

Horloge à cellule de césium et piégeage cohérent de population : étude des principaux effets affectant la stabilité de la fréquence

Caesium cell coherent population trapping clock: main effects affecting the frequency stability

Olga KOZLOVA^{1,2}, Jean-Marie DANET¹, Stéphane GUERANDEL¹ et Emeric de CLERCQ¹

¹ Laboratoire national de métrologie et d'essais – Systèmes de Référence Temps-Espace (LNE-SYRTE), Observatoire de Paris, CNRS UMR 8630, Université Pierre et Marie Curie, 61 Avenue de l'Observatoire, 75014 Paris, France, emeric.declercq@obspm.fr.

² Adresse actuelle : Laboratoire commun de métrologie LNE-CNAM (LCM), CNAM, 61 Rue du Landy, 93210 La Plaine Saint Denis Cedex, France.

Résumé

Les horloges atomiques basées sur l'effet de piégeage cohérent de population permettent d'obtenir de meilleures performances que les horloges micro-ondes conventionnelles à cellule de vapeur ou de les miniaturiser grâce à une interrogation purement optique. Nous présentons dans cet article un prototype d'horloge à piégeage cohérent de population dans une cellule de vapeur de césium développé au LNE-SYRTE. Il réunit deux techniques originales : un schéma d'excitation avec deux polarisations linéaires et orthogonales et une interrogation de type Ramsey. La combinaison de ces deux techniques permet d'observer des résonances étroites avec un bon rapport signal à bruit. Les principaux effets pouvant affecter la stabilité de fréquence sont étudiés : l'effet du gaz tampon, celui du champ magnétique et de la puissance du laser, et enfin l'influence du bruit de l'oscillateur local ou effet Dick. La stabilité relative de fréquence obtenue est égale à 7×10^{-13} à 1 s et descend jusqu'à 2×10^{-14} à 2 000 s.

MOTS CLÉS : MÉTROLOGIE TEMPS-FRÉQUENCE, HORLOGE ATOMIQUE, HORLOGE COMPACTE, PIÉGEAGE COHÉRENT DE POPULATION, RÉSONANCE NOIRE, CELLULE DE CÉSIUM, GAZ TAMPON.

Abstract

Atomic clocks using coherent population trapping (CPT) allow to improve performances of vapour cell conventional microwave clocks, or else to miniaturize them thanks to of a full optical interrogation. In this paper, we describe a prototype developed at LNE-SYRTE. It combines two original techniques: an excitation scheme with two linearly and orthogonally polarized beams, and a Ramsey interrogation. This enables the observation of narrow resonances with a good signal-to-noise ratio.

A few major effects influencing the frequency stability are addressed; they are the effect of the buffer gas, of the magnetic field, of the laser power, and finally the effect of the local oscillator noise or Dick effect. The measured frequency stability is 7×10^{-13} at 1 s and 2×10^{-14} at 2 000 s.

KEY WORDS: TIME FREQUENCY METROLOGY, ATOMIC CLOCK, COMPACT CLOCK, COHERENT POPULATION TRAPPING, DARK RESONANCE, CAESIUM CELL, BUFFER GAS.

1. Introduction

Qu'ont en commun un bateau de pêche, un astronome exploitant les données de la mission Gaia, un ingénieur du son dans un studio professionnel, un responsable des radars météo, un randonneur consultant son GPS, un responsable des réseaux EDF, un trader dans une banque, un adolescent regardant une vidéo en ligne sur son téléphone portable, ou un laboratoire d'instrumentation ? Et la liste n'est pas exhaustive. Ils utilisent tous une horloge atomique à rubidium. Le succès des horloges à rubidium (⁸⁷Rb) que l'on retrouve aujourd'hui partout, s'explique par ses bonnes performances, pour un petit volume et un principe simple [1]. La lumière issue d'une lampe spectrale à ⁸⁷Rb, filtrée par une première cellule en verre contenant une vapeur de l'isotope ⁸⁵Rb, traverse une cellule de vapeur de ⁸⁷Rb, placée dans une cavité micro-onde, avant d'être détectée par une photodiode. Lorsque

