



HAL
open science

Horloge atomique microonde à technologie de microcellule améliorée et régime d'interrogation impulsif

Clément Carlé

► **To cite this version:**

Clément Carlé. Horloge atomique microonde à technologie de microcellule améliorée et régime d'interrogation impulsif. Micro et nanotechnologies/Microélectronique. Université Bourgogne Franche-Comté, 2023. Français. NNT : 2023UBFCD051 . tel-04474336

HAL Id: tel-04474336

<https://theses.hal.science/tel-04474336v1>

Submitted on 23 Feb 2024

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.

UBFC

UNIVERSITÉ
BOURGOGNE FRANCHE-COMTÉ



femto-st
SCIENCES &
TECHNOLOGIES

**THESE DE DOCTORAT DE L'ETABLISSEMENT UNIVERSITE
BOURGOGNE FRANCHE-COMTE**

PREPAREE A L'UNIVERSITE DE FRANCHE-COMTE

École doctorale n° 37

École Doctorale de Sciences Physiques pour l'Ingénieur et Microtechniques

Doctorat de sciences physiques pour l'ingénieur et microtechniques

Par

Clément Carlé

**Horloge atomique microonde à technologie de microcellule
améliorée et régime d'interrogation impulsional**

Thèse présentée et soutenue à Besançon, le 24 novembre 2023

Composition du Jury :

Vincent Giordano
Gaetano Mileti
Arnaud Landragin
Ghaya Baili
Rodolphe Boudot
Nicolas Passilly
Jean-Marc Lesage
Jérôme Delporte

Directeur de recherche CNRS, HDR, FEMTO-ST, Besançon
Professeur, UniNE, Neuchâtel
Directeur de recherche CNRS, SYRTE, Paris
Ingénieure, Thales TRT, Palaiseau
Chargé de recherche CNRS, HDR, FEMTO-ST, Besançon
Chargé de recherche CNRS, FEMTO-ST, Besançon
Ingénieur, DGA
Ingénieur, CNES

Président
Rapporteur
Rapporteur
Examinatrice
Directeur de thèse
Codirecteur de thèse
Invité
Invité

Table des matières

Remerciements	2
Introduction	4
1 Horloges atomiques	8
1.1 Références de fréquence et horloges atomiques	8
1.1.1 Définitions	8
1.1.2 Caractéristiques des performances d'une horloge	9
1.2 Architecture d'une horloge atomique	11
1.2.1 Principe de fonctionnement	11
1.2.2 Choix de l'atome de césium	12
1.2.3 Structure énergétique de l'atome de césium	12
1.2.4 Exploitation de la raie spectrale D_1	14
1.2.5 Méthodes d'interrogation des atomes	14
1.2.6 Asservissement de la fréquence de l'oscillateur local	17
1.3 Profils d'absorption optique	19
1.3.1 Densité atomique	19
1.3.2 Section efficace d'absorption	20
1.3.3 Élargissements et déplacements en fréquence de la transition optique	21
1.3.4 Exemples de spectres d'absorption optique en micro-cellule	24
1.3.5 Estimation de la pression de gaz tampon par spectroscopie laser	26
1.4 Piégeage Cohérent de Population (CPT)	28
1.4.1 Description	28
1.4.2 Caractéristiques de la résonance	31
1.4.3 Déplacements de fréquence de la résonance d'horloge	33
1.5 Micro-horloges atomiques CPT	36
1.5.1 Principe de fonctionnement	36
1.5.2 Enjeux économiques et sociétaux	38
1.5.3 Micro-horloges atomiques CPT : bref état de l'art	40
2 Protocoles d'interrogation impulsionnels en microcellule pour la réduction des déplacements lumineux	50
2.1 Déplacements lumineux	51
2.1.1 Régime continu	51
2.1.2 Régime impulsionnel Ramsey-CPT	53
2.2 Techniques de réduction des déplacements lumineux : état de l'art	54
2.2.1 Ajustement de l'indice de modulation avec la puissance micro-onde	54
2.2.2 Technique par sauts de phase	56
2.2.3 Stabilisation des paramètres expérimentaux	58
2.2.4 Méthodes par modulation de puissance	60
2.2.5 Régime d'interrogation Ramsey-CPT	63
2.3 Dispositif expérimental	63
2.3.1 Architecture de base	63
2.3.2 Spécificités du banc pour la séquence SABR-CPT	67
2.4 Interrogation Ramsey-CPT en microcellule	72
2.4.1 Séquence Ramsey-CPT	72
2.4.2 Spectroscopie CPT : Modes continu et Ramsey-CPT	72

2.4.3	Déplacements de fréquence	78
2.4.4	Stabilité de fréquence en régime Ramsey-CPT	82
2.4.5	Conclusion sur l'interrogation Ramsey-CPT en micro-cellule	83
2.5	Séquence d'interrogation Symmetric Auto-Balanced-Ramsey	84
2.5.1	Réduction des déplacements lumineux par séquences composites avancées : un bref historique	84
2.5.2	Rappel bref des fondements de la spectroscopie Auto-Balanced Ramsey	85
2.5.3	Séquence SABR-CPT pour une horloge à microcellule	86
2.5.4	Signaux d'erreur	87
2.5.5	Déplacement lumineux en mode SABR-CPT	87
2.5.6	Stabilité de fréquence avec l'interrogation SABR-CPT	89
2.5.7	Conclusion sur la technique d'interrogation SABR-CPT	91
3	Contrôle de l'atmosphère interne de la microcellule	94
3.1	Cellules à vapeur alcaline	95
3.1.1	Fabrication des cellules à verre soufflé	95
3.1.2	Microfabrication de cellule	95
3.2	Phénomène de perméation des gaz	98
3.2.1	Problématique et enjeux	98
3.2.2	Modèle théorique et mesures de la perméation dans la littérature	99
3.2.3	Protocole expérimental	100
3.2.4	Estimation des incertitudes de mesures	102
3.2.5	Validation du protocole expérimental	103
3.2.6	Bénéfice du verre aluminosilicaté à faible perméation	104
3.2.7	Exploitation de revêtements d'alumine	104
3.2.8	Détermination de l'énergie d'activation du verre aluminosilicaté	106
3.2.9	Conclusion sur l'étude de la perméation de l'hélium	107
3.2.10	Réduction de la perméation du néon	108
3.3	Mélanges de gaz : vers des micro-horloges à haute température	110
3.3.1	Les limites du néon	110
3.3.2	Mélange Ne-He : étude de faisabilité	112
3.3.3	Cellule Cs-Ne-He avec mélange réalisé dans la chambre de soudure anodique	114
3.3.4	Concept de vannes ouvrantes pour des mélanges à pondération contrôlée	115
3.3.5	Cellule Cs-Ne-He par mélange avec des vannes ouvrantes	119
3.3.6	Saturation en azote de la pastille de césium avec les vannes ouvrantes	121
3.4	Microcellules à pureté améliorée	122
3.4.1	Isolation de la pastille de césium avec les vannes fermantes	122
3.4.2	Combinaison des vannes ouvrantes et fermantes	128
4	Intégration des solutions pour une horloge à micro-cellule haute performance	132
4.1	Banc expérimental	132
4.2	Exploitation d'une cellule Cs-Ne avec verre aluminosilicaté	133
4.3	Stabilisation de la température de l'enceinte	134
4.4	Asservissement de la puissance micro-onde	138
4.5	Asservissement de la puissance laser	140
4.6	Optimisation de la stabilité court-terme	142
	Conclusion	146
	Annexes	150
	Bibliographie	176

Remerciements

Je tiens dans un premier temps à remercier infiniment mes directeurs de thèse, Rodolphe Boudot et Nicolas Passilly, de m'avoir donné la chance de travailler avec vous sur la thématique passionnante des horloges atomiques. Je vous remercie tous les deux énormément pour votre encadrement exemplaire et sans faille. La communication et le partage est indispensable pour avancer tous ensemble avec efficacité, et en ce sens je vous remercie pour votre disponibilité et votre présence. Votre complémentarité scientifique et personnelle m'a permis d'apprendre énormément durant cette thèse, et je suis reconnaissant envers ce transfert de connaissances. Merci de m'avoir poussé à participer à de nombreuses conférences afin de présenter nos travaux, ce qui m'a permis de sortir du laboratoire et de rencontrer les acteurs de notre communauté. Enfin, vos nombreuses relectures attentives de mon manuscrit de thèse et le temps consacré à la préparation de ma soutenance m'ont été énormément précieux. C'est un réel plaisir de travailler avec vous, et je suis conscient de la chance que j'ai de vous côtoyer.

Je remercie par la suite les membres qui ont constitué mon jury de thèse d'avoir accepté d'évaluer mes travaux et pour leur disponibilité, notamment Gaetano Mileti et Arnaud Landragin d'avoir été rapporteur. Je remercie particulièrement Vincent Giordano d'avoir présidé ma soutenance de thèse et pour sa relecture très approfondie de mon manuscrit. Enfin, je remercie Ghaya Baili, Jean-Marc Lesage et Jérôme Delporte pour leur participation à l'évaluation de ma thèse. Merci beaucoup pour le temps que vous avez consacré à mes travaux et pour vos différentes corrections et remarques constructives.

J'adresse également mes remerciements à la Direction Générale de l'Armement (DGA) et le Centre National d'Etudes Spatiales (CNES) qui ont co-financé cette thèse. Merci pour le suivi attentif que vous avez apporté à mes travaux.

Puisqu'une thèse est avant tout un travail d'équipe, je remercie de tout mon coeur les collègues avec qui j'ai eu la chance de collaborer durant ces trois années. Je pense avant tout à Moustafa Abdel Hafiz, le grand Mous, que je ne pourrai jamais assez remercier pour son aide et son encadrement durant ma thèse. Merci d'avoir été disponible dans la seconde à chaque fois que je t'ai sollicité, et pour ton expertise scientifique. Tes connaissances théoriques et ton savoir-faire expérimental ne cesseront de m'impressionner, autant que ta gentillesse et ta bonne humeur.

Je tiens ensuite à remercier mon compagnon de pêche préféré, Rémy Vicarini, autant pour l'aide que tu m'as apporté sur les manips que dans mes projets personnels. Merci pour toutes ces heures passées (et à venir ?) ensemble.

Je remercie Philippe Abbé, qu'on m'a présenté comme le MacGyver du laboratoire en arrivant, pour avoir bénéficié de tes talents pour la réalisation technique des bancs multi-cellules. Merci infiniment à Shervin Keshavarzi et Andrei Mursa pour la fabrication de nos chères micro-cellules et pour leur savoir-faire en salle blanche. J'en profite également pour remercier le personnel de MIMENTO qui a contribué aux processus de microfabrication. Enfin, j'adresse plus généralement mes remerciements à tous les collègues et doctorants du laboratoire que j'ai pu côtoyer de près ou de loin : Clément, Jacques, Yann, Marion, Emmanuel, Christophe, Enrico, François, Jean-Michel, Emile, Jonathan, Gilles, Martina, Martin, Carlos, Juliette... Merci au docteur Toto Gusching de m'avoir guidé au laboratoire durant ma première année et pour ces longues après-midis passer à bricoler en manip. Enfin, je remercie particulièrement Damien Teyssieux pour m'avoir poussé et aider vers le chemin de la thèse. Je m'excuse envers toutes les personnes que j'aurais oublié de citer.

Pour conclure ces mots, j'adresse mes remerciements à ma famille, belle-famille et amis pour leur soutien durant ces trois années. Je remercie mon acolyte et pilier de toujours, Sylvain, pour sa confiance et son aide. Bon courage pour la fin de la rédaction de ton manuscrit, j'ai hâte d'assister à ta soutenance en 2028 ! Merci à Quentin, "Hibouxe", pour ces heures de rires qui m'ont beaucoup aidé à décompresser.

Je remercie encore mes parents et ma soeur, pour votre soutien moral et matériel, ainsi que pour les liens très forts qui nous unissent. Pour finir, je remercie tendrement Pauline, ma moitié, pour m'avoir soutenu et supporté durant ces mois de rédaction.

Introduction

La mesure précise du temps et des fréquences est un pilier fondamental pour de nombreuses expériences scientifiques et une multitude d'applications civiles, industrielles et stratégiques telles que la navigation, le positionnement par satellite, les communications ou la recherche géophysique. Les horloges atomiques, dont le principe est d'asservir la fréquence d'un oscillateur local sur une transition atomique, constituent des candidates idéales pour fournir des références de fréquences stables et précises. Néanmoins, pendant de nombreuses années, le déploiement de ces horloges dans de tels systèmes a été entravé en raison de l'exigence d'applications portables ou embarquées nécessitant des références de fréquence basse consommation, bas coût et pouvant être produites en grande quantité. Ainsi, le développement d'horloges atomiques miniatures, associées à des performances de stabilité de fréquence élevées dans des environnements de plus en plus exigeants, est devenu un enjeu stratégique et capital.

Depuis le début des années 2000, l'exploitation du processus quantique de piégeage cohérent de population (CPT) [1, 2], combiné à l'utilisation de diodes laser de type VCSEL (Vertical Cavity Surface Emitting Laser) [3, 4] et de cellules à vapeur alcaline microfabriquées [5-8], a permis le développement d'horloges atomiques miniatures dont le budget stabilité-volume-consommation reste à ce jour inégalé. Les performances typiques de stabilité de fréquence de ces horloges sont de l'ordre de quelques 10^{-11} à une journée d'intégration ($\sim 1 \mu\text{s}\cdot\text{j}^{-1}$), pour un volume de $15 - 20 \text{ cm}^3$, une consommation de puissance de $100 - 200 \text{ mW}$ et une large gamme de température d'opération allant de -40 à $+80^\circ\text{C}$ [9]. Ces horloges offrent ainsi des performances de stabilité journalières 100 fois supérieures à celles des oscillateurs à quartz pour un budget volume-consommation comparable.

Le premier prototype d'une micro-horloge atomique a été démontré au NIST aux États-Unis en 2004 [10]. Par la suite, la DARPA a financé le projet CSAC (Chip Scale Atomic Clock) aboutissant en 2011 à la première micro-horloge atomique commerciale [11]. À l'aube du vingtième anniversaire des travaux pionniers du NIST, de nombreux laboratoires de recherche et industriels travaillent toujours activement sur cette thématique avec l'ambition d'aboutir à des micro-horloges aux performances augmentées [12-21].

En Europe, les premières activités de recherche sur le sujet ont été initiées à l'Institut FEMTO-ST dès 2005 avec la proposition d'une technologie originale de cellule à vapeur alcaline microfabriquée [7]. Cette technologie a donné au laboratoire la légitimité pour le pilotage de 2008 à 2012 d'un projet européen, nommé MAC-TFC, regroupant 10 partenaires académiques et industriels, et conduisant à la démonstration d'un premier prototype européen d'horloge atomique basé sur des technologies MEMS (Microelectromechanical systems). Suite à ce projet, un consortium académique-industriel a été mis en place en France en 2014, soutenu par la DGA, associant Tronics, Syrlinks et FEMTO-ST, et visant au développement et la valorisation d'une micro-horloge atomique industrielle française [22]. La pérennité de cette collaboration s'est confirmée de 2020 à 2023 avec le projet ANR-DGA Astrid PULSACION associant FEMTO-ST et Syrlinks.

Mon travail de thèse, effectué à l'Institut FEMTO-ST à Besançon, co-financé par la DGA (Direction Générale de l'Armement) et le CNES (Centre National d'Etudes Spatiales), s'inscrit dans le cadre du projet ANR-DGA PULSACION. Le programme de ce travail de thèse reposait sur le constat initial suivant. En dépit de performances déjà très attractives, les micro-horloges atomiques CPT présentent des performances de stabilité long-terme dégradées par deux phénomènes majeurs. Le premier phénomène est lié aux déplacements lumineux. Ces derniers traduisent la sensibilité de la fréquence d'horloge aux variations des paramètres clés du champ laser d'interrogation (puissance laser, fréquence laser, puissance micro-onde) interagissant avec les atomes. Le second phénomène est lié à l'évolution progressive de l'atmosphère interne de la micro-cellule à vapeur alcaline. Cette évolution peut être induite par des processus variés tels qu'une pénétration de gaz provenant de l'extérieur, ou une fuite de gaz, ou une lente évolution de la population d'atomes alcalins au sein de la cellule.

En réponse à ces verrous, mes travaux de thèse ont porté sur deux axes de recherche majeurs et complémentaires. Le premier axe d'étude a concerné l'implémentation et la démonstration expérimentale de protocoles d'interrogation impulsionnels originaux, permettant une réduction significative des déplacements lumineux. Ces séquences composites, qui trouvent leur origine dans la méthode de spectroscopie inventée en 1949 par N.F. Ramsey [23] exploitée au coeur des meilleures horloges atomiques de laboratoire, n'avaient jamais été, à notre connaissance, explorées pour des horloges à micro-cellule.

Le second axe d'étude s'est concentré sur l'exploration et la démonstration de solutions innovantes visant à améliorer le contrôle de l'atmosphère interne des cellules microfabriquées. Ces travaux englobent l'utilisation de substrats de verre aluminosilicatés qui peuvent être associés à des revêtements d'alumine visant à réduire la perméation de gaz à travers le verre de la cellule, mais aussi la preuve de concept d'une nouvelle méthode de remplissage basée sur l'exploitation de vannes ouvrantes et fermantes microfabriquées.

La complémentarité de ces deux axes de recherche pourrait établir les bases d'une micro-horloge atomique CPT plus performante, caractérisée notamment par une meilleure stabilité de fréquence long-terme mais aussi par une gamme de température de fonctionnement élargie et une compatibilité accrue à la fabrication collective et la production de masse. Ces avantages, d'intérêt majeur pour de nombreuses applications, pourraient donner à la future micro-horloge française un avantage significatif renforçant son attrait sur le marché et favorisant sa commercialisation.

Mon manuscrit de thèse se décompose en 4 chapitres.

Le chapitre 1 introduit le principe de fonctionnement d'une horloge atomique ainsi que les outils métrologiques permettant la caractérisation de ses performances. Nous présentons ensuite les méthodes d'interrogation dites de Rabi et de Ramsey. Nous rappelons quelques fondements de spectroscopie optique utiles pour l'extraction d'informations (pression de gaz tampon, densité alcaline) concernant le contenu de nos microcellules. Nous introduisons le phénomène de piégeage cohérent de population (CPT) exploité par l'horloge et les sources de déplacements de fréquence principales. Une brève revue de l'état de l'art des micro-horloges CPT est enfin présentée, permettant de positionner mon travail et ses motivations.

Le chapitre 2 porte sur le premier axe de recherche et démontre l'implémentation de méthodes d'interrogations impulsionnelles pour une horloge CPT à microcellule. Nous effectuons d'abord un bref rappel des phénomènes de déplacements lumineux. Nous explorons ensuite la méthode d'interrogation Ramsey-CPT dans notre démonstrateur d'horloge à microcellule. Une réduction de la sensibilité de la fréquence d'horloge aux variations de puissance laser par un facteur 40 en comparaison au régime continu est démontrée, bénéficiant à la stabilité de fréquence pour des temps d'intégration supérieurs à 100 s [24]. Dans un second temps, afin de renforcer l'immunité de l'horloge aux déplacements lumineux résiduels, nous démontrons l'efficacité en microcellule d'une technique d'interrogation nommée Symmetric-Auto-Balanced-Ramsey (SABR) [25]. Avec cette méthode, la sensibilité de la fréquence d'horloge aux variations du champ laser est réduite par plus de deux ordres de grandeur comparativement au régime d'interrogation continu. Une amélioration nette de la stabilité de fréquence d'horloge est alors observée pour des temps d'intégration compris entre 10^2 et 10^5 s [26].

Le chapitre 3 porte sur le second axe de recherche qui vise à renforcer et améliorer le contrôle de l'atmosphère interne de la microcellule. En premier lieu, nous avons, à l'aide d'un banc d'horloge CPT à 6 cellules dédié que j'ai développé, investigué la perméation d'hélium à travers différents substrats de verre (borosilicaté-BSG et aluminosilicaté-ASG) associés à des revêtements en alumine (Al_2O_3). Après avoir confirmé une réduction de la perméation de l'hélium avec les verres ASG [27], nous avons démontré que l'utilisation de couches Al_2O_3 mène à une diminution de la perméation par un facteur allant jusque 130 à travers le verre BSG et de l'ordre de 5 avec le verre ASG [28]. Dans la seconde partie de ce chapitre, nous avons démontré une nouvelle approche de remplissage de microcellule. Cette approche, proposée lors des travaux de thèse de V. Maurice [29], transpose en microfabrication les techniques de remplissage des cellules en verre traditionnelles. Cette méthode repose sur des micro-structures actionnables par laser qui, en ouvrant ou fermant successivement des vannes micro-structurées, permet le remplissage séquentiel de la cellule par la vapeur de métal alcalin et un ou plusieurs gaz tampon. Cette approche pourrait constituer la base de microcellules à mélanges de gaz propices à des applications spécifiques haute température.

Dans le chapitre 4, nous utilisons les solutions développées dans les chapitres 2 et 3 pour optimiser la stabilité long-terme d'une horloge CPT à microcellule. Dans cette étude, nous couplons une microcellule césium-néon à verres aluminosilicatés, la séquence d'interrogation SABR, et des boucles d'asservissement additionnelles de la température, de la puissance micro-onde et de la puissance laser. La combinaison de ces solutions conduit à la démonstration d'une horloge CPT à microcellule avec une stabilité relative de fréquence de 7×10^{-11} à 1 s et 1.4×10^{-12} à 10^5 s [30]. Ces performances de stabilité journalière sont compétitives avec celles des meilleures horloges micro-ondes à microcellule [31-33].

Le manuscrit se conclut par un chapitre de conclusions apportant par ailleurs la suggestion de voies de recherches futures.

Chapitre 1

Horloges atomiques

Ce chapitre est une introduction au fonctionnement d'une horloge atomique et à ses applications. La première section de ce chapitre définit les notions de références de fréquence et horloges atomiques, ainsi que les outils métrologiques utilisés pour caractériser leurs performances.

La seconde section détaille le fonctionnement d'une horloge atomique. Nous justifions le choix d'un atome alcalin tel que le césium pour la réalisation d'une horloge atomique et explicitons sa structure énergétique.

Nous fournissons ensuite dans une troisième section des notions élémentaires de spectroscopie atomique. Nous présentons un modèle d'absorption optique et détaillons les sources de déplacement et d'élargissement en fréquence de la transition optique. Ce modèle est utilisé par la suite dans le chapitre 3 pour approximer les profils d'absorption optique dans une cellule à mélange de gaz et extraire des informations clés telles que la densité atomique ou la pression de gaz tampon.

La quatrième section est une description du phénomène de piégeage cohérent de population (CPT : Coherent Population Trapping). Cette section décrit les principales caractéristiques de la résonance CPT impactant la stabilité de fréquence court-terme de l'horloge, ainsi que les sources de déplacement et d'élargissement de la résonance hyperfine pouvant dégrader la stabilité de fréquence d'horloge.

La cinquième section présente enfin un état de l'art des micro-horloges atomiques ainsi que leurs applications. Nous mettons en avant les limitations actuelles de ces horloges, justifiant la nécessité du travail de recherche effectué durant ma thèse.

1.1 Références de fréquence et horloges atomiques

1.1.1 Définitions

Le signal utile délivré par un oscillateur idéal, non perturbé, peut être décrit par l'expression suivante :

$$V(t) = V_0 \cos(2\pi\nu_0 t) \quad (1.1)$$

avec V_0 l'amplitude du signal et ν_0 la fréquence du signal. En conditions réelles, divers phénomènes déterministes ou aléatoires perturbent l'amplitude, la fréquence et la phase de ce signal idéal. Le signal réel s'exprime alors comme :

$$V(t) = V_0 [1 + \epsilon + \alpha(t)] \cos(2\pi\nu_0 t + \varphi(t)) \quad (1.2)$$

où $\alpha(t)$ et $\varphi(t)$ traduisent la modulation d'amplitude et de phase du signal et ϵ le décalage par rapport à la fréquence de résonance non-perturbée. La modulation d'amplitude est généralement négligée devant la modulation de phase.

On définit la fréquence instantanée comme :

$$\nu(t) = \nu_0 + \frac{1}{2\pi} \frac{d\varphi}{dt} \quad (1.3)$$

On introduit aussi les fluctuations relatives de fréquence $y(t)$ telles que :

$$y(t) = \frac{\nu(t) - \nu_0}{\nu_0} = \frac{1}{2\pi\nu_0} \frac{d\varphi}{dt} \quad (1.4)$$

1.1.2 Caractéristiques des performances d'une horloge

Une horloge est caractérisée par deux critères majeurs qui sont sa stabilité de fréquence et son exactitude.

A) Stabilité de fréquence

La stabilité relative de fréquence d'une horloge, généralement nommée par abus de langage "stabilité de fréquence", est définie à partir de l'écart-type des fluctuations relatives de fréquence du signal sur un temps d'intégration ou de mesure τ . Elle est quantifiée par un outil métrologique d'analyse statistique : la déviation d'Allan, ou écart-type d'Allan [34]. Dans cette méthode, on appelle \bar{y}_i la valeur moyenne des fluctuations du signal $y(t)$ sur l'intervalle de temps $\tau = [t_i; t_{i+1}]$:

$$\bar{y}_i = \frac{1}{\tau} \int_{t_i}^{t_{i+1}} y(t) dt \quad (1.5)$$

Un exemple de discrétisation d'un signal d'horloge est représenté sur la figure 1.1.

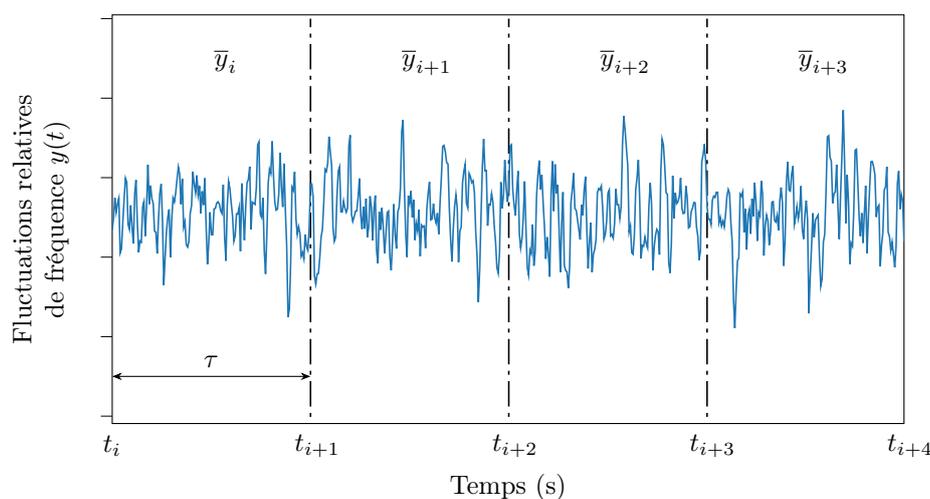


FIGURE 1.1 – Exemple d'évolution de la fréquence du signal d'une horloge en fonction du temps.

La déviation d'Allan est définie comme :

$$\sigma_y(\tau) = \sqrt{\frac{1}{2} \langle (\bar{y}_{i+1} - \bar{y}_i)^2 \rangle} \quad (1.6)$$

La déviation d'Allan se trace sur une échelle logarithmique. L'incertitude liée à la mesure de la déviation d'Allan d'un signal pour un temps d'intégration τ est minimisée par une acquisition de données plus longue. Cette méthode permet une discrimination des différents types de bruit liés à une mesure suivant les pentes observées. La figure 1.2 présente les types de bruit pour une pente donnée sur la courbe de déviation d'Allan.

Dans le cadre d'horloges atomiques à cellule, on observe généralement un bruit blanc de fréquence pour des durées d'intégration typiques entre 1 et 100 s. Au delà, on observe un palier flicker puis une dégradation de la stabilité sous forme de marche aléatoire (pente $\tau^{1/2}$), voire de dérive de fréquence (pente τ), induite par des déplacements de fréquence. Ces derniers sont détaillés dans le sous-chapitre 1.4.3.

B) Exactitude

L'exactitude d'une horloge atomique correspond à l'incertitude de mesure sur la différence ϵ entre la fréquence moyenne du signal délivré ν et la fréquence de transition atomique non perturbée ν_{at} ($\epsilon = \nu - \nu_{at}$). Ce décalage trouve son origine dans de nombreux phénomènes systématiques (présence d'un champ magnétique, déplacement induit par le champ laser, etc) ou aléatoires (fluctuations de température, vibrations, etc). Les effets systématiques peuvent être évalués par une modélisation des phénomènes physiques impliqués et mesurés en relevant la fréquence de l'horloge pour plusieurs paramètres de fonctionnement. Dans les horloges atomiques à cellule, la fréquence des atomes est généralement décalée par l'effet d'une pression de gaz tampon. Ainsi, nous serons principalement concentrés dans ce travail de thèse par la stabilité de nos horloges. Le budget d'exactitude ne sera pas considéré.

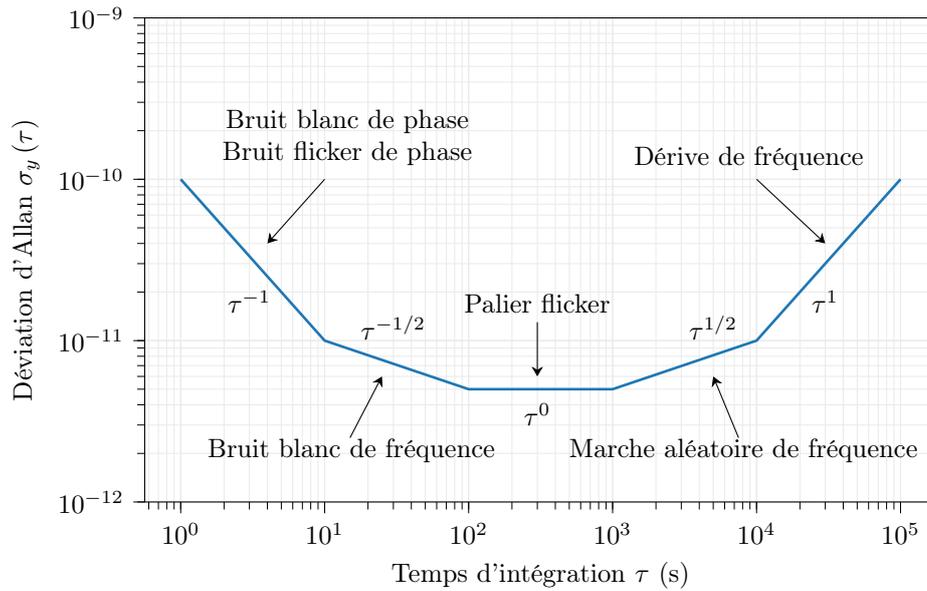


FIGURE 1.2 – Types de bruit en fonction de la pente relevée sur une courbe de déviation d’Allan tracée en échelle logarithmique.

La figure 1.3 est une représentation graphique des notions abordées dans cette partie. La figure 1.3(a) est un exemple de signal instable et inexact. Le signal représenté sur la figure 1.3(b) est stable mais inexact, tandis que ceux en (c) et (d) sont à la fois stables et exacts. On remarque toutefois que le signal de 1.3(d) est plus stable que celui de 1.3(c) sur des temps d’intégration courts.

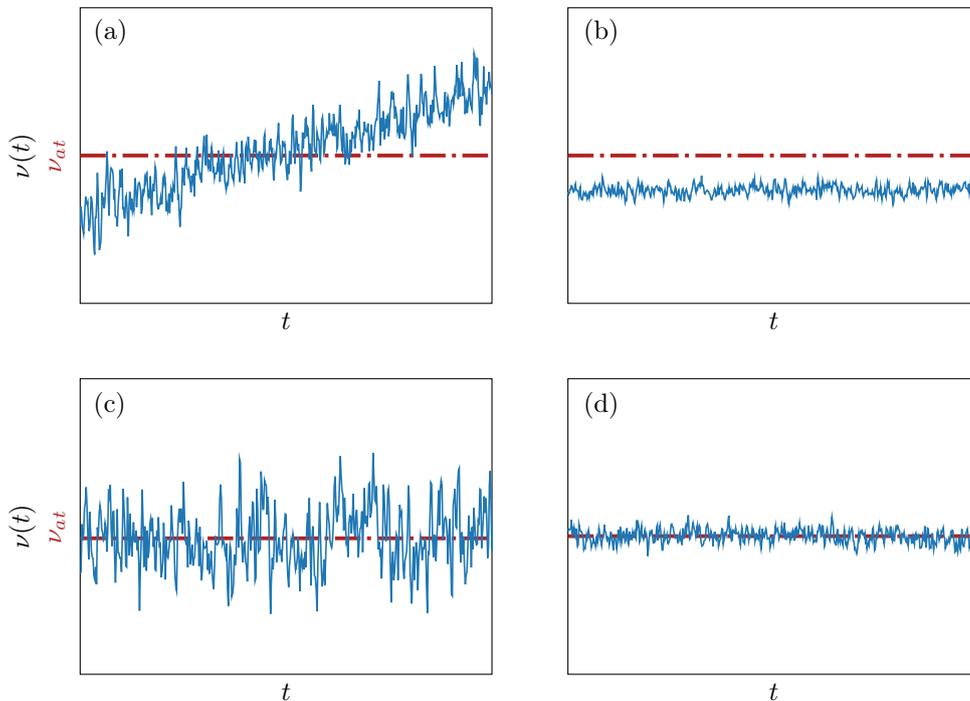


FIGURE 1.3 – Représentation graphique des notions de stabilité et d’exactitude. Le signal de la figure (a) est ni stable ni exact, (b) est stable mais inexact, (c) et (d) sont stables et exacts. La stabilité court-terme de (d) est meilleure que celle de (c).

1.2 Architecture d'une horloge atomique

1.2.1 Principe de fonctionnement

Le principe d'une horloge atomique consiste à asservir la fréquence d'un oscillateur local sur la fréquence de résonance atomique correspondant à la fréquence de transition entre deux niveaux d'énergie d'une espèce atomique. L'architecture d'une horloge atomique passive, représentée par la figure 1.4, est relativement simple et se compose de trois parties principales distinctes : un oscillateur local, un résonateur atomique et une électronique d'asservissement.

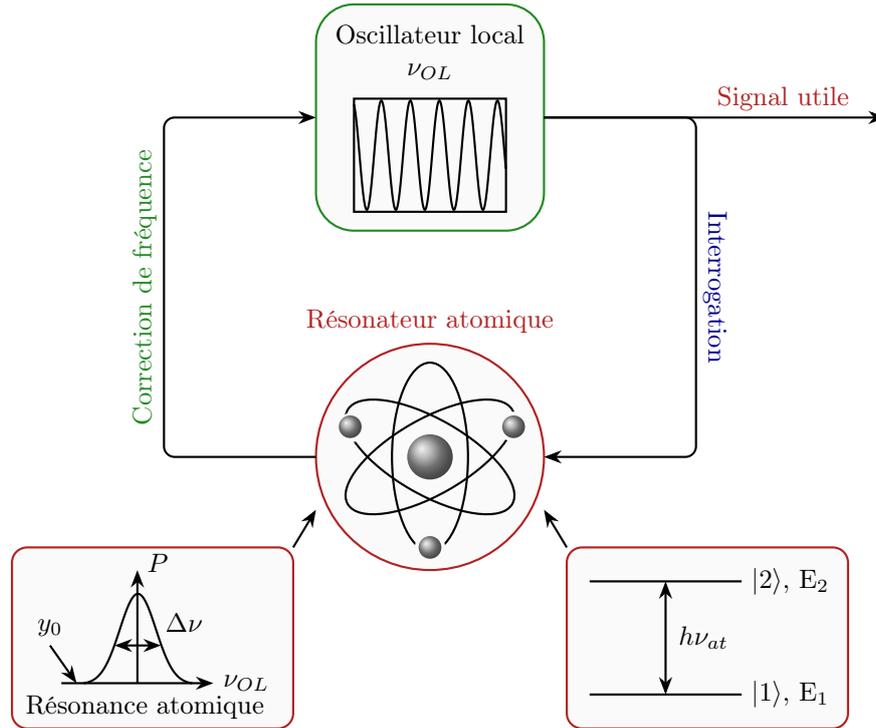


FIGURE 1.4 – Architecture d'une horloge atomique. $|1\rangle$ et $|2\rangle$ représentent l'état fondamental et l'état excité d'énergies E_1 et E_2 . ν_{at} est la fréquence de transition atomique non perturbée. Le graphique de gauche représente la probabilité de transition atomique en fonction de la fréquence de l'oscillateur local ν_{OL} . La largeur à mi-hauteur du signal de résonance est notée $\Delta\nu$.

L'oscillateur local (OL) est un système dont la fonction est de délivrer un signal périodique de fréquence ν_{OL} . Sa fréquence, susceptible de varier dans le temps, est asservie sur la fréquence de transition atomique à l'aide d'une électronique d'asservissement. Dans le cas d'horloges atomiques micro-ondes, cet oscillateur est en règle générale un oscillateur à quartz (10 MHz) associé à une chaîne de synthèse de multiplication de fréquence. Dans le cas des horloges optiques, l'oscillateur local est une source laser.

Le résonateur atomique est constitué d'un ensemble d'atomes, d'ions ou d'un ion unique. Le résonateur atomique est le coeur de l'horloge atomique et constitue la référence de fréquence. Un atome seul, isolé, au repos et en champ magnétique nul a des transitions atomiques discrètes et bien connues. Le signal de l'oscillateur local est utilisé pour sonder la transition atomique de fréquence ν_{at} . La fréquence ν_{OL} doit satisfaire la relation de Bohr pour exciter la transition atomique, telle que :

$$\Delta E = E_2 - E_1 = h \nu_{at} \quad (1.7)$$

avec h la constante de Planck ($6.626 \times 10^{-34} \text{ m}^2 \text{ kg s}^{-1}$) et E_1 , E_2 les énergies des niveaux $|1\rangle$ et $|2\rangle$. Cette interaction permet de délivrer un signal de résonance image de la différence de fréquence entre ν_{OL} et ν_{at} . Le désaccord en fréquence, noté $\delta = (\nu_{OL} - \nu_{at})$, est égal à zéro lorsque $\nu_{OL} = \nu_{at}$. La réponse atomique est caractérisée par un signal de résonance de largeur à mi-hauteur (FWHM) $\Delta\nu$ et d'amplitude S . On définit le contraste C de la résonance tel que $C = S/y_0$, avec y_0 le fond du signal.

Une électronique d'asservissement recueille la "réponse atomique", l'analyse, produit un signal d'erreur passant par zéro au sommet de la résonance atomique, et délivre un signal de correction afin de maintenir la fréquence de l'oscillateur local ν_{OL} égale à la fréquence de la transition atomique ν_{at} .

La stabilité relative de fréquence court-terme $\sigma_y(\tau)$ d'une horloge atomique est approximée par [34] :

$$\sigma_y(\tau) \approx \frac{\Delta\nu}{\nu_0} \frac{1}{SNR} \tau^{-1/2} \approx \frac{1}{Q} \frac{1}{SNR} \tau^{-1/2} \quad (1.8)$$

avec $Q = \nu_0/\Delta\nu$ le facteur de qualité de la résonance atomique et SNR (Signal-to-Noise Ratio) le rapport signal à bruit de la résonance d'horloge dans une bande de 1 Hz. La réalisation d'une horloge atomique de haute performance passe donc par la détection d'une résonance avec une faible largeur de raie (i.e. un fort facteur de qualité) et un rapport SNR le plus grand possible.

1.2.2 Choix de l'atome de césium

Les atomes alcalins sont utilisés dans presque toutes les horloges atomiques micro-ondes. Ce choix se justifie premièrement par leur grande densité de vapeur alcaline permettant l'observation de forts signaux spectroscopiques. Deuxièmement, l'espacement fréquentiel des transitions hyperfines est dans le domaine du GHz, bien adapté aux composants et technologies radio-fréquences (RF) et hyperfréquences. Enfin, la structure électronique "simple" des atomes alcalins facilite le pompage optique des atomes tandis que la section efficace d'absorption est suffisamment importante pour une détection efficace de l'état atomique lors de l'interaction avec le champ d'interrogation. Deux atomes alcalins sont principalement exploités : le rubidium et le césium.

Dans le cadre de cette thèse, nous utiliserons l'atome de césium. La fréquence de transition hyperfine du césium est de 9 192 361 770 Hz (contre environ 6.834 GHz pour le rubidium 87). L'isotope 133 est le seul isotope stable, non radioactif et non radiotoxique du césium. Il est abondamment présent sur Terre dans le minerai de pollucite. La grande majorité des réserves sont extraites d'un gisement contenant les deux tiers des ressources mondiales accessibles à Bernic Lake, au Canada. Selon une estimation, la demande mondiale de césium pur est de moins de 25 tonnes par an, assurant des réserves suffisantes pour des millénaires [35].

1.2.3 Structure énergétique de l'atome de césium

Un atome de césium au repos se situe dans la sous-couche électronique s . La structure fine est le résultat du couplage entre le moment angulaire orbital L de l'électron de la couche extérieure avec son spin S ($S = 1/2$ pour le césium). Le moment angulaire total de l'électron J est encadré par :

$$|L - S| \leq J \leq L + S \quad (1.9)$$

Dans l'état au repos, $L = 0 \Rightarrow J = 1/2$, expliquant l'unique niveau énergétique. Dans l'état excité, l'électron de la couche extérieure passe dans la sous-couche p et son moment angulaire orbital passe à $L = 1$. La couche p permet le dédoublement de la raie spectrale car $J = \{1/2, 3/2\}$. On nomme ces deux composantes les raies D_1 ($6^2S_{1/2} \rightarrow 6^2P_{1/2}$) et D_2 ($6^2S_{1/2} \rightarrow 6^2P_{3/2}$). Les deux raies spectrales se situent dans le proche infrarouge ($\lambda_{D_1} = 894.5$ nm et $\lambda_{D_2} = 852.3$ nm).

L'apparition de la structure hyperfine est le résultat entre le couplage de J avec le moment angulaire nucléaire total I ($I = 7/2$ pour le césium), défini et encadré par :

$$|J - I| \leq F \leq J + I \quad (1.10)$$

On observe dans l'état au repos une séparation en deux sous-niveaux d'énergie $F = \{3, 4\}$. L'état excité de la raie D_1 comprend deux sous-niveaux $F' = \{3, 4\}$. La raie D_2 , de par son moment angulaire total plus élevé, se sépare en quatre sous-niveaux $F' = \{2, 3, 4, 5\}$. On notera dans la suite $\nu_{F,F'}$ la fréquence de transition entre l'état au repos F vers l'état excité F' . La figure 1.5 détaille la structure hyperfine de la raie D_1 et D_2 du césium.

Chaque niveau énergétique de la structure hyperfine est composé de $2F + 1$ sous-niveaux Zeeman de nombre quantique m_F . En l'absence de champ magnétique, les niveaux sont dégénérés (confondus en une unique transition). L'application d'un champ magnétique entraîne une levée de dégénérescence Zeeman, conduisant à une discrétisation de ces sous-niveaux. Cet écartement des transitions est possible car chaque sous-niveau présente une sensibilité au champ magnétique appliqué. L'énergie d'un sous-niveau $|F, m_F\rangle$ soumis à un champ magnétique B peut être calculé avec la formule de Breit-Rabi [36, 37] :

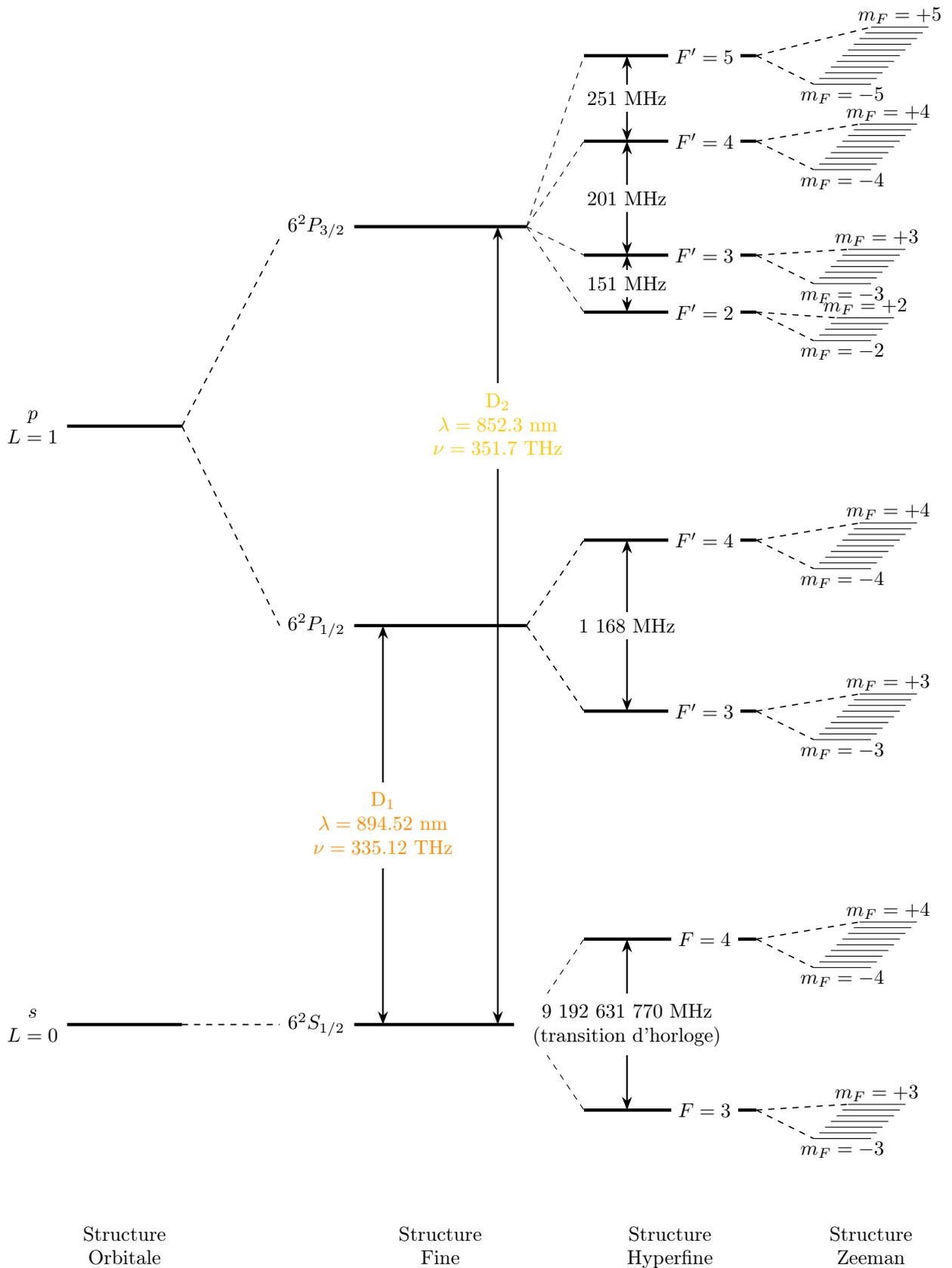


FIGURE 1.5 – Structure énergétique de l'atome de césium (raies D_1 et D_2).

$$E_{F,m_F} = -\frac{\Delta E}{2(2I+1)} - g_I m_F \mu_B B \pm \frac{\Delta E}{2} (1 + \frac{4m_F}{2I+1} x + x^2)^{1/2} \quad (1.11)$$

avec μ_B le magnéton de Bohr, g_I le facteur de Landé nucléaire, g_J le facteur de Landé électronique, ΔE l'écart hyperfin de l'état fondamental et $x = (g_I + g_J)\mu_B B / \Delta E$. Cette expression permet de calculer la fréquence de transition entre les sous-niveaux $|3, m_3\rangle$ et $|4, m_4\rangle$:

$$\nu_{3,m_3 \Rightarrow 4,m_4} = \frac{E_{4,m_4} - E_{3,m_3}}{h} = g_I \mu_B B (m_3 - m_4) + \frac{\nu_0}{2} \left(\left(1 + \frac{4m_3}{2I+1} x + x^2\right)^{1/2} + \left(1 + \frac{4m_4}{2I+1} x + x^2\right)^{1/2} \right) \quad (1.12)$$

Cette expression peut être rendue moins opaque en appliquant le développement limité de la racine :

$$\sqrt{1+X} = \sum_{n=0}^{\infty} \frac{(-1)^n (2n)!}{(1-2n)(n!)^2 (4^n)} X^n = 1 + \frac{1}{2}X - \frac{1}{8}X^2 + \dots \text{ pour } |X| \leq 1 \quad (1.13)$$

avec $X = \frac{m_F}{2} x + x^2$. On réécrit ainsi l'équation (1.12) de la façon suivante :

$$\nu_{3,m_3 \Rightarrow 4,m_4} \approx \frac{g_I \mu_B B (m_3 - m_4)}{h} + \nu_0 \left[1 + \frac{m_3 + m_4}{8} x + \left(1 - \frac{m_3^2 + m_4^2}{32}\right) \frac{x^2}{2} \right] \quad (1.14)$$

Les transitions Zeeman présentent au premier ordre une dépendance linéaire au champ magnétique. La transition hyperfine $|3, m_F = 0\rangle \Rightarrow |4, m_F = 0\rangle$, aussi appelée résonance métrologique ou fréquence de transition d'horloge, présente une dépendance quadratique au champ magnétique (avec B en gauss) :

$$\nu_{3,0 \Rightarrow 4,0} = \frac{(g_J - g_I)^2 \mu_B^2}{2\nu_0} B^2 \approx 427 B^2 \quad (1.15)$$

1.2.4 Exploitation de la raie spectrale D_1

Les horloges atomiques CPT présentent de meilleures performances en utilisant un laser accordé sur la raie D_1 [38]. L'avantage de la raie D_1 s'explique principalement par sa structure énergétique plus simple que la raie D_2 . La raie D_1 ne possède en effet que deux niveaux hyperfins dans l'état excité ($|F' = 3\rangle$ et $|F' = 4\rangle$), de plus bien résolus en fréquence avec une séparation fréquentielle de 1.16 GHz (au lieu de quelques 100 MHz pour la raie D_2). Cette caractéristique est spécifiquement avantageuse dans les expériences de micro-horloges atomiques CPT dans lesquelles des cellules micro-fabriquées opèrent à haute densité et sont remplies avec une pression élevée de gaz tampon. En effet, l'élargissement collisionnel des transitions optiques peut induire un mélange des états hyperfins, réduisant ainsi l'efficacité du pompage CPT. Aussi, au contraire de la raie D_2 , la raie D_1 ne présente pas de transitions cyclantes, desquelles des atomes, initialement pompés, ne ressortiront jamais, ne participant donc pas à la résonance CPT d'intérêt.

Dans la suite de cette étude, nous travaillerons avec la raie D_1 du césium. Nous exploiterons la transition vers $|F' = 4\rangle$ présentant une absorption plus forte que la transition vers $|F' = 3\rangle$. Cette caractéristique implique la détection de résonances CPT avec un meilleur contraste, favorable pour l'amélioration de la stabilité de fréquence court-terme de l'horloge.

1.2.5 Méthodes d'interrogation des atomes

L'interrogation de Rabi [39], proposée par Isidor Isaac Rabi à la fin des années 1930 [39, 40], est la première technique d'interrogation utilisée dans la littérature pour le développement d'horloges atomiques passives. Dans ce schéma expérimental, les atomes interagissent lors d'une impulsion unique avec le champ exciteur micro-onde (oscillateur local) de fréquence ν_{OL} . Le schéma d'interrogation appliqué à une horloge atomique à cellule est représenté sur la figure 1.6 et se décompose en trois étapes :

- Préparation : le niveau hyperfin $|F = 3\rangle$ est ici peuplé par pompage optique. Pour pomper optiquement les atomes, la fréquence laser est accordée sur la transition optique $|F = 4\rangle \Rightarrow |F = 4'\rangle$. De cette manière, les atomes vont transiter vers l'état excité puis redescendre de manière équiprobable vers les deux états fondamentaux. Un temps de pompage suffisant permet de peupler majoritairement l'état $|F = 3\rangle$ (② figure 1.6). Une différence de population nette est alors créée entre les deux niveaux fondamentaux.

- Interrogation : les atomes subissent une interaction unique de durée τ_p avec le champ micro-onde de fréquence ν_{OL} afin de solliciter la transition des atomes du niveau $|F = 3\rangle$ vers le niveau hyperfin $|F = 4\rangle$. Ce champ peut par exemple être appliqué à l'aide d'une cavité résonante (dans le cas des horloges rubidium à double résonance optique micro-onde par exemple) (③ figure 1.6).
- Détection : le signal de résonance est observé à l'aide d'un photo-multiplicateur (détection de fluorescence) ou d'une photodiode (détection de la puissance laser en transmission) (④ figure 1.6).

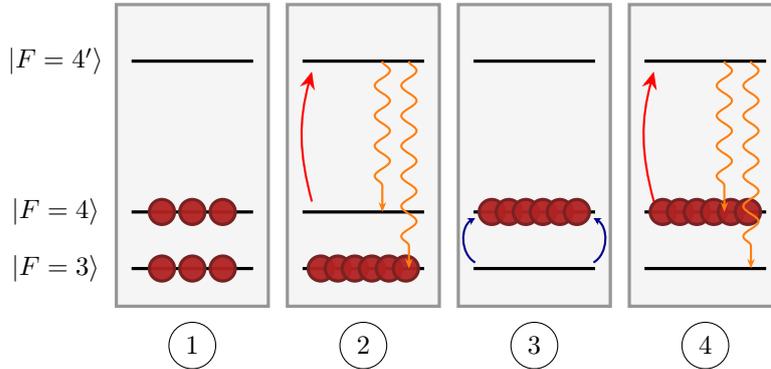


FIGURE 1.6 – Représentation graphique au niveau atomique de l'interrogation de Rabi. ① Les atomes sont présents de façon équiprobable dans les sous-niveaux fondamentaux hyperfins. ② Les atomes sont forcés à peupler le sous-niveau hyperfin $|F = 3\rangle$ par pompage optique. ③ Les atomes interagissent avec le champ excitateur micro-onde qui entraîne le passage au niveau fondamental hyperfin supérieur $|F = 4\rangle$. ④ Le signal de résonance est mesuré.

Le signal obtenu est une image directe de la probabilité de transition des atomes. Pour que cette probabilité soit maximale, il faut que la fréquence du champ micro-onde d'interrogation soit égale à la fréquence de transition atomique hyperfine ν_{at} , i.e., le signal de résonance est optimisé lorsque le désaccord $\delta_R = \nu - \nu_{at}$ est nul. La fréquence de l'oscillateur local ν_{OL} est ainsi stabilisée sur la fréquence hyperfine ν_{at} grâce à une boucle d'asservissement.

Dans une interrogation de Rabi, la largeur à mi-hauteur $\Delta\nu$ du signal de résonance est directement inversement proportionnelle à la durée τ_p de l'impulsion :

$$\Delta\nu = 1/\tau_p \quad (1.16)$$

En 1950, Norman F. Ramsey propose une extension de l'interrogation de Rabi, en séparant l'unique interaction avec le champ excitateur par deux impulsions micro-ondes de durée τ_p séparées par un temps d'évolution libre dans le noir T [23]. On se place dans le même schéma atomique que précédemment. La séquence de Ramsey est représentée sur la figure 1.7 et se décompose en cinq étapes :

- Préparation : le niveau hyperfin $|F = 3\rangle$ est peuplé par pompage optique (② figure 1.7) ;
- Première impulsion : la première impulsion, dite "d'écriture", crée entre les niveaux hyperfins une cohérence quantique dont la phase initiale dépend de la fréquence et de l'amplitude du champ excitateur micro-onde et de la durée de l'impulsion τ_p (③ figure 1.7) ;
- Temps noir : à la suite de la première impulsion, les atomes évoluent librement dans le noir pendant une durée T . Durant ce temps d'évolution, les atomes acquièrent un déphasage dépendant de la fréquence de la transition atomique et de la durée du temps noir (④ figure 1.7) ;
- Seconde impulsion : durant la seconde impulsion, dite de "lecture", les atomes interagissent de nouveau avec le champ excitateur durant une période de durée τ_D . La probabilité de transition vers l'état $|F = 4\rangle$ est maximisée lorsque le désaccord $\delta_R = \nu - \nu_{at}$ est nul (⑤ figure 1.7) ;
- Détection : le signal de résonance est observé à l'aide d'une photodiode. En balayant la fréquence ν , il est possible par le biais d'un phénomène d'interférence de mesurer la différence de phase entre la précession atomique acquise durant le temps noir et la phase de l'oscillateur local (⑥ figure 1.7).

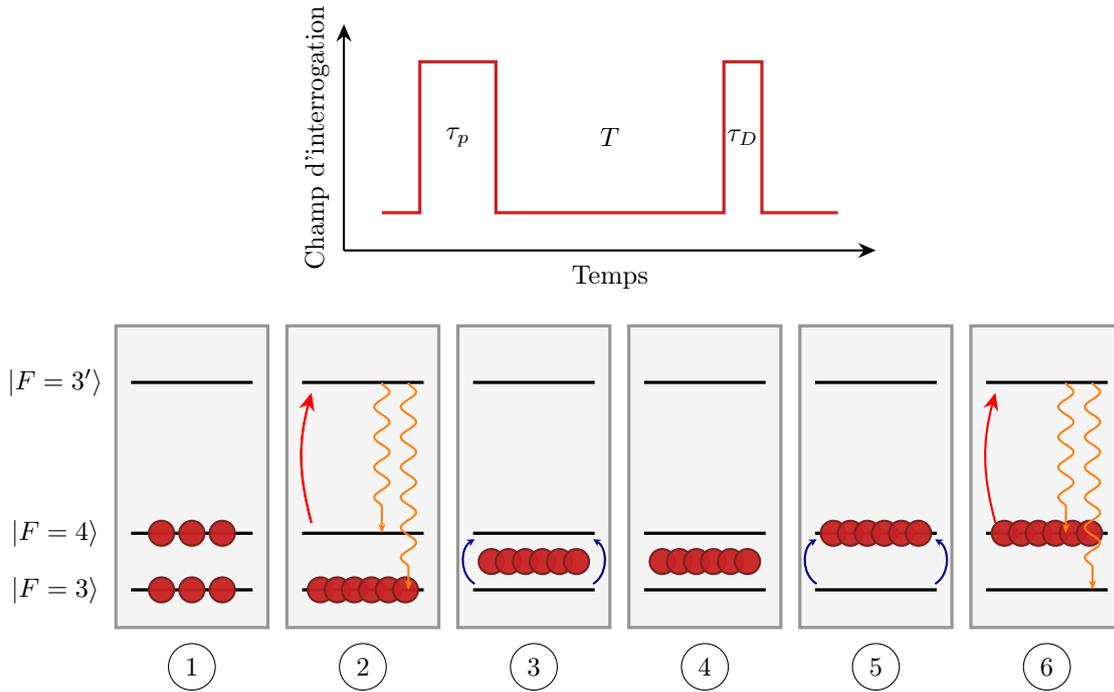


FIGURE 1.7 – Représentation graphique de l’interrogation de Ramsey. ① Les atomes sont présents de façon équiprobable dans les sous-niveaux fondamentaux hyperfins. ② Les atomes sont forcés à peupler le sous-niveau hyperfin $|F = 3\rangle$ par pompage optique. ③ Lors d’une première impulsion, les atomes interagissent avec un champ excitateur micro-onde ce qui engendre un état cohérent entre les deux sous-niveaux fondamentaux hyperfins. ④ Les atomes évoluent librement durant un temps noir de durée T . ⑤ Une seconde impulsion termine la transition des atomes vers le sous-niveau $|F = 4\rangle$. ⑥ Le signal de résonance est mesuré.

Les oscillations observées sur le signal de résonance obtenu avec cette séquence sont appelées franges de Ramsey. Les franges, et en particulier la frange centrale, présentent une largeur étroite ne dépendant plus de la valeur du temps d’impulsion τ_p mais directement de celle du temps noir T , telle que :

$$\Delta\nu = 1/(2T) \quad (1.17)$$

L’exploitation d’une séquence de Ramsey permet généralement d’améliorer la résolution de mesure en fréquence avec la détection de franges étroites. De plus, la réduction du temps d’interaction des atomes avec le champ excitateur réduit drastiquement la sensibilité des atomes aux variations de ce dernier. Pour ces raisons, l’interrogation de Ramsey est aujourd’hui couramment utilisée dans les meilleures horloges atomiques compactes à cellule de laboratoire [25, 41, 42].

En régime de Ramsey, la stabilité relative de fréquence court-terme est définie par :

$$\sigma_y(\tau) \approx \frac{\Delta\nu}{\nu_{at}} \frac{1}{SNR} \sqrt{\frac{T_c}{\tau}} \quad (1.18)$$

avec $T_c = \tau_p + T + \tau_D$ le temps de cycle.

1.2.6 Asservissement de la fréquence de l'oscillateur local

L'asservissement de la fréquence de l'oscillateur local sur la fréquence de transition atomique consiste à corriger en permanence la valeur de ν_{OL} afin de maintenir maximale la probabilité de transition atomique (i.e. le signal de transmission au sommet du signal de résonance). Un signal d'erreur issu de la réponse atomique est créé en mesurant successivement le niveau de tension des deux côtés de la résonance, par l'application d'une modulation de fréquence ou de phase de l'oscillateur local.

La figure 1.8 est une représentation graphique de l'asservissement par modulation de fréquence. La fréquence de l'oscillateur local est modulée autour de la fréquence ν_0 de la transition hyperfine à une fréquence f_m avec une amplitude $\Delta\nu_m$. On note S_1 et S_2 les valeurs du signal atomique à mi-hauteur à gauche et à droite du pic de résonance, respectivement. Un signal d'erreur ε est alors généré tel que $\varepsilon = S_2 - S_1$.

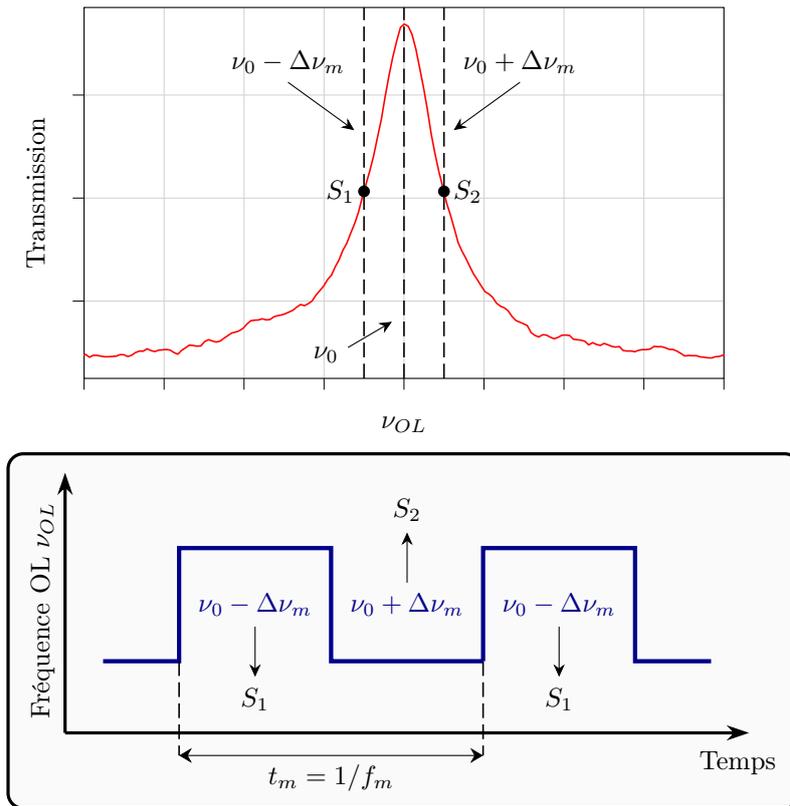


FIGURE 1.8 – Séquence d'asservissement de la fréquence de l'oscillateur local par modulation de fréquence sur la résonance CPT. f_m : fréquence de modulation, t_m : la période associée, $\Delta\nu_m$: amplitude de modulation, S_1 et S_2 : signaux 1 et 2 mesurés respectivement à gauche ($\nu_0 - \Delta\nu_m$) et droite ($\nu_0 + \Delta\nu_m$) du centre de la résonance.

Dans une horloge à cellule, la fréquence de modulation f_m est en général de l'ordre de quelques centaines de Hz. L'amplitude de modulation $\Delta\nu_m$ est généralement proche de la moitié de la largeur à mi-hauteur $\Delta\nu$. Dans le cas d'une horloge CPT à micro-cellule avec gaz tampon, la largeur à mi-hauteur de la résonance CPT est de l'ordre de 1 – 10 kHz, variant dans cette gamme avec les conditions expérimentales.

La figure 1.9 est une représentation graphique des trois cas possibles :

- La fréquence de l'OL est plus faible que la fréquence de résonance. Le signal d'erreur est négatif et une correction positive sera appliquée.
- La fréquence de l'OL égale à la fréquence de résonance. Le signal d'erreur est nul et aucune correction n'est appliquée.
- La fréquence de l'OL est plus grande que la fréquence de résonance. Le signal d'erreur est positif et une correction négative sera appliquée.

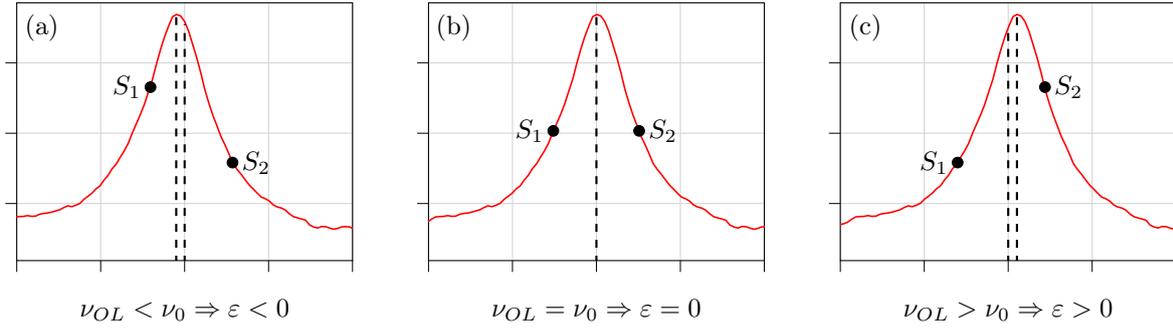


FIGURE 1.9 – Lecture du signal de part et d'autre de la résonance pour l'asservissement de la fréquence de l'oscillateur local. (a) $\nu_{OL} < \nu_0 \Rightarrow \varepsilon < 0$, (b) $\nu_{OL} = \nu_0 \Rightarrow \varepsilon = 0$, (c) $\nu_{OL} > \nu_0 \Rightarrow \varepsilon > 0$.

La figure 1.10 représente la technique d'asservissement de la fréquence d'horloge par modulation de phase. Dans cette méthode, la phase de l'oscillateur local φ_{OL} est modulée par des sauts d'amplitude $\Delta\varphi_m$. Le signal d'erreur est construit de manière identique, et est maximisé pour des sauts de phase de $\Delta\varphi_m = \pm\pi/2$.

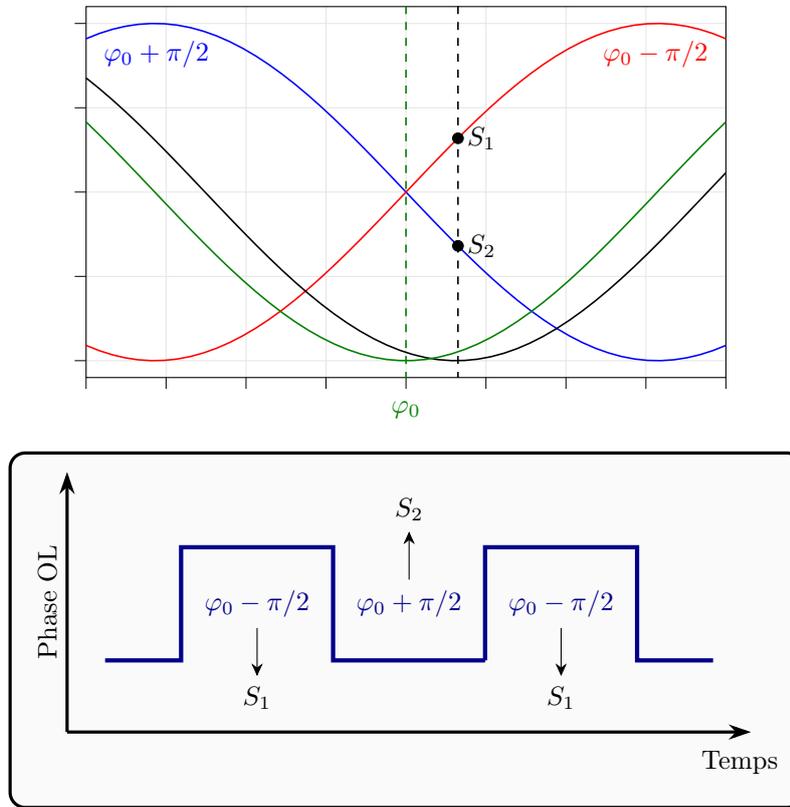


FIGURE 1.10 – Lecture du signal atomique de part et d'autre de la résonance centrale par modulation de phase de l'oscillateur local pour l'asservissement de la fréquence de l'oscillateur local. La courbe noire correspond à la phase de la résonance atomique et la courbe verte est celle de l'oscillateur local. Les courbes bleue et rouge correspondent à un saut de $\pm\pi/2$ sur la phase de l'oscillateur local.

La figure 1.11 est un exemple de signal d'erreur ε . La pente ε/δ du signal d'erreur (en V Hz^{-1}) correspond à la sensibilité avec laquelle on mesure une variation de fréquence de l'oscillateur. La qualité de l'asservissement en fréquence est directement liée à ce coefficient, et on cherchera expérimentalement à l'optimiser en sondant une transition d'horloge étroite avec une grande amplitude. La fréquence de l'oscillateur local est asservie sur la fréquence atomique lorsque le signal d'erreur est nul (i.e. $\varepsilon = 0$)

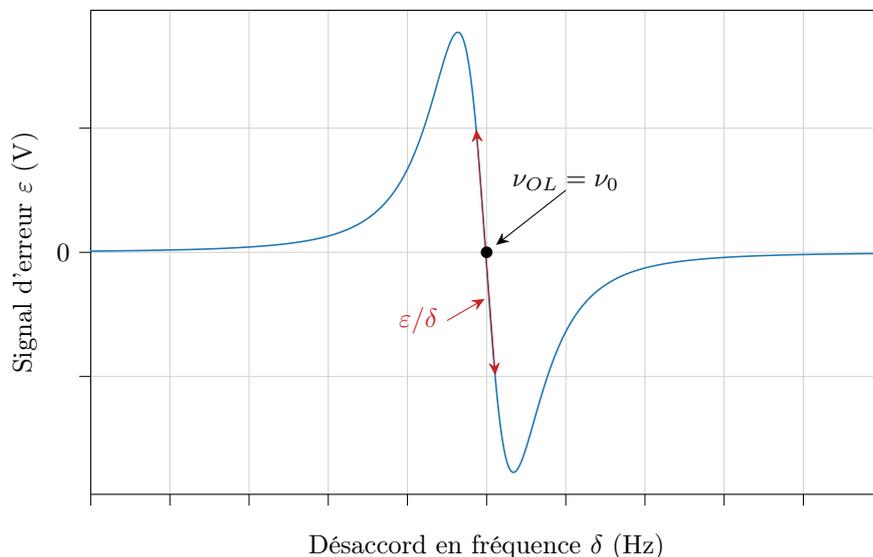


FIGURE 1.11 – Signal d'erreur ε obtenu pour l'asservissement de la fréquence de l'oscillateur ν_{OL} local sur la fréquence atomique ν_0 en mode horloge.

En mode horloge, une boucle d'asservissement numérique est mise en place pour générer et envoyer un signal de correction en fréquence vers l'oscillateur local. La correction de fréquence $\delta_c^{(k)}$ appliquée au k -ième cycle est définie par la relation de récurrence suivante [43] :

$$\delta_c^{(k)} = \delta_c^{(k-1)} + (-1)^k G(\varepsilon^{(k-1)} - \varepsilon^{(k-2)}) \quad (1.19)$$

avec $\varepsilon^{(k)}$ le signal d'erreur au k -ième cycle et G le gain de l'asservissement.

1.3 Profils d'absorption optique

Lorsque des atomes au repos sont soumis à un champ optique monochromatique à la fréquence de résonance optique, une partie de cette énergie lumineuse est absorbée. En sortie de cellule, l'intensité lumineuse est définie pour un milieu optiquement fin par la loi de Beer-Lambert, telle que :

$$I(\nu) = AI_0 e^{-nL\sigma(\nu)} \quad (1.20)$$

avec A un terme pré-exponentiel prenant en compte l'absorption optique non induite par les atomes (pertes optiques en transmission, verre de la cellule, etc.), I_0 l'intensité lumineuse incidente, n la densité atomique, L la longueur d'interaction et $\sigma(\nu)$ la section efficace d'absorption des atomes.

1.3.1 Densité atomique

En conditions standard, le césium est un métal mou et ductile. Sa température de fusion est de 28.44°C . Une fois confiné dans une cellule chauffée et si l'alcalin est en présence d'une de ses formes condensées (solide ou liquide), sa phase gazeuse est saturée. La pression de vapeur à l'équilibre thermique est alors directement dépendante de la température de la vapeur. Dans le cas du césium, la pression P_v de la vapeur alcaline à une température T est donnée par [44] :

$$\log_{10} P_v = \begin{cases} -219.48200 + \frac{1088.676}{T} - 0.083\,361\,85\,T + 94.887\,52\,\log_{10} T, & (\text{phase solide, } T < 301.6\text{ K}) \\ 8.22127 - \frac{4006.048}{T} - 0.000\,601\,94\,T - 0.196\,23\,\log_{10} T, & (\text{phase liquide, } T > 301.6\text{ K}) \end{cases} \quad (1.21)$$

La densité atomique n est définie comme le nombre d'atomes par unité de volume. En partant de l'équation des gaz parfaits, on a alors :

$$P_v V = n R T \quad (1.22)$$

avec V le volume, n le nombre de moles et R la constante des gaz parfaits. Or : $n = \frac{NM}{N_a}$, avec N le nombre d'atomes, M la masse molaire moléculaire et N_a la constante d'Avogadro. Ainsi :

$$n = \frac{N}{V} = \frac{P_v}{k_B T} \quad (1.23)$$

avec k_B la constante de Boltzmann. La figure 1.12 représente l'évolution de la densité atomique :

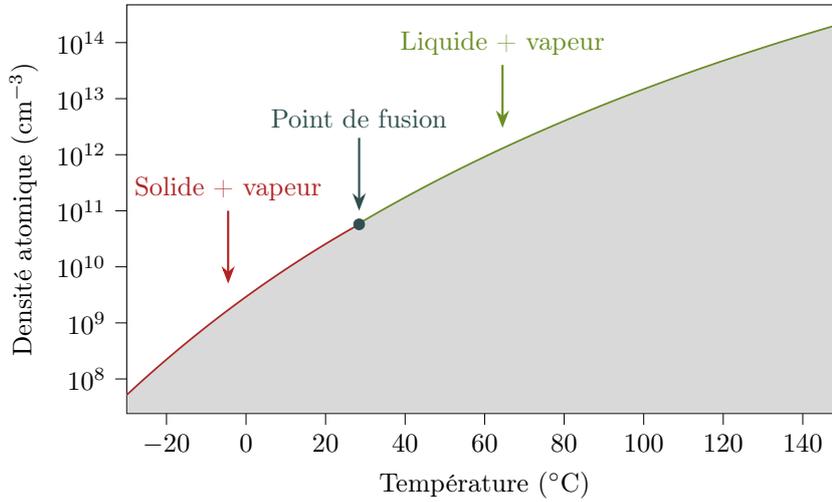


FIGURE 1.12 – Évolution de la densité atomique d'une vapeur de césium en fonction de la température de cellule.

Le césium est un alcalin avantageux car son point de fusion est bas (en comparaison au rubidium à 39.3 °C). Aussi, sa densité atomique proche de la température ambiante est suffisamment grande pour sonder les atomes en spectroscopie linéaire. Dans le cas d'une cellule millimétrique, il est nécessaire de chauffer les atomes à une plus grande température en raison de la faible longueur d'interaction. A 70 °C, la densité atomique est d'environ $2 \times 10^{12} \text{ cm}^{-3}$.

1.3.2 Section efficace d'absorption

La section efficace d'absorption est une mesure de la probabilité d'interaction entre deux particules. Celle-ci peut avoir lieu entre deux atomes de césium ou entre un atome de césium et un atome de gaz tampon selon la nature du mélange gazeux utilisé. La section efficace d'absorption est définie par [45] :

$$\sigma(\nu) = \pi r_e c f \sum_{F, F'} A_{F, F'} V(\nu - \nu_{F, F'}) \quad (1.24)$$

avec r_e le rayon de l'électron. $A_{F, F'}$ est la force relative de la transition. La force de l'oscillateur f est une quantité image de la probabilité de transition entre deux niveaux d'énergie. Elle est dépendante de l'alcalin utilisé et de la transition sondée (pour le césium, $D_1 : f \approx 0.344$ [36] et $D_2 : f \approx 0.715$ [46]).

Le profil d'absorption du césium est composé d'un profil de Voigt noté \mathcal{V} , produit de convolution entre un profil gaussien \mathcal{G} et un profil lorentzien \mathcal{L} , de largeur à mi-hauteur Γ_G et Γ_L , respectivement. Le profil de Voigt s'exprime par :

$$\mathcal{V} = \mathcal{G} * \mathcal{L}, \text{ avec : } \begin{cases} \mathcal{L}(\nu, \Gamma_L) = \frac{\Gamma_L}{2\pi} \frac{1}{(\nu - \nu_0)^2 + \frac{\Gamma_L^2}{2}} \\ \mathcal{G}(\nu, \Gamma_G) = \sqrt{\frac{\ln 2}{\pi}} \frac{2}{\Gamma_G} \exp\left(-\frac{4(\nu - \nu_0)^2 \ln 2}{\Gamma_G^2}\right) \end{cases} \quad (1.25)$$

ainsi :

$$\mathcal{V} = \sqrt{\frac{\ln 2}{\pi}} \frac{2}{\Gamma_G} \text{Re}[w(z)] \quad (1.26)$$

Une méthode de résolution numérique de la fonction de Voigt repose sur le calcul de la partie réelle de la fonction de Faddeeva w définie telle que $w(z) = e^{-z^2}(1 - \text{erf}(-iz))$, avec $z = 2\sqrt{\ln 2}/\Gamma_G(\nu - \nu_0 + i\Gamma_L/2)$. L'application de cette fonction est accessible via différents packages dans de nombreux logiciels de calcul formel.

Cette expression du profil d'absorption n'est valide que pour un modèle très simplifié de l'atome. Le lecteur est invité à consulter les papiers de revue [47-50] qui proposent des modèles plus complets considérant d'avantages de phénomènes atomiques.

1.3.3 Élargissements et déplacements en fréquence de la transition optique

La largeur à mi-hauteur totale $\Gamma/2\pi$, en Hz, de la transition optique s'écrit à partir de :

$$\Gamma = \underbrace{\Gamma_{nat} + \Gamma_P + \Gamma_{laser} + \Gamma_B}_{\Gamma_L} + \underbrace{\Gamma_D}_{\Gamma_G} \quad (1.27)$$

avec Γ_{nat} la largeur naturelle, Γ_P l'élargissement collisionnel, Γ_{laser} la largeur spectrale du laser, Γ_B l'élargissement balistique et Γ_D l'élargissement Doppler. La largeur spectrale d'une diode laser VCSEL est typiquement de ~ 30 MHz [4] et ~ 1 MHz pour un laser DFB (Distributed FeedBack).

A) Élargissement naturel

Un atome dans un état excité a une durée de vie finie avant sa relaxation vers un état au repos. La durée de vie dans l'état excité pour la transition $6^2P_{3/2}$ de l'atome de césium est de 30.5 ns et de 34.9 ns pour la transition $6^2P_{1/2}$. Cette faible durée de vie entraîne, en accord avec le principe d'incertitude : $\Delta E \Delta t \sim \hbar$, un élargissement de la raie optique (raie D_1 $6^2P_{1/2}$). La largeur naturelle $\Delta\nu_{nat}$ de la raie est :

$$\Delta\nu_{nat} = \Gamma_{nat}/2\pi = 4.56 \text{ MHz} \quad (1.28)$$

B) Élargissement Doppler

Dans une cellule à vapeur, les atomes évoluent à des vitesses différentes, en suivant une distribution des vitesses de Maxwell. Ainsi, par effet Doppler, la longueur d'onde perçue par deux atomes évoluant à des vitesses différentes varie selon leur vitesse suivant l'axe de propagation du faisceau laser. Cette distribution de vitesse induit un élargissement de la transition optique, nommé élargissement Doppler, dont l'expression Γ_D , en Hz, est donnée par :

$$\Gamma_D = \nu_{0F,F'} \sqrt{\frac{8k_B T}{mc^2} \ln(2)} \quad (1.29)$$

avec $m \simeq 2.2 \times 10^{-25}$ kg la masse d'un atome de césium, $\nu_{0F,F'} = 335.15$ THz la fréquence de la transition optique non perturbée (raie D_1 Cs), T la température de la cellule et c la vitesse de la lumière. L'élargissement Doppler pour une cellule à 70 °C est de 385.7 MHz.

C) Élargissement collisionnel

La présence d'un gaz tampon entraîne des collisions avec les atomes alcalins, réduisant ainsi la durée de vie des atomes dans l'état excité et élargissant la transition optique. Cet élargissement est proportionnel à la pression P du gaz tampon utilisé, tel que :

$$\Gamma_P = \gamma P \quad (1.30)$$

avec γ le coefficient d'élargissement collisionnel, propre à la nature du gaz utilisé. L'étude théorique des élargissements collisionnels suggère que ces coefficients sont dépendants de la température [51]. Ainsi, comme précédemment employé par [52-55] :

$$\frac{\Gamma_{P,m}}{\Gamma_{P,r}} = \left(\frac{T_m}{T_r} \right)^p \quad (1.31)$$

avec p le coefficient de dépendance en température, $\Gamma_{P,m}$ et $\Gamma_{P,r}$ l'élargissement mesuré à T_m et T_r , respectivement. L'équation générale de conversion en température est obtenue via l'équation des gaz parfaits (1.22) :

$$\frac{\gamma_{P,m}}{\gamma_{P,r}} = \left(\frac{T_m}{T_r} \right)^{p-1} \quad (1.32)$$

avec $\gamma_{P,m}$ et $\gamma_{P,r}$ le coefficient d'élargissement à T_m et T_r , respectivement.

La mesure de ces coefficients a fait l'objet de nombreuses études dans la littérature, pour différents alcalins et une grande variété de gaz tampon [51, 53, 56-59]. Des valeurs expérimentales des coefficients de dépendance en température ont été rapportées dans [43] pour le césium, confirmant ou réfutant des valeurs issues de calculs théoriques [51]. Les valeurs des élargissement collisionnels du césium en présence de différents gaz tampons sont rassemblées dans le tableau 1.1. Dans la suite de notre étude, nous privilégierons les résultats de [53, 59], issus de mesures plus récentes et réalisées sur des bancs expérimentaux plus performants.

Gaz tampon	$\gamma_{P,r}$ (MHz Torr ⁻¹)	T_r (K)	Ref.	p	Ref.
Ne	10.85 ± 0.02	313	[59]	0.83 ± 0.08	[53]
	13.13 ± 0.86	295	[57]	0.29	[51]
				1.5	[59]
N ₂	15.82 ± 0.05	318	[59]	0.73 ± 0.12	[53]
	16.36 ± 0.02	323	[59]	1.5	[59]
	15.66 ± 0.08	333	[59]		
	14.73 ± 0.69	393	[58]		
	19.51 ± 0.24	294	[56]		
Ar	18.31 ± 0.16	313	[59]	0.74 ± 0.27	[53]
	14.99	295	[60]	0.33	[51]
	19.64 ± 2.5	295	[57]		
Xe	19.74 ± 0.08	313	[59]	0.32	[51]
	21.49 ± 2.6	295	[61]		
	17.09	295	[60]		
He	24.13 ± 0.07	323	[59]	0.43	[51]
	26.21 ± 0.31	294	[56]	0.92	[58]
	19.49 ± 1.35	295	[57]		
	28.42 ± 1.03	393	[58]		

TABLE 1.1 – Coefficients d'élargissement collisionnel des transitions optiques $\gamma_{P,r}$ de la raie D_1 du césium pour certains gaz tampons usuels (Ne, N₂, Ar, Xe, He) à la température T_r et le coefficient de dépendance en température p associé.

L'élargissement collisionnel peut rapidement être prédominant sur les autres élargissements selon la pression et le gaz tampon utilisé. Pour une cellule chauffée à 70°C et remplie avec 70 Torr d'hélium ($\gamma_{He} = 24.01$ MHz Torr⁻¹ à 343 K), on a $\Gamma_P = 1681$ MHz $\approx 0.8 \times \Gamma$ (contre $\Gamma_D = 385.7$ MHz).

D) Élargissement balistique

Le mouvement balistique des atomes dans une cellule sans gaz tampon réduit la durée de vie de l'état excité et engendre un élargissement de la transition optique Γ_B exprimé comme :

$$\Gamma_B \approx \frac{1}{2\pi\Delta T} \quad (1.33)$$

avec ΔT la durée du mouvement avant une collision. Dans une micro-cellule avec une longueur d'interaction $d = 2$ mm, chauffée à 70 °C et avec des atomes se déplaçant à $v = 331$ m s⁻¹, l'élargissement balistique est de ~ 26 kHz. Cette source d'élargissement est négligée ($\Gamma_B \ll \Gamma/2\pi$).

L'utilisation d'un gaz tampon entraîne aussi un déplacement S de la fréquence de résonance optique tel que :

$$S = \xi P \quad (1.34)$$

avec ξ le coefficient de déplacement optique, dépendant de la température et du gaz choisi. De même que pour le coefficient d'élargissement, la conversion en température s'exprime comme :

$$\frac{\xi_m}{\xi_r} = \left(\frac{T_m}{T_r} \right)^{p'-1} \quad (1.35)$$

avec p' le coefficient de dépendance en température, S_m et S_r le coefficient de déplacement à T_m et T_r , respectivement. Le tableau 1.2 rassemble la valeur du coefficient ξ pour différents gaz tampons dans le cas du césium.

Gaz tampon	ξ_r (MHz Torr ⁻¹)	T_r (K)	Ref.	p'	Ref.
Ne	-1.60 ± 0.01	313	[59]	0	[51]
	-2.88 ± 0.09	295	[57]	0	[53]
				0.5	[59]
N ₂	-7.69 ± 0.01	318	[59]	0.18 ± 0.03	[53]
	-7.71 ± 0.01	323	[59]		
	-7.41 ± 0.01	333	[59]		
	-8.23 ± 0.02	294	[56]		
	-8.90 ± 0.69	295	[58]		
	-7.38 ± 0.11	393	[57]		
Ar	-6.47 ± 0.03	313	[59]	0.31	[51]
	-8.73 ± 0.4	295	[57]	0.56 ± 0.07	[43]
	-5.4	295	[60]		
Xe	-6.43 ± 0.01	313	[59]	0.31	[51]
	-8.09 ± 1.2	295	[57]		
	-6.23	295	[60]		
He	4.24 ± 0.02	323	[59]	1.1	[51]
	4.46 ± 0.03	294	[56]	1.6	[58]
	6.61 ± 1.00	295	[57]		
	4.45 ± 0.69	393	[58]		

TABLE 1.2 – Coefficients de déplacement collisionnel des transitions optiques S_r de la raie D₁ du césium pour certains gaz tampons usuels (Ne, N₂, Ar, Xe, He) à la température T_r et le coefficient de dépendance en température p' associé.

L'estimation de l'élargissement collisionnel ou du déplacement en fréquence via une mesure de spectroscopie linéaire sont des techniques efficaces pour estimer la pression de gaz tampon contenue dans une cellule [43].

1.3.4 Exemples de spectres d'absorption optique en micro-cellule

On observe depuis les équations (1.29), (1.30) et (1.34) que la pression de gaz tampon et la température de la cellule sont les paramètres principaux influant sur la forme et la position du spectre optique (on ne considère pas les effets de pompage optique et de saturation pouvant déformer le spectre optique). La figure 1.13 est un exemple de signaux d'absorption optique calculés d'une micro-cellule de césium pur et d'une micro-cellule remplie avec 40 Torr d'hélium, chauffées à 70 °C. La longueur d'interaction est de 1.5 mm.

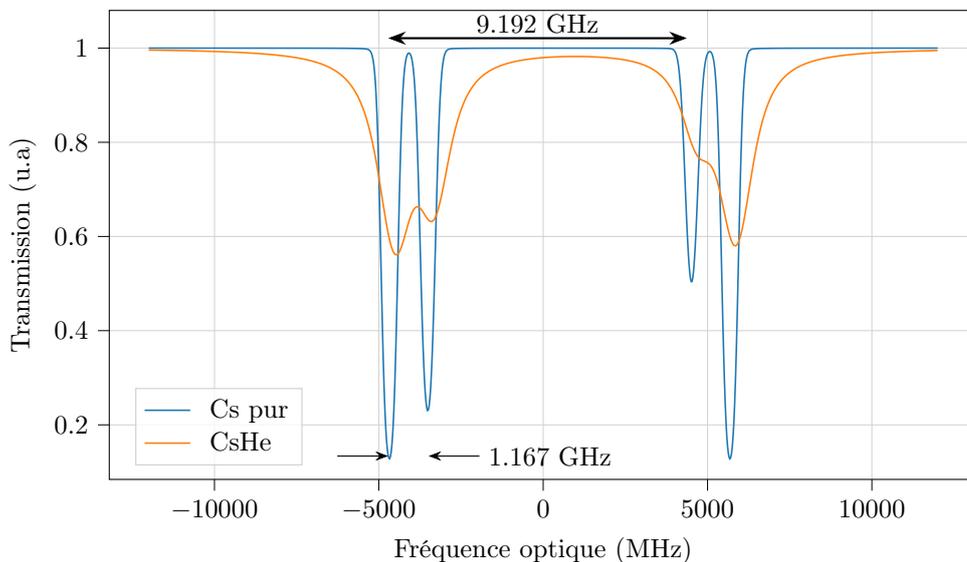


FIGURE 1.13 – Spectres d'absorption optique dans une micro-cellule de césium pur (courbe bleue) et une micro-cellule de césium remplie avec 40 Torr d'hélium (courbe orange). La température des cellules est de 70 °C. La longueur d'interaction est de 1.5 mm.

On observe sur le spectre optique de la cellule avec hélium un élargissement des transitions optiques (~ 960 MHz) qui tendent à se recouvrir, à l'inverse de la cellule avec du césium pur avec des transitions bien définies. On note aussi un déplacement vers les plus hautes fréquences des transitions optiques dans la cellule avec hélium (~ 176 MHz).

La figure 1.14 montre l'influence de la température sur l'absorption optique dans une cellule à césium pur.

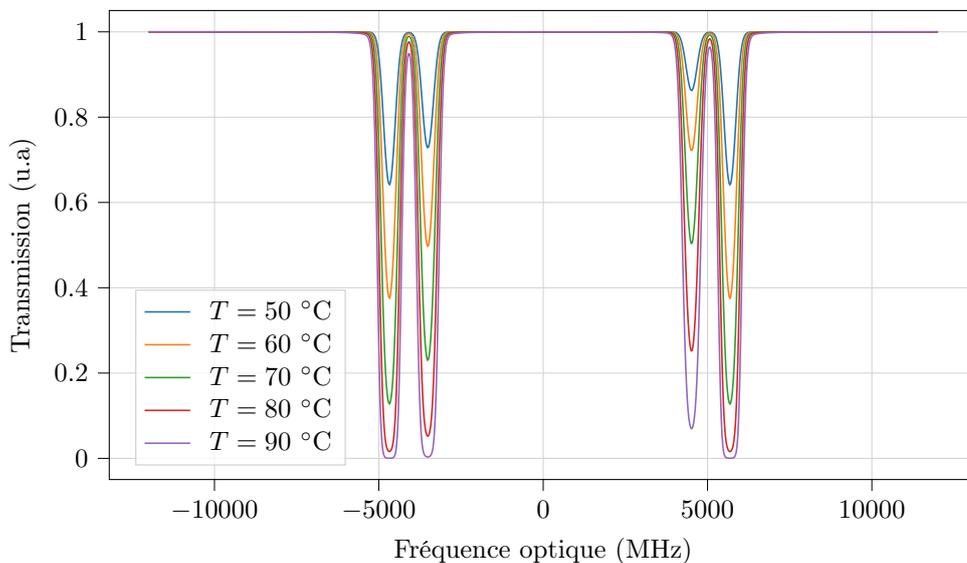


FIGURE 1.14 – Spectres d'absorption optique dans une micro-cellule de césium pur pour différentes températures. La longueur d'interaction est de 1.5 mm.

L'augmentation de la température de cellule entraîne une augmentation de la largeur Doppler et donc un élargissement de la transition optique (équation 1.29). Aussi, à plus haute température, les profils d'absorption sont plus profonds car la densité atomique est plus importante (équation 1.21), jusqu'à rendre à partir de $T = 90\text{ °C}$ la cellule opaque. Une solution consiste alors à réduire la longueur d'interaction de la cavité L (équation 1.20). La figure 1.15 correspond aux spectres d'absorption optique d'une cellule de césium pur chauffée à 70 °C avec différentes longueurs d'interaction.

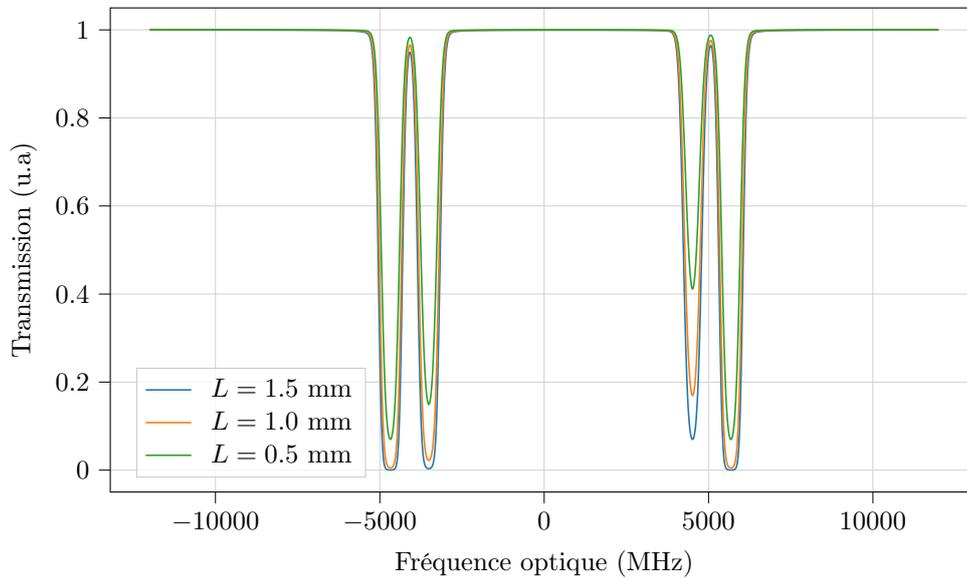


FIGURE 1.15 – Spectres d'absorption optique dans une micro-cellule de césium pur chauffée à 70 °C pour différentes longueurs d'interaction.

La figure 1.16 illustre l'élargissement et le déplacement collisionnel dans une cellule avec du gaz tampon. On utilise dans cet exemple du néon à différentes pressions.

