical decoherence and spectral diffusion at 1.5 μm in $Er^{3+} : Y_2SiO_5$ versus magnetic field, temperature, and Er^{3+} concentration," *Physical Review B*, vol. 73, no. 7, p. 075101, 2006.

[92] R. Orbach, "Spin-lattice relaxation in rare-earth salts," in *Proceedings of the Royal Society of London A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, vol. 264, pp. 458–484, The Royal Society, 1961.

[93] D. McCumber and M. Sturge, "Linewidth and temperature shift of the r lines in ruby," *Journal of Applied Physics*, vol. 34, no. 6, pp. 1682–1684, 1963.

[94] S. Cook, T. Rosenband, and D. R. Leibrandt, "Laser-frequency stabilization based on steady-state spectral-hole burning in $Eu^{3+} : Y_2SiO_5$," *Physical review letters*, vol. 114, no. 25, p. 253902, 2015.

[95] R. Yano, M. Mitsunaga, and N. Uesugi, "Nonlinear laser spectroscopy of $Eu^{3+} : Y_2SiO_5$ and its application to time-domain optical memory," *JOSA B*, vol. 9, no. 6, pp. 992–997, 1992.

[96] M. Mitsunaga, R. Yano, and N. Uesugi, "Time-and frequency-domain hybrid optical memory : 1.6-kbit data storage in $Eu^{3+} : Y_2SiO_5$," *Optics letters*, vol. 16, no. 23, pp. 1890–1892, 1991.

[97] H. Riesen, B. F. Hayward, and A. Szabo, "Side-hole to anti-hole conversion in time-resolved spectral hole burning of ruby : Long-lived spectral holes due to ground state level population storage," *Journal of Luminescence*, vol. 127, no. 2, pp. 655–664, 2007.

[98] B. F. Hayward and H. Riesen, "Side-hole to anti-hole conversion in time-resolved transient spectral hole-burning of emerald : ground state level versus excited state population storage in low magnetic fields," *Physical Chemistry Chemical Physics*, vol. 7, no. 13, pp. 2579–2586, 2005.

[99] H. J. Scheel, P. Capper, and P. Rudolph, *Crystal Growth Technology : Semiconductors and Dielectrics*. John Wiley & Sons, 2011.

[100] R. Macfarlane, Y. Sun, R. Cone, C. Thiel, and R. Equall, "Optical dephasing by disorder modes in yttrium orthosilicate (Y_2SiO_5) doped with Eu^{3+}," *Journal of luminescence*, vol. 107, no. 1, pp. 310–313, 2004.

[101] J. Czochralski, "Ein neues verfahren zur messung der kristallisationsgeschwindigheit der metalle," *Z. phys. Chemie.*, vol. 92, pp. 219–221, 1918.

[102] A. Ferrier, B. Tumino, and P. Goldner, "Variations in the oscillator strength of the $^7F_0 -^5 D_0$ transition in $Eu^{3+} : Y_2SiO_5$ single crystals," *Journal of Luminescence*, vol. 170, pp. 406–410, 2016.

[103] M. H. Randles, J. E. Creamer, and R. F. Belt, "Disordered oxide crystal hosts for diode pumped lasers," *Journal of crystal growth*, vol. 128, no. 1-4, pp. 1016–1020, 1993.

[104] W. Gifford, "The Gifford-McMahon Cycle," in *Advances in Cryogenic Engineering*, pp. 152–159, Springer, 1966.

[105] G. Grynberg, A. Aspect, and C. Fabre, *Introduction to quantum optics : from the semi-classical approach to quantized light.* Cambridge university press, 2010.

[106] K. Harvey and C. Myatt, "External-cavity diode laser using a grazing-incidence diffraction grating," *Optics Letters*, vol. 16, no. 12, pp. 910–912, 1991.

[107] C. Petridis, I. Lindsay, D. Stothard, and M. Ebrahimzadeh, "Mode-hop-free tuning over 80 Ghz of an extended cavity diode laser without antireflection coating," *Review of Scientific Instruments*, vol. 72, no. 10, pp. 3811–3815, 2001.

[108] J. G. Ziegler and N. B. Nichols, "Optimum settings for automatic controllers," *trans. ASME*, vol. 64, no. 11, 1942.

[109] D. R. Leibrandt, M. J. Thorpe, M. Notcutt, R. E. Drullinger, T. Rosenband, and J. C. Bergquist, "Spherical reference cavities for frequency stabilization of lasers in non-laboratory environments," *Optics express*, vol. 19, no. 4, pp. 3471–3482, 2011.

[110] N. Wong and J. L. Hall, "Servo control of amplitude modulation in frequency-modulation spectroscopy : demonstration of shot-noise-limited detection," *JOSA B*, vol. 2, no. 9, pp. 1527–1533, 1985.

[111] W. Zhang, M. Martin, C. Benko, J. Hall, J. Ye, C. Hagemann, T. Legero, U. Sterr, F. Riehle, G. Cole, *et al.*, "Reduction of residual amplitude modulation to 1×10^{-6} for frequency modulation and laser stabilization," *Optics letters*, vol. 39, no. 7, pp. 1980–1983, 2014.

[112] D. R. Leibrandt, M. J. Thorpe, M. Notcutt, R. E. Drullinger, T. Rosenband, and J. C. Bergquist, "Spherical reference cavities for frequency stabilization of lasers in non-laboratory environments," *Optics express*, vol. 19, no. 4, pp. 3471–3482, 2011.