les atomes de rubidium sont pompés optiquement dans l'un des deux niveaux hyperfins de l'état fondamental, la transmission de la cellule est augmentée. Si la fréquence micro-onde alimentant la cavité est résonnante avec la transition dans l'état fondamental du ^{87}Rb à 6,8 GHz, l'équilibre entre les populations se rétablit, l'absorption de la cellule augmente. La modulation de la fréquence micro-onde permet d'asservir la fréquence d'un oscillateur local, constituant ainsi une horloge atomique. Les horloges à rubidium sont utilisées pour leur stabilité à court terme, qui, en valeur relative et ramenée à un temps d'intégration de 1 s, est comprise entre environ 3×10^{-11} et 3×10^{-12} pour les meilleurs modèles spatiaux. Un nombre croissant de domaines, comme les systèmes de positionnement par satellite, les réseaux de télécommunications haut débit, etc. demandent de meilleures performances pour les années 2020, alors que d'autres applications demandent une miniaturisation sans trop dégrader les performances. Remplacer le pompage optique et la résonance micro-onde par le piégeage cohérent de population pourrait être la solution dans les deux cas. Grâce à la suppression de la cavité micro-onde et l'emploi de micro-cellules le piégeage cohérent permet une miniaturisation extrême de l'horloge moyennant une réduction des performances. C'est la voie de recherche suivie par le NIST aux États-Unis [2] ou FEMTO-ST [3] en France. L'objectif de l'étude en cours au LNE-SYRTE est au contraire la recherche de meilleures performances à volume équivalent et l'identification des limites ultimes de ce type d'horloge. Nous présentons dans cet article le prototype construit au laboratoire et passons en revue les principaux effets pouvant limiter la stabilité de sa fréquence.

Le principe du piégeage cohérent de population est rappelé dans le paragraphe suivant (§ 2). Nous décrivons ensuite le montage expérimental mis en place au LNE-SYRTE (§ 3), qui s'inscrit dans un projet d'horloge atomique compacte embarquable sur la base d'une cellule de vapeur de césium. Ensuite nous passons en revue quelques effets déterminants pour les performances de l'horloge. Afin d'augmenter le temps d'interaction entre les atomes et les faisceaux laser, qui fixe la largeur ultime de la transition, un gaz tampon est ajouté dans la cellule. Son effet sur la fréquence de résonance du césium est étudié dans la partie 4. Nous présentons dans la partie 5 l'effet du champ magnétique statique sur l'amplitude du signal. L'effet de la puissance laser sur le signal et la fréquence est examiné en partie 6. Il ne s'agit pas de l'effet lumineux simple, celui-ci est mêlé à plusieurs autres effets liés à la dissymétrie de la raie. Le dernier effet décrit dans cet article concerne la boucle d'asservissement (§ 7) et affecte la stabilité de fréquence. Les composantes de bruit à hautes fréquences de l'oscillateur local affectent le signal à basse fréquence par effet de repliement du spectre. L'effet Dick permet de prévoir comment la stabilité d'une horloge peut être dégradée par son oscillateur local, ici un oscillateur à quartz.

2. Principe du piégeage cohérent de population

Le piégeage cohérent de population fut découvert à Pise en 1976. Alors qu'ils étudiaient les résonances

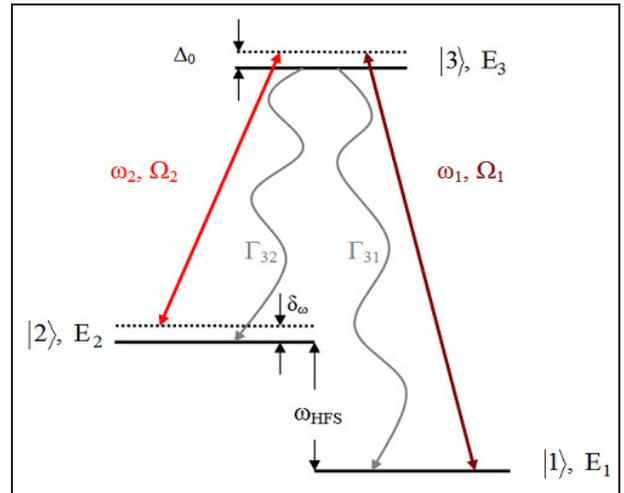


Fig. 1. – Schéma d'un atome à trois niveaux d'énergie, E_1 , E_2 , E_3 , en interaction avec deux champs laser, de fréquences ω_1 et ω_2 , formant un schéma en Λ ; les puissances laser sont caractérisées par les fréquences de Rabi Ω_1 , Ω_2 ; Δ_0 est le désaccord optique; $\delta\omega = (\omega_1 - \omega_2) - \omega_{\text{HFS}}$ le désaccord Raman; ω_{HFS} est la structure hyperfine de l'état fondamental, Γ_{31} et Γ_{32} les taux d'émission spontanée.