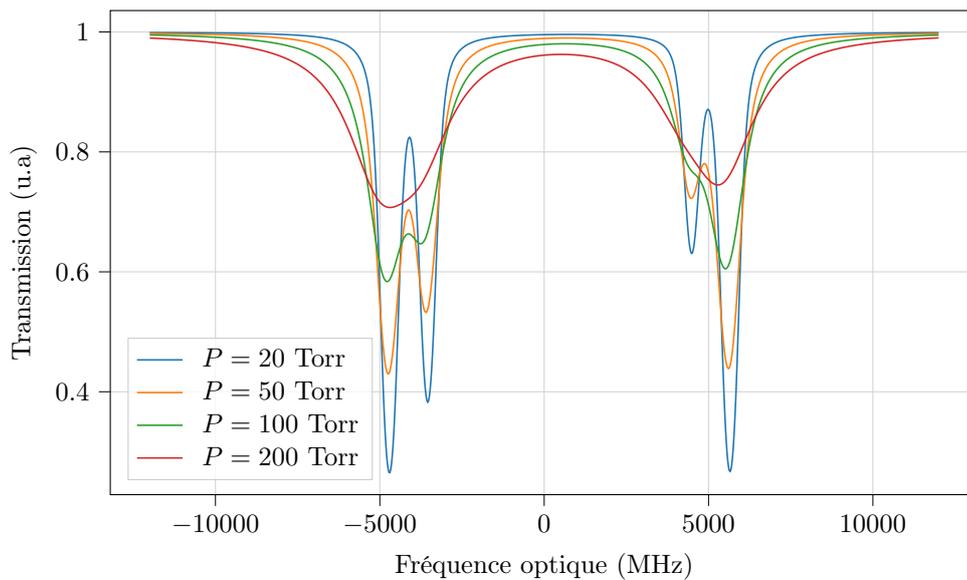


FIGURE 1.16 – Spectres d'absorption optique dans une micro-cellule de césium remplie avec différentes pressions de néon. La cellule est chauffée à 70 °C .

On observe pour les pressions de néon les plus élevées un élargissement des transitions optiques menant à un recouvrement entre les transitions voisines.

1.3.5 Estimation de la pression de gaz tampon par spectroscopie laser

La pression de gaz tampon dans une cellule scellée peut être estimée à partir de la mesure par spectroscopie laser du spectre d'absorption optique. On peut estimer la pression de gaz tampon par la mesure du déplacement collisionnel ou de l'élargissement collisionnel des transitions optiques. La figure 1.17 est un schéma du montage expérimental utilisé pour la mesure de la pression de gaz tampon.

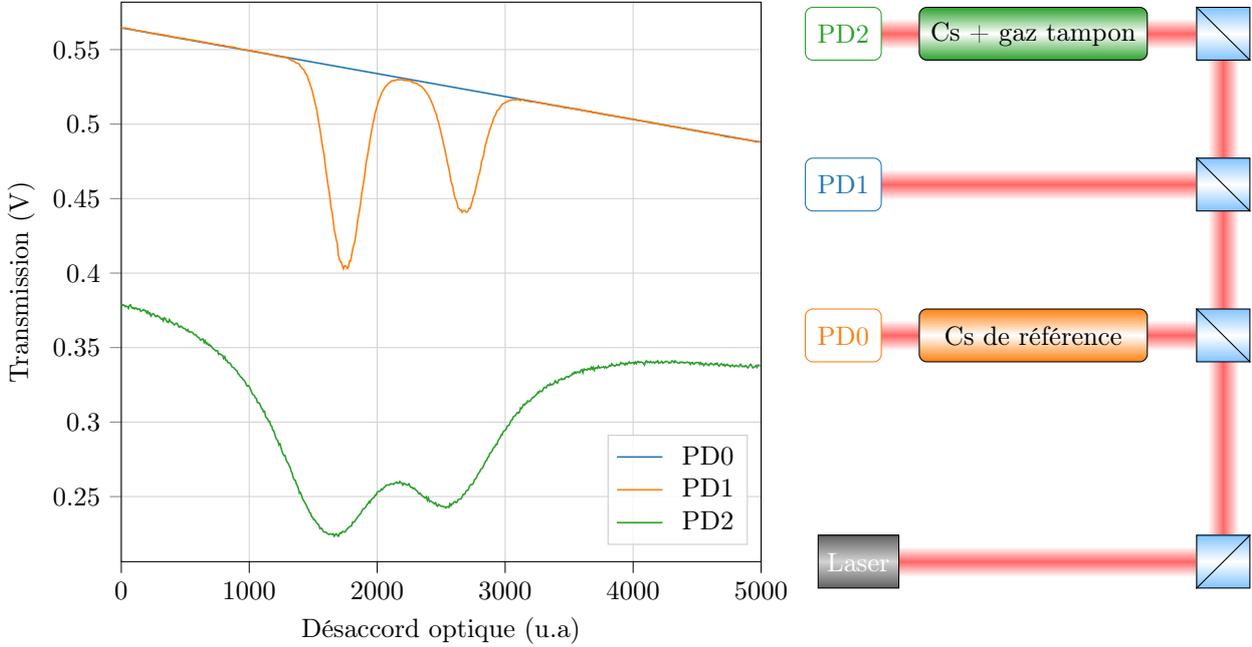


FIGURE 1.17 – Schéma du montage expérimental pour la mesure de la pression de gaz tampon dans une cellule. Un faisceau laser est envoyé vers une cellule de référence contenant du césium pur et une cellule d'étude avec gaz tampon. PD0, PD1 et PD2 sont des photodiodes. Le graphique montre des signaux obtenus expérimentalement. La cellule "Cs + gaz tampon" est chauffée à 70 °C et la cellule de référence est maintenue à température ambiante à 23 °C.

Dans cette expérience, un faisceau laser illumine une cellule d'étude (avec ou sans gaz tampon) et une cellule de "référence". Cette dernière est généralement une cellule centimétrique contenant du césium pur (pureté > 99%). Les spectres d'absorption optique sont mesurés en balayant la fréquence du laser autour des fréquences de transition. Il est possible d'enregistrer l'ensemble de la raie D₁ du césium ou seulement une paire de transitions. Dans notre cas, on décide de mesurer la paire $|F' = 3\rangle \Rightarrow |F = 3\rangle$ et $|F' = 3\rangle \Rightarrow |F = 4\rangle$ pour optimiser la résolution de mesure. La transmission des faisceaux lasers est enregistrée simultanément par les photodiodes PD0 et PD2 en sortie des cellules. Le fond linéaire est mesuré par la photodiode PD1.

Les signaux PD0 et PD2 sont d'abord normalisés afin de retirer le fond linéaire issu de la mesure (rampe linéaire pour balayer la fréquence, réflexions optique, etc). Le signal normalisé y_n est défini par :

$$y_n = \ln(y_1/y_0) \quad (1.36)$$

avec y_0 et y_1 les signaux des photodiodes PD0 et PD1. Les signaux sont ensuite approximés par un profil gaussien (pour une cellule de césium pur) ou par un profil de Voigt (pour une cellule avec gaz tampon). Dans le cas d'une cellule avec gaz tampon, la composante gaussienne dans le profil de Voigt est fixée par la valeur de la largeur Doppler à la température de travail. Seule la composante lorentzienne (i.e. l'élargissement collisionnel) varie. L'approximation du profil de la cellule de référence permet d'identifier la position des creux d'absorption et de calibrer l'axe des abscisses (l'espacement entre les deux transitions est de 1.168 GHz).

Dans la première méthode, le déplacement S des transitions optiques de la cellule avec gaz tampon est mesurée par rapport à la cellule de référence. La pression de gaz tampon P_{bg} est extraite à partir de la mesure du déplacement collisionnel et du coefficient ξ tel que :

$$P_{bg} = S/\xi \quad (1.37)$$

La figure 1.18 représente les signaux de la figure 1.17 normalisés ainsi que la mesure du déplacement de la transition par rapport à la cellule de référence. La transition optique est déplacée de -100 MHz par rapport à la cellule de référence. Le coefficient de déplacement collisionnel du néon à 70 °C est de -1.46 MHz Torr $^{-1}$. La pression de gaz tampon est ainsi de $\simeq 69$ Torr.

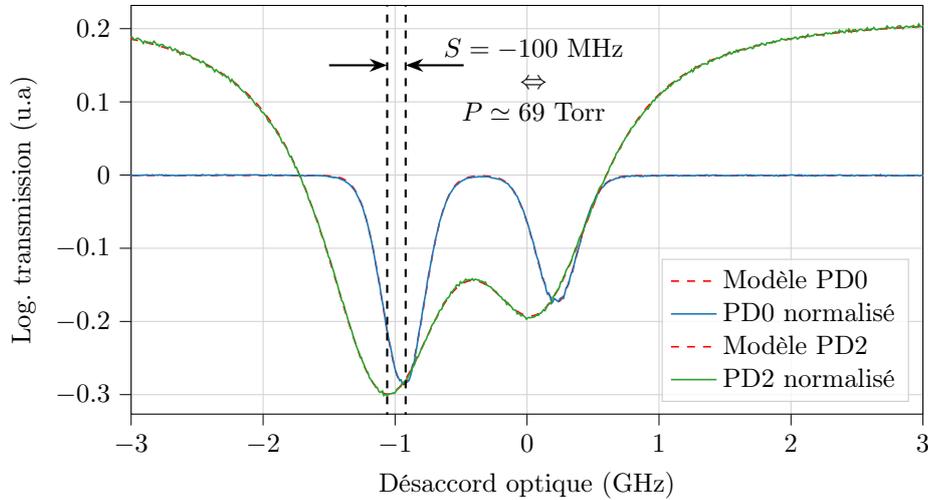


FIGURE 1.18 – Signaux d'absorption optique PD0 et PD2 normalisés. Les lignes verticales en pointillés noirs identifient les creux des profils d'absorption.

Dans la seconde méthode, l'élargissement collisionnel est extrait de l'approximation du profil d'absorption optique de la cellule avec gaz tampon par le profil de Voigt. La largeur de la composante gaussienne est fixée à 390 MHz. La pression de gaz tampon est alors donnée par :

$$P_{bf} = \Gamma_P / \gamma = (\Gamma - \Gamma_D - \Gamma_{nat} - \Gamma_{laser}) / \gamma \quad (1.38)$$

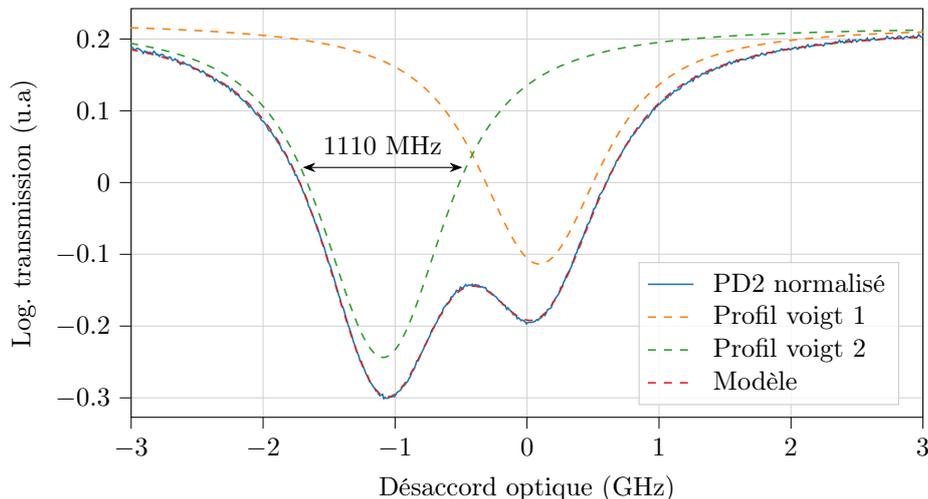


FIGURE 1.19 – Signal PD2 normalisé (courbe bleue) et approximé par deux profils de Voigt (courbe rouge). Les deux composantes du profil total sont représentées par des courbes en pointillés oranges et verts.

On considère dans cet exemple une diode laser DFB avec une largeur spectrale $\Gamma_{laser} = 1$ MHz. L'élargissement collisionnel du néon à 70 °C est de 10.68 MHz Torr $^{-1}$. On retrouve ainsi une pression de gaz tampon de $\simeq 67$ Torr.

La méthode de mesure par déplacement collisionnel est avantageée dans [43] afin de s'affranchir de phénomènes perturbateurs tels que les effets de pompage optique et de saturation. Afin d'estimer la pression de gaz tampon dans les micro-cellules fabriquées pour nos études, nous exploiterons la méthode de mesure par l'élargissement collisionnel.

1.4 Piégeage Cohérent de Population (CPT)

L'observation du phénomène de piégeage cohérent de population (CPT) a été rapportée pour la première fois en 1976 dans un article de Alzetta et al. [1]. La démarche expérimentale mise en oeuvre dans cette étude consistait à mettre en évidence les résonances radio-fréquences d'une vapeur de sodium, par l'observation de fluorescence dans une cellule centimétrique pompée par un laser multi-modes et placée dans un gradient de champ magnétique axial. L'équipe de recherche observa lors de leur expérience la présence de mystérieuses "bandes" noires à des positions bien déterminées, signatures d'une absence de fluorescence (voir la figure 1.20). Lors du pompage optique, les atomes interagissent avec la porteuse du laser (centrée sur la raie D_1 du sodium), mais aussi avec ses nombreuses harmoniques, notamment le sixième mode se trouvant à 1740 MHz, très proche de la fréquence de résonance hyperfine de 1771 MHz. La présence simultanée de deux "champs laser" à résonance entraîne des interférences quantiques destructives liées à la superposition d'états atomiques. Dans cette superposition cohérente d'états, appelée état noir ("dark state" en anglais), les atomes sont piégés dans un état non couplé à l'état excité. Ainsi, ils n'absorbent plus de rayonnement lumineux et n'émettent plus de fluorescence, expliquant l'observation de bandes noires. Le phénomène CPT sera par la suite étudié et formalisé dans [2]. Il est à l'origine de nombreuses expériences en physique atomique et optique quantique telles que le refroidissement laser d'atomes [62, 63], la transparence induite électromagnétique (EIT) [64], la réalisation de magnétomètres [65] ou le développement d'étalons atomiques de fréquence [66-68].

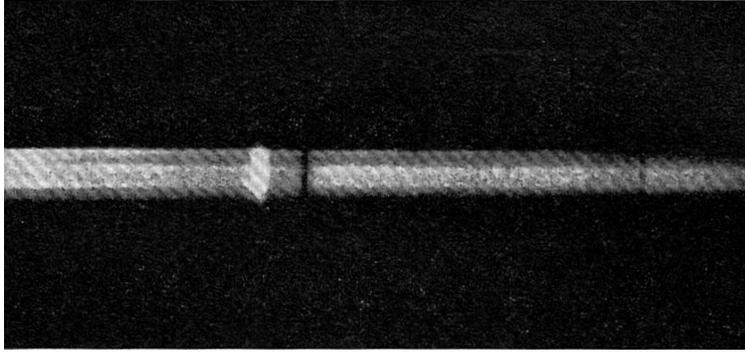


FIGURE 1.20 – Observation de raies noires dans une cellule à vapeur de sodium. Photographie extraite de [1].

1.4.1 Description

Le phénomène de piégeage cohérent de population a lieu lorsque deux états fondamentaux $|1\rangle$ et $|2\rangle$ sont couplés à un état excité $|3\rangle$ commun par le biais de deux champs lumineux, ϵ_{13} et ϵ_{23} . Cette configuration est réalisée dans le cas des atomes alcalins, où les états $|1\rangle$ et $|2\rangle$ correspondent aux niveaux hyperfins de l'état fondamental, et l'état $|3\rangle$ est un des états excités. Ce système à trois niveaux est appelé schéma Λ . On note E_1 , E_2 et E_3 les énergies respectives des niveaux $|1\rangle$, $|2\rangle$ et $|3\rangle$. Il est supposé que chaque champ lumineux interagit avec une seule transition.

On considère un champ laser bi-fréquence $\epsilon(t)$, somme des deux ondes co-propageantes ϵ_{13} et ϵ_{23} :

$$\epsilon(t) = \epsilon_{13}(t) + \epsilon_{23}(t) = A_{13} \times \exp(-i\omega_{13}t + i\varphi_{13}) + A_{23} \times \exp(-i\omega_{23}t + i\varphi_{23}) \quad (1.39)$$

avec t le temps, A_{ij} l'amplitude de l'onde de la transition $|i\rangle \leftrightarrow |j\rangle$, φ_{ij} sa phase et ω_{ij} sa fréquence. On définit δ_R le désaccord Raman comme étant le décalage entre la différence des fréquences du champ laser ($\omega_{13} - \omega_{23}$) et la fréquence de résonance ω_0 , puis $\delta_\varphi = \varphi_{23} - \varphi_{13}$ la différence de phase des champs lumineux.

L'interaction entre un atome couplé à un champ laser est régi par l'équation de Schrödinger. L'évolution temporelle de cette interaction ψ est décrite comme (dans l'hypothèse des ondes tournants, i.e, la différence des fréquences du champ laser est proche de la fréquence de résonance ($|\delta_R| \ll \omega_0$)) :

$$i\hbar \frac{d}{dt} |\psi(t)\rangle = \hat{H} |\psi(t)\rangle \quad (1.40)$$

L'hamiltonien \hat{H} est l'opérateur associé à l'énergie totale du système et se décompose comme :

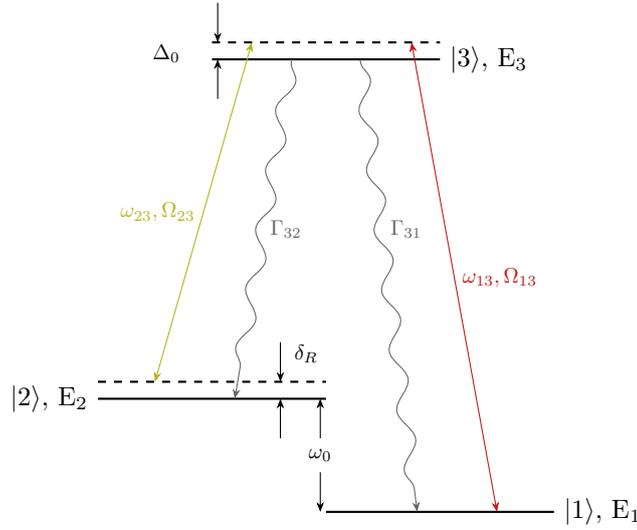


FIGURE 1.21 – Système atomique à trois niveaux (schéma Λ) sondé par un champ laser bi-fréquence, portant les fréquences ω_1 et ω_2 . On note Δ_0 le désaccord optique et Γ le taux de relaxation de l'état excité tel que $\Gamma = \Gamma_{31} + \Gamma_{32}$

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{H}_{int} \quad (1.41)$$

avec \hat{H}_0 l'hamiltonien du système au repos :

$$\hat{H}_0 = E_1|1\rangle\langle 1| + E_2|2\rangle\langle 2| + E_3|3\rangle\langle 3| \quad (1.42)$$

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

$$\hat{H}_{int} = -(\hbar/2) \times [\Omega_{13}(|3\rangle\langle 1| + |1\rangle\langle 3|) + \Omega_{23}(|3\rangle\langle 2| + |2\rangle\langle 3|)] \quad (1.43)$$

où Ω_{ij} est la fréquence de Rabi de la transition $|i\rangle \leftrightarrow |j\rangle$. La fréquence de Rabi correspond à la fréquence des oscillations de l'amplitude de probabilité d'une transition. Cette dernière est directement proportionnelle au moment dipolaire $d_{i,j}$ de la transition concernée et à l'amplitude du champ optique : $\Omega_{ij} = \epsilon_{ij}d_{ij}/\hbar$.

On définit à partir du système à trois niveaux une base orthogonale $\{|C\rangle, |NC\rangle, |3\rangle\}$, composée d'un état "couplé", d'un état "non couplé" et de l'état excité [69] :

$$|C\rangle(t) = \frac{1}{\sqrt{\Omega_{13}^2 + \Omega_{23}^2}} (\Omega_{13}e^{(-iE_1t/\hbar)}|1\rangle + \Omega_{23}e^{(-iE_2t+i(\varphi_2-\varphi_1))}|2\rangle) \quad (1.44)$$

$$|NC\rangle(t) = \frac{1}{\sqrt{\Omega_{13}^2 + \Omega_{23}^2}} (\Omega_{13}e^{(-iE_1t/\hbar)}|1\rangle - \Omega_{23}e^{(-iE_2t+i(\varphi_2-\varphi_1))}|2\rangle) \quad (1.45)$$

La probabilité d'une transition de l'état $|C\rangle$ et $|NC\rangle$ vers l'état excité $|3\rangle$ est calculé avec leur amplitudes de transition :

$$\langle 3|\hat{H}_{int}|C\rangle = \frac{\hbar}{2\sqrt{\Omega_{13}^2 + \Omega_{23}^2}} e^{(-iE_1t/\hbar+\omega_1)t+i\varphi_1} (\Omega_{13}^2 + \Omega_{23}^2 e^{i\delta_R t+i\delta_\varphi}) \quad (1.46)$$

$$\langle 3|\hat{H}_{int}|NC\rangle = \frac{\hbar\Omega_{1,3}\Omega_{23}}{2\sqrt{\Omega_{13}^2 + \Omega_{23}^2}} e^{(-iE_1t/\hbar+\omega_1)t-i\varphi_1} (1 - e^{i\delta_R t-i\delta_\varphi}) \quad (1.47)$$

On observe alors depuis les équations (1.46) et (1.47) que lorsque la différence de fréquence entre les deux champs lumineux est égale à la fréquence hyperfine ($\delta_R = 0$) et que $\delta_\varphi = n\pi, n \in \mathbb{Z}$ alors :

$$\langle 3|\hat{H}_{int}|C\rangle = \frac{\hbar}{2} \sqrt{\Omega_{13}^2 + \Omega_{23}^2} e^{(-iE_1t/\hbar+\omega_1)t+i\varphi_1} \quad (1.48)$$

$$\langle 3|\hat{H}_{int}|NC\rangle = 0 \quad (1.49)$$

La probabilité de transition de l'état $|NC\rangle$ vers l'état $|3\rangle$ devient nulle. En d'autres termes, l'état $|NC\rangle$ est découplé du champ laser et aucune transition n'est possible vers l'état excité, les atomes se retrouvent alors "piégés" dans cet état quantique. La probabilité de transition depuis l'état $|C\rangle$ vers $|3\rangle$ étant elle non nulle, des transitions se produisent toujours depuis cet état et peuplent l'état excité. Une fois dans l'état $|3\rangle$, les atomes ont une chance équiprobable de redescendre dans les deux états fondamentaux. Ainsi, au bout de plusieurs cycles de pompage optique, une grande partie des atomes vont progressivement se retrouver piégés dans l'état non couplé, d'où la dénomination de "piégeage cohérent de population". La passivité des atomes piégés dans l'état non couplé entraîne une réduction de l'absorption des photons incidents, caractérisée par une augmentation de la transmission optique et une réduction des émissions spontanées (fluorescence). L'état non couplé est aussi appelé "état noir" pour cette raison [2].

Un balayage en fréquence du champ d'interrogation micro-onde autour de $\delta_R = 0$ révèle un pic étroit dans le spectre d'absorption optique (figure 1.22(a)). Caractérisé par une forme Lorentzienne, on nomme usuellement ce signal une résonance noire ou résonance CPT. La figure 1.22(b) est une résonance CPT obtenue en conditions expérimentales.

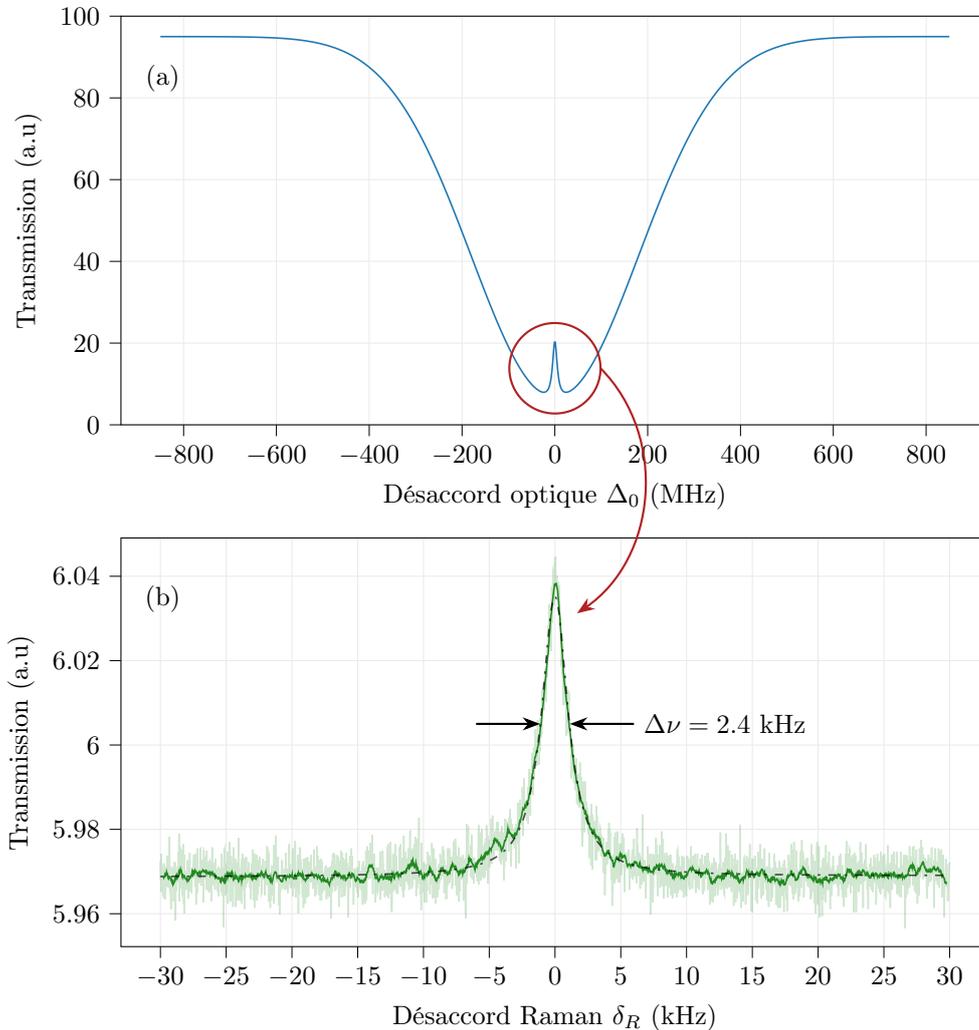


FIGURE 1.22 – (a) Observation d'une résonance CPT, se traduisant par une augmentation de la puissance lumineuse transmise à travers la cellule, dans le fond d'un profil d'absorption optique. (b) Résonance CPT expérimentale. La courbe en vert transparent sont les données brutes, celle opaque en est un moyennage. La courbe en pointillés noirs est la fonction lorentzienne du spectre. La puissance laser est de $12 \mu\text{W}$, la puissance micro-onde de -1 dBm et la température de la cellule de $78 \text{ }^\circ\text{C}$.

Le schéma Λ à 3 niveaux d'énergie est pratique pour mettre en évidence le phénomène CPT. Néanmoins, il ne reflète pas la réalité d'un atome alcalin. En effet, la configuration atomique du césium implique 32 sous-niveaux

atomiques et non uniquement trois, et différents processus de relaxation entrent en jeu, menant à des durées de vie finies dans les différents états.

1.4.2 Caractéristiques de la résonance

La stabilité court-terme d'une horloge atomique est proportionnelle à la largeur à mi-hauteur du signal de résonance et inversement proportionnelle au rapport signal sur bruit de la résonance noire (équation 1.8). On caractérise ainsi une résonance CPT par sa largeur à mi-hauteur et son amplitude.

A) *Largeur de résonance*

La largeur à mi-hauteur $\Delta\nu$ d'une résonance CPT est définie, dans l'hypothèse des faibles intensités et pour un milieu optiquement mince, comme [70] :

$$\Delta\nu = \frac{1}{\pi} \times \left(\gamma_2 + \frac{\Omega_{13}^2 + \Omega_{23}^2}{2\Gamma} \right) = \frac{1}{\pi} \times \left(\gamma_2 + \frac{\Omega_R^2}{\Gamma} \right) \quad (1.50)$$

où Γ est le taux de relaxation de l'état excité ($\Gamma = \Gamma_{31} + \Gamma_{32}$). On note Ω_R la fréquence de Rabi dans le cas où l'intensité des deux champs lumineux est identique (i.e., $\Omega_{13} = \Omega_{23}$). On considère dans notre cas d'application cette égalité des intensités lumineuses car les deux champs résonants sont issus de la même source laser. Le carré de la fréquence de Rabi s'exprime en détail comme :

$$\Omega_R^2 = s_{ij}^2 \frac{2J_i + 1}{2J_j + 1} \frac{3\lambda_{ij}^3}{2\pi\hbar c} \Gamma I \quad (1.51)$$

dans le cas de la transition $|i\rangle$ vers $|j\rangle$, avec λ_{ij} la longueur d'onde et s_{ij} les coefficients de Clebsch-Gordan [36].

La largeur théorique ultime de la résonance CPT dépend uniquement de γ_2 , le taux de relaxation de la cohérence hyperfine CPT. Dans une micro-cellule contenant seulement des atomes de césium, γ_2 est dégradée par les collisions entre les atomes et les parois de la cellule. Deux méthodes sont principalement employées afin de réduire ce phénomène : l'ajout d'une pression de gaz tampon et/ou le dépôt d'un revêtement anti-relaxant sur les parois. L'utilisation d'un gaz tampon rend le mouvement des atomes de césium diffusif [70], et non plus balistique, ce qui augmente la durée de vie de la cohérence car la durée nécessaire aux atomes pour se propager jusqu'aux parois est augmentée. De plus, les atomes alcalins étant confinés par le gaz tampon, leur vitesse est réduite, menant à une réduction de l'élargissement Doppler par effet Dicke [71].

En conditions expérimentales, la largeur de la résonance augmente, pour une cellule avec gaz tampon, linéairement avec l'intensité laser incidente en entrée de cellule. Ainsi, pour améliorer la stabilité d'une horloge opérant en régime continu, il est préférable d'utiliser une faible intensité lumineuse ($\sim 1 - 10 \mu\text{W cm}^{-2}$ [72]).

Une analyse de l'expression théorique de γ_2 permet de déterminer les paramètres optimaux afin d'obtenir les largeurs de résonance les plus fines. On définit le taux de relaxation γ_2 de la cohérence hyperfine par :

$$\gamma_2 = \gamma_w + \gamma_{cs} + \gamma_{bg} \quad (1.52)$$

Dans le cas de l'utilisation d'un gaz tampon de pression P , la relaxation γ_w s'exprime comme [70] :

$$\gamma_w = \left[\left(\frac{2.405}{r} \right)^2 + \left(\frac{\pi}{L} \right)^2 \right] D_0 \frac{P_0}{P} \left(\frac{T}{T_0} \right)^{3/2} \quad (1.53)$$

avec L et r la longueur et le rayon de la cavité d'interaction, respectivement. D_0 est la constante de diffusion des atomes alcalins dans le gaz tampon et P_0 , T_0 sont la pression et la température de référence, respectivement. Pour une configuration géométrique fixée, il est avantageux de travailler avec de fortes pressions de gaz tampon pour réduire l'élargissement de la raie. Le temps de relaxation est de l'ordre de 411 μs pour une cellule de longueur $L = 1.5$ mm et de rayon $r = 1$ mm avec une pression de 70 Torr de

néon ($D_0 = 0.153 \text{ cm}^2/\text{sec}$ [73]) chauffée à $75 \text{ }^\circ\text{C}$. L'élargissement induit est d'environ 387 Hz .

Les autres processus de relaxation sont liés aux collisions inter-atomiques à échange de spin, de type alcalin-alcalin (γ_{cs}) et alcalin-gaz tampon (γ_{bg}). Les expressions sont données par :

$$\gamma_{cs} = \frac{6I + 1}{8I + 4} \bar{v}_{cs,bg} n_{cs} \sigma_{cs} \quad (1.54)$$

$$\gamma_{bg} = n_{bg} \bar{v}_{cs,bg} \sigma_{bg} \quad (1.55)$$

avec $\bar{v}_{i,j} = \sqrt{\frac{8k_B T}{\pi \mu_{i,j}}}$ la vitesse moyenne relative des atomes i et j , n_i la densité atomique de l'espèce i à la température T et σ_{cs} et σ_{bg} les sections efficaces d'échange de spin pour les interactions $cs \leftrightarrow cs$ et $cs \leftrightarrow bg$. La valeur de σ est donnée dans [73-76] dans le cas d'une interaction $cs \leftrightarrow cs$ et dans [73] pour une interaction $cs \leftrightarrow bg$. $\mu_{i,j}$ est la masse réduite du système, définie par $\mu_{i,j} = (m_i m_j) / (m_i + m_j)$ avec m la masse de l'espèce concernée. Dans notre cas d'application, la relaxation résultante est de $712 \text{ } \mu\text{s}$ et 85.4 ms pour une collision $cs \leftrightarrow cs$ et $cs \leftrightarrow bg$, respectivement (i.e., ~ 224 et 2 Hz).

La figure 1.23 représente l'ensemble des contributions au phénomène de relaxation de la cohérence hyperfine, en fonction des paramètres les plus pertinents :

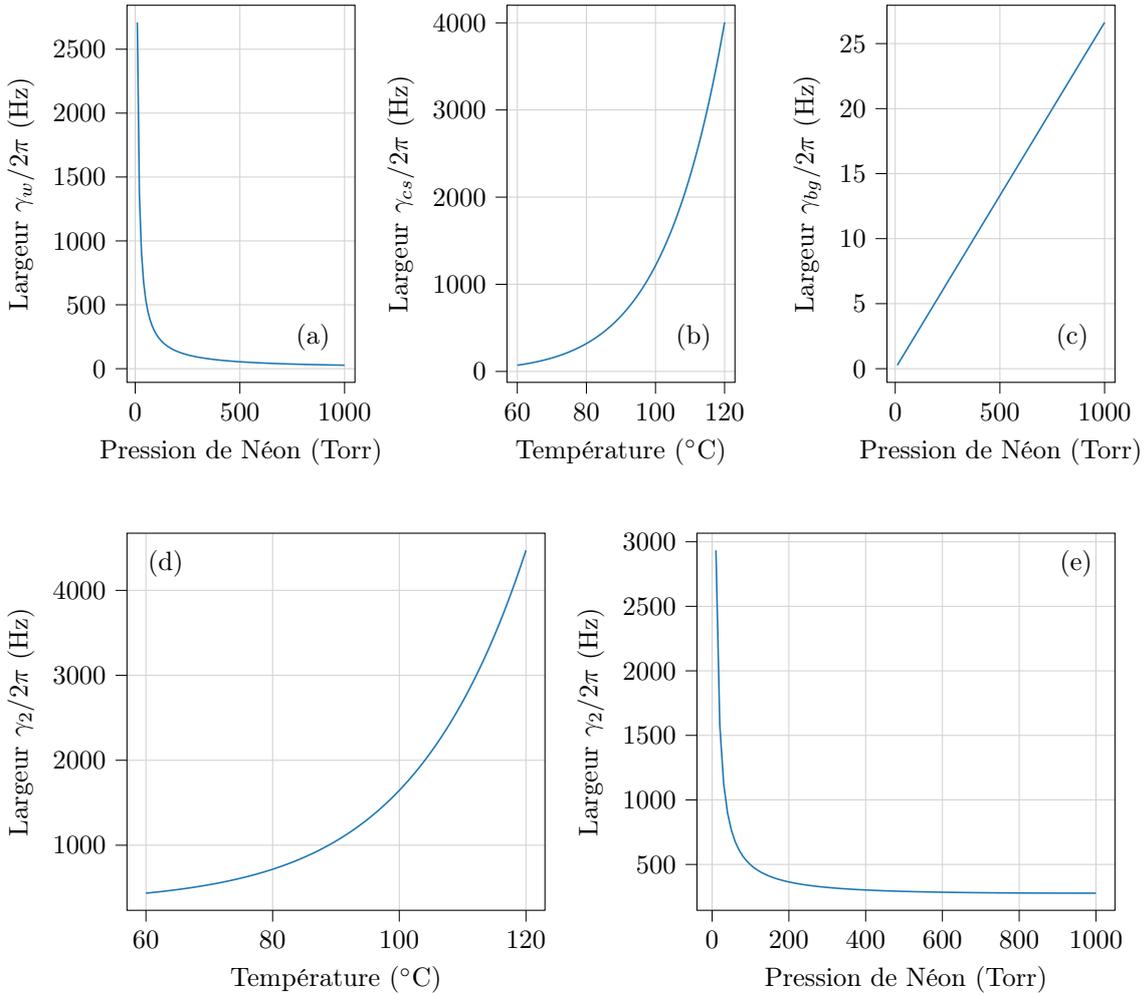


FIGURE 1.23 – Contributions des phénomènes de relaxation de la cohérence hyperfine. (a) Largeur $\gamma_w/2\pi$ à $T = 75 \text{ }^\circ\text{C}$, (b) largeur $\gamma_{cs}/2\pi$ à $P = 70 \text{ Torr}$, (c) largeur $\gamma_{bg}/2\pi$ à $T = 75 \text{ }^\circ\text{C}$, (d) largeur $\gamma_2/2\pi$ à $P = 70 \text{ Torr}$ et (e) largeur $\gamma_2/2\pi$ à $T = 75 \text{ }^\circ\text{C}$. Les figures ont été tracées pour une configuration géométrique de cellule avec une cavité cylindrique de rayon $r = 1 \text{ mm}$ et de longueur $L = 1.5 \text{ mm}$. Chaque contribution est représentée en fonction de son paramètre variable le plus prépondérant.

On peut constater sur la figure 1.23(a) l'intérêt de travailler avec des pressions de gaz tampon de plus de 600 Torr en micro-cellule pour minimiser la largeur de résonance. Cependant, comme mentionné dans la sous-partie 1.3.3, la présence de gaz tampon provoque un déplacement et un élargissement des transitions optiques de plusieurs MHz Torr⁻¹, conduisant à un mélange des états excités. L'efficacité du pompage optique dans l'état CPT est alors dégradée, menant à une réduction du signal de résonance. Pour la raie D_1 du césium, les états excités sont séparés de 1.16 GHz. Ainsi, pour l'exemple du Ne ($\gamma_{Ne} = 10.76$ MHz Torr⁻¹ à 75 °C), les états excités sont recouverts pour une pression d'environ 108 Torr. Ainsi, on choisit par la suite de généralement travailler avec des pressions de Néon de l'ordre de 70 Torr qui est un bon compromis entre l'élargissement de la résonance et le signal CPT. Dans ces conditions expérimentales, la largeur CPT minimale extrapolée à puissance nulle est de l'ordre de 1250 Hz.

B) Amplitude du signal de résonance

L'amplitude du signal de résonance S est déterminée par la différence de population du niveau excité en résonance et hors résonance. Pour un système à trois niveaux [43], on a :

$$S \propto \frac{\Omega_R^4}{4\Gamma} \times \left(\frac{n_{cs}}{\frac{\Gamma^2}{2} + \Delta_0^2} \right) \times \left(\frac{\pi}{\Delta\nu} \right) \quad (1.56)$$

L'amplitude du signal de résonance étant proportionnelle à la densité atomique n_{cs} , il est intéressant de travailler avec des températures élevées. Cependant, à trop haute température, le milieu devient optiquement dense, menant à une réduction du signal CPT à cause d'une augmentation de l'absorption atomique [77]. La puissance laser, contenue dans le terme Ω_R , joue aussi un rôle important dans l'optimisation du signal. On observe une dépendance quadratique de l'amplitude du signal à faible puissance laser (< 20 $\mu\text{W cm}^{-2}$), puis linéaire [72]. Une augmentation de la puissance laser permet dans un sens d'obtenir des niveaux de signal élevés mais dans un autre sens engendre inévitablement l'élargissement de la transition d'étude (équation 1.52).

1.4.3 Déplacements de fréquence de la résonance d'horloge

La fréquence de transition hyperfine de l'atome de césium est exactement définie à $\nu_0 = 9\,192\,631\,770$ Hz dans des conditions idéales au repos. Cependant, la variation des paramètres expérimentaux entraîne des déplacements de ν_0 . La fréquence d'horloge ν s'écrit alors comme :

$$\nu = \nu_0 + \Delta\nu_{bg} + \Delta\nu_{ls} + \Delta\nu_B \quad (1.57)$$

avec $\Delta\nu_{bg}$ le déplacement collisionnel, $\Delta\nu_{ls}$ le déplacement lumineux et $\Delta\nu_B$ le déplacement magnétique.

A) Déplacement collisionnel

Les collisions entre les atomes alcalins et les atomes du gaz tampon conduisent au déplacement collisionnel $\Delta\nu_{bg}$ de la fréquence d'horloge [78]. Ce phénomène est assez complexe à décrire et il n'existe pas d'expression théorique quantifiant de manière exacte ce déplacement. Lorsque la pression et la température varient sur de petites plages de l'ordre de quelques dizaines de Torr et dizaine de Kelvin, le déplacement collisionnel peut être approximé par un polynôme du second ordre [79] tel que :

$$\Delta\nu_{bg} = P_0 [\beta + \delta(T - T_0) + \gamma(T - T_0)^2] \quad (1.58)$$

avec T la température de la cellule et P_0 la pression du gaz tampon à la température de référence $T_0 = 273$ K. β est le coefficient linéaire de pression et δ et γ sont les coefficients thermiques de premier et de deuxième ordre. Le tableau 1.3 rassemble la valeur des coefficients collisionnels pour les gaz tampons couramment utilisés.

Ce déplacement de fréquence correspond en réalité à une variation de densité des électrons au sein du noyau atomique. En effet, une collision entraîne une distorsion du nuage électronique. Les forces de Van der Waals vont attirer l'électron, menant à une réduction de sa densité au noyau et donc une réduction de l'interaction hyperfine. Les forces de Pauli, elles, vont repousser l'électron, conduisant à une augmentation de sa densité au noyau et donc une augmentation de l'interaction hyperfine. Diverses études [78, 80, 82, 83] ont montré que le coefficient linéaire de pression est positif pour les gaz légers (He, Ne et N₂ car les forces d'exclusion (Pauli) sont dominantes), et négatif pour les gaz lourds (Ar, Kr et Xe car les forces

Gaz tampon	β (Hz Torr ⁻¹)	δ (Hz Torr ⁻¹ K ⁻¹)	γ (mHz Torr ⁻¹ K ⁻²)	Réf.
Ne	686 ± 14	0.266 ± 0.006	-1.68 ± 0.05	[53]
	604.3 ± 19.7	0.25 ± 0.04	-1.72 ± 0.48	[80]
N ₂	922.5 ± 4.8	0.824 ± 0.006	-2.51 ± 0.03	[53]
	879.3 ± 26.6	0.89 ± 0.11	-3.22 ± 1.28	[80]
Ar	-194.4 ± 1.6	-1.138 ± 0.010	0.0 ± 0.3	[53]
	-182.2 ± 5.5	-1.12 ± 0.05	-0.40 ± 0.43	[80]
He	1185 ± 46	1.49 ± 0.15	NC	[81]

TABLE 1.3 – Coefficients de déplacement collisionnel β , δ et γ de la transition hyperfine du césium pour certains gaz tampons usuels (Ne, N₂, Ar, He).

d'attractions (Van der Waals) sont plus importantes).

Il est mentionné dans la littérature l'apparition d'un terme non linéaire $\Delta^2\nu$ [84, 85] lors de collisions entre gaz lourds. Ce déplacement est causé par les collisions à trois corps formées par des liaisons Van der Waals à courte durée de vie. De plus, l'article [86] mentionne un terme quadratique bP_0^2 . Dans la suite de notre étude, nous aborderons la potentielle utilisation des gaz tampons Ne, He, N₂ et Ar dans notre horloge. Ces deux termes seront négligés pour le Ne, He et N₂ car les valeurs de b et $\Delta^2\nu$ sont nulles ou inconnues [84, 86]. Nous considérerons ces termes supplémentaires seulement dans le cas de l'argon, où $b = 1$ mHz/Torr² [86]. L'expression du terme non linéaire est donnée par [84] :

$$\Delta^2\nu = - \left(\frac{1}{2\pi T} \right) \frac{\phi^3}{1 + \phi^2} \quad (1.59)$$

avec $TP^2 = 0.05 \pm 0.01$ sTorr² et $\phi P = 3.90 \pm 0.44$ rad Torr pour l'argon à 35 °C.

Il existe pour certains gaz tampons une température dite d'inversion, annulant au premier ordre la dépendance de la fréquence d'horloge aux fluctuations de température. Pour $\gamma \neq 0$:

$$T_{inv} = T_0 - \frac{\delta}{2\gamma} \quad (1.60)$$

L'argon et le néon présentent respectivement un point d'inversion en température à 164 ± 13 °C et 79 ± 3 °C [53]. La figure 1.24 représente le déplacement collisionnel pour ces gaz en fonction de la température.

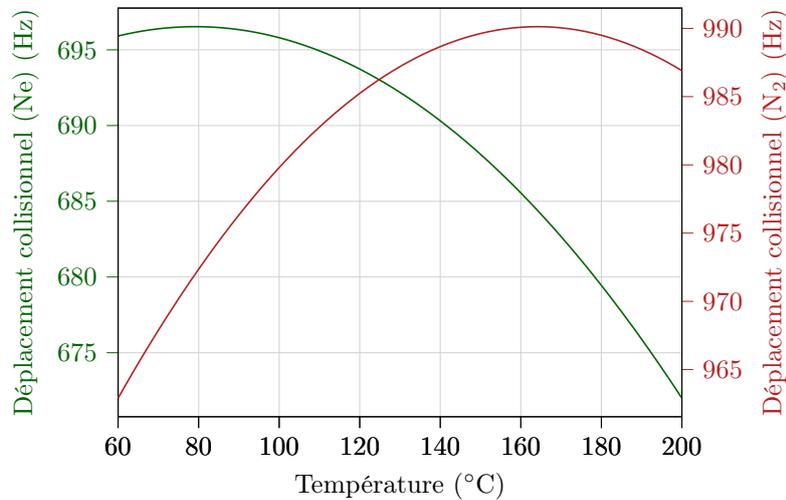


FIGURE 1.24 – Déplacement collisionnel causé par le néon et l'azote pour une pression de 1 Torr par rapport à la fréquence d'horloge de l'atome de césium au repos (9192631770 Hz).

D'autres gaz comme l'hélium ou l'argon présentent une dépendance quadratique très faible (i.e. un point d'inversion très éloigné en température). Le point d'inversion en température du néon obtenu vers 79 °C est intéressant dans le cas d'une micro-horloge [30, 87, 88] de par sa simplicité de mise en oeuvre (pas de mélange de gaz). Cependant, dans le cas d'applications plus critiques évoluant dans des environnements de plus de 90 °C, il est nécessaire d'utiliser un autre gaz tampon ou un mélange de gaz. L'azote seul présente un point d'inversion trop éloigné en température.

Une possibilité consiste alors à utiliser un mélange de gaz tampons avec des dépendances thermiques opposées afin d'obtenir un point d'inversion à une température cible par ajustement des pressions partielles respectives des deux gaz. Dans le cas d'un mélange de gaz, l'équation (1.58) reste valable en redéfinissant la moyenne pondérée des différents coefficients :

$$\beta = \sum_i r_i \beta_i \quad \delta = \sum_i r_i \delta_i \quad \gamma = \sum_i r_i \gamma_i \quad (1.61)$$

avec β_i , δ_i et γ_i les coefficients des gaz tampons et r_i la pression partielle du gaz i , tel que $\sum_i r_i = 1$. Dans le cas d'un mélange de gaz, le point d'inversion en température est défini comme :

$$T_{inv} = T_0 - \frac{\sum_i r_i \delta_i}{2 \sum_i r_i \gamma_i} \quad (1.62)$$

Un mélange de gaz permet de décaler le point d'inversion vers les hautes ou les basses températures d'un gaz seul vers une température souhaitée. Le mélange N₂-Ar permet de décaler le point d'inversion de l'azote de 164 °C vers les basses températures grâce à l'argon. Deux autres mélanges possibles à partir du néon sont Ne-N₂ et Ne-He, l'azote et l'hélium permettant de déplacer le point d'inversion du néon de 79 °C vers de plus hautes températures.

La figure 1.25 représente l'évolution du point d'inversion en fonction des différents ratio de gaz pour ces différents mélanges.

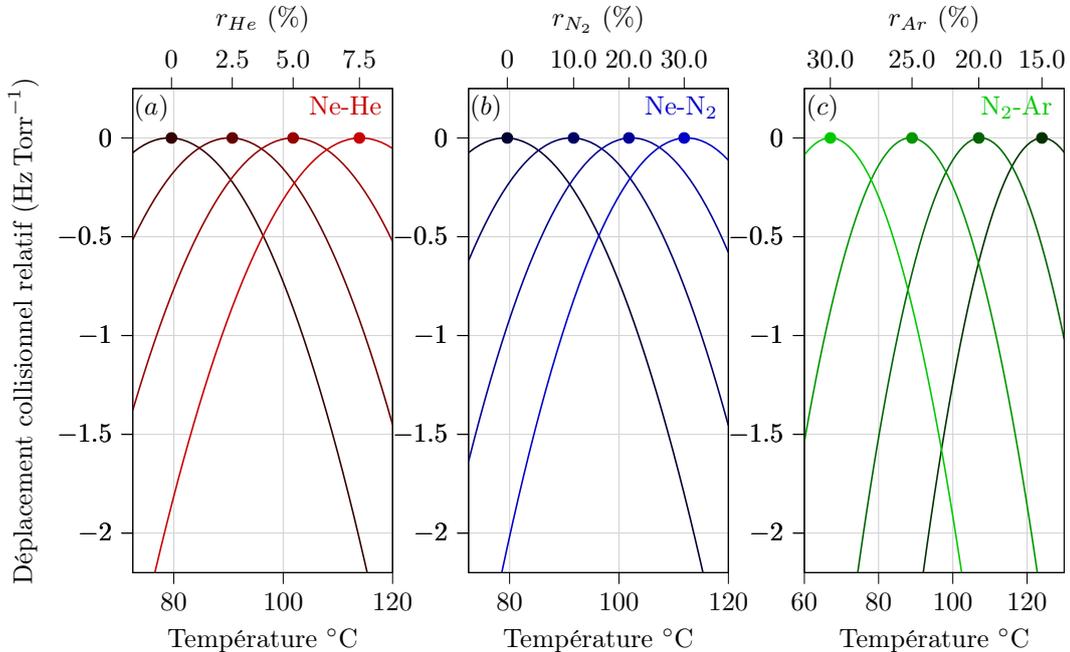


FIGURE 1.25 – Déplacement collisionnel relatif pour un mélange de gaz Ne-He (a), Ne-N₂ (b) et N₂-Ar (c). Les points d'inversions en température sont signalés par un point sur chacune des courbes.

Le mélange N₂-Ar est aujourd'hui largement utilisé dans le développement de micro-horloges atomiques [27, 31, 89]. Concernant les mélanges à base de néon, la combinaison Ne-N₂ n'est pas documentée à notre connaissance dans la littérature, malgré son potentiel d'utilisation pour contrôler la température d'inversion. Le mélange Ne-He est souvent rejeté comme choix, car l'hélium, très volatile, a tendance à fuir

à travers les verres de la cellule, menant à une dégradation de la stabilité d'horloge [90]. Nous montrerons dans le chapitre 3 que cette solution pourrait de nouveau être discutée en exploitant des substrats de verre ou des revêtements limitant significativement la perméation de l'hélium. Enfin, le mélange Kr-N₂ est aussi employé [91].

Il est aussi rapporté dans la littérature un mélange à base de trois gaz tampons : N₂-Ne-Ar [92]. L'utilisation de ce mélange spécifique est en lien direct avec la méthode de remplissage en alcalin utilisé dans cette étude. Une réaction entre le BaN₆ et le ⁸⁷RbCl permet la création de l'isotope ⁸⁷Rb dans la cellule mais libère aussi des atomes de baryum et molécules d'azote. L'argon possédant un coefficient thermique linéaire négatif, le point d'inversion est déplacé vers les très basses températures ($T_{inv} = -76$ °C pour un mélange Ne_{69%}-Ar_{31%} dans [92]). L'interaction entre ces deux corps amplifiant les déplacements collisionnels, l'utilisation de gaz inertes évite alors toute réaction. Le positionnement du point d'inversion vers de très faibles températures permet d'obtenir une pente de décalage collisionnel relativement plate sur une grande gamme de température.

B) Déplacements lumineux ("light shifts")

Un des effets majeurs conduisant à la dégradation de la stabilité de fréquence moyen et long-terme d'une horloge CPT à cellule de vapeur sont les effets de déplacements lumineux. L'interaction entre le moment dipolaire d'un atome et le champ électromagnétique rayonnant incident entraîne un décalage des fréquences de transitions atomiques (effet "*AC-Stark shift*"). Ainsi, toute fluctuation propre au champ laser mène à un déplacement de la fréquence de transition. Expérimentalement, ces fluctuations peuvent trouver leurs origines dans une variation de la fréquence laser (désaccord optique Δ_0), puissance micro-onde (répartition énergétique dans les bandes latérales du laser) ou de la puissance laser. Plus de détails sur les déplacements lumineux seront donnés dans le chapitre 2.

C) Déplacement Zeeman

Nous avons abordé dans la section 1.2.3 le fait que l'application d'un champ magnétique est nécessaire pour lever la dégénérescence Zeeman et exploiter la "transition d'horloge". La présence d'un champ magnétique entraîne un déplacement de la fréquence d'horloge du césium $|3, m_F = 0\rangle \Rightarrow |4, m_F = 0\rangle$ de l'ordre de $427 B \text{ Hz G}^2$ (voir équation 1.15).

Deux autres phénomènes dépendant du champ magnétique utilisé peuvent mener à des dégradations de la stabilité de fréquence. Le premier phénomène concerne la variation de la direction du champ magnétique statique par rapport à l'axe de propagation du faisceau laser (une variation de direction des lignes de champ magnétique mène à une variation du signal de résonance d'horloge [93]). Le second phénomène, nommé "Rabi pulling" [94], se traduit par un déplacement d'horloge causé par l'asymétrie du spectre Zeeman avec la proximité des transitions magnétiques voisines à la transition d'horloge.

1.5 Micro-horloges atomiques CPT

1.5.1 Principe de fonctionnement

La figure 1.26 représente l'architecture d'une micro-horloge atomique CPT. Cette dernière est constituée en premier lieu d'un module physique. Ce dernier intègre une diode laser VCSEL, des composants optiques pour la mise en forme et en polarisation du faisceau, une micro-cellule contenant une vapeur alcaline diluée par une pression de gaz tampon et une photodiode de détection en sortie de cellule. Ce module physique est associé à une carte électronique, embarquant une synthèse de fréquence délivrant un signal de sortie à 4.596 GHz (dans le cas d'une horloge à césium) modulant la diode VCSEL et assurant l'intégralité du pilotage de l'horloge atomique. Le champ optique bi-chromatique généré par la VCSEL pompe les atomes dans l'état CPT et permet la détection d'un signal de résonance atomique. Le signal de résonance est alors exploité afin d'asservir la fréquence de l'oscillateur local sur la fréquence de transition atomique, ce dernier acquérant par ce biais la stabilité intrinsèque des atomes.

Le laser utilisé dans les micro-horloges atomiques CPT [3, 4] est une diode laser VCSEL. Ces lasers sont constitués d'une zone active avec un ou plusieurs puits quantiques (permettant la génération d'un faisceau laser), pris dans une structure en sandwich obtenue par deux miroirs de Bragg parallèles. Ces miroirs sont une alternance de couches à haut et bas indices de réfraction dont l'épaisseur est égale à un quart de la longueur d'onde du laser, menant à un facteur de réflexion supérieur à 99 %. Les VCSELs sont particulièrement attractives pour les micro-horloges [4, 9, 95] car elles permettent une modulation à haute fréquence (> 4 GHz), présentent un faible courant de seuil (< 1 mA), une faible consommation de puissance (< 2 mW), une polarisation linéaire en sortie de boîtier et une largeur spectrale compatible avec la spectroscopie CPT (< 100 MHz) [96]. De

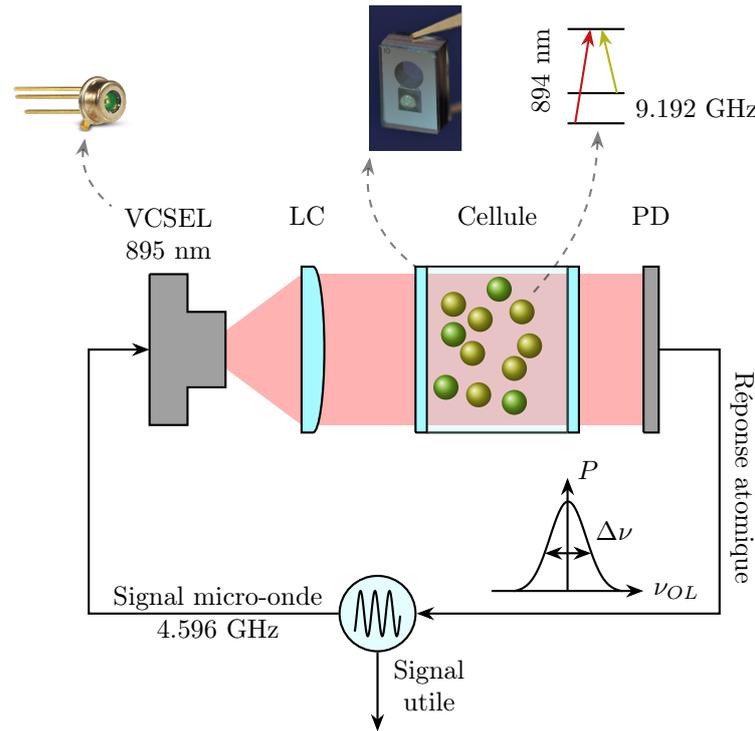


FIGURE 1.26 – Architecture simplifiée d’une micro-horloge atomique CPT. Des atomes alcalins (ici de césium, en jaune), confinés dans une cellule micro-fabriquée avec des atomes de gaz tampon (en vert), interagissent avec un signal micro-onde porté optiquement obtenu par la modulation directe d’une diode laser VCSEL. Le signal de résonance CPT est détecté en sortie de cellule par une photodiode. Ce dernier permet de corriger la fréquence de l’oscillateur local. Ce type d’horloge inclut aussi une boucle de stabilisation de la fréquence laser non représentée ici. En haut à gauche : photo d’une diode laser VCSEL mise en boîtier, en haut au milieu : photo d’une micro-cellule développée à FEMTO-ST, en haut droite : schéma des transitions atomiques exploitées dans le phénomène CPT. LC : lentille de collimation et PD : photodiode.

plus, leur construction verticale permet d’émettre un rayonnement perpendiculaire à leur surface, facilitant leur intégration dans une horloge à l’échelle d’une puce. Aujourd’hui, les diodes laser VCSEL bénéficient d’une maturité technologique permettant une fabrication à bas prix à l’échelle d’un wafer complet. Le lecteur est convié à se référer au livre de la référence [97] pour une description plus exhaustive de ce type de diode laser.

Les premières VCSELs commercialisées permettaient de sonder la raie D_2 d’atomes alcalins (Rb à 780 nm ou Cs à 852 nm) ou D_1 du rubidium (795 nm). Cependant, la stabilité court-terme d’une micro-horloge basée sur le phénomène CPT est significativement améliorée en sondant la raie D_1 de l’atome de césium [38]. Aux États-Unis, Sandia National Laboratories a développé dans les années 2000 une VCSEL haute-performance à 895 nm dans le cadre du projet CSAC (Chip Scale Atomic Clock) de la DARPA [3]. Cependant, malgré un développement aboutissant à une solution industrielle, ces diodes n’étaient disponibles que dans le cadre de projets partenaires. Au Japon, des prototypes fabriqués par Ricoh Co. Ltd ont été utilisés dans le cadre d’une étude publiée dans [98]. Cependant, ces derniers ne sont pas devenus à notre connaissance, disponibles commercialement. En Europe, l’Université d’Ulm a développé des diodes VCSEL à 895 nm pour des applications en micro-horloge [99, 100]. Une caractérisation métrologique est communiquée dans [101], confirmant des stabilités de fréquence d’horloge compatibles avec des niveaux de quelques 10^{-11} à 1 s et une largeur spectrale de ~ 25 MHz. Depuis 2015, l’industriel Vixar propose une diode laser VCSEL commerciale à 895 nm [4]. Ces diodes ont fait l’objet d’une caractérisation métrologique dans [4]. Leur courant de seuil est situé à ~ 0.5 mA. Les diodes délivrent en fonctionnement continu des puissances optiques de quelques centaines de micro-watts à 70 °C. La largeur spectrale annoncée par le constructeur est de 50 MHz et a été mesurée par [4] et une de nos récentes mesures à ~ 32 MHz. En régime d’opération, le courant injecté dans la diode laser est d’environ 1.8 mA [102] afin de s’accorder sur la longueur d’onde de la transition optique du césium.

La cellule micro-fabriquée à vapeur alcaline utilisée à FEMTO-ST consiste en deux cavités voisines gravées dans un substrat de silicium et prises en sandwich entre deux substrats de verre assemblés par soudure anodique. Le remplissage de la cellule en vapeur alcaline se fait par activation laser d'une pastille de césium. Le lecteur est invité à se rendre au chapitre 3 afin d'avoir plus d'informations sur les procédés de fabrication et de remplissage de la cellule en vapeur alcaline.

1.5.2 Enjeux économiques et sociétaux

Les micro-horloges atomiques, par leur faculté à combiner une excellente stabilité relative de fréquence ($\sim 10^{-11}$), une faible consommation de puissance (100 – 200 mW) et un faible volume (15 – 20 cm³), sont attractives dans de nombreuses applications.

Dans le domaine des télécommunications, la synchronisation entre stations de base de réseaux cellulaires est principalement assurée par des oscillateurs à quartz disciplinés sur les signaux GPS (Global Positioning System). Dans cette configuration, un module "holdover" basé sur un oscillateur de type OCXO (Oven Controlled Quartz Crystal Oscillator) permet de prendre le relais en cas de perte des signaux de la référence temporelle GPS. La capacité de la station à fonctionner de manière autonome dépend alors directement de la stabilité de la référence de temps locale. Les micro-horloges atomiques représentent ainsi une alternative de choix à l'OCXO par leur capacité à étendre la durée du holdover d'environ une journée à une semaine. Aussi, leur intégration massive sur un nombre important de noeuds du réseau de communication, contribuerait à renforcer leur indépendance, leur sécurité et leur précision.

L'implémentation de micro-horloges atomiques dans le secteur aéronautique pourrait aussi améliorer la navigation et le positionnement par système satellite des avions. Dans une étude datant de 2020 [103], les auteurs ont caractérisé trois oscillateurs (deux horloges atomiques miniatures (Microchip MAC SA.35m, Spectratime LCR-900) et un OCXO (Stanford Research Systems SC10)) lors d'une expérience en vol afin d'évaluer les performances de ces horloges dans des conditions dynamiques. Dans ce test, le TCXO (Temperature Controlled Crystal Oscillator) utilisé habituellement à bord est remplacé par ces oscillateurs, et la stabilité de l'horloge est déterminée. La figure 1.27(a) montre une des trajectoires de vol effectuée, tandis que la figure 1.27(b) rapporte l'accélération subie à bord de l'appareil.

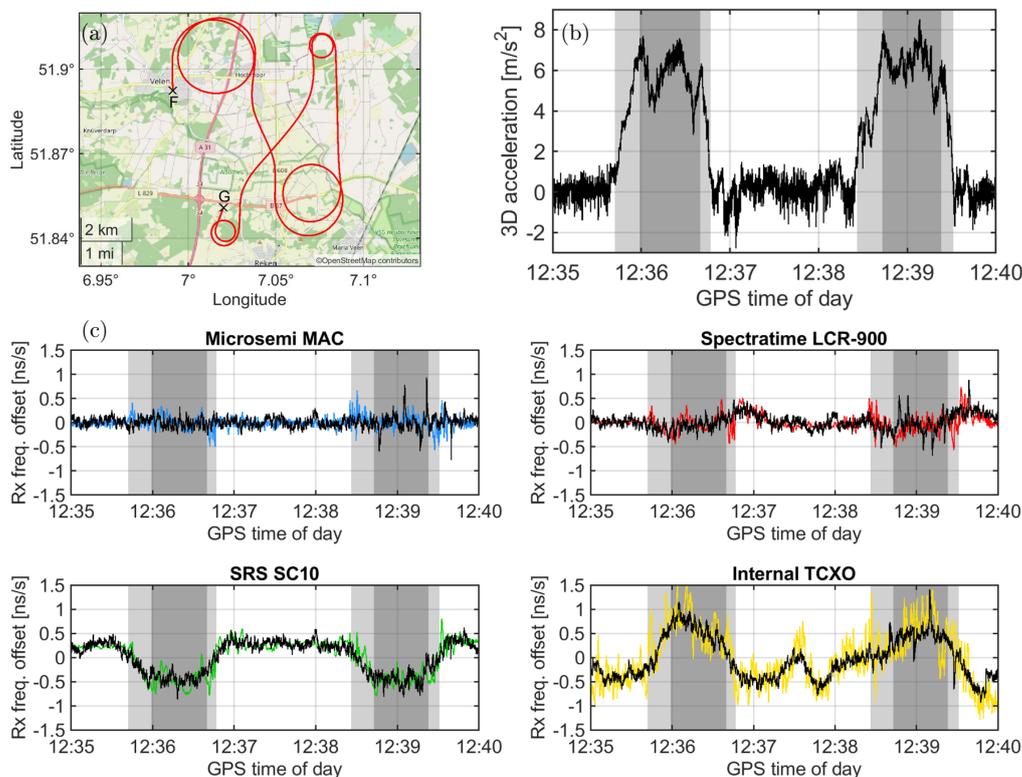


FIGURE 1.27 – (a) Trajectoire du vol effectuée à une altitude de 2800 m. (b) Accélération en vol mesurée par une centrale inertielle durant le segment de vol montré sur (a). (c) Déplacements fréquentiels des oscillateurs. Figures extraites de [103].

La figure 1.27(c) rapporte les mesures des déplacements fréquentiels et temporels des oscillateurs en fonction de la dynamique de vol. On observe que les manœuvres responsables de fortes accélérations ($> 6 \text{ m s}^{-2}$), caractérisées par les zones grises figure 1.27(c), engendrent des déplacements significatifs de la fréquence des oscillateurs à quartz OCXO et TCXO, tandis que les horloges atomiques ne subissent pas de telles perturbations. L'utilisation d'horloges atomiques pourrait ainsi permettre de renforcer les performances de navigation en conditions dynamiques telles que celles rencontrées dans les avions.

Les atouts des micro-horloges atomiques pourraient aussi bénéficier à l'efficacité de gestion, la sécurisation, l'indépendance vis-à-vis des signaux GPS, la réduction des coûts de fonctionnement et l'optimisation opérationnelle des réseaux de distribution d'énergie, dits *smart grids*, au sein desquels une multitude de "phaseurs" distribués et synchronisés entre eux contribuent à la mesure routinière et automatique de différents signaux électriques à de nombreux points du réseau.

La datation précise, la traçabilité et la sécurisation des échanges de données sur réseaux, dans lesquels l'ensemble des noeuds doivent être en permanence synchronisés entre eux est un enjeu capital pour garantir la certification des transactions financières ou la fluidité des circulations ferroviaires et aériennes. La Commission Européenne estime que 7% du PIB des pays occidentaux dépend directement des signaux type GPS. L'échange de données sécurisées devient donc un enjeu de sécurité nationale autant qu'un atout économique majeur. Dans ce contexte, les micro-horloges atomiques peuvent jouer un rôle capital par leur potentiel à être distribuées sur un nombre conséquent de noeuds bas-niveau du réseau, depuis lesquels elles assureraient le rôle d'arbitre local pour la sécurisation et la précision temporelle des informations échangées.

Les capteurs utilisés dans les applications sous-marines reposent sur une mesure précise du temps pour être efficace. Afin de sonder les fonds marins à la recherche de poches de pétrole ou pour la conduite de recherches géophysiques, un réseau de capteurs sismiques est disposé au fond de l'océan (profondeur supérieure à 2000 m) et une onde sonore est envoyée depuis un bateau source (voir figure 1.28). Une partie de l'énergie de cette onde est absorbée par les différents matériaux constituant les fonds marins, tandis que l'autre partie de l'onde est renvoyée vers le réseau de capteurs. La cartographie des fonds marins est effectuée par la mesure du temps de propagation de l'onde. Comme le temps donné par le GPS n'est pas accessible sous l'eau, ces capteurs sont généralement connectés temporellement par des oscillateurs à quartz pré-synchronisés avant immersion. Cependant, la stabilité de fréquence long-terme limitée de ces derniers restreint directement la durée de ce type de mission. Les micro-horloges atomiques représentent ainsi dans ce domaine une technologie alternative attractive pour accroître l'autonomie de ce type de dispositifs. Cette application est à notre connaissance le marché premier des ventes de la micro-horloge américaine Microchip CSAC [104].

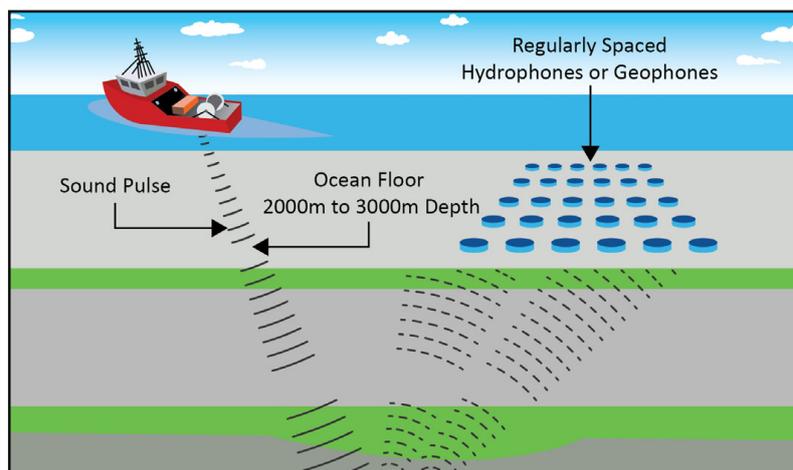


FIGURE 1.28 – Cartographie des fonds marins par la mesure du temps de propagation entre un bateau source et un réseau de capteurs. Illustration extraite de [105].

Ainsi, bien souvent, pour l'ensemble des applications organisées selon des architectures réseaux, la compatibilité avec la production de masse des horloges utilisées s'ajoute à la fonction primaire de stabilité recherchée. Se cumulent alors, pour les applications nécessitant un caractère de portabilité telles que les récepteurs de prospection pétrolières offshore, les aspects critiques de compacité et de basse consommation. Les spécifications associées cruciales telles que l'autonomie des missions ou la rapidité à l'allumage, peuvent ainsi être satisfaites grâce un très faible budget de consommation.

1.5.3 Micro-horloges atomiques CPT : bref état de l'art

La multitude des besoins et les nombreux atouts des micro-horloges atomiques expliquent l'engouement international fort sur cette thématique au cours des deux dernières décennies. On dénombre de nombreux pays dans lesquels existent et se poursuivent des projets significatifs sur le sujet.

Le premier prototype d'un module physique d'horloge atomique basé sur des technologies MEMS a été démontré au laboratoire NIST (Boulder, Colorado), aux États-Unis, en 2004 [89]. Ce dernier est composé d'un empilement vertical d'une diode laser VCSEL accordée sur la raie D₂ du césium, d'éléments optiques et d'une cellule micro-fabriquée (voir la figure 1.29). La stabilité relative de fréquence d'horloge de ce prototype était de 2×10^{-10} à 1 s et 2×10^{-9} à 10^4 s. L'exploitation de lasers accordés sur la raie D₁ [38] et la stabilisation de l'atmosphère interne de la cellule [92] a permis d'améliorer la stabilité de fréquence à 4×10^{-11} à 1 s et 8×10^{-11} à une journée d'intégration.

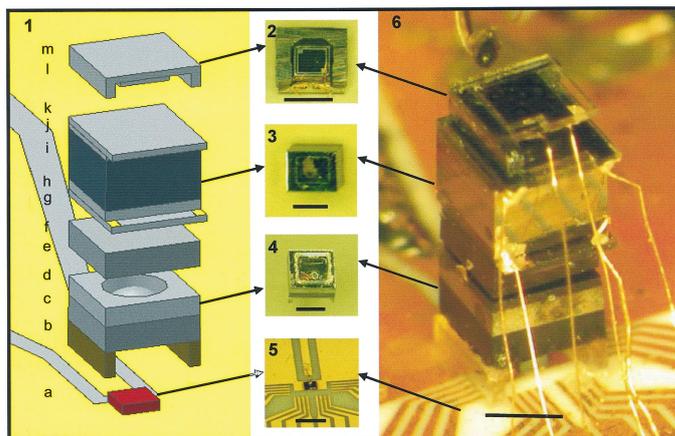


FIGURE 1.29 – Prototype du module physique démontré au NIST en 2004 [89].

Suite à ce démonstrateur pionnier, le projet CSAC financé à hauteur de 100 millions de dollars par la DARPA, a conduit fin 2011 à la mise sur le marché de la première micro-horloge atomique commerciale, nommée CSAC SA-45s [11]. Cette dernière est aujourd'hui proposée par le groupe industriel Microchip, sa dernière version étant la CSAC SA-65 [104] (depuis 2021, voir figure 1.30). Cette horloge intègre un module physique basse consommation conçu au Charles Stark Draper Laboratory et au National Sandia Laboratory. Cette horloge atomique miniature présente des performances remarquables incluant une stabilité relative de fréquence de l'ordre de 10^{-11} à 1000 s et de 9×10^{-10} à 1 mois d'intégration, pour un volume total de 17 cm^3 , une consommation de 120 mW et un poids de 35 g. Le fabricant assure un fonctionnement stable de l'horloge dans un environnement en température entre -40 et $80 \text{ }^\circ\text{C}$. Le module physique de cette horloge trouve en son coeur une microcellule à vapeur de césium exploitant un mélange de gaz tampon N₂-Ar et une diode VCSEL résonante sur la raie D₁ du césium, tous deux maintenus par un système de suspension à faible conduction thermique [106]. Ce module physique interagit avec une électronique de contrôle basée sur l'exploitation d'un micro-contrôleur.

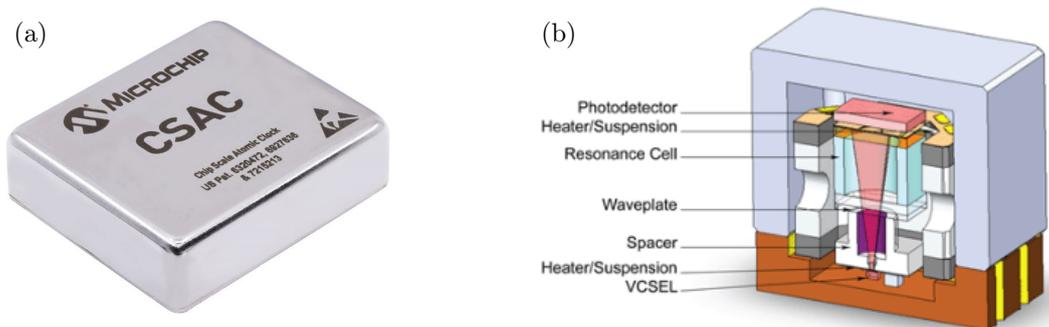


FIGURE 1.30 – (a) Horloge atomique miniature CSAC-SA65 proposée par Microchip [104]. (b) Schéma de la vue en coupe de l'intérieur du module physique de la CSAC-SA65.

Dans le cadre du projet DARPA, d'autres prototypes ont été démontrés par Honeywell [107], Teledyne [17] et Sarnoff [108]. L'industriel Américain Teledyne propose une version commerciale de sa micro-horloge atomique CPT, montrée figure 1.31. Cette dernière, occupant un volume de 23 cm^3 pour une consommation de puissance de 180 mW , présente une stabilité de fréquence de 3×10^{-10} et 1×10^{-11} à 1 et 10^3 s [109]. La commercialisation de l'horloge est proposée depuis la fin de l'année 2020.



FIGURE 1.31 – Module physique de la micro-horloge atomique CPT commerciale proposée par l'industriel Américain Teledyne [17, 109].

Près de 20 ans après le premier prototype du NIST, le développement de micro-horloges atomiques stimule toujours une quantité impressionnante de travaux de recherche, d'innovations scientifiques et technologiques [9]. De nombreux projets de micro-horloge atomique sont en cours en Asie. Au Japon, une micro-horloge atomique basse-consommation, nommée ULPAC (ultralow power atomic clock) et montrée sur la figure 1.32, a été proposée au Tokyo Institute of Technology [12]. Cette dernière repose sur une cellule micro-fabriquée de césium dilué dans un mélange $\text{N}_2\text{-Ar}$. L'horloge occupe un volume total de 15 cm^3 , pour une consommation de puissance de seulement 60 mW et une stabilité relative de fréquence de 2.2×10^{-12} à 10^5 s . De par ses performances, ce prototype se présente comme un potentiel concurrent de la CSAC SA-65. Il n'existe cependant pas à ce jour de version commercialisée de ce système.

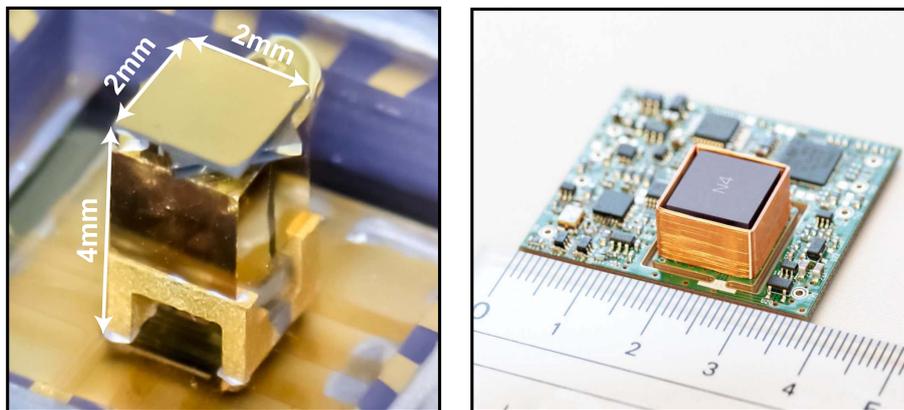


FIGURE 1.32 – À gauche : module physique de l'horloge atomique miniature ULPAC développée au Tokyo Institute of Technology [12]. À droite : photographie de l'horloge miniature comprenant le module physique et l'électronique d'asservissement.

L'industriel Japonais Seiko Epson avait annoncé en 2015 [20] aboutir sur le développement d'une micro-horloge atomique CPT (modèle AO6860LAN) d'un volume de 73 cm^3 , avec une consommation élevée de puissance de 3 W et une stabilité de fréquence inférieure à 5×10^{-11} à 1 s . Une mise en production avait été prévue pour 2016 mais aucune information supplémentaire n'a été à ce jour communiquée.

En Chine, un prototype de module physique a été développé à l'université de Shanghai en 2014 [110]. Dans ce module, montré sur la figure 1.33(a), la VCSEL, la cellule micro-fabriquée de rubidium et les optiques sont contenues dans un module d'un volume de 2.8 cm^3 . La consommation de puissance est de 150 mW lorsque la cellule est chauffée à $100 \text{ }^\circ\text{C}$. Une stabilité de fréquence d'horloge court-terme de 7×10^{-10} à 1 s est rapportée.

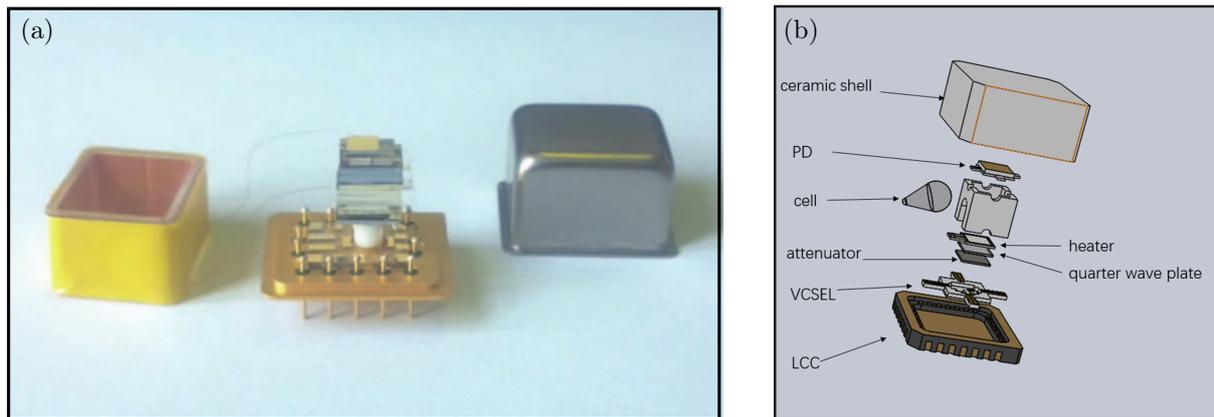


FIGURE 1.33 – Module physique de l’horloge atomique miniature développée à l’Université de Shanghai [110] (a) et à l’Université de Pékin [111] (b).

L’université de Pékin a publié dans des études en 2020 et 2021 [14, 111] leurs avancements concernant le développement d’une horloge atomique miniature. Les auteurs rapportent la conception d’un module physique, montré figure 1.33(b), occupant un volume de 12 cm^3 et démontrant une déviation d’Allan de 3.7×10^{-11} et 6.4×10^{-12} à 1 s et 10^3 s [111], respectivement. La consommation totale de puissance du module physique d’environ 80 mW [14] a été récemment réduite à 20 mW [112].

Un autre module physique a été rapporté à Pékin en 2015 [113]. Cette horloge n’utilise pas une cellule MEMS mais une cellule en verre soufflé de dimensions $3 \text{ mm} \times 3 \text{ mm}$. La première version du module physique, montré figure 1.34(a) et (b), occupe un volume d’environ 3 cm^3 et fonctionne dans une plage de température entre -20 et $+85^\circ\text{C}$. Dans une étude plus récente datant de 2017 [114], les auteurs ont présenté un prototype d’horloge atomique complet avec une deuxième version plus compacte du module physique, montrés figure 1.34(c). L’horloge complète occupe un volume de 20 cm^3 ($< 2 \text{ cm}^3$ pour le module physique). La consommation de puissance est de 750 mW, dont 500 mW sont alloués au chauffage du module physique. La stabilité d’horloge est de 3.5×10^{-11} , 4×10^{-12} et 8×10^{-12} à 1 s, 10^2 s et 10^4 s, respectivement.

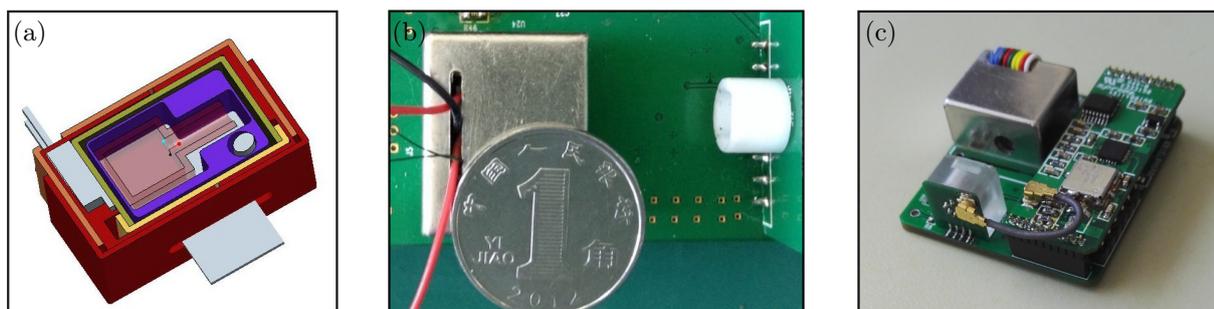


FIGURE 1.34 – (a) et (b) Première version du module physique de l’horloge atomique miniature développé à l’université de Pékin [113]. (c) Prototype d’horloge atomique avec la deuxième version du module physique [114].

On note qu’aucun des ces prototypes académiques asiatiques n’a été à ce jour commercialisé, malgré des performances compétitives. Néanmoins, l’industriel chinois Spaceon propose depuis 2020 une micro-horloge atomique (XHTF1045)[19] présentant un volume de 17 cm^3 et consommant une puissance de 250 mW. La stabilité court-terme de fréquence de l’horloge est de 3×10^{-10} à 1 s et 3×10^{-11} à 10^2 s.

En Corée du sud, un prototype de micro-horloge a été démontré en 2021 dans [16]. Le module physique, montré figure 1.35, occupe un volume de 1 cm^3 et consomme une puissance de 200 mW. Des stabilités d’horloge de 1×10^{-10} à 1 s et 5.2×10^{-12} à 10^3 s sont rapportées.

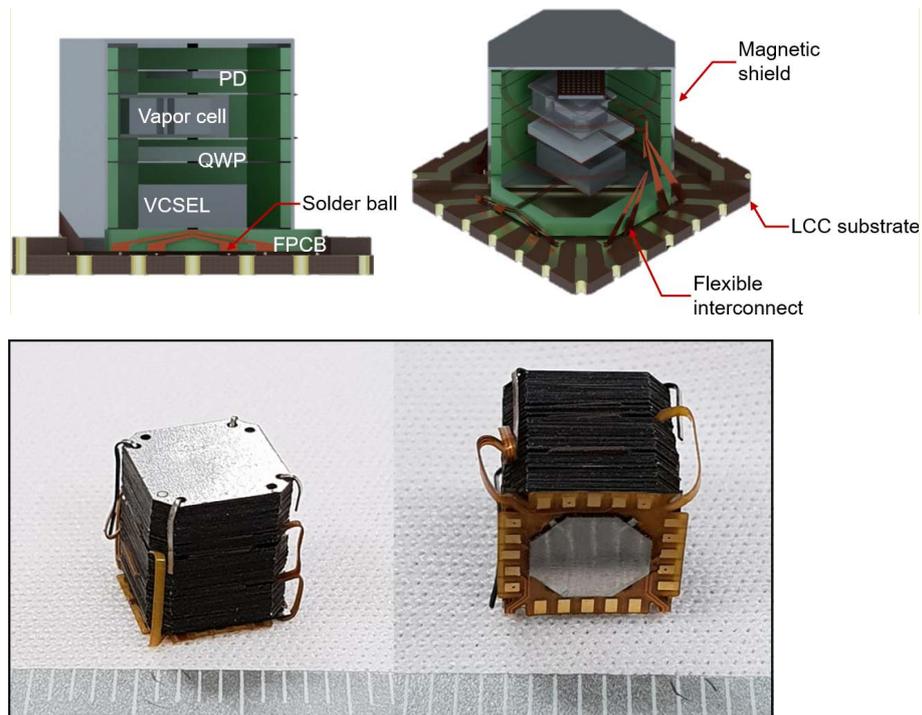


FIGURE 1.35 – Module physique du prototype d’horloge miniature développée en Corée du sud. Les deux images du bas sont des photographies du module. Figures extraites de [16].

En Israël, l’industriel AccuBeat propose une horloge atomique nommée NAC1 [15]. Cette horloge, montrée sur la figure 1.36, présente un volume de 32 cm^3 , une puissance de consommation de 1.2 W , une stabilité relative de fréquence de 2×10^{-10} à 1 s , 2×10^{-11} à 100 s et un vieillissement de 3×10^{-10} à un mois à une température de 25°C . Le produit NAC1 repose sur une cellule en verre soufflé. Aussi, la consommation de puissance de l’ordre du watt et la gamme de température de fonctionnement limitée de -10 à $+65^\circ\text{C}$ de l’horloge NAC1 rendent cette dernière non-conforme à certaines exigences d’applications autonomes, mobiles et embarquées. Notons que le groupe israélien Rafael travaille actuellement sur le développement d’une horloge atomique miniature, qui reposera sur l’exploitation d’une cellule MEMS [115].



FIGURE 1.36 – Horloge atomique miniature NAC1 développée par AccuBeat en Israël [15].

Au Royaume-Uni, l’industriel IDQ propose depuis 2021 un modèle d’horloge atomique miniature CPT utilisant du rubidium (ICPT-1)[18]. Cette dernière présente de moins bonnes performances que la CSAC-SA65. Son volume est de 23 cm^3 , pour une consommation une puissance de 1.65 W . La stabilité d’horloge est de 9×10^{-11} à 1 s et 2×10^{-11} à 10^2 s .

En Suisse, le CSEM (Neuchâtel) mène depuis environ 2006 des travaux poussés pour développer une micro-horloge atomique CPT à rubidium [116, 117]. En 2012, un module physique ultra-compact utilisant une cellule MEMS de $4 \times 4 \text{ mm}^2$ a été présenté [118] (figure 1.37(a)). L'ensemble du module physique occupe un volume de 22 cm^3 . Le prototype de l'horloge atomique, montré figure 1.37(b), démontre des performances de stabilité relative de fréquence de 6×10^{-11} à 1 s et 3×10^{-11} à une journée d'intégration [116].

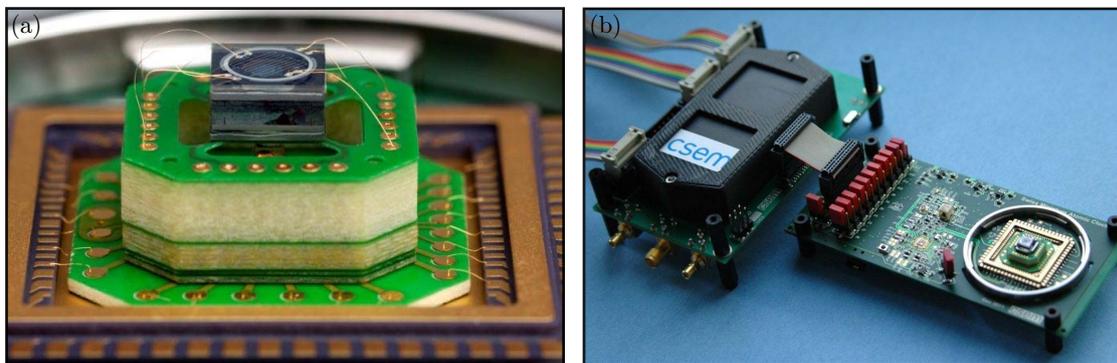


FIGURE 1.37 – (a) Première génération de module physique de l'horloge atomique miniature développée par le CSEM et (b) prototype de l'horloge. Figures extraites de [119].

Les activités du CSEM ont ensuite été poursuivies en collaboration avec l'industriel suisse Spectratime (dé-sormais Orolia-Safran) dans le cadre d'un projet financé par l'agence spatiale européenne (ESA) [120] puis dans le cadre du projet européen macQsimal [121] d'octobre 2018 à juillet 2022. Le projet macQsimal visait le développement d'horloges et de capteurs quantiques miniatures exploitant des cellules MEMS à vapeur alcaline. Dans ce projet, le CSEM a finalisé le développement d'un nouveau module physique (figure 1.38), avec une épaisseur réduite de 5 mm, afin de faciliter la production de masse et l'intégration dans les systèmes portables [21]. La consommation de puissance a été réduite à moins de 40 mW. Des mesures préliminaires de stabilités d'horloge ont été rapportées en 2021 dans [122], avec un niveau de stabilité inférieur à 2×10^{-11} entre 1 et 10^4 s.

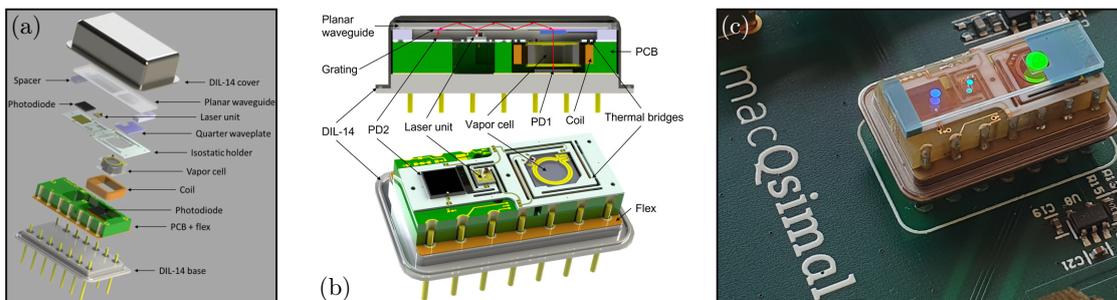


FIGURE 1.38 – Nouvelle génération du module physique de l'horloge atomique miniature développée par le CSEM dans le cadre du projet macQsimal. Figure (a) extraite de [123] et (b), (c) de [122].

Le laboratoire FEMTO-ST en France travaille depuis 2005 sur le développement de micro-horloges atomiques. Le module physique conçu lors du projet MAC-TFC est présenté sur la figure 1.39. Ce dernier, ayant néanmoins connu quelques problèmes lors de l'assemblage, a permis la démonstration de résonances CPT et une stabilité de fréquence modeste de 10^{-10} à 100 s [124]. L'année 2014 a marqué la naissance du consortium académique industriel français associant Tronics, Syrlinks et FEMTO-ST. Le projet HABAC (Rapid DGA), de 2014 à 2016, a permis le transfert industriel de la technologie de microcellule de FEMTO-ST vers Tronics, ainsi que la définition de cahiers des charges pour la conception d'un module physique (avec Tronics) et d'une électronique (avec Syrlinks) basse consommation. La réussite du projet HABAC a conduit au démarrage du projet EDAM (PEA DGA, 2017-2021), piloté par Tronics. Ce projet a conduit à la démonstration des premiers prototypes de micro-horloges atomiques industrielles françaises. Le module physique de ces horloges, montré figure 1.40(a) et (b), conçu dans le cadre de la thèse de R. Vicarini (Tronics/FEMTO-ST) [125] présente des dimensions externes de $15 \times 15 \times 13 \text{ mm}^2$ et a permis d'atteindre des stabilités relatives de fréquence de quelques 8×10^{-11} à 1 s et inférieures à 2×10^{-11} à une journée d'intégration [13, 125].

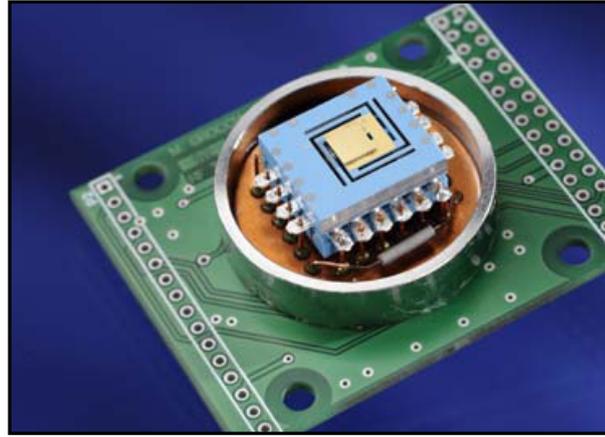


FIGURE 1.39 – Module physique d’horloge atomique issu du projet Européen MAC-TFC [124].

