

Thèses de doctorat en sciences soutenues en 2009

Ph.D. Thesis presented in 2009

Dans le cadre des programmes d'études en métrologie coordonnés par le Laboratoire national de métrologie et d'essais (LNE), des travaux de thèses, en vue de l'obtention d'un doctorat en sciences, sont effectués dans les laboratoires nationaux de métrologie ou les laboratoires associés au LNE. Les thèses soutenues en 2009 sont présentées ici par laboratoire mentionnant, pour chaque thèse, l'auteur, le titre, l'établissement et la spécialité de rattachement, la date de soutenance et le résumé des travaux réalisés.

LNE/DMSI

Sébastien SANNAC – Développement d'un protocole métrologique pour l'analyse de spéciation du sélénium et du mercure dans des matrices environnementales et agroalimentaires par HPLC-ID-ICP-MS. – Université de Pau et des Pays de l'Adour – *Environnement et Matériaux* – 6 mai 2009.

Les éléments pouvant se rencontrer sous différentes formes chimiques, la pleine évaluation de leur impact passe par la quantification de leurs diverses espèces, en d'autres termes, par la réalisation de leur analyse de spéciation. Au niveau de la législation, cette notion commence à être prise en compte ce qui entraîne des besoins dans la qualité de ces analyses. En association avec l'Université de Pau et des Pays de l'Adour, le LNE a donc développé des méthodes qui assurent le raccordement des mesures au SI, c'est-à-dire leur traçabilité métrologique.

Ce mémoire de thèse présente la mise en place d'un protocole métrologique pour la réalisation d'une analyse de spéciation de deux éléments importants dans le domaine de l'environnement et dans le domaine agroalimentaire. Le premier concerne le sélénium avec l'analyse de la sélénométhionine dans des échantillons représentatifs de l'apport en sélénium, comme les compléments alimentaires ; et le deuxième concerne le mercure avec la détermination du méthylmercure dans des produits de la mer, caractéristiques de l'exposition au mercure.

La traçabilité des analyses est assurée par l'utilisation de la double dilution isotopique comme méthode de dosage, et par l'évaluation des incertitudes de mesure.

Karène SAINT-ALBIN – Amélioration de la fiabilité des analyses médicales : application et démonstration au dosage du glucose. – Université de Reims Champagne Ardennes – *Biochimie médicale* – 9 décembre 2009.

Actuellement, on constate que les résultats des analyses de biologie médicale ne sont pas toujours traçables à des références reconnues internationalement et que les incertitudes de mesure ne sont pas évaluées. Cette situation conduit à un manque de confiance dans les résultats et limite les moyens de comparaison entre les études cliniques, faute de références communes.

L'objectif de la thèse a consisté à développer, optimiser et valider une méthode de référence pour le dosage du glucose, principal biomarqueur utilisé pour le dépistage du diabète. La méthode a ensuite été utilisée pour assigner des valeurs de référence à différents échantillons de contrôle de la qualité : ceux du contrôle national de la qualité – obligatoire - de l'AFSSAPS (Agence française de sécurité sanitaire des produits de santé) et ceux utilisés dans le cadre d'essais d'aptitude volontaires organisés par le CTCB (Centre Toulousain pour le Contrôle de qualité en Biologie clinique). Les résultats ont permis d'évaluer la justesse des méthodes de routine et montrent que celles-ci fournissent des résultats très satisfaisants.

Ces travaux ont été réalisés en collaboration avec le CHU de Reims, permettant pour la première fois en France de faire travailler ensemble, sur un sujet d'interface, un laboratoire d'analyses médicales hospitalo-universitaire avec le LNE.

Cette étude permettra de disposer de méthodes de référence internationalement validées pour garantir la traçabilité métrologique des résultats, et ainsi de répondre aux nouvelles contraintes réglementaires pour les laboratoires d'analyses (L'accréditation selon la norme ISO 15189 sera obligatoire en 2016).

LNE-INM

Nicolas POUSSET – Caractérisation du rendu des couleurs des nouvelles sources : les diodes électroluminescentes. – CNAM – *Lasers, métrologie, communications* – 7 décembre 2009.

Le développement des LED de forte puissance au début des années 2000 a engendré un besoin de caractérisation des propriétés radiométriques, photométriques et colorimétriques de ces sources essentiellement pour des applications d'éclairage général.

L'équipe « Rayonnements optiques » du LNE-INM a étudié ces trois aspects en travaillant sur la thématique de la qualité de la lumière par le biais du rendu des couleurs lié à la perception visuelle. Ces études ont été effectuées à partir de mesures physiques et visuelles sur des échantillons colorés éclairés par des LED montées dans une cabine à lumière.