radiofréquences d'une vapeur de sodium dans une longue cellule éclairée par un laser multi-modes et placée dans un gradient de champ magnétique axial, Alzetta et ses collègues [4] observèrent que la cellule était barrée par endroit de raies noires, bien délimitées, dues à l'absence de fluorescence. Ces résonances noires apparaissent aux endroits où l'écart de fréquences séparant deux niveaux Zeeman était égal à la différence de fréquences de deux modes laser. L'explication [5, 6] est la suivante : à ces endroits, après quelques cycles d'absorption-émission spontanée, l'atome est placé dans un état « piège » où il ne peut plus absorber de lumière. Il s'agit d'une superposition linéaire de deux états pour laquelle il y a interférence destructive entre les deux amplitudes de probabilité de transition. Soit un atome à trois niveaux (fig. 1), deux niveaux fondamentaux ou à longue durée de vie (1 et 2) et un niveau excité (3) irradié par deux faisceaux laser, de fréquence ω_1 et ω_2 proches des résonances 3-1 et 3-2. Ce schéma est dit en Λ du fait de sa ressemblance avec la lettre grecque. On peut décrire l'état du système dans l'état fondamental en utilisant la base orthonormée formée par une combinaison linéaire des états $|1\rangle$ et $|2\rangle$:

$$|-\rangle = \frac{1}{\sqrt{\Omega_1^2 + \Omega_2^2}} (\Omega_2|1\rangle - \Omega_1 e^{-i\theta}|2\rangle), \quad (1)$$

$$|+\rangle = \frac{1}{\sqrt{\Omega_1^2 + \Omega_2^2}} (\Omega_1|1\rangle + \Omega_2 e^{-i\theta}|2\rangle), \quad (2)$$

où Ω_1 , Ω_2 , sont les fréquences de Rabi associées aux champs lasers (proportionnelles à l'amplitude du champ électrique), θ est la différence de phase entre les deux champs. L'amplitude de probabilité de transition de l'état $|-\rangle$ vers l'état $|3\rangle$ est proportionnelle à l'élément de

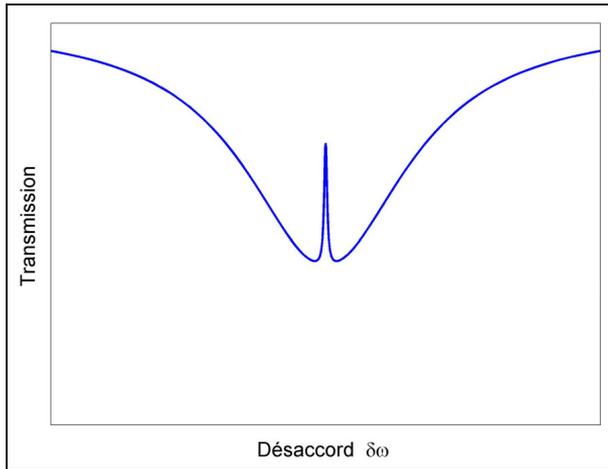


Fig. 2. – Exemple de transmission en fonction du désaccord Raman $\delta\omega$. La résonance noire se détache sur le fond d'absorption de la résonance optique. Le milieu n'est pas complètement transparent à la résonance à cause de l'absorption par les atomes situés dans les niveaux Zeeman ne participant pas à l'état noir.

matrice $\langle 3|V|- \rangle$, où V est l'hamiltonien d'interaction. À résonance et dans l'approximation de l'onde tournante il est égal à :

$$V = \frac{\hbar\Omega_1}{2}|3\rangle\langle 1| + \frac{\hbar\Omega_2}{2}e^{i\theta}|3\rangle\langle 2| + h.c., \quad (3)$$

avec \hbar la constante de Planck divisée par 2π , et $h.c.$ pour hermitien conjugué. Dans le développement de $\langle 3|V|- \rangle$, les amplitudes de probabilité de transition à partir des états $|1\rangle$ et $|2\rangle$ s'annulent et l'élément de matrice est nul, $\langle 3|V|- \rangle = 0$. L'état $|- \rangle$ est découplé du champ laser. Un atome placé dans cet état ne peut plus absorber de photon, c'est pourquoi on parle d'état noir. La probabilité de transition n'est pas nulle pour l'état $|+\rangle$, les atomes dans cet état vont être excités, ils peuvent retomber par émission spontanée dans l'état $|- \rangle$. Ce qui fait qu'après quelques cycles d'absorption-émission spontanée, tous les atomes se retrouvent piégés dans l'état noir $|- \rangle$, d'où le nom de piégeage cohérent de population. Le calcul complet montre que l'état noir ne dépend pas du désaccord optique, qui peut être non nul, par contre il n'est stable que si le désaccord Raman $\delta\omega$ est nul, c'est-à-dire quand la différence de fréquence des lasers est égale à l'écart de fréquence entre les deux niveaux inférieurs.