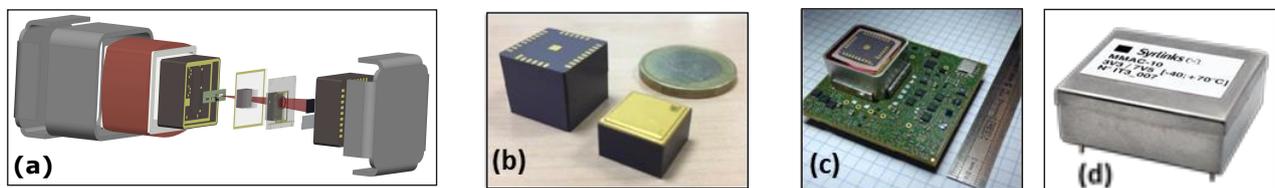


FIGURE 1.40 – (a) Architecture du module physique intégré [126]. (b) Photographie de deux générations de modules physiques Tronics. (c) Premier prototype de micro-horloge atomique industrielle française. (d) Micro-horloge atomique proposée sur le site de Syrlinks [22].

La figure 1.40(b)(droite) montre une photographie du module physique de l’horloge développé au cours du projet EDAM. Ces derniers présentent un volume plus de deux fois inférieur à ceux de la première génération. Aussi, une photographie du tout premier prototype de micro-horloge complète industrielle française est présentée figure 1.40(c).

Début 2020, le projet PULSACION regroupant FEMTO-ST et Syrlinks (ANR-DGA Astrid) débutait avec le but de proposer des solutions scientifiques et technologiques innovantes pour l’amélioration de la stabilité de fréquence long-terme de micro-horloges atomiques CPT. Ma thèse a débuté durant la première année du projet PULSACION. Mes travaux de recherche se sont inscrits dans les objectifs de ce projet. Mon travail a reposé sur deux axes de recherche majeurs et complémentaires. Le premier axe d’étude a porté sur l’implémentation et la démonstration expérimentale de protocoles d’interrogation impulsions originaux, assurant une réduction drastique des déplacements de fréquence induits lors de l’interaction entre les atomes et le champ d’interrogation. Le second axe a porté sur le développement d’une nouvelle technologie de microcellule à vapeur de césium reposant sur l’exploitation de vannes ouvrantes et fermantes micro-fabriquées, combinées à l’utilisation de substrats de verre à faible perméation, permettant un choix étendu et un contrôle renforcé de son atmosphère interne.

La complémentarité de ces deux axes de recherche pourrait poser les fondements d’une micro-horloge atomique CPT plus performante, offrant en particulier une stabilité de fréquence long-terme améliorée mais aussi une extension de sa gamme de température de fonctionnement et une compatibilité à la fabrication collective et la production de masse renforcées. Ces bénéfices, d’intérêt majeur dans une multitude d’applications civiles, industrielles et militaires, donneront à la micro-horloge atomique industrielle française une plus-value significative dans un domaine stratégique et hautement concurrentiel. Ces atouts pourront constituer une démarcation nette et un avantage substantiel favorisant la commercialisation de la micro-horloge atomique française.

En résumé, le tableau 1.4 propose un bilan des performances des principales micro-horloges atomiques CPT commerciales et en développement. La figure 1.41 rapporte les stabilités de certaines horloges à micro-cellules CPT. Les résultats obtenus durant ma thèse sont rapportés pour comparaison.

Modèle/groupe	Pays	$\sigma_y(\tau)$ (1 s)	$\sigma_y(\tau)$ (10^2 s)	$\sigma_y(\tau)$ (10^3 s)	Conso. (mW)	Taille (cm^3)	Réf.
Microchip SA-65 (×)	USA	3×10^{-10}	3×10^{-11}	1.5×10^{-11}	120	17	[104]
Accubeat NAC1 (×)	Israël	2×10^{-10}	2×10^{-11}	NC	1200	32	[15]
Spaceon XHTF1045 (×)	Chine	3×10^{-10}	3×10^{-11}	NC	250	17	[19]
Université Pékin	Chine	3.7×10^{-11}	4×10^{-11}	6.4×10^{-12}	NC	NC	[112]
Pékin	Chine	3.5×10^{-11}	8×10^{-12}	2.5×10^{-12}	3000	73	[114]
Univ. Corée	Corée	1×10^{-10}	1.2×10^{-11}	5.2×10^{-12}	200	NC	[16]
ULPAC	Japon	7×10^{-11}	3×10^{-11}	8×10^{-12}	60	15	[12]
Epson AO6860LAN (×)	Japon	5×10^{-11}	NC	NC	3000	73	[20]
Teledyne TCSAC (×)	Chine	3×10^{-10}	3×10^{-11}	1×10^{-11}	250	17	[109]
IDQ ICPT-1	UK	9×10^{-11}	2×10^{-11}	NC	1650	23	[18]
CSEM	Suisse	2×10^{-11}	1.5×10^{-11}	1.5×10^{-11}	NC	NC	[122]
FEMTO-ST	France	8×10^{-11}	2×10^{-11}	6×10^{-12}	NC	NC	[126]
Ma thèse	France	7.2×10^{-11}	1.3×10^{-11}	4.5×10^{-12}	NC	NC	

TABLE 1.4 – Performances des horloges atomiques CPT à micro-cellule en développement dans le monde. NC : non connu et (×) : modèle commercial.

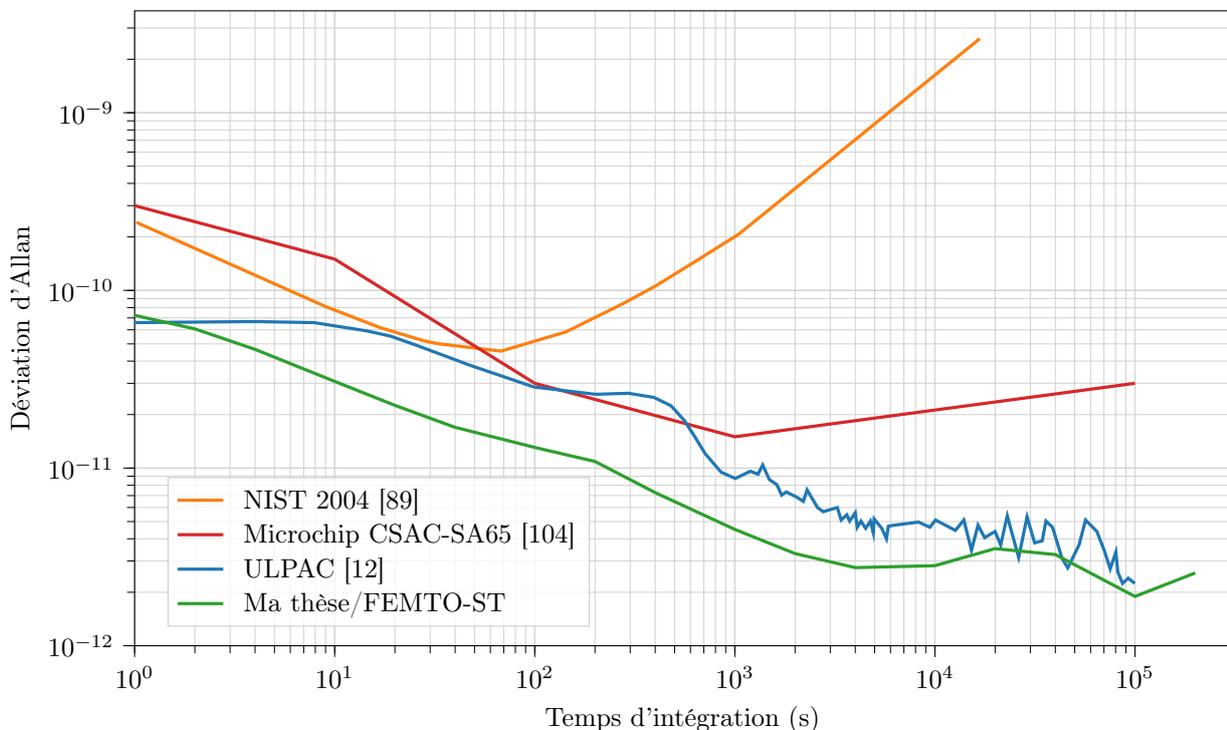


FIGURE 1.41 – Stabilité de fréquence d'horloge du premier prototype d'horloge miniature du NIST en 2004 (courbe orange) [89], de la CSAC-SA65 proposée par Microchip (courbe rouge) [104] et du prototype japonais ULPAC (courbe bleue) [12]. La courbe verte montre le résultat de stabilité de l'horloge de laboratoire issue de mon travail de thèse.

Résumé et conclusion du chapitre 1

Nous avons d'abord dans ce chapitre introduit les outils métrologiques nécessaires à la caractérisation des performances d'une référence de fréquence.

Nous avons ensuite explicité le schéma de fonctionnement d'une horloge atomique, dont le principe consiste à asservir la fréquence d'un oscillateur local sur une résonance atomique. Nous avons justifié le choix de l'utilisation des atomes alcalins pour la conception d'une telle horloge, et avons rappelé la structure énergétique de l'atome de césium utilisé dans le cadre de ma thèse.

Nous avons introduit brièvement les méthodes d'interrogations atomiques dites de Rabi et de Ramsey. Dans une séquence de Ramsey, les atomes n'interagissent plus de manière continue avec le champ d'interrogation, mais sous la forme d'une séquence de deux interactions séparées par un temps d'évolution libre T . L'exploitation de cette séquence conduit à l'observation de franges de Ramsey, dont la largeur est $1/(2T)$ et dont la sensibilité aux variations du champ optique est réduite. Nous avons aussi rappelé les principes utilisés pour asservir expérimentalement la fréquence de l'oscillateur local sur la résonance des atomes.

Nous avons ensuite rappelé le phénomène d'absorption optique dans une cellule de césium. Nous avons explicité les origines des élargissements et des déplacements en fréquence de la transition optique, et identifié les paramètres expérimentaux clés contribuant à ces perturbations.

Nous avons ensuite rappelé l'essence du phénomène quantique de piégeage cohérent de population (CPT). Les expressions des caractéristiques majeures de la résonance CPT (largeur et amplitude) ont été rappelées. Nous avons introduit le déplacement collisionnel lié aux fluctuations de la pression de gaz tampon et de la température, le déplacement Zeeman lié aux variations du champ magnétique ainsi que les différentes sources des déplacements de fréquence incluant les déplacements lumineux liés aux fluctuations du champ laser.

Nous nous sommes alors concentrés sur les micro-horloges atomiques CPT. Nous avons rappelé le principe de fonctionnement et l'architecture d'une micro-horloge atomique CPT. Ces horloges, essentiellement constituées d'une diode laser VCSEL, d'un module physique intégré embarquant une cellule de vapeur alcaline micro-fabriquée et d'une électronique faible consommation, visent à respecter un budget stabilité-taille-consommation le plus faible possible (avec une stabilité relative de fréquence de quelques 10^{-11} à la journée, un volume de 15 cm^3 et une consommation de puissance de $100 - 150 \text{ mW}$). Ces horloges sont d'ores et déjà industrialisées et disponibles commercialement. Elles sont employées dans de nombreuses applications telles que les télécommunications, la navigation ou la recherche géophysique. Une revue de l'état de l'art a mis en avant les forts enjeux économiques et sociétaux de ces systèmes, et a permis de dresser un panorama (non exhaustif cependant) des travaux majeurs sur cette thématique et ainsi mettre en avant le positionnement et les motivations de mon travail de thèse.

Cet état de l'art suggère que les micro-horloges atomiques n'ont pas encore atteint leurs performances ultimes. En particulier, la stabilité de fréquence long-terme des micro-horloges atomiques demeure limitée par deux phénomènes principaux : les effets de déplacements lumineux et l'évolution de l'atmosphère interne de la cellule. En réponse à ces verrous, les chapitres suivants abordent deux axes de recherche complémentaires. Le premier axe de recherche, décrit chapitre 2, vise à mettre en place des protocoles d'interrogation impulsions optimisés afin de réduire les contributions des déplacements lumineux aux instabilités long-terme de l'horloge. Le second axe de recherche, décrit chapitre 3, se concentre sur le développement d'une nouvelle architecture de cellule et sur l'étude de la perméation du gaz tampon à travers les parois en verre, afin de stabiliser l'évolution de l'atmosphère interne de la cellule. La combinaison des apports de ces deux axes de recherche conduit aux résultats finaux de mon travail de thèse, décrits dans le chapitre 4.

Chapitre 2

Protocoles d'interrogation impulsionnels en microcellule pour la réduction des déplacements lumineux

Une limitation majeure aux performances de stabilité de fréquence des horloges atomiques CPT sur des temps d'intégration supérieurs à 100 – 1000 s sont les déplacements lumineux. Ces derniers se traduisent par une sensibilité de la fréquence d'horloge aux variations du champ optique (puissance laser, puissance micro-onde et fréquence laser). Les déplacements lumineux sont ainsi un verrou majeur pour la démonstration d'horloges CPT haute performance. Ce chapitre se concentre sur la mise en place de séquences d'interrogation composites spécifiques pour réduire les déplacements lumineux dans une horloge CPT à micro-cellule.

La première section de ce chapitre rappelle les origines des déplacements lumineux et identifie les paramètres expérimentaux critiques pouvant les impacter. On distinguera les déplacements lumineux "résonants" et "non-résonants", ainsi que le mode d'interrogation utilisé (continu ou impulsif). La seconde section dresse une brève revue des techniques de réduction des déplacements lumineux usuellement mises en oeuvre dans les micro-horloges CPT opérant en régime continu. Les bénéfices ainsi que les limitations majeures de ces méthodes sur la stabilité de fréquence long-terme sont discutés. L'utilisation de séquences impulsives de type Ramsey-CPT pour la réduction des déplacements lumineux est ensuite abordée. La troisième section est une description du démonstrateur d'horloge CPT utilisé dans la suite de nos études. La quatrième section démontre l'utilisation de la spectroscopie Ramsey-CPT sur une horloge à micro-cellule. On démontre une réduction de la sensibilité de la fréquence d'horloge aux variations de puissance laser par un facteur 40 (pour un temps noir de 450 ms) comparativement au régime continu. Une stabilité relative de fréquence de 4×10^{-12} à 10^4 s, 20 fois meilleure à celle obtenue en régime continu sur un dispositif expérimental similaire, est démontrée. Pour une réduction accrue de la sensibilité aux déplacements lumineux, la cinquième section rapporte l'implémentation d'une séquence d'interrogation avancée, nommée Symmetric-Auto-Balanced-Ramsey (SABR), sur notre horloge à micro-cellule. Ce travail constitue la première démonstration expérimentale de l'efficacité de ce type de séquence sur une horloge à micro-cellule. Avec cette méthode, des mesures de sensibilité montrent une réduction par plus de deux ordres de grandeur de la sensibilité de la fréquence d'horloge aux variations du champ laser, en comparaison au régime continu. Les mesures d'horloge démontrent par ailleurs les bénéfices nets de cette séquence sur sa stabilité de fréquence long-terme.

2.1 Déplacements lumineux

L'interaction entre le moment dipolaire atomique et un champ électromagnétique induit une perturbation des niveaux d'énergie de l'atome. Ces déplacements des niveaux d'énergies sont appelés déplacements lumineux (light-shifts). Les effets des déplacements lumineux sont une limitation majeure aux performances de stabilité de fréquence des horloges atomiques à cellule sur des temps d'intégration supérieurs à 100 – 1000 s.

On distingue en règle générale dans les horloges CPT les déplacements lumineux dits "résonants" [127-129] et les déplacements lumineux dits "non-résonants" [130, 131]. Leurs origines et leurs conséquences diffèrent selon le régime d'interrogation employé. Nous distinguons dans les parties suivantes les deux régimes d'interrogation, et détaillons les expressions analytiques de ces déplacements lumineux.

2.1.1 Régime continu

En régime continu, les déplacements lumineux résonants sont causés par un désaccord optique du champ d'interrogation laser. La figure 2.1 représente un système simple à deux niveaux ($|1\rangle$ et $|2\rangle$) en interaction avec un champ monochromatique $\epsilon(t)$:

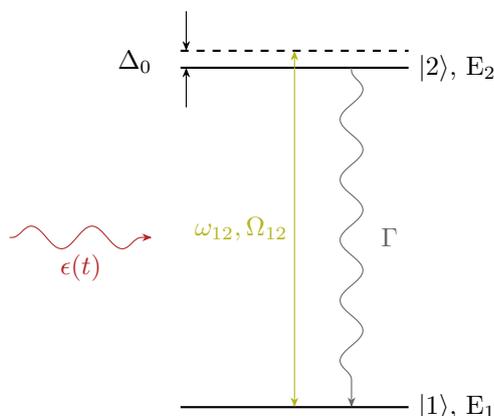


FIGURE 2.1 – Système à deux niveaux d'énergie d'un atome sondé par un champ monochromatique. ω_{12} est la fréquence de transition de l'état fondamental $|1\rangle$ vers l'état excité $|2\rangle$ et Ω_{12} la fréquence de Rabi. On note Δ_0 le désaccord optique et Γ le taux de relaxation de l'état excité. E_1 et E_2 sont les énergies des niveaux $|1\rangle$ et $|2\rangle$.

Le déplacement lumineux résonant Δ_{LS} dans ce système est donné par [132, 133] :

$$\Delta_{LS} \sim \frac{-\Delta_0}{\Delta_0^2 + (\Gamma/2)^2} |\Omega_{12}|^2 \quad (2.1)$$

avec Ω_{12} la fréquence de Rabi, Γ le taux de relaxation de l'état excité et Δ_0 le désaccord optique. La dépendance des déplacements lumineux est linéaire au premier ordre avec la puissance laser. Les déplacements lumineux résonants sont nuls lorsque le champ optique est parfaitement résonant (i.e. $\Delta_0 = 0$).

L'expression des déplacements lumineux résonants dans un schéma- Λ (représenté figure 2.2) est plus complexe. On a dans ce cas de manière simplifiée deux champs optiques ($\epsilon_1(t)$ et $\epsilon_2(t)$) en interaction avec un système à trois niveaux d'énergie ($|1\rangle$, $|2\rangle$ et $|3\rangle$). Aussi, dans le cas d'une interrogation CPT expérimentale réelle, il faut prendre en compte le spectre optique complet de la VCSEL (présence d'une porteuse résiduelle, répartition de puissance inégale dans les bandes optiques, présence d'harmoniques de fréquence) (représenté figure 2.2). Un modèle du déplacement lumineux résonant a été proposé dans [67], en faisant l'hypothèse que les deux champs lasers ont le même désaccord optique et que les raies optiques résonantes contribuant à l'interaction CPT présentent la même amplitude. Son expression est [67] :

$$\Delta_{LS} = -\frac{1}{4} \frac{\Delta_0}{\Delta_0^2 + (\Gamma/2)^2} (\Omega_1^2 - \Omega_2^2) \quad (2.2)$$

avec Ω_1 et Ω_2 les fréquences de Rabi des transitions optiques $|1\rangle \Rightarrow |3\rangle$ et $|2\rangle \Rightarrow |3\rangle$. Dans [67], les auteurs ont mesuré une réduction du déplacement lumineux pour un désaccord optique nul ($\Delta_0 = 0$). Aussi, un déplacement résiduel non nul a été observé, provenant possiblement de la nature polychromatique du spectre optique.

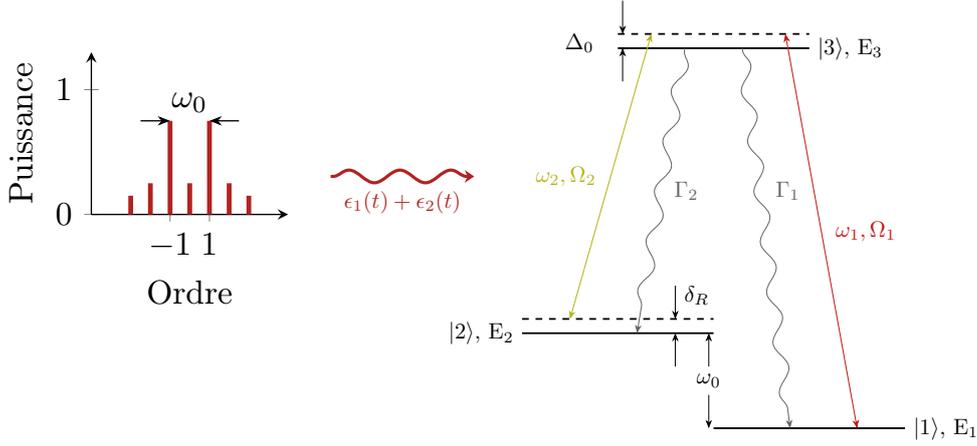


FIGURE 2.2 – Schéma- Λ d'un atome sondé par un champ polychromatique de fréquences ω_1 et ω_2 . On note ω_0 la fréquence de résonance hyperfine, Δ_0 le désaccord optique, δ_R le désaccord en fréquence et $\Gamma = \Gamma_1 + \Gamma_2$ le taux de relaxation de l'état excité. Le spectre multifréquence du laser avec sa répartition en puissance est représenté avec la présence résiduelle de la porteuse et d'harmoniques.

Un modèle plus complexe a été proposé dans l'étude de Zanon *et al.* [134]. Dans cette étude, les auteurs intègrent dans l'expression du déplacement lumineux résonant la relaxation de la cohérence hyperfine γ_2 [130, 134], le déplacement des niveaux d'énergie propres, la relaxation de la cohérence optique γ_{opt} , ainsi que la déformation de la résonance CPT (maximum de transmission, dissymétrie du signal, etc). Une expression simplifiée du déplacement lumineux résonant avec ce modèle est donnée par [135] :

$$\Delta_{LS} = \Delta_0 \frac{\gamma_2}{\gamma_{opt}} \frac{2\gamma_2 \Omega_1^2 \Omega_2^2 - \gamma_{opt} (\Omega_1^4 - \Omega_2^4)}{2\gamma_2 \Omega_1^2 \Omega_2^2 + \gamma_{opt} (\Omega_1^2 + \Omega_2^2)^2} \quad (2.3)$$

On note avec cette expression que le déplacement lumineux est annulé lorsque le désaccord optique est nul et pour un état noir pur (i.e. $\gamma_2 = 0$).

Les déplacements lumineux "non-résonants" proviennent du couplage des niveaux d'énergies avec les bandes latérales optiques "hors-résonance" du champ laser. Un modèle décrit dans [136] prend en compte l'interaction entre tous les niveaux d'énergie de l'atome avec les composantes du spectre optique (porteuse et harmoniques (figure 2.2)), ainsi que la répartition inégale de puissance dans les bandes optiques latérales. Dans ce modèle, on se place dans un schéma atomique à deux niveaux fondamentaux $|1\rangle$ et $|2\rangle$ et deux niveaux excités $|3\rangle$ et $|4\rangle$. Le déplacement lumineux résonant de l'interaction entre le i -ième niveau fondamental et les k -ièmes états excités s'exprime comme [137, 138] :

$$\Delta_{LS,i}(f_L, I) = \frac{1}{4} \sum_{k=3}^4 |\Omega_{ik}|^2 \frac{(f_L - f_{ik})}{(f_L - f_{ik})^2 + \Gamma_{ik}^2/4} \quad (2.4)$$

avec I l'intensité laser totale, f_L la fréquence du laser, f_{ik} la fréquence de la transition $|i\rangle \rightarrow |k\rangle$ ($(f_L - f_{ik})$ correspond au désaccord optique) et Ω_{ik} la fréquence de Rabi associée. Dans le cas d'un spectre laser multifréquence, le déplacement lumineux non-résonant est obtenu en sommant les contributions des déplacements lumineux des j -ièmes composantes hors résonance du spectre optique [136], tel que :

$$\Delta_{LS, \text{off-res}}(f_L, I) = \sum_j [\Delta_{LS,2}(f_j, I_j) - \Delta_{LS,1}(f_j, I_j)] \quad (2.5)$$

avec f_j et I_j la fréquence et l'intensité de la bande latérale optique j .

Pour une horloge atomique, la dépendance de la fréquence d'horloge à l'intensité laser peut être simplifiée par un coefficient de déplacement lumineux α [136], tel que :

$$\alpha = \frac{d\nu_0}{dI} \quad (2.6)$$

avec I l'intensité laser totale en entrée de cellule. A faible puissance laser, un comportement non-linéaire des déplacements lumineux a été observé dans plusieurs études en spectroscopie CPT [72, 93, 139].

2.1.2 Régime impulsionnel Ramsey-CPT

Le régime impulsionnel Ramsey-CPT permet de réduire les déplacements lumineux en raison de la durée d'interaction réduite entre les atomes et le champ d'interrogation. De nombreuses études ont rapporté une réduction de la sensibilité aux déplacements lumineux, en particulier à la puissance laser, en régime Ramsey-CPT, par comparaison avec le régime continu [140-142]. Cependant, dans une horloge Ramsey-CPT, les atomes interagissent généralement avec un champ optique de plus forte intensité, visant à compenser la réduction du temps d'interaction et donc conserver une bonne stabilité de fréquence court-terme. Ainsi, les fluctuations de puissance laser expérimentées par les atomes sont plus importantes qu'en régime continu, nuancant le bénéfice de l'interrogation impulsionnelle pour réduire la contribution des déplacements lumineux. La figure 2.3 représente la séquence Ramsey-CPT considérée dans la suite de cette partie.

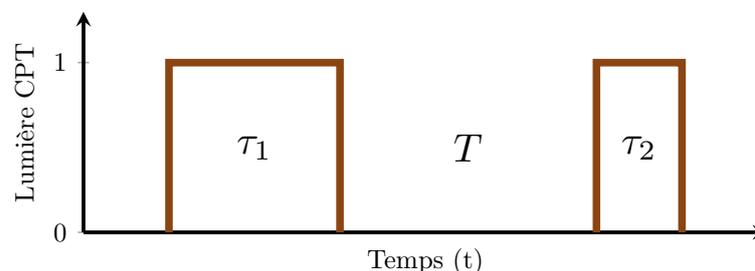


FIGURE 2.3 – Séquence de Ramsey-CPT avec une première impulsion de durée τ_1 , un temps d'évolution libre dans le noir de durée T et une fenêtre de détection de durée τ_2 .

Les déplacements lumineux résonants en régime impulsionnel décrivent l'interaction des deux champs lumineux avec les trois niveaux d'énergie (figure 2.2). Il a été démontré dans la littérature que ces derniers résultent d'une formation incomplète de l'état noir CPT [127, 129, 143]. Ces déplacements peuvent être réduits voire annulés en travaillant de sorte que le produit de la durée d'impulsion par l'intensité laser soit suffisamment grand [144].

Dans l'étude de Hemmer *et al.* [127], il a été démontré que les déplacements lumineux résonants induisent un déphasage φ_{LS} de la frange centrale de Ramsey, exprimé comme [127, 143] :

$$\varphi_{LS} = \tan^{-1} \left[\left(\frac{e^{-\alpha\Gamma\tau_1}}{1 - e^{-\alpha\Gamma\tau_1}} \right) dp \sin(\alpha\Delta_0\Gamma\tau_1) \right] \quad (2.7)$$

avec dp la différence de population initiale entre les niveaux fondamentaux, τ_1 la durée de l'impulsion optique et $\alpha = \Omega(\Gamma^2 + 4\Delta^2)$. Δ_0 est le désaccord optique moyen [143], défini comme la moyenne entre le désaccord optique Δ_1 de la transition $|1\rangle \rightarrow |3\rangle$ et le désaccord optique Δ_2 de la transition $|2\rangle \rightarrow |3\rangle$. Le déplacement lumineux résonant est décrit comme [143] :

$$\Delta_{LS} = \frac{\varphi_{LS}}{2\pi T} \quad (2.8)$$

On constate depuis les équations (2.7) et (2.8) que le déplacement lumineux résonant peut être réduit (voire annulé) lorsque $\alpha\Gamma\tau_1 \gg 1$, i.e. en augmentant la durée du temps de pompage optique τ_1 ou en augmentant la puissance laser, afin de compléter la formation de l'état CPT [144]. Ils peuvent être aussi réduits en augmentant T . Aussi, il est théoriquement possible d'annuler les déplacements lumineux résonants avec une population initiale égale dans les deux niveaux (le déplacement lumineux résonant change de signe selon la population initiale dans les états propres fondamentaux hyperfins) ou un désaccord optique moyen nul. Néanmoins, ces dernières conditions sont difficiles à réaliser expérimentalement.

Dans [131, 144], une annulation des déplacements lumineux résonants a été démontrée au sein d'une horloge CPT à atomes froids par l'exploitation d'un temps de pompage suffisamment grand. L'absence de gaz tampon

dans cette horloge évite en effet les élargissements et déplacements collisionnels des transitions et permet l'observation de résonances étroites avec de longues périodes de cohérence, ce qui en fait un environnement favorisé pour l'étude des déplacements lumineux [144, 145]. À l'opposé, dans le cas d'horloges à cellules chaudes, le déplacement lumineux résonant ne peut être entièrement supprimé en raison de la présence de gaz tampon dans la cellule, qui par interaction avec les atomes de césium, conduit à un mélange résiduel des niveaux excités en raison de l'élargissement des transitions optiques, réduisant la cohérence de l'état noir, et empêchant donc la formation d'un état noir complet.

De manière similaire au régime continu, les déplacements lumineux non-résonants en régime Ramsey-CPT sont issus de l'interaction complexe entre l'ensemble des composantes optiques du spectre laser avec l'ensemble des niveaux d'énergie de l'atome. Ces déplacements sont fortement dépendants du schéma de polarisation utilisé et du rapport d'amplitude entre les deux raies optiques produisant l'état CPT. Dans [131], les auteurs proposent une expression des déplacements lumineux non-résonants en régime Ramsey-CPT $\Delta_{\text{LS-R}}$, à partir de l'expression des déplacements lumineux non-résonants en régime continu $\Delta_{\text{LS, off-res}}$ (équation 2.5), en intégrant le taux de pompage Γ_p des atomes dans l'état noir, tel que [131] :

$$\Delta_{\text{LS-R}} = \frac{A}{2\pi T} \frac{\Delta_{\text{LS, off-res}}}{\Gamma_p} \quad (2.9)$$

avec $\Gamma_p = (|\Omega_1|^2 + |\Omega_2|^2)/(4\gamma_{opt})$ et $A \sim 1 + 0.5\tau_2\Gamma_p$ un paramètre expérimental déterminé par calcul numérique à partir de la matrice densité et d'études expérimentales [131]. Comme $\Delta_{\text{LS, off-res}}$ et Γ_p sont proportionnels à l'intensité laser, le rapport $\Delta_{\text{LS, off-res}}/\Gamma_p$ ne dépend pas de l'intensité laser. La seule dépendance à l'intensité laser provient alors du paramètre A . La source principale des fluctuations de $\Delta_{\text{LS-R}}$ induites par le champ laser provient ainsi de la variation de la répartition d'énergie dans les bandes latérales optiques.

On note ainsi que les déplacements lumineux non résonants en régime continu sont proportionnels à l'intensité laser totale (équation 2.5), et, en conséquence, les déplacements lumineux varient lors de fluctuations de la puissance laser. L'expression des déplacements lumineux non résonants en régime Ramsey-CPT (équation 2.9) présente une dépendance réduite à la puissance laser, ce qui démontre un avantage du régime impulsionnel pour la réduction des déplacements lumineux, par comparaison au régime continu, et ainsi, une amélioration de la stabilité de la fréquence d'horloge.

Les effets de déplacements lumineux sont une limitation majeure de la stabilité de fréquence long-terme des horloges à cellule. La section suivante rappelle certaines méthodes connues de réduction des déplacements lumineux en régime continu et impulsionnel dans les horloges CPT.

2.2 Techniques de réduction des déplacements lumineux : état de l'art

2.2.1 Ajustement de l'indice de modulation avec la puissance micro-onde

La variation de la puissance micro-onde injectée dans la VCSEL permet de jouer sur l'indice de modulation de fréquence du laser et d'ajuster la répartition d'énergie entre les bandes latérales optiques et la porteuse de la diode laser. Dans la littérature, une méthode connue pour réduire la sensibilité de la fréquence d'horloge aux variations de puissance laser consiste à ajuster finement la puissance micro-onde [67, 130, 137]. Dans le cadre d'une horloge CPT, il a été observé que cet indice de modulation est proche de $m = 2.4$ [67], correspondant à la configuration où la porteuse est minimisée.

Pour illustration, la figure 2.4 représente la fréquence de notre horloge en fonction de la puissance laser pour différentes puissances micro-onde. Dans cet exemple, on constate que travailler à une puissance micro-onde proche de 0 dBm ($m \simeq 2.4$) réduit par plus de deux ordres de grandeur la sensibilité de la fréquence d'horloge aux variations de puissance laser, par rapport à une puissance micro-onde de -7 dBm ($m < 2.4$). Pour une puissance micro-onde de 0 dBm, la sensibilité est ainsi ici réduite à environ $-0.07 \text{ Hz } \mu\text{W}^{-1}$ (soit $\sim 8 \times 10^{-12} \text{ } \mu\text{W}^{-1}$ en valeur relative).

Cette solution a démontré son efficacité dans plusieurs études [33, 146-148]. Néanmoins, la réduction des déplacements lumineux par cette méthode présente plusieurs limitations majeures :

- le point de bascule est dépendant du module physique. Changer de VCSEL ou de cellule impose donc une nouvelle calibration pour trouver le point de fonctionnement optimal de la puissance micro-onde.

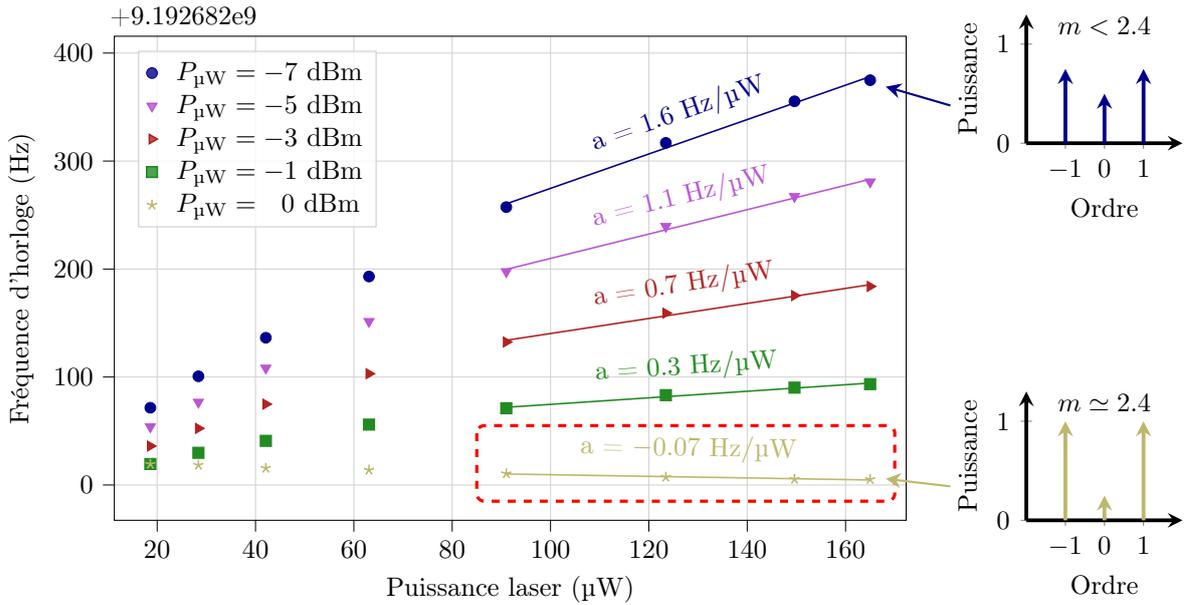


FIGURE 2.4 – Fréquence d’horloge en fonction de la puissance laser pour différentes puissances micro-ondes ($P_{\mu\text{W}}$). Les points avec des marqueurs sont les données expérimentales et les lignes pleines sont les régressions linéaires associées, extraites pour les valeurs de puissance laser comprises entre 90 et 165 μW . Ces mesures ont été effectuées avec une micro-cellule de césium remplie de ~ 70 Torr de néon. La répartition de puissance dans les bandes latérales du laser est schématisée pour deux puissances micro-ondes.

- le point de bascule ne correspond généralement pas à la puissance micro-onde optimisant la stabilité court-terme de l’horloge [147], obligeant ainsi à faire un compromis entre performance court-terme et long-terme.
- cette technique n’est parfois pas utilisable car le point d’inversion en sensibilité n’existe pas. Il a été par exemple démontré dans la littérature la disparition de ce point de fonctionnement au delà d’une certaine quantité de gaz tampon dans la cellule [149]. La quantité de gaz tampon critique dépend des dimensions géométriques de la cellule.
- seule la sensibilité aux variations de puissance laser est réduite avec cette méthode. Cette technique ne réduit pas la sensibilité aux variations de fréquence laser ou de puissance micro-onde. Or, les fluctuations de ces paramètres contribuent aussi de manière significative à la stabilité d’une horloge CPT.
- le point de bascule est sujet à varier dans le temps, lorsque la température ou l’impédance du laser change, ou encore par des effets de vieillissement de la diode laser [33, 146, 147].

Des méthodes ont été démontrées pour stabiliser activement la puissance micro-onde minimisant, voire annulant au premier ordre, la sensibilité à la puissance laser [33, 126, 146, 150]. Dans un premier temps, la puissance micro-onde est pré-ajustée à la valeur qui minimise la sensibilité de la fréquence d’horloge aux variations de puissance laser. Dans [146], la puissance laser totale incidente est ensuite modulée de $\sim 15\%$ à 17 Hz. L’effet de cette modulation sur la fréquence de la résonance CPT est mesuré et un signal d’erreur nul pour la puissance micro-onde annulant les déplacements lumineux est généré par démodulation synchrone. Un asservissement complémentaire maintient alors ce signal d’erreur à zéro en contrôlant la puissance micro-onde. La constante de temps de cette boucle d’asservissement est de l’ordre de 10 s. Dans l’étude [126], la puissance micro-onde est stabilisée en minimisant la tension moyenne lue en sortie de la photodiode placée après la cellule. Cet asservissement est réalisé en modulant la puissance micro-onde à 8 Hz avec une profondeur de modulation $< 0.1 \text{ dB}$. Un signal d’erreur est généré par détection synchrone et une boucle d’asservissement complémentaire (avec une constante de temps de 10 s) minimise ce signal d’erreur en corrigeant la puissance micro-onde. Ces méthodes apportent un gain sur la stabilité moyen-long terme de l’horloge mais complexifient en partie son architecture et son électronique.

2.2.2 Technique par sauts de phase

Dans une étude récente publiée par Basalaev *et al.* [151], les auteurs présentent une méthode originale de réduction des déplacements lumineux, appliquée à une horloge CPT. Cette méthode repose sur l'extraction d'un signal d'erreur pour l'asservissement de la fréquence d'horloge, obtenu par modulation de phase de l'oscillateur local.

La sensibilité des atomes aux variations de la phase du signal micro-onde permet, lors d'un saut de phase, d'observer l'établissement d'un régime transitoire vers le nouvel état noir [151]. L'évolution de ce régime transitoire dépend du désaccord Raman δ_R et de la valeur du saut de phase $\Delta\varphi$. On note $\varphi_r(t)$ la différence de phase entre les deux bandes latérales optiques et φ_0 la différence de phase initiale $\varphi_r(t=0)$.

La figure 2.5(a) est un schéma d'une séquence typique de modulation de phase du champ micro-onde porté optiquement, consistant en une alternance de sauts de phase de $\pm\pi/2$.

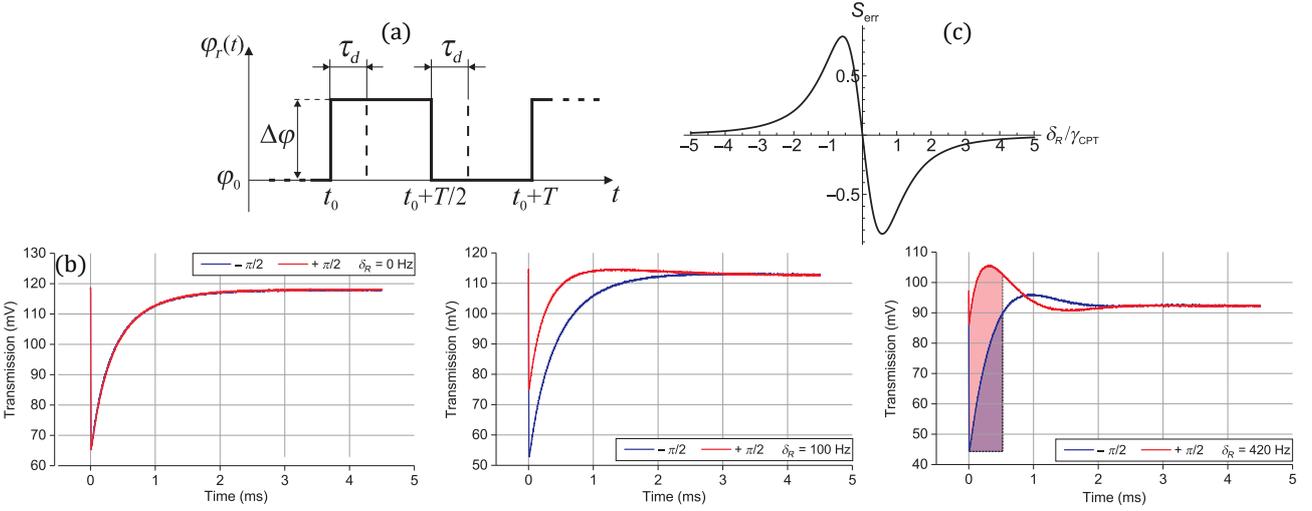


FIGURE 2.5 – (a) Schéma de la séquence de modulation de la phase du champ optique, avec t le temps, t_0 le temps au début de la mesure du signal d'absorption et T la période de modulation. (b) Signal de transmission en fonction du temps pour plusieurs valeurs de désaccord Raman. (c) Signal d'erreur obtenu avec cette méthode, avec γ_{CPT} la demi-largeur à mi-hauteur de la résonance CPT. Figures extraites et modifiées de [151].

Le signal transitoire en sortie de cellule est observé après chaque saut de phase durant une période de durée τ_d . La figure 2.5(b) est un exemple de signaux de transmission $A(t)$ lors de sauts de phase $\Delta\varphi = \pm\pi/2$, pour trois valeurs du désaccord Raman. On observe sur cette figure une différence du niveau de transmission entre un saut $+\pi/2$ et un saut $-\pi/2$ lorsque la fréquence de l'oscillateur n'est pas stabilisée sur la transition atomique (i.e. $\delta_R \neq 0$). Au contraire, lorsque le désaccord Raman est nul ($\delta_R = 0$), les signaux transitoires pour les sauts $+\pi/2$ et $-\pi/2$ sont similaires. Un signal d'erreur $S_{\text{err}}(\delta_R)$, dépendant du temps d'observation et de la fréquence de modulation, est alors défini comme la différence entre l'aire sous la courbe du signal de transmission lors d'un saut de phase positif et l'aire sous la courbe lors d'un saut négatif (représentées figure 2.5(b) sur le graphique de droite), tel que [151] :

$$S_{\text{err}}(\delta_R) = \frac{1}{T} \left[\int_{t_0}^{t_0+\tau_d} A(t, \varphi_0 + \Delta\varphi) dt - \int_{t_0+T/2}^{t_0+T/2+\tau_d} A(t, \varphi_0) dt \right] \quad (2.10)$$

La figure 2.5(c) est un exemple de signal d'erreur obtenu par cette technique. La sensibilité du signal d'erreur varie en fonction de la durée du temps d'observation, et atteint un maximum lorsque τ_d est proche du temps nécessaire pour atteindre un état de résonance complet.

Cette technique a initialement été développée afin de s'affranchir des effets de déplacements de fréquence causés par l'asymétrie du signal de résonance CPT (LAI : line-shape-asymmetry-induced) [151]. Une extension de cette méthode a été proposée par Yudin *et al.* [152], pour stabiliser la fréquence d'horloge ainsi que l'indice de modulation. Dans cette étude, inspirés des séquences d'interrogation du type Auto-Balanced Ramsey [153], les auteurs proposent d'utiliser deux temps d'intégration différents, un long τ_L et un court τ_S , pour générer deux signaux d'erreurs distincts : $S_{\text{err}}^{\tau_L}(\delta_R)$ et $S_{\text{err}}^{\tau_S}(\delta_R)$. On observe sur la figure 2.6(a) que les signaux d'erreur croisent l'axe des ordonnées pour différentes valeurs du désaccord Raman en présence de déplacements lumineux. A l'inverse, en l'absence de déplacements lumineux, les signaux d'erreurs passent en zéro pour une même

valeur de δ_R (figure 2.6(b)). Ce point de fonctionnement est celui annulant les déplacements lumineux. Deux boucles d'asservissement sont alors utilisées. La première stabilise le désaccord en fréquence à partir du temps d'intégration long (car la sensibilité du signal d'erreur est plus grande), tandis que la seconde stabilise la puissance micro-onde à partir du temps d'intégration court.

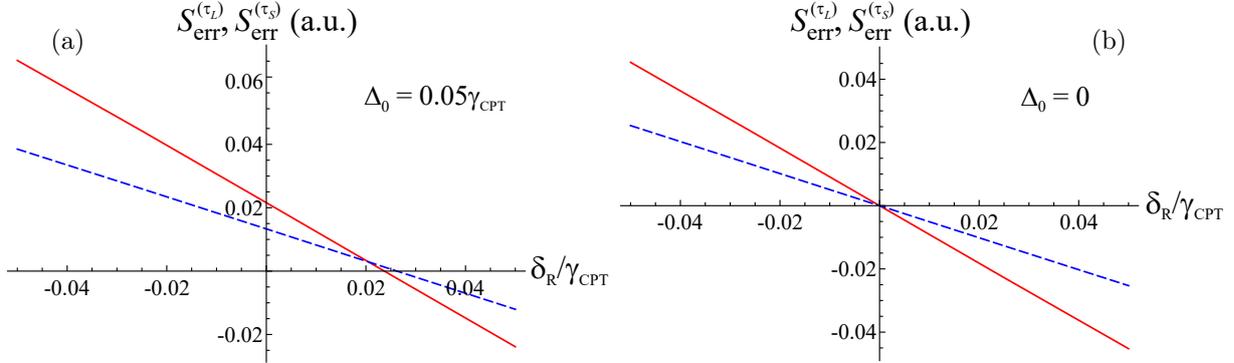


FIGURE 2.6 – Signaux d'erreurs avec un temps d'intégration long (courbes rouge) et court (courbes bleues). (a) En présence de déplacements lumineux et (b) en l'absence de déplacements lumineux. Figure extraite de [152].

Pour le signal d'erreur avec le temps d'intégration long, la puissance micro-onde est fixée (i.e. $P_{\mu W} = P_{\mu W}^{fix}$) et la valeur du désaccord en fréquence est stabilisée [152] :

$$S_{\text{err}}^{\tau_L}(\delta_R, P_{\mu W}^{fix}) = 0 \quad (2.11)$$

Lors de la modulation avec le temps d'intégration court, le désaccord Raman est fixé (i.e. $\delta_R = \delta_R^{fix}$) avec la valeur précédente, et la puissance micro-onde est stabilisée avec la seconde boucle d'asservissement [152] :

$$S_{\text{err}}^{\tau_S}(\delta_R^{fix}, P_{\mu W}) = 0 \quad (2.12)$$

Une démonstration expérimentale de cette méthode a été proposée par Radnatarov *et al.* [154] en 2023. La figure 2.7 montre les déviations d'Allan obtenues en appliquant cette technique d'interrogation. Les instabilités long terme de la fréquence d'horloge ont été réduites par un facteur 15 pour des temps d'intégration entre $1 - 2 \times 10^4$ s, en comparaison avec une mesure sans l'implémentation de cette technique.

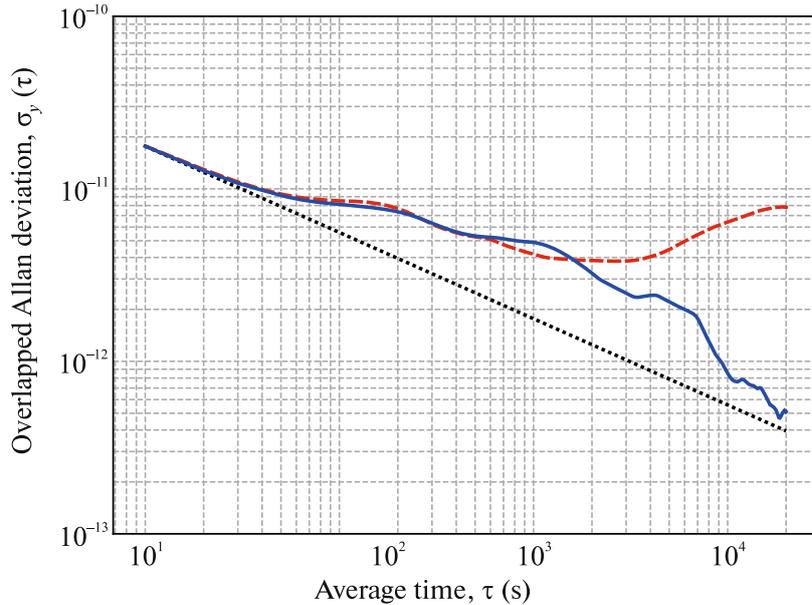


FIGURE 2.7 – Déviation d'Allan de la fréquence d'horloge avec (courbe bleue) et sans (courbe rouge) la méthode de suppression des déplacements lumineux par modulation de phase. Mesure effectuée sur une horloge CPT de laboratoire à cellule en verre soufflée. Figure extraite de [154].

2.2.3 Stabilisation des paramètres expérimentaux

(A) Variations de la diode laser

Les déplacements lumineux peuvent être indirectement induits par la perturbation de paramètres expérimentaux. Dans l'étude [32], il est montré que le vieillissement de la diode VCSEL [155] provoque une dérive de la longueur d'onde du laser, et en conséquence des déplacements lumineux. Dans cette étude, les auteurs proposent d'appliquer une dérive contrôlée du courant de polarisation de la diode laser afin de contrer la dérive de la longueur d'onde. Or, le changement du courant de polarisation engendre aussi une fluctuation de l'indice de modulation m_{fm} , rendant complexe le comportement des déplacements lumineux.

Un modèle physique des déplacements lumineux a été développé en considérant la dérive du courant de polarisation pour compenser le vieillissement de la longueur d'onde de la VCSEL et la variation de l'indice de modulation. En considérant une variation du courant de polarisation de I_0 à $I_0 + \delta I$, la variation des déplacements lumineux $\delta\nu_{LS}$ peut être calculée comme $\delta\nu_{LS} = \nu_{LS}(I_0 + \delta I) - \nu_{LS}(I_0)$, avec I_0 un courant de polarisation constant et δI la dérive du courant de polarisation appliquée pour compenser le vieillissement de la longueur d'onde. La variation du déplacement lumineux s'exprime ainsi comme [32] :

$$\delta\nu_{LS} = \alpha(m_{fm}(I_0)) \left(\frac{\delta I}{I_0 - I_{th}} \right) \times P_0 + \left(\frac{d\alpha}{dm_{fm}} \right)_{I=I_0} \left(\frac{dm_{fm}}{dI} \right)_{I=I_0} \delta I \times P_0 \quad (2.13)$$

avec $\alpha(m_{fm})$ le coefficient relatif des déplacements lumineux, dépendant de l'indice de modulation. I_{th} est le courant de seuil de la diode et P_0 la puissance laser à I_0 . L'indice de modulation noté m_{fm} est dépendant du courant de polarisation I . Une étude préliminaire expérimentale permet de sélectionner la valeur de la dérive relative du courant de polarisation $\delta I / (I_0 - I_{th})$ à appliquer afin de maintenir constante la valeur de la longueur d'onde. Cette dernière est de l'ordre de 10^{-4} j^{-1} .

La figure 2.8 montre les déviations d'Allan obtenues en appliquant différentes valeurs de dérive du courant de polarisation $d1$, $d5$ et $d8$. Dans la meilleure configuration, une déviation d'Allan de 8×10^{-12} à 4×10^6 s est rapportée. Ces résultats sont à notre connaissance les meilleurs niveaux de stabilité relative de fréquence mesurés dans une horloge CPT à cellule de vapeur microfabriquée en régime continu.

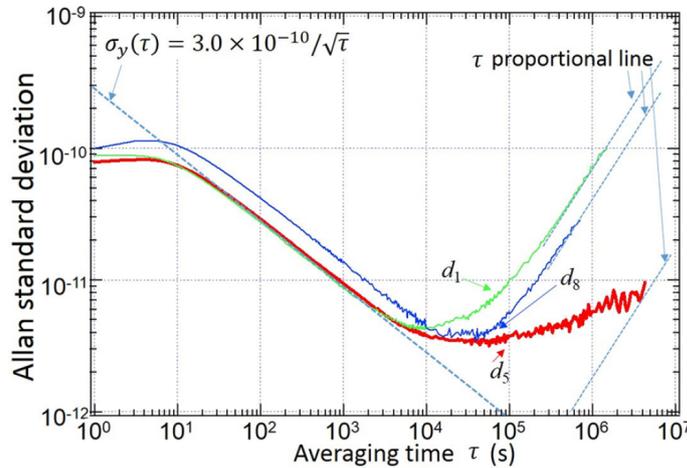


FIGURE 2.8 – Déviation d'Allan pour différentes valeurs de dérive du courant de polarisation. Figure extraite de [32].

(B) Variations du désaccord optique

Dans l'étude de Zhang *et al.* [33], les auteurs affirment qu'une asymétrie dans la répartition de puissance dans les bandes latérales optiques engendre des variations du désaccord optique. Or, la sensibilité de la stabilité relative de la fréquence d'horloge aux variations du désaccord optique, dans une horloge CPT, est de l'ordre de $\sim 1 \times 10^{-12} \text{ MHz}^{-1}$ [72, 136, 156]. Aussi, des fluctuations du désaccord optique de 1 à 10 MHz ont été rapportées [157], soulignant le caractère critique de ce paramètre expérimental, car de telles fluctuations de la fréquence laser affectent la stabilité long-terme de l'horloge. Dans l'étude [33], les auteurs proposent une méthode pour compenser activement la fréquence d'horloge, en appliquant des variations contrôlées de l'intensité laser et du désaccord optique. Les déplacements lumineux causés par le spectre de la VCSEL (porteuse et harmoniques), dans l'hypothèse d'une faible variation du désaccord optique et que l'indice de modulation ne varie pas, s'exprime de manière simplifiée comme [33] :

$$\delta \left(\frac{\Delta_{LS}}{\omega_0} \right) \cong k_1 \delta L + k_2 \delta \Delta_0 \quad (2.14)$$

avec k_1 et k_2 les coefficients de sensibilité d'horloge aux variations de la puissance laser ($\sim 7.5 \times 10^{-12}/\%$) et du désaccord optique ($\sim 1.37 \times 10^{-12} \text{ MHz}^{-1}$), δL la variation de l'intensité laser et $\delta \Delta_0$ la variation du désaccord optique. Les variations de l'intensité laser sont estimées à partir d'une photodiode, tandis que les variations du désaccord optique sont estimées avec le courant d'injection δI et la température δT dans la jonction du laser. Les variations du désaccord optique $\delta \Delta_0$ sont données par l'expression suivante [33] :

$$\delta \Delta_0 = -\frac{c}{\lambda^2} K_{\lambda I} \left(\delta I - \frac{K_{\lambda T} \delta T}{K_{\lambda I}} \right) \quad (2.15)$$

avec c la vitesse de la lumière, λ la longueur d'onde optique, $K_{\lambda I}$ le coefficient de conversion longueur d'onde/courant de la diode ($\sim 0.5 \text{ nm A}^{-1}$) et $K_{\lambda T}$ le coefficient de conversion longueur d'onde/température de la VCSEL ($\sim 0.06 \text{ nm K}^{-1}$). Les valeurs de δI et δT sont mesurées avec la source de courant et le contrôleur de température de la diode laser.

On peut ainsi avec les équations (2.14) et (2.15) compenser les déplacements lumineux avec des variations de l'intensité laser et du désaccord optique. La figure 2.9 montre les déviations d'Allan obtenues avec cette méthode de réduction des déplacements lumineux. La stabilité de la fréquence d'horloge à 10^4 s est améliorée de 2×10^{-11} à 5×10^{-12} .

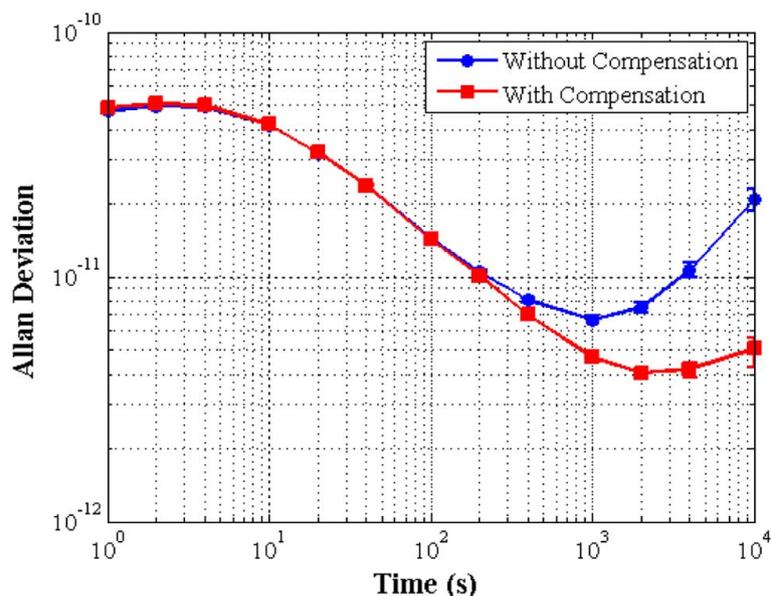


FIGURE 2.9 – Déviations d'Allan extraites de [33]. La courbe rouge est obtenue avec la méthode de compensation de la fréquence tandis que la bleue est sans compensation.

On note que cette méthode implique de faire l'hypothèse que les déplacements lumineux sont linéaires, ce qui n'est pas toujours, voire rarement observé en spectroscopie CPT. De plus, il est nécessaire d'estimer les valeurs des coefficients de déplacements lumineux k_1 et k_2 , qui peuvent varier en fonction des conditions expérimentales (puissance laser dans la cellule, puissance micro-onde injectée dans la VCSEL, etc.).

(C) Condensation de césium sur les parois de la cellule

La présence de gouttelettes de condensation d'alcalins sur les parois de verre de la cellule conduit à une obstruction du faisceau laser. En conséquence, la puissance laser expérimentée par les atomes au cours du temps varie, entraînant des déplacements lumineux. Dans l'étude de Karlen *et al.* [158], les auteurs rapportent l'utilisation de dépôts de micro-disques d'or sur la périphérie des fenêtres de la micro-cellule afin de créer des points de condensation et ainsi déplacer les gouttelettes d'alcalin en dehors du chemin optique. La figure 2.10(a) est une photographie d'une cellule fabriquée avec cette méthode. Une amélioration de plus d'un ordre de grandeur de la stabilité de la fréquence d'horloge à 2×10^5 s a été mesurée avec cette approche technologique (voir figure 2.10(b)).

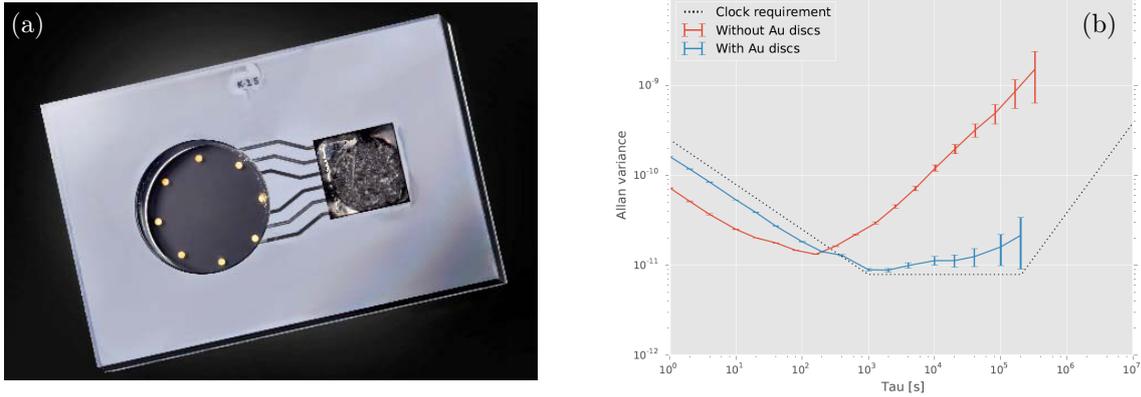


FIGURE 2.10 – (a) Cellule à vapeur d'alcalin microfabriquée avec des dépôts de micro-disques d'or développée au CSEM, Suisse. (b) Stabilité de fréquence d'une horloge CPT avec une micro-cellule sans (courbe rouge) et avec (courbe bleue) des dépôts de micro-disques d'or. Photographie et stabilities d'horloge extraites de [158].

2.2.4 Méthodes par modulation de puissance

Dans une étude publiée en 2020 [159], deux nouvelles méthodes ont été proposées afin de compenser les déplacements lumineux dans une horloge en régime continu. Ces dernières reposent sur une séquence où la puissance laser alterne temporellement entre deux valeurs successives P_1 et P_2 afin de créer un signal d'erreur permettant de compenser les déplacements lumineux et leurs variations.

La première, inspirée de travaux précédents appliqués à des horloges opérant en mode Ramsey [160], est nommée « PM-CES » (Power Modulation – Combined Error Signal). La modulation de puissance à P_1 et P_2 permet de générer deux signaux d'erreur, S_{P1} et S_{P2} , images de deux déplacements lumineux différents. Un coefficient de correction β est alors défini comme [159] :

$$\beta = \left(\frac{P_1}{P_2} \right)^3 \quad (2.16)$$

La correction en fréquence de l'oscillateur local est réalisée par un signal d'erreur combiné $S_{CES}(\delta)$, construit comme :

$$S_{CES}(\delta_R) = S_{P1}(\delta_R) - \beta S_{P2}(\delta_R) \quad (2.17)$$

avec δ_R le désaccord Raman. Avec cette méthode, l'asservissement en zéro du signal d'erreur $S_{CES}(\delta_R)$ assure une fréquence d'horloge dépourvue de déplacements de fréquence induits par les déplacements lumineux, ainsi qu'une insensibilité aux variations de ces derniers. Cette méthode repose sur trois hypothèses pour fonctionner correctement [159] : la dépendance des déplacements lumineux aux variations de puissance laser est linéaire, la pente du signal d'erreur ne dépend que de la puissance laser et les déplacements lumineux sont très petits devant la largeur de résonance atomique. Pour une horloge CPT, la première et dernière condition ne sont pas entièrement respectées.

La deuxième méthode, nommée PM-ACS (Power Modulation - Autocompensated Shift) se base sur le même principe de fonctionnement. Dans cette approche, les hypothèses sont allégées et ne requièrent que la linéarité du déplacement lumineux ($\Delta_{LS} = \alpha P$ avec α un coefficient linéaire). Dans cette approche, les auteurs définissent un déplacement de correction Δ_{ACS} , tel que :

$$\Delta_{ACS} = \xi P \quad (2.18)$$

avec ξ un paramètre variable. Ce déplacement artificiel permet de compenser le déplacement lumineux Δ_{LS} et ses variations. La stabilisation de la fréquence est réalisée avec un signal d'erreur $S_{ACS}(\delta, \xi)$ défini comme :

$$S_{ACS}(\delta, \xi) = S_p(\delta_R + \Delta_{ACS} - \Delta_p) = S_p(\delta_R + \xi P - cP) \quad (2.19)$$

La valeur de δ_R est déterminée lors du saut à la puissance P_1 . ξ est fixé et le signal d'erreur $S_{P1}(\delta_R, \xi_{fixe})$ est asservi en zéro en agissant sur le désaccord en fréquence δ . Lors du saut à la puissance P_2 , δ_R est fixé à

la valeur déterminée précédemment, et une seconde boucle d'asservissement stabilise en zéro le signal d'erreur $S_{P2}(\delta_R, \xi)$ en agissant sur la valeur de ξ . La répétition de ces cycles correspond à la résolution d'un système à deux équations et deux inconnues :

$$\begin{aligned} S_{P1}(\delta_R, \xi) &= S_{P1}(\delta_R + \xi P1 - cP1) = 0 \\ S_{P2}(\delta_R, \xi) &= S_{P2}(\delta_R + \xi P2 - cP2) = 0 \end{aligned} \quad (2.20)$$

Ainsi, pour $\xi = c$, on obtient un désaccord en fréquence nul ($\delta_R = 0$), correspondant à la fréquence d'horloge asservie sur la fréquence de transition hyperfine ν_0 .

Une première démonstration expérimentale de l'approche PM-ACS a été proposée dans une horloge CPT à micro-cellule à FEMTO-ST [139]. Dans cette étude, les auteurs proposent une extension de la méthode ACS en symétrisant la séquence d'interrogation afin de réduire un effet de mémoire atomique [161]. En effet, dans une séquence exploitant l'utilisation de différentes puissances laser, le signal atomique porte lors d'un saut de puissance pendant une période équivalent à la décohérence CPT [162] des traces résiduelles d'informations des cycles d'interrogations micro-ondes précédents. Dans le cas présent, la population d'atomes dans l'état CPT est plus importante à P_2 qu'à P_1 . Il faut ainsi attendre un certain temps pour stabiliser de nouveau le signal atomique à la suite d'un changement de puissance. Une interrogation en début de saut de puissance engendre alors un décalage du signal atomique par rapport au signal sans modulation de puissance. Cet effet de mémoire atomique est amplifié si, lors du saut précédent, le même côté de la résonance est sondé. La symétrisation de la séquence d'interrogation permet ainsi d'atténuer l'effet de mémoire atomique. Cet effet est aussi observable dans les séquences impulsionnelles utilisant différents temps d'évolution dans le noir [153, 161].

La figure 2.11 représente la séquence ACS symétrique mise en oeuvre dans [139] :

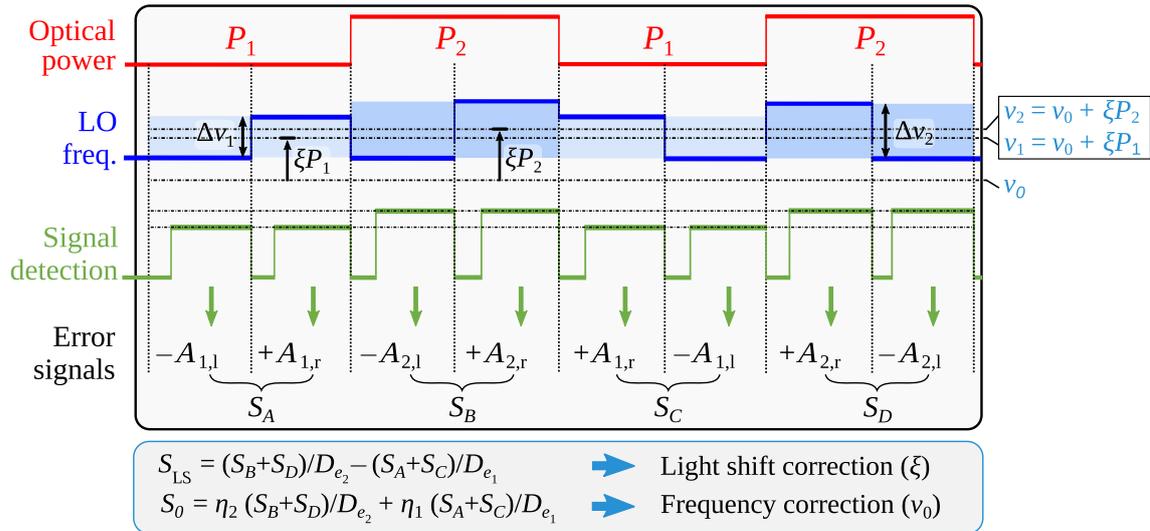


FIGURE 2.11 – Séquence ACS symétrique appliquée dans une horloge CPT à microcellule. A_{ij} correspond au niveau de tension mesuré à mi-hauteur, à droite (+) et à gauche (-), du signal de résonance. Les signaux d'erreurs S_A à S_D sont calculés à partir de ces coefficients. La fréquence de modulation est de 1.45 kHz. Figure et légende extraites de [139].

Des signaux d'erreur S_A , S_B , S_C et S_D sont initialement extraits. Un premier signal d'erreur S_{LS} est alors construit pour compenser les déplacements de fréquence, tandis qu'un second signal d'erreur S_0 est calculé et utilisé pour converger vers la fréquence d'horloge ν_0 dépourvue des déplacements lumineux. La figure 2.12(a) montre une résonance CPT détectée au sein d'une microcellule pour deux puissances laser différentes ($P_1 = 27.4 \mu\text{W}$ et $P_2 = 59.7 \mu\text{W}$). On observe nettement l'impact de la puissance sur le signal d'horloge mais aussi sur son déplacement de fréquence. Ce dernier est encore plus visible sur le signal d'erreur généré à partir du signal atomique, comme montré figure 2.12(b). On observe nettement, pour les valeurs de puissance différentes, que les signaux d'erreur associés passent par 0 pour des valeurs du désaccord en fréquence de l'oscillateur local légèrement différentes.

La figure 2.12(c) montre une séquence temporelle au cours de laquelle des sauts de puissance laser sont volontairement appliqués pour observer leur impact sur la fréquence d'horloge. La courbe bleue montre le

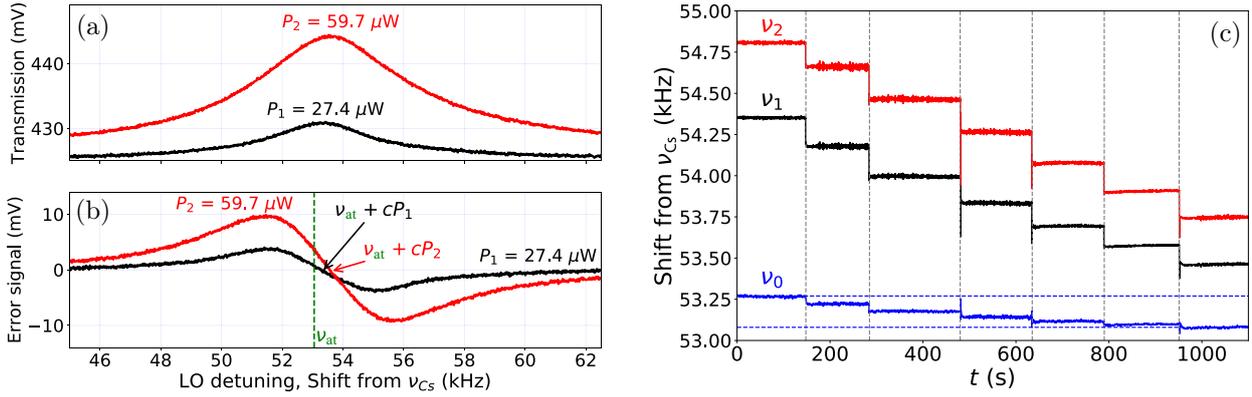


FIGURE 2.12 – Résonances CPT (a) et signaux d'erreur associés (b) obtenus pour deux puissances laser différentes $P_1 = 27.4 \mu\text{W}$ et $P_2 = 59.7 \mu\text{W}$. La ligne verte en pointillée montre la position approximative de la fréquence sans déplacement lumineux. Les croisements en zéro des fréquences déplacées $\nu_{at} + cP_1$ et $\nu_{at} + cP_2$ sont indiqués par des flèches sur (b). (c) Mesures des fréquences ν_1 , ν_2 et ν_0 (déplacement de fréquence relative à ν_{Cs}) avec la séquence ACS symétrique. Chaque saut de puissance est montré par une ligne verticale en pointillé. Figures et légendes extraites de [139].

résultat obtenu avec la méthode ACS, par comparaison avec celui obtenu en régime normal (courbe rouge). Cette figure montre une réduction de la sensibilité de la fréquence d'horloge aux variations de puissance laser par un facteur 5 en mode ACS.

Dans [139], les auteurs observent clairement une dépendance non-linéaire des déplacements lumineux aux variations de puissance laser. Ainsi, contrairement à l'étude PM-ACS initiale, le paramètre variable linéaire ξ a été par la suite remplacé par un polynôme quadratique de coefficients ξ , β et γ . Une réduction par un facteur 28 supplémentaire de la sensibilité de la fréquence d'horloge aux variations de puissance laser a alors été mesurée en utilisant cette approximation quadratique (soit au final une réduction de la pente du déplacement lumineux par un facteur 170 en comparaison au régime continu).

La figure 2.13 montre des mesures de stabilité d'horloge en appliquant la méthode ACS symétrique (avec considération d'une dépendance quadratique aux déplacements lumineux).

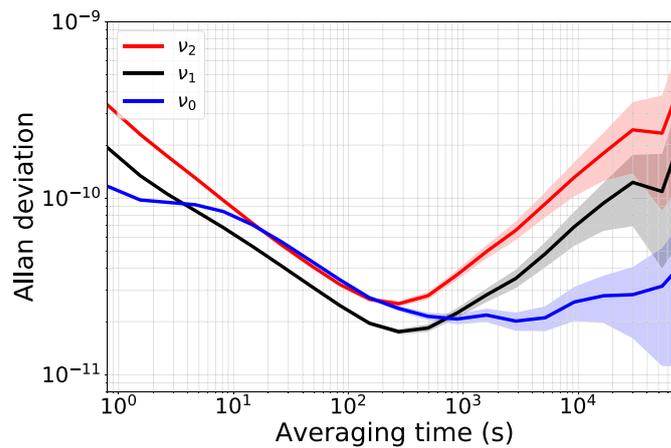


FIGURE 2.13 – Déviations d'Allan des fréquences ν_1 , ν_2 et ν_0 avec la méthode ACS symétrique et considération d'une dépendance quadratique de la fréquence aux déplacements lumineux. Les barres d'erreur sont illustrées par les zones colorées. Figure et légende extraites de [139].

Avec cette technique, une amélioration d'un facteur 9 de la stabilité de fréquence d'horloge a pu être obtenue pour un temps d'intégration de 60000 s, en comparaison au régime continu. Les auteurs mentionnent dans cette étude que la stabilité de fréquence de l'horloge était alors possiblement limitée par un autre phénomène, suspectant la perméation de néon à travers le verre de la cellule.

2.2.5 Régime d’interrogation Ramsey-CPT

Afin de contrer les phénomènes de déplacements lumineux, les horloges CPT les plus performantes exploitent des séquences d’interrogation impulsionnelles, reposant sur la spectroscopie Ramsey-CPT [23]. Dans ce cas, la réduction du temps d’interaction des atomes avec le champ optique réduit la sensibilité des atomes aux variations de ce dernier. La première observation de franges de Ramsey avec des impulsions CPT a été démontrée par Thomas *et al.* en 1982 [163] dans une horloge à jet atomique de sodium. Dans cette horloge, un jet d’atomes, préalablement préparé par pompage optique dans un des deux états fondamentaux, traverse successivement deux zones d’interactions CPT séparées spatialement. Les franges de Ramsey-CPT sont observées en mesurant la fluorescence du jet dans la seconde zone. La même technique d’interrogation sera par la suite appliquée en 1993 par la même équipe, sur un jet d’atomes de césium [164]. La stabilité court terme de fréquence de ces horloges ($\sim 10^{-11} \tau^{-1/2}$) était alors limitée par la distance entre les deux zones d’interactions CPT (i.e. la durée du temps d’évolution libre T). En 1989, Hemmer *et al.* [127] ont formalisé les effets de déplacements lumineux lors d’une interaction Raman-Ramsey.

En 2005, Zanon *et al.* [165], au SYRTE, ont proposé de séparer les impulsions CPT dans le temps, et non dans l’espace. La réalisation des impulsions lumineuses est alors assurée par un modulateur acousto-optique. Aussi, le jet d’atomes est ici remplacé par une vapeur chaude de césium contenue dans une cellule centimétrique avec du gaz tampon. Dans une cellule de dimensions centimétriques, les temps de relaxation de la cohérence hyperfine CPT sont de quelques ms [142, 166, 167], permettant la détection de franges étroites ($\simeq 100 - 200$ Hz). Une horloge Ramsey-CPT de laboratoire, exploitant deux lasers asservis en phase, présentant une stabilité de fréquence de 3×10^{-13} à 1 s, a été obtenue avec cette approche [167]. L’interrogation Ramsey est aujourd’hui utilisée dans les horloges compactes à cellule les plus performantes [41, 142, 166, 168].

À notre connaissance, la première démonstration de l’implémentation de la spectroscopie Ramsey-CPT dans une micro-cellule a été publiée par Boudot *et al.* en 2018 [162]. Aucune mesure de stabilité de fréquence n’était cependant rapportée dans cette étude. L’arrivée tardive dans la littérature d’une démonstration expérimentale d’une séquence de Ramsey-CPT en micro-cellule s’explique néanmoins. Dans une cellule millimétrique, les temps de relaxation de la cohérence hyperfine sont plus faibles (de l’ordre de quelques centaines de μ s car la longueur d’interaction est réduite), limitant la valeur du temps d’évolution libre T . Ainsi, pour un temps noir T typique de 400 μ s, la largeur de résonance est de 1250 Hz. Cet ordre de grandeur de largeur CPT est aussi accessible à basse puissance laser en régime continu dans une micro-cellule. Aussi, les niveaux d’amplitude des signaux de résonance sont relativement équivalents. Ainsi, la stabilité court-terme attendue d’une horloge CPT à micro-cellule est comparable pour les régimes continu, ou légèrement favorable en mode Ramsey-CPT. Aussi, la spectroscopie Ramsey-CPT conserve une sensibilité résiduelle non-négligeable aux déplacements lumineux induits lors des impulsions lumineuses. Il n’est ainsi pas évident que la spectroscopie Ramsey-CPT permette un gain significatif sur la stabilité long-terme de l’horloge. Enfin, l’utilisation d’un modulateur acousto-optique (utilisé usuellement pour la réalisation d’une séquence optique impulsionnelle) est incompatible avec l’architecture d’une micro-horloge car trop volumineux et consommateur de puissance.

Au début de ma thèse en 2020, aucune mesure de stabilité de fréquence pour une horloge à micro-cellule opérant en régime Ramsey-CPT n’avait été rapportée dans la littérature. Ainsi, dans la continuité des études menées dans le domaine des horloges compactes à cellule et au laboratoire, ma thèse a visé dans un premier temps à démontrer la pertinence du régime impulsionnel Ramsey-CPT pour une horloge atomique à micro-cellule pour la réduction des déplacements lumineux et l’amélioration de sa stabilité de fréquence. Dans la continuité de cette première étude, nous présenterons en section 2.5 l’implémentation de séquences impulsionnelles plus avancées pour une réduction accrue des déplacements lumineux. Nous démontrerons en particulier l’utilisation d’une séquence impulsionnelle nommée Symmetric-Auto-Balanced-Ramsey (SABR).

2.3 Dispositif expérimental

2.3.1 Architecture de base

La figure 2.14 est un schéma du banc expérimental utilisé au cours de ma thèse pour la démonstration des protocoles d’interrogations impulsionnels Ramsey-CPT et SABR-CPT. On distingue trois parties distinctes : le bloc laser (VCSEL), la génération d’impulsions lumineuses (AOM) et la référence atomique (Cellule). Une description du fonctionnement de chacun de ces blocs est apportée dans les sous-sections suivantes. Une dernière sous-section présente les modifications apportées pour l’étude de la séquence SABR-CPT.

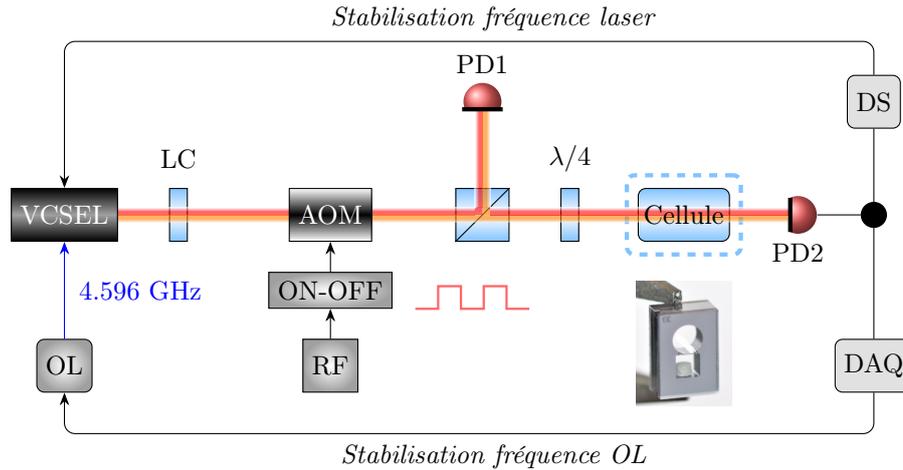


FIGURE 2.14 – Architecture du système d’horloge Ramsey-CPT à micro-cellule. Les impulsions lumineuses CPT sont générées à la sortie de la VCSEL en utilisant un AOM externe. La puissance laser en entrée de cellule est calibrée en utilisant la photodiode PD1. La lumière transmise à travers la micro-cellule de Cs-Ne est détectée par la photodiode PD2. Le signal en sortie de la photodiode PD2 est utilisé dans deux boucles d’asservissement principales : une pour la stabilisation de la fréquence laser en corrigeant le courant continu du laser et une pour la stabilisation de la fréquence micro-onde de l’oscillateur local (OL) sur le signal de résonance CPT. DS : détection synchrone. DAQ : data acquisition card (carte d’acquisition de données). RF : source radio-fréquence. AOM : Modulateur Acousto-Optique. La pression de néon dans la micro-cellule est de $P = 90.7$ Torr.

Le laser est une diode laser VCSEL accordée sur la raie D_1 du césium. En opération, le courant de la diode VCSEL est d’environ 1.8 mA et la température du laser est stabilisée à 70°C . Le courant d’injection est modulé par l’intermédiaire d’un té de polarisation (Mini-Circuits TCBT-14+) à 4.596 GHz à l’aide d’un oscillateur local (ici un synthétiseur micro-onde commercial Rohde-Schwarz SMB100A) afin de générer deux bandes latérales optiques du premier ordre réalisant l’interaction CPT à 9.192 GHz. Le synthétiseur est référencé sur un maser à hydrogène actif. On notera dans la suite $P_{\mu\text{W}}$ la puissance micro-onde lue en sortie de synthétiseur.

La diode laser VCSEL possède en sortie directe de boîtier un fort angle de divergence, typiquement de l’ordre de 20° (divergence en $1/e^2$). Le faisceau est alors collimaté en sortie de diode par une lentille de collimation (LC) ou un objectif de microscope. Il est nécessaire de veiller à bien calibrer la taille de l’optique de collimation utilisée afin d’éviter de potentielles aberrations sphériques pouvant dégrader la forme du faisceau laser.

La génération d’impulsions lumineuses nécessite l’emploi d’un obturateur rapide pouvant éteindre et allumer le faisceau optique dans un temps court, idéalement plus court que celui nécessaire pour atteindre l’état stationnaire de la résonance CPT (quelques dizaines de μs en micro-cellule). Pour cela, nous avons utilisé un modulateur acousto-optique (AOM), comme représenté figure 2.15.

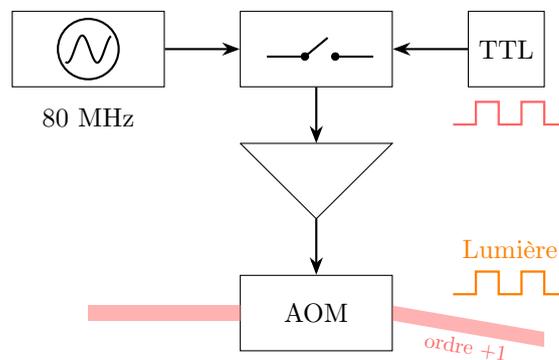


FIGURE 2.15 – Schéma de fonctionnement du modulateur acousto-optique pour la génération des impulsions optiques.

Nous utilisons sur notre banc-horloge un modulateur acousto-optique (MT110-B50A1.5-IR, AA Opto- Electronic). Les temps de montée et de descente intrinsèques de l'AOM annoncés par le constructeur sont de l'ordre de 150 ns, largement suffisants pour la réalisation de nos séquences impulsionnelles présentant des temps d'impulsions de quelques centaines de μs requérant des temps de montée/descente de l'ordre de 10 μs . L'AOM est contrôlé par une source radio-fréquence à 80 MHz. Un interrupteur à large bande passante (Mini Circuits ZASW-2-50DRT), piloté par une séquence TTL générée par une carte de contrôle, est utilisé pour allumer/éteindre le signal radio-fréquence pilotant l'AOM. Le premier ordre de diffraction est conservé. La puissance optique incidente P_i en entrée de cellule est contrôlée en ajustant la puissance P_{RF} du signal RF pilotant l'AOM. Une faible proportion de la puissance laser est extraite par un cube séparateur et détectée par la photodiode notée PD1. Cette photodiode est utilisée pour mesurer et calibrer la puissance laser en entrée de cellule.

La référence atomique utilisée dans cette section est une cellule micro-fabriquée à vapeur de césium remplie avec une pression de 90.7 Torr de néon. Le lecteur est invité à se rendre au chapitre 3 pour une description plus fournie de cette dernière. La microcellule est intégrée dans un module physique, montré sur la figure 2.16. Sa fonction principale est d'assurer un maintien stable de la micro-cellule (température, champ magnétique, vibrations, etc.) et de lui fournir un environnement bien contrôlé.

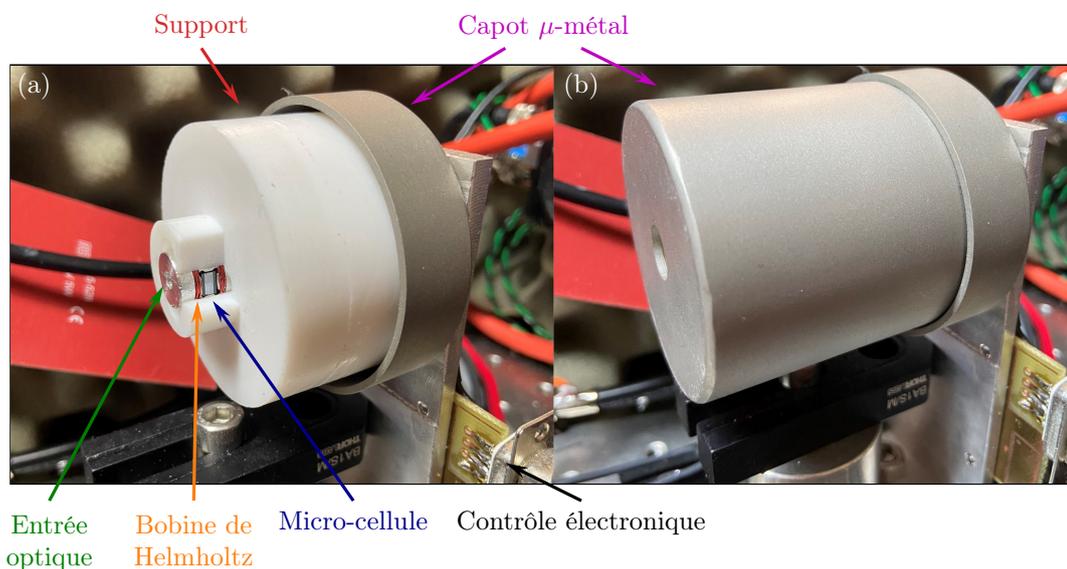


FIGURE 2.16 – Module physique contenant la microcellule. Photo sans (a) et avec (b) le blindage en μ -métal. Une description des différentes parties est donnée sur la figure. Plus de détails sont donnés dans le texte concernant le fonctionnement du module physique.

La cellule est régulée en température afin d'atteindre une température assurant une densité atomique suffisante pour maximiser le signal de résonance. Dans le cas d'une micro-cellule de césium, la température de travail est souvent supérieure à 60°C afin d'avoir une densité atomique suffisante et inférieure à 100°C afin de ne pas rendre la cellule trop absorbante et donc opaque. Ces bornes de température sont sujettes à varier selon la taille de la cellule ou encore la présence de gaz tampon. Le système de chauffe est placé au plus proche des fenêtres optiques [89] afin d'éviter des problèmes de condensation pouvant obstruer le passage optique. La régulation en température de la cellule est suffisamment performante pour limiter l'impact des déplacements collisionnels. Pour une cellule de césium remplie de néon et chauffée à 85°C , la sensibilité de la fréquence d'horloge aux variations de température de cellule est d'environ 1.3 Hz K^{-1} . Ainsi, pour obtenir une performance de stabilité relative de fréquence de 10^{-11} , la régulation en température doit être plus stable que 80 mK . La régulation en température de la cellule est assurée par l'intermédiaire d'une résistance chauffante, d'une sonde et d'un contrôleur de température. La figure 2.17 montre un exemple de mesure de la température d'une sonde de la cellule sur une durée de 20 jours, réalisée avec le module physique montré figure 2.16. La sonde montrée est la sonde "in-loop" utilisée par le contrôleur de température. La déviation d'Allan associée à cette mesure est tracée sur la figure 2.17(b). Les fluctuations de température de la sonde "in-loop" sont de 10^{-3} K à 10 s et inférieures à 10^{-5} K à 10^5 s . Ces valeurs, bien qu'à modérer, démontrent un excellent fonctionnement du contrôle en température.

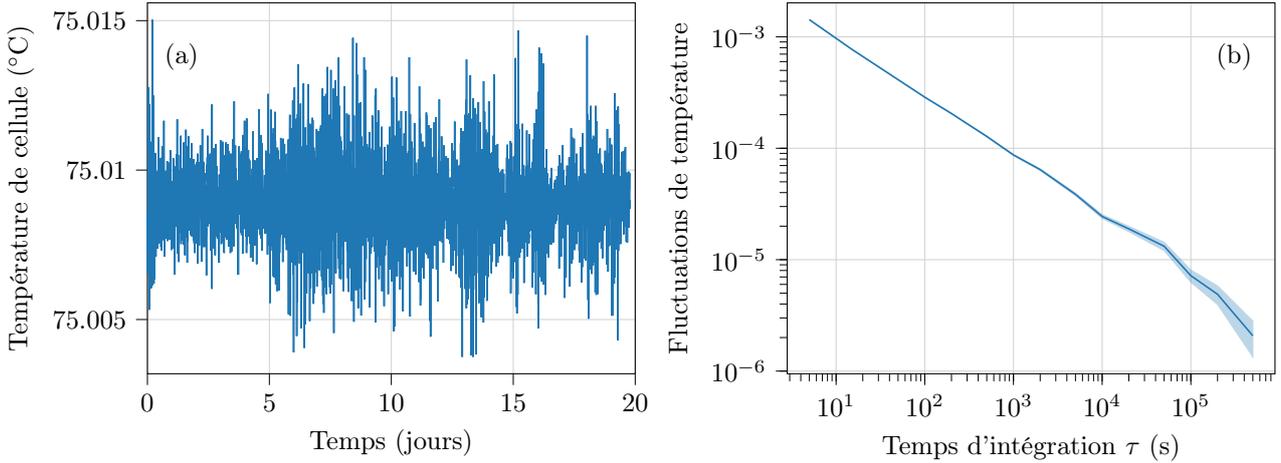


FIGURE 2.17 – (a) Trace temporelle de la température de la sonde "in-loop" de la micro-cellule sur une durée de 20 jours. (b) Fluctuations de température de la sonde "in-loop" en fonction du temps d'intégration. Données dérivées de (a).

Un champ magnétique statique est appliqué à l'aide de bobines de Helmholtz afin de lever la dégénérescence Zeeman. Le module physique inclut un blindage magnétique en mu-métal pour protéger les atomes des perturbations magnétiques environnementales.

L'application du champ magnétique permet d'isoler la transition d'horloge $0 - 0$. La séparation entre les transitions Zeeman voisines est d'environ 700 kHz G^{-1} . On considère que la séparation entre ces transitions doit être de l'ordre ou supérieure à 20 kHz afin de résoudre suffisamment le signal de résonance dont la largeur typique est de quelques kHz. Dans notre cas, cela correspond à l'application d'un champ magnétique B supérieur à 28 mG . En même temps, il est préférable de ne pas appliquer un champ magnétique trop important, au risque d'engendrer un déplacement de fréquence Zeeman trop important et sujet à fluctuer.

Le déplacement Zeeman de la fréquence de transition d'horloge est de $\nu_{3,0 \Rightarrow 4,0} \sim 427 B^2$ (avec B en Gauss). La sensibilité aux variations du champ magnétique s'exprime alors par :

$$\frac{d\nu_{3,0 \Rightarrow 4,0}}{dB} = 854 \times B \quad (2.21)$$

Pour un champ magnétique $B = 0.1 \text{ G}$, la sensibilité de la fréquence d'horloge (transition $0 - 0$) est de 85.4 Hz G^{-1} . Pour une horloge visant une stabilité relative de fréquence de 10^{-12} à la journée, les fluctuations du champ magnétique ΔB doivent ainsi être plus petites que $1 \times 10^{-4} \text{ G}$ à la journée, soit des fluctuations relatives $\Delta B/B < 10^{-3}$.

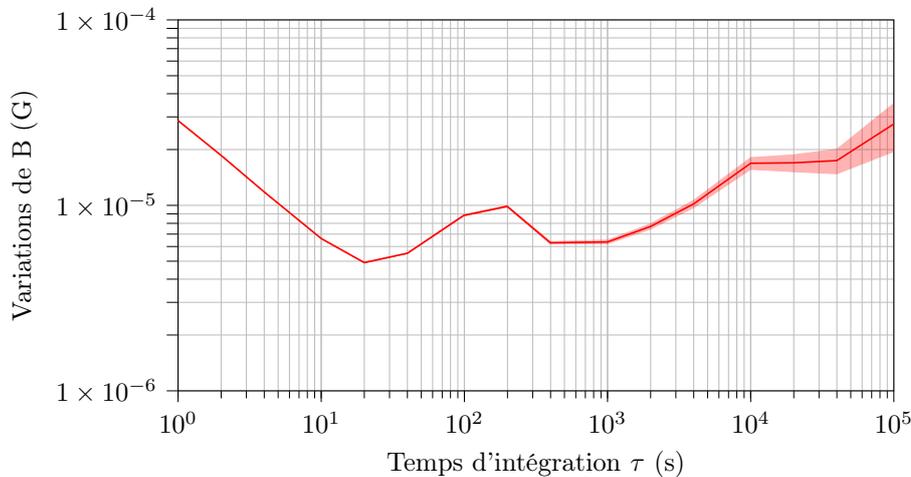


FIGURE 2.18 – Fluctuations typiques du champ magnétique du module physique.

Dans notre module physique, un champ magnétique statique de $B = 0.17$ G est appliqué avec un courant de 5 mA circulant dans les bobines de Helmholtz. Nous avons mesuré les fluctuations typiques de champ magnétique expérimentées par les atomes en mesurant l'évolution de la fréquence de la transition $m_{F=3} = +1 \Rightarrow m_{F=4} = +1$. La figure 2.18 montre les fluctuations typiques de champ magnétique B expérimentées par les atomes au sein du module physique. Ces dernières sont d'environ 30 μG à la journée, soit des fluctuations relatives $\Delta B/B = 30 \times 10^{-6}/0.17 = 1.7 \times 10^{-4} < 10^{-3}$.

La puissance laser en sortie de cellule est détectée avec la photodiode PD2. Le signal en sortie de PD2 est utilisé pour stabiliser la fréquence laser. Pour cela, la fréquence laser est ajustée de telle sorte que les bandes latérales optiques du premier ordre soient résonantes avec la transition entre les niveaux hyperfins $|F = 3\rangle$ et $|F = 4\rangle$ de l'état fondamental $6S_{1/2}$ avec le niveau hyperfin $|F' = 4\rangle$ de l'état excité $6P_{1/2}$ de la raie D_1 du Cs. Le courant laser est modulé avec une sinusoïde de fréquence 71 kHz et un signal d'erreur passant par zéro est obtenu par démodulation synchrone. Une boucle d'asservissement stabilise alors la fréquence laser sur le creux d'absorption optique en appliquant des corrections sur le courant d'injection du laser. Une seconde boucle d'asservissement est utilisée à partir du signal de la photodiode PD2 afin de stabiliser la fréquence de l'oscillateur local sur le signal de résonance CPT.