Les mesures physiques ont porté sur les répartitions spectrales des éclairages à LED à partir desquelles des paramètres colorimétriques (coordonnées chromatiques, température de couleur proximale, indices de rendu des couleurs) ont pu être évalués. L'analyse métrologique de ces données expérimentales a été réalisée à l'aide de la méthode numérique de Monte-Carlo.

Les mesures visuelles ont été obtenues à partir d'une expérience psychophysique reposant sur une méthode de comparaison par paires permettant de quantifier la qualité des éclairages à LED sur plusieurs échantillons colorés. L'analyse des résultats a permis d'obtenir un classement des éclairages à LED, du meilleur au moins bon, pour chaque échantillon.

La confrontation des résultats issus des mesures physiques et des mesures visuelles a permis de proposer des pistes de quantification du rendu des couleurs des LED. Les résultats obtenus ont été transmis au comité technique (TC 1-69) de la Commission internationale de l'éclairage (CIE) qui a pour rôle de définir une nouvelle recommandation pour l'évaluation des propriétés de rendu des couleurs des sources lumineuses d'ici fin 2010.

Rodolphe SARROUF – Réalisation de sources lasers à l'état solide avec génération de seconde harmonique intra-cavité pour la spectroscopie de l'atome d'argent. – CNAM – *Lasers, métrologie, communications* – 16 décembre 2009.

L'objectif métrologique de redéfinition de la seconde, avec une exactitude supérieure à celle des horloges atomiques au césium, implique la réalisation d'une horloge basée sur une transition du domaine optique. L'atome d'argent est un candidat potentiel car il possède une transition de faible largeur naturelle pouvant être excitée par deux photons à 661,325 nm. La réalisation d'un étalon de fréquence optique basé sur l'atome d'argent nécessite la conception de deux sources lasers monomodes rouges : une première source à 656,324 nm, préliminaire à la réalisation d'une source ultraviolette à 328,162 nm pour le refroidissement des atomes d'argent, et une seconde source à 661,325 nm pour l'excitation de la transition d'horloge.

Les travaux de la thèse ont porté sur la réalisation de ces deux sources lasers rouges possédant les spécifications suivantes :

- puissance de l'ordre de 1 W ;
- faisceau monomode longitudinal ;
- accordabilité sur plusieurs gigahertz ;
- stabilité en fréquence.

Ces deux sources peuvent être synthétisées par doublement intra-cavité de la fréquence d'un laser Nd:YLF pompé par une diode et émettant sur les composantes orthogonalement polarisées π (1 321 nm) et σ (1 314 nm) de la transition ${}^4F_{3/2} \rightarrow {}^4I_{13/2}$ du néodyme. Afin d'obtenir facilement une émission laser mono-fréquence, une configuration de cavité en anneau unidirectionnel contenant une diode optique a été choisie.

Dans un premier temps, l'émission fondamentale à 1 314 nm et à 1 321 nm a été optimisée en terme de puissance monomode longitudinal dans une cavité en anneau dont la géométrie permet d'accommoder l'insertion d'un cristal doubleur de fréquence. Avec un coupleur de sortie à 2 %, une puissance fondamentale de 1,3 W à 1,3 μm a été obtenue pour les deux transitions.

Dans un deuxième temps, ce coupleur a été remplacé par un miroir hautement réflecteur lorsque le cristal non linéaire (LBO, BiBO, ppKTP) est inséré dans la cavité. Au maximum de gain de la transition σ , une puissance de 1 W a été obtenue avec un cristal de ppKTP. A la longueur d'onde de 656,3 nm, sous-harmonique de la transition de refroidissement UV de l'argent, cette puissance décroît à 0,45 W. Pour obtenir environ 0,3 W de puissance UV à 328 nm, nécessaire au refroidissement, cette puissance devra être exaltée à environ 1 W ou 2 W.

Sur la transition π , une puissance de 0,65 W au maximum du gain laser (660,5 nm) a été obtenue avec un cristal de BiBO. A la longueur d'onde de la transition d'horloge de l'atome d'argent (661,3 nm), cette puissance décroît à 0,52 W mais reste largement suffisante pour exciter la transition à deux photons de l'argent. Les deux

sources Nd:YLF/ppKTP et Nd:YLF/BiBO sont accordables sur environ 2 nm dans le rouge autour de leur longueur d'onde centrale par rotation angulaire de l'étalon intra cavité.

LNE-IRSN

Amokrane ALLAOUA – Etude et développement de détecteurs dédiés aux mesures de référence de champs neutroniques mono-énergétiques. – Université de Strasbourg – *Physique* – 24 novembre 2009.