Si la fréquence d'un laser est fixe, lorsque l'on fait varier la fréquence de l'autre, on observe au voisinage de la résonance Raman, c'est à dire lorsque $\delta\omega = (\omega_1 - \omega_2) - \omega_{\text{HFS}} = 0$, une résonance (fig. 2), correspondant au minimum de fluorescence ou au maximum de transmission, dont la largeur est indépendante de la largeur des transitions optiques et ne dépend que de la relaxation de la cohérence entre les niveaux inférieurs. On peut donc observer des transitions très étroites en utilisant des transitions optiques très larges, d'où l'idée d'appliquer ces résonances noires à la réalisation d'horloges atomiques. Dans le cas de métaux alcalins comme le rubidium ou le césium, le schéma traditionnel [préparation des atomes, interrogation micro-onde, détection de la résonance] est

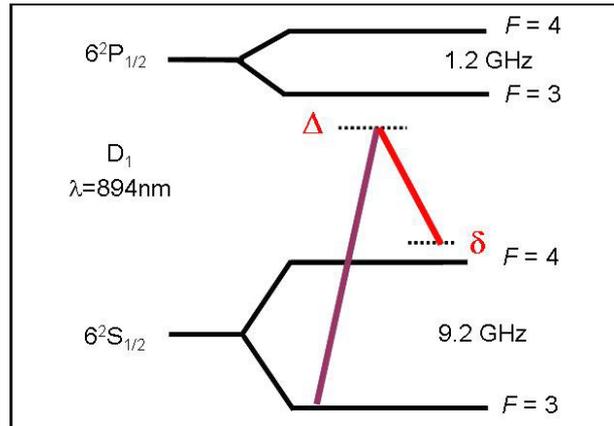


Fig. 3. – Schéma des premiers niveaux d'énergie de l'atome de césium.

remplacé par une seule interaction tout optique. Cette simplicité et l'absence de cavité résonante micro-onde permettent de réaliser des horloges atomiques miniatures. La société Symmetricom commercialise déjà des horloges sur ce principe qui occupent un volume de 16 cm^3 et ont une masse de 35 g.

Le montage expérimental du laboratoire utilise l'atome de césium et la transition D_1 à 894 nm (fig. 3) qui est intéressante pour le grand écart hyperfin entre ses niveaux excités et l'absence de transitions fermées. Le schéma en Λ est réalisé entre les niveaux d'horloges $[F = 3, m = 0]$ et $[F = 4, m = 0]$ qui dépendent peu du champ magnétique (F est le nombre quantique hyperfin, et m le nombre quantique magnétique).

Cependant les atomes sont répartis sur tous les sous-niveaux Zeeman, et vont tous absorber le rayonnement. On ne peut pas utiliser de lumière polarisée linéairement π (parallèle au champ magnétique), car une des deux transitions est interdite par les règles de sélection (conservation du moment cinétique). La plupart des montages utilisent des faisceaux laser polarisés circulairement. Dans ce cas, les atomes vont être pompés optiquement dans un sous-niveau Zeeman extrême (fig. 4) et l'amplitude de la transition entre les niveaux de m égal 0 (transition 0-0) sera réduite. On peut utiliser des polarisations linéaires et perpendiculaires au champ magnétique, à condition qu'elles soient perpendiculaires entre elles [7], sinon il n'y aurait pas d'état noir stable entre les niveaux 0. Le schéma d'excitation est alors équivalent à une excitation en lumière polarisée à la fois σ^- et σ^+ (fig. 4); on parle de schéma en double Λ et il n'y a plus d'accumulation d'atomes dans un niveau extrême. C'est le schéma que nous utilisons.

La largeur ultime de la résonance est donnée par le taux de relaxation γ_c de la cohérence hyperfine de l'état fondamental. La largeur mesurée augmente très vite avec la puissance surfacique du faisceau laser, suivant la loi [6] :

$$\Delta\nu = \frac{1}{\pi} \left(\gamma_c + \frac{\Omega_1^2 + \Omega_2^2}{2\Gamma} \right), \quad (4)$$