Plusieurs multimètres sont utilisés pour monitorer l'évolution des différents paramètres expérimentaux (température dans le laboratoire, puissance laser, pression atmosphérique, courant d'injection dans la diode laser, etc.). L'acquisition des données et le traitement des informations sont assurés par une carte d'acquisition multifonction National Instrument (NI-USB 6259) reliée à un ordinateur.

2.3.2 Spécificités du banc pour la séquence SABR-CPT

La figure 2.19 présente le schéma expérimental de l'horloge CPT, assez similaire à la figure 2.14, mis en place au cours de ma thèse pour explorer la méthode d'interrogation SABR-CPT détaillée plus loin.

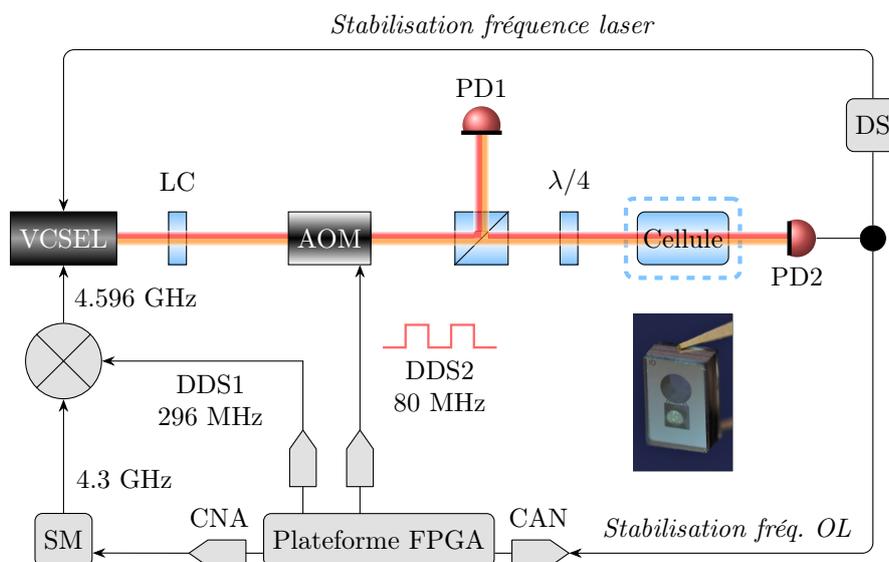


FIGURE 2.19 – Banc expérimental d'horloge CPT pour la réalisation de la séquence SABR-CPT. La pression de la cellule est de $P = 90.7$ Torr. LC : lentille de collimation, AOM : modulateur acousto-optique, $\lambda/4$: lame quart d'onde, PD : photodiode, DS : détection synchrone, CAN : convertisseur analogique-numérique, CNA : convertisseur numérique analogique, SM : synthétiseur micro-onde, DDS : direct digital synthesis (en français : synthèse numérique directe), FPGA : field programmable gate array.

Nous utilisons pour l'étude de cette séquence avancée une plateforme électronique reposant sur un coeur FPGA. En effet, des tests préliminaires effectués dans le cadre de l'étude rapportée dans [25] au sein du laboratoire avaient mis en avant la difficulté de traitement des données de la carte NI pour la réalisation de séquences d'interrogation plus complexes nécessitant des requêtes et exécutions plus rapides.

Nous avons exploité une plateforme ARTIQ [169] (Advanced Real-Time Infrastructure for Quantum physics) développée par M-LABS. Contrairement à un système FPGA classique nécessitant des compétences avancées en programmation VHDL, la plateforme ARTIQ intègre un langage de programmation haut-niveau en Python. Ce système permet ainsi d'interfacer et piloter des expériences scientifiques complexes, dans un langage de

programmation aisément accessible, tout en bénéficiant des résolutions temporelles de quelques nano-secondes offerts par le FPGA. ARTIQ se présentait ainsi pour nos besoins et relativement à nos compétences comme un compromis avantageux entre rapidité d'exécution, performance, et simplicité d'utilisation.

La figure 2.20 est une photo prise de la face avant du système de la plateforme ARTIQ.

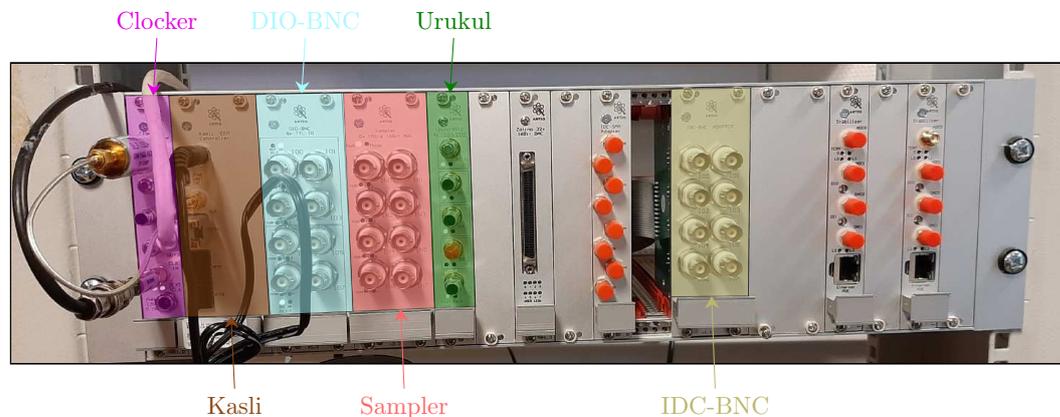


FIGURE 2.20 – Face avant de la plateforme ARTIQ avec les différents modules d'extensions utilisés (Clocquer, Kasli, etc.) pour l'expérience. Une description sommaire de leur fonctionnement est donnée dans le texte.

Cette dernière se présente sous la forme d'un rack sur lequel il est possible d'intégrer divers modules d'extensions articulés autour d'un module coeur comprenant un système FPGA et un CPU. Nous présenterons seulement dans la suite les modules utilisés dans le cadre de cette étude. Le code couleur est en lien avec la figure 2.20. Les différents modules de la plateforme sont :

- **Clocquer** : Module permettant de distribuer un signal d'horloge à faible gigue pour cadencer certains instruments/cartes d'extensions. Dans notre cas, un signal à 100 MHz provenant d'un maser à hydrogène est utilisé en entrée pour référencer le module.
- **Kasli** : Module au coeur du système global, il contient le circuit FPGA et le CPU contrôlant les modules d'extensions. Il est alimenté en +12 V et son pilotage est assuré depuis un ordinateur par une communication Ethernet. Son signal d'horloge interne est cadencé par une des sorties provenant du module Clocquer précédent.
- **DIO-BNC** : Module composé de 8 entrées/sorties numériques BNC.
- **Sampler** : Module avec 8 entrées CAN (Convertisseur analogique-numérique) sur 16 bits, ± 10 V à 1 Ms^{-1} . Ce module permet par exemple la lecture de signaux en sortie de photodiode ou des signaux d'erreurs.
- **Urukul** : Module avec 4 synthèses de fréquence DDS. Ces DDS (AD9912) peuvent être référencées à 1 GHz et peuvent délivrer un signal à une fréquence de sortie comprise entre 1 et 450 MHz. Des atténuateurs et interrupteurs sont aussi intégrés. La résolution fréquentielle des DDS est de 4 μHz . Dans notre cas, nous avons décidé de référencer ces DDS par un signal à 860 MHz issu d'un des bras de notre synthèse de fréquence micro-onde, utilisée pour générer le signal à 4.596 GHz et décrite par la suite. La DDS2 (voir figure 2.19) permet de générer un signal RF pilotant l'AOM à une fréquence de 110 MHz. Ce signal peut être activé ou éteint à l'aide d'interrupteurs RF intégrés. On note aussi l'utilisation de DDS1, exploitée à 296 MHz et utile à la génération du signal à 4.596 GHz.
- **IDC-BNC** : Module avec 8 sorties numériques BNC. Une des sorties est notamment utilisée afin de générer une rampe en tension pour scanner la fréquence laser et réaliser la spectroscopie des profils d'absorption.

Dans l'expérience en mode Ramsey-CPT, le signal d'horloge à 4.596 GHz pilotant la VCSEL est directement généré par un synthétiseur de fréquence commercial (SMB100A). Dans ce cas, l'ajustement de la fréquence d'horloge sur le signal de résonance est effectué via un signal de correction généré par la carte d'acquisition NI, envoyé sur l'entrée de modulation externe de fréquence du synthétiseur. Avec la plateforme ARTIQ, nous souhaitons utiliser les sorties DDS du module Urukul pour contrôler la fréquence de sortie à 4.596 GHz avec une meilleure résolution.

Ainsi, nous avons développé une synthèse de fréquence micro-onde dédiée permettant l'extraction d'un signal à 4.596 GHz obtenu par le mélange entre un signal à 4.3 GHz (délivré par le synthétiseur SMB100A) et un

signal à 296 MHz issu de la DDS1. La fréquence du signal micro-onde de sortie est alors modifiée en changeant numériquement la fréquence de sortie de la DDS1. Les corrections appliquées à la DDS1 sont enregistrées et utilisées comme données de fréquence pour les analyses. La figure 2.21 est une photo détaillée de la synthèse réalisée.

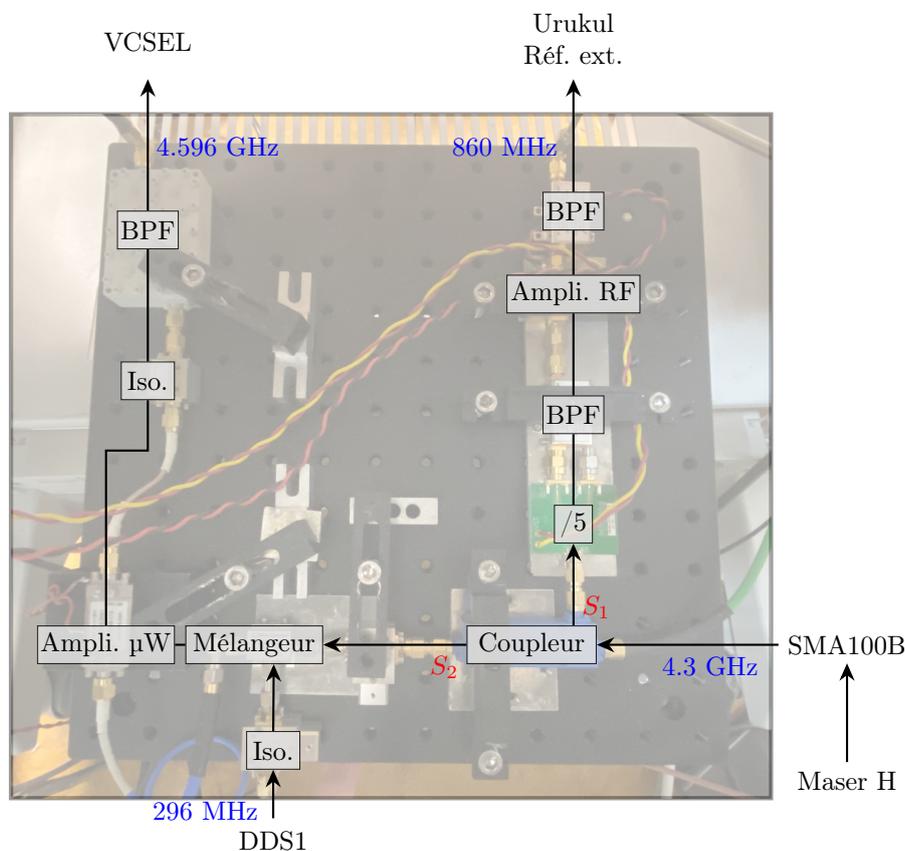


FIGURE 2.21 – Synthèse de fréquence utilisée pour le test de la séquence SABR. BPF : Filtre Passe-Bande), Ampli. : amplificateur, SMA100B : synthétiseur de fréquence, Réf. ext. : référence externe, Iso. : isolateur. La synthèse produit un signal produit un signal micro-onde à 4.596 GHz par mélange entre un signal à 4.3 GHz et un signal à 296 MHz issu d'une DDS. Un signal d'horloge à 860 MHz, obtenu par division de fréquence par 5 du signal à 4.3 GHz, est aussi généré pour cadencer les DDS de la plateforme ARTIQ.

Un signal d'entrée à 4.3 GHz est délivré par le synthétiseur SMA100B. Ce signal est envoyé dans un coupleur 10 dB. Une partie du signal (S_1) est envoyé vers un diviseur de fréquence par 5 (Hittite HLC438) pour obtenir un signal à 860 MHz, par la suite filtré avec un filtre passe-bande et amplifié avec un amplificateur de gain 10 dB (ZX60-8008E-S+). Ce signal est utilisé pour cadencer les DDS du module Urukul. L'autre partie du signal (S_2) en sortie du coupleur passe par un isolateur et est envoyée vers un mélangeur (ZX05-14KH-S+). Le signal micro-onde de sortie à 4.596 GHz est obtenu par mélange entre le signal à 4.3 GHz et un signal à 296 MHz provenant de la DDS1. Le signal de sortie est alors amplifié et filtré par un filtre passe-bande avant d'être envoyé sur l'entrée de la diode VCSEL.

Afin de vérifier la validité de la synthèse de fréquence, nous avons mesuré le bruit de phase absolu du signal de sortie à 4.596 GHz avec un analyseur de bruit de phase (Keysight E5052B). Une trop grande contribution de l'effet Dick pourrait en effet engendrer une dégradation de la stabilité court-terme de l'horloge [170]. Les résultats sont rapportés sur la figure 2.22. La courbe verte montre le bruit de phase en sortie du synthétiseur micro-onde à 4.3 GHz. Le bruit de phase absolu en sortie du signal à 4.596 GHz (courbe orange) est comparable à celui à 4.3 GHz, à l'exception d'une dégradation de quelques dB dans la plage de 1 – 30 kHz. Le bruit de phase en sortie de synthèse demeure satisfaisant. Il est mesuré à -118 dBc/Hz à $f = 1$ kHz. Ce niveau de bruit de phase réduit la contribution de l'effet Dick de notre horloge à micro-cellule à un niveau de $\sim 1.7 \times 10^{-13}$ à 1 s. La courbe bleue correspond au bruit de phase du signal à 860 MHz. Ce dernier est environ 14 dB en dessous de celui à 4.3 GHz, en parfait accord avec le facteur de division de fréquence par 5. Ces mesures valident ainsi la synthèse de fréquence pour notre expérience.

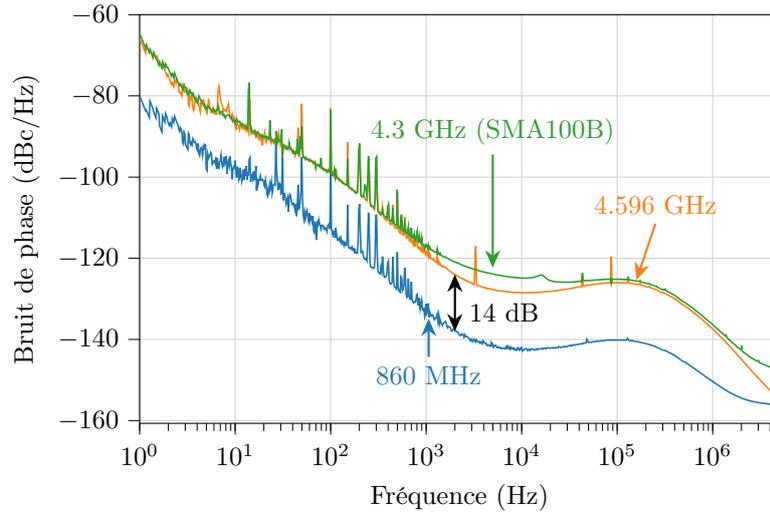


FIGURE 2.22 – Bruit de phase des signaux de la synthèse de fréquence. Signaux à 4.3 GHz (vert), 4.596 GHz (orange) et 860 MHz (bleu).

On distingue deux modes d'expériences codées pour l'horloge CPT, disponibles en mode continu, Ramsey-CPT et SABR-CPT :

- Mode spectroscopie : le signal de la photodiode PD2 en sortie de cellule est collecté après avoir effectué une rampe en fréquence du laser. On observe ainsi le spectre d'absorption des atomes dans la cellule. Il est aussi possible d'observer le spectre de résonance CPT en balayant la fréquence de l'oscillateur local autour de la fréquence de résonance.
- Mode horloge : la séquence d'interrogation est générée en agissant sur la fréquence, la phase et l'amplitude des DDS contrôlant le signal d'horloge ν_{OL} et l'AOM. Les données collectées sont transmises pour générer un signal d'erreur et stabiliser la fréquence de l'oscillateur local sur la résonance CPT.

La figure 2.23 est une capture d'écran de l'environnement graphique contrôlant l'ensemble de la plateforme avec ARTIQ.

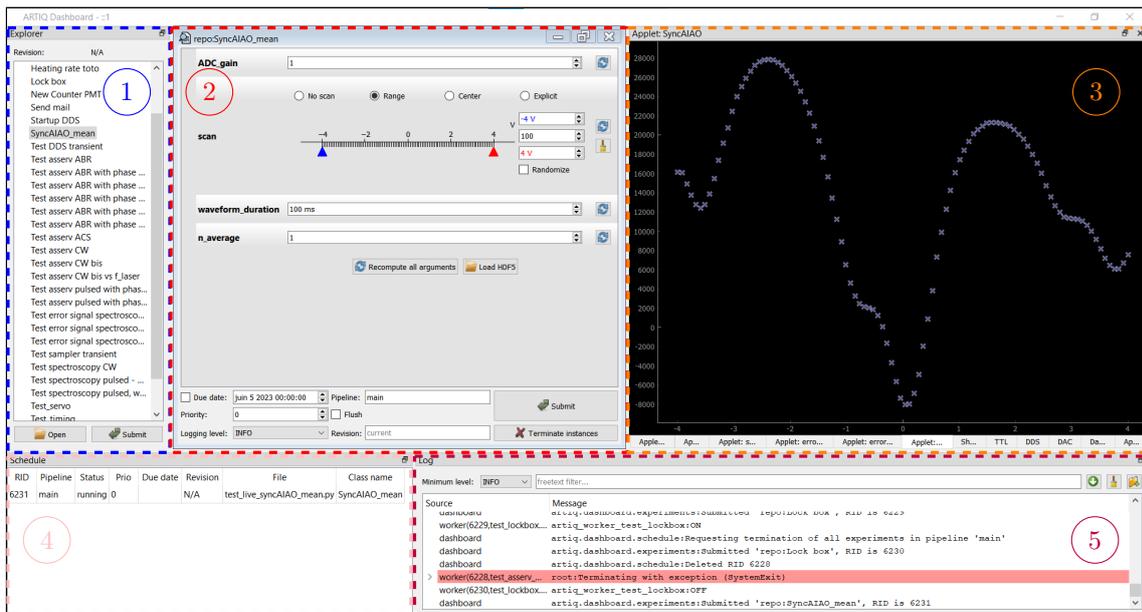


FIGURE 2.23 – Environnement graphique pour piloter la plateforme ARTIQ. Une description de chaque bloc est donnée dans le texte.

Cette interface se décompose en 5 parties distinctes :

1. ① **Liste des expériences.** Les expériences correspondent aux scripts Python contenant les séquences d'instructions pour contrôler les différents modules. Ces fichiers sont stockés en local dans un dossier de l'ordinateur de contrôle.
2. ② **Paramètres de l'expérience.** Chaque expérience est rattachée à un ensemble de paramètres (par exemple dans la figure 2.23 : gain du CAN, plage de tension de la rampe laser, etc). C'est à partir de cette interface que l'on peut lancer et arrêter une expérience.
3. ③ **Interface graphique.** Cette partie contient plusieurs onglets rattachés à chaque expérience nécessitant de tracer des signaux. Dans le cas présent, l'expérience de spectroscopie laser permet de visualiser en temps réel le signal d'absorption du césium.
4. ④ **Agenda des expériences.** Liste des expériences en cours. Il est possible d'exécuter des expériences en différé, en programmant au moment du lancement de l'expérience l'heure et la date à laquelle celle-ci sera lancée.
5. ⑤ **Fenêtre de datalogging.** Cette fenêtre affiche certaines informations de datalogging comme le démarrage et la fin d'une expérience, les erreurs survenues, etc.

L'ensemble des données acquises par le module Sampler (signaux des photodiodes, monitoring de paramètres expérimentaux, etc.) ainsi que les données propres aux cycles d'asservissement de la fréquence de l'oscillateur local (correction de fréquence, fréquence centrale, etc.) sont envoyées vers une base de données sauvegardée en local sur l'ordinateur pilote. L'environnement ARTIQ est particulièrement adapté pour fonctionner en parallèle avec Grafana, un logiciel de visualisation de données. La figure 2.24 est une capture d'écran en mode horloge de cette interface graphique. Celle-ci se compose de plusieurs sous-fenêtre modulables permettant à l'utilisateur d'afficher les données de son choix. Ici, on observe la fréquence d'horloge, le signal en sortie de la photodiode 1 PD1, la pression atmosphérique et la température dans le laboratoire. La possibilité d'observer en temps réel l'évolution des signaux permet de configurer plus facilement l'horloge lors des phases de tests ou de calibration.



FIGURE 2.24 – Environnement graphique Grafana offrant une visualisation en temps réel d'une base de données.

2.4 Interrogation Ramsey-CPT en microcellule

On propose dans cette sous-section d'explorer l'utilisation de la spectroscopie Ramsey-CPT dans une horloge atomique à micro-cellule. Après une description de la séquence appliquée, nous étudions dans un premier temps l'impact des principaux paramètres expérimentaux sur les propriétés des franges Ramsey-CPT (signal, contraste, largeur de résonance). Cette étude nous permet d'optimiser la stabilité de fréquence court-terme de notre horloge dans ce régime d'interrogation. Une étude comparative en mode continu est aussi rapportée. Dans un second temps, nous mesurons la sensibilité de la fréquence d'horloge aux variations de puissance laser, puissance micro-onde en mode Ramsey-CPT et évaluons l'impact de la durée du temps noir. Ces études permettent d'optimiser notre choix des paramètres expérimentaux pour l'amélioration de la stabilité de fréquence moyen/long-terme de l'horloge. Enfin, des mesures de stabilité mettront en avant l'amélioration apportée par la séquence Ramsey-CPT en comparaison au régime continu pour des temps supérieurs à 100 s.

2.4.1 Séquence Ramsey-CPT

La figure 2.25 montre la séquence typique appliquée pour l'horloge en mode Ramsey-CPT. Ici, les atomes interagissent avec une séquence d'impulsions optiques CPT de longueur T_b et séparées par un temps d'évolution libre dans le noir de durée T . Chaque impulsion est utilisée pour pomper optiquement les atomes dans l'état noir et pour la détection du signal CPT. Cette détection est réalisée pendant une fenêtre de durée τ_D , après un délai noté τ_d . Dans cette étude, les paramètres typiques de la séquence sont $T_b = 50 - 500 \mu\text{s}$ et $T = 50 - 500 \mu\text{s}$. Les durées τ_d et τ_D sont fixées à $10 \mu\text{s}$.

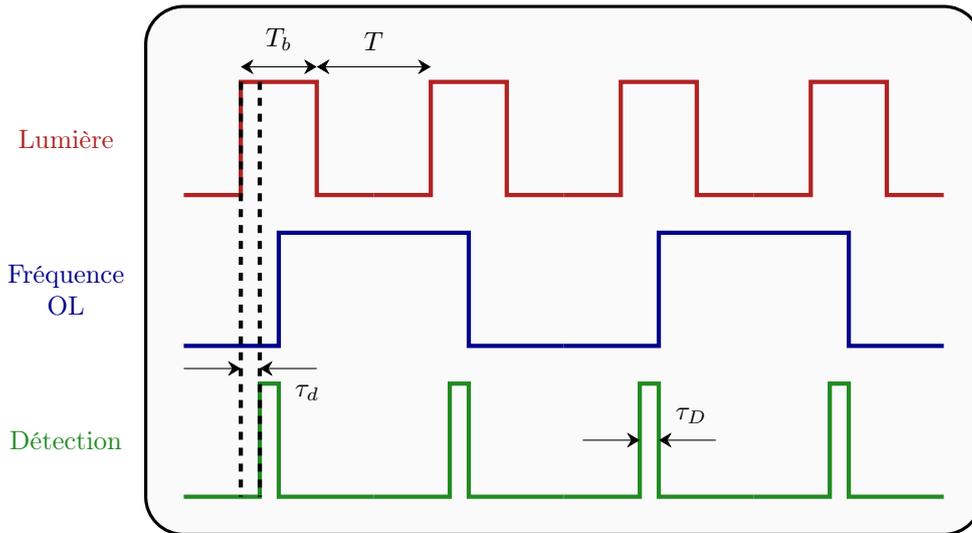


FIGURE 2.25 – Séquence Ramsey-CPT utilisée en mode horloge.

Pour les études de spectroscopie, le scan des franges de Ramsey est obtenu en augmentant simplement graduellement la fréquence de l'oscillateur local à chaque cycle de Ramsey. Un temps mort de 3 ms ($\sim 10 T_2$, avec T_2 le temps de relaxation de la cohérence hyperfine) est appliqué entre chaque cycle de Ramsey de telle sorte que la majorité des atomes sont sortis de l'état CPT avant d'entrer dans un nouveau cycle. Chaque spectre de franges est obtenu par un scan comprenant 2000 points, tous issus de la moyenne sur 5 cycles de Ramsey.

2.4.2 Spectroscopie CPT : Modes continu et Ramsey-CPT

La figure 2.26 est un exemple de signaux d'horloge typiquement observés en régimes continu et Ramsey-CPT avec la micro-cellule Cs-Ne ($P = 90.7 \text{ Torr}$). Dans le cas continu, le contraste est défini comme le rapport entre l'amplitude S de la résonance CPT et la valeur du fond continu y_0 ($C = S/y_0$). La résonance CPT montrée figure 2.26(a) est correctement approximée par une fonction Lorentzienne avec une largeur à mi-hauteur de 4.8 kHz et un contraste de 1.27 %. Dans le cas Ramsey-CPT, le contraste C est défini comme le rapport entre le signal S de la frange et le fond continu à mi-hauteur y_0 de la frange ($C = S/y_0$). La frange Ramsey-CPT montrée figure 2.26(b) a une largeur à mi-hauteur de 1.8 kHz et un contraste de 0.46 %.

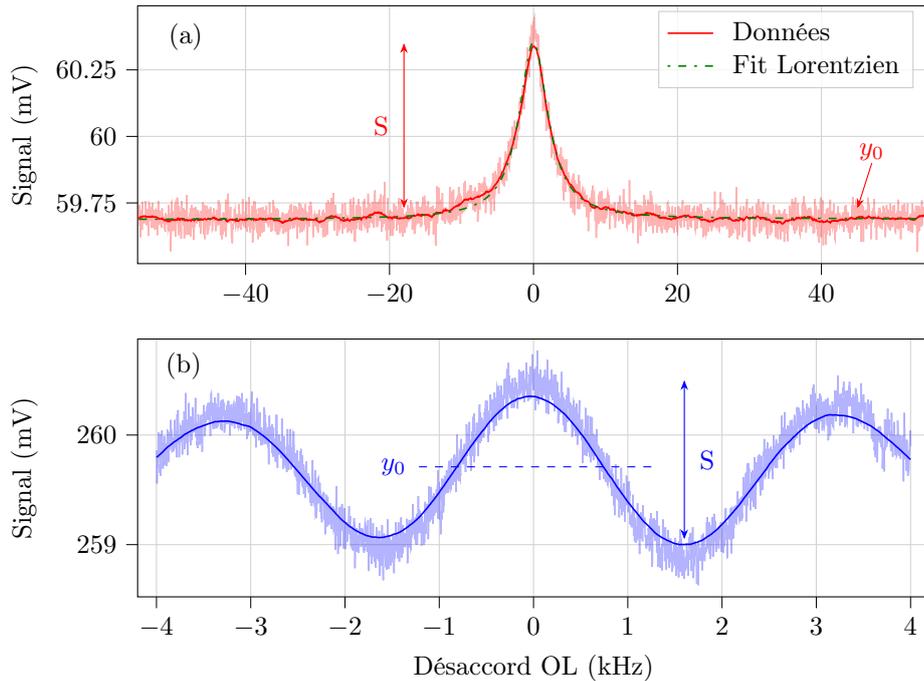


FIGURE 2.26 – Résonance CPT obtenue en régime continu (a) et franges de Ramsey-CPT détectées dans le cas impulsionnel (b). On notera que les échelles des axes des abscisses sont différentes entre (a) et (b). Dans le cas continu, les paramètres expérimentaux sont $T_{cell} = 78 \text{ }^\circ\text{C}$, $P_l = 12 \text{ } \mu\text{W}$, $P_{\mu\text{W}} = -1 \text{ dBm}$. La résonance est approximée par une fonction Lorentzienne tracée en pointillés vert. Dans le cas Ramsey-CPT, les paramètres expérimentaux sont $T_{cell} = 70 \text{ }^\circ\text{C}$, $P_l = 45 \text{ } \mu\text{W}$, $P_{\mu\text{W}} = -1 \text{ dBm}$, $T_b = 150 \text{ } \mu\text{s}$, $T = 260 \text{ } \mu\text{s}$. Les données brutes (courbes transparentes) et moyennées (courbes pleines) sont montrées. Les courbes moyennées sont obtenues en appliquant une moyenne glissante sur 80 et 200 points, pour les courbes (a) et (b).

Nous avons ensuite mesuré l'impact de paramètres expérimentaux sur les caractéristiques du signal de résonance (en régimes continu et Ramsey-CPT), incluant sa largeur à mi-hauteur, le signal et son contraste. Cette étude permet d'identifier la valeur des paramètres expérimentaux à ajuster pour optimiser la stabilité de fréquence court-terme de l'horloge.

2.4.2.1 Puissance laser

La figure 2.27 montre des signaux de résonance obtenus en régime continu (a) et Ramsey-CPT (b) pour différentes valeurs de la puissance laser incidente dans la micro-cellule. On note sur la figure 2.27(a) une asymétrie du signal de résonance pour les grandes valeurs de puissance laser (i.e. $P_l > 100 \text{ } \mu\text{W}$). L'origine de ce phénomène a été observé et étudié dans [137, 171-174]. L'asymétrie observée peut être expliquée par une répartition inégale dans les bandes latérales de la diode laser ou un profil de faisceau présentant une répartition de puissance inhomogène. La présence d'une asymétrie dans le profil de résonance peut alors entraîner l'apparition de déplacements lumineux non-linéaires (voir section 2.4.3.1).

La figure 2.28 montre la largeur à mi-hauteur et le rapport C/FWHM du signal d'horloge en régime continu et Ramsey-CPT en fonction de la puissance laser. On observe sur la figure 2.28(a) en mode Ramsey-CPT un faible élargissement de la largeur de la frange centrale, avec une pente d'environ $1 \text{ Hz } \mu\text{W}^{-1}$. En régime continu, ce coefficient est d'environ $+182 \text{ Hz } \mu\text{W}^{-1}$ dans la plage de puissance $10 - 75 \text{ } \mu\text{W}$, pour la même cellule chauffée à $70 \text{ }^\circ\text{C}$ avec une puissance micro-onde de -1 dBm . On distingue en régime continu une dépendance non linéaire à la puissance laser. On note dans la figure 2.28(b) que le rapport C/FWHM est maximisé pour une puissance laser de $45 \text{ } \mu\text{W}$ en mode Ramsey-CPT, à une valeur de $3.2 \times 10^{-6} \text{ Hz}^{-1}$. En régime continu, cet optimum est 30 % plus faible, et obtenu pour une puissance laser de $12 \text{ } \mu\text{W}$.

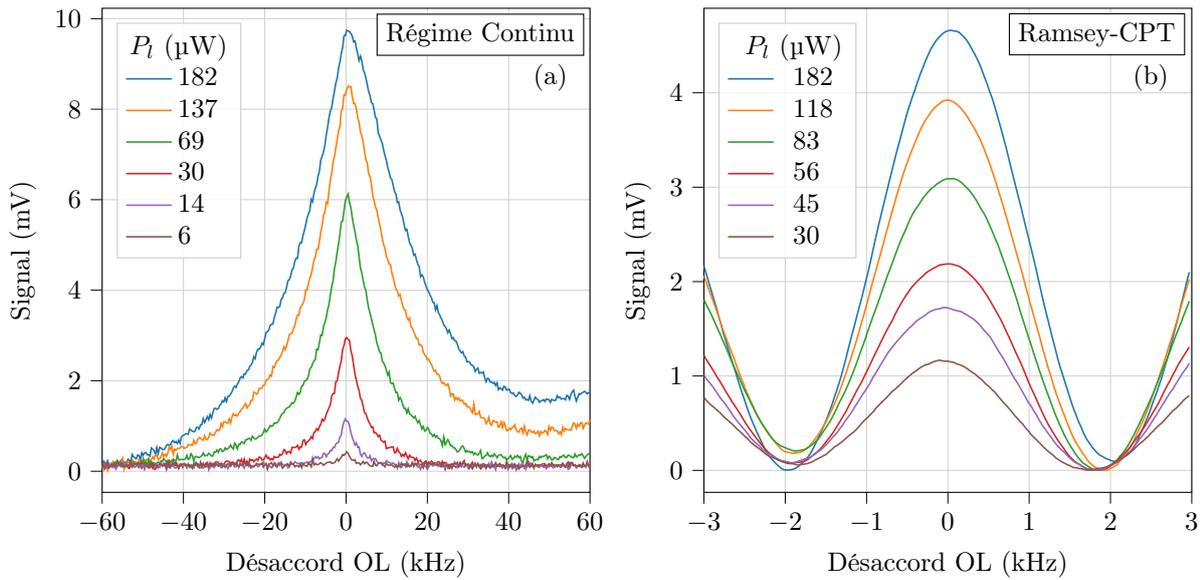


FIGURE 2.27 – Signaux de résonance en régime continu (a) et franges de Ramsey-CPT (b) obtenus avec une micro-cellule pour différentes valeurs de puissance laser en entrée de cellule. Dans le cas du régime continu, on a $P_{\mu\text{W}} = -1$ dBm et $T_{\text{cell}} = 70$ °C. Dans le cas Ramsey-CPT, les paramètres expérimentaux sont : $T = 260$ μs, $T_b = 260$ μs, $P_{\mu\text{W}} = -1$ dBm et $T_{\text{cell}} = 70$ °C. Un offset différent est appliqué sur chaque courbe de (a) et (b) pour normaliser les signaux à une même valeur de fond continu. Le diamètre du faisceau laser est de 0.5 mm.

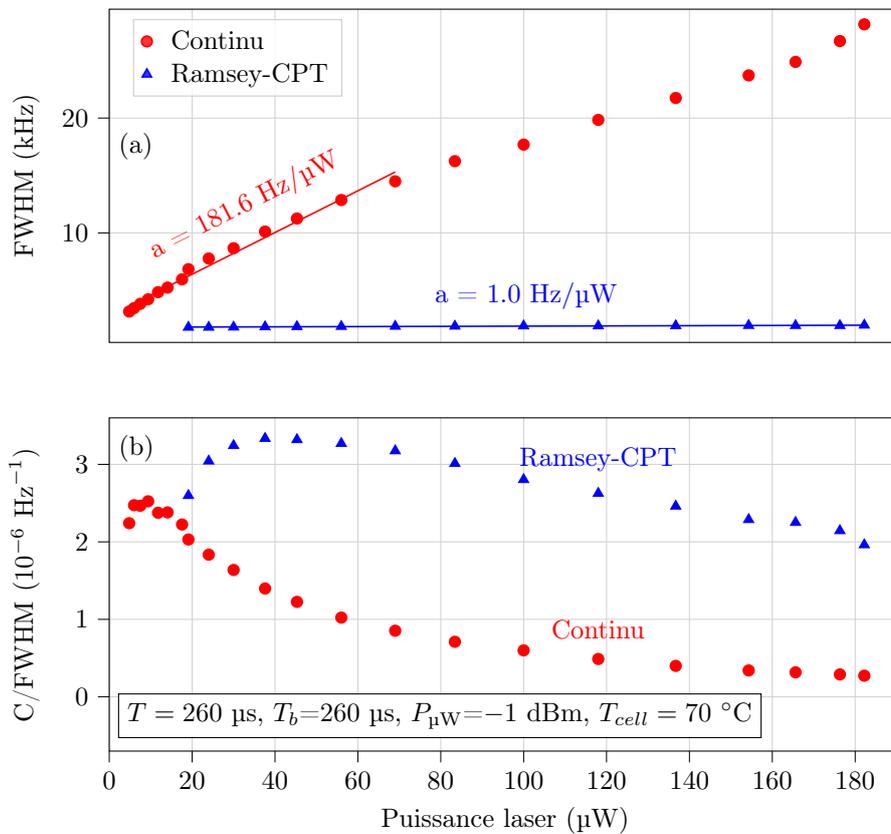


FIGURE 2.28 – FWHM (a) et rapport C/FWHM (b) du signal d'horloge, en fonction de la puissance laser incidente dans la cellule, en régimes continu et Ramsey-CPT. Le diamètre du faisceau laser est de 0.5 mm. Les paramètres expérimentaux sont donnés dans la figure. Les lignes pleines dans (a) indiquent un fit des données avec une fonction linéaire.

2.4.2.2 Température de cellule

La figure 2.29 montre le signal (a) et le rapport C/FWHM (b) de la résonance d'horloge dans les configurations continue et Ramsey-CPT en fonction de la température de la cellule. La dépendance à la température des résonances noires a été étudié dans [77]. Dans cette étude, la hausse de signal initiale avec l'augmentation de la température est justifiée par l'augmentation de la densité atomique tandis que la chute du signal CPT à partir d'une certaine température est expliquée par un modèle simplifié basé sur la dépendance en température de la densité du Cs et de l'épaisseur optique de la vapeur. Dans l'étude présente, un modèle phénoménologique simplifié similaire à celui présenté dans [77] a été développé par E. de Clerq (SYRTE) pour prédire la dépendance en température du signal atomique. Ce modèle a été étendu au mode Ramsey en multipliant le signal obtenu en régime continu par un terme lié à la relaxation ($-\gamma_c T$), avec γ_c le taux de relaxation de la cohérence hyperfine, dépendant de la température. Les seuls paramètres ajustables sont le coefficient de proportionnalité entre le coefficient d'absorption, la densité du Cs et l'amplitude maximale de la courbe pour les deux cas continu et Ramsey-CPT. Les résultats issus de ce modèle sont tracés en pointillés sur la figure 2.29(a). Un accord correct est trouvé entre les données expérimentales et le modèle.

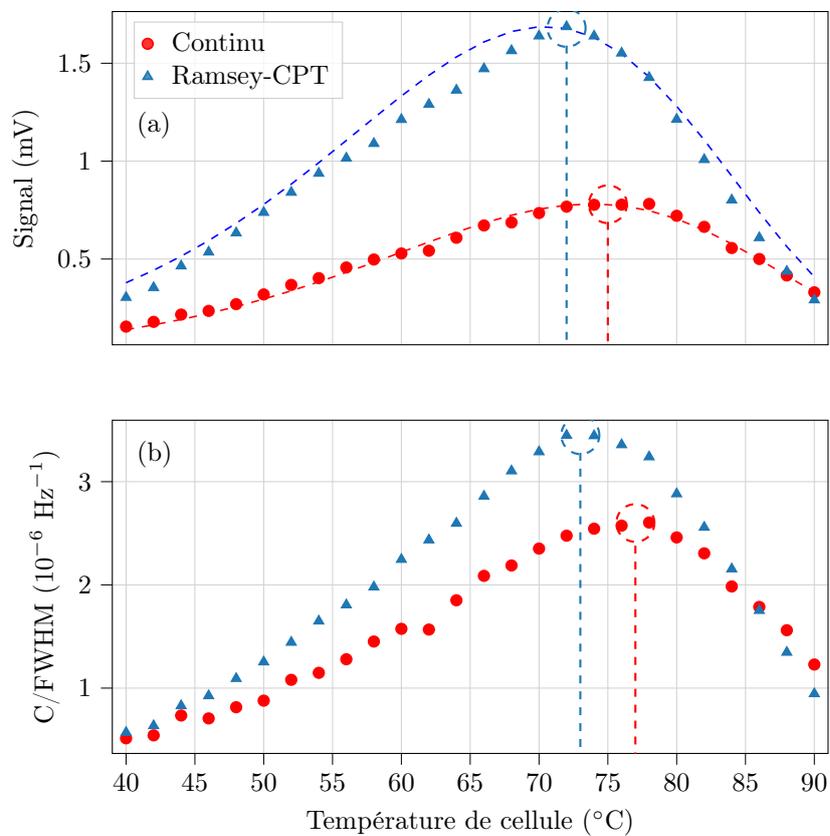


FIGURE 2.29 – Signal (a) et C/FWHM (b) de la résonance d'horloge en régimes continu et Ramsey-CPT en fonction de la température de cellule. Dans le cas continu, les paramètres expérimentaux sont $P_l = 12 \mu\text{W}$ et $P_{\text{lW}} = -1 \text{ dBm}$. Dans le cas Ramsey-CPT, les paramètres expérimentaux sont : $T_b = 150 \mu\text{s}$, $T = 260 \mu\text{s}$, $P_{\text{lW}} = -1 \text{ dBm}$ et $P_l = 45 \mu\text{W}$. Dans (a), les données expérimentales sont approximées par un modèle phénoménologique simplifié, avec des lignes en pointillées.

En régime continu, pour une puissance de $12 \mu\text{W}$, le signal CPT montre un maximum autour de 76°C . Dans le cas Ramsey-CPT, le signal d'horloge est maximisé à une température de cellule plus basse d'environ 71°C . Cette différence s'explique par la relaxation de la cohérence hyperfine pendant le temps d'évolution libre T dans l'interrogation Ramsey.

La figure 2.30 représente le signal CPT en régime continu en fonction de la température de cellule pour différentes valeurs de puissance laser. On retrouve une tendance en forme de cloche, observée de nombreuses fois dans la littérature [77]. On observe que l'optimum en température, où le signal CPT est maximisé, est décalé vers les hautes températures avec l'augmentation de la puissance incidente dans la cellule. Ce comportement est observé dans [156] et étudié dans [77].

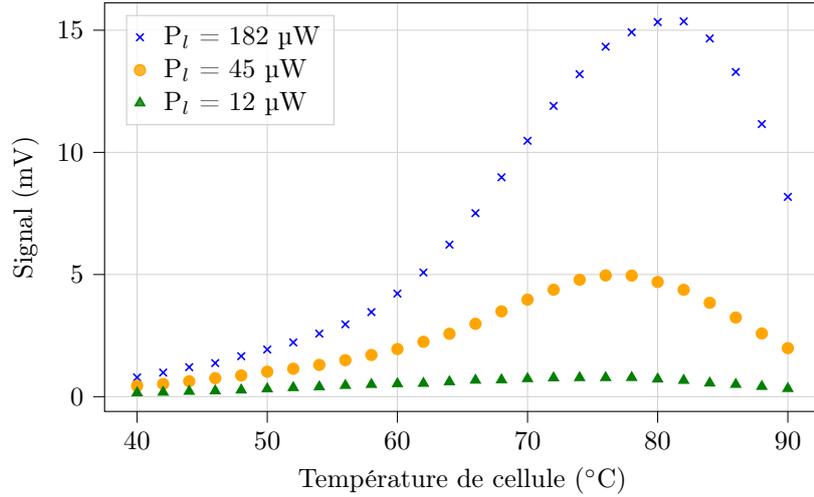


FIGURE 2.30 – Signal d’horloge en régime continu en fonction de la température de cellule pour différentes valeurs de la puissance laser en entrée de cellule. La puissance micro-onde est fixée à -1 dBm. Le diamètre du faisceau laser est de 0.5 mm.

2.4.2.3 Temps noir T

La figure 2.31(a) montre la frange centrale Ramsey-CPT détectée dans la cellule Cs-Ne, pour différentes valeurs de temps noir T , pour une puissance laser de $45 \mu\text{W}$.

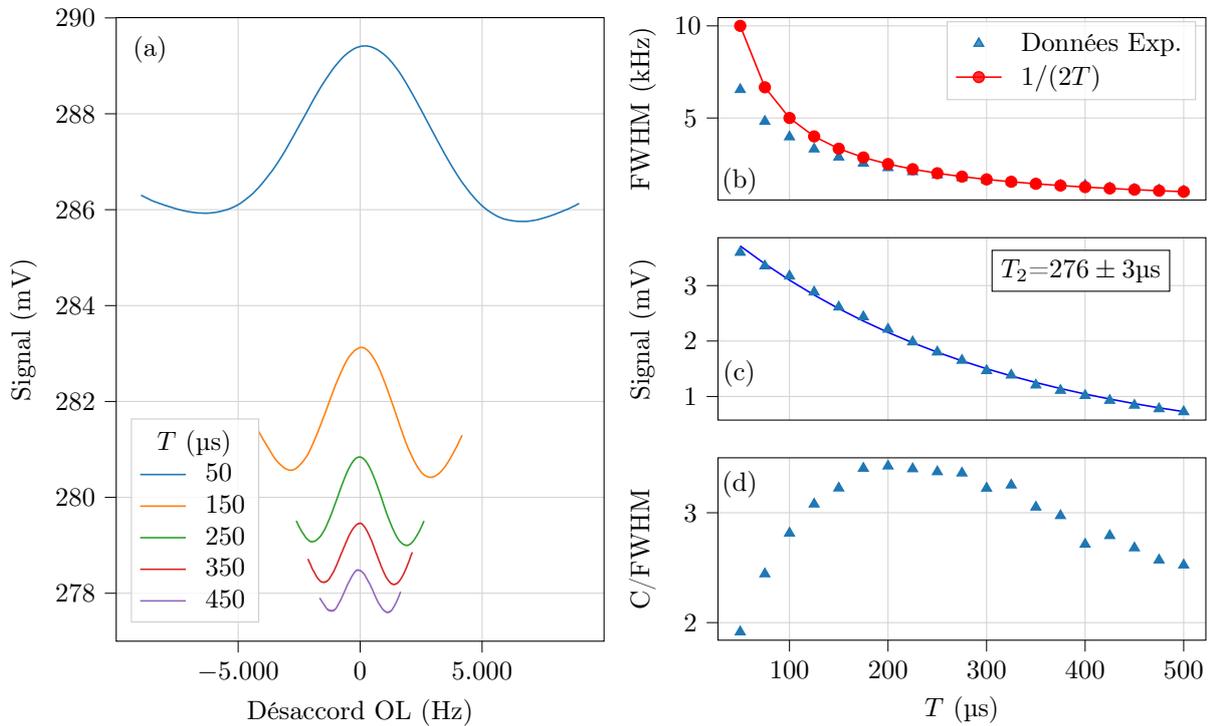


FIGURE 2.31 – Franges de Ramsey-CPT détectées dans une micro-cellule Cs-Ne pour différentes valeurs du temps noir T . Les paramètres expérimentaux sont : $T_{cell} = 70$ °C, $P_l = 45 \mu\text{W}$, $P_{\mu\text{W}} = -1$ dBm, $T_b = 150 \mu\text{s}$. Le diamètre du faisceau laser est de 0.5 mm. FWHM (b), signal (c) et C/FWHM (d) de la frange centrale en fonction du temps noir T . Dans (b), les données expérimentales et la dépendance en $1/(2T)$ sont montrées. Dans (c), les données expérimentales sont approximées par une fonction exponentielle décroissante, tracée en ligne pleine. Dans (d), C/FWHM est exprimé en 10^{-6} Hz^{-1} .

Le signal de la frange et le niveau continu diminuent avec l'augmentation de la valeur du temps noir car les atomes relaxent librement pendant une durée plus longue [166]. Dans la figure 2.31(b), nous observons que la largeur à mi-hauteur de la frange centrale est plus étroite que la largeur Ramsey attendue de $1/(2T)$, pour des valeurs de T plus petites que $300 \mu\text{s}$. Ce phénomène a déjà été observé dans [142]. La largeur Ramsey de $1/(2T)$ est observée seulement lorsque T est grand devant la durée de vie T_2 de la cohérence hyperfine [94], ce qui n'est pas forcément le cas ici. En approximant la courbe du signal de la frange en fonction du temps noir (figure 2.31(c)) par une fonction exponentielle décroissante, nous pouvons extraire la durée de vie de la cohérence CPT T_2 , estimée ici à $276 \pm 3 \mu\text{s}$. Dans la figure 2.31(d), on observe que le rapport C/FWHM est maximisé pour une valeur de T comprise entre $200 - 300 \mu\text{s}$, i.e. pour $T \sim T_2$, comme habituellement observé dans les horloges à cellule [142, 168].

2.4.2.4 Durée T_b des impulsions

La figure 2.32 rapporte l'impact de la durée d'impulsion T_b sur l'amplitude du signal de la frange centrale Ramsey-CPT. Ces mesures ont été réalisées pour deux valeurs différentes de puissance laser et pour un temps noir $T = 260 \mu\text{s}$. Dans cette figure, les données issues d'un modèle numérique théorique sont aussi rapportées pour comparaison. Ce dernier considère le formalisme de la matrice densité et prend en compte 25 niveaux Zeeman de l'atome de césium (deux états fondamentaux et l'état excité $|F = 4'\rangle$) interagissant avec une lumière polarisée circulairement. Le modèle inclut le déplacement Zeeman causé par l'application d'un champ magnétique ($B = 10 \mu\text{T}$) ainsi que les processus de relaxation des cohérences optiques. Le modèle considère un état initial où tous les niveaux des états fondamentaux sont équitablement peuplés. La résolution numérique de l'équation dynamique de la matrice densité permet ainsi de prédire l'évolution dans le temps de la population dans chacun des sous-niveaux Zeeman. Pour $P_l = 45 \mu\text{W}$, l'accord entre les données expérimentales et le modèle théorique est correct. On observe que l'amplitude du signal de résonance devient constante à partir d'un temps d'impulsion supérieur ou égal au temps de pompage dans l'état CPT, comportement aussi observé avec de grosses cellules dans [43, 175].

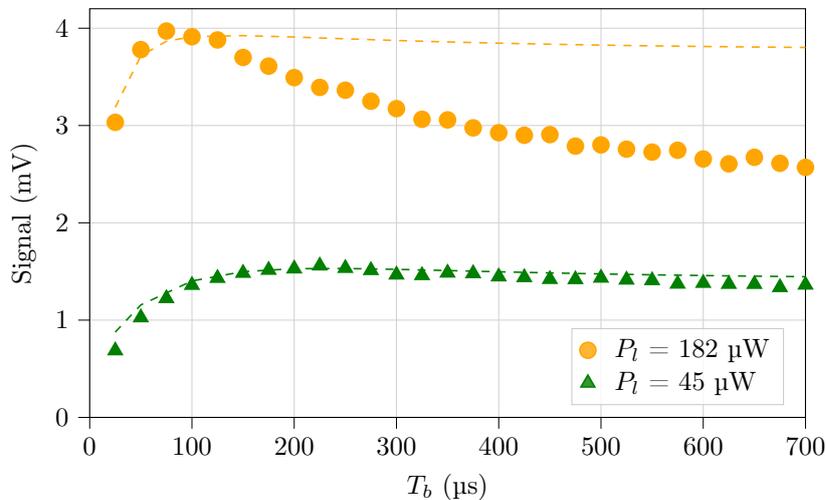


FIGURE 2.32 – Amplitude de la frange centrale Ramsey-CPT en fonction du temps d'impulsion T_b pour deux valeurs de puissance laser. Les lignes en pointillées sont issues d'un modèle théorique (voir texte).

À plus haute puissance laser ($P_l = 182 \mu\text{W}$), la différence entre le modèle et l'expérience peut être expliquée par le fait que le modèle ne considère qu'un champ optique purement bi-fréquence avec un seul état excité. En réalité, l'expérience est réalisée dans une cellule avec une pression non-négligeable de gaz tampon, menant à un mélange significatif des états excités. De plus, le spectre en sortie de la diode laser VCSEL est composé de multiples bandes latérales optiques, non considérées dans le modèle. Les données expérimentales atteignent un maximum vers $T_b = 100 \mu\text{s}$ avant de décroître pour les plus grandes valeurs de temps d'impulsion. Pour les faibles valeurs de T_b , typiquement plus petites que celles nécessaires pour pomper les atomes dans l'état noir, l'augmentation du signal observée est suspectée d'être induite par le fait que la résonance détectée est en fait le résultat de la superposition de plusieurs transitions hyperfines Zeeman, incluant la transition d'horloge 0-0 mais aussi des transitions micro-ondes voisines. Ce phénomène peut possiblement être amplifié par de multiples paramètres expérimentaux, tels que l'utilisation d'une trop grande puissance laser contribuant à un

élargissement lumineux et induisant un possible recouvrement des résonances, d'un faible champ magnétique qui réduit l'espacement fréquentiel entre les transitions ou encore d'une grande pression de gaz tampon pouvant mélanger les états excités entre eux.

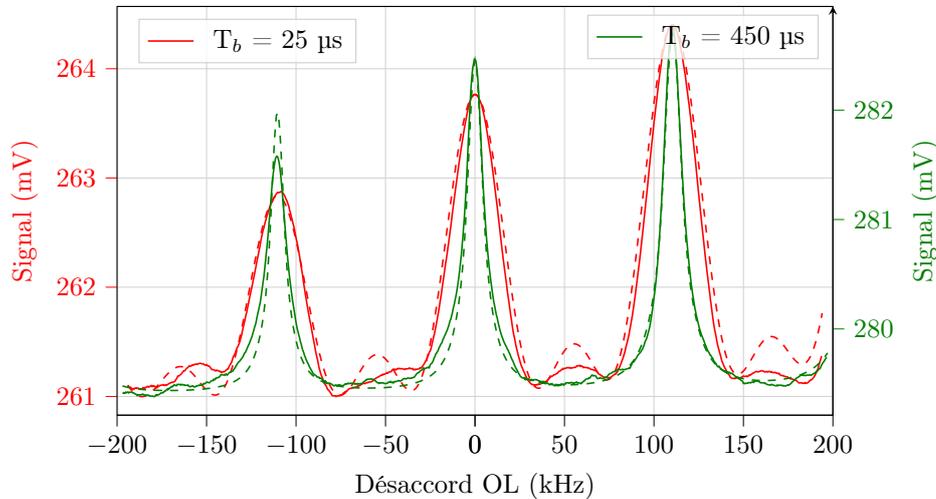


FIGURE 2.33 – Spectres Zeeman (transition 0-0 au centre et transitions voisines à droite et gauche) détectés pour deux valeurs du temps d'impulsion T_b . Les lignes en pointillés sont issues du modèle décrit précédemment. Les deux spectres sont tracés sur des échelles en ordonnée différentes par souci de clarté.

Afin d'illustrer ce phénomène, la figure 2.33 montre les spectres Zeeman de résonances CPT (seulement trois transitions) obtenus pour un temps d'impulsion court ($T_b = 25 \mu\text{s}$) et un long ($T_b = 450 \mu\text{s}$). Dans le premier cas, les résonances sont élargies et tendent à se superposer entre elles. De plus, on note la présence de légères bosses sur le fond des résonances, possiblement causées pour des oscillations résiduelles de Rabi d'atomes qui n'ont pas encore atteint l'état CPT et par le mélange des transitions. Dans le deuxième cas ($T_b = 450 \mu\text{s}$), les transitions sont plus étroites, bien séparées tandis que les oscillations sur le fond du spectre ont disparu. Ces observations sont en accord correct avec les spectres de résonances prédits par le modèle de la matrice densité et tracés en lignes pointillés sur la figure.

2.4.3 Déplacements de fréquence

Nous rapportons dans cette section des mesures de déplacements lumineux en mode Ramsey-CPT. Nous avons effectué des mesures de sensibilité de la fréquence en fonction de la puissance laser, puissance micro-onde, du temps d'impulsion, du temps noir et enfin de la température de cellule. La stabilité moyen/long-terme de l'horloge CPT peut alors être optimisée en choisissant des valeurs de paramètres réduisant ces sensibilités.

2.4.3.1 Puissance laser

La figure 2.34 rapporte l'évolution de la fréquence d'horloge en fonction de la puissance laser totale incidente dans la cellule, pour trois valeurs différentes du temps d'évolution libre T . Une tendance non-linéaire des déplacements lumineux est clairement observée, avec des sensibilités plus élevées pour les puissances inférieures à $60 \mu\text{W}$. Vers une puissance de $45 \mu\text{W}$, pour laquelle la stabilité court-terme de l'horloge est optimisée dans le cas Ramsey-CPT (voir figure 2.28), les coefficients de déplacements lumineux sont de 1.5, 0.75 et $0.50 \text{ Hz } \mu\text{W}^{-1}$ pour des valeurs de T de 150, 300 et $400 \mu\text{s}$, respectivement.

Pour comparaison, une mesure des déplacements lumineux en régime continu, dans des conditions expérimentales équivalentes (température de cellule, puissance micro-onde, même état excité), présente à faible puissance laser une sensibilité aux déplacements lumineux de $20.2 \text{ Hz } \mu\text{W}^{-1}$, i.e. un facteur 14 et 40.3 plus grand que dans le cas impulsif, pour des temps noirs de 150 et $450 \mu\text{s}$, respectivement.

Cependant, il est important de noter que lorsque l'horloge fonctionne en régime continu, la stabilité court-terme de l'horloge est optimisée pour une puissance laser d'environ $12 \mu\text{W}$ (voir figure 2.28). Dans ce cas, les fluctuations de puissance laser typiques sont $45/12 = 3.75$ fois plus petites qu'en mode Ramsey. Ainsi, pour $T = 450 \mu\text{s}$, un facteur de réduction général de la sensibilité à la puissance laser d'environ $40.3/3.75 \sim 10.7$ est attendu avec la séquence Ramsey-CPT. Ce dernier est réduit à 7.1 et 3.7 pour des valeurs de T de 300 et $150 \mu\text{s}$, respectivement.

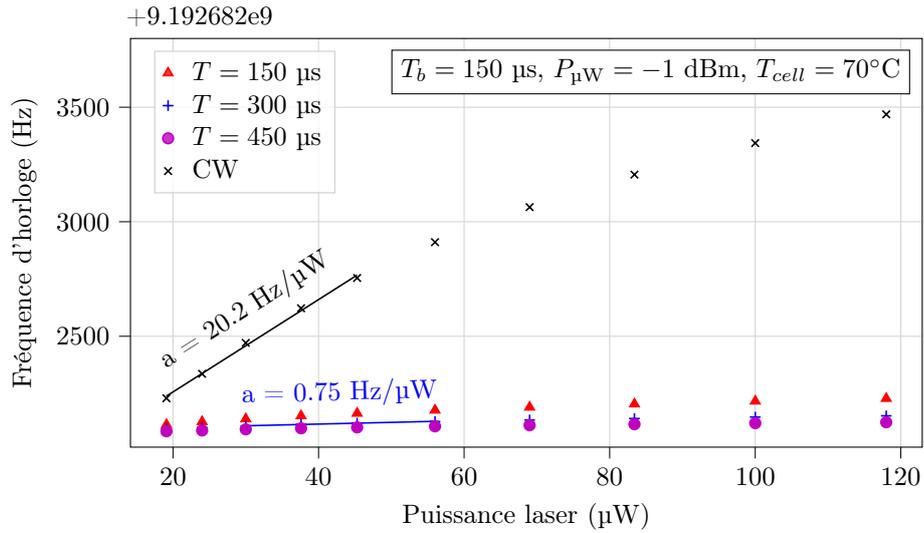


FIGURE 2.34 – Fréquence d'horloge en fonction de la puissance laser, avec l'interrogation Ramsey-CPT, pour trois valeurs différentes du temps noir T (150, 300 et 450 μs). Les paramètres expérimentaux sont : $T_b = 150 \mu\text{s}$, $P_{\mu\text{W}} = -1 \text{ dBm}$, $T_{\text{cell}} = 70 \text{ }^\circ\text{C}$. Une mesure réalisée en régime continu, pour une même température de cellule et puissance micro-onde, est montrée pour comparaison.

2.4.3.2 Temps d'impulsion T_b

Nous avons également étudié expérimentalement l'impact de la durée d'impulsion T_b sur la fréquence d'horloge. Les résultats sont présentés figure 2.35. Comme précédemment, la fréquence d'horloge est asservie continuellement pour ces mesures. Des sauts sur la puissance laser sont successivement appliqués et la fréquence d'horloge en régime permanent est enregistrée durant quelques minutes pour chaque valeur de puissance.

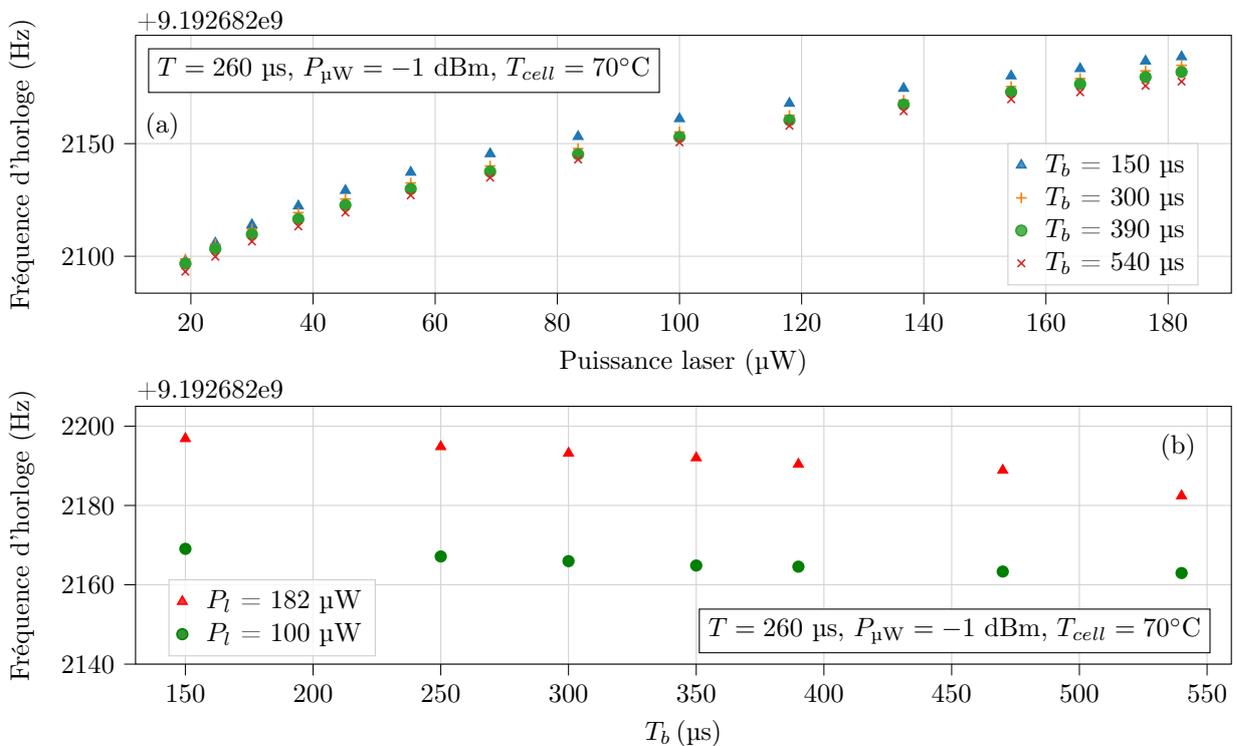


FIGURE 2.35 – (a) Fréquence d'horloge en fonction de la puissance laser, avec l'interrogation Ramsey-CPT, pour différentes valeurs du temps d'impulsion T_b . Les paramètres expérimentaux sont $P_{\mu\text{W}} = -1 \text{ dBm}$, $T_{\text{cell}} = 70 \text{ }^\circ\text{C}$ et $T = 260 \mu\text{s}$. (b) Fréquence d'horloge en fonction de T_b pour deux valeurs différentes de puissance laser (182 et 100 μW).

En spectroscopie Ramsey-CPT, le déplacement lumineux est lié au taux de pompage dans l'état noir. Des études théoriques prédisent une réduction rapide des déplacements lumineux avec l'augmentation des durées des impulsions de pompage T_b [94, 127]. Cette prédiction est principalement attribuée au fait que des impulsions de pompage plus longues aident à créer des états noirs complets. Ce comportement a été observé et confirmé dans une horloge CPT à atomes froids [144]. Ici, bien que de manière plus discrète, on distingue aussi figure 2.35(b) une faible réduction de la valeur absolue des déplacements lumineux pour la plus grande valeur de T_b . En comparaison avec [144], on note que nos tests sont réalisés dans une cellule à vapeur de Cs remplie de gaz tampon, opérant à haute densité alcaline et pression de gaz tampon. La présence de gaz tampon implique un élargissement significatif des transitions optiques et un mélange non-négligeable des états excités. Une étude théorique et expérimentale dédiée serait nécessaire pour analyser et comprendre plus en détail les résultats obtenus dans nos conditions. Cette étude n'est pas traitée dans le cadre de ce manuscrit.

Concernant la stabilité d'horloge, on note figure 2.35(a) que le coefficient de déplacement lumineux est comparable pour toutes les valeurs de T_b .

2.4.3.3 Puissance micro-onde

On montre figure 2.36 la fréquence d'horloge en fonction de la puissance laser, pour différentes valeurs de la puissance micro-onde, en mode Ramsey-CPT. Les mesures sont réalisées pour une durée d'impulsion $T_b = 150 \mu\text{s}$ et $T = 260 \mu\text{s}$.

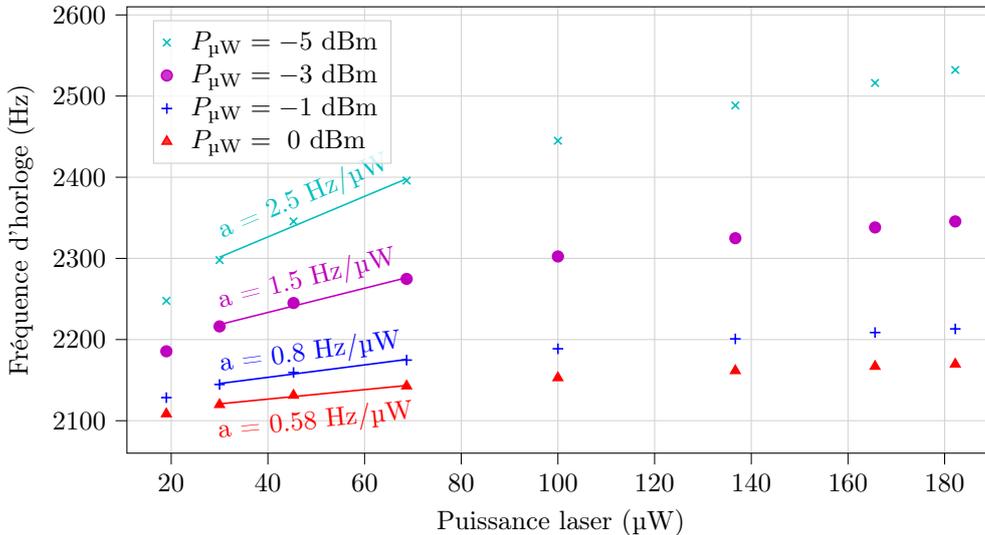


FIGURE 2.36 – Fréquence d'horloge en fonction de la puissance laser, avec l'interrogation Ramsey-CPT, pour différentes valeurs de puissance micro-onde, avec $T_b = 150 \mu\text{s}$, $T = 260 \mu\text{s}$ et $T_{\text{cell}} = 70 \text{ }^\circ\text{C}$.

On observe que le coefficient de déplacement lumineux a est réduit en augmentant la puissance micro-onde. On souligne ici qu'aucune des puissances micro-ondes appliquées ne permet d'annuler la sensibilité à la puissance laser en régime Ramsey-CPT. Ce comportement est observé sur des mesures similaires en régime continu et pourrait être dû au fait que ces tests sont réalisés avec une cellule contenant une pression de néon non négligeable ($P = 90.7 \text{ Torr}$) [149]. Dans le mode continu, un coefficient de déplacement lumineux résiduel de $+6.4 \text{ Hz } \mu\text{W}^{-1}$ fut mesuré à $P_{\mu\text{W}} = 0 \text{ dBm}$. Cette valeur est 11 fois plus grande que celle obtenue dans le cas pulsé avec $P_{\mu\text{W}} = 0 \text{ dBm}$.

Une manière alternative et plus directe pour illustrer la dépendance de la fréquence d'horloge aux variations de la puissance micro-onde est donnée dans la figure 2.37. Dans cette expérience, la sensibilité de la fréquence d'horloge est augmentée de -24 Hz dB^{-1} pour une puissance laser de $24 \mu\text{W}$ à -79.2 Hz dB^{-1} à $P_l = 182 \mu\text{W}$. Pour comparaison, une mesure réalisée en régime continu pour une puissance laser de $12 \mu\text{W}$ (proche de la puissance optimisant la stabilité court-terme dans le cas continu) mène à une sensibilité à la puissance micro-onde d'environ -126 Hz dB^{-1} .

Ce résultat démontre ainsi que la spectroscopie Ramsey-CPT conduit à une réduction de la sensibilité de la fréquence d'horloge aux variations de la puissance micro-onde, malgré l'utilisation de temps noirs courts de quelques centaines de microsecondes.

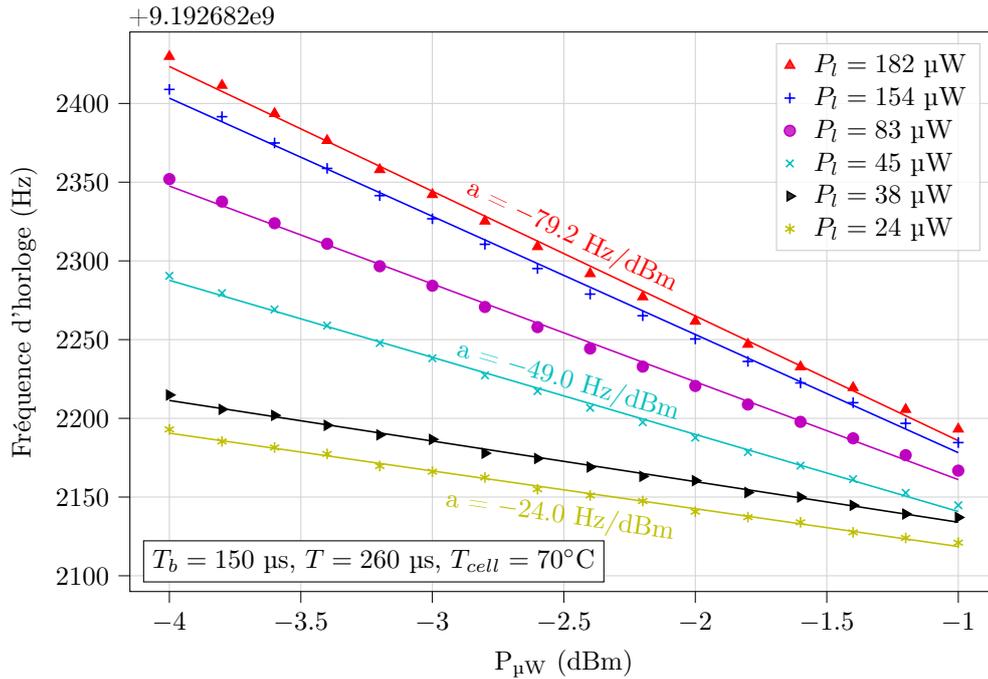


FIGURE 2.37 – Fréquence d’horloge en fonction de la puissance micro-onde, avec l’interrogation Ramsey-CPT, pour différentes valeurs de puissance laser, avec $T_b = 150 \mu\text{s}$, $T = 260 \mu\text{s}$ et $T_{cell} = 70^\circ\text{C}$.

2.4.3.4 Température de cellule

On rapporte dans la figure 2.38 une mesure de la fréquence d’horloge en mode continu en fonction de la température de cellule. Pour réaliser cette mesure, la fréquence d’horloge a été mesurée à chaque palier de température pour quatre puissances lasers différentes afin d’extraire par extrapolation la fréquence d’horloge à puissance nulle.

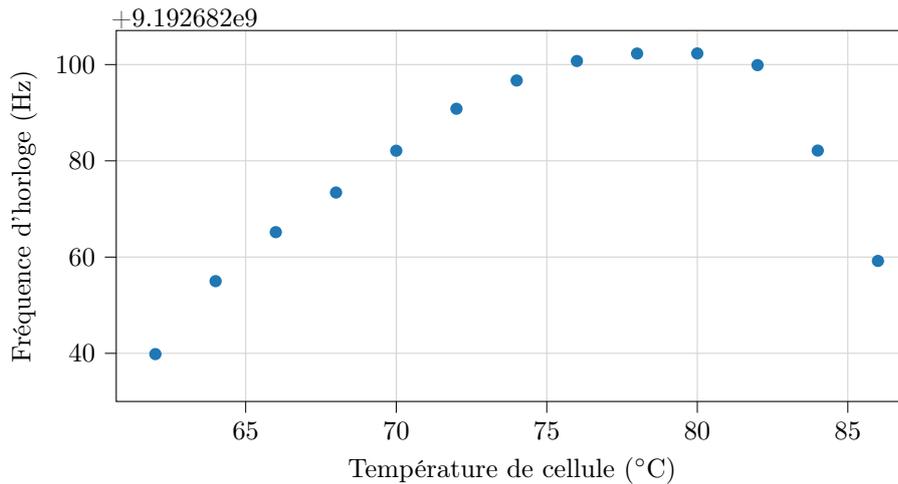


FIGURE 2.38 – Extrapolation à puissance laser nulle de la fréquence d’horloge en fonction de la température de cellule en régime continu. La micro-cellule est remplie avec du néon à une pression $P = 90.7 \text{ Torr}$. La puissance micro-onde est fixée à -1 dBm .

Dans [53], la température d’inversion pour une cellule Cs-Ne, extraite à partir de mesures de déplacement collisionnel de la fréquence d’horloge sur une cellule en verre soufflé de dimensions centimétriques, a été estimée à $79 \pm 3^\circ\text{C}$. La figure 2.38 confirme l’existence d’un point d’inversion dans cette gamme de température.

2.4.4 Stabilité de fréquence en régime Ramsey-CPT

Dans cette dernière section, des mesures de stabilité de fréquence sont réalisées, dans les deux modes Ramsey-CPT et continu. Pour ces mesures, le diamètre du faisceau a été augmenté à environ 1 mm. Dans les deux cas, l'intensité laser a été ajustée avant de démarrer l'horloge pour être comparable à celle obtenue dans la figure 2.28(b) pour optimiser la stabilité court-terme (régime continu : $55 \mu\text{W mm}^{-2}$, pour $61 \mu\text{W mm}^{-2}$ dans la figure 2.28(b), Ramsey-CPT : $196 \mu\text{W mm}^{-2}$, pour $229 \mu\text{W mm}^{-2}$ dans la figure 2.28(b)).

Durant ces mesures, certains paramètres expérimentaux tels que la puissance laser en entrée de cellule ou la puissance micro-onde n'ont pas été enregistrés en permanence, ne permettant pas d'établir un budget de stabilité moyen-terme de l'horloge. Cependant, pour tous les tests mentionnés ci-dessous, nous confirmons que l'horloge a fonctionné dans des conditions environnementales comparables. La puissance micro-onde est de -1 dBm et la température de cellule de $70 \text{ }^\circ\text{C}$ dans tous les tests.

La figure 2.39 montre la déviation d'Allan de la fréquence d'horloge, utilisant l'interrogation Ramsey-CPT, pour deux valeurs différentes de temps noir T (150 ou 450 μs). Une mesure réalisée en régime continu est montrée pour comparaison.

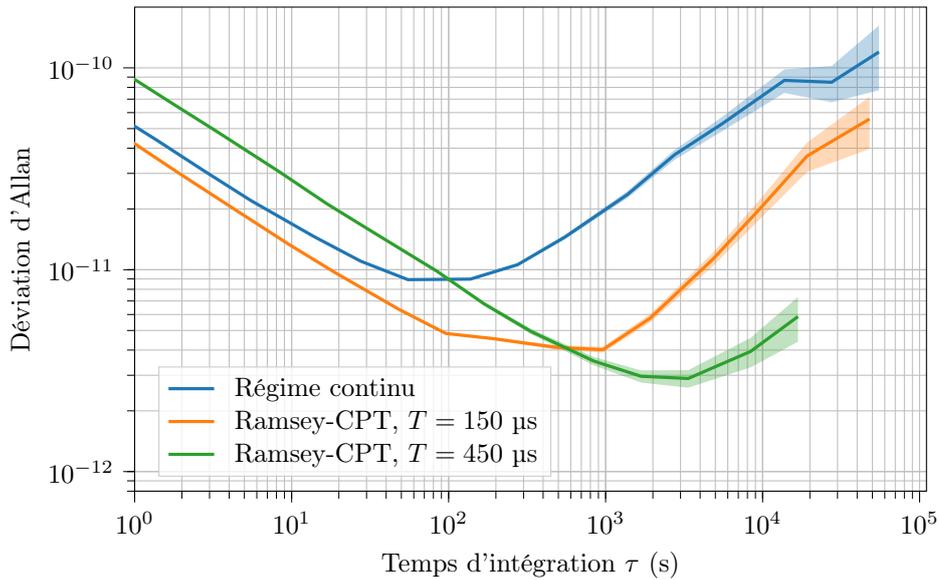


FIGURE 2.39 – Déviation d'Allan de la fréquence d'horloge avec la séquence Ramsey-CPT, pour deux valeurs de temps noir T (150 et 450 μs). Les paramètres expérimentaux sont : $P_{\mu\text{W}} = -1 \text{ dBm}$, $T_{\text{cell}} = 70 \text{ }^\circ\text{C}$, $\tau_d = 10 \mu\text{s}$, $\tau_D = 10 \mu\text{s}$. Une mesure obtenue en régime continu sur le même banc expérimental avec $P_{\mu\text{W}} = -1 \text{ dBm}$ et $T_{\text{cell}} = 70 \text{ }^\circ\text{C}$ est donnée pour comparaison.

Dans le régime continu, la stabilité d'horloge est de 5.2×10^{-11} à 1 s et 9×10^{-12} à 100 s. Après 100 s, la déviation d'Allan de l'horloge est dégradée pour atteindre 7×10^{-11} à 10^4 s. Ces performances à 10^4 s sont du même ordre de grandeur que celles rapportées dans des études précédentes lorsqu'aucune technique de réduction des déplacements lumineux n'est appliquée [126].

Dans le cas Ramsey-CPT, pour $T = 150 \mu\text{s}$, la déviation d'Allan de l'horloge à 1 s est proche de celle obtenue dans le cas continu mais s'intègre mieux pour atteindre 4×10^{-12} à 10^3 s, avant de se dégrader à un niveau de 2×10^{-11} à 10^4 s. On note que le facteur d'amélioration ($\times 4$) de la stabilité d'horloge à 10^4 s dans ce cas, en comparaison au régime continu, est en accord avec le facteur général de réduction des déplacements lumineux de 3.7 mentionné dans la section 2.4.3.1 pour cette valeur de T . Pour $T = 450 \mu\text{s}$, la stabilité court-terme de l'horloge est dégradée vers $9 \times 10^{-11} \tau^{-1/2}$. Une telle dégradation, observée avec $T = 450 \mu\text{s}$ en comparaison avec $T = 150 \mu\text{s}$, était attendue par rapport à la réduction du signal (voir figure 2.28(c)), due à une augmentation du temps de relaxation de la cohérence CPT. Néanmoins, due à une augmentation de la valeur de T , une amélioration significative de la stabilité moyen-terme de l'horloge, atteignant 4×10^{-12} à 10^4 s, est obtenue. Ici, le facteur d'amélioration (~ 20) de la stabilité d'horloge à 10^4 s en comparaison avec le régime continu, est environ deux fois plus grand que le facteur général de réduction des déplacements lumineux de 10.7 mesuré dans la section 2.28 pour cette valeur de T . Il est cependant important de noter que la mesure pour $T = 450 \mu\text{s}$ a été ici plus courte, contribuant possiblement à surestimer le bénéfice sur la déviation d'Allan.

Dans ce dernier cas, la stabilité d'horloge après 10^4 s demeure néanmoins toujours limitée par un autre processus. Au moment de cette étude, la cause de cette limitation était inconnue. Des mesures annexes ont

permis plus tard de mettre en cause et identifier un phénomène de perméation de gaz tampon à travers le verre de la cellule comme limitation à la stabilité long-terme de l'horloge. Une étude complémentaire a par la suite été menée afin de confirmer cette hypothèse et contrer cette limitation importante. Le lecteur est invité à se rendre à la section 3.2 du chapitre 3 afin d'obtenir plus de détails sur le phénomène de perméation de gaz à travers une membrane en verre et aux solutions mises en avant dans la littérature et dans mon travail de thèse pour réduire l'impact de ce verrou.

2.4.5 Conclusion sur l'interrogation Ramsey-CPT en micro-cellule

Nous avons investigué l'application de la spectroscopie Ramsey-CPT pour une horloge CPT à micro-cellule utilisant une diode laser VCSEL. L'influence des principaux paramètres expérimentaux sur les propriétés de la frange Ramsey-CPT a été investiguée pour l'optimisation de la stabilité court-terme de l'horloge et comparée avec des résultats obtenus en régime continu. L'impact de la puissance laser, la puissance micro-onde et le temps d'évolution libre dans le noir sur la stabilité de l'horloge a été étudié. Une réduction de la sensibilité de la fréquence d'horloge aux variations de puissance laser par un facteur d'environ 40 a été mesuré, comparé au cas standard en continu, avec un temps noir T de 450 μs . Nous avons mesuré que la dépendance de la fréquence d'horloge aux variations de puissance micro-onde est aussi réduite avec la spectroscopie Ramsey-CPT. Une légère réduction de la valeur absolue du déplacement lumineux avec l'augmentation de la longueur des impulsions a été observée. Nous avons observé que la valeur de T_b ne change pas significativement le coefficient de déplacement lumineux. Pour un temps noir T de 150 μs , la stabilité court-terme de l'horloge, à un niveau de $5.2 \times 10^{-11} \tau^{-1/2}$, est proche de celle obtenue en régime continu. Pour $T = 450 \mu\text{s}$, l'horloge montre une stabilité court-terme dégradée à un niveau de 9×10^{-11} à 1 s mais améliorée pour $\tau > 200$ s, atteignant un niveau de 4×10^{-12} à 10^4 s, au lieu de 8×10^{-11} en régime continu et 2×10^{-11} avec $T = 150 \mu\text{s}$. Ces résultats, publiés dans [24], démontrent que l'utilisation de la spectroscopie Ramsey-CPT peut être une solution attractive pour le développement d'horloges atomiques CPT à micro-cellules avec une stabilité long-terme améliorée.

2.5 Séquence d'interrogation Symmetric Auto-Balanced-Ramsey

Nous avons montré que la spectroscopie Ramsey-CPT permet une réduction des phénomènes de déplacements lumineux dans une horloge à cellule microfabriquée. Néanmoins, cette approche souffre d'une sensibilité résiduelle non-négligeable aux déplacements lumineux (voir section 2.4.3). En réponse, nous démontrons dans ce sous-chapitre l'implémentation sur une horloge CPT à micro-cellule d'un protocole d'interrogation avancé nommé Symmetric-Auto-Balanced-Ramsey (SABR) [25] pour une réduction accrue des déplacements lumineux.

Nous rappelons dans un premier temps les fondements de cette méthode. Nous démontrons ensuite l'efficacité de cette séquence sur une horloge CPT à micro-cellule. Une réduction par plus de deux ordres de grandeur de la sensibilité de la fréquence d'horloge aux variations de puissance laser, de puissance micro-onde et de fréquence laser est montrée. Des résultats de stabilité d'horloge obtenus avec cette méthode sont ensuite rapportés et comparés aux régimes Ramsey-CPT et continu.

2.5.1 Réduction des déplacements lumineux par séquences composites avancées : un bref historique

La spectroscopie Ramsey-CPT souffre d'une sensibilité résiduelle non négligeable aux déplacements lumineux induits lors des impulsions optiques. En réponse, de nombreux protocoles d'interrogation avancés ont été proposés dans la littérature afin de réduire cette contribution.

En 2010, Taichenachev *et al.* modifiaient la spectroscopie Ramsey par l'application d'un saut de fréquence, égale au déplacement lumineux, au champ d'interrogation durant les impulsions lumineuses Ramsey afin de compenser les déplacements de fréquence induits par le champ optique même [176]. L'amélioration de cette méthode conduisait quelques mois plus tard à la spectroscopie dite Hyper-Ramsey [177], prédisant une réduction des déplacements lumineux de 2 à 4 ordres de grandeur par comparaison à la spectroscopie Ramsey, et confirmée plus tard expérimentalement sur une horloge optique à ion Yb^+ [178]. Des variantes de cette approche, nommées Hyper-Ramsey modifié [179] ou Hyper-Ramsey généralisé [180], furent par la suite rapportées. En 2016, V. Yudin *et al.*, inspiré de travaux précédents visant à annuler le déplacement de fréquence dû au rayonnement du corps noir [181], proposaient un protocole d'interrogation dans lequel le signal d'erreur est généré à partir de séquences avec des temps noirs différents et permettant de réduire les déplacements de fréquence dus au champ laser, même en présence de la décohérence liée à la largeur spectrale du laser [182]. Cette approche fut généralisée par Zanon *et al.* dans [183] avec la prise en compte additionnelle des effets de décohérence et de dissipation de la relaxation.

En 2017, inspirés de [182, 183], un groupe de la PTB en Allemagne proposa un nouveau protocole d'interrogation nommé Auto-Balanced Ramsey (ABR) [153]. Cette technique repose sur la création de deux signaux d'erreur construits à partir de deux séquences de Ramsey consécutives avec des temps noirs différents. Le premier signal d'erreur permet de corriger la fréquence de l'oscillateur local, tandis que le second permet d'appliquer une correction sur la phase de l'oscillateur local, appliquée durant le temps noir, afin de compenser le déphasage induit lors de l'interaction entre les atomes et le champ optique. Une démonstration expérimentale de cette méthode a d'abord été effectuée sur une horloge optique à ion, menant à une réduction drastique des déplacements lumineux [153]. La méthode ABR a été ensuite généralisée (GABR : Generalized Auto-Balanced Ramsey) dans [184].

En 2018, Abdel Hafiz *et al.* rapportaient à FEMTO-ST la première démonstration expérimentale de l'application d'une séquence ABR adaptée à une horloge CPT à cellule [185]. Quelques mois plus tard, ce même groupe proposait une séquence améliorée symétrique, dite Symmetric Auto-Balanced Ramsey [25] (SABR), permettant de tacler un effet de mémoire des atomes, spécifique aux horloges à cellule, et d'améliorer par ce biais par un ordre de grandeur supplémentaire l'immunité de la fréquence d'horloge aux déplacements lumineux. Cet effet de mémoire des atomes est lié au fait que le taux de répétition des séquences Ramsey-CPT successives dans une horloge à cellule est plus rapide que le taux de relaxation de la cohérence CPT. En d'autres termes, le temps de relaxation T_2 de la cohérence CPT, de l'ordre de quelques ms dans une cellule avec gaz tampon de dimensions centimétriques, est trop court pour permettre une réinitialisation complète du système atomique à chaque nouveau cycle Ramsey. Ainsi, la valeur du signal atomique détecté à une impulsion CPT donnée ne dépend pas uniquement de la durée du temps noir juste écoulé mais également des temps noirs précédents. En d'autres termes, les atomes fournissent une réponse significativement différente, selon quel côté de la frange est sondé avant le changement de temps noir, résultant en un offset sur l'estimation du déplacement lumineux et mitigeant alors l'efficacité du protocole. Pour tacler ce problème, la séquence SABR consiste alors à doubler la séquence ABR de base. La subtilité consiste alors à scanner d'abord la gauche puis la droite de la frange

centrale dans la première sous-séquence tandis que l'inverse est réalisé au cours de la seconde sous-séquence. Cette interrogation symétrique permet la génération de deux offsets successifs d'amplitude égale mais de signes opposés et s'annulant l'un et l'autre. Dans [25], une réduction de la dépendance de la fréquence d'horloge aux variations de puissance laser par un facteur 800 était observé en mode SABR, comparativement à une interrogation continue. Cette approche permet alors la démonstration d'une horloge CPT de haute performance montrant une stabilité entrant dans la gamme des 10^{-15} à 10^4 s. Suite à ces travaux, d'autres études ont démontré des variantes à l'interrogation Auto-Balanced Ramsey [139, 159]. Nous encourageons aussi la lecture du travail de revue de Zanon *et al.* [186].

Ayant démontré tout son intérêt dans des horloges à cellules compactes, l'efficacité de l'approche SABR et sa possible application au sein d'une micro-horloge demeurent au départ de mon travail de thèse difficilement prédictible. En effet, la réduction de la durée de la séquence lumineuse, imposée par une réduction de la durée de vie de la cohérence CPT en micro-cellule, soulevait la question d'une possible "amplification" de l'effet mémoire des atomes. À ce verrou s'ajoutait en micro-cellule une possible dégradation du rapport signal à bruit de la résonance atomique et donc une perte de résolution dans l'extraction et l'estimation du déplacement lumineux, intrinsèquement dépendant de la différence de durée entre le temps noir long et le temps noir court. Ainsi, ce type de protocole n'avait jamais été démontré au sein d'une horloge à microcellule et faire sa démonstration constituait donc un challenge de fort intérêt de mon travail de thèse.

2.5.2 Rappel bref des fondements de la spectroscopie Auto-Balanced Ramsey

Le point de départ de la méthode d'interrogation ABR est d'admettre que l'interaction entre les atomes et le champ d'interrogation durant les impulsions optiques perturbe les atomes et induit donc un déphasage φ_b de la phase atomique φ_{at} . Ainsi, dans une interrogation Ramsey conventionnelle, la phase de l'oscillateur local φ_{OL} est finalement asservie en réalité sur une phase atomique biaisée $\varphi_{at} + \varphi_b$ telle que :

$$\varphi_{OL} - (\varphi_{at} + \varphi_b) = 0 \quad (2.22)$$

En admettant qu'un biais est créé lors de l'interaction, il est alors évident que l'oscillateur local et les atomes battent à des rythmes légèrement différents pendant le temps noir T . Un déphasage, directement dépendant de la durée du temps noir, se crée alors entre l'oscillateur local et les atomes au cours de ce dernier.

L'objectif de base de l'ABR est alors de compenser le biais de phase φ_b induit lors de l'interaction atome-champ, quel que soit le temps d'évolution libre T , en appliquant une correction de phase φ_c au champ microonde et permettre ainsi l'asservissement de l'oscillateur local sur la fréquence réelle non déplacée des atomes.

Afin de quantifier la correction de phase φ_C à appliquer, l'idée est de moduler la durée du temps noir T et de produire deux séquences de Ramsey successives, de temps noir différents notés respectivement T_L (pour la séquence avec temps noir long) et T_S (pour la séquence avec temps noir court). Cette méthode conduit ainsi à résoudre le système tel que :

$$\begin{aligned} \varphi_{OL} + \varphi_C - (\varphi_{at} + \varphi_{bS}) &= 0 \\ \varphi_{OL} + \varphi_C - (\varphi_{at} + \varphi_{bL}) &= 0 \end{aligned} \quad (2.23)$$

avec φ_{bS} et φ_{bL} les biais de phase respectifs induits pour les séquences avec temps noir court et long. Ainsi, à l'issue du cycle de temps noir court, une correction $\varphi_C = \varphi_{at} + \varphi_{bS} - \varphi_{OL}$ est appliquée. En injectant l'expression de φ_C dans l'équation (2.23), on trouve :

$$\varphi_{bS} = \varphi_{bL} \quad (2.24)$$

Or, cette égalité n'est satisfaite qu'à condition que $\varphi_{bS} = \varphi_{bL} = 0$. Dans ce cas, le biais de phase induit lors des impulsions et donc les déplacements lumineux sont annulés.

2.5.3 Séquence SABR-CPT pour une horloge à microcellule

La séquence SABR-CPT utilisée dans cette étude sur notre horloge à micro-cellule est représentée sur la figure 2.40. La micro-cellule Cs-Ne est identique à celle utilisée précédemment ($P = 90.7$ Torr).

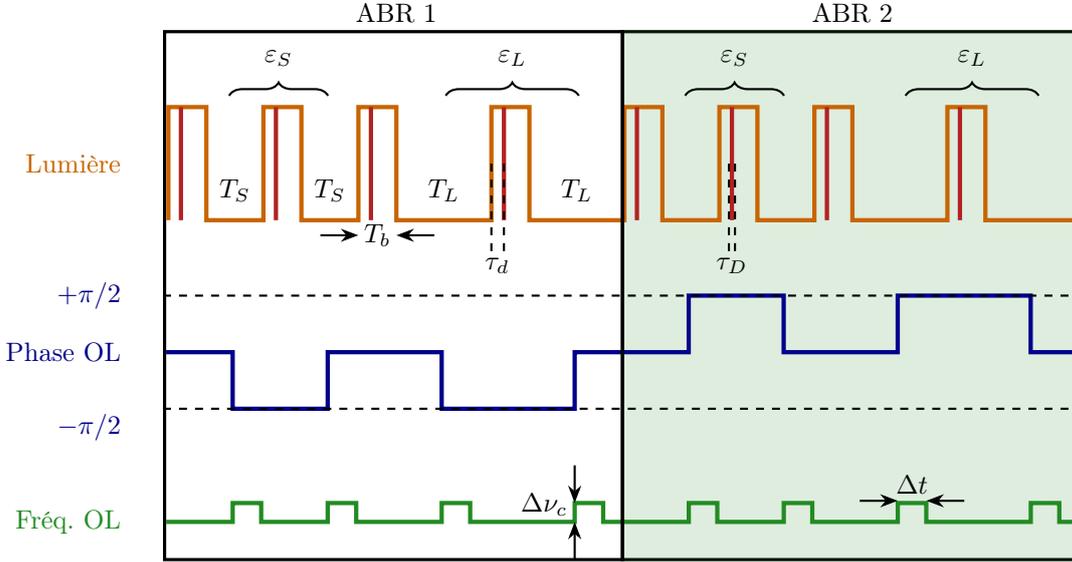


FIGURE 2.40 – Schéma simplifié de la séquence SABR, comprenant deux sous-séquences ABR 1 et ABR 2 symétriques. OL : oscillateur local, T_b : temps d'impulsion, T_S : temps noir court, T_L : temps noir long, τ_d : délai avant la détection, τ_D : temps de détection, $\Delta\nu_c$: saut de fréquence, Δt : durée du saut du fréquence précédent. ε_S et ε_L sont les signaux d'erreurs issus des séquences de Ramsey avec un temps noir court et long.

La méthode SABR se compose de deux séquences ABR consécutives (ABR 1 et ABR 2). Chaque séquence ABR consiste en quatre cycles Ramsey-CPT consécutifs avec une durée d'impulsion unique de longueur T_b . Les deux premiers cycles Ramsey-CPT utilisent un temps noir court T_S et les deux suivants utilisent un temps noir long T_L . Un saut de phase de $\pm\pi/2$ est appliqué sur le signal d'interrogation pendant les temps noirs en agissant sur la DDS1, afin de mesurer successivement les signaux transmis des côtés respectifs de la frange centrale. Cette démarche permet l'extraction de signaux d'erreurs ε_S (pour le pattern avec le temps noir court) et ε_L (pour le pattern avec le temps noir long). Les signaux d'erreur sont acquis avec la méthode précédemment détaillée dans la section 2.4.1. Dans la seconde séquence ABR (ABR 2), le pattern d'impulsions lumineuses est identique. Par contre, le pattern de modulation de phase de l'oscillateur local est le miroir symétrique de celui utilisé dans la première séquence ABR (ABR 1). La symétrisation de la séquence est d'une importance cruciale afin d'annuler l'effet mémoire des atomes et améliorer ainsi l'efficacité de la réjection des déplacements lumineux [25].