Le Laboratoire de Métrologie et de Dosimétrie des Neutrons (LMDN), de l'IRSN, est le laboratoire associé pour les activités en dosimétrie des neutrons. A ce titre, il dispose de l'accélérateur AMANDE, installation permettant de générer des neutrons de 2 keV à 20 MeV. Pour que cette dernière constitue une référence métrologique, il est nécessaire de lui adjoindre une chaîne de caractérisation assurant la mesure absolue des champs mono-énergétiques de neutrons ainsi produits en terme d'énergie et de fluence : c'est le développement d'un tel système (télescope à protons de recul : TPR) qui a été réalisé dans le cadre de cette thèse de doctorat.

Le télescope à protons de recul est un système de détection des protons, produits de la diffusion élastique d'un neutron sur une cible appelée convertisseur. Pour couvrir le large domaine en énergie des neutrons produits par l'installation AMANDE, deux systèmes ont été conçus durant cette thèse : le premier à base de capteurs CMOS (TPR-CMOS) est dédié aux plus hautes énergies ; le second est une micro-chambre à projection temporelle (μ -TPC neutron) utilisé pour les plus basses énergies. Ces deux prototypes sont le fruit des collaborations respectives avec le laboratoire RAMSES de l'IPHC de Strasbourg pour le premier et avec une équipe du LPSC de Grenoble pour le second.

Pour chacun de ces dispositifs, le cahier des charges a été élaboré, puis modélisé par le code MCPNX, afin d'optimiser chaque partie constitutive en regard des performances recherchées : deux premiers prototypes sont donc opérationnels à l'issue de ce travail. Plusieurs campagnes de mesures ont également eu lieu, après installation des deux détecteurs sur AMANDE.

Les premiers résultats expérimentaux sont encourageants et permettent de valider les deux concepts choisis en début de thèse. Dans le cas de la chambre μ TPC, l'efficacité du système a été évaluée à environ 10^{-4} pour les alphas de recul ; elle est bien supérieure aux performances d'autres TPR.

Les travaux se poursuivront afin d'optimiser les performances des détecteurs, en particulier les systèmes d'acquisition, et surtout de qualifier métrologiquement les équipements : traçabilité aux grandeurs primaires, maîtrise et justification des grandeurs mesurées ainsi que des incertitudes associées.

LNE-SYRTE

Michael PETERSEN – Refroidissement par laser de l'atome neutre de mercure et spectroscopie de la transition optique d'horloge $1S_0-3P_0$. – Université Pierre et Marie Curie – *Physique quantique expérimentale* – 6 février 2009.

Ces travaux détaillent les premiers résultats expérimentaux du projet d'horloge à réseau optique de mercure neutre obtenus au LNE-SYRTE. Ainsi, le piégeage magnéto-optique du mercure a été obtenu, une source laser ultra-stable pour l'interrogation de la transition d'horloge a été développée et, pour la première fois au monde, la spectroscopie laser de la transition d'horloge a été étudiée. Cela a permis d'améliorer de plus de quatre ordres de grandeur, la connaissance de la fréquence de cette transition.

Une des premières étapes a consisté à réaliser la source laser de refroidissement de plusieurs centaines de milliwatts de puissance continue. Cette source laser de longueur d'onde 253,7 nm, correspondant à la transition $1S_0-3P_1$, est stabilisée en fréquence.

En employant cette source laser de refroidissement, un piège magnéto-optique de mercure neutre fondé sur une présélection par un piège magnéto-optique à deux dimensions, a été obtenu, pour plusieurs isotopes.

A partir des atomes piégés dans le piège magnéto-optique, la spectroscopie laser de la transition l'horloge $1S_0-3P_0$ à 265,5 nm des isotopes fermioniques du mercure, a été réalisée pour la première fois au monde. Cette spectroscopie de la transition d'horloge a été réalisée avec une source laser ultra-stable à 265,5 nm.

La comparaison de cette source avec un second système laser ultra-stable similaire, fonctionnant à 1 062,5 nm, a montré une stabilité de fréquence de $8 \cdot 10^{-16}$ à 1 s de temps de mesure. Ainsi, ces résultats démontrent la faisabilité d'une horloge à réseau optique de haute performance utilisant l'atome de mercure neutre.

Friedemann REINHARD – Conception et construction d'une horloge atomique sur une puce à atomes. – Université Pierre et Marie Curie – *Physique quantique* – 27 février 2009.

Ces travaux décrivent la conception et la construction d'une horloge atomique sur une puce à atomes. Cette horloge vise une stabilité de fréquence de quelques 10^{-13} à 1 s de temps de mesure, et une application en tant qu'étalon secondaire. Elle est fondée sur la transition à deux photons entre les sous-états hyperfins $|1,-1\rangle$ et $|2,1\rangle$ de l'état fondamental de l'atome ^{87}Rb . L'interrogation de cette transition est effectuée par spectroscopie de type Ramsey, soit sur un nuage thermique d'atomes froids, soit sur un condensat de Bose-Einstein. Contrairement aux fontaines atomiques, ce nuage est magnétiquement piégé sur une puce à atomes.