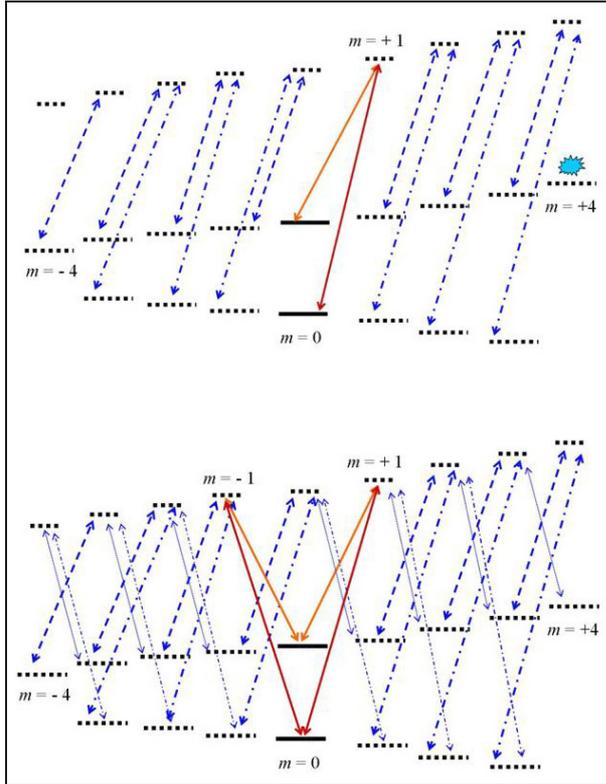


Fig. 4. – Schémas d'excitation du césium : en haut, lumière polarisée circulairement (σ^+), une partie des atomes est pompée dans le niveau extrême ($F = 4, m = 4$); en bas, schéma en double Λ (σ^- et σ^+), les atomes peuvent circuler sur tous les niveaux Zeeman. La résonance noire a lieu pour le couple de niveaux Zeeman dont l'écart est égal à la différence de fréquence des lasers. (Le niveau excité est ici $F' = 4$).

avec $\Delta\nu$, la largeur à mi-hauteur exprimée en hertz et Γ , le taux de relaxation du niveau excité.

Dans la suite de l'article, la puissance surfacique du faisceau laser (en $\text{W}\cdot\text{m}^{-2}$) est appelée « intensité » du laser.

Pour une durée de vie de la cohérence hyperfine de 1 ms, et pour la largeur naturelle de la raie D_1 du césium (4,6 MHz), avec des intensités de faisceaux laser égales, la largeur de la résonance est doublée pour une intensité du laser de $0,3 \mu\text{W}\cdot\text{cm}^{-2}$. Pour une cellule de vapeur avec gaz tampon, l'intensité de saturation est de l'ordre de $20 \mu\text{W}\cdot\text{cm}^{-2}$. Pour ne pas trop élargir la résonance, les horloges à piégeage cohérent de population fonctionnent donc à très basse intensité au détriment de l'amplitude du signal. Nous avons montré [7] que cet inconvénient peut être contourné en utilisant une interrogation impulsionnelle de type Ramsey. La largeur de la résonance est alors donnée par l'inverse du temps entre deux impulsions, quelle que soit l'intensité laser (fig. 5).

L'équation (1) montre que l'état noir dépend de la différence de phase entre les lasers. Si la phase varie, un nouvel état noir est créé; une bonne stabilité de phase est donc nécessaire. En pratique les deux fréquences laser sont obtenues soit en modulant la fréquence ou la

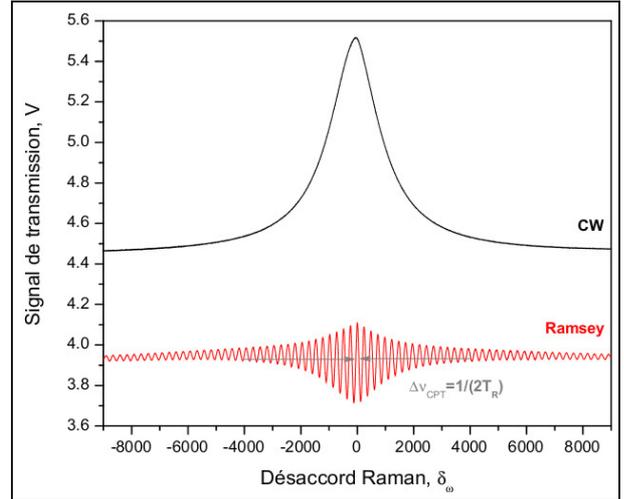


Fig. 5. – Signal de résonance expérimental obtenu avec une interrogation continue (haut), et avec une interrogation de type Ramsey (bas). Le désaccord est exprimé en hertz.

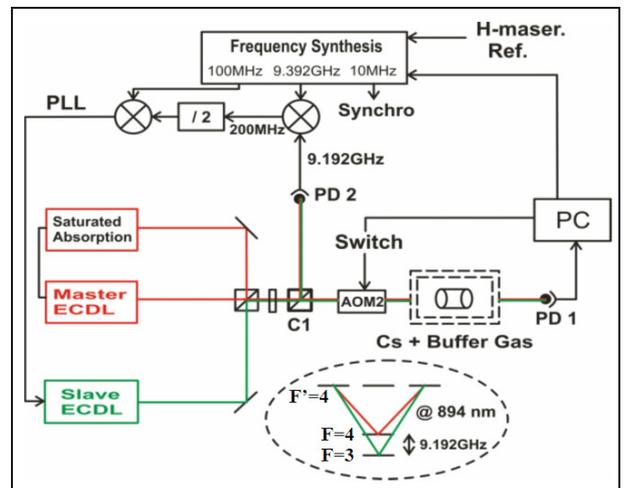


Fig. 6. – Schéma du montage expérimental. Les faisceaux de deux diodes laser asservies en phase sont combinés avant d'être hachés par un modulateur acousto-optique (AOM2) et de traverser la cellule de vapeur de césium avec un gaz tampon. Un ordinateur (PC) traite le signal recueilli sur la photodiode (PD1) et pilote le synthétiseur de fréquence générant la différence de fréquence entre les deux lasers.

phase d'un seul laser, soit en asservissant en phase un laser sur l'autre. C'est la solution que nous avons retenue, afin d'éviter les multiples bandes latérales créées par la modulation, et permettre une plus grande versatilité du schéma d'excitation.