Deux signaux d'erreurs sont calculés de telle sorte que de l'information soit extraite à chaque impulsion pour chaque signal de correction, et empêchant ainsi l'impact négatif d'un effet d'aliasing sur la stabilité de fréquence court-terme de l'horloge [25]. Le premier signal d'erreur $\varepsilon_+ = \varepsilon_S + \varepsilon_L$ est utilisé pour corriger la fréquence de l'oscillateur local. Ces corrections sont directement appliquées en agissant sur la DDS1 durant les temps noirs. Le second signal d'erreur $\varepsilon_- = \varepsilon_S - \varepsilon_L$ est utilisé pour corriger la valeur du saut de phase additionnel, appliqué durant les temps noirs, permettant de compenser le biais de phase induit par le champ laser durant les impulsions précédentes. La résolution en phase de la DDS1 étant trop faible, ce saut de phase additionnel φ_c , appliqué en supplément des sauts de phase $\pm\pi/2$, est effectué dans notre cas par l'application d'un saut de fréquence d'amplitude $\Delta\nu_c$ sur une fenêtre de durée Δt ($\varphi_c = \Delta\nu_c\Delta t$).

Dans tous les tests rapportés dans cette étude, la durée des impulsions T_b est fixée à 183 μs . Cette valeur est choisie en lien avec l'étude sur l'optimisation du court-terme de l'horloge en fonctionnement Ramsey-CPT (voir section 2.4.2.4). Les temps noirs T_S et T_L sont fixés à 100 et 250 μs , respectivement. La durée du temps noir T_L est choisie afin d'être la plus grande possible mais ne doit pas être beaucoup plus élevée que la durée de vie de la cohérence CPT. Le signal atomique est échantillonné après un délai τ_d de 33 μs , prenant en compte le délai induit par un filtre anti-aliasing. Ce dernier, un filtre passe-bas à 25.6 kHz, moyenne la tension de la photodiode durant environ 20 μs . La durée de la fenêtre de détection τ_D est de 50 μs et un seul point est enregistré durant cette dernière.

2.5.4 Signaux d'erreur

La figure 2.41 montre les signaux d'erreurs ε_S , ε_L , ε_+ et ε_- , extraits de la séquence SABR réalisée avec la micro-cellule de Cs-Ne.

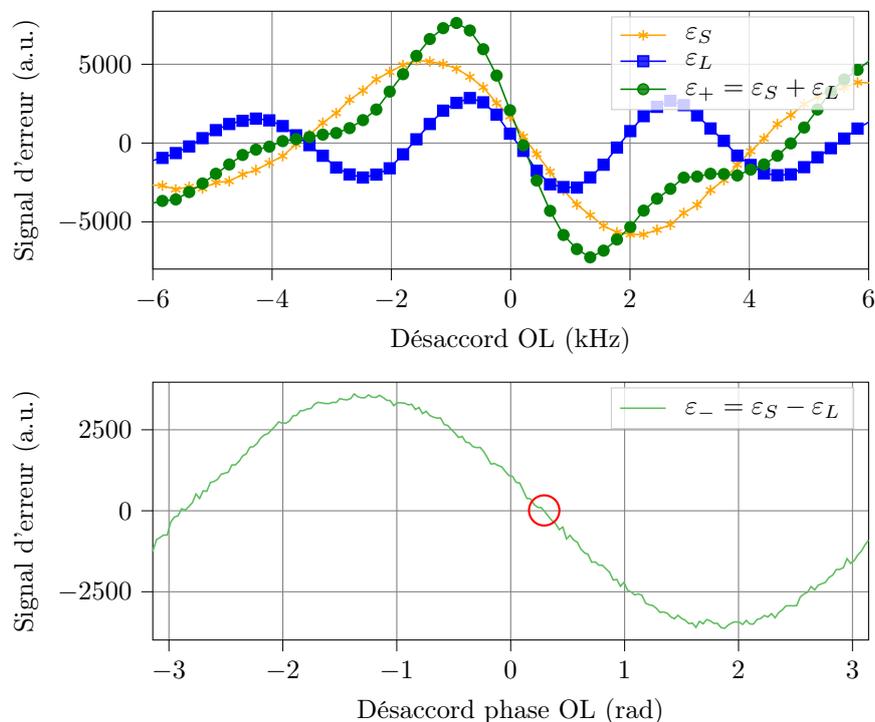


FIGURE 2.41 – Signaux d'erreurs extraits de la séquence SABR. (a) : Signaux d'erreurs ε_S , ε_L et ε_+ en fonction du désaccord de fréquence de l'oscillateur local (autour de 9192682200 Hz). (b) : Signal d'erreur ε_- en fonction du saut de phase φ_c durant le temps noir.

On observe que le signal d'erreur initial ε_S , extrait de la séquence avec le temps noir le plus court T_S , est plus grand en amplitude et plus large que le signal d'erreur ε_L obtenu pour la séquence avec le temps noir long T_L . Cette observation est en accord avec l'étude de la partie 2.4.2.3 montrant qu'un temps noir plus court augmente l'amplitude et la largeur de la résonance. Les signaux d'erreurs ε_S et ε_L ne croisent clairement pas l'axe des abscisses au même point. La valeur du déplacement lumineux change en effet avec la valeur du temps noir T . Ainsi, comme modélisé par [127], le signal d'erreur pour le temps court croise plus tard l'axe des abscisses que pour le temps long. Le déplacement de fréquence est augmenté avec un temps noir plus court.

Le signal d'erreur $\varepsilon_+ = \varepsilon_S + \varepsilon_L$ bénéficie d'une amplitude plus grande que ε_S et ε_L . Ce signal d'erreur est utilisé pour la stabilisation de la fréquence de l'oscillateur local. Le signal d'erreur $\varepsilon_- = \varepsilon_S - \varepsilon_L$, tracé sur la figure 2.41(b) en fonction du saut de phase φ_c appliqué durant le temps noir, montre en configuration de boucle ouverte un point de croisement en zéro à une valeur de φ_c non nulle (~ 0.3 rad). Ce décalage est l'image du déplacement lumineux subi par les atomes. En boucle fermée, ce signal est stabilisé à zéro.

2.5.5 Déplacement lumineux en mode SABR-CPT

La figure 2.42 montre la dépendance de la fréquence d'horloge aux variations de puissance laser (a), puissance micro-onde (b) et fréquence laser (c), en régime continu, Ramsey-CPT, SABR-CPT et une séquence ABR non symétrique. Dans le cas Ramsey-CPT, le coefficient de déplacement lumineux est de $0.79 \text{ Hz } \mu\text{W}^{-1}$. On note que l'on retrouve bien la sensibilité mesurée dans le cas de la séquence Ramsey-CPT de la section 2.4.3.1. Dans le cas SABR, la sensibilité est réduite par un facteur 26 au niveau de $0.03 \text{ Hz } \mu\text{W}^{-1}$. Ce coefficient est 470 fois plus petit que celui mesuré avec le schéma continu standard ($14 \text{ Hz } \mu\text{W}^{-1}$). Nous avons aussi réalisé la même mesure quand la séquence d'horloge SABR est réduite à la première partie (ABR 1). Dans le cas non-symétrique, l'effet de mémoire atomique est responsable d'un décalage d'horloge de plus de 250 Hz. Sans symétrie, le protocole ABR ne présente ainsi pas de réel avantage et engendre même une légère augmentation de la sensibilité, en comparaison au régime Ramsey-CPT. Ce résultat atteste que l'effet mémoire est important en micro-cellule et souligne l'importance de symétriser la séquence.

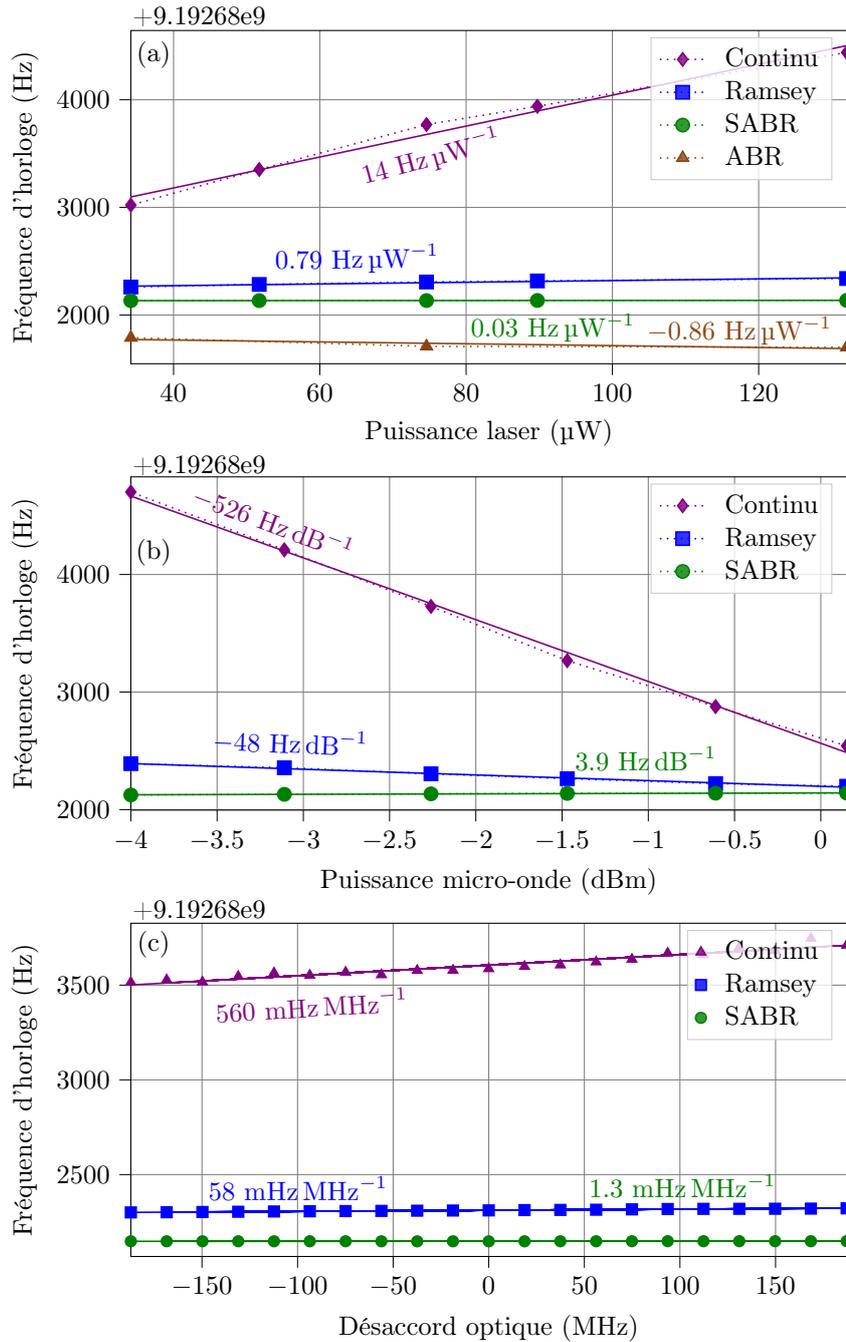


FIGURE 2.42 – Fréquence d'horloge en fonction (a) de la fréquence laser, (b) de la puissance micro-onde ou (c) de la fréquence laser, en régime continu, Ramsey-CPT et SABR-CPT. Les données expérimentales sont approximées avec des fonctions linéaires, en courbes pleines, desquelles sont extraites les coefficients de déplacements lumineux. Sur (a), une mesure en mode ABR (non symétrique) est aussi rapportée.

Les variations de la puissance micro-onde peuvent aussi induire des déplacements de la fréquence d'horloge. Nous avons mesuré cette sensibilité avec la séquence SABR-CPT. Les résultats correspondants sont affichés sur la figure 2.42(b). Avec la séquence SABR-CPT, une sensibilité de $+3.9 \text{ Hz dB}^{-1}$ est mesurée, à comparer avec les pentes de -48 Hz dB^{-1} et -526 Hz dB^{-1} obtenues dans les cas Ramsey-CPT et continu.

La figure 2.42(c) rapporte une mesure additionnelle de sensibilité à la fréquence laser. Le calibrage de la fréquence laser a été réalisé en utilisant les profils d'absorption détectés en sortie de cellule. Une nouvelle fois, nous observons une réduction significative du coefficient de déplacement lumineux. Ce dernier, mesuré à 58 mHz MHz^{-1} en régime Ramsey-CPT et 560 mHz MHz^{-1} dans le cas continu, est réduit à 1.3 mHz MHz^{-1} avec la séquence SABR-CPT.

Ces résultats démontrent l'efficacité de la méthode SABR pour réduire les déplacements lumineux d'une horloge CPT à micro-cellule. Ces résultats ont fait l'objet d'une publication dans Applied Physics Letters [26].

2.5.6 Stabilité de fréquence avec l'interrogation SABR-CPT

Des mesures de stabilité de fréquence de l'horloge CPT à micro-cellule ont été réalisées avec les séquences Ramsey-CPT et SABR-CPT. Ces tests ont été réalisés sur le même banc expérimental, avec des conditions expérimentales quasi-identiques. La puissance laser totale en entrée de cellule est d'environ 72 μW . Les déviations d'Allan sont présentées sur la figure 2.43.

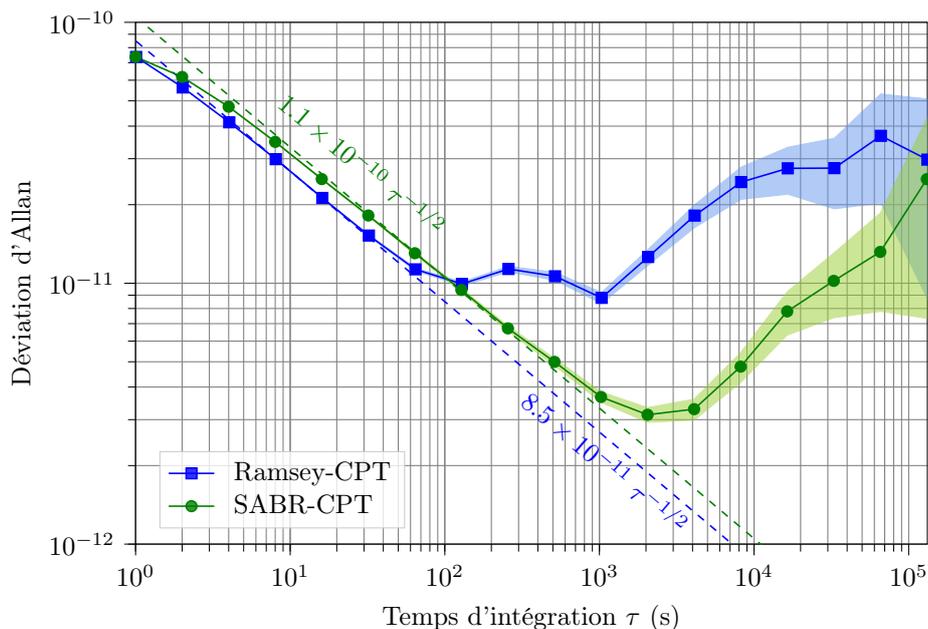


FIGURE 2.43 – Déviation d'Allan de la fréquence d'horloge avec la séquence Ramsey-CPT et SABR-CPT. La puissance laser est de 72 μW . La puissance micro-onde est de -2.3 dBm. Les paramètres de la séquence SABR sont : $T_S = 100$ μs , $T_L = 250$ μs et $T_b = 183$ μs . Les zones colorées indiquent les barres d'erreurs.

Dans le cas Ramsey-CPT, la stabilité de fréquence court-terme est d'environ $8.5 \times 10^{-11} \tau^{-1/2}$ jusqu'à 60 s. La "bosse" entre 60 et 10^3 s est attribuée à des fluctuations de température dans le laboratoire. La corrélation entre la fréquence d'horloge et la température de l'expérience en régime Ramsey-CPT est clairement visible sur le test présenté figure 2.44(a). Pour $\tau > 10^3$ s, une dégradation est observée, atteignant un niveau de 3×10^{-11} à 10^5 s. Ces résultats sont équivalents aux mesures rapportées sur la figure 2.39.

Dans le cas SABR-CPT, la stabilité court-terme est légèrement dégradée, avec un niveau de 1.1×10^{-10} à 1 s. À l'opposé, la stabilité d'horloge est clairement améliorée entre 10^2 et 10^5 s atteignant 3×10^{-12} à 2000 s. L'intérêt de la séquence SABR-CPT est illustrée figure 2.44(b). Nous observons avec cette séquence une suppression significative de la corrélation entre la fréquence d'horloge et les variations de température du laboratoire. Il est aussi ici intéressant de noter qu'avec la séquence SABR, une corrélation nette est observée entre la température du laboratoire et les sauts de phase φ_C appliqués pour compenser les déplacements lumineux. Ces résultats suggèrent clairement que les déplacements lumineux entachant la mesure sont probablement induits par des effets thermiques de l'expérience. Cette hypothèse sera confirmée dans le chapitre 4 de ce manuscrit.

Pour $\tau > 3000$ s, la déviation d'Allan reste dégradée, atteignant un niveau d'environ 2.5×10^{-11} à 10^5 s. Cependant, de nombreux arguments tendent à exclure les effets de déplacements lumineux pour expliquer cette limite. À partir des coefficients relevés sur la figure 2.42, nous avons calculé qu'un tel niveau de stabilité devrait être expliqué par des fluctuations à un jour de puissance laser $\Delta P_l = 7.6$ μW (soit $\Delta P_l / P_l = 10.6\%$) ou de fréquence laser telles que $\Delta f = 177$ MHz, soit $\Delta f / f = 5.2 \times 10^{-7}$. Ces valeurs de fluctuations semblent excessives comparativement à des valeurs rapportées dans la littérature et sont donc peu crédibles. On relève par exemple dans la littérature une variation relative de la puissance laser de 8% [33] et 0.15% [13] et une variation de la fréquence laser de 3×10^{-8} [33] et 2×10^{-9} [13]. Les plus grandes fluctuations observées de ces grandeurs physiques dans notre cas pourraient être néanmoins expliquées par une moins bonne protection thermique du bloc laser.

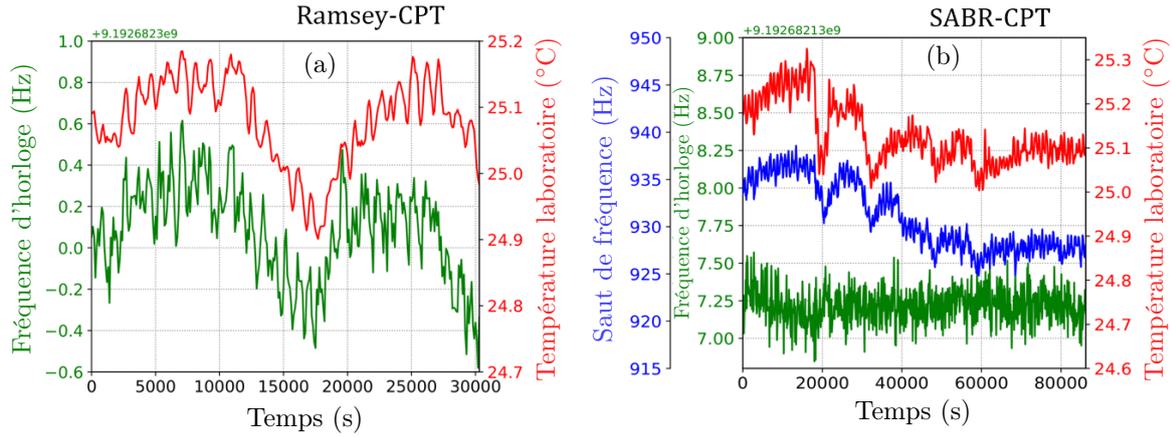


FIGURE 2.44 – Évolution de la fréquence d’horloge (courbes vertes), de la température du laboratoire (courbes rouges) et des sauts de fréquence (courbe bleu) en fonction du temps, en régime Ramsey-CPT (a) et SABR-CPT (b). On observe une corrélation entre la fréquence d’horloge et la température du laboratoire en régime Ramsey-CPT.

Des variations $\Delta P_{\mu W}$ de la puissance micro-onde de seulement 0.06 dB à une journée semblent une hypothèse plus crédible [13, 32, 33]. Cependant, cette hypothèse est contre-balançée par deux observations. Premièrement, les résultats de déviations d’Allan obtenus à une journée sont comparables pour les cas Ramsey-CPT et SABR-CPT malgré des coefficients de déplacement lumineux au moins deux ordres de grandeurs différents et des fluctuations de puissance micro-onde équivalentes. Deuxièmement, dans les deux cas Ramsey-CPT et SABR-CPT, nous avons observé que la fréquence d’horloge dérivait de manière constante avec une pente négative. La similarité de ces dérives de fréquence est contradictoire avec les coefficients de déplacements lumineux rapportés dans la figure 2.42(b), obtenus dans les cas Ramsey-CPT et SABR-CPT, montrant des signes opposés (-48 Hz dB^{-1} contre $+3.9 \text{ Hz dB}^{-1}$).

Nous avons aussi vérifié que la dépendance en température des déplacements collisionnels liée à la présence de gaz tampon [53, 187], le déplacement Zeeman, l’effet barométrique [188] ou la condensation d’atomes alcalins sur les fenêtres de la cellule [158] ne pouvaient pas expliquer les niveaux de stabilité mesurés à une journée en mode SABR-CPT.

Pour conclure cette section, la figure 2.45 montre la dérive linéaire négative de la fréquence d’horloge en mode SABR-CPT durant deux semaines de mesure.

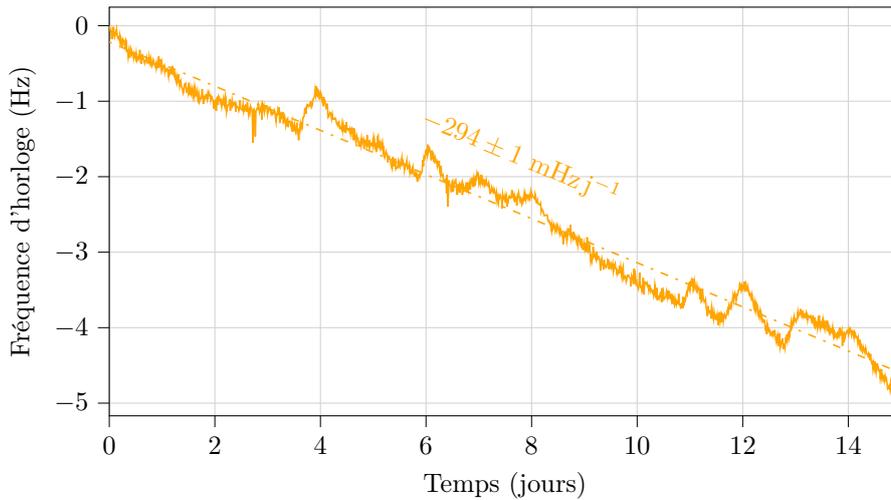


FIGURE 2.45 – Évolution de la fréquence d’horloge durant deux semaines en mode SABR-CPT. La courbe en pointillés représente la régression linéaire du signal d’horloge.

La pente mesurée, de l'ordre de -0.3 Hz j^{-1} , est compatible avec la perméation de gaz tampon à travers le verre borosilicaté de la micro-cellule [87]. Dans [87], une dérive de $\sim -0.5 \text{ Hz j}^{-1}$ a été mesurée dans une micro-cellule Cs-Ne, de technologie comparable, chauffée à $81 \text{ }^\circ\text{C}$. La section 3.2 du chapitre 3 présentera en réponse une étude utilisant une micro-cellule avec des verres à faible perméation, permettant de réduire drastiquement cette limite sur la stabilité de fréquence d'horloge.

2.5.7 Conclusion sur la technique d'interrogation SABR-CPT

Nous avons exploré l'implémentation de la technique d'interrogation Symmetric-Auto-Balanced-Ramsey (SABR) pour la réduction des déplacements lumineux dans une horloge CPT à micro-cellule. Malgré l'utilisation de séquences avec des impulsions lumineuses et des temps noirs de seulement quelques centaines de micro-secondes, cette technique réduit la dépendance de la fréquence d'horloge aux variations des paramètres laser par plus de deux ordres de grandeurs, en comparaison avec le régime continu, aujourd'hui utilisé dans les micro-horloges commerciales. Nous avons aussi démontré que la séquence SABR améliore la déviation d'Allan d'une horloge CPT à micro-cellule entre 10^2 et 10^5 s, temps d'intégration pour lesquels les déplacements lumineux sont prédominants.

Résumé et conclusion du chapitre 2

Nous avons dans ce chapitre démontré l'implémentation de plusieurs méthodes d'interrogations impulsives sur une horloge CPT à micro-cellule.

Nous avons d'abord mis en oeuvre une technique d'interrogation de type Ramsey-CPT. Dans cette séquence, les atomes n'interagissent plus de manière continue avec les atomes mais avec un train d'impulsions lumineuses, séparées par un temps d'évolution libre dans le noir. Après une étude spectroscopique CPT détaillée permettant d'identifier les paramètres expérimentaux optimisant la stabilité court-terme dans ce régime de fonctionnement, nous avons démontré une réduction de la sensibilité de la fréquence d'horloge aux variations de puissance laser par un facteur 40, avec l'application d'un temps noir de 450 μs , comparativement au régime continu. Cette réduction de la sensibilité aux effets de déplacements lumineux bénéficie à la stabilité de fréquence pour des temps d'intégration supérieurs à 100 s.

Dans un second temps, afin de réduire les déplacements lumineux induits lors des impulsions optiques, nous avons implémenté la technique d'interrogation Symmetric Auto-Balanced-Ramsey (SABR) au sein de cette horloge à micro-cellule. Cette méthode permet de compenser les déplacements lumineux subis par les atomes lors des impulsions optiques en appliquant un saut de phase sur l'oscillateur local lors du temps noir. Avec cette approche, la sensibilité de la fréquence d'horloge aux variations de puissance laser, de fréquence laser et de puissance micro-onde est réduite par plus de deux ordres de grandeur, comparativement à la méthode d'interrogation continue, soit une immunité aux déplacements lumineux encore accrue par rapport à la méthode Ramsey-CPT. Une amélioration de la stabilité de la fréquence d'horloge a été observée pour des temps d'intégration entre 10^2 et 10^5 s.

La démonstration de ces méthodes impulsives pour la réduction des déplacements lumineux a été effectuée sur un démonstrateur d'horloge de table avec l'exploitation d'un modulateur acousto-optique externe pour la génération de la séquence d'impulsions optiques. La présence d'un AOM demeure évidemment incompatible avec l'architecture d'une micro-horloge pleinement intégrée. Il sera ainsi important dans le futur de mener des études pour la démonstration de telles techniques d'interrogation sans AOM, par exemple grâce à une modulation directe du courant d'injection de la diode laser VCSEL [189, 190]. De telles études sont actuellement en cours à FEMTO-ST.

Malgré une forte réduction des sensibilités aux variations du champ optique avec la séquence SABR-CPT, la stabilité de fréquence de l'horloge demeure limitée par un autre phénomène prédominant à environ $2 - 3 \times 10^{-11}$ à 10^5 s. Orientés par l'observation d'une dérive linéaire nette de la fréquence d'horloge de l'ordre de -0.3 Hz j^{-1} sur une mesure de plus de 15 jours, nous avons alors suspecté (et confirmé par la suite, voir chapitres 3 et 4) que cette limite pouvait être expliquée par une fuite progressive de néon à travers le verre de la cellule. Le chapitre suivant se concentre ainsi sur l'étude de ce phénomène limitant. Nous démontrons la réduction de ce phénomène de perméation par l'implémentation de nouveaux substrats de verre faiblement perméables ou l'exploitation de revêtements d'alumine (Al_2O_3) déposés sur la face interne des fenêtres de verre.

Chapitre 3

Contrôle de l’atmosphère interne de la microcellule

Les cellules à vapeur alcaline sont l’un des éléments centraux des systèmes atomiques compacts comme les horloges [25, 168], les magnétomètres [191, 192], les gyroscopes [192, 193], les électromètres micro-ondes [194] ou les systèmes d’imagerie TéraHertz [195], atteignant tous des niveaux de précision et de sensibilité remarquables. Elles sont aussi les composants essentiels de nombreuses expériences en physique quantique, telles que l’implémentation de plateforme de refroidissement laser [196], la démonstration de téléportation quantique [197], ou la réalisation de compression de spin [198] et d’intrication quantique [199]. Au cours des 20 dernières années, ces cellules à vapeur alcaline ont suscité un regain d’intérêt grâce à l’avènement de leur version microfabriquée [5, 7, 88, 200-202]. Ces dernières, lorsqu’elles sont combinées à la photonique intégrée, ont stimulé le développement de systèmes atomiques à l’échelle d’une puce [9], facilement déployables, à faible consommation et ayant des applications concrètes.

Pour développer une horloge atomique miniature stable à long terme, il est nécessaire de s’appuyer sur une microcellule dont l’atmosphère interne est également stable. Différents phénomènes peuvent expliquer l’évolution de cette atmosphère, comme l’échange de gaz avec l’extérieur, conséquence d’une fuite de gaz tampon ou de la pénétration de gaz environnementaux, l’absorption partielle du gaz tampon par le dispenser, une fuite à l’interface verre-silicium en cas de défaut local de soudure anodique, une absorption partielle du césium par les parois de la microcellule, etc. Ainsi, l’herméticité de la cellule doit être minutieusement contrôlée pour limiter la variation de la population atomique. Dans le cas d’une fuite de gaz tampon (i.e. une réduction de la population atomique), l’évolution du déplacement collisionnel de fréquence engendre une instabilité sur la fréquence d’horloge. Dans le cas d’un gaz tampon avec un coefficient linéaire de pression de l’ordre de $1000 \text{ Hz Torr}^{-1}$ ($\sim \beta_{He}$ ou $\sim \beta_{N_2}$) et pour garantir une stabilité relative de fréquence d’horloge inférieure à 10^{-11} à une journée, il est nécessaire de limiter cette fuite à un niveau inférieur à $10^{-4} \text{ Torr j}^{-1}$. Enfin, le contrôle de l’atmosphère interne implique également le choix de la nature et de la quantité du mélange gazeux. Dans ce chapitre, nous identifierons les limitations actuelles des microcellules à vapeur alcaline et proposerons des solutions pour lever ces verrous technologiques.

3.1 Cellules à vapeur alcaline

3.1.1 Fabrication des cellules à verre soufflé

La figure 3.1 montre l'assemblage de verre typiquement utilisé pour remplir les cellules à verre soufflé. Les cellules vides sont connectées à une source d'atomes alcalins, des bouteilles de gaz tampon et une pompe à vide [203]. Dans un premier temps, les cellules sont purifiées afin d'évacuer l'air extérieur de l'atmosphère présent dans le système. Dans un second temps, une "vanne ouvrente", habituellement constituée d'une bille magnétique brisant une membrane de verre, est utilisée pour libérer l'alcalin de sa source. La migration des atomes alcalins vers les cellules est facilitée à l'aide d'un chalumeau. Une fois que l'atmosphère souhaitée est établie (sous vide ou avec gaz tampon), les cellules sont scellées et détachées en faisant fondre localement le queusot qui relie la cellule à la nourrice en verre.

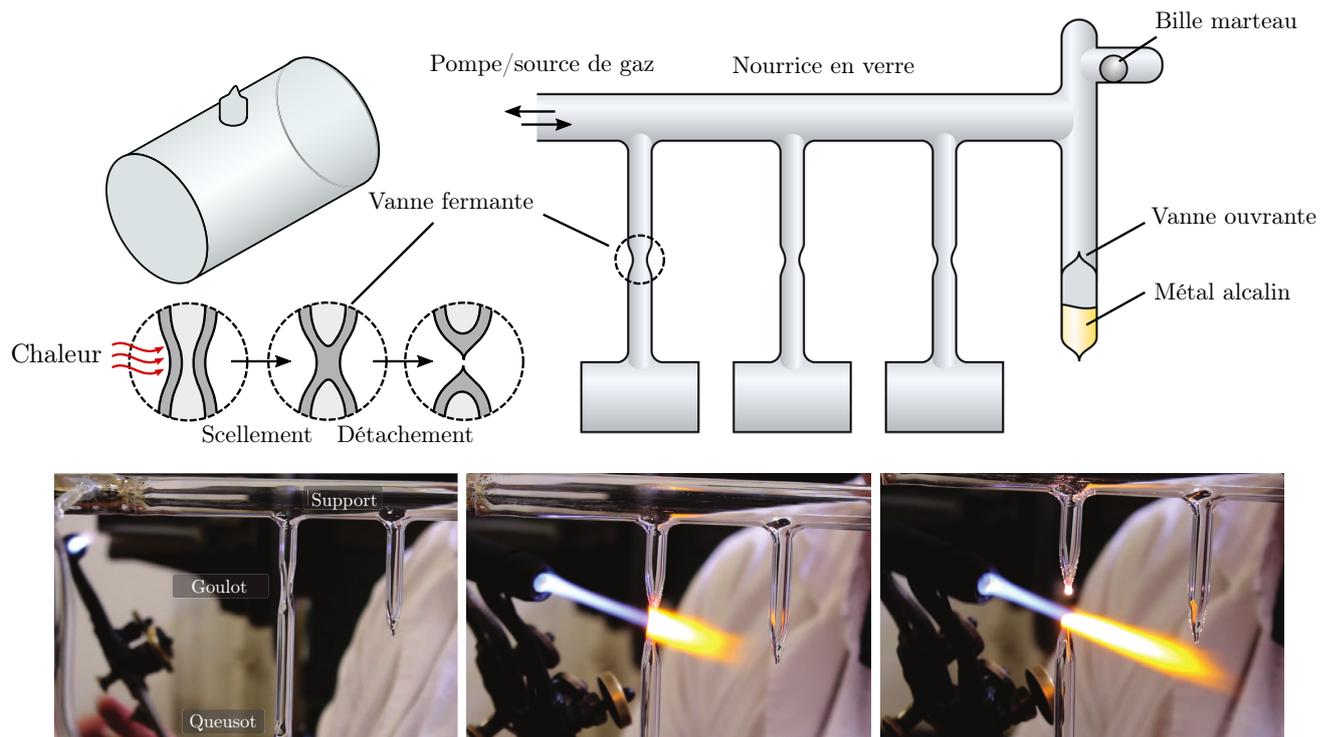


FIGURE 3.1 – Schéma de remplissage de cellules à verre soufflé. Des cellules vides sont disposées sur un support central, relié à des réservoirs de gaz et une pompe à vide. La source d'atomes alcalins est ouverte en brisant une membrane en verre à l'aide d'une bille. Une fois l'atmosphère en alcalin établie, les cellules sont scellées et détachées en faisant fondre le queusot qui les relie au support principal. Figure extraite et traduite de [202]. Les photographies sont extraites et traduites de [29] et montre le processus de scellement des cellules.

3.1.2 Microfabrication de cellule

Le contrôle de l'atmosphère interne de la cellule nécessite le recours à des procédés de fabrication limitant les sources de pollution. La technologie de microcellule à vapeur de césium développée à FEMTO-ST repose sur deux cavités gravées dans le silicium, connectées par d'étroits canaux, et prises en sandwich entre deux fenêtres de verre (figure 3.2). L'originalité de cette technologie réside dans l'utilisation d'une pastille de césium [7, 8] préalablement placée dans l'une des deux cavités et qui reste inerte pendant le scellement de la cellule. Une fois la cellule scellée, l'échauffement local avec un laser de cette pastille permet le remplissage de la cellule par une vapeur alcaline.

La pastille de césium utilisée est fournie par la société SAES Getters (Cs/Amax pill). Elle est obtenue par pressage d'un mélange entre une poudre d'alliage de zirconium-aluminium et du molybdate de césium stable (Cs_2MoO_4). L'alliage est composé à 84 % de zirconium et 16 % d'aluminium, et représente 83 % de la masse totale de la pastille. La pastille est stable jusqu'à 500°C et peut être manipulée à l'air libre, contrairement

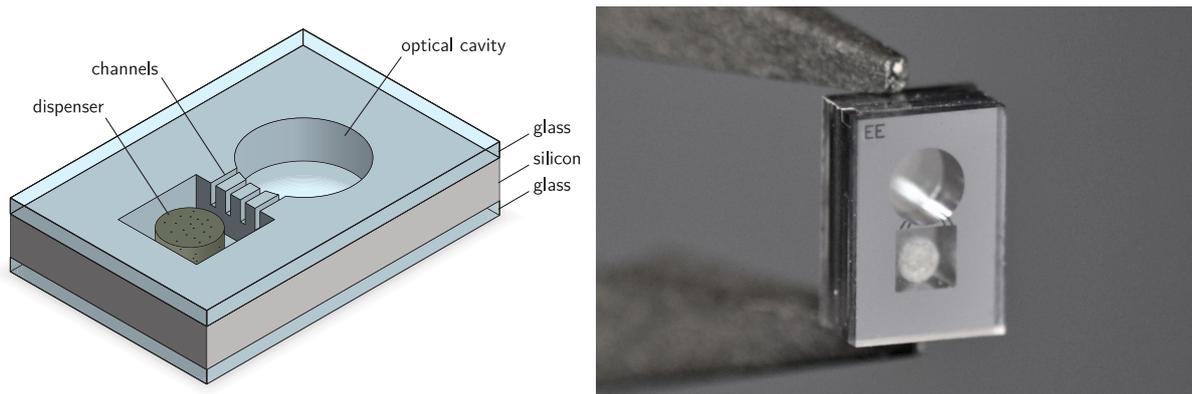


FIGURE 3.2 – À gauche, schéma de la micro-cellule (extrait de [29]). À droite, photographie d'une micro-cellule fabriquée au sein du laboratoire FEMTO-ST (prise par N. Passilly).

au césium pur qui est très réactif et s'oxyde rapidement avec l'oxygène présent dans l'atmosphère ambiante. L'alliage de Zr-Al présente une double fonction. En plus de sa fonction d'hôte pour le césium pur, il permet d'absorber les sous-produits issus de la décomposition du Cs_2MoO_4 , ainsi que les sous-produits de dégazage émis lors de la soudure anodique. Il garantit ainsi une atmosphère de cellule relativement pure. Malheureusement, il réagit également avec les gaz non-nobles tels que le diazote, habituellement utilisé comme gaz tampon mélangé avec l'argon pour fixer la température d'inversion autour de $90 - 95 \text{ }^\circ\text{C}$ [53]. La technologie de micro-cellule de FEMTO-ST reposait ainsi jusqu'à présent uniquement sur l'utilisation de gaz nobles en exploitant en particulier le néon comme seul gaz tampon. Le néon permet d'annuler la dépendance en température de la fréquence d'horloge à césium autour d'un point de fonctionnement proche de $75 - 80 \text{ }^\circ\text{C}$ [53]. Cette solution mono-gaz, avantageuse sur certains aspects (e.g. température d'inversion indépendante de la pression totale de néon), limite cependant la température maximale de fonctionnement de l'horloge autour de $75 - 80 \text{ }^\circ\text{C}$, quand de nombreuses applications demandent une limite supérieure à $85 \text{ }^\circ\text{C}$. Une fois la cellule scellée sous atmosphère de gaz tampon, la pastille est activée en la chauffant localement par laser afin de libérer du césium pur dans la cellule, qui migre alors vers la cavité voisine cylindrique. Cette cavité est utilisée pour l'interaction atomes-lumière requise en mode horloge.

Il existe de nombreuses méthodes de remplissage de la vapeur alcaline dans la littérature, telles que le dépôt de césium liquide dans une chambre sous vide anaérobie [6], l'utilisation d'une solution à base d'azoture de baryum (BaN_6) et de chlorure de césium (CsCl) [89] ou l'exploitation de verres enrichis en césium [204]. Une autre méthode pour générer de la vapeur alcaline (Rb ou Cs) présente dans la littérature utilise un composé de CsN_3 . La solution est déposée à l'intérieur de la cellule, avec une pipette durant la fabrication [117, 119, 205] ou par évaporation à travers un masque physique [200, 201, 206]. Une fois la cellule scellée par soudure anodique, l'azoture est exposé à un rayonnement ultraviolet (UV) afin de le décomposer en césium pur et azote. Cette méthode, compatible avec la fabrication collective, présente néanmoins deux inconvénients majeurs par rapport à l'approche de la pastille de césium. Premièrement, la proportion d'alcalin et d'azote libérés à la suite de l'insolation est dépendante de la stoechiométrie du mélange et fixe donc les quantités d'alcalin en fonction de la pression de gaz tampon recherchée. De plus, il a été récemment mis en avant dans la littérature une grande disparité de la pression d'azote entre cellules d'un même wafer en utilisant ce processus de remplissage [205]. La population d'alcalin est alors difficilement contrôlable avec cette méthode. Deuxièmement, cette réaction empêche la création de cellules sans gaz tampon, nécessaires dans le cadre de références de fréquence optiques [207] ou à 2-photons [208]. La pastille de césium reste inerte lors de la soudure anodique et permet un meilleur contrôle de la population alcaline indépendamment du gaz tampon. Néanmoins, l'incompatibilité du diazote avec la pastille demeure un frein important pour l'utilisation de mélanges haute-température.

Les cavités dans la couche de silicium sont obtenues par DRIE (Deep Reactive Ion Etching, i.e., gravure ionique réactive profonde). Cette méthode, compatible avec la production collective de cellule, est particulièrement bien adaptée pour graver des cavités profondes dans du silicium avec des parois verticales. De plus, il est possible d'utiliser le mécanisme d'ARDE (Aspect Ratio Dependent Etching) (i.e. la profondeur de la gravure dépend de l'ouverture du masque) afin de générer directement les cavités traversantes et les micro-canaux non débouchants des cellules en utilisant un masque unique.

D'autres méthodes sont proposées dans la littérature pour la réalisation des préformes en silicium, telles

que le forage par ultrasons [206, 209] ou la gravure humide (e.g. KOH) [210-212]. Un article publié récemment rapporte la génération de cavités traversantes par jet d'eau [213]. Bien que plus simple à mettre en place, cette technique est caractérisée par une taille minimale de 1.5 mm.

Après avoir réalisé la gravure des cavités, le substrat de silicium est pris en sandwich entre deux plaques de verre assemblées par soudure anodique. La soudure anodique est particulièrement adaptée pour souder du verre avec du silicium. Dans ce procédé, les substrats de verre et de silicium sont mis en contact, chauffés entre 250°C et 450°C tandis qu'une haute tension est appliquée à cet empilement. À haute température, la couche de verre devient conductrice en permettant la migration des cations de sodium (Na^+) et des anions d'oxygène (O_2^-). Les ions d'oxygène migrent depuis le verre vers l'interface verre-silicium, où ils réagissent avec les groupes hydroxyles initialement présents sur la surface de la couche de silicium, formant ainsi une couche de SiO_2 . La force électrostatique, suffisante pour maintenir les deux substrats en contact, est augmentée mécaniquement. L'utilisation de la soudure anodique requiert la présence de NaO_2 dans le substrat pour permettre le transport des ions dans la matière. Les substrats en silice pure sont donc incompatibles avec cette approche de soudure. De plus, les hautes températures nécessaires à la soudure anodique imposent que le coefficient de dilatation thermique (Coefficient of Thermal Expansion-CTE) du verre soit proche de celui du silicium, afin d'éviter des contraintes pouvant conduire à des ruptures dans la matière lors du refroidissement post-soudure. La technologie actuelle des microcellules FEMTO-ST emploie un verre borosilicaté (BSG pour BoroSilicate Glass, référence Borofloat® de Schott AG), similaire au Pyrex (7740 de Corning) et adapté à la soudure anodique. Un autre type de substrat, le verre aluminosilicaté (ASG pour AluminoSilicate Glass, référence SD-2 de HOYA), a été identifié et introduit pour la fabrication de microcellules en 2016 [27] et est depuis utilisé par d'autres groupes [27, 30, 214]. Le verre ASG présente en particulier les avantages d'être plus dense et de posséder, en comparaison des verres borosilicatés, une meilleure correspondance de ses CTE avec ceux du silicium.

L'application de la soudure anodique pour la création de cellules micro-fabriquées à vapeur alcaline a été proposée pour la première fois dans [6], et adaptée sur une machine du laboratoire dans [215]. Avant d'introduire les plaques de verre dans la machine de soudure, un processus de nettoyage est effectué afin d'éliminer toutes les particules à la surface afin de garantir la qualité du scellement. Les plaques sont par exemple nettoyées dans une solution piranha (H_2O_2 et H_2SO_4), rincées dans l'eau déionisée puis séchées à l'azote.

Durant la première soudure, la chambre est pompée sous vide pour faciliter la soudure. Durant la soudure du second substrat de verre, le gaz tampon est introduit dans la chambre de soudure. La présence de gaz tampon permet d'augmenter la durée de vie de la cohérence atomique CPT et donc la détection de résonances atomiques étroites (de l'ordre de quelques centaines de Hz). La pression de gaz tampon est contrôlée par une jauge avec une précision inférieure au dixième de Torr. La soudure du second substrat est plus complexe car la présence de gaz tampon limite la tension qui peut être appliquée lors de la soudure. En effet, selon la nature du gaz utilisé et sa pression, une décharge électrique à travers le gaz se produit à la tension de claquage. Pour résoudre ce problème, il a été proposé dans [215] un processus en deux étapes, dans lequel la tension appliquée est dans un premier temps fixée sous la limite de la tension de claquage, sous atmosphère de gaz tampon, pour pré-souder les substrats. Durant la seconde partie de la soudure, de l'azote est introduit dans la chambre, ce qui permet de relaxer cette contrainte et de terminer complètement une soudure robuste, permanente et entièrement hermétique. La soudure anodique est une première source potentielle de pollution car les verres chauffés à $\simeq 350$ °C sont sujets à dégazer des espèces non désirées dans les cavités de la cellule.

Le choix du substrat de verre est un paramètre primordial dans le processus de fabrication des microcellules. Dans la littérature, différentes études récentes suggèrent que la limitation majeure de la stabilité de l'atmosphère interne des microcellules provient de phénomènes de fuite de gaz tampon par perméation à travers le verre composant les fenêtres de la cellule [27, 87, 88]. L'entrée indésirée ou la fuite de gaz extérieur ou tampon, respectivement, au travers des parois de la cellule doit donc être ralentie. Les verres BSG ont été caractérisés en 2015 avec une microcellule Cs-Ne à l'Université de Neuchâtel. L'article correspondant [87] rapporte que la perméation du néon à travers le verre borosilicaté provoque une dérive de fréquence relative d'horloge de l'ordre de $-5.2 \pm 0.6 \times 10^{-11} \text{ j}^{-1}$, correspondant à une dérive de pression de $-6.0 \pm 0.7 \times 10^{-4} \text{ Torr j}^{-1}$ à 80 °C. Cette limitation est compatible avec les paliers de stabilité relative de fréquence observés dans les études publiées au laboratoire et utilisant ces verres pour des cellules Cs-Ne [13, 24, 26, 139]. Un autre groupe au NIST a publié en 2016 des mesures de perméation de l'hélium au sein de microcellules de rubidium [27], en comparant les deux types de substrats de verre BSG et ASG. Dans le cas de cellules Rb-He avec des verres BSG, la dérive intrinsèque de fréquence relative a été mesurée de l'ordre de $7.6 \times 10^{-9} \text{ h}^{-1}$, pour une température de 96 °C. Avec les verres ASG, la dérive observée a été réduite par plus de deux ordres de grandeur à environ $3.7 \times 10^{-11} \text{ h}^{-1}$.

Il s'avère par conséquent nécessaire de maîtriser les processus de perméation qui peuvent perturber l'équilibre de l'atmosphère interne de la microcellule. On propose pour cela dans la section suivante l'étude des phénomènes de perméation de gaz au sein de microcellules à vapeur de césium, en explorant différents types de substrats de verre. La différence de perméation entre les verres borosilicatés et aluminosilicatés étant probablement attribuée à la présence d'alumine (Al_2O_3) dans ces derniers, nous proposons d'étudier l'impact de dépôts d'alumine sous forme de couches minces, pour réduire la perméation des verres. Dans ce cadre, il s'agira de comparer la fuite de gaz mesurée, selon la combinaison du type de verre et le traitement de surface. Une première série de mesure a été entreprise avec des cellules de césium utilisant l'hélium, gaz volatil sujet à fuir, afin de discriminer l'impact du type de substrat ou de traitement.

3.2 Phénomène de perméation des gaz

3.2.1 Problématique et enjeux

Les variations de la pression interne de la microcellule résultant de l'entrée de gaz extérieurs ou de la fuite de gaz tampon doivent être minimisées afin de prévenir toutes perturbations de la transition atomique sondée. Dans les horloges atomiques micro-ondes, un gaz tampon est ajouté pour réduire la largeur du signal de résonance. Malgré un bénéfice significatif sur la stabilité court-terme, l'introduction de ce gaz tampon est responsable d'un déplacement de fréquence proportionnel à sa pression [53, 81]. Cette pression doit donc être maintenue constante pour éviter une détérioration de la stabilité long terme de l'horloge [87, 216, 217]. De plus, dans une référence de fréquence optique à microcellule [207, 208, 218, 219], la présence de contaminants dans la cellule à hauteur de quelques mTorr suffit à provoquer un élargissement de la résonance optique de quelques MHz [59], empêchant de profiter de la finesse de la largeur naturelle de la transition. Dans des systèmes à piégeages d'ions ou d'atomes froids, la dégradation de la pression interne de la cellule réduit le temps de vie du piège à ions ou du piège électro-magnétique et dégrade le rapport signal sur bruit du signal détecté [220, 221].

La stabilité de l'atmosphère interne est ainsi probablement affectée par la perméation de gaz, particulièrement par l'hélium à cause de sa faible densité, sa volatilité (plus petit gaz mono-atomique), et sa concentration naturelle significative dans l'atmosphère terrestre (5.24 ppm) [220, 222-224]. Par exemple, la limitation de la stabilité long-terme d'une horloge optique basée sur une transition à deux photons à 778 nm a été attribuée à la perméation de l'hélium [225]. Dans les systèmes standards à atomes froids ou à piégeage d'ion, où des niveaux de pression d'ultra-vide sont requis, empêcher la pollution de la cellule par l'hélium nécessite quelques fois l'utilisation d'une pompe ionique externe. Cette approche, compatible pour la démonstration d'une plateforme de refroidissement par laser à l'échelle du laboratoire [226], ou même de cellules MEMS [227], n'est pas compatible avec la démonstration d'un système atomique entièrement miniaturisable et embarquable. Dans ce contexte, des pompes microfabriquées sont en développement [228], mais, avec l'augmentation de leur complexité, la génération intrinsèque d'un fort champ magnétique à côté des atomes pourrait limiter le développement d'instruments de grande précision.

Puisque les pompes passives à base de getters n'interagissent pas avec l'hélium à cause de son caractère noble [229, 230], la solution principale, concernant les systèmes compacts consiste à empêcher l'hélium d'entrer dans la cellule et donc à construire la cellule ou la cavité contenant les atomes avec des matériaux à faible perméation. Plusieurs études remarquables ont récemment été rapportées dans ce domaine, dont la miniaturisation d'un module sous vide constitué de métal et céramique et de fenêtres en saphir pour une horloge atomique à piégeage d'ion [231], un module sous vide compact et pompé passivement avec un corps combinant du titane et des fenêtres en saphir maintenant des atomes froids pendant plus de 200 jours [232], ou le développement d'une cellule en céramique sous vide maintenant un nuage d'atomes froids pendant plus d'un an [233]. Cependant, ces études utilisent toutes des cellules standards et ne bénéficient pas de la fabrication collective et des capacités de production de masse offerte par les technologies MEMS.

Nous investiguons donc la perméation de l'hélium dans des cellules à vapeur alcaline microfabriquées, avec deux types de substrats de verre (BSG ou ASG). Cette étude est réalisée grâce à des mesures long-terme de la fréquence de transition hyperfine décalée par la pression de gaz, en utilisant une horloge atomique CPT basée sur des cellules remplies d'hélium.

3.2.2 Modèle théorique et mesures de la perméation dans la littérature

Le phénomène de perméation est responsable dans notre cas d'une perte de gaz. Il se distingue néanmoins d'une fuite causée par la présence d'un trou à travers lequel les atomes circulent avec une vitesse proportionnelle à la pression extérieure et inversement proportionnelle à la racine carrée du poids de l'atome, en accord avec la théorie cinétique des gaz. Lors de la perméation d'un gaz, les atomes sont adsorbés sur la face de la membrane exposée à la plus haute pression, se diffusent à l'intérieur de celle-ci et sont désorbés du côté exposé à la basse pression. La figure 3.3 est une représentation schématique du phénomène de perméation. On se place dans la situation d'une membrane exposée sur ces faces à deux pressions différentes P_1 et P_2 , tel que $P_1 \gg P_2$. Les étapes impliquées sont [234] :

- Impact des atomes sur la surface de la membrane ;
- Adsorption sur la face à haute pression P_1 (a) ;
- Solubilité des atomes dans la membrane (b). La quantité d'atomes dissous dépend de la solubilité du matériau ;
- Diffusion des atomes dans la membrane en suivant le sens du gradient de pression (c). Ce processus suit les lois de diffusion dans la matière de Fick ;
- Transfert des atomes de gaz sur la face extérieure de la membrane ;
- Désorption et libération des atomes sur la face à basse pression P_2 (d) ;

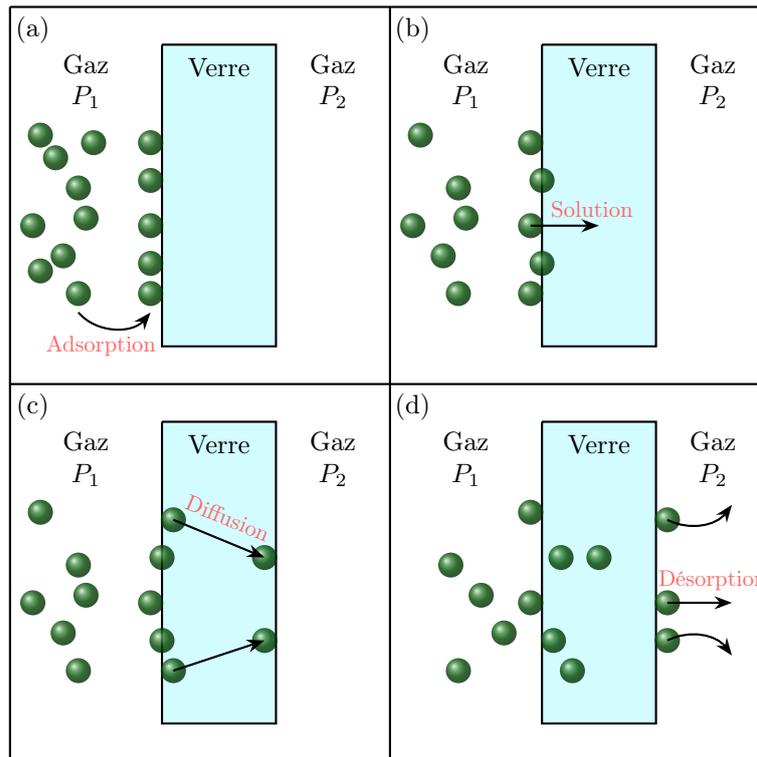


FIGURE 3.3 – Processus de perméation dans une membrane en verre avec P_1 et P_2 les pressions de gaz de chaque côté, tel que $P_1 \gg P_2$. (a) Adsorption, (b) Solubilisation, (c) Diffusion et (d) Désorption.

Notons que ce processus est plus complexe dans le cas d'atomes d'hydrogène, impliquant un phénomène de dissociation des gaz [235]. Ainsi, dans notre cas d'étude en présence d'un gaz noble, sans dissociation et à température constante, la quantité de gaz q traversant la membrane est donnée par :

$$q = \frac{KA}{d} \times \Delta P \times t \quad (3.1)$$

avec K le taux de perméation, A la surface de la membrane, d son épaisseur, ΔP la différence de pression entre les deux faces et t le temps. L'unité pour exprimer K varie selon l'année des études dans la littérature

[236] mais sera exprimée par la suite en $\text{m}^2 \text{s}^{-1} \text{Pa}^{-1}$. Le taux de perméation est directement relié au coefficient de diffusion D du matériau et de sa solubilité S par :

$$K = D \times S \quad (3.2)$$

Le coefficient de diffusion est un facteur décrivant la diffusion d'atomes à travers la matrice du verre. La solubilité correspond à la capacité des atomes à se dissoudre dans le verre. Ces deux coefficients dépendent de la nature du matériau, des atomes de gaz concernés et suivent la loi d'Arrhenius, telle que :

$$\begin{cases} D = D_0 \times e^{-E_{D_{iff}}/k_B T} \\ S = S_0 \times e^{-E_S/K_B T} \end{cases} \quad (3.3)$$

avec D_0 et S_0 les constantes de diffusion et de solubilité, $E_{D_{iff}}$ et E_S l'énergie d'activation de chaque phénomène. Enfin, le taux de perméation est décrit comme [237] :

$$K = K_0 \times e^{-E_D/k_B T} \quad (3.4)$$

avec $K_0 = D_0 \times S_0$ la constante de perméation et $E_D = E_{D_{iff}} + E_S$ l'énergie d'activation du verre. De nombreuses études ont été menées avant les années 2000 pour déterminer la valeur de tous ces coefficients caractéristiques pour différents substrats de verre. Les valeurs de solubilité du verre BSG Pyrex 7740 (Corning), de composition chimique similaire à celle du Borofloat utilisé au laboratoire, peuvent être trouvées dans [222, 224, 238-241]. De même, les valeurs des coefficients de diffusion sont rapportées dans [222, 224, 238]. Enfin, le lecteur est invité à consulter le livre référence de N.W Taylor [234] qui fournit une description physique plus en profondeur des phénomènes de perméation.

Dans le cas d'une cavité fermée de géométrie identique à celle de notre microcellule, l'évolution de la pression de gaz tampon $P(t)$ dans la cellule peut être décrite par une exponentielle décroissante [87, 242], telle que :

$$P(t) = P_{ext} - (P_{ext} - P_{in})e^{-t/\tau} \quad (3.5)$$

avec t le temps, P_{in} la pression initiale de gaz tampon dans la cellule à $t = 0$ s, $P_{ext} = 3.98$ mTorr la pression partielle d'hélium dans l'atmosphère, et τ la constante de temps décrite comme :

$$\tau = \frac{Vd}{KAP_{ref}} \quad (3.6)$$

avec V le volume des cavités et $P_{ref} = 760$ Torr la pression atmosphérique de référence. On considère la perméation associée au corps de la cellule en silicium comme négligeable devant la perméation du verre [220, 243]. En conséquence, A et d sont la surface et l'épaisseur, respectivement, des fenêtres de la cellule. Il est alors possible d'extraire le taux de perméation en monitorant l'évolution de la pression du gaz à l'intérieur de la cellule.

La cavité optique d'interaction est une cavité cylindrique de diamètre $d = 2000 \pm 20$ μm et de longueur $l = 1500 \pm 10$ μm . Les côtés de la cavité accueillant la pastille de césium mesurent $L = 1600 \pm 20$ μm . Les deux substrats de verre ont une épaisseur de $e = 510 \pm 10$ μm et sont constitués soit de verre BSG ou ASG. Chaque wafer fabriqué accueille typiquement 215 cellules, parmi lesquelles entre 10 à 20 cellules contiennent une pastille de césium. Pour réaliser cette étude, huit wafers de cellules Cs-He ont été fabriqués au total.

3.2.3 Protocole expérimental

Les taux de perméation de gaz à travers différents substrats de verre ont été historiquement mesurés à l'aide de spectromètres de masse [223, 224, 241] ou de jauges à ions [222, 238]. Ces systèmes sont relativement volumineux, difficiles à mettre en oeuvre et peuvent souffrir d'imprécisions de mesure, notamment au niveau de la qualité du détecteur ou de la précision des jauges. Ici, nous utilisons une horloge atomique pour réaliser ces mesures. Le changement de pression de gaz tampon dans une cellule induit une évolution de la fréquence de transition d'horloge due au déplacement collisionnel $\Delta\nu_{bg}$, donné par :

$$\Delta\nu_{bg} = P [\beta + \delta(T - T_0) + \gamma(T - T_0)^2] \quad (3.7)$$

avec P la pression de gaz tampon (à la température de référence T_0 de 0 °C), β le coefficient de pression, δ le coefficient linéaire de température, γ le coefficient quadratique de température et T la température de la cellule (fixée à 70 °C dans la première partie de l'étude). Ainsi, le taux de perméation K peut être déterminé

en dérivant la pression du gaz tampon à partir de l'évolution de la fréquence d'horloge.

La valeur des coefficients β , δ et γ pour l'hélium a été mesurée par de nombreux auteurs. Le tableau 3.1 rassemble l'ensemble de ces valeurs.

Référence	β (Hz Torr ⁻¹)	δ (Hz Torr ⁻¹ K ⁻¹)	γ (mHz Torr ⁻¹ K ⁻²)
[78]	1600	NC	NC
[244]	1135	NC	NC
[82]	1200	-1.44	NC
[73]	1050	1.5	NC
[245]	1136	NC	NC
[86]	1231 ± 6	1.27 ± 0.07	NC
[81]	1185 ± 46	1.49 ± 0.15	NC
[84]	1132.86	NC	NC
[246]	1141.9	NC	NC
[247]	1233 ± 32	2.01 ± 0.12	-7.51 ± 0.44

TABLE 3.1 – Coefficients de déplacement collisionnel de fréquence de la transition D₁ du césium en présence d'hélium. Les résultats sont triés des plus anciens aux plus récents. NC = non connu.

On observe une certaine dispersion sur la valeur de β et l'absence de valeur pour le coefficient quadratique γ . On note que les coefficients de [247] n'ont jamais été publiés dans un journal à comité de lecture. Ainsi, on utilisera pour notre étude les coefficients de l'hélium rapportés dans la référence [81] ($\beta = 1185 \pm 46$ Hz Torr⁻¹, $\delta = 1.49 \pm 0.15$ Hz Torr⁻¹ K). Une horloge atomique CPT fonctionnant en régime continu présente typiquement une stabilité relative de fréquence meilleure que 10⁻¹⁰ à la journée (i.e. $\Delta f < 1$ Hz), permettant de mesurer dans le cas de l'hélium des variations de pression inférieures au mTorr.

Le protocole expérimental pour la mesure du taux de perméation est le suivant :

1. Fabrication des microcellules et remplissage de la vapeur alcaline ;
2. Implémentation des cellules dans l'horloge CPT ;
3. Enregistrement de la fréquence d'horloge ;
4. Conversion de la variation en fréquence en variation de pression (éq. 3.7) ;
5. Approximation des données avec le modèle théorique (éq. 3.5) ;
6. Extraction du taux de perméation (éq. 3.4).

Une diminution de pression implique l'observation de dérives en fréquence de plus en plus petites à mesure que celle-ci tend vers la pression partielle externe. Ces faibles variations deviennent alors particulièrement difficiles à identifier et requièrent des mesures en horloge de longues durées, typiquement de 3 à 4 semaines pour qualifier une seule cellule. La durée de ces mesures peut même être étendue afin de caractériser l'impact de l'apport d'un traitement de surface sur un verre déjà réputé étanche. Dans le cadre de cette étude où nous proposons d'étudier plusieurs solutions qui nécessiteront la caractérisation à minima de plusieurs dizaines de cellules, notre capacité de caractérisation s'est avérée insuffisante. Ainsi, afin de permettre le test d'un nombre accru de cellules, j'ai développé et exploité le banc de mesure d'horloge CPT à 6 cellules présenté en annexe 1.

3.2.4 Estimation des incertitudes de mesures

Il est nécessaire pour ce type d'expériences pouvant s'étendre sur plusieurs semaines d'identifier et de quantifier les potentielles sources d'incertitudes de mesures ainsi que leur impact sur le résultat final. Les données expérimentales sont approximées avec le modèle de l'équation (3.5). Notre variable d'entrée est l'évolution de la pression $P(t)$. La valeur de la pression initiale est fixée et seule la valeur de la constante de temps τ peut varier. Nos sources d'erreur proviennent ainsi des données d'évolution de pression et de la mesure de la pression initiale. On notera dans la suite $u(x)$ l'incertitude associée à la variable x . On décompose chacune des sources d'erreurs :

Conversion de la fréquence d'horloge en évolution de pression

Cette source d'erreur provient de l'incertitude associée à la mesure des coefficients de déplacement collisionnel.

$$\Delta\nu_{bg} = P \times [\beta + \delta(T - T_0) + \gamma(T - T_0)^2] \quad (3.8)$$

$$\Leftrightarrow \Delta P = \frac{\Delta\nu_{bg}}{\beta + \delta(T - T_0) + \gamma(T - T_0)^2} \quad (3.9)$$

On considère une incertitude sur la fréquence d'horloge mesurée négligeable car comparée à un maser à hydrogène. L'incertitude sur les coefficients sont de $\Delta\beta = \pm 46 \text{ MHz Torr}^{-1}$ et $\Delta\delta = \pm 0.15 \text{ MHz Torr}^{-1}$ [81]. Nous avons mesuré dans le chapitre 2 une stabilité de la température de la cellule de l'ordre du mK. On estime cette fois l'incertitude sur la valeur absolue de la température, comme égale à $\Delta T = \pm 1 \text{ }^\circ\text{C}$. On exprime alors l'incertitude sur la pression issue de la mesure d'horloge comme (dans le cas où $\gamma = 0$) :

$$u(\Delta P) = \left| \frac{\partial \Delta P}{\partial \beta} \right| \Delta\beta + \left| \frac{\partial \Delta P}{\partial \delta} \right| \Delta\delta + \left| \frac{\partial \Delta P}{\partial T} \right| \Delta T \quad (3.10)$$

Pression initiale de gaz tampon dans la cellule

La valeur de la pression initiale de gaz tampon dans la cellule provient des mesures de spectroscopie linéaire et en particulier de l'élargissement du profil d'absorption optique.

$$P_{init} = \frac{\Gamma - \Gamma_D - \Gamma_{nat}}{\xi} \quad (3.11)$$

$$\Leftrightarrow P_{init} = \frac{\Gamma - \nu_{0,FF'} \times \sqrt{\frac{8k_B T}{mc^2} \log(2)} - \Gamma_{nat}}{\xi} \quad (3.12)$$

On considère ici l'incertitude sur la température de la cellule sur le banc de spectroscopie à $\pm 1 \text{ }^\circ\text{C}$, sur la largeur mesurée du profil d'absorption ($\Delta\Gamma = \pm 5 \text{ MHz}$) et l'incertitude du coefficient d'élargissement ($\Delta\xi = \pm 0.07 \text{ MHz}$ [59]) :

$$u(\Delta P_{init}) = \left| \frac{\partial P_{init}}{\partial T} \right| \Delta T + \left| \frac{\partial P_{init}}{\partial \xi} \right| \Delta\xi + \left| \frac{\partial P_{init}}{\partial \Gamma} \right| \Delta\Gamma \quad (3.13)$$

Afin de borner la valeur des incertitudes, on effectue trois approximations différentes avec le modèle. La première approximation correspond à la borne inférieure de P_{init} et $P(t)$, la deuxième correspond aux valeurs sans incertitudes et enfin la troisième prend en compte les bornes supérieures des incertitudes. Enfin, le taux de perméation K fait appel aux paramètres géométriques de la cellule h et d (avec $\Delta h = \pm 10 \text{ } \mu\text{m}$ et $\Delta d = \pm 10 \text{ } \mu\text{m}$) ainsi qu'à la constante de temps τ . L'incertitude de τ est directement donnée par le programme d'approximation des données avec le modèle théorique de perméation. Enfin, l'incertitude s'exprime comme :

$$u(\Delta K) = \left| \frac{\partial K}{\partial h} \right| \Delta h + \left| \frac{\partial K}{\partial d} \right| \Delta d + \left| \frac{\partial K}{\partial \tau} \right| \Delta\tau \quad (3.14)$$

L'accumulation des différentes sources d'incertitudes impose des barres d'erreurs de l'ordre de 10 % sur le résultat final.

3.2.5 Validation du protocole expérimental

La figure 3.4(a) montre les traces temporelles typiques de la fréquence d’horloge pour deux cellules microfabriquées Cs-He, à base de BSG et ASG, résultant d’acquisitions de données conduites pendant plus de 40 jours. Ici, la réduction de la fréquence d’horloge avec le temps est en accord avec une fuite progressive des atomes d’hélium à travers les parois de la cellule. En ce sens, cette expérience est différente de celle rapportée dans la référence [27] où une pente positive était observée due à de l’hélium entrant progressivement dans la cellule, cette dernière étant placée dans une chambre pressurisée sous atmosphère d’hélium. Dans notre cas, le déplacement de fréquence est aussi moins influencé par l’état initial du verre, i.e., son état de dégazage préalable. Pour comparaison, une mesure similaire a été réalisée sur une microcellule de césium avec des verres BSG et remplie avec environ 70 Torr de néon (insert de la figure 3.4(a)). Étant donné que le taux de perméation du néon est connu pour être plus de trois ordres de grandeur plus petit que celui de l’hélium [87], la cellule BSG-Ne est ici utilisée comme une référence pour notre banc expérimental. En se concentrant sur les 10 premiers jours, une approximation linéaire de la fréquence d’horloge mène à une variation de fréquence de -1185 , -3.5 et -0.3 $\text{Hz}\cdot\text{j}^{-1}$ pour les cellules en BSG, ASG et BSG-Ne, respectivement. Ces résultats montrent que l’ASG réduit drastiquement la perméation de l’hélium, avec pendant les premiers jours, une réduction de la dérive de la fréquence d’horloge d’un facteur d’environ 350 en comparaison des cellules à base de BSG.

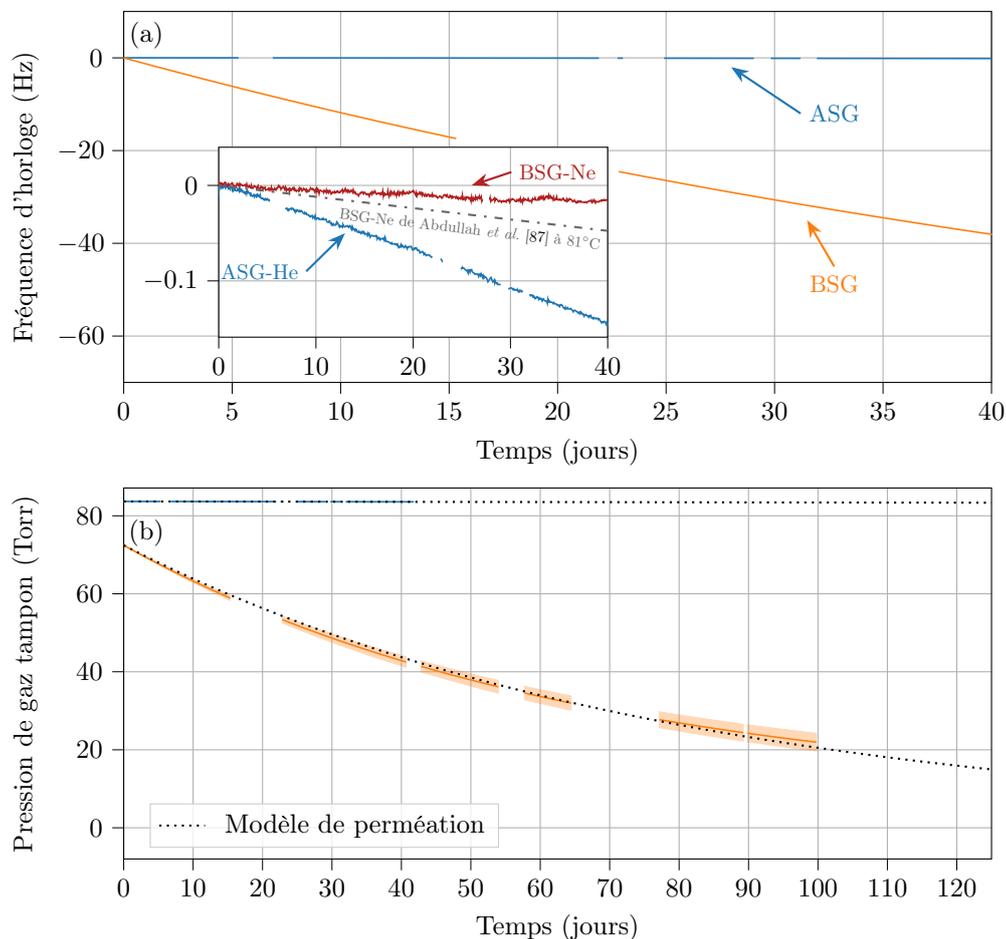


FIGURE 3.4 – (a) Trace temporelle de la fréquence d’horloge pour une cellule Cs-He microfabriquée avec verres BSG ou ASG. Dans l’insert, une mesure de fréquence d’horloge est rapportée avec une cellule de référence Cs-Ne. Les données manquantes correspondent à des pauses ou des coupures du logiciel de mesure. La fréquence d’horloge à $t = 0$ s est de 9192736114 et 9192715170 Hz, pour les cellules ASG et BSG, respectivement. (b) Évolution de la pression de gaz tampon dans la cellule issue des mesures de fréquence de (a), où les données ont été extrapolées en suivant le modèle théorique de l’équation (3.5).

A la suite de ces mesures, la fréquence d’horloge est convertie en pression de gaz tampon en utilisant l’équation (3.7). L’évolution de la pression de gaz tampon correspondante est représentée sur la figure 3.4(b). Les données en pression sont ensuite approximées avec l’équation (3.5) pour estimer la constante de temps τ , tandis

que le taux de perméation K est extrait en utilisant l'équation (3.6). Grâce à ces mesures de plusieurs dizaines de jours, le comportement exponentiel de l'évolution de la pression de gaz tampon est clairement mis en évidence pour les cellules à base de BSG.

Pour les cellules investiguées dans la figure 3.4, la constante de temps τ concernant la cellule à base de BSG est de 79 ± 6 jours, alors qu'elle est de 30500 ± 2080 jours avec les cellules à base d'ASG. Ainsi, le taux de perméation K dérivé pour le BSG et l'ASG sont de $K = 5.5 \pm 0.7 \times 10^{-19}$ et $K = 1.4 \pm 0.2 \times 10^{-21} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1} \text{ Pa}^{-1}$, respectivement, soit un rapport de 390. Concernant l'ASG, nos mesures sont en bon accord avec celles de [27] malgré une température de cellule différente et confirme ses capacités significatives pour la réduction de la perméation d'hélium. De plus, on note que le taux de perméation dérivé pour la cellule BSG-Ne est de $K = 3.5 \pm 0.2 \times 10^{-22}$ à $70 \text{ }^\circ\text{C}$, en bon accord avec la valeur de $K = 5.7 \pm 0.7 \times 10^{-22}$ mesurée à une plus haute température de $81 \text{ }^\circ\text{C}$ dans [87].

3.2.6 Bénéfice du verre aluminosilicaté à faible perméation

La figure 3.5 montre les mesures réalisées sur des cellules standard utilisant du verre BSG.

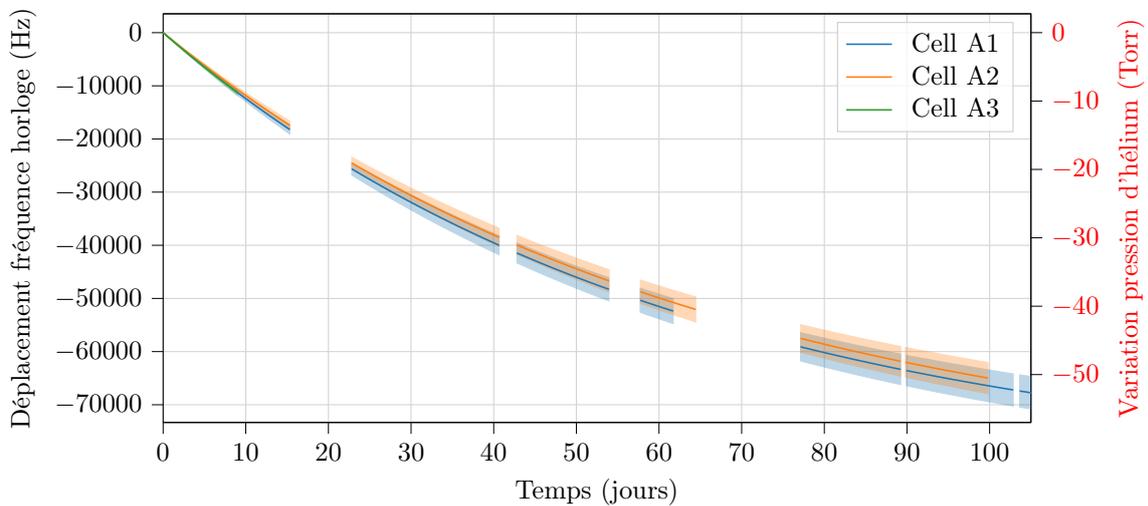


FIGURE 3.5 – Évolution temporelle de la fréquence d'horloge pour des cellules Cs-He avec verre BSG. L'axe vertical de droite correspond à la variation de pression de gaz tampon. Par souci de clarté et pour une meilleure comparaison entre les cellules, la pression initiale a été décalée à 0 à $t = 0$ s. Les zones colorées indiquent la taille des barres d'erreurs attribuées à l'estimation de la pression de gaz tampon.

Ces cellules, avec une pression initiale d'hélium de 72.5 ± 0.5 Torr, conduisent à une rapide décroissance de la fréquence d'horloge, avec une dérive linéaire mesurée d'environ -1200 Hz j^{-1} durant les 15 premiers jours. Nous avons alors mesuré qu'approximativement 50 Torr d'hélium se sont échappés de la cellule après plus de trois mois de mesure. Ces résultats mènent à une estimation du taux de perméation K dans la plage de $K = 5.5 - 6.3 \pm 0.7 \times 10^{-19} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1} \text{ Pa}^{-1}$.

La figure 3.6 montre l'évolution de la fréquence et de la pression des cellules à verre ASG. La pression initiale d'hélium de ces cellules est de 84 ± 2 Torr. On constate que l'ASG conduit à une réduction drastique du changement de fréquence d'horloge avec une pente d'environ -3.4 Hz j^{-1} . Cela correspond à une perte de pression d'hélium d'environ 120 mTorr après 50 jours. En comparaison avec le BSG, cela correspond à une réduction du taux de perméation K d'environ 450, menant à K dans la plage $K = 1.24 - 1.43 \pm 0.14 \times 10^{-21} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1} \text{ Pa}^{-1}$ et une constante de temps augmentée de 75 à 33000 jours. Cette amélioration est du même ordre de grandeur que celle observée dans [27].

3.2.7 Exploitation de revêtements d'alumine

Dans cette étude, nous avons aussi proposé d'investiguer l'apport de revêtements additionnels de couches minces pour la réduction de la perméation. Les couches d' Al_2O_3 , en particulier, ont été reconnues et employées pour éviter la consommation d'alcalins dans les cellules à vapeur, notamment pour le césium [248], le rubidium

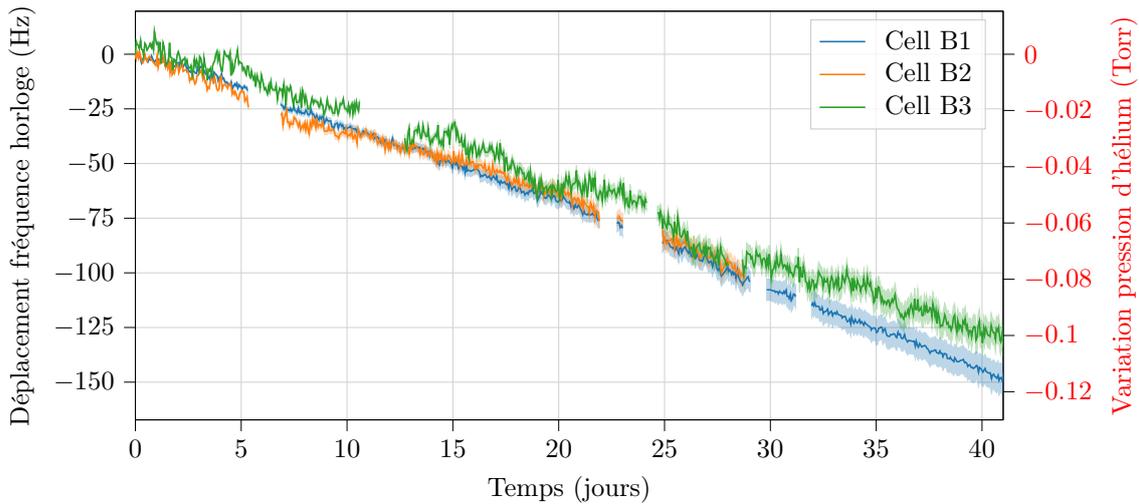


FIGURE 3.6 – Évolution temporelle de la fréquence d’horloge pour des cellules Cs-He avec ASG.

[117], et plus récemment le strontium [249]. Le dépôt de couches d’ Al_2O_3 utilisé dans nos expériences a été réalisé par dépôts de couches atomiques (Atomic Layer Deposition (ALD)) avec un système commercial Beneq TFS-200. Des films d’une épaisseur de 20 nm ont été directement déposés sur les substrats de verre avant la soudure avec le silicium, afin de couvrir le côté intérieur des fenêtres en verre. Notons que recouvrir l’extérieur de la cellule aurait nécessité d’effectuer le dépôt après la découpe pour aussi protéger les côtés. L’épaisseur de 20 nm a été choisie afin de ne pas détériorer la qualité de la soudure [117, 248], bien que l’épaisseur des couches soit susceptible de jouer un rôle sur l’herméticité de la cellule.

La figure 3.7 montre les mesures sur des cellules BSG avec un revêtement d’ Al_2O_3 .

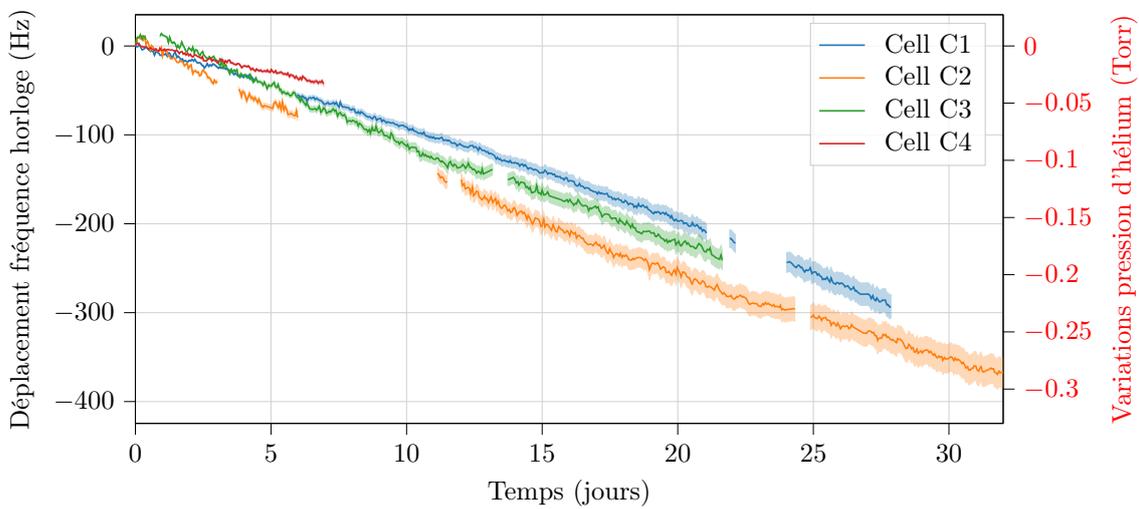


FIGURE 3.7 – Évolution temporelle de la fréquence d’horloge pour des cellules Cs-He avec BSG et Al_2O_3 .

Les déplacements de fréquence ont été mesurés sur quatre cellules différentes extraites de trois wafers différents. Une légère dispersion est observée, pouvant être attribuée à des pressions initiales d’hélium différentes, mais aussi à un manque d’homogénéité dans les dépôts de couches d’ Al_2O_3 ou à leur endommagement partiel durant la fabrication des cellules ou l’activation de la pastille. Néanmoins, la dérive de fréquence est beaucoup plus faible, i.e., presque 100 fois plus petite que pour les cellules BSG sans Al_2O_3 , ce qui correspond à une amélioration de la constante de perméation d’un facteur 130, menant à des valeurs de K entre 4.6 et $6.3 \pm 0.5 \times 10^{-21} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1} \text{ Pa}^{-1}$. On note que ces niveaux de perméation sont seulement 4 fois plus grand que ceux obtenus avec l’ASG et démontrent que les revêtements Al_2O_3 contribuent à la réduction de la perméation de l’hélium à travers les fenêtres en verre de la cellule. Il peut être souligné ici que nous avons mesuré à travers les déplacements de fréquence d’horloge un changement de la pression de gaz tampon et nous faisons l’hypothèse

qu'il n'existe aucune fuite à l'interface de soudure. Néanmoins, les changements de pression pourraient être en partie dus à une perméation du verre et en partie à une fuite à l'interface de soudure, il n'en reste pas moins que l'herméticité globale de la cellule est significativement améliorée.

Enfin, la figure 3.8 montre la fréquence d'horloge en fonction du temps pour les cellules à base d'ASG revêtues d' Al_2O_3 .

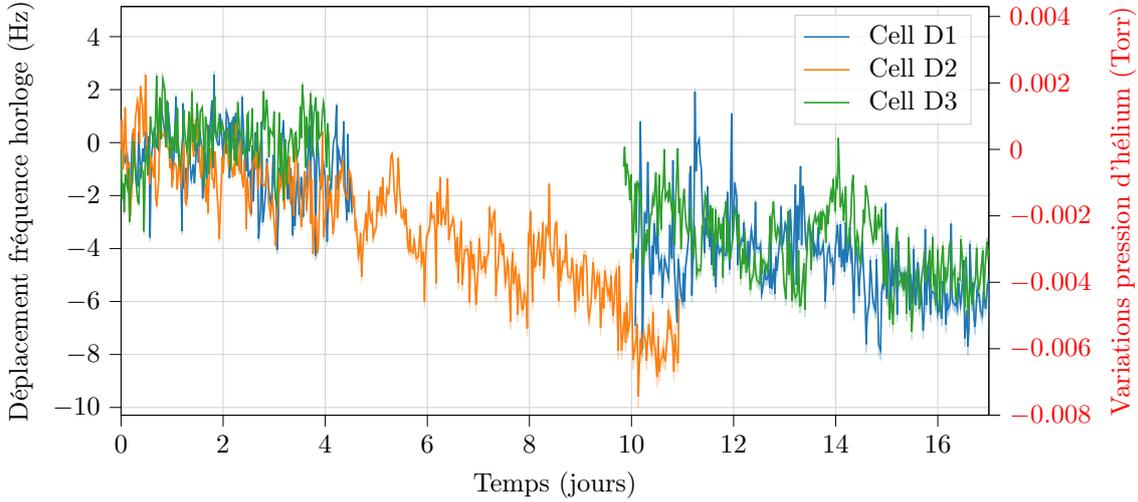


FIGURE 3.8 – Évolution temporelle de la fréquence d'horloge pour les cellules Cs-He avec ASG et Al_2O_3 .

En prenant pour exemple la cellule D1, qui avait une pression initiale mesurée de 39.1 ± 0.4 Torr, le déplacement de la fréquence d'horloge est réduit par un facteur 10 (-0.3 Hz j^{-1}) comparativement aux cellules ASG sans dépôts, menant à une perte de 4 mTorr d'hélium après plus de deux semaines à 70°C . Le taux de perméation correspondant est égal à $2.7 \pm 0.2 \times 10^{-22} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1} \text{ Pa}^{-1}$, i.e., 5 fois plus petit que la valeur obtenue pour l'ASG sans revêtement. Il peut être souligné que cette valeur de taux de perméation de l'hélium est même meilleure que celle obtenue pour le néon avec du BSG, nous autorisant ainsi à envisager l'hélium comme gaz tampon dans des cellules microfabriquées.

3.2.8 Détermination de l'énergie d'activation du verre aluminosilicaté

Il est possible de prédire et d'éventuellement simuler le comportement des cellules microfabriquées avec le temps et à des températures différentes en utilisant l'expression 3.4, sous condition de connaître la valeur de l'énergie d'activation du verre étudié. Cependant, si dans la littérature de nombreuses données peuvent être trouvées pour le BSG, et en particulier pour le Pyrex, incluant l'énergie d'activation E_D ($= -0.29 \text{ eV}$ [222-224]), il semble qu'il n'existe aucune étude rapportant une mesure pour l'ASG SD-2 jusqu'à présent. Dans la référence [27], l'énergie d'activation E_D de l'ASG SD-2 était supposée comparable à celle mesurée pour un autre substrat d'ASG, le Corning 1720 qui a une composition chimique proche (mais une quantité plus faible d' Al_2O_3 , i.e., 18 % contre 25 %) et pour lequel l'énergie d'activation correspondante a été mesurée égale à -0.52 eV dans [223, 224].

Dans cette étude, nous souhaitons estimer la valeur de E_D pour l'ASG SD-2 en mesurant l'évolution de la fréquence d'horloge pour la cellule B2 à trois températures différentes. L'énergie d'activation E_D peut être extraite à travers une linéarisation de la dépendance du taux de perméation K avec la température T , telle que :

$$\ln K = \ln K_0 - \frac{E_D}{k_B T} \quad (3.15)$$

La figure 3.9 montre le résultat correspondant. L'approximation des données expérimentales mène à une pente $-E_D/k_B = 5680 \text{ K}$ et une ordonnée à l'origine $K_0 = 1 \times 10^{-14} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1} \text{ Pa}^{-1}$ desquelles est extrait une énergie d'activation $E_D \simeq -0.49 \text{ eV}$. Cette valeur est légèrement plus faible que celle mesurée pour le verre Corning 1720 (-0.52 eV).

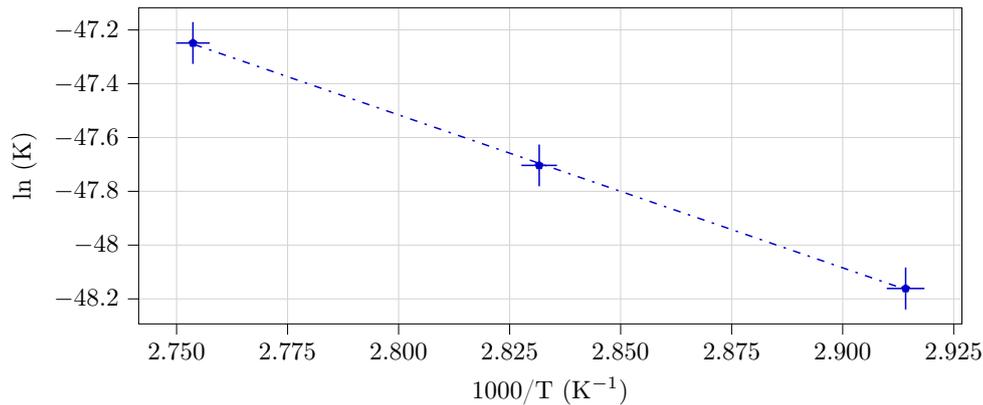


FIGURE 3.9 – Constante de perméation K (en échelle logarithmique) en fonction de l'inverse de la température de cellule T ($1000/T$) pour une cellule à base d'ASG. Figure extraite de [28].

Par rapport à ce résultat, il est possible, en perspectives, d'estimer la durée de vie de cellules microfabriquées à base d'ASG dans deux applications. La première concerne une horloge atomique où l'hélium serait employé dans un mélange de gaz tampon avec du néon pour décaler la température d'opération de la cellule vers les plus hautes températures [90]. Dans ce cas, la faible quantité d'hélium nécessaire (par exemple 4.5 % pour un mélange à 100 °C, donc proche de 3 Torr) est favorable de façon à ce que le point d'inversion en température n'évolue pas de plus de 1 °C durant quasiment 500 jours. La seconde application concernerait des cellules dédiées à accueillir des pièges magnéto-optiques, placées dans l'atmosphère terrestre à température ambiante. Pour de telles applications, la pression intérieure doit être maintenue en dessous de 1×10^{-6} mbar [233], valeur qui sera atteinte après 85 jours si seul l'hélium influence le processus. On note que ces durées de vie devraient être significativement rallongées avec l' Al_2O_3 et devraient atteindre plus de 400 jours dans l'hypothèse que le facteur d'amélioration ($\times 5$ à 70 °C) soit observé à température ambiante.

3.2.9 Conclusion sur l'étude de la perméation de l'hélium

La figure 3.10 résume les taux de perméation K dérivés des 13 cellules mesurées. Quelques valeurs extraites dans la littérature [222, 223] pour le BSG sont indiquées pour comparaison.

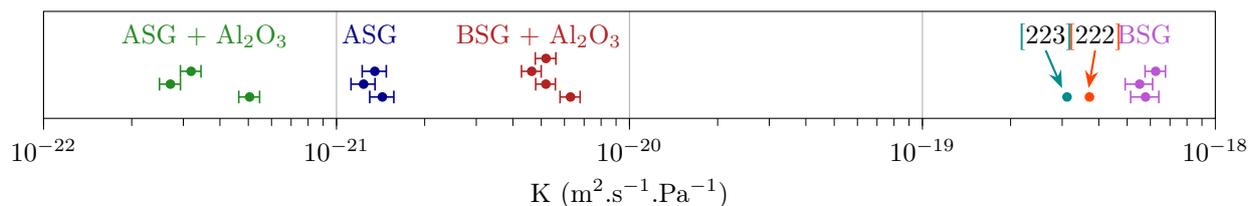


FIGURE 3.10 – Distribution des taux de perméation K mesurés pour les 13 cellules testées, séparés en quatre configurations de fenêtres. Figure extraite de [28].

En conclusion, nous avons investigué la perméation de l'hélium à travers les fenêtres des verres de cellules microfabriquées à vapeur alcaline en mesurant les dérives de fréquence d'une horloge atomique CPT. Un total de 13 cellules ont été testées, divisées en quatre configurations, BSG ou ASG et BSG ou ASG avec des revêtements d'alumine. Nous avons démontré que les revêtements d' Al_2O_3 , habituellement employés pour prévenir la consommation d'alcalin dans les cellules à vapeur, peuvent aussi réduire significativement la perméation de l'hélium. Les cellules avec du BSG et de l' Al_2O_3 présentent des taux de perméation environ 110 fois plus petits que les cellules BSG sans revêtement. Ces performances sont seulement quatre fois plus petites que celles mesurées pour l'ASG pour lequel des taux de perméation d'environ 1.3×10^{-21} m².s⁻¹.Pa⁻¹ sont trouvés, à une température de 70 °C. Les revêtements d' Al_2O_3 semblent aussi efficaces quand ils sont déposés sur l'ASG, améliorant davantage l'herméticité des cellules avec un taux de perméation atteignant quelques 2.7×10^{-22} m².s⁻¹.Pa⁻¹, i.e., plus petits que ceux des cellules de BSG avec du néon utilisées dans nos horloges atomiques miniatures. Ces résultats permettent d'envisager l'utilisation de l'hélium dans un mélange de gaz tampon pour une horloge à haute température. Enfin, l'énergie d'activation de l'ASG a été estimée à environ -0.49 eV à partir de mesures de taux de perméation à trois températures différentes.