[113] D. B. Leviton and B. J. Frey, "Temperature-dependent absolute refractive index measurements of synthetic fused silica," pp. 62732K–62732K, 2006.

[114] L.-S. Ma, P. Jungner, J. Ye, and J. L. Hall, "Delivering the same optical frequency at two places : accurate cancellation of phase noise introduced by an optical fiber or other time-varying path," *Optics letters*, vol. 19, no. 21, pp. 1777–1779, 1994.

[115] B. Argence, E. Prevost, T. Lévèque, R. Le Goff, S. Bize, P. Lemonde, and G. Santarelli, "Prototype of an ultra-stable optical cavity for space applications," *Optics express*, vol. 20, no. 23, pp. 25409–25420, 2012.

[116] P. Sellin, N. Strickland, J. Carlsten, and R. Cone, "Programmable frequency reference for subkilohertz laser stabilization by use of persistent spectral hole burning," *Optics letters*, vol. 24, no. 15, pp. 1038–1040, 1999.

[117] X. Xie, R. Bouchand, D. Nicolodi, M. Giunta, W. Hänsel, M. Lezius, A. Joshi, S. Datta, C. Alexandre, M. Lours, *et al.*, "Photonic microwave signals with zeptosecond-level absolute timing noise," *Nature Photonics*, 2016.

[118] P. Jobez, N. Timoney, C. Laplane, J. Etesse, A. Ferrier, P. Goldner, N. Gisin, and M. Afzelius, "Towards highly multimode optical quantum memory for quantum repeaters," *Physical Review A*, vol. 93, no. 3, p. 032327, 2016.

[119] C. Witchalls, "Nobel prizewinner : We are running out of helium," *New Scientist*, vol. 207, no. 2773, p. 29, 2010.

[120] M. Atrey, "Cryogenic engineering," 2014.

[121] R. Radebaugh, "Cryocoolers : the state of the art and recent developments," *Journal of Physics : Condensed Matter*, vol. 21, no. 16, p. 164219, 2009.

RÉSUMÉ

Les horloges à réseau optique montrent des performances impressionnantes et sont en train de soulever la question de la redéfinition de la seconde. Dans ces systèmes, un laser ultra-stable est utilisé en tant qu'oscillateur local pour sonder des transitions optiques trés étroites d'atomes neutres piégés dans un réseau optique. La stabilité ultime de ces dispositifs, déterminée par le nombre d'atomes interrogés à chaque cycle et évaluée à quelques $10^{-17}/\sqrt{\tau}$ (où τ est le temps d'intégration), n'est actuellement pas atteinte et est limitée à quelques $10^{-16}/\sqrt{\tau}$ par les fluctuations de phase du laser sonde. Si l'amélioration des cavités ultra-stables sur lesquels sont stabilisés les lasers sonde est largement étudiée, le LNE-SYRTE a opté pour une approche plus récente, dans laquelle la référence de fréquence utilisée est un trou brûlé spectral creusé dans un cristal dopé terres rares refroidi à température cryogénique (environ 4 K). Une stabilité court terme de quelques 10^{-18} pourrait alors être atteinte. Cette thèse décrit la construction de l'expérience et montre ensuite les résultats d'une étude spectroscopique à haute résolution sur des trous brûlés spectraux étroits (FWHM = 3.3 kHz) creusés dans le cristal $Eu^{3+} : Y_2SiO_5$. L'influence du cryostat à cycle fermé sur la stabilité des trous brûlés spectraux est notamment mise en évidence et diminuée. Enfin, une méthode d'asservissement originale basée sur une détection hétérodyne d'un trou brûlé spectral et un asservissement numérique via un FPGA qui permet de verrouiller le laser sur le sommet du trou brûlé spectral étroit est décrite et montre une stabilité court terme de quelques 10^{-14}, ce qui est un premier résultat encourageant pour la suite du projet.

Mots-clés : métrologie des fréquences optiques, lasers ultra-stables, trous brûlés spectraux, spectroscopie à haute résolution, horloges à réseau optique, cryogénie

ABSTRACT

Optical lattice clocks show impressive performances and are begining to raise the question of the redefinition of the SI second. In these systems, an ultra-stable laser is used as local oscillator to probe very narrow optical transitions of neutral atoms trapped in an optical lattice. The ultime stability of these systems, determined by the number of atoms interrogated at each clock cycle, evaluated at a few $10^{-17}/\sqrt{\tau}$ (where τ is the integration time), is currently not reached and is limited to a few $10^{-16}/\sqrt{\tau}$ by the phase fluctuations of the probe laser. If the enhancement of the ultra-stable cavities, on which are currently stabilized the probe lasers, is widely studied, LNE-SYRTE has adopted a more recent approach where the frequency reference is a spectral hole burned in rare earth doped crystal cooled down at cryogenic temperature (around 4 K). A short term stability of a few 10^{-18} could be achieved. This thesis describes the construction of the experiment and present the results of a high resolution spectroscopy of narrow spectral holes (FWHM = 3.3 kHz) burned in the crystal $Eu^{3+} : Y_2SiO_5$. The influence of the closed cycle cryostat on the behaviour of the spectral holes is hightlighted and reduced. Finally, an original locking scheme based on a heterodyne detection of a spectral hole and a numerical lock program using FPGA in order to stabilize the laser frequency on the top of the narrow spectral hole is described and shows a short term stability of a few 10^{-14}, which is a first promising result for the future of the project.

Key-words : optical frequency metrology, ultra-stable lasers, spectral hole burning, high resolution spectroscopy, optical lattice clocks, cryogenics