3. Montage expérimental

La figure 6 représente le schéma du montage expérimental existant actuellement. Son originalité réside dans l'utilisation de polarisations linéaires croisées et d'une interrogation de la transition d'horloge de type Ramsey. Deux diodes laser en cavité étendue, suivant le montage de Baillard *et al.* [8], sont asservies en phase avec

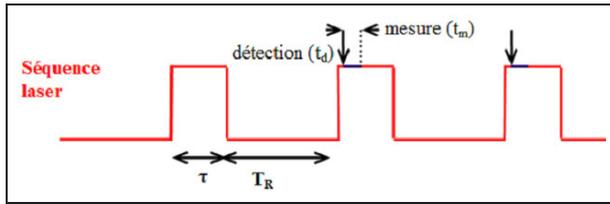


Fig. 7. – Séquence laser : les impulsions lumineuses de durée τ sont séparées par un intervalle dans le noir de durée T_R . La détection a lieu quelques μ s après le début d'une nouvelle impulsion, pendant une durée t_m .

un écart de fréquence proche de 9,192 GHz. La diode maître est asservie en fréquence sur une cellule annexe de césium par absorption saturée. Le battement optique entre les diodes maître et esclave est détecté sur la photodiode rapide PD2 et comparé à la fréquence d'un synthétiseur piloté par l'ordinateur [9]. Le signal de correction est appliqué sur la céramique piézo-électrique ajustant la longueur de la cavité optique et sur le courant de la diode esclave. Les faisceaux polarisés linéairement et orthogonalement traversent successivement un modulateur acousto-optique et la cellule de césium avant d'atteindre la photodiode de détection. Le modulateur acousto-optique, commandé par l'ordinateur, joue le rôle d'obturateur rapide afin de générer les impulsions de l'interrogation de Ramsey. Le signal de la photodiode est traité par un ordinateur qui pilote la synthèse de fréquence, dont la référence de fréquence est un maser à hydrogène du laboratoire.

La cellule est en Pyrex, typiquement de longueur 1 cm à 5 cm et de diamètre 2 cm, elle contient de la vapeur de césium et un ou plusieurs gaz tampons nécessaires pour confiner les atomes de césium et augmenter leur temps de diffusion vers les parois. Elle est régulée en température à mieux que 1 mK, et placée dans un solénoïde créant le champ magnétique directeur. Le tout est entouré de deux blindages magnétiques. Les premières cellules utilisées étaient des cellules commerciales ou fournies par l'université de Fribourg. Elles sont maintenant remplies à l'Observatoire de Paris où un banc spécifique a été mis au point.

La séquence d'interrogation (fig. 7) est constituée d'une première impulsion laser, d'une durée τ , typiquement 2 ms à 4 ms, qui pompe les atomes dans l'état noir, suivie d'une durée T_R pendant lequel les atomes évoluent librement dans le noir, typiquement de 4 ms, puis une deuxième impulsion laser, identique à la première. La détection du signal se fait au début de chaque impulsion, avant que les atomes ne soient pompés à nouveau dans un nouvel état noir. La modulation nécessaire à l'asservissement de la fréquence micro-onde, la fréquence d'horloge, est une modulation carrée soit en fréquence, soit en phase. Pour une modulation de fréquence, la fréquence est changée au début de chaque impulsion laser, juste après la détection du signal. Dans le cas d'une modulation de phase, la fréquence est fixée au sommet de la résonance, la phase est modulée entre $\pi/2$ et 0 pendant la durée d'évolution libre.

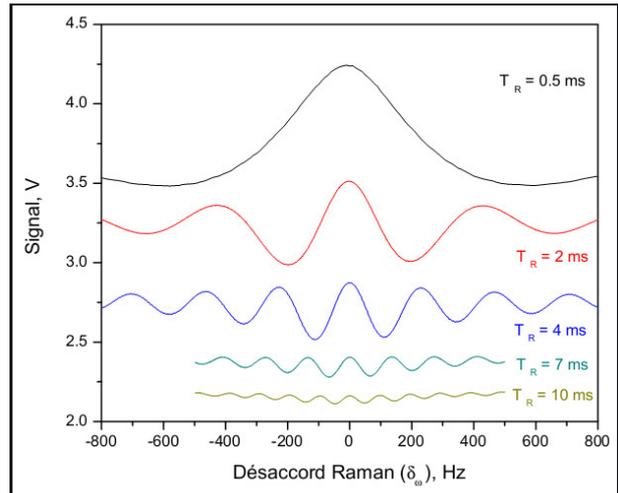


Fig. 8. – Franges de Ramsey expérimentales pour différents temps d'évolution libre T_R ; pour une meilleure visibilité un *offset* différent est appliqué à chaque courbe.