3.2.10 Réduction de la perméation du néon

La perméation du néon à travers les parois de la cellule a été suspectée comme une limitation possible à la stabilité de fréquence de nos horloges au cours des différentes études en régime impulsif (chapitre 2). La figure 3.11 rappelle l'évolution de la fréquence d'horloge en mode SABR-CPT pour une cellule remplie avec 90 Torr de néon et chauffée à 70 °C. La dérive négative linéaire est compatible avec une fuite de néon. De plus, la pente mesurée, de l'ordre de -0.3 Hz j^{-1} , est compatible avec l'étude [87] où une dérive de $\sim -0.5 \text{ Hz j}^{-1}$ a été mesurée dans une microcellule Cs-Ne de technologie comparable et chauffée à 81 °C. On estime à partir de cette mesure un taux de perméation de $K = 3.5 \pm 0.2 \times 10^{-22}$ à 70 °C (proche de $K = 5.7 \pm 0.7 \times 10^{-22}$ à 81 °C [87]).

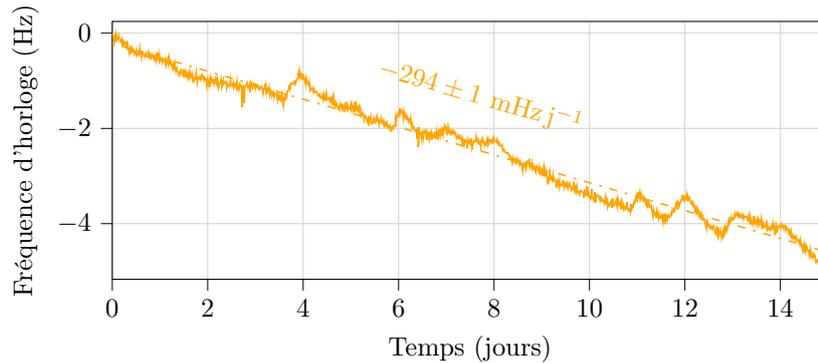


FIGURE 3.11 – Fréquence d'horloge en fonction du temps avec une cellule Cs-Ne à base de BSG en mode SABR-CPT.

Les mêmes procédés de fabrication ont été utilisés pour fabriquer des cellules Cs-Ne à base d'ASG. Deux wafers ont été réalisés, mais seul le deuxième a donné des résultats satisfaisants tandis que le premier était affecté par des problèmes de pollution à l'azote lors de la deuxième soudure anodique. De ce premier wafer, seule une cellule dont la pollution était plus faible a pu être stabilisée (en terme de pression) et mesurée sur le banc 6-cellules. Pendant près de 4 mois de mesure, une dérive positive de 0.03 Hz j^{-1} a été mesurée, compatible avec une stabilité de fréquence de quelques 10^{-12} à une journée d'intégration et bien en-deçà de la limite de 3×10^{-11} attribuée aux cellules à base de BSG. Les cellules du wafer ont été activées et vieilles avant d'être implémentées sur le banc SABR-CPT présenté dans le chapitre 2. La figure 3.12 présente un exemple d'un tel vieillissement où on constate que la fréquence d'horloge se stabilise après quelques semaines.

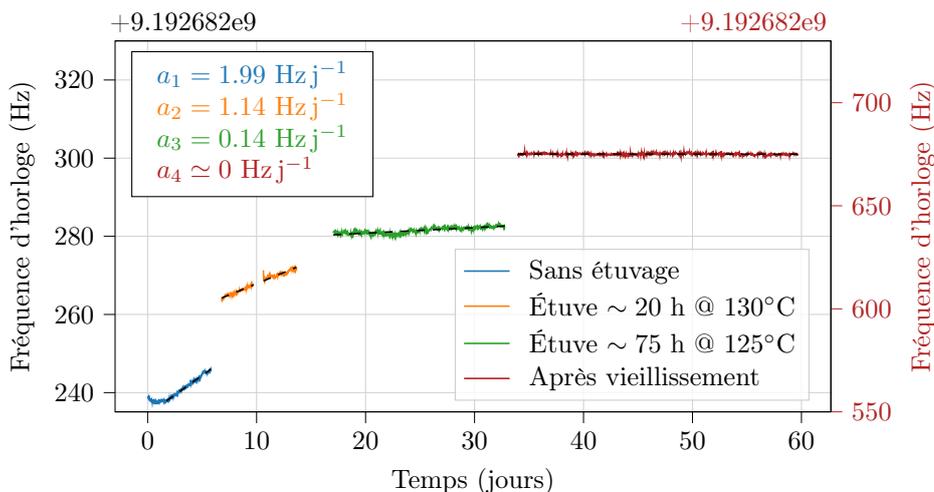


FIGURE 3.12 – Évolution de la fréquence d'horloge d'une cellule Cs-Ne à verre ASG après différentes étapes d'étuvage.

La figure 3.13 est un zoom sur la dernière portion de mesure de la figure 3.12. Ici, la dérive mesurée pendant 25 jours est particulièrement faible, généralement inférieure à la résolution du banc de mesure. Ces mesures de fréquence d'horloge seront présentées plus en détail dans le chapitre 4, mais cette cellule a permis d'atteindre une

stabilité relative de fréquence à 1 jour de 1.4×10^{-12} , lorsque couplée à une séquence impulsionnelle SABR-CPT. Le taux de perméation correspondant pour le néon à travers le verre ASG est de l'ordre de $10^{-24} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1} \text{ Pa}^{-1}$. Ces mesures démontrent une augmentation significative de l'herméticité des cellules vis-à-vis du néon.

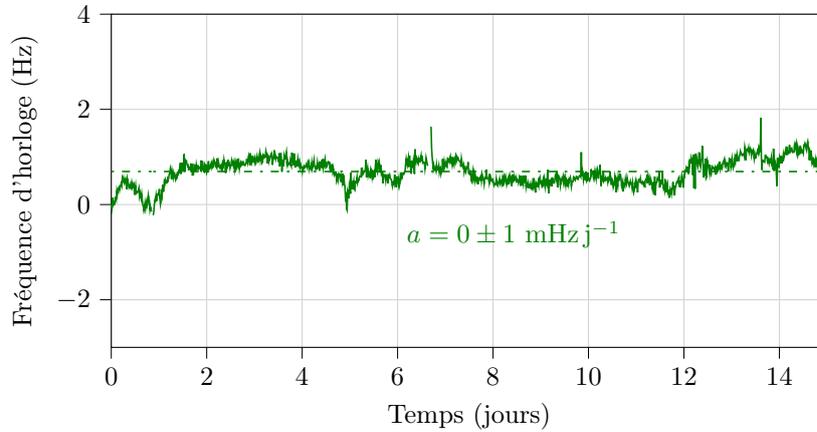


FIGURE 3.13 – Mesure de la fréquence d'horloge sur une cellule à base d'ASG remplie de néon. La régression linéaire est tracée en pointillés verts.

De manière similaire à l'étude sur l'hélium, nous avons également testé des cellules à base de BSG avec un dépôt de revêtement d'alumine comme barrière de perméation pour le néon. Un autre wafer a donc été fabriqué dans ce but avec des couches similaires à celles utilisées pour réduire la perméation de l'hélium (20 nm d'épaisseur déposés par ALD). Bien que plusieurs cellules soient toujours en mesure, une première a été vieillie (3 jours en étuvage) et caractérisée.

Les mesures à ce stade (réalisées pendant une semaine), montrées dans la figure 3.14, démontrent une dérive négative de -0.03 Hz j^{-1} qui correspond à une stabilité de fréquence de l'ordre de 5×10^{-12} à une journée. Dans ce test préliminaire, la contribution des variations de puissance microonde semble jouer un rôle important et il est nécessaire de relancer une campagne de mesure pour identifier le facteur limitant et le potentiel de ces cellules. Néanmoins, cette stabilité préliminaire est d'ores et déjà 6 fois meilleure que celle obtenue à partir de cellules à base de BSG non traitées à l'alumine et démontre ainsi l'intérêt des dépôts d' Al_2O_3 pour accroître l'herméticité vis-à-vis du néon.

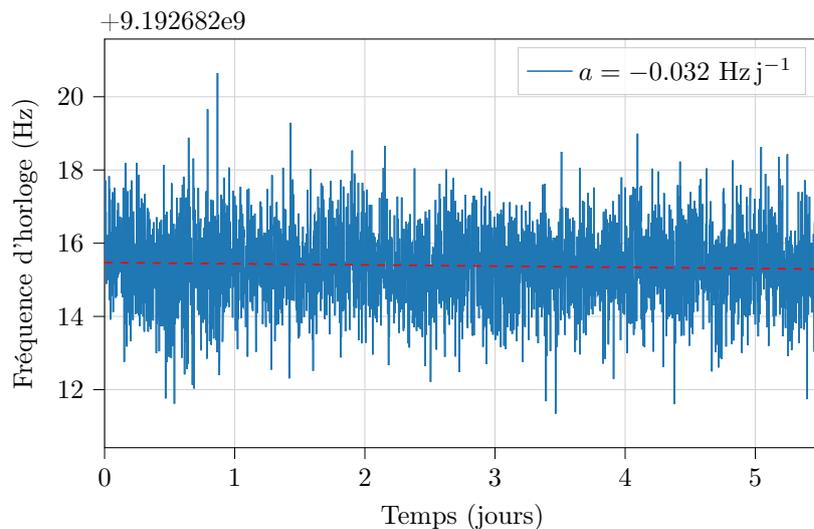


FIGURE 3.14 – Mesure de la fréquence d'horloge sur une cellule Cs-Ne avec verre BSG et dépôt d'alumine. La pente de la régression linéaire tracée en pointillés rouges est de -0.032 Hz j^{-1} .

3.3 Mélanges de gaz : vers des micro-horloges à haute température

Le point de fonctionnement en température de cellules millimétriques gravite usuellement entre 80 °C et 120 °C afin d'assurer une densité atomique suffisante. Dans une majorité des conceptions de micro-horloges, les éléments Peltier, qui pourraient permettre de refroidir la cellule quand la température ambiante est plus élevée, ne sont pas retenus à cause de leur consommation excessive de puissance. Il est ainsi plus efficace de maintenir la cellule à une température plus élevée que la température ambiante maximale, à condition que la cellule soit suffisamment isolée thermiquement. Avec cette conception, la température de la cellule définit en conséquence une des limites hautes de la plage en température de l'horloge.

3.3.1 Les limites du néon

Les horloges CPT du laboratoire utilisent historiquement des cellules avec du néon comme gaz tampon unique. D'après la littérature, le néon permet l'obtention d'une température d'inversion vers 79 °C [187]. La figure 3.15 montre la sensibilité prédite de la fréquence d'horloge à césium en fonction de la température de cellule, en Hz Torr^{-1} , en présence de néon [53].

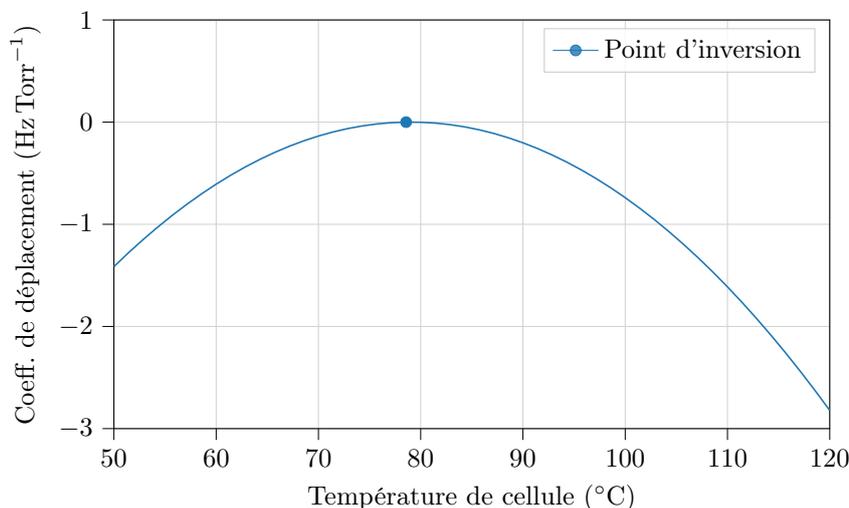


FIGURE 3.15 – Sensibilité de la fréquence d'horloge en Hz Torr^{-1} , en fonction de la température de cellule, pour une cellule Cs-Ne, prédite à partir des coefficients donnés dans [53].

Cependant, cette solution n'est pas optimale pour une micro-horloge dédiée à opérer dans des environnements à plus haute température. Avec le néon comme seul gaz tampon, utiliser l'horloge à des températures plus élevées induira nécessairement une forte augmentation de la sensibilité à la température, risquant de dégrader la stabilité et les performances de l'horloge. À titre d'exemple, plaçons-nous dans la situation du développement d'une horloge haute performance avec une stabilité relative de fréquence souhaitée de 10^{-12} à la journée et une stabilité de température de cellule de ± 50 mK. À partir de la sensibilité à la température donnée sur la figure 3.15, cette stabilité sera atteinte pour une sensibilité maximale de 0.18 Hz K^{-1} , i.e. une température de cellule de $79.4 \text{ }^{\circ}\text{C}$. En d'autres termes, un décalage supérieur à $0.4 \text{ }^{\circ}\text{C}$ du point d'inversion entraînera une détérioration de la stabilité. Enfin, travailler avec du néon à $100 \text{ }^{\circ}\text{C}$ induira une sensibilité d'autant plus grande, limitant la stabilité de fréquence à 2.7×10^{-11} à la journée. Les horloges commerciales actuelles imposent souvent une plage en température jusqu'à $85 \text{ }^{\circ}\text{C}$ pour cette raison. En pratique, une marge doit être conservée entre la température de la cellule et la température ambiante maximale pour prendre en compte la dissipation thermique du laser et de l'électronique avoisinante. Nous supposons que la température de la cellule doit être au moins de $95 \text{ }^{\circ}\text{C}$ pour opérer en sécurité dans un environnement à $85 \text{ }^{\circ}\text{C}$. Cette stabilité d'horloge peut être acceptable dans le cadre de certaines applications. Nous présentons dans la suite des solutions alternatives afin de proposer des cellules à haute performance.

Avec l'utilisation d'un gaz unique, la température d'inversion ne peut pas être ajustée. Il est ainsi intéressant d'envisager l'utilisation de mélanges de gaz tampon afin de pouvoir ajuster la température d'inversion, et particulièrement dans notre cas à des températures plus élevées. Le point d'inversion en température du néon peut être décalé vers les plus hautes températures en ajoutant par exemple de l'hélium, pour lequel la dépendance

en température est positive et approximativement linéaire (figure 3.16(a)). Le mélange Ne-He est compatible avec la pastille de césium. L'inconvénient de ce mélange de gaz est sa bien plus grande volatilité, pour laquelle l'herméticité des cellules doit être améliorée, par exemple en utilisant des substrats de verres faiblement perméables. Il faut par exemple réaliser un mélange avec 4.7 % d'hélium et 95.3 % de néon pour obtenir un point d'inversion à 100 °C.

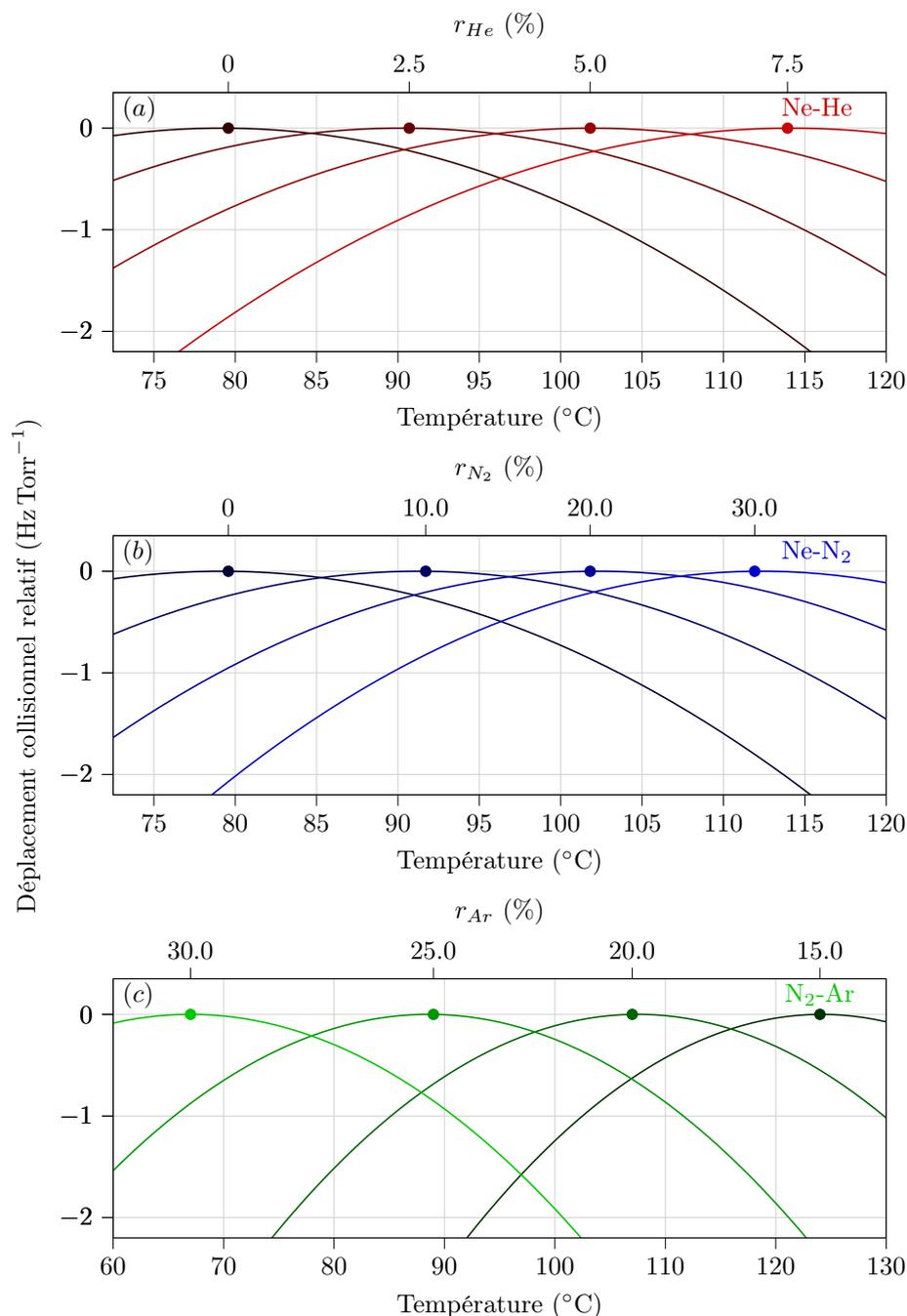


FIGURE 3.16 – Sensibilité prédite de la fréquence d’horloge en Hz Torr⁻¹ pour une cellule de césium, en fonction de la température de cellule et du ratio de gaz pour un mélange Ne-He (a), Ne-N₂ (b) et N₂-Ar (c).

Le mélange N₂-Ar est aussi envisageable (figure 3.16(b)). Ce mélange est particulièrement attractif car le point d’inversion de l’azote de 164 °C peut être décalé vers les basses températures en ajoutant de l’argon, qui présente un coefficient en température linéaire et négatif. Ce mélange est largement adopté dans les micro-horloges [108, 250]. Un mélange avec 22 % d’argon et 78 % d’azote permet de déplacer le point d’inversion à 100 °C. Cependant, on rappelle une nouvelle fois que la pastille de césium est incompatible avec l’azote, ce qui empêche la réalisation de ce mélange avec notre technologie de cellule.

3.3.2 Mélange Ne-He : étude de faisabilité

Le désavantage principal d'un mélange Ne-He est la grande volatilité de l'hélium. Une étude réalisée en 2015 au laboratoire [90] avait pour objectif d'évaluer le potentiel d'un mélange Ne-He avec des verres BSG dans une horloge CPT. Le déplacement en température du point d'inversion vers les plus hautes températures a été mis en évidence. Cependant, une perte de gaz tampon a aussi été soulignée, modérant le bénéfice réel de ce mélange avec des verres BSG. Néanmoins, les résultats obtenus récemment dans notre étude sur la perméation de l'hélium nous conduisent désormais à reconsidérer ce mélange. D'ailleurs, la proportion d'hélium, de même que la pression associée (de quelques Torr), reste faible pour la plage de température visée (90 – 100 °C), ce qui est d'autant plus favorable par rapport à l'amplitude des pertes d'hélium par perméation.

La figure 3.17 montre la température d'inversion pour un mélange Ne-He en fonction de la concentration d'hélium. On calcule qu'un mélange avec environ 4.7 % d'hélium conduirait à une température d'inversion de 100 °C.

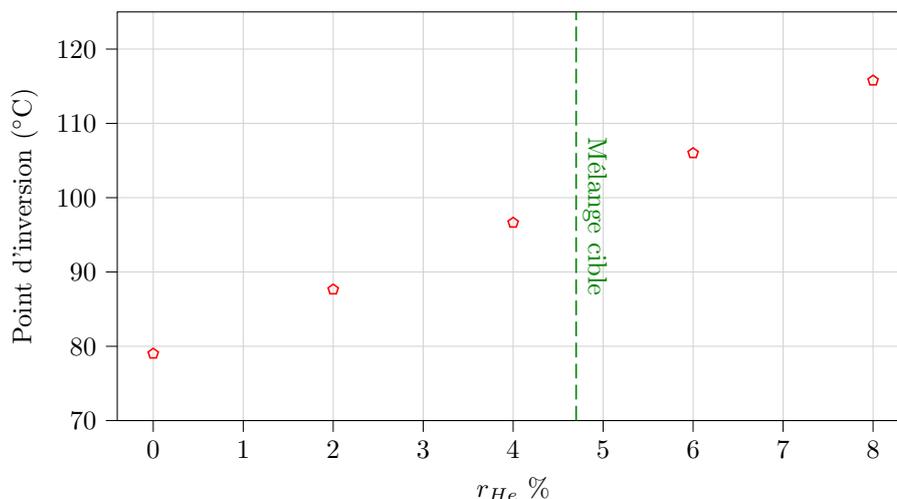


FIGURE 3.17 – Température d'inversion en fonction de la concentration d'hélium dans une cellule Cs-Ne-He.

La figure 3.18 est une simulation de l'évolution de la fréquence d'horloge et de la pression en gaz tampon pour une cellule BSG Cs-Ne-He avec 4.7 % d'hélium opérant à 100 °C. Cette simulation est obtenue en estimant les fuites d'hélium via le taux de perméation mesuré dans l'étude précédente.

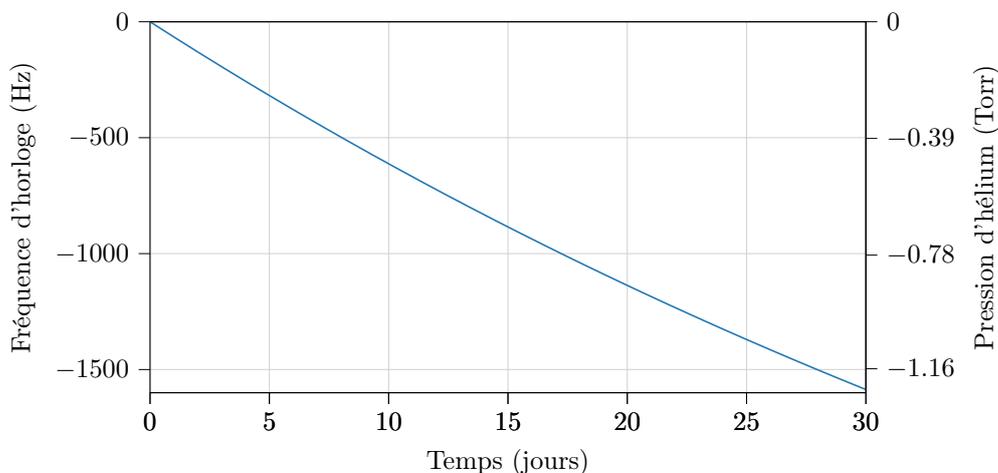


FIGURE 3.18 – Simulation de l'évolution de la fréquence d'horloge (axe vertical gauche) et de la pression d'hélium (axe vertical droit) pour cellule Cs-Ne-He à base de BSG avec 4.7 % d'hélium à 100 °C.

Avec cette cellule, il peut être estimé une dérive en fréquence limitant la stabilité aux niveaux de $4 - 7 \times 10^{-9} \text{ j}^{-1}$, dont la valeur élevée est majoritairement liée à la perméation de l'hélium. Ces niveaux sont bien au-dessus des spécifications imposées par les applications visées par une horloge atomique ($< 10^{-11} \text{ j}^{-1}$). L'utilisation d'une cellule BSG n'est ainsi pas compatible avec ce mélange. La figure 3.19 correspond à une simulation équivalente, cette fois avec une cellule à base d'ASG. La stabilité de fréquence, limitée par la perméation de l'hélium, est à présent réduite au niveau de 4.5×10^{-11} à une journée. Cette dernière pourrait davantage être réduite avec l'ajout de revêtements en Al_2O_3 , probablement autour de 10^{-11} à une journée. Ainsi, le mélange Cs-Ne-He est envisageable pour la génération de cellules haute-performances à haute température avec l'utilisation d'ASG et de dépôts d'alumine.

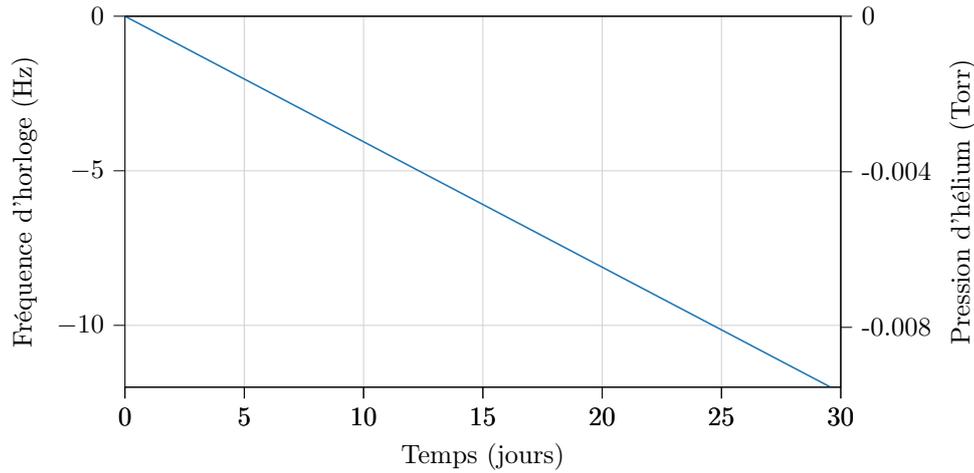


FIGURE 3.19 – Simulation de l'évolution de la fréquence d'horloge (axe vertical gauche) et de la pression d'hélium (axe vertical droit) pour une cellule Cs-Ne-He à base d'ASG avec 4.7 % d'hélium à 100°C .

Dans le cas de l'utilisation d'une cellule Cs-Ne-He, il faut aussi considérer que la variation de la pression d'hélium dans le temps induit par la perméation engendrera une dérive progressive de la température d'inversion. On peut ainsi calculer, comme représenté sur la figure 3.20, que le point d'inversion, avec une cellule à base d'ASG, se déplacera approximativement de -0.8°C après 422 jours à 100°C . Une fois de plus, ce résultat peut être certainement amélioré pour atteindre quelques années en présence de couches d' Al_2O_3 .

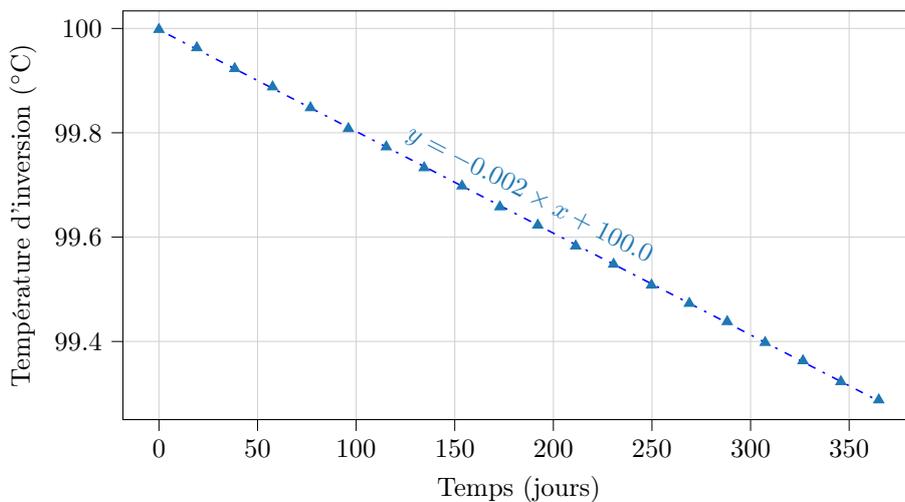


FIGURE 3.20 – Déplacement du point d'inversion en fonction du temps pour une cellule Cs-Ne-He à base d'ASG à 100°C . Le déplacement calculé est supposément induit par une perméation progressive de l'hélium en dehors de la cellule.

3.3.3 Cellule Cs-Ne-He avec mélange réalisé dans la chambre de soudure anodique

Un premier wafer de cellules à base d'ASG (sans dépôt d'alumine) a été fabriqué avec un mélange Ne-He spécifié à 4.7 % d'hélium. Le mélange a été directement généré dans la chambre de soudure anodique avec un remplissage séquentiel des gaz. A l'issue de la fabrication et de l'activation de la cellule, une mesure de la fréquence d'horloge CPT en fonction de la température a été effectuée afin d'identifier la position du point d'inversion. La figure 3.21 montre cette mesure. Une approximation avec l'expression du déplacement collisionnel permet d'extrapoler la position du point d'inversion.

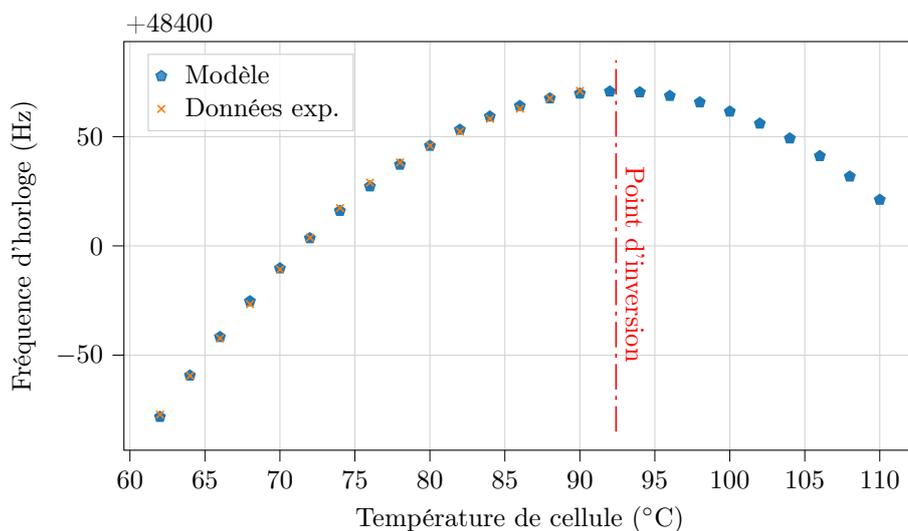


FIGURE 3.21 – Fréquence d'horloge en fonction de la température de cellule à base d'ASG pour une cellule Cs-Ne-He avec un mélange dans la chambre de soudure anodique.

Le point d'inversion est extrapolé à 92.4 °C, et correspond à un mélange avec seulement 3 % d'hélium. Cette différence avec le mélange cible peut être expliquée par de nombreux paramètres expérimentaux, tels que les conditions thermiques dans la chambre de soudure qui évoluent avec l'injection des gaz, les gradients de températures qui sont établis entre les wafers, les jauges de pression dans la chambre qui ne sont pas calibrées pour utiliser plusieurs gaz, etc. Un calibrage dépendant de l'équipement serait donc nécessaire. Cependant, la mesure du point d'inversion à 92.4 °C confirme la viabilité d'un mélange Ne-He pour augmenter la plage opérationnelle de température des cellules.

Afin de vérifier la qualité de la cellule, nous avons mesuré la stabilité de la fréquence d'horloge à une température de 90 °C pendant plusieurs jours. La figure 3.22 montre la trace temporelle de cette mesure ainsi que sa déviation d'Allan.

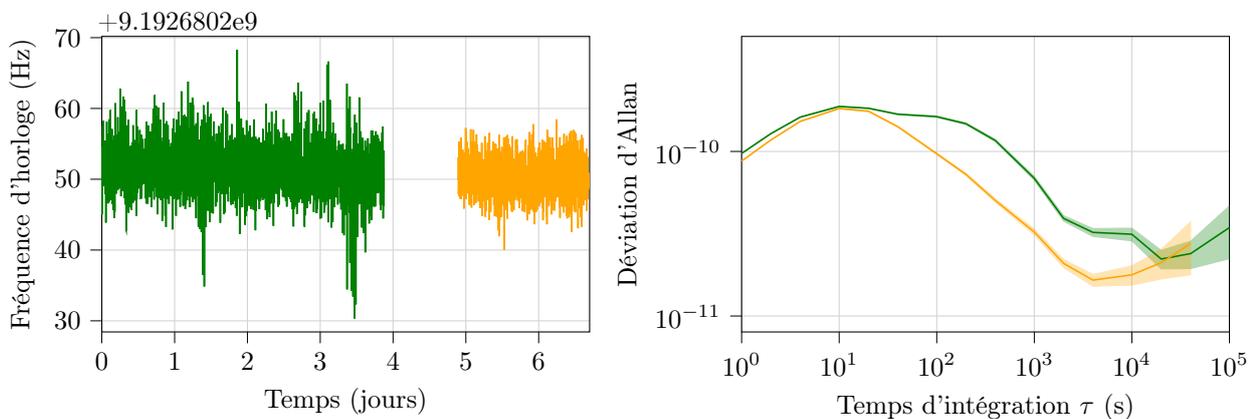


FIGURE 3.22 – Fréquence d'horloge et sa déviation d'Allan pour une cellule de césium à base d'ASG avec un mélange Ne-He préparé dans la chambre de soudure anodique. Les mesures sont réalisées à $T_{cell} = 90$ °C.

La stabilité relative de fréquence d'horloge est de à $3.4 \pm 1.2 \times 10^{-11}$ à une journée d'intégration. Cette valeur, même si dérivée d'une mesure effectuée à 90 °C, est en bon accord avec la valeur annoncée précédemment de 4.5×10^{-11} limitée par la perméation de l'hélium à 100 °C. Cette mesure démontre la capacité de ces cellules à faible perméation d'exploiter les mélanges de gaz à base d'hélium. L'ajout de dépôts d'alumine pourrait de plus accroître cette capacité.

3.3.4 Concept de vannes ouvranes pour des mélanges à pondération contrôlée

La technologie de vannes ouvranes microfabriquées, initiée et proposée à FEMTO-ST par Vincent Maurice en 2016 pendant ses travaux de thèse [29], pourrait répondre à la problématique du contrôle fin d'un mélange de gaz. Dans cette approche, schématisée sur la figure 3.23, des vannes ouvranes sont créées en formant une paroi isolant deux cavités structurées dans un substrat de silicium. Les cavités sont gravées comme précédemment par gravure DRIE. La première cavité n'est pas traversante et peut ainsi être scellée durant la première soudure anodique sous atmosphère du gaz tampon A. La seconde cavité est traversante et est donc scellée seulement durant la seconde soudure anodique sous atmosphère de gaz tampon B. A l'issue de la fabrication et de l'activation de la pastille de césium, la paroi peut être ouverte afin de créer une atmosphère avec le mélange des gaz A+B. L'étude présentée ci-dessous porte sur la démonstration de ce principe à partir de réservoirs remplis de néon.

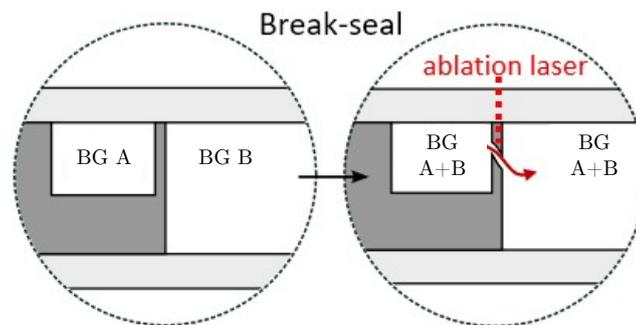


FIGURE 3.23 – Principe des vannes ouvranes. Une cavité réservoir contient un gaz A (BG A) et la cavité principale à un gaz B (BG B). Le mélange de gaz A+B (BG A+B) est obtenu en cassant la paroi de silicium séparant les deux cavités. Figure extraite de [202].

Le principe des vannes ouvranes est démontré sur des cellules de même dimensions que précédemment, i.e., 4 mm × 6 mm. Ici, un ensemble de cavités non traversantes sont disposées autour de la cavité optique pour servir de réservoirs de gaz (figure 3.24(a)). Durant l'assemblage de la cellule, les réservoirs sont remplis avec 186 Torr de néon (pression équivalente à 70 °C). Dans ce but, la première soudure anodique entre la couche de verre supérieure et la préforme en silicium est réalisée sous atmosphère de néon à 350 °C avec une pression de plusieurs centaines de Torr afin que la pression souhaitée soit atteinte après refroidissement. Ensuite, après l'introduction de la pastille de césium, la seconde soudure anodique de la couche inférieure de verre est réalisée sous vide.

Durant la seconde soudure, la différence de pression entre les cavités et les forces appliquées sur la paroi en silicium peuvent être élevées. Les parois en silicium séparant les réservoirs de gaz de la cavité optique doivent être de ce fait suffisamment épaisses pour supporter la différence de pression et assurer une herméticité avant leur ouverture, tout en restant suffisamment fines pour être cassées facilement. L'épaisseur de la paroi entre les réservoirs varie entre 50 et 400 μm au maximum (figure 3.25 et 3.24(b)), tandis qu'une épaisseur de silicium de 500 μm entre les réservoirs et les bordures de la cellule est conservée. Au total, 18 cellules ont été produites à partir de ce seul wafer. Après leur activation, l'ensemble de ces cellules montraient initialement une atmosphère évacuée dans la cavité principale, justifiée par des largeurs d'absorptions autour de 400 MHz à 70 °C.

La figure 3.26 est un extrait du masque de fabrication de cellules avec des tailles variables de réservoirs et des formes permettant de réduire les contraintes dans la cellule. Avec cette conception, le volume de gaz dans les réservoirs est relativement faible en comparaison du volume total de la cellule. La pression initiale dans les réservoirs doit alors être fixée en conséquence.

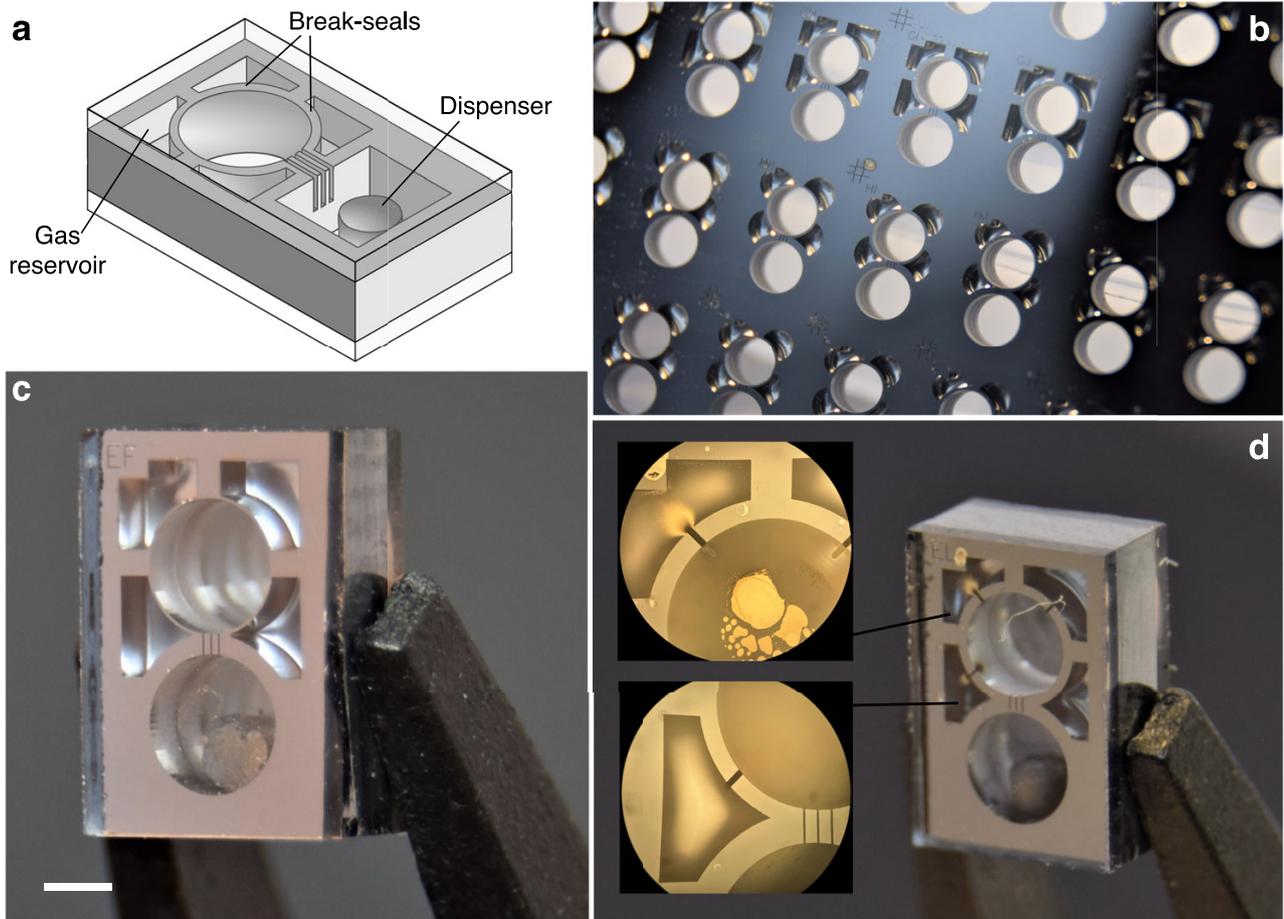


FIGURE 3.24 – (a) Schéma de démonstration des vannes ouvrantes. (b) Vue de dessus d'un wafer de cellule avec différentes formes de réservoirs. (c) Cellule individuelle coupée, avec des membranes de $50\ \mu\text{m}$ d'épaisseur séparant les réservoirs et de la cavité principale. (d) Canaux entre les cavités générés par ablation des membranes en silicium avec un laser femtoseconde. Cette cellule a été monitorée pendant presque 6 mois, durant lesquels 3 des réservoirs ont été séquentiellement ouverts. Figure extraite de [202].

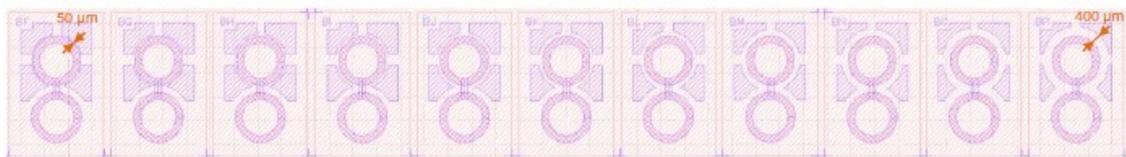


FIGURE 3.25 – Extrait du masque de fabrication des réservoirs avec une épaisseur de membrane en silicium variable (entre $50\ \mu\text{m}$ et $400\ \mu\text{m}$).



FIGURE 3.26 – Extrait du masque de fabrication des réservoirs avec une épaisseur de membrane en silicium variable (entre $50\ \mu\text{m}$ et $400\ \mu\text{m}$) et une conception de réservoirs différentes de la configuration précédente.

Par exemple, pour la conception avec les réservoirs carrés (figure 3.25), le ratio entre le volume des réservoirs et le volume total de la cellule (équivalent au volume de toutes les cavités) est donné dans le tableau 3.2 pour une profondeur de réservoir de 750 μm , correspondante à la moitié de l'épaisseur du substrat de silicium, et différentes épaisseurs de la paroi séparant les réservoirs de la cavité principale.

Épaisseur de paroi (μm)	Rapport volume des réservoirs / volume total
50	24.61 %
75	23.94 %
100	23.24 %
125	22.50 %
150	21.74 %
200	20.10 %
250	18.31 %
300	16.35 %
350	14.20 %
400	11.84 %

TABLE 3.2 – Rapport entre le volume des réservoirs et le volume total de la cellule vide (sans pastille de césium) en fonction de l'épaisseur de la membrane de silicium séparant les réservoirs de la cavité optique.

Le tableau 3.3 rapporte l'estimation de la pression finale des cellules vides une fois les quatre réservoirs ouverts, pour trois pressions initiales de réservoirs (toujours en considérant une profondeur de réservoir de 750 μm). Malgré de petites différences de volume entre les réservoirs disposés autour de la cavité, l'incrément de pression attendu à la suite de l'ouverture d'un seul réservoir est proche d'un quart de la pression finale annoncée dans le tableau 3.2.

Épaisseur de membrane (μm)	P_f (Torr) ($P_i = 400$ Torr)	P_f (Torr) ($P_i = 300$ Torr)	P_f (Torr) ($P_i = 200$ Torr)
50	98.43	73.82	49.22
75	95.75	71.81	47.88
100	92.95	69.71	46.47
125	90.02	67.51	45.01
150	86.95	65.21	43.48
200	80.40	60.30	40.20
250	73.24	54.93	36.62
300	65.39	49.05	36.70
350	56.80	42.60	28.40
400	47.36	35.52	23.68

TABLE 3.3 – Pression finale P_f attendue dans la cellule (une fois tous les réservoirs ouverts) en fonction de l'épaisseur de la membrane en silicium pour 3 configurations de pressions initiales P_i de réservoirs (à 70°C).

Une ablation par laser femtoseconde des parois a été utilisée pour ouvrir séquentiellement les réservoirs de gaz de 5 de ces cellules (figure 3.24(d)). Le laser est focalisé sur la paroi en silicium située en dessous de la couche de verre supérieure afin que cette dernière reste in affectée. Une ablation progressive des cavités réservoirs doit permettre d'ajuster la pression par étape. Des mesures par spectroscopie laser ont été réalisées après chaque ouverture d'un réservoir, comme montré sur la figure 3.27 pour une cellule avec une paroi de réservoir de 200 μm d'épaisseur.

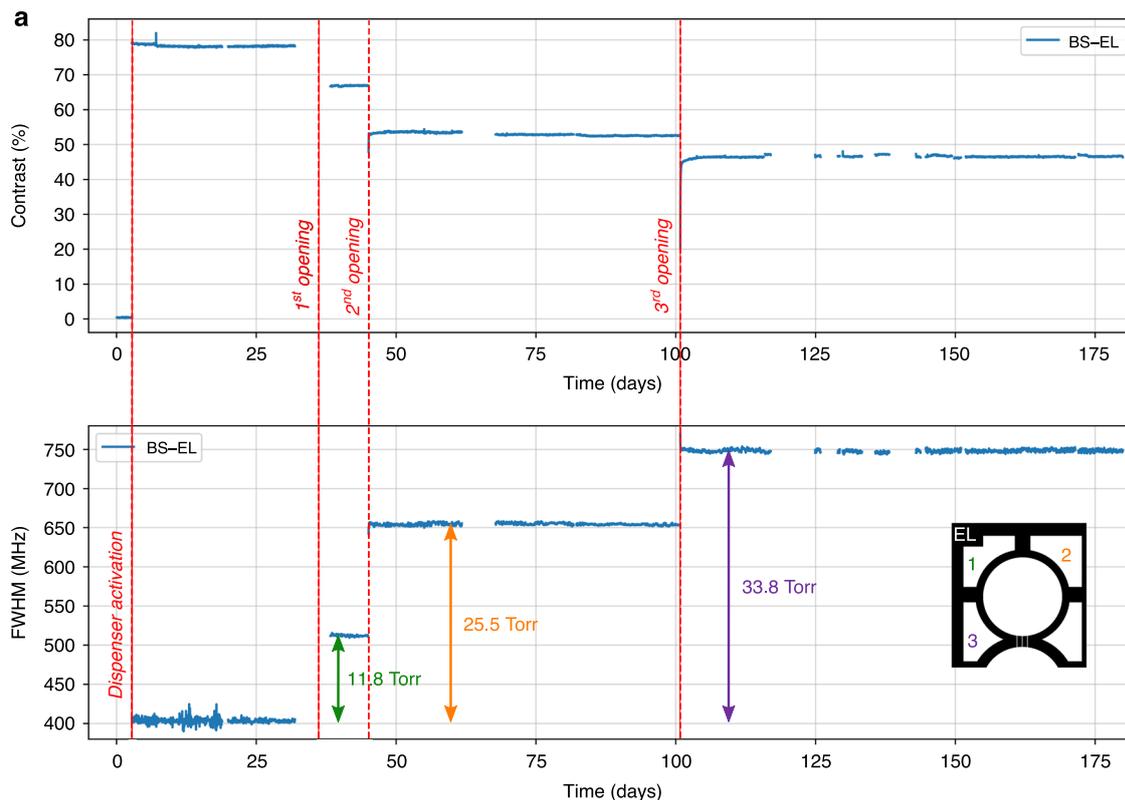


FIGURE 3.27 – La cellule montrée sur la figure 3.24 a été monitorée par spectroscopie linéaire d’absorption pendant presque 6 mois, durant lesquels 3 réservoirs ont été séquentiellement ouverts. Ces ouvertures sont clairement identifiables sur les évolutions du contraste et de la largeur à mi-hauteur des profils d’absorptions enregistrés pendant l’ouverture par étape des vannes ouvrantes, où le contraste diminue tandis que la largeur à mi-hauteur augmente incrémentalement. Figure extraite de [202].

Dans la configuration la moins favorable, pour une cellule avec des membranes de réservoir les plus épaisses et une pression initiale dans les réservoirs de 200 Torr, l’incrément de pression devrait être de l’ordre de 5–6 Torr par réservoir ouvert. Il est normalement possible d’observer et de monitorer des variations de cet ordre de grandeur avec notre banc de spectroscopie linéaire dont la résolution est d’environ 0.5 Torr. Dans un premier temps, on active les pastilles de césium pour libérer le césium pur dans la cavité optique. Ceci augmente le contraste à 78 % et la largeur mesurée est de 405 MHz, en accord avec les valeurs mesurées en parallèle sur une grosse cellule à verre soufflé à température ambiante (en soustrayant la contribution de la différence de température). La première ouverture de réservoir, réalisée sur le réservoir supérieur gauche, libère du néon dans les cavités principales et fixe la pression à 11.8 ± 0.5 Torr. Les ouvertures suivantes de réservoirs incrémentent par étape la pression de 25.5 et 33.8 Torr. Ces valeurs restent constantes pendant de nombreuses semaines après chaque ouverture. De telles valeurs, dérivées des mesures de spectroscopie, sont en très bon accord avec les pressions attendues (12.5, 25.0 et 33.7 Torr) et calculées à partir de la quantité introduite durant la fabrication et le rapport entre les volumes des réservoirs et des cavités. Ceci suggère que l’éventuel dégazage associé à l’ablation de la paroi reste modéré. Ce comportement est observé sur les 5 cellules testées (bien que moins de réservoirs aient été ouverts sur les autres cellules). En conséquence, cette approche peut assurer un contrôle de la pression interne de la cellule à moins de 1 Torr près.

En complément de la spectroscopie linéaire, nous avons monitoré 3 des cellules avec une configuration d’horloge CPT pour évaluer les taux de fuite à travers les parois des réservoirs restés intacts, avec une meilleure résolution. Parmi ces cellules, 2 ont été testées après l’ouverture de 2 réservoirs sur 4 de façon à ce que les 2 autres réservoirs restent à leur pression initiale. Quand les cellules sont mesurées, les réservoirs contiennent environ 186 Torr de néon tandis que les cavités principales n’en contiennent que ~ 20 Torr. Pour la plupart des cellules, la dérive de la fréquence CPT a été trouvée similaire à des cellules standards (sans réservoirs et remplies avec du néon directement), à l’exception de la cellule avec une membrane très fine (50 μm) où une légère fuite a été mesurée (de l’ordre de 3 mTorr j^{-1} ou 4×10^{-3} mbar j^{-1}). Pour la cellule avec une membrane de 200 μm , les

mesures d'horloge CPT réalisées après l'ouverture de trois réservoirs révèlent une dérive de l'ordre de 0.06 Hz j^{-1} durant 31 jours (3.28), qui pourrait correspondre à une fuite maximale des réservoirs de néon vers la cavité optique de $10^{-4} \text{ Torr j}^{-1}$. Cette dérive étant faible, l'incertitude associée reste large à cause d'instabilités court et moyen terme de notre banc expérimental. Néanmoins, la cellule se comporte de manière similaire à d'autres cellules sans réservoirs, indiquant que les réservoirs intacts peuvent être conservés à côté de ceux fermés (afin de contrôler finement la pression) tout à long de la durée de vie de la cellule.

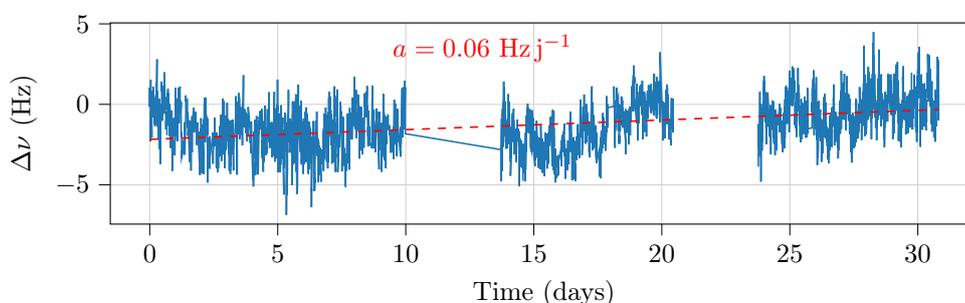


FIGURE 3.28 – La cellule de la figure 3.24 ouverte selon la séquence figure 3.27, a ensuite été mesurée sur une horloge CPT pendant environ 1 mois. La dérive de la fréquence d'horloge $\Delta\nu$ est mesurée au niveau de 0.06 Hz j^{-1} , i.e. une stabilité relative de fréquence de 6.5×10^{-12} à la journée, malgré la présence d'un réservoir de gaz adjacent fermé rempli avec 186 Torr de néon.

3.3.5 Cellule Cs-Ne-He par mélange avec des vannes ouvrantes

Suite à la démonstration de la technologie à vannes ouvrantes conjuguée à celle de l'étanchéité des réservoirs, on propose de fabriquer des cellules de césium exploitant des vannes ouvrantes pour avoir un meilleur contrôle des pondérations de notre mélange de gaz Ne-He. Dans ce but, le nombre de réservoirs a été multiplié afin de réduire l'incrément produit à chaque ouverture. Ainsi, la pression d'hélium peut être ajustée à la façon d'un potentiomètre.

La procédure de fabrication est similaire à celle décrite dans la section précédente. La première soudure anodique est réalisée avec une pression d'hélium visée de 50 Torr afin de remplir les réservoirs, tandis que la seconde soudure anodique est réalisée sous une atmosphère de néon avec une pression de 80 Torr (remplissant les cavités principales). De même que pour le ratio de pression entre l'hélium et le néon, la pression totale sera dépendante du nombre total de réservoirs ouverts dans le temps. La figure 3.29 est une photographie du wafer de cellules avant leur découpe.



FIGURE 3.29 – Cellules à réservoirs multiples pour réaliser un mélange de gaz Ne-He dont le ratio est contrôlé.

Nous avons dans un premier temps mesuré la température d'inversion de ces cellules après activation des pastilles de césium et avant d'ouvrir les réservoirs d'hélium. Ces cellules doivent théoriquement présenter une atmosphère de néon pur. La figure 3.30 montre la fréquence d'horloge en fonction de la température pour deux cellules dont trois mesures différentes d'une même cellule. Le point d'inversion se situe dans une plage comprise entre 75.7 et 76.3 °C. La légère différence de position du point d'inversion entre chaque cellule et chaque mesure peut être induite par une incertitude sur le température de la cellule ou un alignement optique différent lors du changement de cellule dans le module physique. On note que la position du point d'inversion est différente de 79 °C, comme estimé dans [53]. Cette différence peut être expliquée par un manque de précision des coefficients rapportés dans [53]. On note qu'une étude plus récente rapporte de nouvelles valeurs de ces coefficients, prédisant un point d'inversion en température pour le néon autour de 72.5 °C [80]. Cette différence pourrait aussi être attribuée à la présence de contaminants dans nos microcellules.

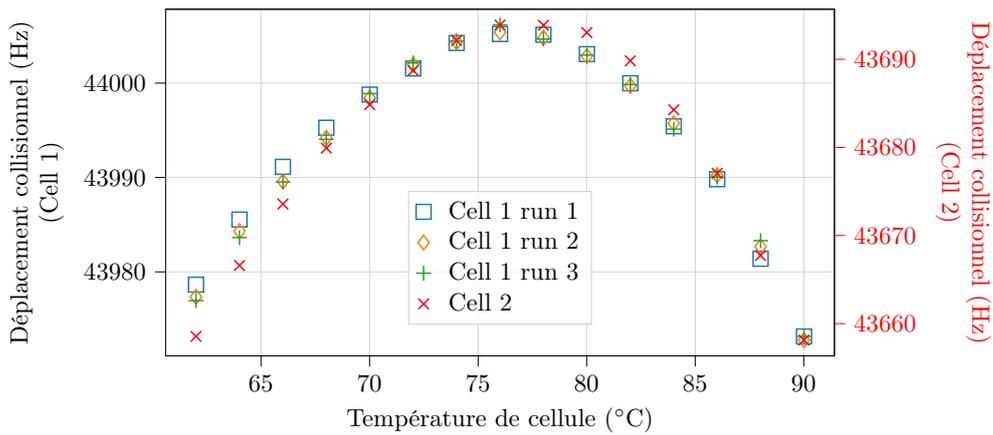


FIGURE 3.30 – Mesures du point d'inversion en température pour des cellules de Cs-Ne avec des réservoirs d'hélium fermés.

L'ouverture des réservoirs d'hélium a été réalisée comme précédemment par ablation laser femtoseconde, en deux étapes. Les premiers réservoirs ouverts sont surlignés en A dans la figure 3.31 et les seconds en B. Initialement à 76 °C, le point d'inversion a été décalé de +9 °C après l'ouverture des deux premiers réservoirs (A). La seconde étape est obtenue avec l'ouverture de 4 réservoirs supplémentaires (B). On note que le volume ouvert durant la première étape est 50 % plus grand que durant la seconde, dû au grand réservoir situé sur le côté. Ce comportement démontre une augmentation de pression d'hélium dans le mélange de gaz, consécutive à l'ouverture des réservoirs. On note cependant que le second incrément de la température d'inversion devrait être plus important, avec un point d'inversion attendu plus proche de 90 °C. Il est possible que l'ouverture de la deuxième série de réservoirs ait produit plus de contaminants, par exemple si le verre a été affecté (comme la photo 3.31(c) pourrait le suggérer).

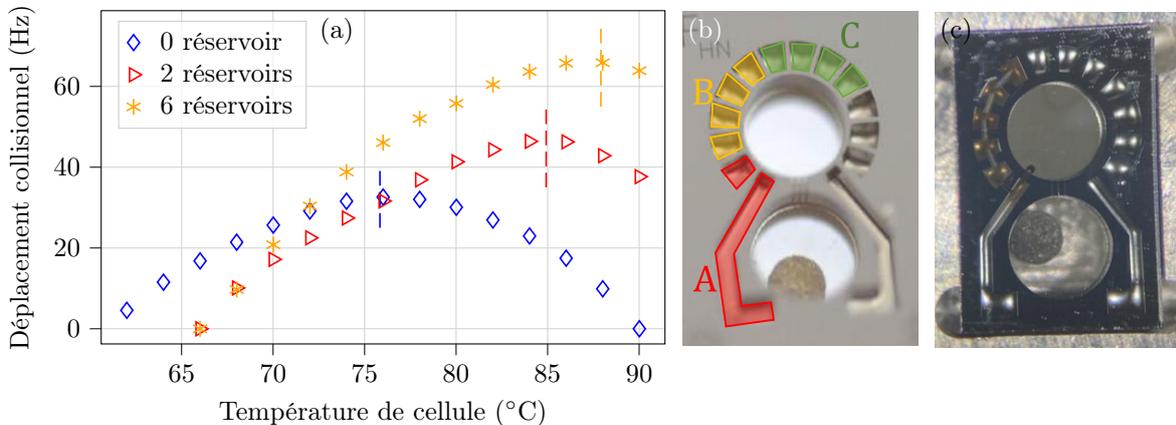


FIGURE 3.31 – Déplacement du point d'inversion en température observé après l'ouverture successive de réservoirs d'hélium. (a) fréquence d'horloge en fonction de la température lors des différentes étapes de vie de la cellule, (b) photographie de la cellule sans réservoirs ouverts et (c) après ouverture des réservoirs.

Les réservoirs restants (représentant plus de la moitié de la pression d'hélium initialement disponible) doivent encore être ouverts afin d'atteindre un point d'inversion visé de 100 °C. Enfin, nous effectuerons des mesures d'horloge pour confirmer que la lente perméation de l'hélium vers l'extérieur de la cellule ne limite pas la stabilité relative de fréquence à des niveaux au dessus de quelques 10^{-11} à la journée.

3.3.6 Saturation en azote de la pastille de césium avec les vannes ouvrantes

La limitation des performances de stabilité de fréquence d'horloge avec des cellules Cs-Ne-He à des niveaux de 10^{-11} à la journée implique de proposer d'autres mélanges de gaz tampon moins sujets à la perméation, comme Ar-N₂ ou Ne-N₂. Dans ces mélanges, l'absorption de l'azote par la pastille de césium doit être considérée. Une première solution pourrait être de fabriquer des cellules remplies avec l'un de ces mélanges et de saturer la capacité d'absorption d'azote de la pastille lors de l'activation. Cependant, durant l'activation, la température de la pastille augmente jusqu'à au moins 600 °C et la quantité d'azote absorbée est difficilement contrôlable. Ainsi, le processus d'activation n'étant pas totalement répétable, la quantité d'azote absorbée par la pastille ne serait pas toujours la même. Enfin, dans l'hypothèse où la saturation de la pastille serait effective, la pondération du mélange serait approximative. La technique des vannes ouvrantes change ces conditions. Ainsi, nous avons essayé d'injecter de l'azote et de saturer la pastille une fois l'activation réalisée et la vapeur alcaline établie. Pour cela, nous avons fabriqué des cellules avec des réservoirs remplis d'azote. Une fois la cellule activée, et qu'une vapeur saturée en alcalin est établie, les réservoirs sont ouverts pour libérer l'azote dans les cavités principales. On note que pour ce test les cellules ont l'architecture basée sur 4 grands réservoirs.

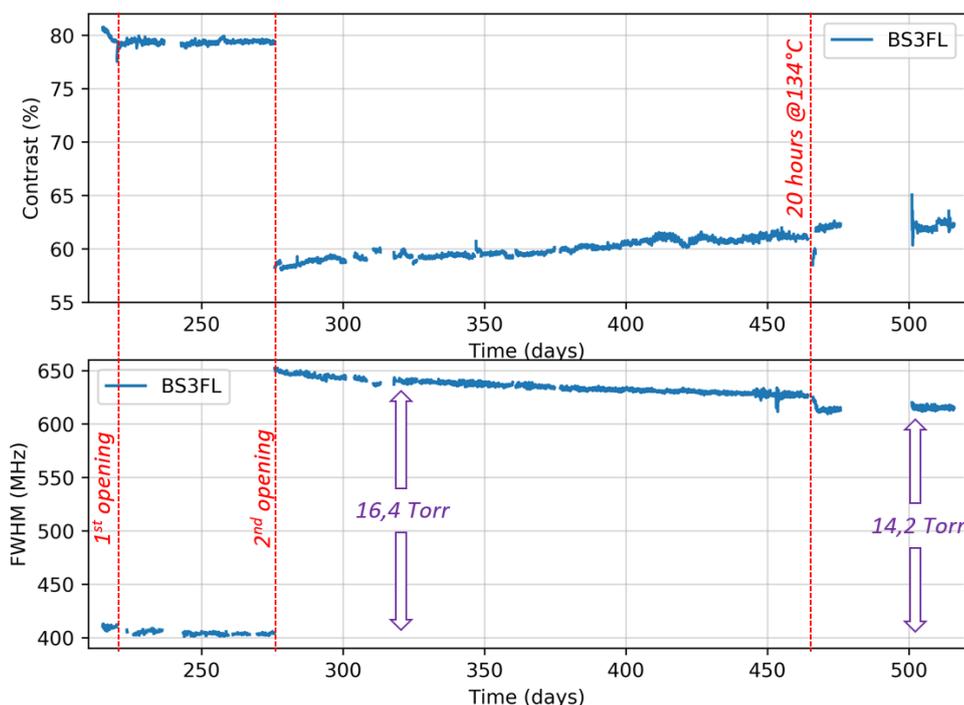


FIGURE 3.32 – Spectroscopie réalisée sur une cellule de césium avec des réservoirs de gaz remplis d'azote.

La figure 3.32 montre l'évolution du contraste et de la largeur à mi-hauteur des profils d'absorptions optiques sur près d'une année. À la suite de l'ouverture du premier réservoir d'azote, aucun élargissement n'est observé, probablement car l'ensemble de l'azote a été absorbé par la pastille. Après quelques semaines, un second réservoir a été ouvert, menant cette fois à une augmentation de la pression de gaz. Par rapport à la pression d'azote introduite dans la chambre de soudure anodique (souvent surestimée par rapport à la pression finale dans la cellule), les pressions consécutives aux ouvertures des réservoirs auraient dû être de 25.5 et 44.7 Torr au lieu de < 1 et 16.4 Torr, respectivement. On peut alors estimer que la pastille a consommé environ 30 Torr d'azote au sein du volume interne de notre cellule.

La cellule a ensuite été mesurée pendant environ 6 mois durant lesquels la pression a continué de diminuer d'environ 1 Torr ($\sim 7 \text{ mTorr j}^{-1}$). Enfin, un recuit de la cellule dans un four pendant une journée a permis de stabiliser davantage la pression en azote en accélérant le processus de vieillissement, mais la pression a continué

d'évoluer à une vitesse de $\sim -4 \text{ mTorr j}^{-1}$ durant les 6 mois suivants. Une telle variation de pression, même si relativement faible, n'est pas compatible avec les hautes performances requises par les horloges atomiques car elle limite la stabilité relative de fréquence à un niveau de 4×10^{-10} à la journée. Cependant, une telle approche pourrait tout à fait être considérée pour des magnétomètres où la pression d'azote est beaucoup plus grande et la durée d'intégration des mesures plus faible. Dans une étude récente [251], les auteurs proposent d'ailleurs d'activer séquentiellement la pastille de césium afin d'absorber et de contrôler la pression d'azote dans une cellule.

En conséquence, étant donné que la population d'azote est difficilement stabilisable et contrôlable, il est préférable d'éviter tout contact entre l'azote et la pastille de césium (pour les horloges atomiques). On propose alors dans la section suivante la démonstration d'une technologie de microfabrication pour isoler la pastille de césium du reste de la cellule au préalable de l'introduction de l'azote.

3.4 Microcellules à pureté améliorée

3.4.1 Isolation de la pastille de césium avec les vannes fermantes

L'approche de la pastille à césium pour le remplissage de la vapeur alcaline est une solution satisfaisante car elle est relativement simple à mettre en place et assure un bon remplissage en alcalin indépendamment de la quantité de gaz tampon. Cependant, elle présente encore des inconvénients tels que : une taille de cellule nécessairement plus grande pour stocker la pastille (i.e. consommation de puissance plus élevée pour la régulation en température), l'introduction d'impuretés et l'incompatibilité avec l'azote, etc. On propose alors d'utiliser l'approche des vannes fermantes, initiée par Vincent Maurice durant ses travaux de thèse [29], afin d'isoler la pastille de césium de la cellule. Dans cette nouvelle technique de remplissage, schématisée par la figure 3.33, plusieurs cellules sont reliées par des micro-canaux à une cavité unique avec une pastille de césium. Le remplissage de plusieurs cellules est réalisé par une pastille unique. Une fois que les atomes alcalins ont migré dans la cellule, une structure microfabriquée permet de sceller la cavité optique de la cellule en défléchissant une membrane de verre sur le canal de communication.

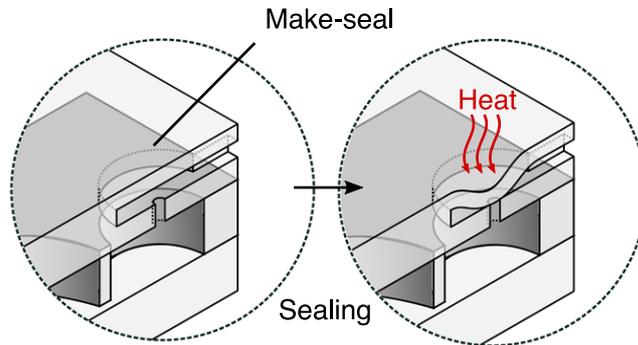


FIGURE 3.33 – Principe des vannes fermantes. La cellule est scellée en faisant défléchir une membrane de verre. Figure extraite de [202].

Afin de démontrer l'approche des vannes fermantes, nous avons conçu une structure dans laquelle les cellules sont arrangées en grappe. Chaque grappe contient entre 3 et 20 cellules reliées par des micro-canaux structurés au sein du capot de la cellule, et partagent une seule cavité source embarquant une pastille de césium (figure 3.34(a)). Les canaux sont construits en structurant une couche de silicium servant d'entretoise entre la couche de verre supérieure de la cellule et une couche supplémentaire de verre (figure 3.34(b)). L'entretoise en silicium est gravée par DRIE avant sa soudure et son épaisseur est ajustée par rodage et polissage du wafer. Une telle structure permet de connecter une cellule à ses voisines par des canaux de section $40 \mu\text{m} \times 100 \mu\text{m}$ et de longueur 5 mm. La connexion entre le canal horizontal et l'intérieur de la cavité est réalisée par un canal vertical de $500 \mu\text{m}$ de longueur et d'environ $40 \mu\text{m}$ de diamètre fabriqué par ablation laser femtoseconde.

Parmi le wafer de test contenant 200 cellules, 20 pastilles de césium ont été chargées afin de remplir 20 grappes constituées d'environ 100 cellules au total. La dernière soudure, qui ferme les grappes de cellules, est réalisée sous vide. Les cellules sont alors évacuées et ne contiennent pas de gaz tampon. L'ensemble du wafer est par la suite chargé sur le banc de spectroscopie. La première étape consiste à activer les pastilles de césium avec le laser d'activation. Les cellules sont chauffées à $70 \text{ }^\circ\text{C}$ pour favoriser la migration de l'alcalin à travers la grappe de cellules. Pour chaque grappe, les cellules sont disposées en ligne avec la cavité source située à une de

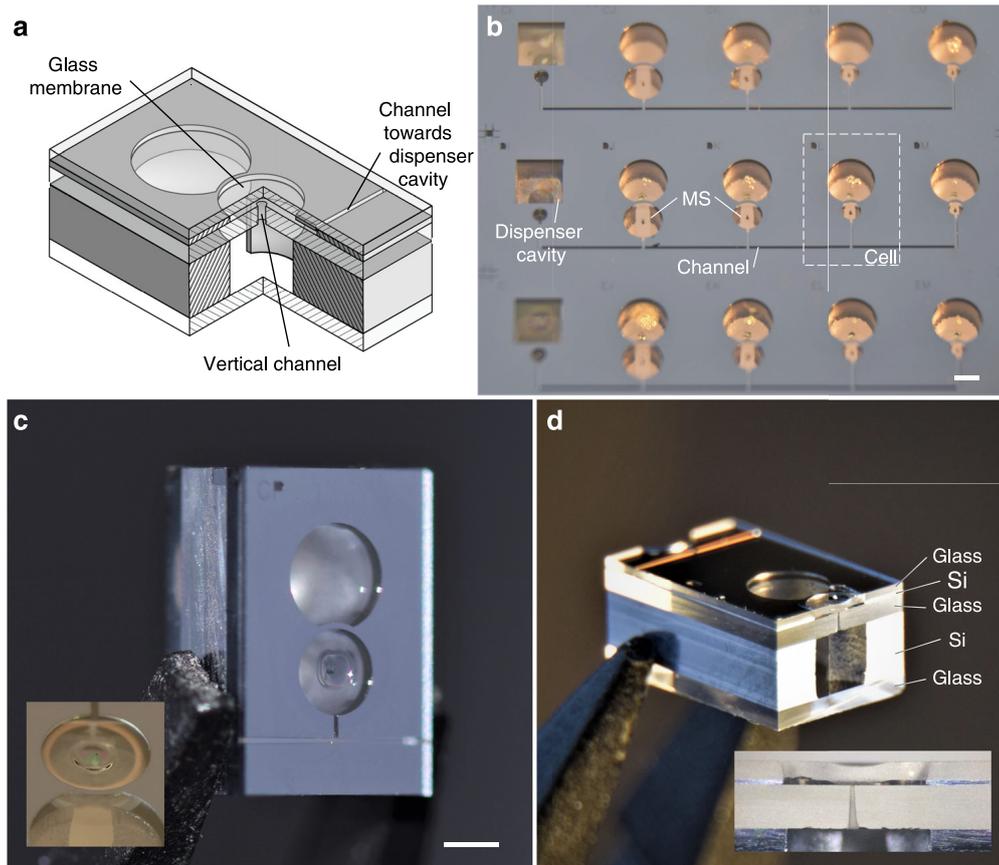


FIGURE 3.34 – Principe des vannes fermantes. La cellule est scellée en faisant défléchir une membrane de verre. Figure extraite de [202].

ses extrémités. Cette température et cette conception nous permet d’enregistrer la dynamique de remplissage pour différentes longueurs de canaux, de manière non destructive (figure 3.34(b)), en monitorant la densité de césium dans le temps. Malgré la rapidité d’activation d’une pastille (quelques secondes), la migration des atomes de césium vers les cellules est un processus très lent et le remplissage d’une ligne complète peut prendre jusqu’à plusieurs semaines. Ce comportement est causé par la géométrie non optimisée des micro-canaux, basés sur des angles droits responsables du ralentissement des atomes qui, dans une atmosphère à basse pression, ont un mouvement principalement balistique. Dans ces conditions expérimentales, il est nécessaire d’attendre deux à trois jours afin d’établir un régime de pression saturante d’une cellule à une autre (séparées de 4.3 mm). On note que le délai de remplissage pourrait être réduit avec une plus haute température et une disposition optimisée des cellules autour de la cavité génératrice.

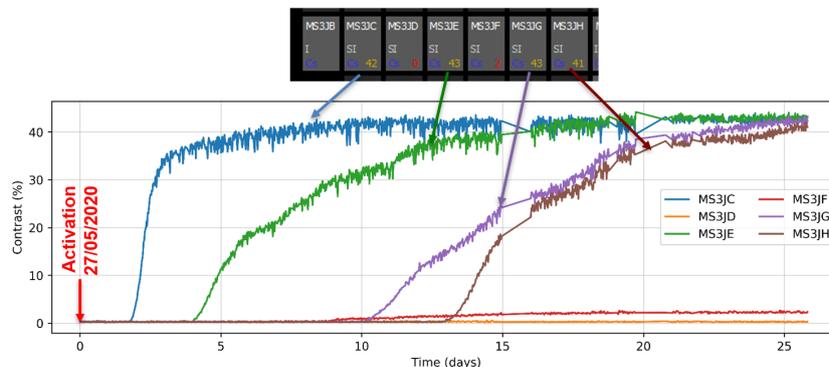


FIGURE 3.35 – Évolution du contraste de l’absorption optique dans des cellules adjacentes à la suite de l’activation de la pastille de césium. Les atomes alcalins atteignent lentement la cavité optique et en saturent la vapeur.

La figure 3.36 est un exemple d'une ligne complète de 20 cellules connectées à une unique pastille. Cette dernière a été activée plusieurs fois pour pouvoir saturer l'atmosphère de toutes les cellules en alcalin. Il est important de rappeler que la pastille contient une grande quantité d'atomes alcalins, environ 150 μg , où seulement 10^{-5} μg sont nécessaires pour saturer l'atmosphère d'une cellule. Cependant, une grande partie des atomes est consommée par les surfaces en verre et des gaz parasites présents dans la microcellule. La consommation réelle est difficilement estimable, c'est pour cette raison qu'il est préférable d'introduire une quantité suffisante avant le scellement pour s'assurer que l'atmosphère soit toujours saturante après ces pertes d'alcalin. Néanmoins, ces tests démontrent la capacité d'une pastille à remplir plusieurs dizaines de cellules.



FIGURE 3.36 – Ensemble de 20 cellules reliées à une unique cavité génératrice située sur l'extrémité gauche de la ligne. Notons que les deux cellules où le contraste est plus faible sont bien remplies mais entravées lors de la mesure par le support chauffant du wafer.

En l'absence de gaz tampon, les conditions thermiques favorisent l'activation de la pastille de césium, ce qui peut facilement mener à la libération d'une trop grande quantité d'alcalin et donc à l'apparition de condensation. La convection naturelle de l'air tend à créer des points froids situés au centre de la cavité principale dans chaque cellule, où la condensation de césium se forme au fil des jours (figure 3.34(b) et 3.37). Le processus d'activation pourrait être adapté, par exemple avec une activation par étape afin de mieux contrôler la population de césium. Nous n'avons pas considéré ces solutions lors des premières activations et observons la présence de condensation dans les cellules.

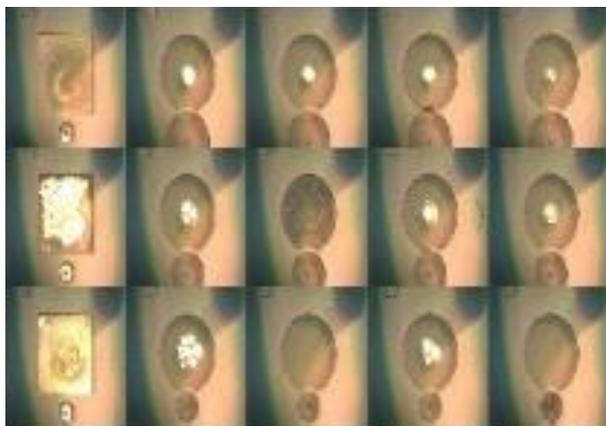


FIGURE 3.37 – Photographie de quelques grappes de cellules. Les parties plus claires correspondent à de la condensation d'alcalin sur les fenêtres.

L'excès de condensation est aussi un indicateur de l'établissement de la vapeur saturante. Ainsi, malgré un remplissage lent et un excès de condensation, le rendement de remplissage du césium est élevé avec 103 cellules sur 111 montrant une vapeur saturante, i.e. 93 %. Les 20 pastilles ont été activées avec succès et seulement 8 cellules sont restées vides car leur canal vertical n'a pas été complètement ouvert lors de leur fabrication par ablation laser. On souligne que le wafer, une fois activé, a été monitoré pendant plusieurs mois et qu'aucune fuite d'alcalin n'a été observée, confirmant la robustesse du processus de fabrication et notamment de la soudure anodique utilisée pour quatre interfaces Si-verre.

Une fois que les cellules sont remplies, elles peuvent être scellées hermétiquement du canal commun et séparées de la cavité génératrice grâce aux vannes fermantes. Dans ce but, une membrane de verre est disposée au dessus du canal vertical en amincissant le substrat de verre supérieur. Cette membrane est alors localement chauffée afin de la faire défléchir jusqu'à la bouche du canal et la sceller par fusion verre-verre. L'échauffement

local de la membrane est réalisé en focalisant le faisceau d'un laser CO₂ dont le rayonnement dans l'infrarouge à 10.6 μm est fortement absorbé par le verre. Les figures 3.34(c) et (d) montrent le défléchissement. La figure 3.38 montre le banc optique utilisé par réaliser les scelléments. Ce dernier comporte un laser CO₂, des miroirs pour haute puissance, une lentille de collimation en sélénure de zinc (ZnSe, relativement transparent à ces longueurs d'ondes), un système d'imagerie et deux platines de translation. Un logiciel permet de contrôler l'ensemble de l'expérience. L'utilisation d'un tel laser a été proposée dans la littérature pour réaliser des cellules à vapeur miniatures, notamment dans [252] pour la formation de cellules avec des couches minces de verre. Dans notre cas, la taille du faisceau laser focalisé est d'environ 200 μm (à 1/e²), afin de limiter la zone de chauffe à une portion de la membrane.

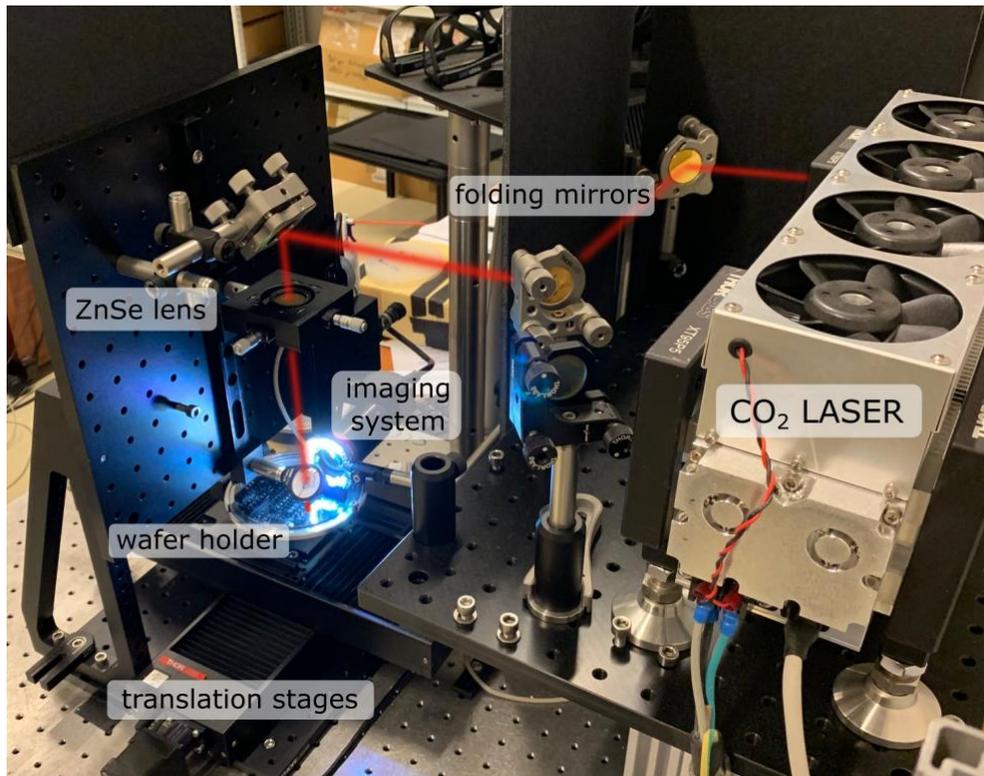


FIGURE 3.38 – Banc expérimental avec un laser CO₂ pour activer les vannes fermantes.

Le wafer de cellules à vannes fermantes est ainsi chargé sur le banc et la vanne fermante d'une cellule est alignée sous le laser CO₂ à l'aide du système d'imagerie. Une première insolation est réalisée à une puissance laser modérée afin d'échauffer la membrane et d'initier le défléchissement pendant quelques secondes. Une fois la membrane en contact avec la couche de verre, une deuxième insolation est réalisée à plus haute puissance afin de renforcer le scellement. Enfin, une dernière insolation à faible puissance laser est réalisée pendant une durée plus longue afin d'atténuer les contraintes formées par le scellement dans le verre. La figure 3.39 montre des photographies extraites d'une vidéo enregistrée lors d'un scellement.

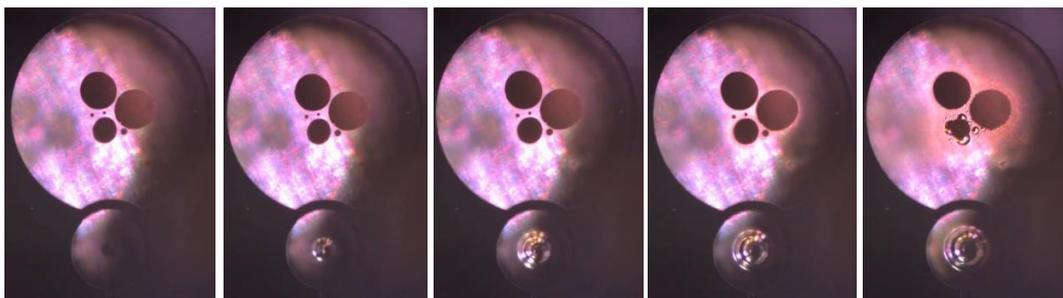


FIGURE 3.39 – Défléchissement progressif de la membrane en verre sous irradiation du laser CO₂. Images extraites de la vidéo enregistrée pendant le scellement d'une membrane de verre au laser CO₂.

Le scellement a été réalisé sur l'ensemble des 103 cellules activées. La conception comporte des diamètres de membranes différents (figure 3.34(b)), typiquement compris entre 600 et 1600 μm (avec une épaisseur de 200 μm). Tandis que les membranes avec des diamètres de 1200 et 1600 μm sont relativement robustes et présentent un scellement effectif sur le long terme (pour un tiers et la moitié des cellules, respectivement), les plus petites sont sujettes à des fissures à cause des trop grandes contraintes lors du refroidissement du verre. Comme montré sur la figure 3.40, 26 cellules (25 %) ont été correctement scellées tandis que 77 (75 %) ont cassé, parfois plusieurs semaines plus tard. Dans certains cas, des cellules ont été remises à l'air lorsque l'une de ses voisines a cassé durant son scellement.

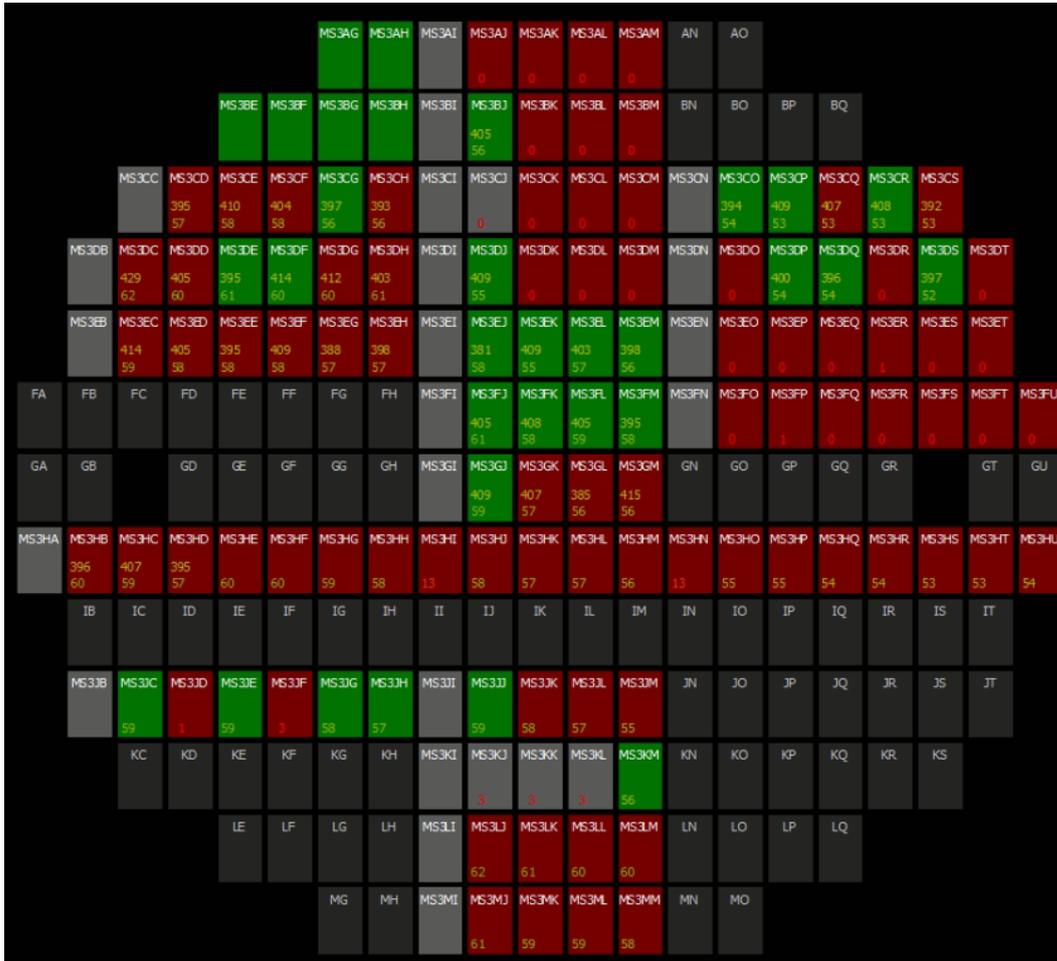


FIGURE 3.40 – Cartographie du wafer avec les cellules cassées identifiées en rouge et celles scellées identifiées en vert.

La figure 3.41 est un exemple de grappe endommagée avec la moitié des cellules brisées à cause des contraintes engendrées par le scellement.

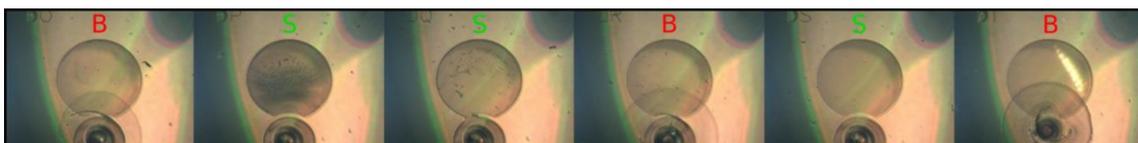


FIGURE 3.41 – Grappe de cellule avec 50% des cellules cassées.

La figure 3.42(a) et (b) montre l'évolution du contraste et de la largeur du profil d'absorption avant et après le scellement pour deux différentes grappes de cellules. Aucune variation du contraste ou de la largeur ne peuvent être observées. Après le scellement des cellules, le wafer a été découpé en cellules individuelles séparées de la cavité génératrice, comme montré sur la figure 3.34(c). Les cellules résultantes ont une dimension de 4 mm \times 6 mm. Une douzaine de cellules ont été monitorées pendant 30 semaines à 70 $^{\circ}\text{C}$ par spectroscopie

linéaire. Les cellules démontrent une atmosphère stable (figure 3.42(c)) avec des contrastes et largeur de profils optiques restant constants à environ 75 % et 400 MHz, respectivement. La différence de contraste entre les mesures au niveau du wafer (figure 3.42(a),(b)) et au niveau des cellules (figure 3.42(c)) peut être expliquée par des différences en température, qui n'est pas exactement homogène pour toutes les cellules dans les supports.

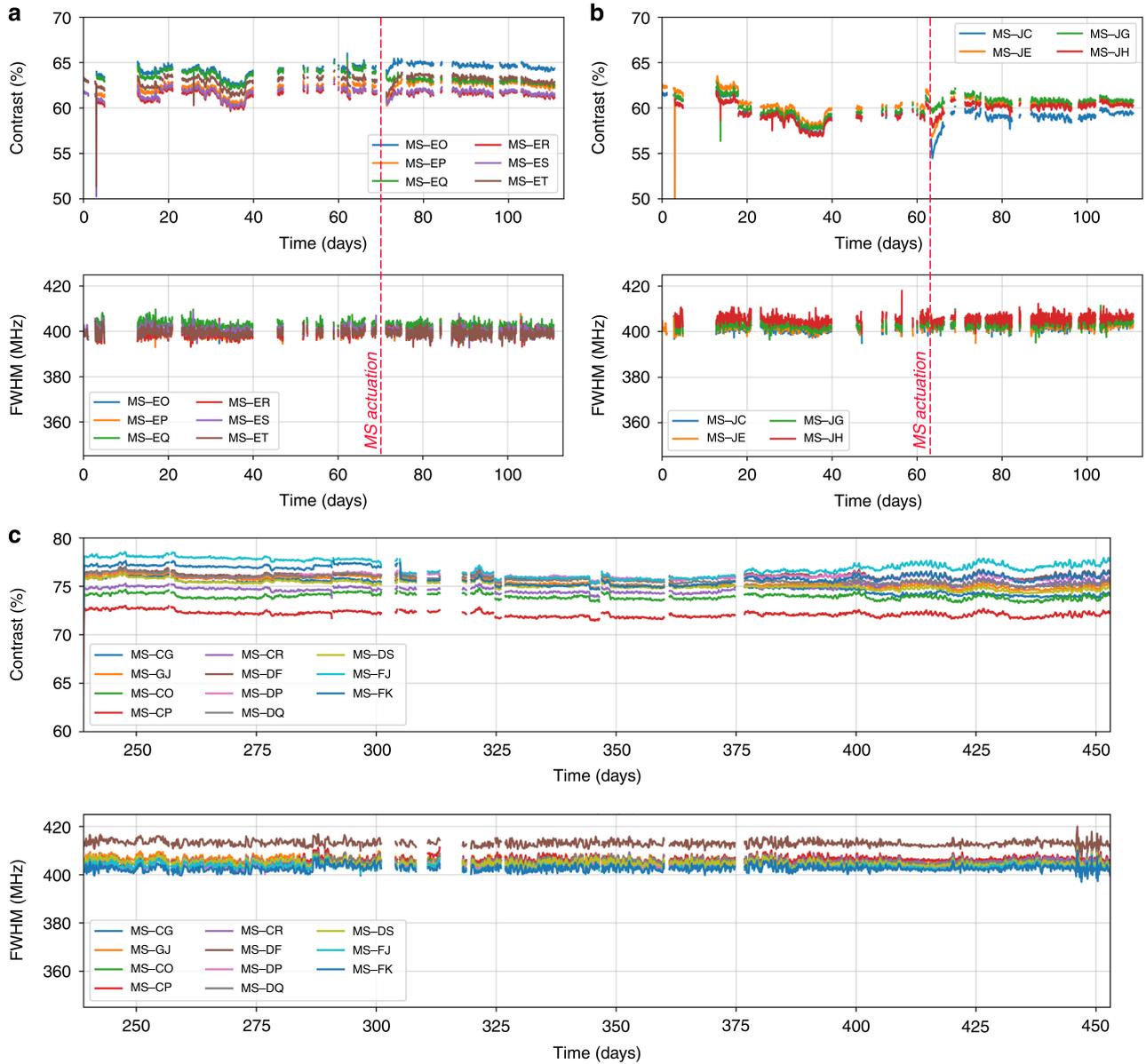


FIGURE 3.42 – Contraste et largeur à mi-hauteur (FWHM) pour une grappe de 6 cellules (a) et une grappe de 4 cellules (b) avant et après le scellement de la vanne fermante. Malgré le faible et temporaire changement de contraste, les valeurs ne sont pas affectées par le scellement laser. On note que les valeurs manquantes correspondent à des campagnes de scellement sur d'autres cellules durant lesquelles le wafer est retiré du banc de spectroscopie. (c) Évolution du contraste et la largeur durant 30 semaines pour une douzaine de cellules scellées et découpées individuellement, incluant la cellule MS-CP montrée sur la figure 3.34(c). On note que l'origine du temps ($t = 0$ jours) correspond à la date d'activation des pastilles. Le graphique commence à $t = 240$ jours quand les cellules ont été découpées. Les valeurs moyennes du contraste et des largeurs sont légèrement plus grandes dans (c) que dans (a) et (b) dû à une meilleure thermalisation du support de cellules individuelles comparé au support de wafer. Figure extraite de [202].