Ainsi, un modèle théorique de la stabilité de fréquence de l'horloge a d'abord été établi. Ensuite, un montage expérimental capable de contrôler le champ magnétique à 10^{-5} , et doté d'une puce hybride, a été réalisé. Cette puce contient des conducteurs à courant continu ainsi qu'un guide d'onde pour acheminer le rayonnement micro-onde d'interrogation de la transition d'horloge des atomes de rubidium.

François-Xavier ESNAULT – Etudes des performances ultimes d'une horloge compacte à atomes froids : optimisation de la stabilité court terme. – Université Pierre et Marie Curie – *Physique* – 11 mars 2009.

Les étalons atomiques de fréquences jouent aujourd'hui un rôle clé en physique fondamentale mais se retrouvent aussi dans des applications « grand public » telles que les satellites de positionnement. Les contraintes de compacité imposées aux horloges embarquées sont évidemment très grandes mais les besoins actuels poussent vers des horloges toujours plus performantes.

Le projet HORACE (HORloge à Refroidissement d'Atomes en CELLule) permet, grâce à l'utilisation d'atomes refroidis par laser et à une géométrie originale où toutes les interactions ont lieu directement dans la cavité micro-onde, d'obtenir d'excellentes performances en fréquence tout en préservant la compacité et la simplicité globale du dispositif. Ces travaux présentent l'évaluation expérimentale et l'optimisation de la stabilité court terme de l'horloge HORACE réalisée au LNE-SYRTE. L'étude de la séquence de refroidissement d'atomes en lumière isotrope a montré qu'environ $2 \cdot 10^8$ atomes pouvaient être obtenus à une température de 35 μ K. Par ailleurs, la très grande stabilité de cette technique permet d'observer que les fluctuations cycle à cycle du nombre d'atomes froids sont principalement limitées par le bruit de grenaille atomique, et ce jusqu'à $2 \cdot 10^{-4}$. Cette grande stabilité de fréquence a conduit à une simplification notable de la séquence expérimentale (refroidissement et détection) tout en préservant un rapport signal à bruit proche de 1 000 en fonctionnement.

L'horloge a montré une stabilité relative de fréquence de $2,2 \cdot 10^{-15} t^{-1/2}$ s'intégrant comme du bruit blanc jusqu'à quelques milliers de secondes. C'est à ce jour une des meilleures stabilités de fréquence obtenues sur une horloge compacte. Ce résultat a pu être obtenu grâce à un

fonctionnement où une partie des atomes froids sont recapturés d'un cycle à l'autre. Ceci permet de réduire la durée de la phase de refroidissement jusqu'à 40 ms et d'obtenir, *in fine*, un rapport cyclique proche de 50 %. La possibilité de faire fonctionner l'horloge à un taux de répétition élevé (12 Hz) relâche aussi les contraintes sur les spécifications en bruit de fréquence de l'oscillateur à quartz utilisé à terme.

Enfin, les conclusions de cette étude sont extrapolées afin de prédire les performances attendues pour un fonctionnement en micro-gravité.

Vincent LIGERET – Etudes théoriques et expérimentales de sources lasers pour le pompage du césium et du rubidium : Applications horloges et interféromètres. – Université Paris XI – *Optique* – 16 juillet 2009.

Ce mémoire présente l'étude de diodes lasers à base de semi-conducteurs permettant d'adresser les applications, tant scientifiques qu'industrielles, d'horloges et d'interféromètres atomiques. Ces applications requièrent des caractéristiques particulières des diodes lasers : forte puissance (> 150 mW), émission monomode spatial ($M^2 < 1,5$) et spectral (SMSR > 30 dB), faible largeur de raie (< 1 MHz).

Partant du besoin, le mémoire s'articule sur une étude théorique de la conception de structures lasers à 852 nm (pompage du césium) et 780 nm (pompage du rubidium). Le type de structure optimale à réaliser, notamment pour des applications spatiales, est le laser à contre réaction répartie (*Distributed FeedBack* – DFB) sans aluminium dans la zone active, pour une meilleure fiabilité.

Les principaux résultats expérimentaux obtenus sur les composants réalisés sont présentés et permettent d'illustrer la démarche expérimentale de réalisation et d'optimisation de composants : lasers larges, *Ridge Fabry-Perot* et DFB.

Le critère de faible largeur de raie est un point crucial du travail de thèse : étude théorique, différentes méthodes de mesure, résultats expérimentaux, étude des facteurs limitant. Enfin, l'adéquation du composant avec les besoins est illustrée par une description de la « mise en application » des composants : mise en cavité étendue d'un *Ridge Fabry-Perot*, expérience d'interaction laser-matière (absorption saturée).