Une caractéristique d'une horloge à piégeage cohérent de population est d'utiliser les mêmes faisceaux laser pour préparer les atomes, les interroger et détecter le signal en même temps. La figure 8 montre un exemple du signal obtenu, les franges de Ramsey, pour différents temps d'évolution libre T_R .

La largeur de la frange centrale est égale à $1/(2T_R)$. À cause des collisions dans la cellule, entre atomes ou contre les parois, l'état noir a une durée de vie limitée, de l'ordre de quelques millisecondes. C'est pourquoi le signal diminue exponentiellement quand T_R augmente. La stabilité de fréquence d'une horloge est caractérisée par l'écart type des fluctuations de fréquence, qui doit être le plus faible possible. La stabilité à court-terme est proportionnelle à la largeur de la résonance (il faut donc un temps T_R long) et inversement proportionnelle à l'amplitude du signal (il faut un temps T_R court). Le calcul montre que l'optimum pour la stabilité de fréquence correspond à un temps T_R égale au temps de relaxation de l'état noir.

4. Effet du gaz tampon

La vapeur de césium est contenue dans une cellule de verre. Afin de prolonger la durée de vie de la cohérence hyperfine, qui détermine la largeur de la résonance, il est nécessaire d'augmenter le temps de vol des atomes de césium entre deux chocs contre les parois ou d'enduire les parois d'un revêtement antirelaxant. Un gaz tampon (gaz rare ou azote) est utilisé dans le premier cas, un revêtement à base de paraffine ou de silane dans le deuxième. Les collisions avec les atomes du gaz tampon augmentent le temps de diffusion des atomes de césium vers les parois mais modifient aussi l'écart hyperfin de l'état fondamental du césium d'une quantité qui dépend de la nature du gaz, de sa pression et de sa température. On peut écrire le déplacement de la fréquence d'horloge comme [1] :

$$\Delta\nu(P_0, t) = P_0 \left(\beta + \delta(t - t_0) + \gamma(t - t_0)^2 \right), \quad (5)$$

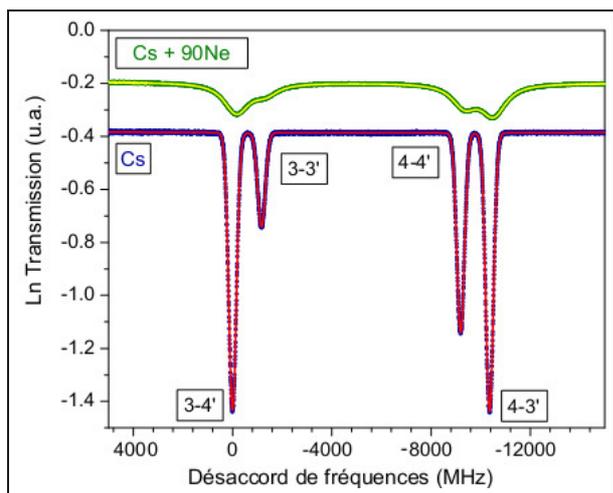


Fig. 9. – Logarithme du signal transmis à travers la cellule contenant du césium pur (courbe du bas) et à travers une cellule contenant un mélange de césium et de néon à 90 torr (12 kPa) (courbe du haut) ; les courbes ajustées sont superposées.

où P_0 est la pression du gaz tampon à la température t_0 , t est la température et β , δ , γ sont des coefficients expérimentaux. Pour un mélange de gaz à faible pression on considère que les déplacements s'additionnent linéairement. Avec un mélange judicieux de gaz de coefficients opposés on peut annuler la dépendance linéaire en température et obtenir une pente nulle à une température donnée. Malheureusement ces coefficients étaient mal connus voir inconnus et devaient être mesurés.

Nous avons mesuré les coefficients β , δ , γ pour trois gaz tampons : néon, azote et argon. Les mesures ont été effectuées sur quatorze cellules commandées à trois fournisseurs différents (Université de Fribourg, Triad Technology, Sacher), remplies à différentes pressions pour chacun des gaz.

Remarque : bien que le torr (1 torr = 133,322 Pa) ne soit pas une unité du SI, nous exprimons ici toutes les pressions en torr afin de faciliter la comparaison des résultats car les valeurs publiées dans les articles cités en référence sont exprimées en torr.