3.4.2 Combinaison des vannes ouvrantes et fermantes

La combinaison de la technologie des vannes ouvrantes et des vannes fermantes ouvre la voie à la création de cellules remplies d'une vapeur alcaline générée à partir d'une pastille de césium tout en exploitant un gaz non-noble tel que l'azote afin d'effectuer des mélanges de gaz hautes températures. La figure 3.43 est un schéma conceptuel de cellules combinant ces deux technologies.

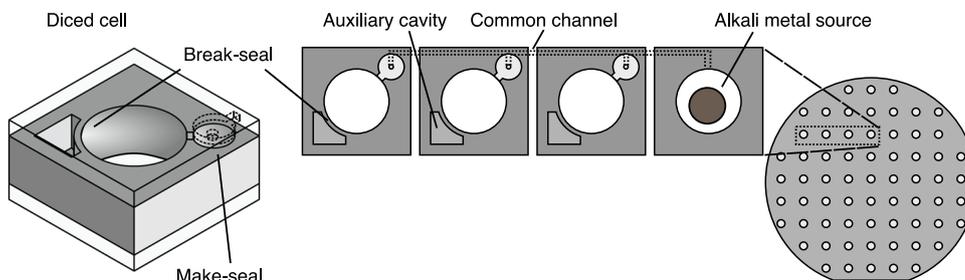


FIGURE 3.43 – Concept de wafer intégrant les technologies de vannes ouvrantes et vannes fermantes. Un ensemble de cellules est relié via un canal commun à une cavité dans laquelle est disposée une unique source d'alcalin (i.e. une pastille de césium). Les réservoirs de gaz sont initialement hermétiques et sont connectés par les vannes ouvrantes. Une fois les cellules saturées en alcalin, les vannes fermantes sont scellées afin de séparer la cellule du reste du système. Les vannes ouvrantes sont alors cassées afin de libérer le gaz dans la cavité principale. Figure extraite de [202].

Cette conception fournit une solution afin de remplir un ensemble de cellules à partir d'une unique source d'alcalin et de contrôler la quantité de gaz tampon dans chaque cellule. Dans cette conception, plusieurs cellules sont gravées dans le silicium et connectées avec des micro-canaux à la source d'alcalin. Une vanne fermante est construite pour chaque cellule, de telle sorte que la cavité optique de la cellule puisse être scellée une fois la migration des atomes alcalins terminée. Des cavités auxiliaires peuvent être remplies de gaz tampon lors de la première soudure anodique. Le contenu de ces cavités est libéré dans la cavité optique en utilisant les vannes ouvrantes. La figure 3.44 montre un wafer récemment fabriqué et combinant des vannes ouvrantes et fermantes. Dans ce dernier, les réservoirs de gaz contiennent de l'azote (incompatible à la pastille de césium), tandis que la cavité principale est remplie de néon.



FIGURE 3.44 – Wafer de cellules à vannes ouvrantes et fermantes. Les cellules sont organisées en grappes circulaires afin d'optimiser la migration de l'alcalin dans les micro-canaux.

Ce wafer contient des cellules organisées en grappes circulaires avec des canaux élargis dont les trajets sont plus directs afin d'accélérer la migration de l'alcalin vers les cellules. Ici, nous proposons de tester un mélange Ne-N_2 pour lequel le diazote est minoritaire et donc plus facilement remplissable à l'aide de réservoirs auxiliaires connectés par vannes ouvrantes. Cette approche est en cours de démonstration.

Résumé et conclusion du chapitre 3

Nous nous sommes focalisés dans ce chapitre sur la stabilisation de l'atmosphère interne de la micro-cellule. Nous avons démontré la réduction de la perméation de l'hélium de micro-cellules par l'exploitation de substrats de verre aluminosilicatés et de revêtements en Al_2O_3 . Nous avons confirmé que le verre ASG réduit le taux de perméation de l'hélium par plus de deux ordres de grandeur, comparativement au verre BSG. De plus, nous avons démontré que des revêtements d' Al_2O_3 , généralement utilisés pour limiter la consommation d'alcalin dans les cellules, réduisent significativement la perméation d'hélium. La perméation à travers le verre BSG est réduit par un facteur allant jusque 130 tandis que celui à travers le verre ASG est réduit par un facteur de l'ordre de 5, comparativement à des substrats sans dépôts d' Al_2O_3 . Au final, des cellules avec verre ASG et films d' Al_2O_3 présentent des taux de perméation à l'hélium plus de 1000 fois inférieurs à ceux du verre BSG. Ces taux sont notamment inférieurs à ceux du néon dans le BSG.

Nous avons également démontré dans ce chapitre la faisabilité des technologies de cellules à vannes ouvrantes et fermantes micro-fabriquées initiées dans les travaux de thèse de V. Maurice [29].

Nous avons démontré la possibilité de remplir au moins 20 cellules avec une pastille unique. Pour les cellules à vannes fermantes, les données de spectroscopie n'ont pas montré de détérioration significative de l'atmosphère interne des cellules lors du scellement. De plus, ce même type de mesure conduites sur plus de 50 semaines à 70°C , n'ont pas mis en valeur de variation significative de l'atmosphère interne de la micro-cellule, témoignant de la robustesse et de l'herméticité du scellement.

Par ailleurs, nous avons pu aboutir à la démonstration du concept de micro-cellules à vannes ouvrantes avec la libération de gaz dans la cavité optique par ablation laser femtoseconde de la paroi séparant la cavité du réservoir à gaz. Les réservoirs sont, sur la base des mesures spectroscopiques, hermétiques même pour des parois dont le rapport d'aspect est supérieur à 15 lorsque la pression initiale des réservoirs est de l'ordre de 185 Torr. L'ouverture séquentielle des réservoirs entraîne une augmentation incrémentale de la pression de la cellule en bon accord avec le rapport de volume des réservoirs vis-à-vis du volume de la cellule. Ces concepts sont aujourd'hui utilisés pour fabriquer des cellules à mélanges de gaz avec une température opérationnelle augmentée.

Dans ce cadre, plusieurs options sont à présent envisageables. En effet, grâce à ces résultats et aux niveaux de perméation atteints, nous avons commencé à envisager l'hélium comme gaz tampon réaliste, et non seulement comme un traceur de fuite. Dans ces conditions, nous avons fabriqué des cellules à mélange He-Ne, d'une part grâce à un remplissage par le mélange dans la chambre de soudure et d'autre part, avec un remplissage séquentiel obtenu à l'aide de vannes ouvrantes. Dans les deux cas, une augmentation de la température d'inversion est mise en évidence. Des cellules avec un tel mélange ont permis d'atteindre des stabilités d'horloge de l'ordre de 3×10^{-11} à la journée à 90°C , confirmant la possibilité d'emploi de l'hélium avec des performances accrues à haute température. De plus, nous avons proposé une évolution de l'architecture de la cellule à réservoirs de gaz auxiliaires, permettant le réglage fin des pondérations de gaz au sein du mélange. Cette architecture emploie de multiples réservoirs dont certains demeurent hermétiques en fonction du ratio recherché. L'association de cette architecture aux vannes fermantes et au remplissage par grappe permet d'envisager la génération de cellules Cs- N_2 -Ne à pondération contrôlée. Cette approche est en cours de démonstration.

Chapitre 4

Intégration des solutions pour une horloge à micro-cellule haute performance

Les instabilités de fréquence long-terme d'une horloge CPT à micro-cellule sont principalement attribuables à deux effets majeurs : les déplacements lumineux et l'évolution de l'atmosphère interne de la micro-cellule. Dans le chapitre 2, nous avons mis en oeuvre des séquences impulsionnelles qui ont permis de réduire par plus de deux ordres de grandeur la sensibilité de la fréquence d'horloge aux fluctuations des paramètres du champ optique. Bien qu'une amélioration de la stabilité moyen-terme de la fréquence d'horloge a été observée, la stabilité restait limitée pour des temps d'intégration supérieurs à 1000 s par la perméation de néon à travers les verres borosilicatés de la cellule. Une partie du chapitre 3 a ainsi été consacrée à la réduction de ce phénomène par l'utilisation de verres aluminosilicatés et de revêtements en alumine.

Dans ce chapitre, nous proposons de combiner ces solutions (développées dans le cadre des chapitres 2 et 3) pour la démonstration d'une horloge CPT à micro-cellule à la stabilité long-terme améliorée. Nous rapportons les performances de stabilité de fréquence d'une horloge exploitant une micro-cellule Cs-Ne avec des verres aluminosilicatés et reposant sur la technique d'interrogation SABR. Des boucles d'asservissements complémentaires de la température du banc, de la puissance micro-onde et de la puissance laser sont aussi ajoutées. Dans cette configuration, une déviation d'Allan de 1.4×10^{-12} à 10^5 s est démontrée. Ce résultat de stabilité à la journée est un ordre de grandeur meilleur que celui rapporté dans le chapitre 2, et est compétitif avec les meilleures horloges micro-ondes à micro-cellules [31-33].

4.1 Banc expérimental

La figure 4.1 est un schéma du banc expérimental utilisé pour cette étude. La structure principale du banc est identique à celle présentée dans la section 2.3 du chapitre 2. La pression de néon dans la micro-cellule est de ~ 87 Torr. La micro-cellule utilise des fenêtres en verre aluminosilicaté (ASG) faiblement perméable. Les paramètres de la séquence SABR sont : $T_b = 180 \mu\text{s}$, $T_S = 100 \mu\text{s}$ et $T_L = 250 \mu\text{s}$. Le banc expérimental est entouré d'une boîte avec une mousse fournissant une isolation passive en température. Deux diodes Schottky sont placées entre la sortie de la synthèse de fréquence et le té de polarisation de la VCSEL. La première enregistre la puissance micro-onde P_{PW_i} du signal à 4.596 GHz en sortie de la synthèse de fréquence. La seconde mesure, à travers un circulateur, la puissance micro-onde P_{PW_r} réfléchi par la VCSEL. L'exploitation de ces diodes Schottky est détaillée plus loin.

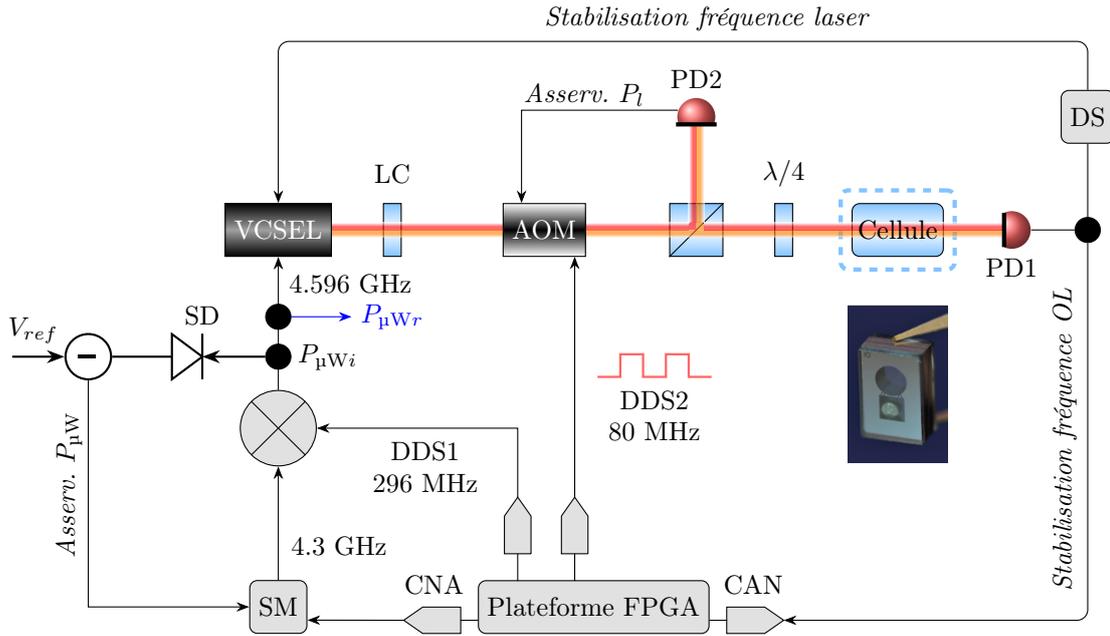


FIGURE 4.1 – Banc expérimental d'horloge CPT similaire à la figure 2.19. SD : diode Schottky, V_{ref} : tension de référence.

4.2 Exploitation d'une cellule Cs-Ne avec verre aluminosilicaté

La figure 4.2 montre les traces temporelles de la fréquence d'horloge avec deux micro-cellules Cs-Ne différentes, avec des verres BSG ou ASG. Les conditions expérimentales lors des deux mesures sont équivalentes.

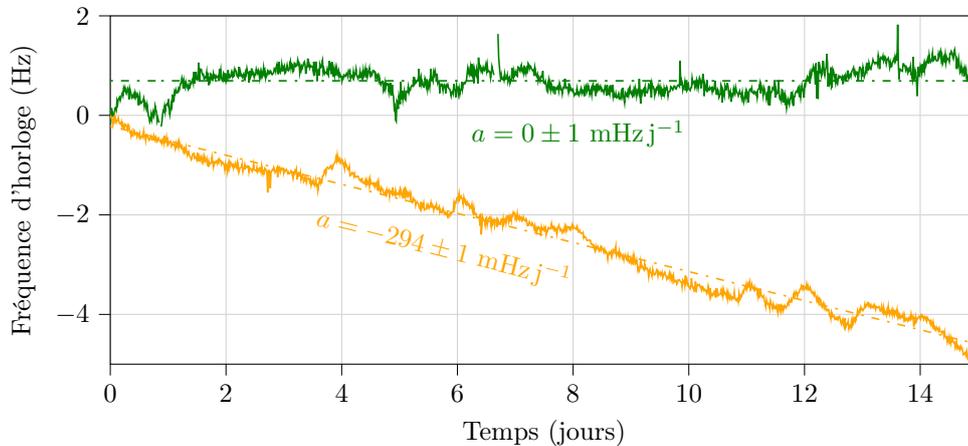


FIGURE 4.2 – Trace temporelle de l'horloge à cellule Cs-Ne, avec une cellule à verre ASG (courbe verte) ou une cellule à verre BSG (courbe orange).

La cellule à verre BSG mène à une dérive négative de la fréquence d'horloge, attribuée à la fuite de néon. L'approximation avec une fonction linéaire donne une pente de $-294 \pm 1 \text{ mHz j}^{-1}$. Cette valeur est en bon accord avec la stabilité de fréquence d'horloge à une journée mesurée en utilisant une cellule similaire de Cs-Ne chauffée à 70°C [26]. En approximant les données avec le modèle de perméation du gaz tampon (équation 3.5), le taux de perméation du néon à travers le BSG est d'environ $3.3 \times 10^{-22} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1} \text{ Pa}^{-1}$ à 75°C . Bien que cette valeur soit deux fois plus grande que celle rapportée dans [253], elle correspond à celle extraite d'une mesure de fréquence d'horloge d'une cellule Cs-Ne similaire réalisée à 81°C dans [87]. Avec la cellule constituée de verre ASG, l'horloge est beaucoup plus stable sur le long-terme. Dans ce cas, l'approximation des données avec une fonction linéaire donne une pente de $0 \pm 1 \text{ mHz j}^{-1}$. Ces résultats confirment que l'utilisation de fenêtres en ASG réduit la contribution de la perméation du néon sur la stabilité long-terme de l'horloge.

Cependant, malgré une amélioration notable de la stabilité d'horloge à un jour avec ce type de cellules, des fluctuations résiduelles de la fréquence d'horloge persistent pour les temps d'intégrations courts, comme montré figure 4.3.

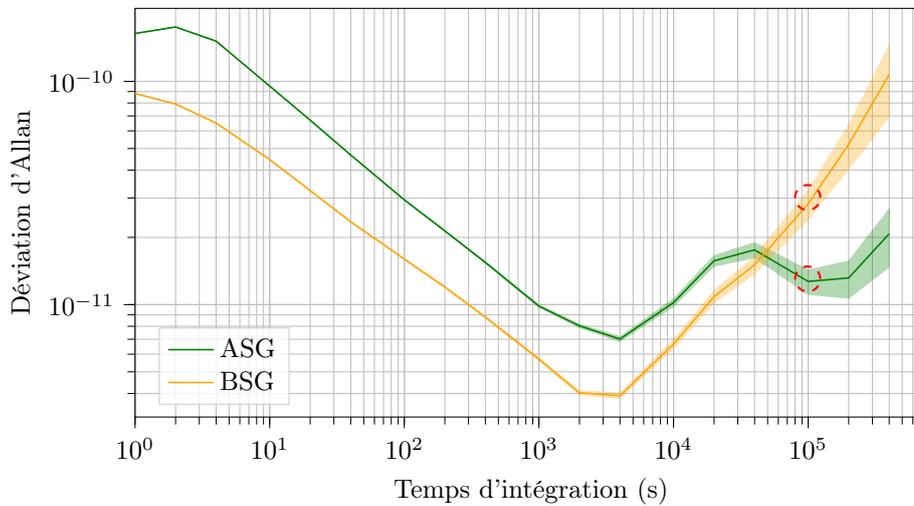


FIGURE 4.3 – Déviation d'Allan de l'horloge avec une micro-cellule Cs-Ne à verres ASG (courbe verte) et verres BSG (courbe orange).

La stabilité de fréquence d'horloge à la journée avec la cellule à verre ASG est de 1.2×10^{-11} . Cependant, la stabilité de fréquence court-terme est dégradée, et cette dégradation n'est pas due à l'utilisation des verres ASG mais plutôt à une sous-optimisation des paramètres de l'expérience.

4.3 Stabilisation de la température de l'enceinte

Afin d'identifier l'origine des fluctuations résiduelles sur la fréquence d'horloge, nous avons enregistré l'évolution de différents paramètres expérimentaux tout au long d'une mesure de plusieurs jours en configuration d'horloge. Une étude de corrélation a permis de mettre en évidence une relation entre la fréquence d'horloge et les variations de température du banc. Ce comportement est illustré sur la figure 4.4 avec une autre mesure de 5 jours. La température de l'enceinte a été remise à l'échelle, moyennée pour plus de clarté et superposée aux données de la fréquence d'horloge.

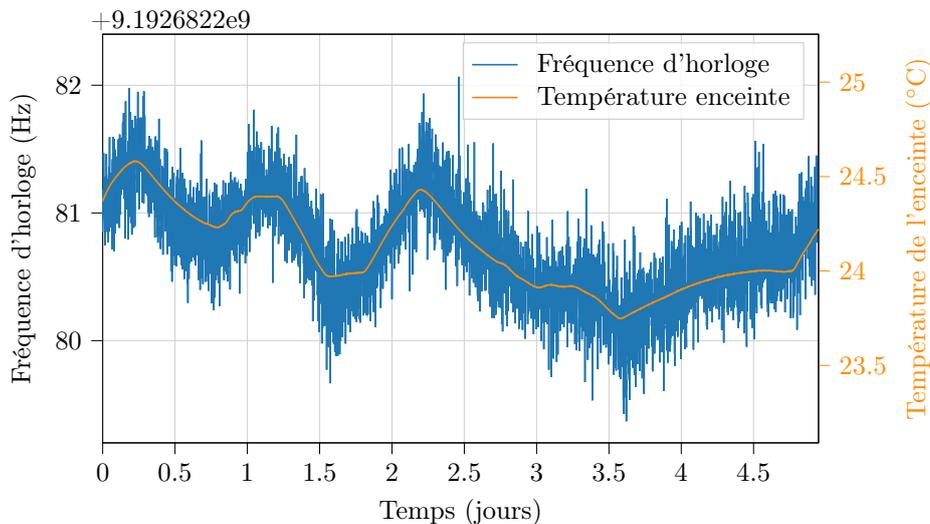


FIGURE 4.4 – Corrélation observée entre la fréquence d'horloge (courbe bleue) et la température de l'enceinte remise à l'échelle (courbe orange). Les variations typiques journalières de la température de l'enceinte sont de 0.45°C . Les variations maximales de la température de l'enceinte durant les 5 jours sont de 0.8°C .

La figure 4.5(a) montre le signal de la fréquence d'horloge affranchie des variations de température du banc, obtenu par une soustraction numérique des deux courbes de la figure 4.4. Les déviations d'Allan montrées sur la figure 4.5(b) suggèrent qu'une amélioration de la stabilité de la fréquence d'horloge à la journée jusqu'à un facteur 4 pourrait être obtenue avec un meilleur contrôle thermique du banc.

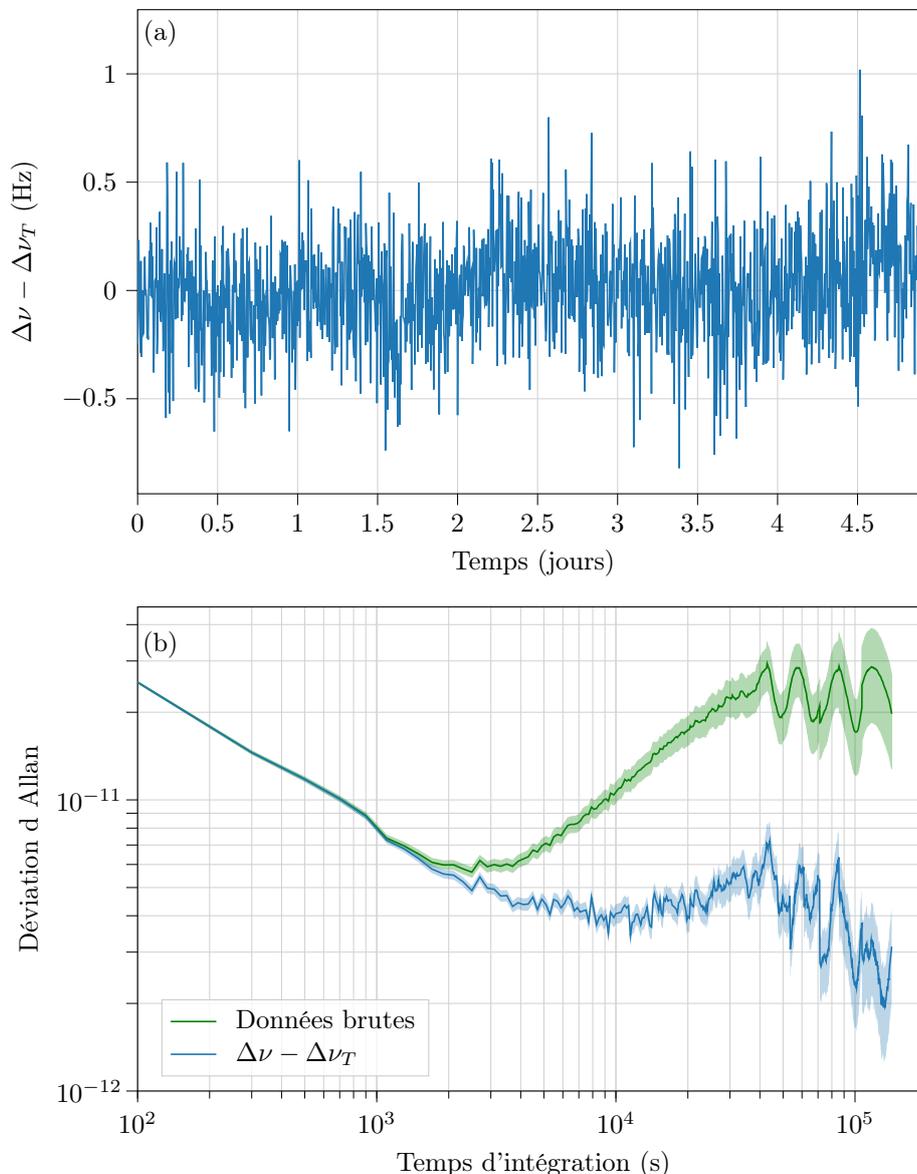


FIGURE 4.5 – (a) Signal numérique obtenu par la soustraction entre la fréquence d'horloge $\Delta\nu$ et les fluctuations de fréquences $\Delta\nu_T$ induites par les variations de température. (b) Déviations d'Allan du signal d'horloge $\Delta\nu$ et du signal d'horloge affranchi par soustraction numérique des fluctuations de température.

Suite à cette observation, nous avons renforcé la stabilité thermique de l'expérience en distribuant des capteurs et éléments chauffants à différents endroits de l'enceinte. Nous avons réparti sur la surface du banc 5 tapis chauffants et 7 thermistances, comme montré sur la figure 4.6. Les thermistances sont placées près d'éléments sensibles aux variations de température (bloc laser, cube séparateur, AOM, module physique, etc.). 6 des thermistances sont utilisées comme capteurs de température tandis que la septième, placée entre la lame $\lambda/4$ et la cellule, est utilisée pour contrôler la température du système.

L'asservissement en température est une simple régulation ON-OFF. La température de la thermistance d'asservissement est mesurée via un multimètre et l'information est analysée via l'ordinateur de contrôle. Si la température est en dessous du point de consigne, un signal numérique est envoyé vers une carte Arduino pour activer un relais et injecter du courant dans les tapis chauffants.

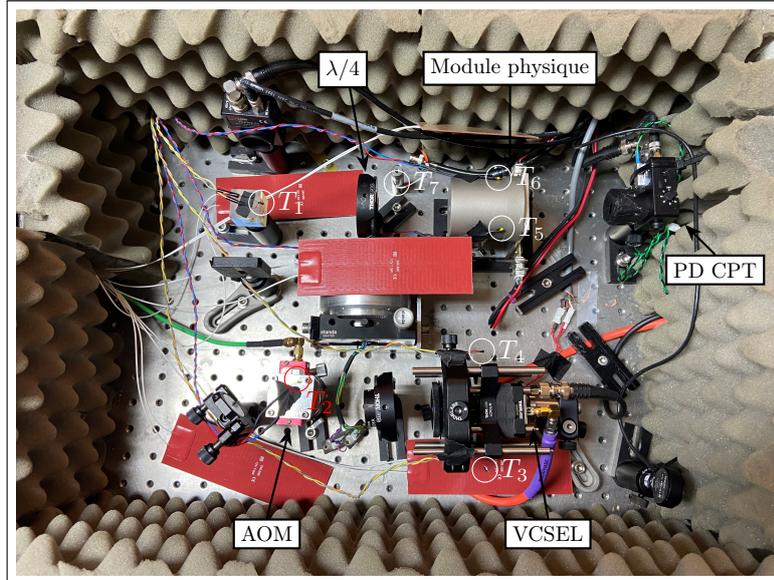


FIGURE 4.6 – Photographie du banc expérimental d'horloge CPT. Les thermistances notées de T_1 à T_7 sont représentées par des cercles blancs et rouges. Les 5 tapis chauffants correspondent aux grands rectangles rouges.

La température du banc dans l'enceinte, mesurée à environ 26°C (figure 4.7) avant l'implémentation de l'asservissement, a été réglée à environ 29°C avec la boucle de régulation. Cette température reste beaucoup plus faible que celle de certains composants du banc tels que le laser ou la cellule.

La figure 4.7 montre la trace temporelle de la température de l'enceinte, mesurée pendant plus de 20 jours avec une thermistance indépendante, avec et sans stabilisation. La température de la thermistance utilisée pour le contrôleur de température (mesure en boucle fermée) est aussi rapportée pour information. Une moyenne glissante sur 1000 s est utilisée pour tracer les données.

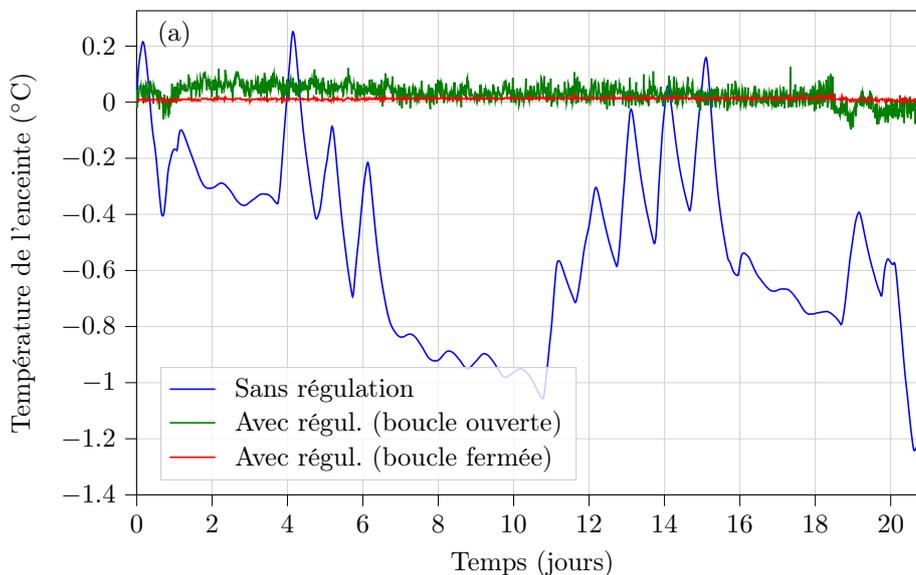


FIGURE 4.7 – Trace temporelle de la température de l'enceinte en conditions normales et avec la régulation en température. Dans le régime asservi, une sonde externe et une sonde "en boucle fermée" sont enregistrées. Un point tous les 1000 s est conservé pour la clarté de la figure.

On observe une réduction significative des variations de température du banc lorsque la régulation est active. La figure 4.8 montre les fluctuations typiques de température, extraites des données montrées sur la figure 4.7. Les variations de température du capteur en boucle ouverte sont réduites d'un ordre de grandeur à 10^5 s lorsque la température est régulée, menant à des fluctuations résiduelles journalières de température d'environ 0.01 K. Le capteur en boucle fermée montre des fluctuations de température d'environ 1 mK à la journée.

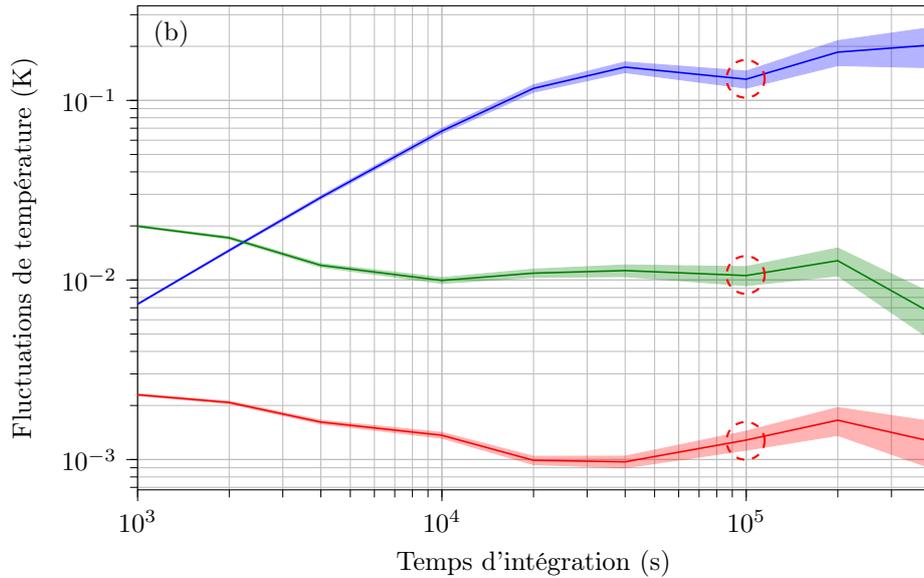


FIGURE 4.8 – Fluctuations de température de capteurs au sein de l'expérience. Valeurs extraites des données montrées sur la figure 4.7. Le code couleur de la figure 4.7 est conservé. Les zones colorées indiquent la taille des barres d'erreur.

La figure 4.9 montre les déviations d'Allan enregistrées avec la cellule ASG, avec et sans la régulation de température du banc. La courbe bleue de la figure 4.9 montre les résultats obtenus sans la régulation de température. Dans ce cas, la stabilité de fréquence est limitée à un niveau de 10^{-11} à 10^5 s. Quand la température de l'enceinte est stabilisée (courbe verte), la déviation d'Allan est mesurée à 1.5×10^{-10} à 1 s, 3.8×10^{-12} à 10^5 s et environ à 10^{-11} à 3×10^5 s. La stabilité de fréquence d'horloge à une journée d'intégration est ainsi environ un ordre de grandeur meilleure que celle rapportée dans [26], et est en bon accord avec la déviation d'Allan estimée sur la figure 4.5.

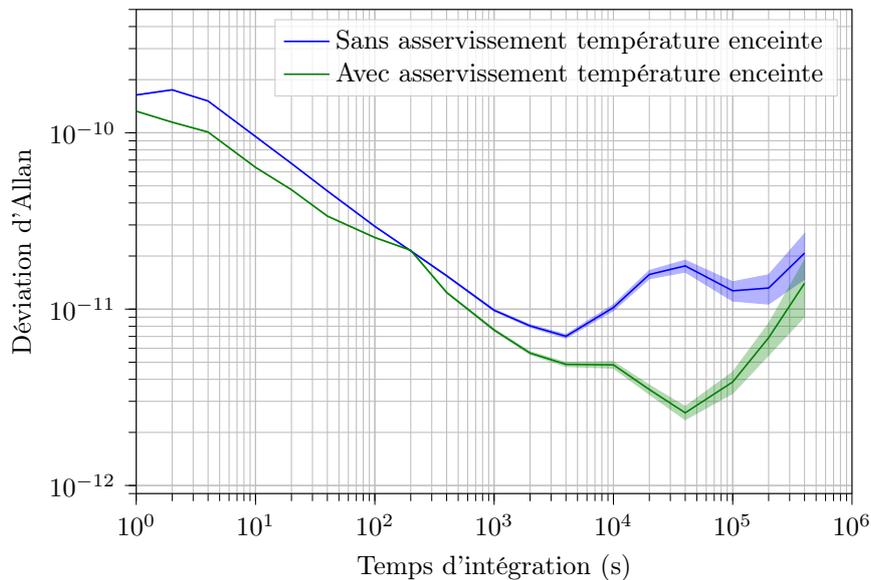


FIGURE 4.9 – Déviation d'Allan de l'horloge avant (courbe bleue) et après (courbe verte) la stabilisation en température de l'enceinte.

4.4 Asservissement de la puissance micro-onde

Malgré cette amélioration significative, nous observons toujours une dégradation de la stabilité d'horloge pour des temps d'intégration supérieurs à environ 40000 s. Afin de comprendre quelles étaient les contributions principales à la stabilité long-terme de l'horloge, nous avons à nouveau enregistré, de manière routinière pendant l'opération de l'horloge, l'évolution de nombreux paramètres expérimentaux. La figure 4.10 montre les déviations d'Allan des contributions de la puissance micro-onde (courbe orange) et de la puissance laser (courbe rouge). De cette figure, nous pouvons identifier que les effets de déplacements lumineux, induits par les variations de puissance micro-onde et de puissance laser, et ce, malgré l'utilisation de la technique d'interrogation SABR, constituent de nouveau le phénomène limitant à la stabilité d'horloge à la journée.

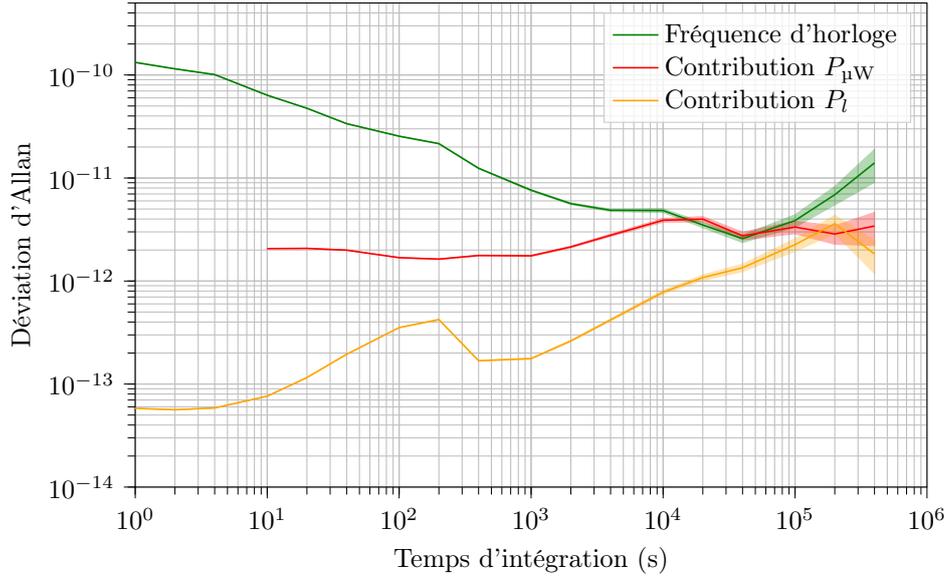


FIGURE 4.10 – Déviation d'Allan de la fréquence d'horloge (courbe verte), de la contribution de la puissance micro-onde (courbe rouge) et de la puissance laser (courbe orange). La puissance laser P_l est de 100 μW et la puissance micro-onde $P_{\mu\text{W}_i}$ est de -0.49 dBm (0.89 mW).

La courbe rouge montre la contribution des fluctuations de la puissance micro-onde sur la fréquence d'horloge. Cette contribution est dérivée de fluctuations de tension ΔV enregistrées à la sortie de la diode Schottky ($\Delta V/V = 7.2 \times 10^{-4}$ à 10^5 s). Avec une dépendance de la fréquence d'horloge aux variations de puissance micro-onde de 4.7×10^{-12} , cette contribution atteint un niveau de $3 - 4 \times 10^{-12}$ à 10^5 s, niveau comparable à la déviation d'Allan de la fréquence d'horloge.

La seconde contribution à la stabilité d'horloge, représentée par la courbe orange sur la figure 4.10, est la contribution des fluctuations de puissance laser. Ces dernières sont mesurées par la photodiode PD1 (préalablement calibrée), et sont multipliées par le coefficient de sensibilité de la fréquence d'horloge aux variations de puissance laser ($6.5 \times 10^{-12} \mu\text{W}^{-1}$). Les fluctuations relatives de puissance laser sont de $\Delta P_l/P_l \simeq 3 \times 10^{-3}$ à 10^5 s ($\Delta P_l \simeq 0.3 \mu\text{W}$). On observe alors que les variations de puissance laser limitent la stabilité d'horloge à un niveau d'environ 2×10^{-12} à 10^5 s.

Comme montré sur la figure 4.11, nous avons observé que la puissance laser P_l mesurée à l'entrée de la cellule (photodiode PD1), et en conséquence la puissance laser P_0 en sortie de cellule (PD2), étaient corrélées avec la pression atmosphérique mesurée dans le laboratoire. Cette corrélation peut être expliquée par le fait que la VCSEL utilisée dans ce banc n'est pas scellée dans un module sous vide et n'est ainsi pas protégée des variations de la pression ambiante. Aussi, à la suite d'une mesure de plus de 6 jours, nous avons observé des sauts sur les puissances micro-ondes mesurées (incidente et réfléchie), aussi visibles sur les données de température du laboratoire.

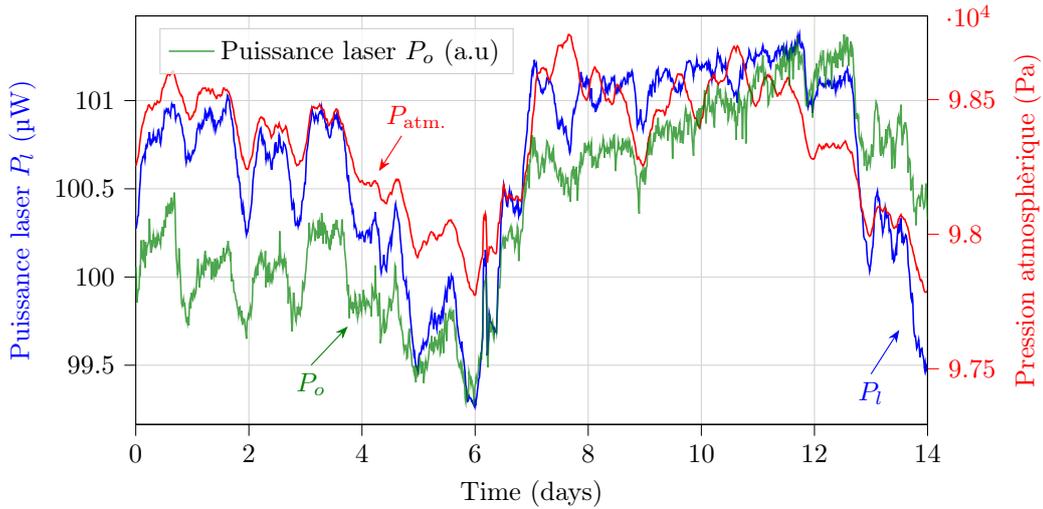


FIGURE 4.11 – Corrélation entre la puissance laser en sortie de VCSEL (courbe bleue), en sortie de cellule CPT (courbe verte), et la pression atmosphérique (courbe rouge) mesurée au laboratoire.

En s'appuyant sur ces constats, nous avons mis en place des boucles d'asservissement additionnelles pour réduire la contribution de la puissance micro-onde et laser. La puissance micro-onde est asservie par le biais d'une diode Schottky (figure 4.1). Nous avons dans un premier temps mesuré la dépendance à la température de la diode Schottky. À une puissance micro-onde fixée, nous avons mesuré que la tension en sortie de la diode Schottky pouvait changer à un niveau de $-8 \times 10^{-5} \text{ V K}^{-1}$. Dans nos conditions expérimentales, nous avons mesuré qu'une variation de température de 1 K sur la diode Schottky pouvait induire une variation de la fréquence d'horloge de $1.3 \times 10^{-11} / \text{K}$. La diode Schottky étant placée en dehors de l'enceinte où une variation de température de 0.3 K peut être expérimentée, cette sensibilité pourrait limiter la fréquence d'horloge à la journée à un niveau d'environ 4×10^{-12} , comparable à la déviation d'Allan (courbe verte) de la figure 4.10.

Nous avons alors placé la diode Schottky dans l'enceinte stabilisée en température. Dans cette configuration, la contribution de la puissance micro-onde à la journée a été trouvée comparable à la figure 4.10. Nous avons alors implémenté une boucle d'asservissement de la puissance micro-onde, avec la diode Schottky dans l'enceinte. Ce test a été réalisé avec une puissance laser comparable $P_l \simeq 100 \text{ } \mu\text{W}$ et une puissance micro-onde de $\simeq 0.82 \text{ mW}$. La figure 4.12 montre les variations de la puissance micro-onde avant et après la mise en place de l'asservissement.

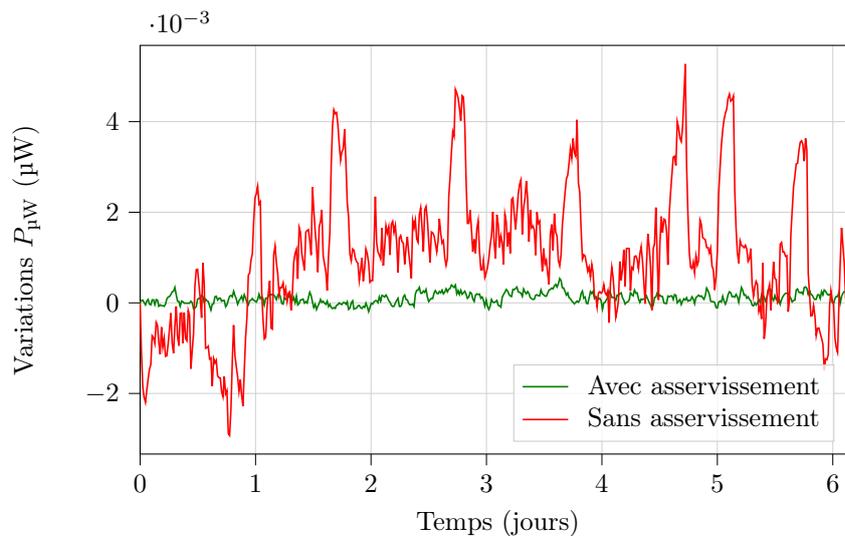


FIGURE 4.12 – Trace temporelle des variations de la puissance micro-onde avec (courbe verte) et sans (courbe rouge) la régulation de la puissance micro-onde. Les mesures sont extraites de la diode Schottky placée entre la synthèse de fréquence et le té de polarisation de la VCSEL.

La figure 4.13 rapporte les déviations d'Allan des mesures de la figure 4.12. Avec cette régulation, les

fluctuations de puissance micro-onde $\Delta P_{\mu W}/P_{\mu W}$, mesurées par la diode Schottky en boucle fermée, ont été réduites à la journée par plus d'un ordre de grandeur, atteignant 9.7×10^{-5} ($\Delta P_{\mu W} \simeq 81$ nW à un jour). Avec ce niveau, la contribution des variations de puissance micro-onde sont rejetées à un niveau de 3.8×10^{-13} à 10^5 s.

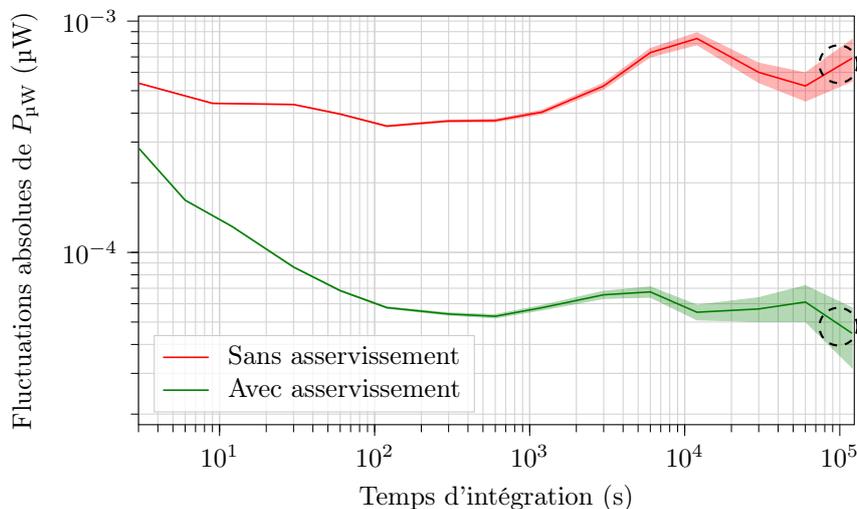


FIGURE 4.13 – Fluctuations absolues de la puissance micro-onde avant (courbe rouge) et après (courbe verte) l'asservissement de $P_{\mu W}$. Valeurs extraites des données montrées sur la figure 4.12. Les zones colorées indiquent la taille des barres d'erreur.

Avec cette régulation, la stabilité de fréquence d'horloge a été améliorée, comme montré sur la figure 4.14, à un niveau de 2×10^{-12} à 10^5 s et légèrement en dessous de 2×10^{-12} à 2×10^5 s. Ce niveau de stabilité de la fréquence d'horloge à 10^5 s est comparable à la contribution de la puissance laser indiquée sur la figure 4.10.

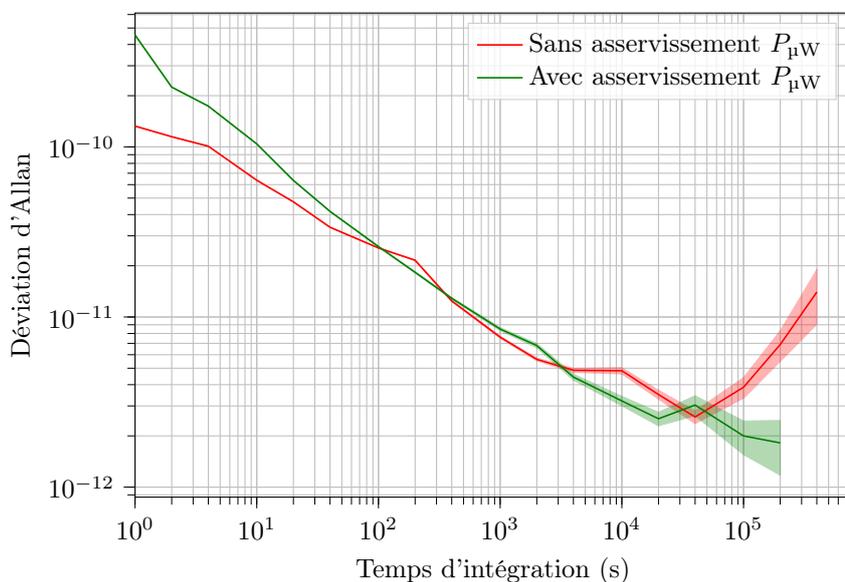


FIGURE 4.14 – Déviation d'Allan de l'horloge avant (courbe rouge) et après (courbe verte) la stabilisation de la puissance micro-onde.

4.5 Asservissement de la puissance laser

Nous avons réalisé un dernier test de stabilité en ajoutant une boucle d'asservissement de la puissance laser. Cette dernière est stabilisée en jouant sur la puissance RF injectée dans l'AOM. Dans ce test, la puissance laser P_l est de $75 \mu W$ tandis que la puissance micro-onde est de 0.73 mW. La figure 4.15(a) montre les variations de

la puissance laser avant et après la mise en place de l'asservissement et les déviations d'Allan associées figure 4.15(b).

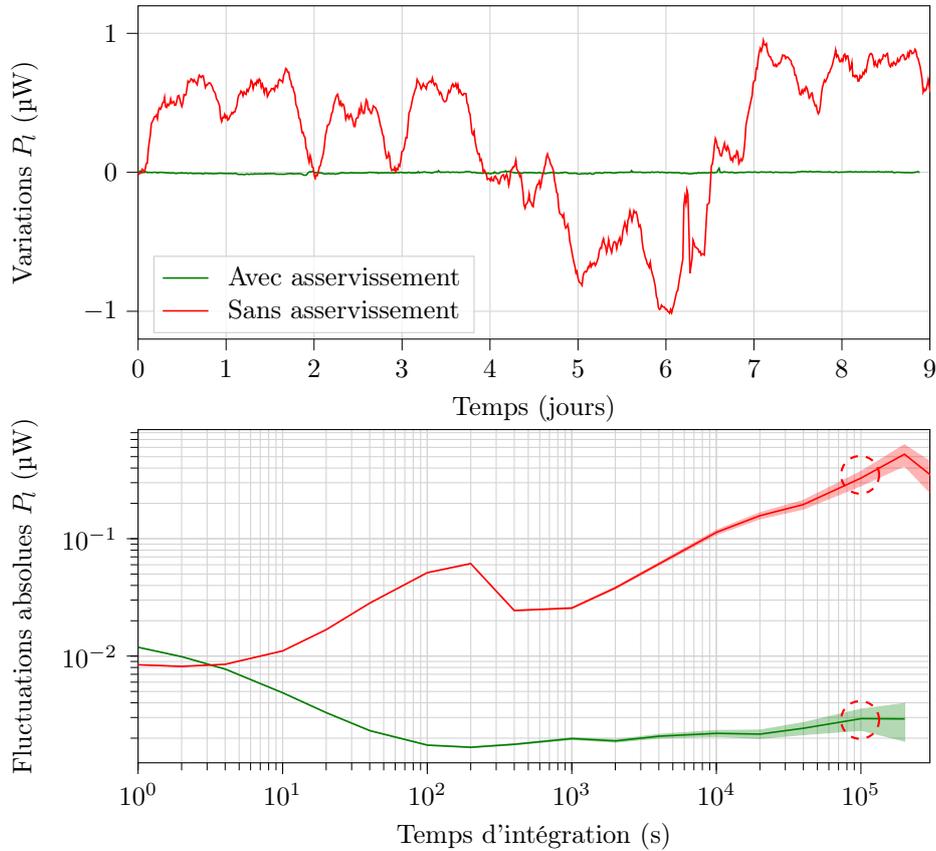


FIGURE 4.15 – (a) Trace temporelle des variations de la puissance laser avec (courbe verte) et sans (courbe rouge) la régulation de la puissance laser. Les courbes sont extraites de mesures en boucle fermée (PD1). (b) Fluctuations absolues de la puissance laser extraites des données montrées en (a). Le code couleur est conservé. Les zones colorées indiquent la taille des barres d'erreur.

Avec cette régulation, les fluctuations de puissance laser $\Delta P_l/P_l$, extraites de mesures en boucle fermée (PD1), ont été réduites à un niveau de 4.1×10^{-5} ($\Delta P_l \simeq 3$ nW) à 10^5 s. Dans cette configuration, la déviation d'Allan de l'horloge, montrée sur la figure 4.16, est comparable ou légèrement inférieure à 2×10^{-12} à 10^5 s.

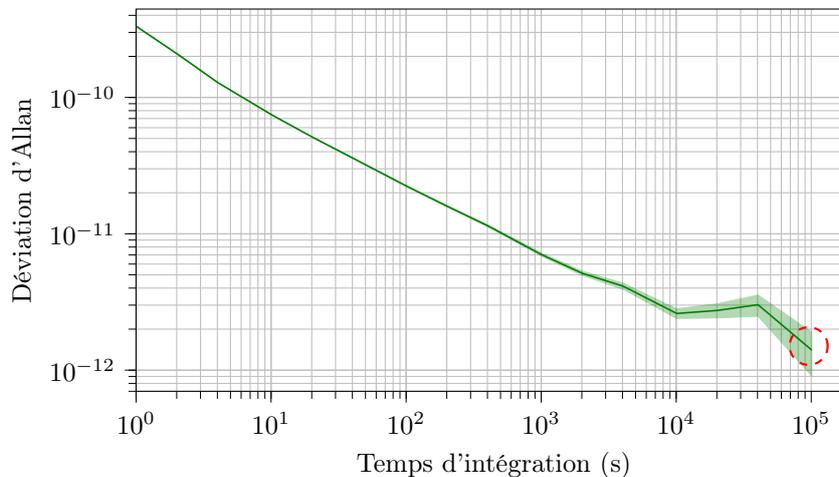


FIGURE 4.16 – Déviation d'Allan de la fréquence d'horloge, avec la stabilisation de la température de l'enceinte, de la puissance micro-onde et de la puissance laser. Les zones colorées indiquent la taille des barres d'erreurs.

4.6 Optimisation de la stabilité court-terme

Dans une dernière démarche, nous avons optimisé la stabilité court-terme de l'horloge. Pour cela, des changements mineurs de la puissance laser, de la puissance micro-onde et des paramètres de la séquence ont été effectués. La figure 4.17 montre l'évolution temporelle de la fréquence d'horloge obtenue après l'optimisation de la stabilité de fréquence court-terme.

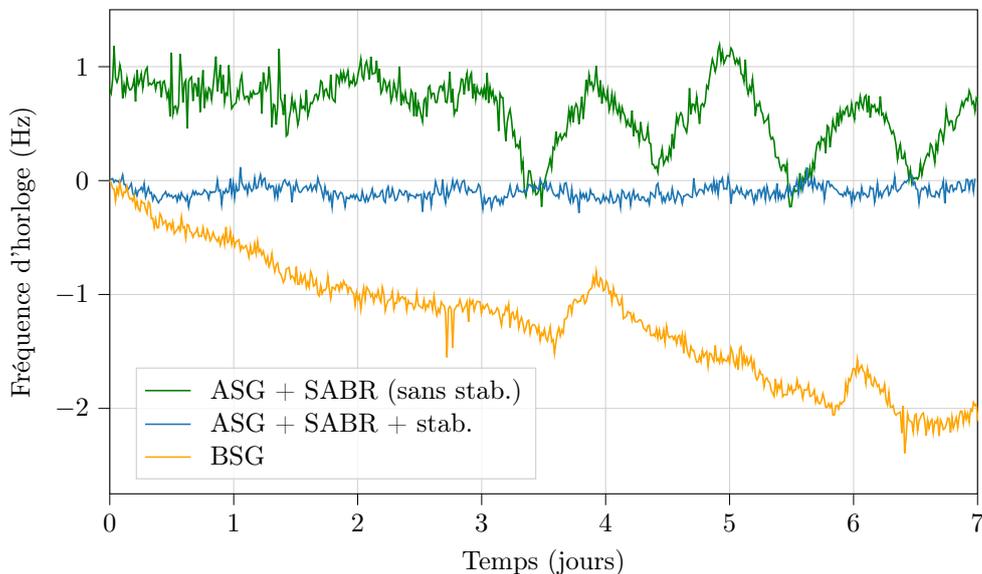


FIGURE 4.17 – Trace temporelle de la fréquence d'horloge avec une cellule à verre BSG (courbe orange), une cellule à verre ASG et la séquence SABR sans stabilisation des paramètres expérimentaux (courbe verte) et configuration avec des verres ASG, la séquence SABR, la stabilisation des paramètres expérimentaux ainsi que l'optimisation de la stabilité de fréquence court-terme (courbe bleue).

On rapporte sur la figure 4.18 la déviation d'Allan finale obtenue. La stabilité d'horloge est de 7×10^{-11} et 2×10^{-12} à 1 et 10^5 s, respectivement.

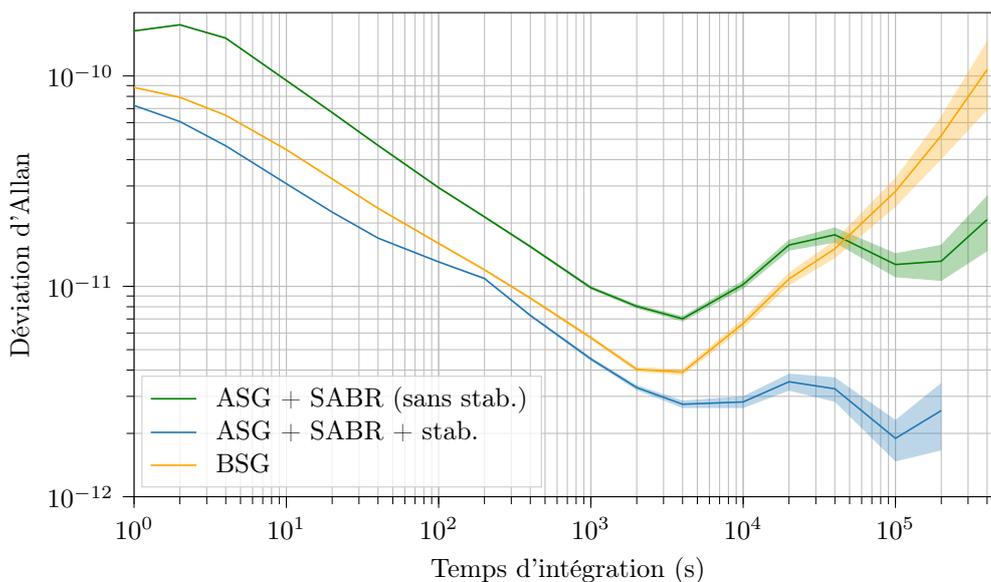


FIGURE 4.18 – Stabilité finale de la fréquence d'horloge.

Résumé et conclusion du chapitre 4

Nous avons rapporté dans ce chapitre des mesures de stabilité de fréquence d'une horloge CPT utilisant la séquence d'interrogation impulsionnelle SABR et une cellule Cs-Ne micro-fabriquée exploitant des verres ASG à faible perméation. Nous avons démontré que l'ASG réduisait significativement la perméation du néon à travers le verre de la cellule, en comparaison aux verres standards borosilicatés. Cette solution permet de réduire l'impact de l'évolution de l'atmosphère interne de la cellule sur la stabilité de fréquence moyen et long-terme. Comme les effets de déplacements lumineux restaient la principale contribution sur la stabilité de fréquence pour des temps d'intégrations supérieurs à 10^4 s, nous avons implémenté une boucle d'asservissement de la température de l'enceinte, de la puissance micro-onde et de la puissance laser. L'ajout de ces régulations a contribué à obtenir une déviation d'Allan finale de 7×10^{-11} à 1 s et 1.4×10^{-12} à 10^5 s. Ces résultats à la journée, compétitifs avec les meilleures horloges micro-ondes à micro-cellule [31-33], sont plus de 10 fois meilleurs que ceux obtenus dans le chapitre 2.

Conclusion

Mes travaux de thèse se sont concentrés sur la proposition de solutions scientifiques et technologiques innovantes pour la démonstration d’une horloge atomique CPT à cellule microfabriquée à la stabilité de fréquence long-terme améliorée. Ce type d’horloge repose sur l’exploitation d’une diode laser VCSEL, accordée à 895 nm, portant optiquement un signal micro-onde à 9.192 GHz. Le champ optique ainsi généré interagit alors avec une vapeur chaude d’atomes de césium, diluée par une pression de gaz tapom (du néon généralement), contenue dans une cellule microfabriquée. L’interaction entre les atomes et le champ laser, par le biais du phénomène quantique de piégeage cohérent de population, mène à la détection d’un signal de résonance étroit, utilisé pour stabiliser la fréquence de l’oscillateur local sur la transition atomique hyperfine d’horloge.

Un premier axe de mes travaux a porté sur la réduction des effets de déplacements lumineux. Afin de réduire la sensibilité de la fréquence d’horloge aux variations du champ laser, nous avons exploré l’utilisation de séquences d’interrogation impulsionnelles. Nous avons d’abord mis en oeuvre la technique d’interrogation Ramsey-CPT. Après une étude spectroscopique détaillée permettant d’identifier les paramètres expérimentaux optimisant la stabilité court-terme de l’horloge, nous avons démontré, avec l’application d’un temps noir de 450 μ s, une réduction de la sensibilité de la fréquence d’horloge aux variations de puissance laser par un facteur 40 comparativement au régime continu. Cette réduction de sensibilité aux effets lumineux bénéficie à la stabilité de fréquence pour des temps d’intégration supérieurs à 100 s. Dans un second temps, nous avons implémenté la technique d’interrogation Symmetric Auto-Balanced-Ramsey au sein de notre démonstrateur d’horloge à microcellule. Cette méthode, reposant sur l’exploitation de deux séquences Ramsey-CPT consécutives de durée de temps noirs différents, permet de réduire les déplacements lumineux subis par les atomes lors des impulsions optiques en appliquant un saut de phase de l’oscillateur local lors du temps noir. Avec cette approche, la sensibilité de la fréquence d’horloge aux variations de puissance laser, de fréquence laser et de puissance micro-onde est réduite par plus de deux ordres de grandeur, comparativement à la méthode d’interrogation continue, soit une immunité aux déplacements lumineux encore accrue par rapport à la méthode Ramsey-CPT. Une amélioration de la stabilité de la fréquence d’horloge a été observée pour des temps d’intégration compris entre 10^2 et 10^5 s. Malgré une forte réduction des sensibilités aux variations du champ optique avec la séquence SABR-CPT, la stabilité de fréquence de l’horloge demeurerait néanmoins limitée par un autre phénomène prédominant à environ $2 - 3 \times 10^{-11}$ à 10^5 s. En observant une baisse constante nette de la fréquence d’horloge de l’ordre de -0.3 Hz j^{-1} sur une période de mesure de plus de 400 heures, nous avons émis l’hypothèse que cette dérive était consécutive à une fuite progressive de néon à travers le verre de la cellule [87].

Le second axe d’étude s’est par conséquent focalisé sur la stabilisation et le contrôle de l’atmosphère interne de la microcellule. Nous avons ainsi réalisé une étude dédiée démontrant la réduction de la perméation de l’hélium à travers les parois de verre de la microcellule, l’hélium étant un gaz volatile ayant particulièrement la capacité de mettre en évidence le phénomène de perméation. Dans ce cadre, nous avons investigué l’utilisation de substrats de verre aluminosilicatés associés ou non à des revêtements en alumine. Ces mesures ont été réalisées sur un nouveau banc expérimental assemblé durant ma thèse, qui permet la mesure simultanée de 6 microcellules, permettant d’accroître nos capacités de caractérisation. Nous avons dans un premier temps confirmé que le verre aluminosilicaté réduit le taux de perméation de l’hélium par plus de deux ordres de grandeur, comparativement au verre borosilicaté. Ensuite, nous avons montré que l’exploitation de revêtements en alumine conduit à une réduction de la perméation par un facteur 130 à travers le verre borosilicaté et d’un facteur de l’ordre de 5 à travers le verre aluminosilicaté. Ces résultats ouvrent la voie au développement de cellules à faible perméation, dont les applications notables seraient l’emploi de mélanges de gaz à base d’hélium ou la fabrication de pièges magnéto-optiques [227].

Afin d’accroître le choix des gaz tampons, nous avons démontré la faisabilité d’une nouvelle approche de remplissage de microcellule reposant sur l’exploitation de vannes ouvrantes et fermantes microfabriquées actionnables par laser. Celles-ci permettent un remplissage séquentiel de la cellule, en alcalin depuis une pastille de

césium puis en gaz, malgré leur incompatibilité initiale. Pour les vannes fermantes, les données de spectroscopie n'ont pas montré de détérioration significative de l'atmosphère interne des cellules lors et après scellement sur des durées de 50 semaines. Aussi, les données de spectroscopie ont démontré que l'ouverture par ablation femtoseconde des réservoirs de gaz (vannes ouvrantes) n'engendrait pas d'impuretés significatives dans la cellule, se révélant ainsi être une approche efficace pour remplir une cellule avec une pression de gaz tampon contrôlée.

Ces concepts ont alors été utilisés pour fabriquer des cellules à mélanges de gaz tampon avec une température opérationnelle augmentée. À la suite de la démonstration des vannes ouvrantes et des niveaux de perméation atteints, nous avons dans un premier temps envisagé l'hélium comme gaz tampon. Nous avons fabriqué des cellules à mélange de gaz He-Ne, d'une part grâce au remplissage par le mélange dans la chambre de soudure et d'autre part avec un remplissage séquentiel obtenu à l'aide de vannes ouvrantes. Dans les deux cas, une augmentation de la température d'inversion a été mise en évidence. Une stabilité d'horloge mesurée de l'ordre de 3×10^{-11} à la journée à 90°C a confirmé la possibilité d'emploi de l'hélium comme gaz tampon, tout en conservant des performances correctes à haute température. L'ajout de dépôts d'alumine permettrait d'accroître cette capacité. Nous avons aussi récemment entrepris la fabrication de cellules combinant les vannes ouvrantes et fermantes pour la génération d'un mélange Cs-N₂-Ne à pondération contrôlée. Des tests seront menés dans les meilleurs délais.

Une partie des résultats complémentaires de ces deux axes de recherche a été valorisée par la démonstration d'une horloge à microcellule Cs-Ne à verres aluminosilicatés exploitant la séquence d'interrogation SABR. Après avoir identifié une corrélation nette entre la température de l'expérience et l'évolution de la fréquence d'horloge, nous avons mis en place un contrôle actif de la température de l'enceinte, qui, additionné aux autres améliorations sur la séquence et la cellule, a conduit à une réduction de la stabilité de fréquence d'un ordre de grandeur à la journée. Étant de nouveau limités par les déplacements lumineux, nous avons dans un dernier effort implémenté des boucles de stabilisation additionnelles de la puissance laser et de la puissance micro-onde, menant à une stabilité relative de fréquence de 7×10^{-11} à 1 s et 1.4×10^{-12} à 10^5 s. Ces performances de stabilité à une journée d'intégration sont compétitives avec celle des meilleures horloges micro-ondes à microcellule.

Les perspectives de ce travail de thèse demeurent nombreuses. Une étude approfondie est tout d'abord nécessaire afin d'identifier la nouvelle limitation de la stabilité de fréquence à la journée. À ce jour, il semble raisonnable d'exclure les variations de la puissance laser et de la puissance micro-onde, ces dernières ayant été réduites d'un ordre de grandeur avec la mise en place de boucles de stabilisation actives. La contribution du champ magnétique est actuellement mesurée à un niveau inférieur à 6×10^{-13} à la journée. L'utilisation dans notre cas d'un démonstrateur d'horloge sur table, non-intégré peut néanmoins compliquer la réalisation de ce type de mesure. En effet, les éléments composant l'horloge sont plus sensibles aux variations des conditions environnementales (température, pression, humidité, etc.). Aussi, le rack de contrôle comprenant le synthétiseur de fréquence, ainsi que les câbles de différents signaux, n'est toujours pas protégé contre les variations de pression/température, ce qui pourrait être responsable des fluctuations de la fréquence d'horloge.

Nous rappelons aussi que la démonstration des méthodes de réduction de déplacement lumineux a été effectuée dans cette thèse avec l'exploitation d'un modulateur acousto-optique externe. La présence d'un AOM demeure évidemment incompatible avec l'avènement d'une micro-horloge pleinement intégrée. Il est ainsi important de mener des études pour la démonstration de telles techniques d'interrogation, sans AOM. Dans [189], un interrupteur micro-onde a été implémenté à la sortie du synthétiseur micro-onde pour activer et désactiver le signal micro-onde à l'origine de la modulation de la VCSEL. Néanmoins, cette méthode présente l'inconvénient de ne pas engendrer un temps noir "réel". La présence d'un résidu de porteuse durant le temps noir pourrait potentiellement mener à des déplacements lumineux non-résonants. Dans l'étude [190], une modulation directe du courant continu alimentant la diode VCSEL est proposée pour générer les impulsions lumineuses, tandis que la puissance micro-onde reste constante. Cependant, le changement rapide du point de consigne de la diode laser engendre des fluctuations de température de la diode laser, et donc de la fréquence laser. Ainsi, un délai non-négligeable peut apparaître entre le début de l'impulsion optique et la mise en place du régime permanent, empêchant l'observation du signal de résonance sur de courts intervalles de temps. Pour résoudre ce problème, les auteurs ont proposé dans [190] une méthode originale exploitant des impulsions optiques à deux "étages". Lors du premier saut, le courant continu du laser est fixé à I_1 , pour une durée t_1 , à une valeur plus élevée que le courant requis pour atteindre la fréquence de résonance optique. Ce premier saut accélère l'échauffement de la VCSEL et donc le temps de montée vers la longueur d'onde d'intérêt. Durant le second saut, le courant est fixé à I_2 , correspondant à la fréquence laser résonante avec la transition atomique. Avec cette technique, les auteurs ont détecté des franges de Ramsey dans une cellule de dimensions centimétriques avec des temps de montées d'environ 20 μs , compatibles avec un mode d'opération en horloge. Cependant, aucune mesure de stabilité n'a été rapportée dans ces travaux. Par ailleurs, l'implémentation de telles méthodes en microcellule constitue un

challenge supplémentaire. L'utilisation de microcellule sous-entend en effet une durée de vie de la cohérence hyperfine CPT plus courte, et impliquant donc des séquences temporelles encore plus rapides. Durant les derniers mois de ma thèse, nous avons entrepris, dans le cadre du stage de Carlos Rivera des tests sur un démonstrateur à microcellule. Nous avons récemment démontré la détection de franges de Ramsey-CPT en microcellule, par l'application d'une modulation directe du courant laser, et donc en s'affranchissant d'un AOM. Ces études sont actuellement poursuivies au laboratoire.

Enfin, on note que la stabilité court-terme typique des micro-horloges CPT reste toujours nettement supérieure à la limite fondamentale imposée par le shot noise. En règle générale, la contribution principale à la stabilité court-terme des micro-horloges CPT provient du bruit de fréquence de la diode VCSEL. Ainsi, l'exploitation de diodes VCSEL avec une largeur spectrale réduite serait une piste prometteuse à explorer en vue d'améliorer la stabilité court-terme de l'horloge. À cet égard, on note que des études récentes [254, 255] ont fait état du développement de nouvelles VCSEL dont la largeur spectrale est réduite à quelques MHz, soit des largeurs dix fois plus étroites que celles des VCSELs actuellement disponibles sur le marché.

Annexes

Annexe 1 : Banc 6-cellules

La figure 4.19 est une représentation de l'architecture du banc 6-cellules que j'ai développé avec l'aide de P. Abbé dans le cadre de ma thèse pour la caractérisation des micro-cellules. La figure 4.20 est une photographie de ce banc expérimental.

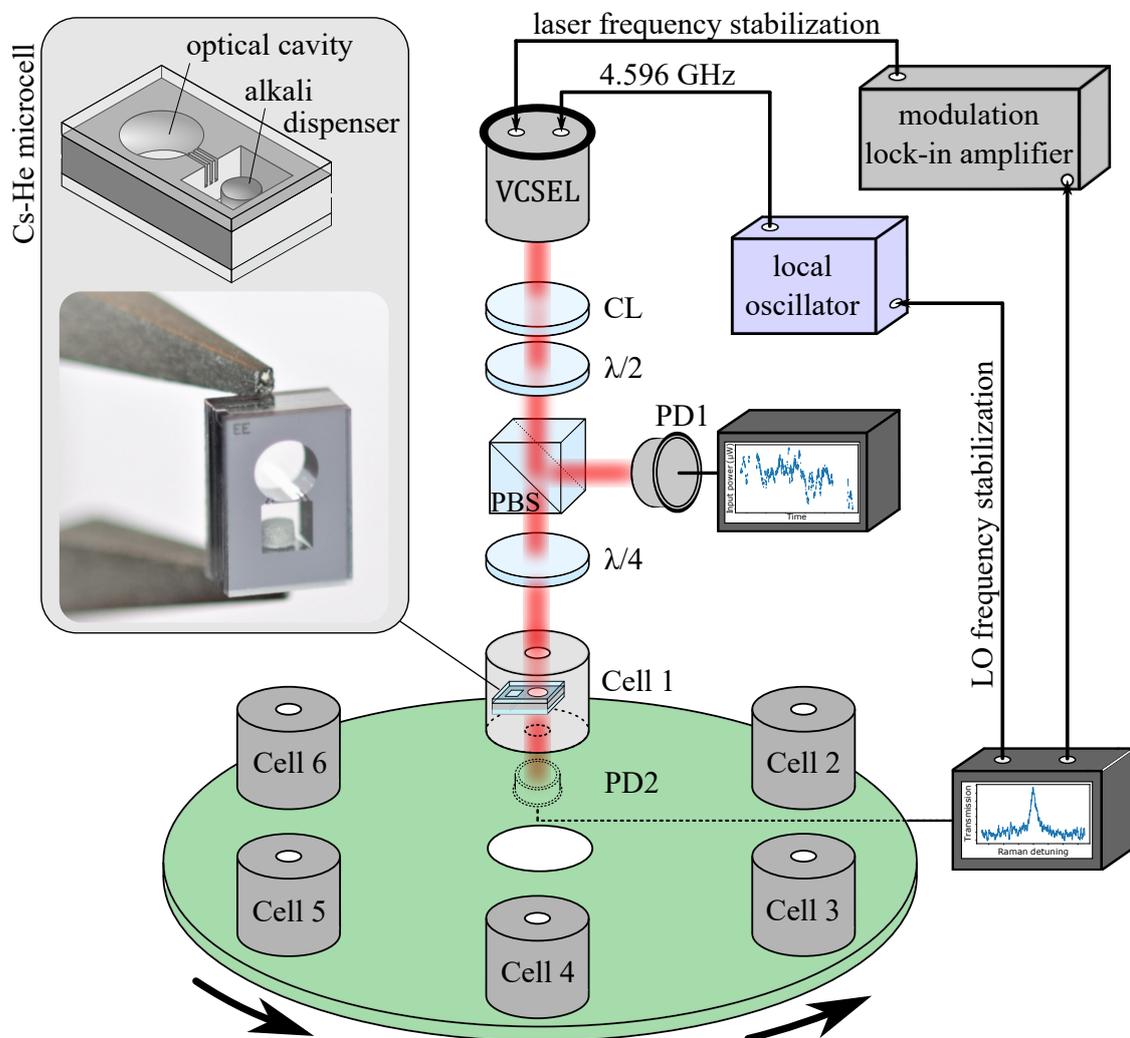


FIGURE 4.19 – Schéma de fonctionnement du banc expérimental d'horloge CPT à 6-cellules. Les modules physiques sont numérotés de 1 à 6. Ces derniers sont montés sur une plateforme rotative. Le fonctionnement du banc est détaillé dans le texte. CL : lentille de collimation, $\lambda/2$: lame demi-onde, PBS : cube séparateur polarisé, $\lambda/4$: lame quart-onde, LO : oscillateur local et PD1, PD2 sont des photodiodes. Figure extraite de [28].

Le banc d'horloge CPT 6-cellules est basé sur un axe optique vertical unique. Ce montage optique est couplé à une plateforme rotative qui embarque 6 modules physiques (figure 4.21(a)). Tous ces modules contiennent une micro-cellule insérée dans un support en duralumin. Ce dernier peut être régulé en température. Un champ magnétique statique est appliqué grâce à des bobines de Helmholtz. Chaque module physique est entouré de trois capots. Le premier est une bague en aluminium utilisée pour favoriser le transfert thermique. Le second est un blindage en mu-métal qui protège la cellule des perturbations magnétiques extérieures. Le troisième est un capot en plastique qui protège la cellule des perturbations thermiques extérieures. Une vis en nylon est intégrée dans la bague en aluminium pour stabiliser mécaniquement la cellule dans son support. Afin de simplifier l'architecture électronique du système, toutes les cellules sont régulées à la même température de 70°C et expérimentent un champ magnétique statique similaire. Le faisceau laser vertical issu d'une diode laser VCSEL est envoyé directement sur la cellule choisie et la lumière est détectée en sortie de cellule par la photodiode PD2. La plateforme rotative permet alors de changer périodiquement la cellule d'étude.

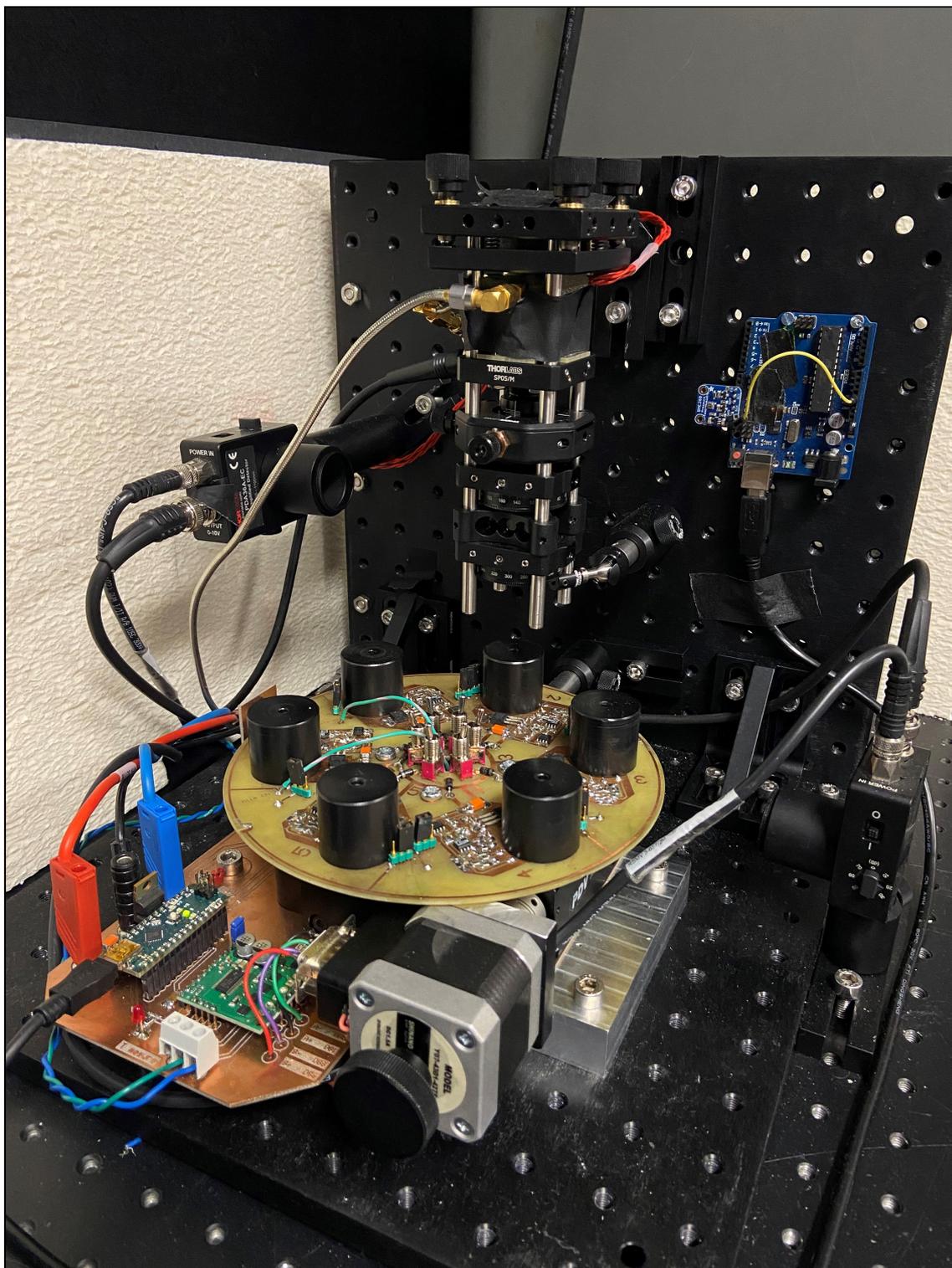


FIGURE 4.20 – Photographie du banc expérimental à 6-cellules montré sur la figure 4.19. Une carte Arduino Uno (à droite sur le plateau vertical) a été rajoutée par rapport à la figure 4.19 afin de monitorer l'évolution de la température, de la pression et de l'humidité dans l'enceinte du banc.

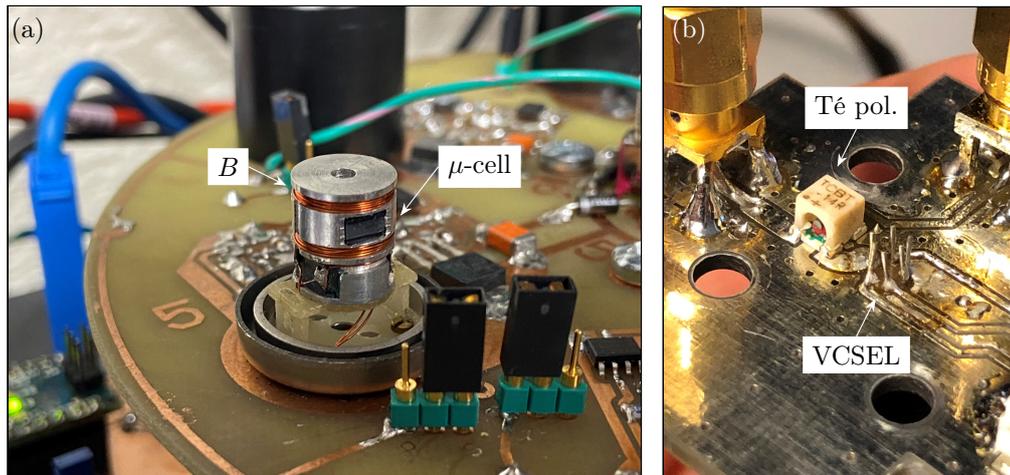


FIGURE 4.21 – (a) Module physique accueillant une des six micro-cellules et (b) PCB de la VCSEL avec son té de polarisation pour l’injection du signal micro-onde à 4.596 GHz. B : bobines de Helmholtz pour la génération du champ magnétique, μ -cell : micro-cellule et Té pol. : té de polarisation.

La figure 4.22 montre une photographie des 6 modules physiques, numérotés de 1 à 6. Ces derniers sont embarqués sur une plateforme rotative motorisée. La fréquence d’horloge d’une cellule est monitorée pendant deux minutes avant de passer à la cellule suivante.

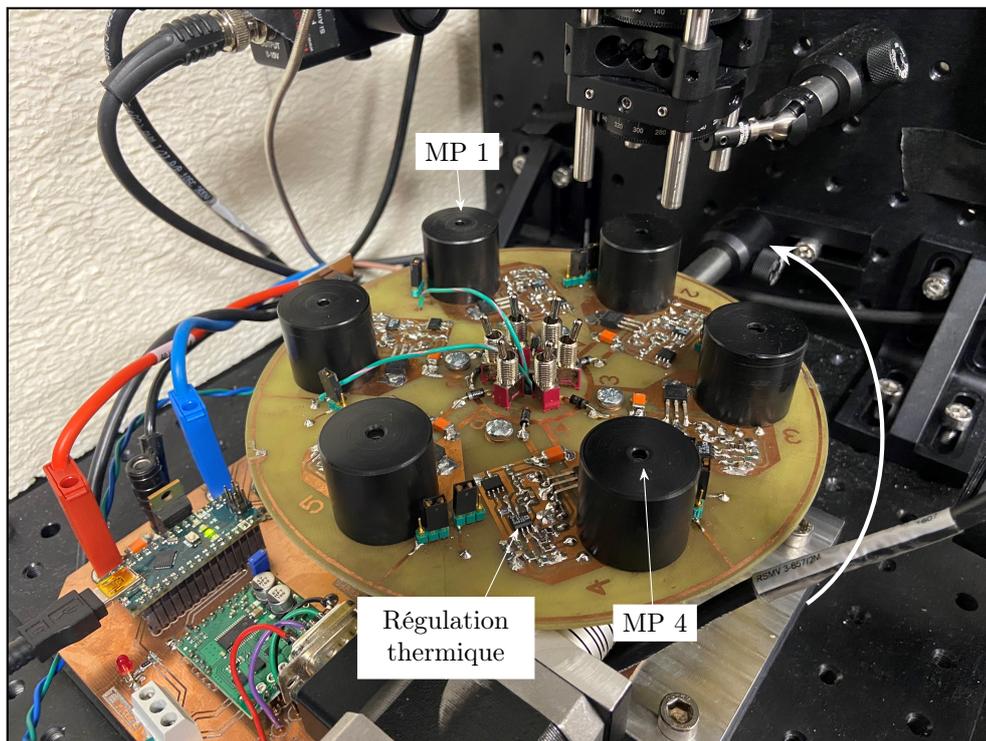


FIGURE 4.22 – Plateforme rotative intégrant les 6 modules physiques (MP) numérotés de 1 à 6.

La source laser est une diode laser VCSEL, accordée sur la raie D_1 du césium à 895 nm. La puce laser est montée dans un support TO46 avec un module Peltier et une thermistance ($10\text{ k}\Omega$ à 25°C) pour le contrôle de la température. Le courant laser est piloté par une source de courant bas bruit. La VCSEL est soudée directement sur un PCB, montré sur la figure 4.21(b), qui accueille aussi le té de polarisation. En configuration d’horloge, la température de la VCSEL est d’environ 70°C et le courant injecté est de 1.8 mA.

Le support de la VCSEL est embarqué dans un cage fixée sur un plateau vertical. La cage, montrée figure 4.23, est composée de vis réglables permettant d’ajuster l’alignement du faisceau laser. Une lentille convergente (CL) avec une distance focale de 25 mm, est placée en sortie de la VCSEL pour collimater le faisceau qui

est directement envoyé vers la plateforme. Une lentille $\lambda/2$ est insérée sur le chemin optique, suivie d'un cube séparateur polarisé (PBS) afin d'extraire une fraction de la puissance laser P_l qui est mesurée par la photodiode PD1. Cette photodiode peut être utilisée pour calibrer la puissance laser à l'entrée de la cellule. En sortie du cube, une lame $\lambda/4$ est utilisée pour polariser circulairement le faisceau laser. Le faisceau est alors envoyé dans la cellule d'étude et est détecté en sortie par la photodiode PD2.

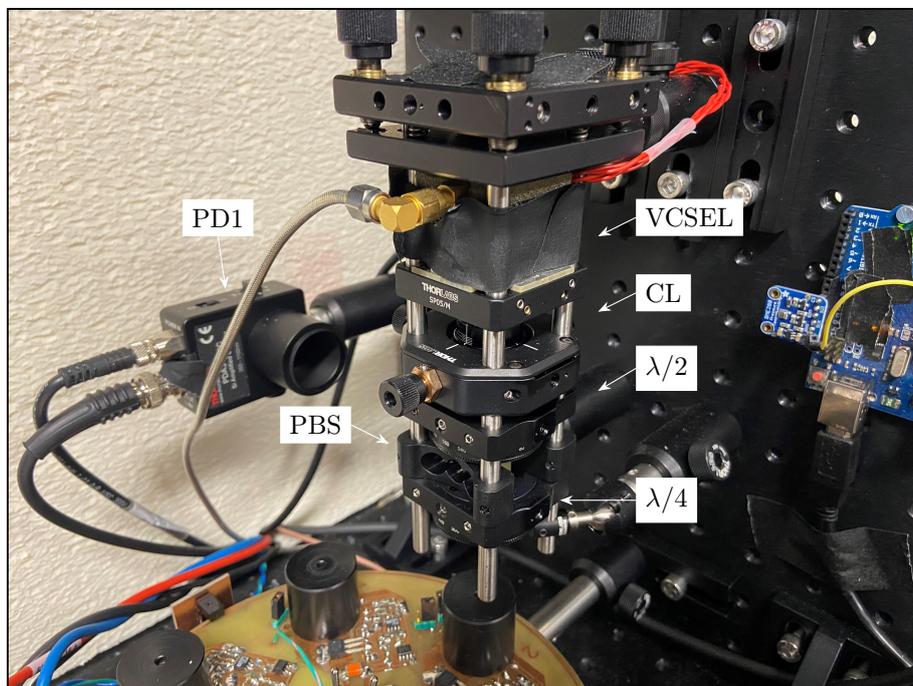


FIGURE 4.23 – Axe optique vertical du banc, composé d'une diode laser VCSEL et d'optiques de mise en forme. L'alignement du faisceau laser est ajusté à l'aide de vis de réglages sur les supports.

La plateforme est motorisée par un moteur pas-à-pas piloté par un pont en H (H-bridge). L'ensemble de l'électronique de contrôle de la plateforme rotative est piloté par une carte Arduino Nano. La résolution angulaire du moteur varie de 2 à 0.02° selon le nombre de micro-pas utilisés.

Le signal issu de la photodiode PD2 est utilisé pour stabiliser la fréquence du laser. Pour cela, la fréquence laser est ajustée de telle sorte que les bandes latérales optiques du premier ordre soient résonantes avec la transition entre les niveaux hyperfins $|F = 3\rangle$ et $|F = 4\rangle$ de l'état fondamental $6S_{1/2}$ avec le niveau hyperfin $|F' = 4\rangle$ de l'état excité $6P_{1/2}$ de la raie D_1 du césium. Le courant laser est modulé avec une sinusoïde de fréquence 34 kHz, le signal d'absorption optique de la photodiode PD2 est démodulé par détection synchrone et une boucle d'asservissement stabilise la fréquence laser sur le centre du signal optique résonant en appliquant des corrections sur le courant d'injection du laser. Une seconde boucle d'asservissement est utilisée pour stabiliser la fréquence de l'oscillateur local sur le signal de résonance CPT. L'asservissement est réalisé par modulation de fréquence.

Le signal à 4.596 GHz utilisé pour la modulation micro-onde de la VCSEL est généré par un synthétiseur commercial (Rohde-Schwarz, SMA100B). Ce dernier est référencé sur un maser à hydrogène actif utilisé comme référence de fréquence pour les mesures de déplacements de fréquence et de stabilité. En mode horloge, la fréquence en sortie du synthétiseur est contrôlée numériquement et les corrections de fréquence sont appliquées et enregistrées à chaque cycle d'horloge. Les valeurs enregistrées représentent la différence de fréquence entre le signal atomique d'horloge et le maser à hydrogène. La stabilité de fréquence du maser étant inférieure à 10^{-13} à 1 s, la stabilité mesurée est directement celle de l'horloge à micro-cellule.

L'acquisition des données, incluant les signaux des photodiodes PD1 et PD2 ainsi que des multimètres, et le pilotage du banc d'horloge sont réalisés avec une carte multi-fonction National Instruments connectée à un ordinateur.

Nous avons dans un premier temps effectué des mesures de calibration afin de s'assurer que l'horloge puisse mesurer des niveaux de stabilité de fréquence de quelques 10^{-11} .

Nous avons mesuré les niveaux de sensibilité de la fréquence d'horloge aux variations du champ laser. On rapporte des mesures de fréquence de la transition optique $|F = 4\rangle \Rightarrow |F' = 4\rangle$. La sensibilité de la fréquence d'horloge aux variations de puissance laser est mesurée en monitorant l'évolution de la fréquence d'horloge lors de l'application de sauts de puissance laser. Une régression linéaire permet d'obtenir la valeur du coefficient de déplacement lumineux. La figure 4.24 montre le résultat de cette mesure pour différentes puissances micro-ondes.

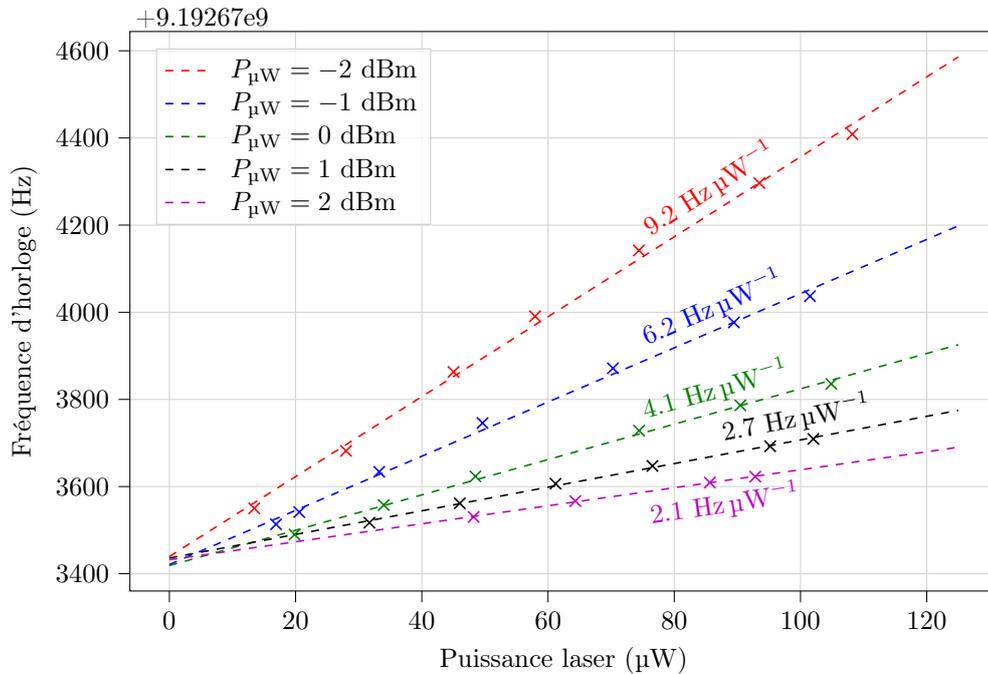


FIGURE 4.24 – Sensibilité de la fréquence d'horloge aux variations de puissance laser pour différentes puissances micro-ondes.

On note que le coefficient de déplacement lumineux est réduit pour une puissance micro-onde $P_{\mu W}$ de 2 dBm, à un niveau de $2.1 \text{ Hz } \mu\text{W}^{-1}$. Cependant, une étude complémentaire a montré que la stabilité de fréquence court-terme de l'horloge était optimisée pour une puissance micro-onde de -2 dBm .

La figure 4.25(c) est une mesure de la fréquence d'horloge du module physique 1 durant 15 heures. La puissance laser est de $32.6 \mu\text{W}$ et la puissance micro-onde de -2 dBm . La stabilité de fréquence court-terme de l'horloge (figure 4.25(d)) est de $\sigma_y(\tau) \simeq 4 \times 10^{-11}$ à 1 s. On rapporte aussi sur la figure 4.25(a) l'évolution de la puissance laser. Les fluctuations relatives typiques de la puissance laser, montrées figure 4.25(b), sont de $\Delta P_l/P_l = 4 \times 10^{-3}$ à 10^3 s , limitant la stabilité de fréquence à un niveau de 1.3×10^{-11} à 10^3 s . Ce résultat est en accord correct avec la stabilité de fréquence rapportée. Des mesures identiques réalisées sur les autres modules physiques donnent des coefficients de sensibilités identiques. Ce résultat est cohérent et confirme l'avantage d'utiliser une unique ligne optique afin de se placer dans des conditions expérimentales similaires entre les six modules. Les niveaux de sensibilités aux déplacements lumineux sont cohérents avec une horloge CPT opérant en régime continu. On néglige les déplacements lumineux induits par les fluctuations de champ magnétique.

La figure 4.26(a) rapporte l'évolution de la température des modules 2, 3, 4 et 5 durant plus de deux jours. La différence de température absolue entre les modules provient probablement d'un placement différent des thermistances de mesure. On considérera par la suite une incertitude de mesure de $\pm 1^\circ\text{C}$ sur la valeur absolue de la température. La figure 4.26(b) rapporte les fluctuations de température des modules. En considérant une sensibilité de la fréquence d'horloge aux variations de température de $4.5 \text{ Hz } \text{K}^{-1}$ (issue d'une mesure sur un banc expérimental équivalent), les fluctuations de température limitent la stabilité de fréquence d'horloge à un niveau de 1×10^{-13} à 10^3 s .

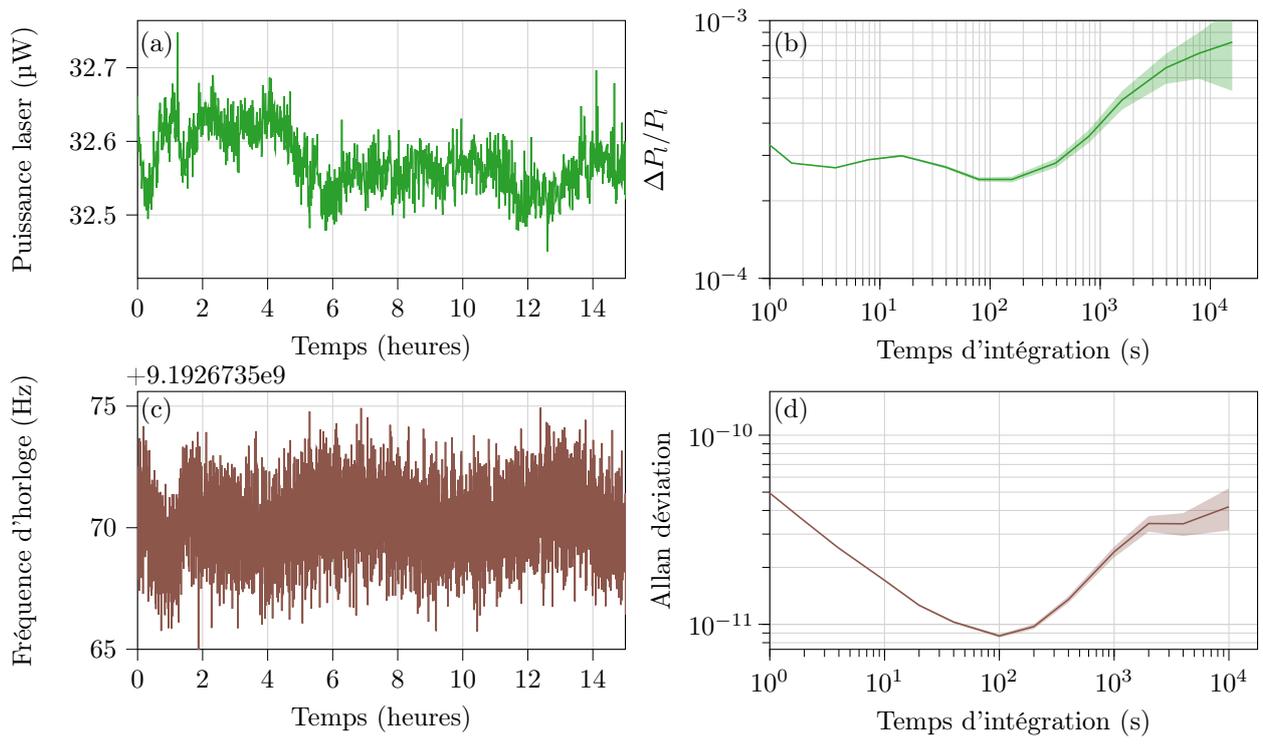


FIGURE 4.25 – (a) Puissance laser en fonction du temps, (b) fluctuations relatives de puissance laser, (c) fréquence d'horloge en fonction du temps et (d) déviation d'Allan de la fréquence d'horloge.

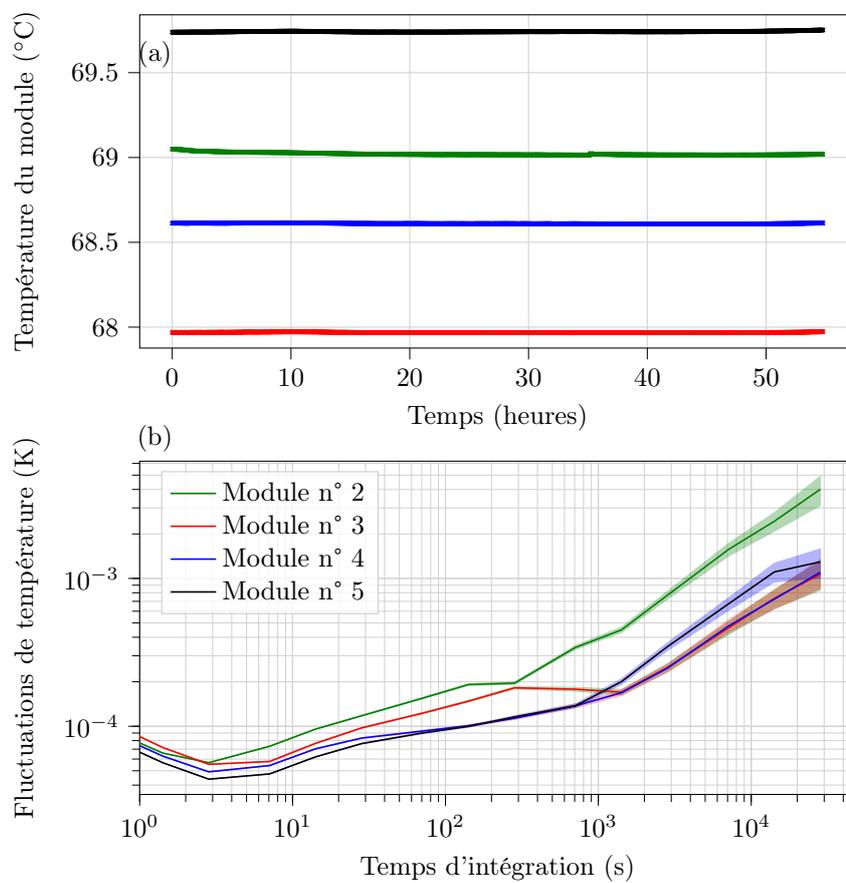


FIGURE 4.26 – (a) Température des modules 2, 3, 4 et 5, (b) fluctuations de température issues des données de (a).

La figure 4.28 est le logigramme d'une séquence complète de mesure des 6 micro-cellules. En début de séquence, la plateforme effectue une calibration de son axe de rotation et se dirige vers la cellule d'étude (l'optimisation de l'alignement est décrit plus loin). Une mesure du spectre optique et du signal de résonance CPT est enregistrée pour une analyse à posteriori. Par la suite, la fréquence d'horloge est stabilisée et monitorée durant 2 minutes. A l'issue de cette mesure, la plateforme se dirige vers la cellule suivante et la séquence est répétée.

Une problématique spécifique à la conception de ce banc concernait l'alignement optique du faisceau laser avec les modules physiques. En effet, si le module physique lors d'un changement de cellule n'est pas parfaitement aligné avec l'axe optique, le faisceau laser risque d'être tronqué, menant à une variation du champ optique vu par les atomes (i.e. puissance laser, répartition d'énergie, etc) entre deux mesures consécutives d'une même cellule. Cette erreur d'alignement peut alors entraîner des déplacements de fréquence fictifs, non-induits par le comportement intrinsèque de la cellule. Afin de répondre à cette problématique, nous avons mis en place un algorithme optimisant l'alignement du faisceau laser avec le module physique. Le logigramme de l'algorithme est représenté sur la figure 4.29. Le principe derrière cet algorithme est de se déplacer angulairement autour du module physique afin de maximiser le signal de transmission lu par la photodiode PD2. Au début du cycle de mesure, la platine s'aligne sur un capteur de positionnement afin d'effectuer une remise à zéro de sa position. La première cellule est ciblée et la platine s'aligne grossièrement au dessus de celle-ci. Un balayage en trois points est réalisé autour de cette position initiale avec des incréments angulaires de 2° , et les niveaux de tension moyens lus par PD2 sont enregistrés (notés A, B et C). On distingue alors trois cas possibles représentés sur la figure 4.27. Dans la première possibilité où $A > B > C$, la platine est déjà passée au delà du point de transmission maximal. Dans le deuxième cas où $A < B > C$, le point optimal a été passé durant le balayage. Enfin, dans la dernière possibilité, $A < B < C$, signifie que le point de transmission maximal n'a pas encore été dépassé. Dans les cas 1 ou 2, on répète ce cycle de balayage angulaire en alternant le sens de rotation et en réduisant la résolution du pas (2, 0.25, 0.12, 0.07, 0.03 puis 0.02°). Une fois le balayage avec le pas le plus faible réalisé (i.e. 0.02°), le niveau de tension moyen de transmission de la position finale est comparé au niveau de tension maximal relevé durant le cycle d'optimisation. On autorise une erreur de 0.4%. Dans le cas contraire, un nouveau cycle d'optimisation est réalisé.

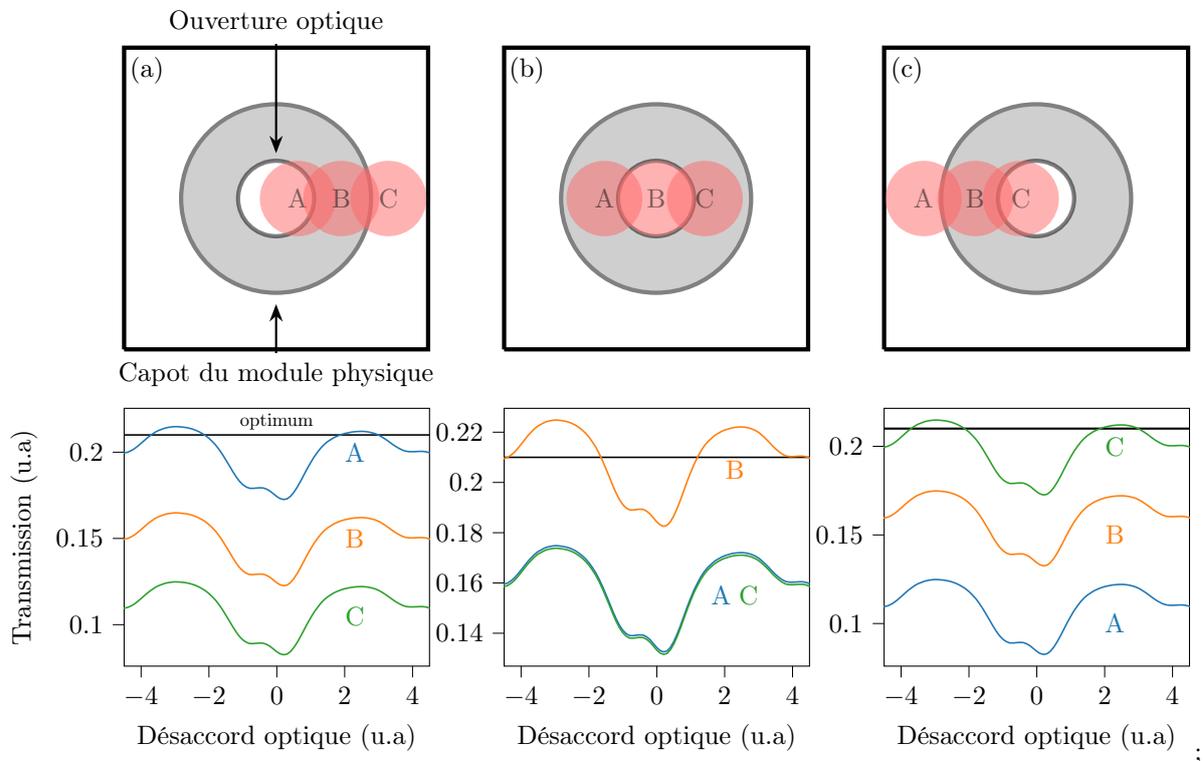
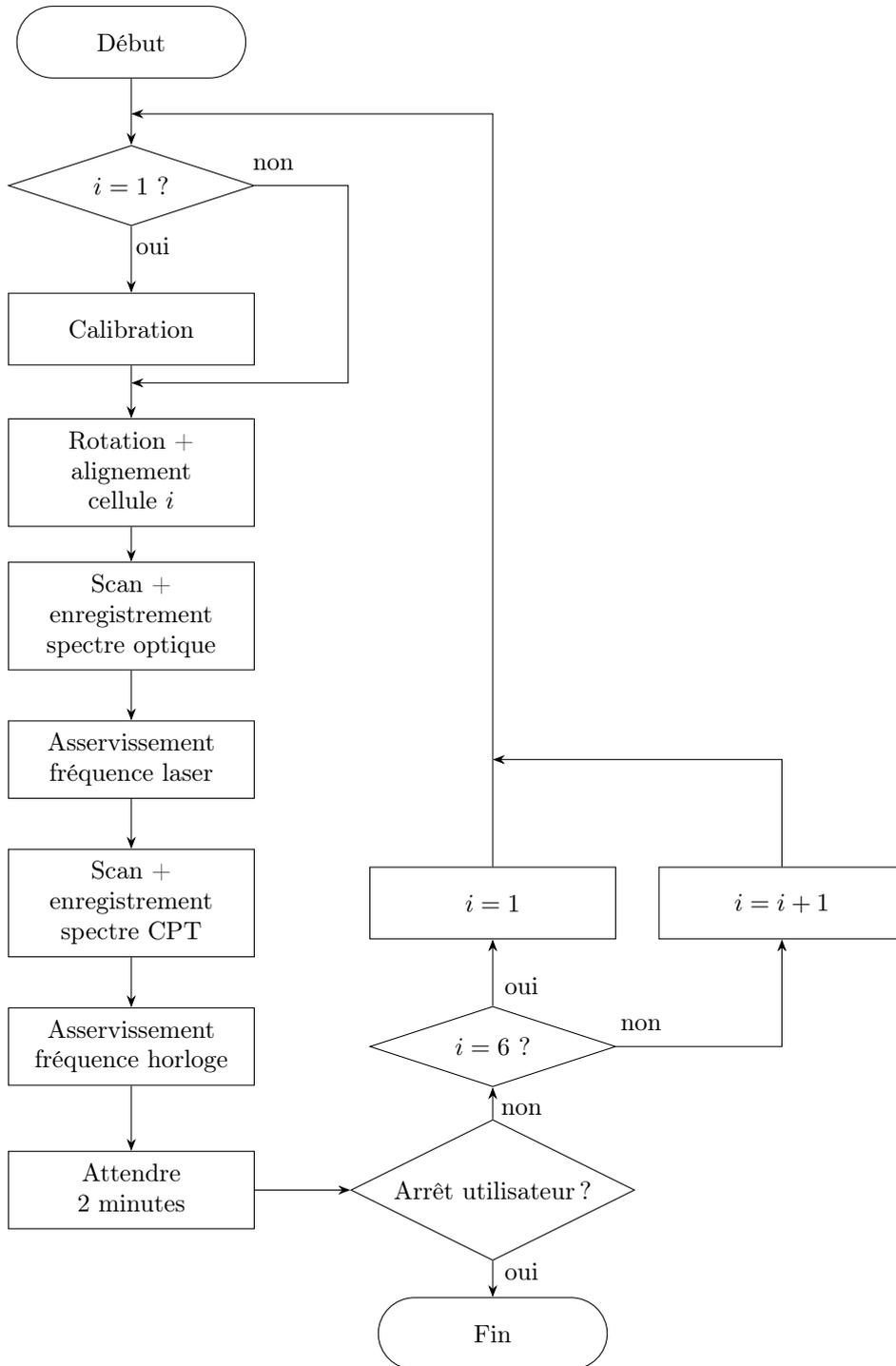


FIGURE 4.27 – Représentation graphique des trois cas possibles lors de la séquence d'optimisation de l'alignement du faisceau laser avec le module physique. Le faisceau laser est représenté par les taches rouges. A, B et C correspondent aux trois mesures successives. (a) $A > B > C$ l'optimum en transmission a déjà été passé. (b) $A < B > C$ l'optimum a été passé lors du balayage angulaire. (c) $A < B < C$ l'optimum n'a pas encore été passé. Les graphiques représentent les signaux de transmission A, B et C des différentes configurations.



;

FIGURE 4.28 – Logigramme du fonctionnement général d’un cycle de mesure. On note i le numéro du module physique.

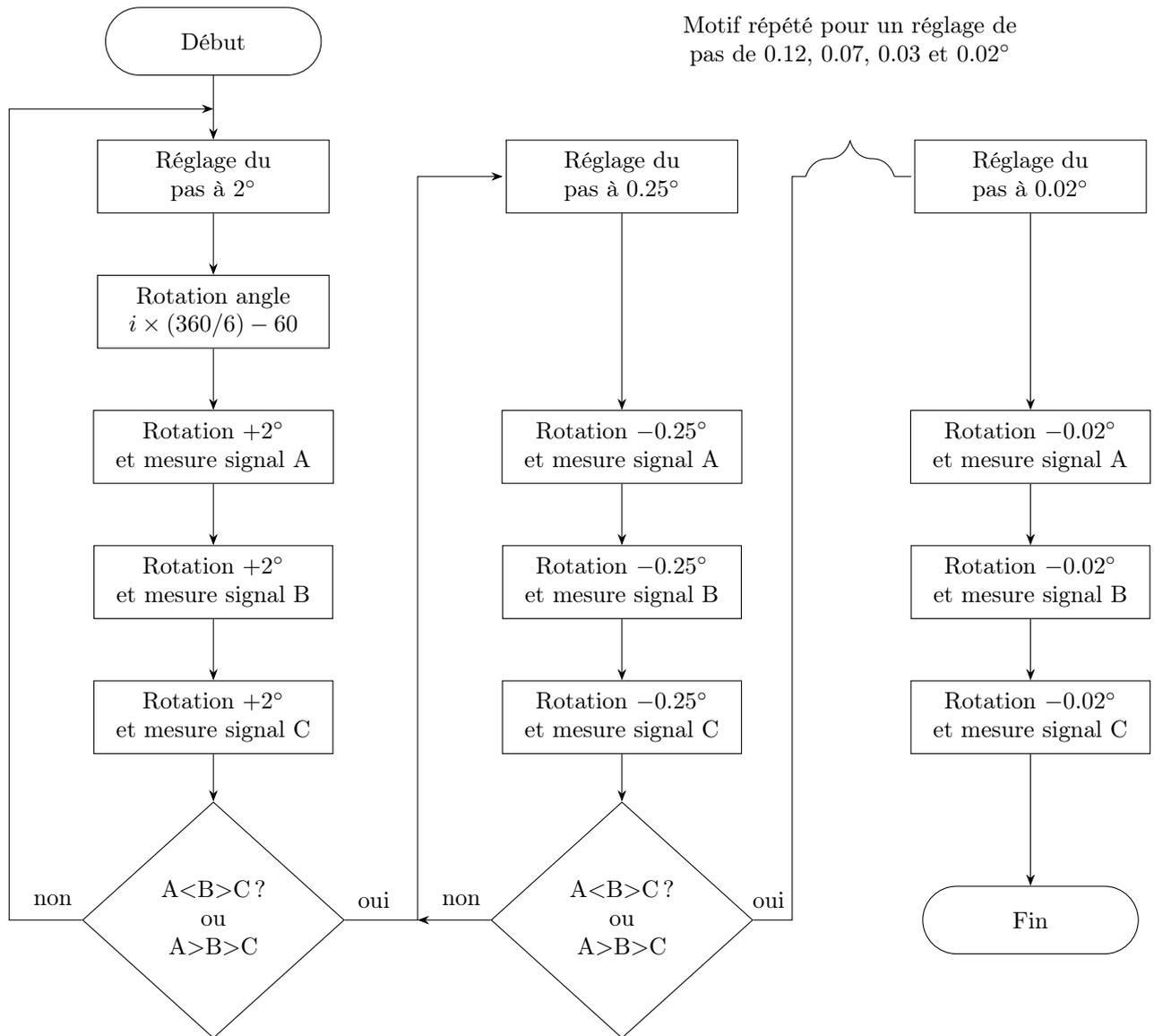
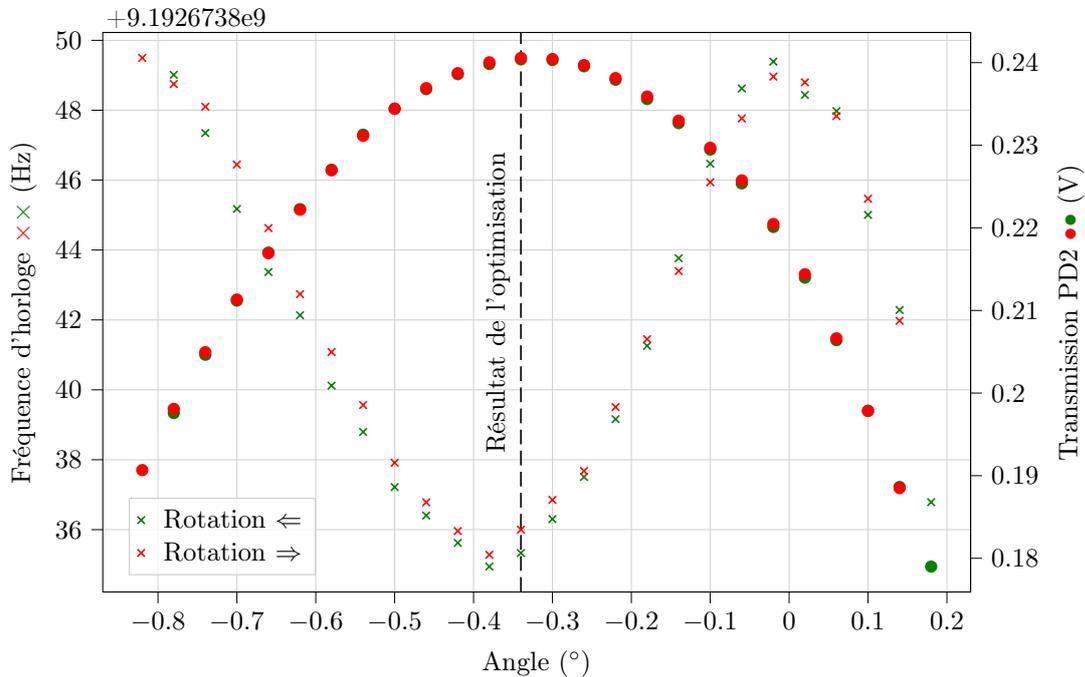


FIGURE 4.29 – Logigramme de l'algorithme d'optimisation de l'alignement du faisceau laser avec le module physique. Logigramme correspondant à la case d'action "Rotation + alignement cellule i " de la figure 4.28

La figure 4.30 représente la mesure de la fréquence d'horloge et du signal de transmission en fonction de l'angle de rotation de la plateforme. On observe dans un premier temps que l'algorithme fonctionne bien car l'angle issu du cycle d'optimisation correspond bien au maximum du signal de transmission.



;

FIGURE 4.30 – Fréquence d'horloge $\times \times$ et signal de transmission PD2 $\bullet \bullet$ en fonction de l'angle de rotation. La mesure a été répétée dans les deux sens de rotation (horaire \Rightarrow et anti-horaire \Leftarrow).

Le comportement en cloche renversée de la fréquence d'horloge pourrait être expliqué par des déplacements lumineux induits par le faisceau partiellement tronqué. Ce comportement varie selon les modules physiques (on présente ici la configuration la moins favorable). On relève localement autour du point d'optimisation une pente de sensibilité de la fréquence d'horloge au positionnement de $0,5 \text{ Hz } ^\circ^{-1}$, limitant la stabilité de fréquence à quelques 10^{-11} entre deux mesures. Cependant, cette erreur de mesure s'intègre dans le temps car une même cellule est mesurée environ 45 fois par jour. Ainsi, cette limitation de stabilité de fréquence est rejetée à un niveau de l'ordre de 8×10^{-12} à la journée.

Annexe 2 : Historique des cellules mesurées

Le tableau suivant est un historique des cellules Cs-Ne-He mesurées sur le banc 6-cellules durant l'étude sur la perméation de l'hélium à travers les verres de la microcellule.

ID	Substrat	Dépôt	C optique (%)	FWHM (MHz)	Pression He (Torr)	K ($\text{m}^2 \text{s}^{-1} \text{Pa}^{-1}$)	τ (jours)
HA8EE	ASG	Non	19	2400	83.69 ± 1.93	$1.43 \times 10^{-21} \pm 1.35 \times 10^{-22}$	$3.05 \times 10^4 \pm 2.08 \times 10^3$
HA8CE	ASG	Non	17.7	2440	85.36 ± 1.94	$1.24 \times 10^{-21} \pm 1.16 \times 10^{-23}$	$3.53 \times 10^4 \pm 2.4 \times 10^3$
HA8IR	ASG	Non	15	2400	83.69 ± 1.93	$1.35 \times 10^{-21} \pm 1.28 \times 10^{-22}$	$3.23 \times 10^4 \pm 2.21 \times 10^3$
TE30CF	BSG	Al ₂ O ₃	12.1	1740	56.21 ± 0.40	$1.59 \times 10^{-20} \pm 1.24 \times 10^{-21}$	$2.75 \times 10^3 \pm 1.44 \times 10^2$
TE30EP	BSG	Al ₂ O ₃	10-4.8	2420	84.53 ± 0.48	$1.56 \times 10^{-20} \pm 1.20 \times 10^{-21}$	$2.80 \times 10^3 \pm 1.43 \times 10^2$
TE30ER	BSG	Al ₂ O ₃	11-8.2	2260	77.86 ± 0.46	$1.06 \times 10^{-20} \pm 8.21 \times 10^{-22}$	$4.12 \times 10^3 \pm 2.10 \times 10^2$
TE30GH	BSG	Al ₂ O ₃	21	1920	63.70 ± 0.42	$2.24 \times 10^{-20} \pm 1.75 \times 10^{-21}$	$1.95 \times 10^3 \pm 1.01 \times 10^2$
TE30GJ	BSG	Al ₂ O ₃	30-32	1295	37.68 ± 0.34	$1.26 \times 10^{-19} \pm 1.02 \times 10^{-20}$	$3.47 \times 10^2 \pm 1.91 \times 10^1$
TE30GN	BSG	Al ₂ O ₃	42.5	935	22.69 ± 0.30	$5.26 \times 10^{-20} \pm 4.48 \times 10^{-21}$	$8.30 \times 10^2 \pm 4.89 \times 10^1$
TE30GO	BSG	Al ₂ O ₃	32	1237	35.26 ± 0.33	$7.89 \times 10^{-20} \pm 6.41 \times 10^{-21}$	$5.54 \times 10^2 \pm 3.05 \times 10^1$
TE30GP	BSG	Al ₂ O ₃	15	1670	53.29 ± 0.39	$6.29 \times 10^{-21} \pm 4.95 \times 10^{-22}$	$6.94 \times 10^3 \pm 3.64 \times 10^2$
TE30KK	BSG	Al ₂ O ₃	10-8.7	2280	78.70 ± 0.46	$1.19 \times 10^{-20} \pm 9.23 \times 10^{-22}$	$3.66 \times 10^3 \pm 1.87 \times 10^2$
TE30KM	BSG	Al ₂ O ₃	16	1690	54.13 ± 0.39	$3.01 \times 10^{-20} \pm 2.37 \times 10^{-21}$	$1.45 \times 10^3 \pm 7.61 \times 10^1$
WT33EF	BSG	Al ₂ O ₃	19.2-19.1	2180	74.53 ± 0.45	$1.51 \times 10^{-19} \pm 1.17 \times 10^{-20}$	$2.90 \times 10^2 \pm 1.49 \times 10^1$
WT33EG	BSG	Al ₂ O ₃	14.3-11	2170	74.12 ± 0.45	$1.41 \times 10^{-19} \pm 1.15 \times 10^{-20}$	$3.09 \times 10^2 \pm 1.71 \times 10^1$
WT33EO	BSG	Al ₂ O ₃	16.5-17	2180	74.53 ± 0.45	$1.56 \times 10^{-19} \pm 1.26 \times 10^{-20}$	$2.79 \times 10^2 \pm 1.52 \times 10^1$
WT33GO	BSG	Al ₂ O ₃	14.5-13	2180	74.53 ± 0.45	$1.38 \times 10^{-19} \pm 1.07 \times 10^{-20}$	$3.16 \times 10^2 \pm 1.63 \times 10^1$
WT33HI	BSG	Al ₂ O ₃	18.4-18.1	2230	76.61 ± 0.45	$1.38 \times 10^{-19} \pm 1.07 \times 10^{-20}$	$3.17 \times 10^2 \pm 1.62 \times 10^1$
WT35FK	BSG	Non	17.8-17.4	2130	72.45 ± 0.44	$5.78 \times 10^{-19} \pm 6.36 \times 10^{-20}$	$7.57 \times 10^1 \pm 6.35 \times 10^0$
WT35GL	BSG	Non	21	2130	72.45 ± 0.44	$5.51 \times 10^{-19} \pm 5.92 \times 10^{-20}$	$7.92 \times 10^1 \pm 6.43 \times 10^0$
WT35IH	BSG	Non	20.6-21	2130	72.45 ± 0.44	$6.26 \times 10^{-19} \pm 5.00 \times 10^{-20}$	$6.99 \times 10^1 \pm 3.75 \times 10^0$
WT37DG	BSG	Al ₂ O ₃	10	2311	79.99 ± 0.46	$5.19 \times 10^{-21} \pm 4.01 \times 10^{-22}$	$8.43 \times 10^3 \pm 4.30 \times 10^2$
WT37DH	BSG	Al ₂ O ₃	5.4	2311	79.99 ± 0.46	$4.64 \times 10^{-21} \pm 3.59 \times 10^{-22}$	$9.42 \times 10^3 \pm 4.81 \times 10^2$
WT38EM	ASG	Al ₂ O ₃	7	2335	80.99 ± 0.47	$3.88 \times 10^{-20} \pm 3.01 \times 10^{-21}$	$1.13 \times 10^3 \pm 5.78 \times 10^1$
WT38GM	ASG	Al ₂ O ₃	7	2335	80.99 ± 0.47	$5.43 \times 10^{-20} \pm 4.19 \times 10^{-21}$	$8.05 \times 10^2 \pm 4.11 \times 10^1$
WT38GN	ASG	Al ₂ O ₃	8.5	2335	80.99 ± 0.47	$5.68 \times 10^{-20} \pm 4.42 \times 10^{-21}$	$7.70 \times 10^2 \pm 3.97 \times 10^1$
WT38HN	ASG	Al ₂ O ₃	8	2335	80.99 ± 0.47	$1.29 \times 10^{-20} \pm 1.01 \times 10^{-21}$	$3.37 \times 10^3 \pm 1.73 \times 10^2$
WT38HI	ASG	Al ₂ O ₃	9	2335	80.99 ± 0.47	$3.12 \times 10^{-20} \pm 2.42 \times 10^{-21}$	$1.40 \times 10^3 \pm 7.19 \times 10^1$
WT38IO	ASG	Al ₂ O ₃	7	2335	80.99 ± 0.47	$2.28 \times 10^{-20} \pm 1.77 \times 10^{-21}$	$1.92 \times 10^3 \pm 9.82 \times 10^1$

ID	Substrat	Dépôt	C optique (%)	FWHM (MHz)	Pression He (Torr)	K ($\text{m}^2 \text{s}^{-1} \text{Pa}^{-1}$)	τ (jours)
WT40DE	BSG	Al_2O_3	24.5	1302	37.97 ± 0.34	$5.19 \times 10^{-21} \pm 4.19 \times 10^{-22}$	$8.42 \times 10^3 \pm 4.58 \times 10^2$
WT40DM	BSG	Al_2O_3	27.7	1298	37.80 ± 0.34	$8.96 \times 10^{-20} \pm 7.23 \times 10^{-21}$	$4.88 \times 10^2 \pm 2.65 \times 10^1$
WT40DQ	BSG	Al_2O_3	28.9	1295	37.68 ± 0.34	$8.73 \times 10^{-20} \pm 7.05 \times 10^{-21}$	$5.00 \times 10^2 \pm 2.72 \times 10^1$
WT40FI	BSG	Al_2O_3	27.3	1277	36.93 ± 0.34	$2.20 \times 10^{-19} \pm 1.79 \times 10^{-20}$	$1.99 \times 10^2 \pm 1.10 \times 10^1$
WT40FM	BSG	Al_2O_3	22.2	1268	36.55 ± 0.34	$1.90 \times 10^{-19} \pm 1.55 \times 10^{-20}$	$2.30 \times 10^2 \pm 1.27 \times 10^1$
WT40HI	BSG	Al_2O_3	34.5	1220	34.55 ± 0.33	$4.20 \times 10^{-19} \pm 3.49 \times 10^{-20}$	$1.04 \times 10^2 \pm 5.91 \times 10^0$
WT40HM	BSG	Al_2O_3	29.4	1298	37.80 ± 0.34	$1.17 \times 10^{-19} \pm 9.42 \times 10^{-21}$	$3.75 \times 10^2 \pm 2.04 \times 10^1$
WT40HQ	BSG	Al_2O_3	25.4	1285	37.26 ± 0.34	$5.46 \times 10^{-20} \pm 4.40 \times 10^{-21}$	$8.01 \times 10^2 \pm 4.36 \times 10^1$

Annexe 3 : Articles publiés et communications effectuées

Articles publiés dans différentes revues scientifiques

2021

C. Carlé, M. Petersen, N. Passilly, M. Abdel Hafiz, E. de Clercq et R. Boudot, *Exploring the use of Ramsey-CPT spectroscopy for a microcell-based atomic clock*, IEEE Trans. Ultrason. Ferroelectr. Freq. Control. **68**, 10, 3249 (2021).

2022

V. Maurice, C. Carlé, S. Keshavarzi, R. Chutani, S. Queste, L. Gauthier-Manuel, J.M. Cote, R. Vicarini, M. Abdel-Hafiz, R. Boudot et N. Passilly, *Wafer-level vapor cells filled with laser-actuated hermetic seals for integrated atomic devices*, Nature Microsys. Nanoeng. **8**, 129 (2022).

M. Abdel Hafiz, C. Carlé, N. Passilly, J. M. Danet, C. E. Calosso et R. Boudot, *Light-shift mitigation in a microcell-based atomic clock with symmetric auto-balanced Ramsey spectroscopy*, Appl. Phys. Lett. **120**, 064101 (2022).

2023

C. Carlé, M. Abdel Hafiz, S. Keshavarzi, R. Vicarini, N. Passilly et R. Boudot, *Pulsed-CPT Cs-Ne microcell atomic clock with frequency stability below 2×10^{-12} at 10^5 s*, Opt. Express **31**, 5, 8160 (2023).

C. Carlé, S. Keshavarzi, A. Mursa, P. Karvinen, R. Chutani, S. Bargiel, S. Queste, R. Vicarini, P. Abbe, M. Adbel Hafiz, V. Maurice, R. Boudot et N. Passilly, *Reduction of helium permeation in microfabricated cells using aluminosilicate glass substrates and Al_2O_3 coatings*, J. Appl. Phys. **10**, 1063 (2023).

Conférences

2021

C. Carlé, M. Petersen, N. Passilly, E. de Clercq, M. Abdel Hafiz et R. Boudot, *Ramsey-CPT spectroscopy for a microcell atomic clock*, IEEE International Frequency Control Symposium-European Frequency Time Forum (EFTF-IFCS) 2021, online (2021).

R. Boudot, A. Guschling, C. Carlé, R. Vicarini, N. Passilly, I. Ryger, M. Petersen et M. Abdel Hafiz, *Références de fréquence microonde et optique à microcellule Cs à FEMTO-ST*, Journée du Club Optique Microondes (JCOM) 2021, online (2021).

C. Carlé, A. Guschling, N. Passilly, I. Ryger, J. Millo, M. Petersen, D. Brazhnikov, M. Abdel Hafiz et R. Boudot, *Cs microcell microwave and optical frequency references at FEMTO-ST*, Modern Problems in Laser Physics (MPLP), online (2021).

2022

V. Maurice, R. Chutani, C. Carlé, S. Keshavarzi, S. Queste, L. Gauthier-Manuel, J.M. Cote, R. Vicarini, M. Abdel-Hafiz, R. Boudot et N. Passilly, *Versatile microfabricated alkali vapor cells using local sealing*, IEEE IFCS-EFTF 2022, Paris, France (2022).

C. Carlé, A. Guschling, M. Abdel Hafiz, S. Keshavarzi, I. Ryger, V. Maurice, N. Passilly et R. Boudot, *Horloges atomiques microondes et optiques à microcellule*, Congrès général Optique de la Société Française d'Optique, Nice, France (2022).

C. Carlé, M. Abdel Hafiz, N. Passilly, J. M. Danet, C. E. Calosso et R. Boudot, *Tackling light shifts in a microcell atomic clock with symmetric auto balanced Ramsey*, IEEE EFTF-IFCS 2022, Paris, France (2022).

C. Carlé, M. Abdel Hafiz, N. Passilly, J.M Danet, C. Calosso et R. Boudot, *Réduction des déplacements lumineux dans une horloge à microcellule par méthodes d'interrogation impulsionnelles avancées*, JCOM 2022, Besançon, France (2022).

C. Carlé, M. Abdel Hafiz, R. Vicarini, S. Keshavarzi, N. Passilly et R. Boudot, *Improved clock frequency stability in a micro-atomic clock using pulsed interrogation and low-permeation glass cell*, INMAQS Technical Workshop, Strathclyde, Écosse (2022).

V. Maurice, R. Chutani, C. Carlé, S. Keshavarzi, S. Queste, L. Gauthier-Manuel, J.M. Cote, R. Vicarini, M. Abdel Hafiz, R. Boudot et N. Passilly, *Microfabricated alkali vapor cells using local sealing*, INMAQS Technical Workshop, Strathclyde, Écosse (2022).

2023

C. Carlé, M. Abdel Hafiz, S. Keshavarzi, R. Vicarini, N. Passilly et R. Boudot, *A Ramsey-based microcell CPT clock with fractional frequency stability in the low 10^{-12} range at 10^5 s*, IEEE EFTF-IFCS 2023, Toyama, Japon (2023).

C. Carlé, S. Keshavarzi, A. Mursa, P. Karvinen, R. Chutani, S. Bargiel, R. Vicarini, P. Abbé, M. Abdel Hafiz, V. Maurice, R. Boudot et N. Passilly, *Mitigation of He permeation in microfabricated vapor cells with aluminosilicate glass and Al_2O_3 coatings*, IEEE EFTF-IFCS 2023, Toyama, Japon (2023).

Bibliographie

- [1] G. ALZETTA et al. “An experimental method for the observation of RF transitions and laser beat resonances in oriented Na vapour”, *Il Nuovo Cimento B* **36**, doi: 10.1007/BF02749417 (1976).
- [2] E. ARIMONDO. “V Coherent Population Trapping in Laser Spectroscopy”, *Progress in Optics* **35**, doi: 10.1016/S0079-6638(08)70531-6 (1996).
- [3] D. SERKLAND et al. “VCSELs for atomic sensors”, *Proceedings of SPIE - The International Society for Optical Engineering* **6484**, doi: 10.1117/12.715077 (2007).
- [4] E. KROEMER et al. “Characterization of commercially available vertical-cavity surface-emitting lasers tuned on Cs D1 line at 894.6 nm for miniature atomic clocks”, *Applied Optics* **55**, doi: 10.1364/AO.55.008839 (2016).
- [5] J. KITCHING et al. “Miniature vapor-cell atomic-frequency references”, *Applied Physics Letters* **81**, doi: 10.1063/1.1494115 (2002).
- [6] L-A LIEW et al. “Microfabricated alkali atom vapor cells”, *Applied Physics Letters* **84**, doi: 10.1063/1.1691490 (2004).
- [7] A. DOUABI et al. “Vapour microcell for chip scale atomic frequency standard”, *Electronics Letters* **43**, doi: 10.1049/el:20070147 (2007).
- [8] M. HASEGAWA et al. “Effects of getters on hermetically sealed micromachined cesium–neon cells for atomic clocks”, *Journal of Micromechanics and Microengineering* **23**, doi: 10.1088/0960-1317/23/5/055022 (2013).
- [9] J. KITCHING. “Chip-scale atomic devices”, *Applied Physics Reviews* **5**, doi: 10.1063/1.5026238 (2018).
- [10] S. KNAPPE et al. “A microfabricated atomic clock”, *Applied Physics Letters* **85**, doi: 10.1063/1.1787942 (2004).
- [11] MICROCHIP. *CSAC Microchip CSAC-SA45S*. URL : <https://www.microchip.com/en-us/product/CSAC-SA45S#>.
- [12] H. ZHANG et al. “ULPAC: A Miniaturized Ultralow-Power Atomic Clock”, *IEEE Journal of Solid-State Circuits* **54**, doi: 10.1109/JSSC.2019.2941004 (2019).
- [13] R. VICARINI et al. “Demonstration of the mass-producible feature of a Cs vapor microcell technology for miniature atomic clocks”, *Sensors and Actuators A: Physical* **280**, doi: <https://doi.org/10.1016/j.sna.2018.07.032> (2018).
- [14] J. ZHAO et al. “Advances of Chip-Scale Atomic Clock in Peking University in 2020”, *Proceedings of EFTF/IFCS 2021*, doi: 10.1109/EFTF/IFCS52194.2021.9604289 (2021).
- [15] ACCUBEAT. *Nano Atomic Clock (NAC1) Rubidium Frequency Oscillator*. URL : <https://www.accubeat.com/nano-atomic-clock>.
- [16] J. PARK et al. “Flexible Hybrid Approach for a 3D Integrated Physics Package of Chip-Scale Atomic Clocks”, *IEEE Sensors Journal* **21**, doi: 10.1109/JSEN.2020.3042703 (2021).
- [17] J.F. DENATALE et al. “Compact, low-power chip-scale atomic clock”, *Proceedings of 2008 IEEE/ION Position, Location and Navigation Symposium*, doi: 10.1109/PLANS.2008.4570007 (2008).
- [18] IDQ. *Rubidium Oscillator Specification ICPT-1*. URL : <https://www.iqdfrequencyproducts.com/products/details/icpt-1.pdf>.
- [19] SPACEON. *XHTF1045 CPT Atomic Clock*. URL : <https://shop.stepglobal.com/documents/product/pdf/XHTF1045.pdf>.
- [20] EPSON. *Epson Develops Compact Atomic Oscillator*. URL : <https://news.epson.com/news/epson-develops-compact-atomic-oscillator>.

- [21] J. HAESLER et al. “Ceramic based flat form factor miniature atomic clock physics package (C-MAC)”, *Proceedings of Workshop on Microwave Technology and Techniques* (2017).
- [22] SYRLINKS. *MEMS Micro Atomic Clock: MMAC*. URL : <https://www.syrlinks.com/en/time-frequency/mems-micro-atomic-clock-mm/mac/mems-micro-atomic-clock-mm/mac>.
- [23] N. F. RAMSEY. “A New Molecular Beam Resonance Method”, *Physical Review Journals* **76**, doi: 10.1103/PhysRev.76.996 (1949).
- [24] C. CARLÉ et al. “Exploring the Use of Ramsey-CPT Spectroscopy for a Microcell-Based Atomic Clock”, *IEEE Transactions on Ultrasonics, Ferroelectrics, and Frequency Control* **68**, doi: 10.1109/TUFFC.2021.3085249 (2021).
- [25] M. ABDEL HAFIZ et al. “Symmetric autobalanced Ramsey interrogation for high-performance coherent-population-trapping vapor-cell atomic clock”, *Applied Physics Letters* **112**, doi: 10.1063/1.5030009 (2018).
- [26] M. ABDEL HAFIZ et al. “Light-shift mitigation in a microcell-based atomic clock with symmetric autobalanced Ramsey spectroscopy”, *Applied Physics Letters* **120**, doi: 10.1063/5.0082156 (2022).
- [27] A. T. DELDIS et al. “Low helium permeation cells for atomic microsystems technology”, *Optics Letters* **41**, doi: 10.1364/OL.41.002775 (2016).
- [28] C. CARLÉ et al. “Reduction of helium permeation in microfabricated cells using aluminosilicate glass substrates and Al₂O₃ coatings”, *Journal of Applied Physics* **133**, doi: 10.1063/5.0151899 (2023).
- [29] V. MAURICE. “Design, microfabrication and characterization of alkali vapor cells for miniature atomic frequency references”. Thèse de doctorat. 2016.
- [30] C. CARLÉ et al. “Pulsed-CPT Cs-Ne microcell atomic clock with frequency stability below 2×10^{-12} at 10^5 s”, *Optics Express* **31**, doi: 10.1364/OE.483039 (2023).
- [31] E. BATORI et al. “ μ POP Clock: A Microcell Atomic Clock Based on a Double-Resonance Ramsey Scheme”, *Physical Review Applied* **18**, doi: 10.1103/PhysRevApplied.18.054039 (2022).
- [32] S. YANAGIMACHI et al. “Reducing frequency drift caused by light shift in coherent population trapping-based low-power atomic clocks”, *Applied Physics Letters* **116**, doi: 10.1063/1.5143377 (2020).
- [33] Y. ZHANG et al. “Rubidium chip-scale atomic clock with improved long-term stability through light intensity optimization and compensation for laser frequency detuning”, *Journal of the Optical Society of America B* **33**, doi: 10.1364/JOSAB.33.001756 (2016).
- [34] D.W. ALLAN. “Statistics of atomic frequency standards”, *Proceedings of the IEEE* **54**, doi: 10.1109/PROC.1966.4634 (1966).
- [35] W. C. BUTTERMAN et al. “Cesium”, *Mineral Commodity Profiles, USGS* (2019).
- [36] D. A. STECK. “Cesium D Line Data”, doi: <http://steck.us/alkalidata> (1998).
- [37] G. BREIT et al. “Measurement of Nuclear Spin”, *Physical Review* **38**, doi: 10.1103/PhysRev.38.2082.2 (1931).
- [38] M. STAHLER et al. “Coherent population trapping resonances in thermal ⁸⁵Rb vapor: D₁ versus D₂ line excitation”, *Optics Letters* **27**, doi: 10.1364/OL.27.001472 (2002).
- [39] I. I. RABI. “On the Process of Space Quantization”, *Physical Review* **49**, doi: 10.1103/PhysRev.49.324 (1936).
- [40] I. I. RABI. “Space Quantization in a Gyration Magnetic Field”, *Physical Review* **51**, doi: 10.1103/PhysRev.51.652 (1937).
- [41] N. ALMAT et al. “Long-Term Stability Analysis Toward $< 10^{-14}$ Level for a Highly Compact POP Rb Cell Atomic Clock”, *IEEE Transactions on Ultrasonics Ferroelectrics and Frequency Control* **67**, doi: 10.1109/TUFFC.2019.2940903 (2020).
- [42] M. GOZZELINO et al. “Realization of a pulsed optically pumped Rb clock with a frequency stability below 10^{-15} ”, *Scientific Reports* **13**, doi: 10.1038/s41598-023-39942-5 (2023).
- [43] O. KOZLOVA. “Caractérisation d’une horloge à piégeage cohérent de population dans une vapeur thermique de césium. Principaux effets pouvant affecter la stabilité de fréquence à moyen-long terme”. Thèse de doctorat. 2012.
- [44] A. N. NESMEYANOV. *Vapor Pressure of the Chemical Elements*. English edition edited by Robert Gary. Elsevier, Amsterdam, 1963.

- [45] S. J. SELTZER. “Developments in alkali-metal atomic magnetometry”. Thèse de doctorat. Princeton University, New Jersey, 2008.
- [46] J. MIGDALEK et al. “Core polarization and oscillator strength ratio anomaly in potassium, rubidium and caesium”, *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* **31**, doi: 10.1088/0953-4075/31/9/011 (1998).
- [47] J. SAGLE et al. “Measurement and modelling of intensity dependent absorption and transit relaxation on the cesium line”, *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* **29**, doi: 10.1088/0953-4075/29/12/023 (1996).
- [48] T. LINDVALL et al. “Effect of optical pumping on alkali-atom Doppler-limited spectra”, *Journal of Modern Optics* **54**, doi: 10.1080/09500340701243566 (2007).
- [49] S. MICALIZIO et al. “Raman-Ramsey resonances in atomic vapor cells: Rabi pulling and optical-density effects”, *Physical Review A* **99**, doi: 10.1103/PhysRevA.99.043425 (2019).
- [50] D. PIZZEY et al. “Laser spectroscopy of hot atomic vapours: from scope to theoretical fit”, *New Journal of Physics* **24**, doi: 10.1088/1367-2630/ac9cfe (2022).
- [51] J. F. KIELKOPF. “Semiempirical potentials for alkali-noble gas interactions”, *The Journal of Chemical Physics* **61**, doi: 10.1063/1.1681796 (1974).
- [52] M. V. ROMALIS et al. “Pressure broadening of Rb D₁ and D₂ lines by ³He, ⁴He, N₂, and Xe: Line cores and near wings”, *Physical Review A* **56**, doi: 10.1103/PhysRevA.56.4569 (1997).
- [53] O. KOZLOVA et al. “Temperature and pressure shift of the Cs clock transition in the presence of buffer gases: Ne, N₂, Ar”, *Physical Review A* **83**, doi: 10.1103/PhysRevA.83.062714 (2011).
- [54] K. A. KLUTTZ et al. “Pressure broadening and frequency shift of the D₁ and D₂ lines of Rb and K in the presence of ³He and N₂”, *Physical Review A* **87**, doi: 10.1103/PhysRevA.87.032516 (2013).
- [55] R. LI et al. “Pressure broadening and shift of K D₁ and D₂ lines in the presence of ³He and ²¹Ne”, *European Physical Journal D* **70**, doi: 10.1140/epjd/e2016-60734-4 (2016).
- [56] A. ANDALKAR et al. “High-resolution measurement of the pressure broadening and shift of the Cs D₁ and D₂ lines by N₂ and He buffer gases”, *Physical Review A* **65**, doi: 10.1103/PhysRevA.65.032708 (2002).
- [57] E. BERNABEU et al. “Shift and broadening of hyperfine components of the first doublet of cesium perturbed by foreign gases”, *Physical Review A* **22**, doi: 10.1103/PhysRevA.22.2690 (1980).
- [58] A. H. COUTURE et al. “Pressure shifts and broadening of the Cs D₁ and D₂ lines by He, N₂, and Xe at densities used for optical pumping and spin exchange polarization”, *Journal of Applied Physics* **104**, doi: 10.1063/1.3018181 (2008).
- [59] G. A. PITZ et al. “Pressure broadening and shift of the cesium D₁ transition by the noble gases and N₂, H₂, HD, D₂, CH₄, C₂H₆, CF₄, and ³He”, *Physical Review A* **80**, doi: 10.1103/PhysRevA.80.062718 (2009).
- [60] H. C. JACOBSON. “Moment Analysis of Atomic Spectral Lines”, *Physical Review A* **4**, doi: 10.1103/PhysRevA.4.1363 (1971).
- [61] E. BERNABEU et al. “Pressure effects of helium, neon, and argon on the hyperfine structure of the first doublet of cesium”, *Journal of the Optical Society of America* **67**, doi: 10.1364/JOSA.67.000024 (1977).
- [62] A. ASPECT et al. “Laser Cooling below the One-Photon Recoil Energy by Velocity-Selective Coherent Population Trapping”, *Physical Review Letters* **61**, doi: 10.1103/PhysRevLett.61.826 (1988).
- [63] B. SAUBAMÉA et al. “Direct Measurement of The Spatial Correlation Function of Ultracold Atoms”, *Physical Review Letters* **79**, doi: 10.1103/PhysRevLett.79.3146 (1997).
- [64] S. E. HARRIS et al. “Nonlinear optical processes using electromagnetically induced transparency”, *Physical Review Letters* **64**, doi: 10.1103/PhysRevLett.64.1107 (1990).
- [65] P. D. D. SCHWINDT et al. “Chip-scale atomic magnetometer”, *Applied Physics Letters* **85**, doi: 10.1063/1.1839274 (2004).
- [66] J. E. THOMAS et al. “Ultrahigh-resolution spectroscopy and frequency standards in the microwave and far-infrared regions using optical lasers”, *Optics Letters* **6**, doi: 10.1364/OL.6.000298 (1981).
- [67] J. VANIER et al. “Coherent population trapping in cesium: Dark lines and coherent microwave emission”, *Physical Review A* **58**, doi: 10.1103/PhysRevA.58.2345 (1998).

- [68] N. CYR et al. “All-optical microwave frequency standard: a proposal”, *IEEE Transactions on Instrumentation and Measurement* **42**, doi: 10.1109/19.278645 (1993).
- [69] R. WYNANDS et al. “Precision spectroscopy with coherent dark states”, *Applied Physics B: Lasers and Optics* **68**, doi: 10.1007/s003400050581 (1999).
- [70] J. VANIER. “Atomic clocks based on coherent population trapping: A review”, *Applied Physics B* **81**, doi: 10.1007/s00340-005-1905-3 (2005).
- [71] R. H. DICKE. “The effect of collisions upon the Doppler width of spectral lines”, *Physical Review* **89**, doi: 10.1103/PhysRev.89.472 (1953).
- [72] S. KNAPPE et al. “Characterization of coherent population-trapping resonances as atomic frequency references”, *Journal of the Optical Society of America B* **18**, doi: 10.1364/JOSAB.18.001545 (2001).
- [73] N. BEVERINI et al. “Foreign-gas-induced cesium hyperfine relaxation”, *Physical Review A* **4**, doi: 10.1103/PhysRevA.4.550 (1971).
- [74] H. W. MOOS et al. “Study of spin-exchange collisions in vapors of Rb^{85} , Rb^{87} , and Cs^{133} by paramagnetic resonance”, *Physical Review* **135**, doi: 10.1103/PhysRev.135.A591 (1964).
- [75] T. G. WALKER. “Estimates of spin-exchange parameters for alkali-metal–noble-gas pairs”, *Physical Review A* **40**, doi: 10.1103/PhysRevA.40.4959 (1989).
- [76] Vallés, J. A. et al. “A precise measurement of the cesium spin-exchange relaxation cross section”, *Applied Spectroscopy* **44**, doi: 10.1366/0003702904087415 (1990).
- [77] S. KNAPPE et al. “Temperature dependence of coherent population trapping resonances”, *Applied Physics B* **74**, doi: 10.1007/s003400200800 (2002).
- [78] M. ARDITI et al. “Frequency shift of the zero-field hyperfine splitting of Cs^{133} produced by various buffer gases”, *Physical Review* **112**, doi: 10.1103/PhysRev.112.449 (1958).
- [79] J. VANIER et al. “On hyperfine frequency shifts caused by buffer gases: Application to the optically pumped passive rubidium frequency standard”, *Journal of Applied Physics* **53**, doi: 10.1063/1.331467 (1982).
- [80] L-C HA et al. “ D_1 line broadening and hyperfine frequency shift coefficients for ^{87}Rb and ^{133}Cs in Ne, Ar, and N_2 ”, *Physical Review A* **103**, doi: 10.1103/PhysRevA.103.022826 (2021).
- [81] N. BEVERINI et al. “Buffer gas pressure shift in the $m_F = 0 \rightarrow m_F = 0$ ground state hyperfine line in Cs”, *Optics Communications* **37**, doi: [https://doi.org/10.1016/0030-4018\(81\)90128-0](https://doi.org/10.1016/0030-4018(81)90128-0) (1981).
- [82] M. ARDITI et al. “Pressure, light, and temperature shifts in optical detection of 0-0 hyperfine resonance of alkali metals”, *Physical Review* **124**, doi: 10.1103/PhysRev.124.800 (1961).
- [83] P. L. BENDER et al. “Optical detection of narrow ^{87}Rb hyperfine absorption lines”, *Physical Review Letters* **1**, doi: 10.1103/PhysRevLett.1.311 (1958).
- [84] F. GONG et al. “Nonlinear pressure shifts of alkali-metal atoms in inert gases”, *Physical Review Letters* **100**, doi: 10.1103/PhysRevLett.100.233002 (2008).
- [85] B. MCGUYER et al. “Hyperfine frequencies of ^{87}Rb and ^{133}Cs atoms in Xe gas”, *Physical Review A - PHYS REV A* **84**, doi: 10.1103/PhysRevA.84.030501 (2013).
- [86] K. DORENBURG et al. “Hyperfine structure density shift coefficients for K, Rb and Cs at high buffer gas densities”, *Zeitschrift für Physik A Atoms and Nuclei* **289**, doi: 10.1007/BF01435931 (1979).
- [87] S. ABDULLAH et al. “Aging studies on micro-fabricated alkali buffer-gas cells for miniature atomic clocks”, *Applied Physics Letters* **106**, doi: 10.1063/1.4919009 (2015).
- [88] V. MAURICE et al. “Microfabricated vapor cells filled with a cesium dispensing paste for miniature atomic clocks”, *Applied Physics Letters* **110**, doi: 10.1063/1.4981772 (2017).
- [89] S. KNAPPE et al. “Atomic vapor cells for chip-scale atomic clocks with improved long-term frequency stability”, *Optics Letters* **30**, doi: 10.1364/OL.30.002351 (2005).
- [90] K. KROEMER et al. “Cs vapor microcells with Ne-He buffer gas mixture for high operation-temperature miniature atomic clocks”, *Optics Express* **23**, doi: 10.1364/OE.23.018373 (2015).
- [91] M. GOZZELINO et al. “Kr-Based Buffer Gas for Rb Vapor-Cell Clocks”, *IEEE Transactions on Ultrasonics, Ferroelectrics, and Frequency Control* **68**, doi: 10.1109/TUFFC.2020.3026220 (2021).
- [92] S. KNAPPE et al. “A chip-scale atomic clock based on ^{87}Rb with improved frequency stability”, *Optics Express* **13**, doi: 10.1364/OPEX.13.001249 (2005).

- [93] A-M NAGEL et al. "Light shift of coherent population trapping resonances", *Proceedings of Europhysics Letters* **48**, doi: 10.1117/12.340115 (1999).
- [94] J. VANIER et al. "The quantum physics of atomic frequency standards", doi: 10.1126/science.249.4969.685-a (1989).
- [95] C. AFFOLDERBACH et al. "Nonlinear spectroscopy using a current-modulated VCSEL", *Proceedings of Optica Publishing Group*, doi: 10.1364/ASLA.1999.135 (1999).
- [96] C. AFFOLDERBACH et al. "Nonlinear spectroscopy with a vertical-cavity surface-emitting laser (VCSEL)", *Applied Physics B* **70**, doi: 10.1007/s003400050066 (2000).
- [97] R. MICHALZIK. "VCSEL Fundamentals", *Springer Series in Optical Sciences* **166**, doi: 10.1007/978-3-642-24986-0_2 (2013).
- [98] Y. YANO et al. "High-contrast coherent population trapping based on crossed polarizers Method", *IEEE Transactions on Ultrasonics Ferroelectrics and Frequency Control* **61**, doi: 10.1109/TUFFC.2014.006623 (2014).
- [99] A. AL-SAMANEH et al. "Polarization control and dynamic properties of VCSELs for MEMS atomic clock applications", *IEEE Photonics Technology Letters* **23**, doi: 10.1109/LPT.2011.2151853 (2011).
- [100] A. AL-SAMANEH et al. "Polarization-stable vertical-cavity surface-emitting lasers with inverted grating relief for use in microscale atomic clocks", *Applied Physics Letters* **101**, doi: 10.1063/1.4764010 (2012).
- [101] F. GRUET et al. "Metrological characterization of custom-designed 894.6 nm VCSELs for miniature atomic clocks", *Optics Express* **21**, doi: 10.1364/OE.21.005781 (2013).
- [102] K. G. LIBBRECHT et al. "A low-noise high-speed diode laser current controller", *Review of Scientific Instruments* **64**, doi: 10.1063/1.1143949 (1993).
- [103] A. JAIN et al. "Performance of miniaturized atomic clocks in static laboratory and dynamic flight environments", *GPS Solut* **25** (2020).
- [104] MICROCHIP. *CSAC Microchip CSAC-SA65*. URL : <https://www.microchip.com/en-us/product/CSAC-SA65>.
- [105] MICROCHIP. *Better Undersea Sensing With the Chip Scale Atomic Clock (CSAC)*. URL : <https://www1.microchip.com/downloads/en/DeviceDoc/00003876.pdf>.
- [106] R. I. LUTWAK et al. "The Chip-Scale Atomic Clock - Low-Power Physics Package", 2004.
- [107] D. W. YOUNGNER et al. "A Manufacturable Chip-Scale Atomic Clock", *Proceedings of Transducers 2007 International Solid-State Sensors, Actuators and Microsystems Conference*, doi: 10.1109/SENSOR.2007.4300066 (2007).
- [108] A.M. BRAUN et al. "RF-Interrogated End-State Chip-Scale Atomic Clock", *39th Annual Precise Time and Time Interval (PTTI) Systems and Applications Meeting 2007* (2007).
- [109] TELEDYNE. *Teledyne Chip Scale Atomic Clock*. URL : https://www.teledyne-si.com/en-us/Product-s-and-Services_/Pages/Teledyne-Chip-Scale-Atomic-Clock.aspx.
- [110] S-L LI et al. "Integrated physics package of a chip-scale atomic clock", *Chinese Physics B* **23**, doi: 10.1088/1674-1056/23/7/074302 (2014).
- [111] J. ZHAO et al. "Advances of Chip-Scale Atomic Clock in Peking University in 2019", *Proceedings of EFTF/IFCS 2020*, doi: 10.1109/IFCS-ISAF41089.2020.9234861 (2020).
- [112] P. GUO et al. "Low power consumption physics package for chip-scale atomic clock through gold-tin eutectic bonding", *Microsystem Technologies* **28**, doi: 10.1007/s00542-022-05283-y (2022).
- [113] F. SHI et al. "Portable atomic frequency standard based on coherent population trapping", *Proceedings of International Society for Optics and Photonics* **9543**, doi: 10.1117/12.2180549 (2015). Sous la dir. d'Yury M. ANDREEV et al.,
- [114] Z. ZHANG et al. "The portable CPT atomic clocks - recent developments", *Proceedings of EFTF/IFCS 2017*, doi: 10.1109/FCS.2017.8088971 (2017).
- [115] M. SHUKER. *Quantum Technologies - Lab to Product*. Youtube. 2022. URL : https://youtu.be/g6_AfScQ-wk?si=MeJRza74ZJEuJP0z&t=1304.
- [116] J. HAESLER et al. "The integrated Swiss miniature atomic clock", *Proceedings of EFTF/IFCS 2013*, doi: 10.1109/EFTF-IFC.2013.6702125 (2013).

- [117] S. KARLEN et al. “Lifetime assessment of RbN₃-filled MEMS atomic vapor cells with Al₂O₃ coating”, *Optics Express* **25**, doi: 10.1364/OE.25.002187 (2017).
- [118] J. HAESLER et al. “Swiss miniature atomic clock: First prototype and preliminary results”, *Proceedings of EFTF 2012*, doi: 10.1109/EFTF.2012.6502390 (2012).
- [119] T. OVERSTOLZ et al. “Wafer scale fabrication of highly integrated rubidium vapor cells”, *Proceedings of 2014 IEEE 27th International Conference on Micro Electro Mechanical Systems (MEMS)*, doi: 10.1109/MEMSYS.2014.6765700 (2014).
- [120] CSEM. *Miniaturization of atomic clocks*. URL : <https://www.csem.ch/en/news/miniaturization-of-atomic-clocks>.
- [121] CSEM MAQSIMAL. *Flagship européen sur les technologies quantiques: macQsimal – vers une nouvelle génération de capteurs*. URL : <https://www.unine.ch/unine/home/pour-les-medias/communiques-d-e-presse/flagship-europeen-sur-les-techno.html>.
- [122] Davide GRASSANI et al. “CPT miniature atomic clock prototype preliminary performances”, *Submission for Parallel Scientific/Technical Talk at EQTC2021* (2021).
- [123] MACQSIMAL. *Miniaturized Atomic Clocks*. URL : <https://www.macqsimal.eu/macqsimal/miniaturized-atomic-clocks/>.
- [124] C. GORECKI. “Development of first European Chip-scale Atomic Clocks: technologies, assembling and metrology”, *Procedia Engineering* **47**, doi: 10.1016/j.proeng.2012.09.292 (2012).
- [125] R. VICARINI. “Module physique intégré pour horloge atomique miniature à cellule de césium”. Thèse de doctorat. 2018.
- [126] R. VICARINI et al. “Mitigation of temperature-induced light-shift effects in miniaturized atomic clocks”, *IEEE Transactions on Ultrasonics, Ferroelectrics, and Frequency Control* **66**, doi: 10.1109/TUFFC.2019.2933051 (2019).
- [127] P. R. HEMMER et al. “Ac Stark shifts in a two-zone Raman interaction”, *Journal of the Optical Society of America B* **6**, doi: 10.1364/JOSAB.6.001519 (1989).
- [128] E. BLANSHAN et al. “Light shifts in a pulsed cold-atom coherent-population-trapping clock”, *Physical Review A* **91**, doi: 10.1103/PhysRevA.91.041401 (2015).
- [129] M. S. SHAHRIAR et al. “Dark-state-based three-element vector model for the stimulated Raman interaction”, *Physical Review A* **55**, doi: 10.1103/PhysRevA.55.2272 (1997).
- [130] M. ZHU et al. “Theoretical and Experimental Study of Light Shift in a CPT-Based Rb Vapor Cell Frequency Standard”, (2001).
- [131] J. W. POLLOCK et al. “ac Stark shifts of dark resonances probed with Ramsey spectroscopy”, *Physical Review A* **98**, doi: 10.1103/PhysRevA.98.053424 (2018).
- [132] W. HAPPER. “Optical Pumping”, *Reviews of Modern Physics* **44**, doi: 10.1103/RevModPhys.44.169 (1972).
- [133] C. COHEN-TANNOUJDI et al. *Atom-photon interactions: basic processes and applications*. John Wiley & Sons, 1998.
- [134] T. ZANON-WILLETTE et al. “Ultra-high Resolution Spectroscopy with atomic or molecular Dark Resonances: Exact steady-state lineshapes and asymptotic profiles in the adiabatic pulsed regime”, *Physical Review A* **84**, doi: 10.1103/PhysRevA.84.062502 (2011).
- [135] J-M DANET. “Horloge atomique à piègeage cohérent de population du césium en cellule : limitations à la stabilité de fréquence”. Thèse de doctorat. 2014.
- [136] D. MILETIC et al. “AC Stark-shift in CPT-based Cs miniature atomic clocks”, *Applied Physics B* **109**, doi: 10.1007/s00340-012-5121-7 (2012).
- [137] F. LEVI et al. “Line-shape of dark line and maser emission profile in CPT”, *The European Physical Journal D* **12**, doi: 10.1007/s100530070042 (2000).
- [138] J. DENG. “Light shift compensation in a Rb gas cell frequency standard with two-laser pumping”, *IEEE Transactions on Ultrasonics, Ferroelectrics, and Frequency Control* **48**, doi: 10.1109/58.971718 (2001).
- [139] M. ABDEL HAFIZ et al. “Protocol for Light-Shift Compensation in a Continuous-Wave Microcell Atomic Clock”, *Physical Review Applied* **14**, doi: 10.1103/PhysRevApplied.14.034015 (2020).

- [140] N. CASTAGNA et al. “Investigations on continuous and pulsed interrogation for a CPT atomic clock”, *IEEE Transactions on Ultrasonics, Ferroelectrics, and Frequency Control* **56**, doi: 10.1109/TUFFC.2009.1033 (2009).
- [141] Y. YANO et al. “Theoretical and experimental investigation of the light shift in Ramsey coherent population trapping”, *Physical Review A* **90**, doi: 10.1103/PhysRevA.90.013826 (2014).
- [142] M. ABDEL HAFIZ et al. “A high-performance Raman-Ramsey Cs vapor cell atomic clock”, *Journal of Applied Physics* **121**, doi: 10.1063/1.4977955 (2017).
- [143] G. S. PATI et al. “Computational studies of light shift in a Raman-Ramsey interference-based atomic clock”, *Journal of the Optical Society of America B* **32**, doi: 10.1364/JOSAB.32.000388 (2015).
- [144] X. LIU et al. “Low-drift coherent population trapping clock based on laser-cooled atoms and high-coherence excitation fields”, *Physical Review Applied* **8**, doi: 10.1103/PhysRevApplied.8.054001 (2017).
- [145] X. LIU et al. “High contrast dark resonances in a cold-atom clock probed with counterpropagating circularly polarized beams”, *Applied Physics Letters* **111**, doi: 10.1063/1.5001179 (2017).
- [146] V. SHAH et al. “Continuous light-shift correction in modulated coherent population trapping clocks”, *Applied Physics Letters* **89**, doi: 10.1063/1.2360921 (2006).
- [147] .V GERGINOV et al. “Long-term frequency instability of atomic frequency references based on coherent population trapping and microfabricated vapor cells”, *Journal of the Optical Society of America B* **23**, doi: 10.1364/JOSAB.23.000593 (2006).
- [148] R. BOUDOT et al. “Coherent population trapping resonances in Cs-Ne vapor microcells for miniature clocks applications”, *Journal of Applied Physics* **109**, doi: 10.1063/1.3530951 (2011).
- [149] M. I. VASKOVSKAYA et al. “Effect of the buffer gases on the light shift suppression possibility”, *Optics Express* **27**, doi: 10.1364/OE.27.035856 (2019).
- [150] B. H. MCGUYER et al. “Simple method of light-shift suppression in optical pumping systems”, *Applied Physics Letters* **94**, doi: 10.1063/1.3158961 (2009).
- [151] M. Yu. BASALAEV et al. “Dynamic continuous-wave spectroscopy of coherent population trapping at phase-jump modulation”, *Physical Review Applied* **13**, doi: 10.1103/PhysRevApplied.13.034060 (2020).
- [152] V. I. YUDIN et al. “Method for stabilization of the microwave modulation index in order to suppress the light shift of the coherent population trapping resonances”, *Journal of Physics: Conference Series* **2067**, doi: 10.1088/1742-6596/2067/1/012003 (2021).
- [153] C. SANNER et al. “Autobalanced Ramsey Spectroscopy”, *Physical Review Letters* **120**, doi: 10.1103/PhysRevLett.120.053602 (2018).
- [154] D. RADNATAROV et al. “Active suppression of the light shift in an atomic clock based on coherent population trapping in ^{87}Rb vapor using the phase jump technique”, *JETP Letters* **117**, doi: 10.1134/S0021364023600532 (2023).
- [155] J. ZHANG et al. “Degradation Characteristics and Mechanism of High Speed 850 nm Vertical-Cavity Surface-Emitting Laser during Accelerated Aging”, *Photonics* **9**, doi: 10.3390/photonics9110801 (2022).
- [156] O. KOZLOVA et al. “Limitations of long-term stability in a coherent population trapping Cs clock”, *IEEE Transactions on Instrumentation and Measurement* **63**, doi: 10.1109/TIM.2014.2298672 (2013).
- [157] J. FRANCESCO et al. “Evaluation of the frequency stability of a VCSEL locked to a micro-fabricated Rubidium vapour cell”, *Proceedings of SPIE - The International Society for Optical Engineering* **7720**, doi: 10.1117/12.854147 (2010).
- [158] S. KARLEN et al. “Gold microdiscs as alkali preferential condensation spots for cell clock long-term frequency improvement”, *Proceedings of EFTF 2018*, doi: 10.1109/EFTF.2018.8409005 (2018).
- [159] V.I. YUDIN et al. “General methods for suppressing the light shift in atomic clocks using power modulation”, *Physical Review Applied* **14**, doi: 10.1103/PhysRevApplied.14.024001 (2020).
- [160] M. SHUKER et al. “Reduction of light shifts in Ramsey spectroscopy with a combined error signal”, *Applied Physics Letters* **114**, doi: 10.1063/1.5093921 (2019).
- [161] M. ABDEL HAFIZ et al. “Symmetric autobalanced Ramsey interrogation for high-performance coherent-population-trapping vapor-cell atomic clock”, *Applied Physics Letters* **112**, doi: 10.1063/1.5030009 (2018).
- [162] R. BOUDOT et al. “Pulsed coherent population trapping spectroscopy in microfabricated Cs-Ne vapor cells”, *Journal of the Optical Society of America B* **35**, doi: 10.1364/JOSAB.35.001004 (2018).

- [163] J. E. THOMAS et al. “Observation of Ramsey fringes using a stimulated, resonance Raman transition in a sodium atomic beam”, *Physical Review Letters* **48**, doi: 10.1103/PhysRevLett.48.867 (1982).
- [164] P. R. HEMMER et al. “Semiconductor laser excitation of Ramsey fringes by using a Raman transition in a cesium atomic beam”, *Journal of the Optical Society of America B* **10**, doi: 10.1364/JOSAB.10.001326 (1993).
- [165] T. ZANON et al. “High contrast Ramsey fringes with coherent-population-trapping pulses in a double lambda atomic system”, *Physical Review Letters* **94**, doi: 10.1103/PhysRevLett.94.193002 (2005).
- [166] R. BOUDOT et al. “Current status of a pulsed CPT Cs Cell Clock”, *Instrumentation and Measurement, IEEE Transactions on* **58**, doi: 10.1109/TIM.2008.2009918 (2009).
- [167] M. ABDEL HAFIZ et al. “A coherent population trapping Cs vapor cell atomic clock based on push-pull optical pumping”, *Journal of Applied Physics* **118**, doi: 10.1063/1.4931768 (2015).
- [168] S. MICALIZIO et al. “Metrological characterization of the pulsed Rb clock with optical detection”, *Metrologia* **49**, doi: 10.1088/0026-1394/49/4/425 (2012).
- [169] G. KASPROWICZ et al. “ARTIQ and Sinara: Open Software and Hardware Stacks for Quantum Physics”, *Proceedings of Quantum 2.0*, doi: 10.1364/QUANTUM.2020.QTu8B.14 (2020).
- [170] J-M DANET et al. “Dick effect in a pulsed atomic clock using coherent population trapping”, *IEEE Transactions on Ultrasonics, Ferroelectrics, and Frequency Control* **61**, doi: 10.1109/TUFFC.2014.2945 (2014).
- [171] D. F. PHILLIPS et al. “Modulation-induced frequency shifts in a coherent-population-trapping-based atomic clock”, *Journal of the Optical Society of America B* **22**, doi: 10.1364/JOSAB.22.000305 (2005).
- [172] J. G. BERBERIAN et al. “Methods for reducing microwave resonance asymmetry in coherent population trapping based frequency standards”, *Proceedings of the 2004 IEEE International Frequency Control Symposium and Exposition, 2004.*, doi: 10.1109/FREQ.2004.1418443 (2004).
- [173] S. A. ZIBROV et al. “Coherent-population-trapping resonances with linearly polarized light for all-optical miniature atomic clocks”, *Physical Review A* **81**, doi: 10.1103/PhysRevA.81.013833 (2010).
- [174] S. KNAPPE et al. “Simple parameterization of dark-resonance line shapes”, *Applied Physics B: Lasers and Optics* **76**, doi: 10.1007/s00340-002-1072-8 (2003).
- [175] T. ZANON-WILLETTE et al. “Recent results on a pulsed CPT clock”, *Proceedings of the IEEE International Frequency Control Symposium and Exposition*, doi: 10.1109/FREQ.2005.1574032 (2005).
- [176] A. TAICHENACHEV et al. “Compensation of Field-Induced Frequency Shifts in Ramsey Spectroscopy of Optical Clock Transitions”, *JETP Letters* **90**, doi: 10.1134/S0021364009230052 (2010).
- [177] V. I. YUDIN et al. “Hyper-Ramsey spectroscopy of optical clock transitions”, *Physical Review A* **82**, doi: 10.1103/PhysRevA.82.011804 (2010).
- [178] N. HUNTEMANN et al. “Generalized Ramsey excitation scheme with suppressed light shift”, *Physical Review Letters* **109**, doi: 10.1103/PhysRevLett.109.213002 (2012).
- [179] R. HOBSON et al. “Modified hyper-Ramsey methods for the elimination of probe shifts in optical clocks”, *Physical Review A* **93**, doi: 10.1103/PhysRevA.93.010501 (2016).
- [180] T. ZANON-WILLETTE et al. “Probe light-shift elimination in generalized hyper-Ramsey quantum clocks”, *Physical Review A* **93**, doi: 10.1103/PhysRevA.93.042506 (2016).
- [181] V. I. YUDIN et al. “Atomic clocks with suppressed blackbody radiation shift”, *Physical Review Letters* **107**, doi: 10.1103/PhysRevLett.107.030801 (2011).
- [182] V. YUDIN et al. “Synthetic frequency protocol in the Ramsey spectroscopy of clock transitions”, *Physical Review A* **94**, doi: 10.1103/PhysRevA.94.052505 (2016).
- [183] T. ZANON-WILLETTE et al. “Universal interrogation protocol for zero probe-field-induced frequency-shift in high-accuracy quantum clocks”, *Physical Review A* **96**, doi: 10.1103/PhysRevA.96.023408 (2017).
- [184] V. YUDIN et al. “Generalized Autobalanced Ramsey spectroscopy of clock transitions”, *Physical Review Applied* **9**, doi: 10.1103/PhysRevApplied.9.054034 (2017).
- [185] M. ABDEL HAFIZ et al. “Toward a high-stability coherent population trapping Cs vapor-cell atomic clock using Autobalanced Ramsey spectroscopy”, *Physical Review Applied* **9**, doi: 10.1103/PhysRevApplied.9.064002 (2018).

- [186] T. ZANON-WILLETTE et al. “Composite laser-pulses spectroscopy for high-accuracy optical clocks: A review of recent progress and perspectives”, *Reports on Progress in Physics* **81**, doi: 10.1088/1361-6633/aac9e9 (2018).
- [187] D. MILETIC et al. “Quadratic dependence on temperature of the Cs 0-0 hyperfine resonance frequency in a single Ne buffer gas microfabricated vapor cell”, *Electronics Letters* **46**, doi: 10.1049/el.2010.0891 (2010).
- [188] W. MORENO et al. “Barometric effect in vapor-cell atomic clocks”, *IEEE Transactions on Ultrasonics, Ferroelectrics, and Frequency Control* **65**, doi: 10.1109/TUFFC.2018.2844020 (2018).
- [189] J. YANG et al. “Exploring Ramsey-coherent population trapping atomic clock realized with pulsed microwave modulated laser”, *Journal of Applied Physics* **115**, doi: 10.1063/1.4867915 (2014).
- [190] T. IDE et al. “CPT pulse excitation method based on VCSEL current modulation for miniature atomic clocks”, *Proceedings of EFTF/IFCS 2015*, doi: 10.1109/FCS.2015.7138815 (2015).
- [191] D. BUDKER et al. “Optical magnetometry”, *Nature* **3**, doi: 10.1038/nphys566 (2007).
- [192] E. BOTO et al. “Moving magnetoencephalography towards real-world applications with a wearable system”, *Nature* **555**, doi: 10.1038/nature26147 (2018).
- [193] G. W. BIEDERMANN et al. “Atom Interferometry in a Warm Vapor”, *Physical Review Letters* **118**, doi: 10.1103/PhysRevLett.118.163601 (2017).
- [194] J. SEDLACEK et al. “Microwave electrometry with Rydberg atoms in a vapour cell using bright atomic resonances”, *Nature Physics* **8**, doi: 10.1038/nphys2423 (2012).
- [195] C. G. WADE et al. “Real-time near-field terahertz imaging with atomic optical fluorescence”, *Nature Photonics* **11**, doi: 10.1038/nphoton.2016.214 (2017).
- [196] K. LINDQUIST et al. “Experimental and theoretical study of the vapor-cell Zeeman optical trap”, *Physical Review A* **46**, doi: 10.1103/PhysRevA.46.4082 (1992).
- [197] H. KRAUTER et al. “Deterministic quantum teleportation between distant atomic objects”, *Nature Physics* **9**, doi: 10.1038/nphys2631 (2013).
- [198] F. WOLFGAMM et al. “Squeezed-light optical magnetometry”, *Physical Review Letters* **105**, doi: 10.1103/PhysRevLett.105.053601 (2010).
- [199] B. JULSGAARD et al. “Experimental long-lived entanglement of two macroscopic objects”, *Nature* **413**, doi: 10.1038/35096524 (2001).
- [200] L-A LIEW et al. “Wafer-level filling of microfabricated atomic vapor cells based on thin-film deposition and photolysis of cesium azide”, *Applied Physics Letters* **90**, doi: 10.1063/1.2712501 (2007).
- [201] D. G. BOPP et al. “Wafer-level fabrication of alkali vapor cells using in-situ atomic deposition”, *Journal of Physics: Photonics* **3**, doi: 10.1088/2515-7647/abcbe5 (2020).
- [202] V. MAURICE et al. “Wafer-level vapor cells filled with laser-actuated hermetic seals for integrated atomic devices”, *Microsystems & Nanoengineering* **8**, doi: 10.1038/s41378-022-00468-x (2022).
- [203] G. SINGH et al. “A Technique for Preparing Wall Coated Cesium Vapor Cells”, *Review of Scientific Instruments* **43**, doi: 10.1063/1.1685940 (2003).
- [204] F. GONG et al. “Electrolytic fabrication of atomic clock cells”, *Review of Scientific Instruments* **77**, doi: 10.1063/1.2219730 (2006).
- [205] T. DYER et al. “Micro-fabricated caesium vapor cell with 5mm optical path length”, *Journal of Applied Physics* **132**, doi: 10.1063/5.0125490 (2022).
- [206] S. WOETZEL et al. “Microfabricated atomic vapor cell arrays for magnetic field measurements”, *The Review of scientific instruments* **82**, doi: 10.1063/1.3559304 (2011).
- [207] A. GUSCHING et al. “Cs microcell optical reference with frequency stability in the low 10^{-13} range at 1 s”, *Optics Letters* **48**, doi: 10.1364/OL.485548 (2023).
- [208] Z. L. NEWMAN et al. “Architecture for the photonic integration of an optical atomic clock”, *Optica* **6**, doi: 10.1364/OPTICA.6.000680 (2019).
- [209] A. DOUABI. “Contributions au développement d’une microhorloge CPT : étude des microcellules à vapeur de césium”. Thèse de doctorat. 2009.
- [210] J. KITCHING et al. “Microfabricated Atomic Frequency References”, *Metrologia* **42**, doi: 10.1088/0026-1394/42/3/S11 (2005).

- [211] Y-Y JAU et al. “End-resonance clock and all-photon clock”, *Proceedings of SPIE - The International Society for Optical Engineering* **6906**, doi: 10.1117/12.773803 (2008).
- [212] R. STRAESSLE et al. “Microfabricated alkali vapor cell with anti-relaxation wall coating”, *Applied Physics Letters* **105**, doi: 10.1063/1.4891248 (2014).
- [213] J. P. MCGILLIGAN et al. “Deep silicon cell fabrication for chip-scale atomic sensors”, *International Society for Optics and Photonics* **12447**, doi: 10.1117/12.2657383 (2023).
- [214] J. P. MCGILLIGAN et al. “Two-Photon Imaging of a Magneto-Optical Trap in a Micro-Fabricated Cell for Cold-Atom Sensors”, *Proceedings of EFTF/IFCS 2019*, doi: 10.1109/FCS.2019.8856083 (2019).
- [215] M. HASEGAWA et al. “Microfabrication of cesium vapor cells with buffer gas for MEMS atomic clocks”, *Sensors and Actuators A: Physical* **167**, doi: <https://doi.org/10.1016/j.sna.2011.02.039> (2011).
- [216] J.C. CAMPARO et al. “Frequency equilibration in the vapor-cell atomic clock”, *IEEE Transactions on Instrumentation and Measurement* **54**, doi: 10.1109/TIM.2005.853217 (2005).
- [217] J.C. CAMPARO et al. “Influence of the atmosphere on a Rubidium clock’s frequency aging”, *Proceedings of the 39th Annual Precise Time and Time Interval Meeting* (2007).
- [218] M. HUMMON et al. “Photonic chip for laser stabilization to an atomic vapor with 10^{-11} instability”, *Optica* **5**, doi: 10.1364/OPTICA.5.000443 (2018).
- [219] A. GUSCHING et al. “Architecture for the photonic integration of an optical atomic clock”, *Journal of the Optical Society of America B* **38** (2021).
- [220] J. A. RUSHTON et al. “Contributed Review: The feasibility of a fully miniaturized magneto-optical trap for portable ultracold quantum technology”, *Review of Scientific Instruments* **85**, doi: 10.1063/1.4904066 (2014).
- [221] J. P. MCGILLIGAN et al. “Micro-fabricated components for cold atom sensors”, *Review of Scientific Instruments* **93**, doi: 10.1063/5.0101628 (2022).
- [222] W. A. ROGERS et al. “Diffusion coefficient, solubility, and permeability for Helium in Glass”, *Journal of Applied Physics* **25**, doi: 10.1063/1.1721760 (1954).
- [223] F. J. NORTON. “Permeation of gases through Solids”, *Journal of Applied Physics* **28**, doi: 10.1063/1.1722570 (1957).
- [224] V. O. ALTEMOSE. “Helium diffusion through glass”, *Journal of Applied Physics* **32**, doi: 10.1063/1.1736226 (1961).
- [225] N. D. LEMKE et al. “Measurement of optical rubidium clock frequency spanning 65 Days”, *Sensors* **22**, doi: 10.3390/s22051982 (2022).
- [226] C. L. GARRIDO ALZAR. “Compact chip-scale guided cold atom gyrometers for inertial navigation: Enabling technologies and design study”, *AVS Quantum Science* **1**, doi: 10.1116/1.5120348 (2019).
- [227] J. P. MCGILLIGAN et al. “Laser cooling in a chip-scale platform”, *Applied Physics Letters* **117**, doi: 10.1063/5.0014658 (2020).
- [228] A. BASU et al. “An electrostatic ion pump with nanostructured Si field emission electron source and Ti particle collectors for supporting an ultra-high vacuum in miniaturized atom interferometry systems”, *Journal of Micromechanics and Microengineering* **26**, doi: 10.1088/0960-1317/26/12/124003 (2016).
- [229] D. R. SCHERER et al. “Characterization of alkali metal dispensers and non-evaporable getter pumps in ultrahigh vacuum systems for cold atomic sensors”, *Journal of Vacuum Science & Technology A* **30**, doi: 10.1116/1.4757950 (2012).
- [230] R. BOUDOT et al. “Enhanced observation time of magneto-optical traps using micro-machined non-evaporable getter pumps”, *Scientific Reports* **10**, doi: 10.1038/s41598-020-73605-z (2020).
- [231] P. D. D. SCHWINDT et al. “A highly miniaturized vacuum package for a trapped ion atomic clock”, *Review of Scientific Instruments* **87**, doi: 10.1063/1.4948739 (2016).
- [232] B. J. LITTLE et al. “A passively pumped vacuum package sustaining cold atoms for more than 200 days”, *AVS Quantum Science* **3**, doi: 10.1116/5.0053885 (2021).
- [233] O. S. BURROW et al. “Stand-alone vacuum cell for compact ultracold quantum technologies”, *Applied Physics Letters* **119**, doi: 10.1063/5.0061010 (2021).
- [234] N. W. TAYLOR. “Diffusion in and through Solids. By R. M. Barrer.”, *The Journal of Physical Chemistry* **46**, doi: 10.1021/j150418a018 (1942).

- [235] T. WELTER et al. “Hydrogen Permeation Through Glass”, *Frontiers in Materials* **6**, doi: 10.3389/fmats.2019.00342 (2020).
- [236] S. A. STERN. “The “barrer” permeability unit”, *Journal of Polymer Science Part A-2: Polymer Physics* **6**, doi: <https://doi.org/10.1002/pol.1968.160061108> (1968).
- [237] F. J. NORTON. “Helium Diffusion Through Glass”, *Journal of the American Ceramic Society* **36**, doi: <https://doi.org/10.1111/j.1151-2916.1953.tb12843.x> (1953).
- [238] K. KAWASAKI et al. “Permeation of Helium gas through glass”, *Japanese Journal of Applied Physics* **1**, doi: 10.1143/JJAP.1.223 (1962).
- [239] G. A. WILLIAMS et al. “The solubility of helium and hydrogen in heated silica glass and the relation of this to the permeability”, *Journal of the American Chemical Society* **46**, doi: 10.1021/ja01668a012 (1924).
- [240] Jr. MCAFEE K. B. “Stress-Enhanced Diffusion in Glass. I. Glass under Tension and Compression”, *The Journal of Chemical Physics* **28**, doi: 10.1063/1.1744096 (2004).
- [241] H. M. LASKA et al. “Permeation, diffusion, and solubility of Deuterium in Pyrex glass”, *The Journal of Chemical Physics* **50**, doi: 10.1063/1.1670770 (2003).
- [242] Matthieu PELLATON. “High-resolution spectroscopic studies in glass-blown and micro-fabricated cells for miniature rubidium atomic clocks”. Thèse de doctorat. 2014.
- [243] A. VAN WIERINGEN et al. “On the permeation of hydrogen and helium in single crystal silicon and germanium at elevated temperatures”, *Physica* **22**, doi: [https://doi.org/10.1016/S0031-8914\(56\)90039-8](https://doi.org/10.1016/S0031-8914(56)90039-8) (1956).
- [244] E. C. BEATY et al. “Narrow Hyperfine Absorption Lines of Cs¹³³ in Various Buffer Gases”, *Physical Review* **112**, doi: 10.1103/PhysRev.112.450 (1958).
- [245] C. W. BEER et al. “Hyperfine pressure shift of ¹³³Cs atoms in noble and molecular buffer gases”, *Physical Review A* **13**, doi: 10.1103/PhysRevA.13.1052 (1976).
- [246] B. H. MCGUYER et al. “Nonlinear pressure shifts of alkali-metal atoms in Xenon”, *Proceedings of IFCS 2011*, doi: 10.1109/FCS.2011.5977737 (2011).
- [247] E. KROEMER. “Etude du déplacement collisionnel de la fréquence d’horloge du césium en présence du gaz tampon hélium ou xénon. Applications pour microcellules à haute température.” Thèse de doctorat. 2015.
- [248] S. WOETZEL et al. “Lifetime improvement of micro-fabricated alkali vapor cells by atomic layer deposited wall coatings”, *Surface and Coatings Technology* **221**, doi: <https://doi.org/10.1016/j.surfcoat.2013.01.044> (2013).
- [249] J. M. PATE et al. “Microfabricated strontium atomic vapor cells”, *Optics Letters* **48**, doi: 10.1364/OL.476552 (2023).
- [250] R. LUTWAK et al. “The Miniature Atomic Clock - Pre-Production Results”, *Proceedings of EFTF/IFCS 2007*, doi: 10.1109/FREQ.2007.4319292 (2007).
- [251] S. DYER et al. “Nitrogen buffer gas pressure tuning in a micro-machined vapor cell”, *Applied Physics Letters* **123**, doi: 10.1063/5.0153881 (2023).
- [252] S. KNAPPE et al. “Atomic vapor cells for miniature frequency references”, *Proceedings of IFCS 2003*, doi: 10.1109/FREQ.2003.1274981 (2003).
- [253] J. E. SHELBY. “Helium, deuterium, and neon migration in a common borosilicate glass”, *Journal of Applied Physics* **45**, doi: 10.1063/1.1663560 (2003).
- [254] L. JIANG et al. “Narrow linewidth VCSEL based on resonant optical feedback from an on-chip microring add-drop filter”, *Optics Letters* **46**, doi: 10.1364/OL.424496 (2021).
- [255] M. HUANG et al. “A narrow-linewidth three-mirror VCSEL for atomic devices”, *Applied Physics Letters* **121**, doi: 10.1063/5.0101810 (2022).

Titre : Horloge atomique microonde à technologie de microcellule améliorée et régime d'interrogation impulsionnel

Mots clés : Micro-horloges atomiques, cellules microfabriquées, stabilité relative de fréquence, perméation de gaz tampon, déplacements lumineux, spectroscopie Ramsey

Résumé : Ce travail de thèse a visé à proposer des solutions scientifiques et technologiques innovantes pour la démonstration d'une horloge atomique CPT à cellule micro-fabriquée à la stabilité de fréquence long-terme améliorée. Un premier axe d'étude a concerné la mise en place de protocoles d'interrogation impulsionnels pour réduire les déplacements de fréquence induits lors de l'interaction entre les atomes et le champ d'interrogation lumineux. La mise en œuvre d'une séquence avancée nommée Symmetric Auto-Balanced Ramsey (SABR) a notamment permis une réduction de la sensibilité de la fréquence d'horloge aux variations du champ laser par plus de deux ordres de grandeur, bénéficiant à la stabilité de fréquence pour des temps d'intégration supérieurs à 100 s. Un second axe de recherche a porté sur la preuve de concept et le développement d'une nouvelle technologie de microcellule à vapeur de césium reposant sur l'exploitation de vannes ouvrantes et fermantes micro-fabriquées actionnables par laser, combi-

nées à l'utilisation de substrats de verre à faible perméation, permettant un choix étendu et un contrôle renforcé de son atmosphère interne. Une réduction du taux de perméation par un facteur supérieur à 1000 a été démontrée dans des cellules avec verres aluminosilicatés et revêtements d'alumine. Des études pour le développement de cellules exploitant de nouveaux mélanges de gaz tampon et pouvant ainsi opérer à haute température ($> 90^{\circ}\text{C}$) ont été entreprises. Enfin, les résultats complémentaires de ces deux axes de recherche ont été valorisés par la démonstration d'une horloge à microcellule Cs-Ne à verres aluminosilicatés exploitant la séquence d'interrogation SABR. La combinaison de ces approches, renforcées par la mise en œuvre de contrôles actifs de paramètres expérimentaux clés, a mené à une stabilité relative de fréquence de 7×10^{-11} à 1 s et 1.4×10^{-12} à 10^5 s. Ces performances de stabilité journalières sont compétitives avec celles des meilleures horloges micro-ondes à microcellule.

Title : Microwave atomic clock with improved microcell technology and pulsed interrogation regime

Keywords : Micro-atomic clocks, microfabricated cells, fractional frequency stability, buffer gas permeation, light-shifts, spectroscopy Ramsey

Abstract : This PhD thesis work aims to propose innovative scientific and technological solutions for the demonstration a microcell-based CPT atomic clock with improved long-term frequency stability. The first research axis has concerned the implementation of pulsed interrogation sequences used to reduce light shifts induced during the interaction pulses between the atoms and the optical interrogation field. The use of an advanced sequence named Symmetric Auto-Balanced Ramsey (SABR) has in particular allowed a reduction of the clock frequency sensitivity to variations of the optical field by more than two orders of magnitude, benefiting to the frequency stability for integration times higher than 100 s. A second research axis has led to the proof-of-concept and the development of a new alkali vapor microfabricated cell technology, based on hermetic laser-actuated cell break- and make-seals, combined with the use

of low permeation glass substrates, for enhanced choice and reinforced control of the cell inner atmosphere. A reduction of the permeation rate by a factor higher than 1000 was demonstrated in cells filled with helium using aluminosilicate glass coupled with Al_2O_3 coatings. Studies for the development of cells using new buffer gas mixtures and working at high temperature ($> 90^{\circ}\text{C}$) have been undertaken. Complementary results of these two research axis led to the demonstration of a CPT atomic clock using a Cs-Ne microcell with aluminosilicate glass and operating with the SABR interrogation sequence. The combination of these approaches, reinforced by additional active stabilization loops of some key experimental parameters, has led to a fractional frequency stability of 7×10^{-11} at 1 s and 1.4×10^{-12} at 10^5 s. These stabilities at one day are competitive with those of the best microcell-based microwave clocks.