4.1. Mesure de la pression dans la cellule

La détermination des coefficients expérimentaux nécessite de connaître la pression du gaz dans la cellule, or, après scellement, cette pression est inconnue. Nous l'avons mesurée en utilisant le déplacement de la transition optique. Pour cela le signal de transmission est enregistré simultanément sur une cellule de césium seul, servant de référence, et sur la cellule à mesurer. La diode est balayée en fréquence en modulant son courant d'alimentation. Le signal est ensuite normalisé pour corriger la variation de puissance et la non-linéarité du balayage en fréquence. Le déplacement de fréquence de la transition optique est déduit de l'ajustement d'un spectre théorique composé de quatre profils de Voigt sur la courbe expérimentale (exemple en fig. 9).

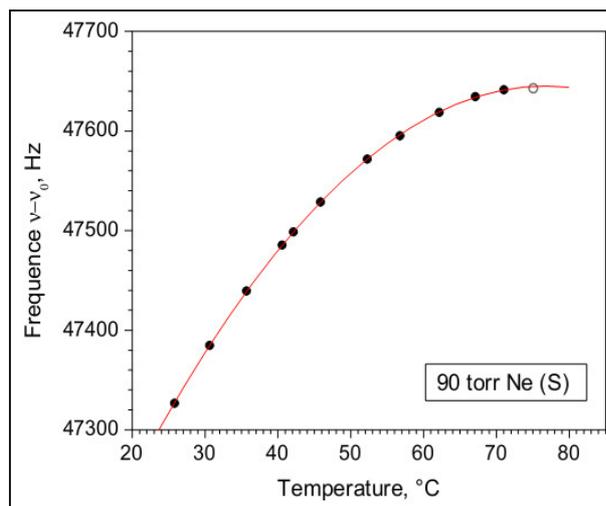


Fig. 10. – Déplacement de la fréquence d'horloge dans une cellule remplie de néon à la pression de 90 torr (12 kPa).

Tableau 1

Coefficients collisionnels des gaz tampons considérés.

Gaz	β (Hz·torr ⁻¹)	δ (Hz·torr ⁻¹ ·K ⁻¹)	γ (mHz·torr ⁻¹ ·K ⁻²)
néon	686 ± 14	0,266 ± ±0,006	-1,68 ± 0,05
argon	-194,4 ± 1,6	-1,138 ± 0,010	0,0 ± 0,3
azote	922,5 ± 4,8	0,824 ± 0,006	-2,51 ± 0,03

La pression dans la cellule est calculée à partir de ce déplacement en utilisant les coefficients publiés [10]. Avant de pouvoir les utiliser, nous avons mesuré leur dépendance en température qui était inconnue. La pression dans la cellule est finalement mesurée avec une incertitude de 1,5 % à 4 %.

4.2. Mesure des coefficients

Les coefficients de l'équation (5) sont déterminés pour chaque cellule en mesurant la fréquence de la transition d'horloge en fonction de la température de la cellule. Chaque mesure de fréquence est corrigée des effets de puissance laser par extrapolation à puissance nulle, et corrigée du déplacement Zeeman quadratique. La figure 10 représente un exemple du déplacement de fréquence mesuré sur une cellule remplie de néon à 90 torr (12 kPa). Le caractère quadratique du déplacement collisionnel permet d'annuler la sensibilité à la température vers 79 °C [11].

Les coefficients collisionnels sont calculés pour chaque gaz à partir de la moyenne des cellules [12]. Les résultats sont rassemblés dans le tableau 1.

Notons que les valeurs des coefficients de l'argon ont des signes opposés par rapport à l'azote ou néon. Cela permet de prévoir la possibilité d'annuler la variation du déplacement de fréquence collisionnel avec la température pour un mélange argon-azote ou argon-néon.

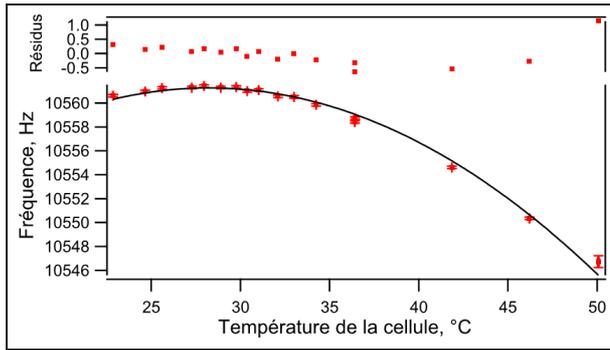


Fig. 11. – Déplacement de la fréquence d’horloge dans une cellule contenant un mélange argon-azote, de composition $r = 0,6$. La sensibilité en température s’annule à 29 °C. La courbe en trait continu est la courbe théorique ajustée.

4.3. Annulation de la dépendance thermique

À partir des coefficients mesurés nous pouvons prévoir la composition de mélanges argon-azote (Ar-N₂) permettant d’annuler la sensibilité en température à la température voulue. La composition du mélange, caractérisé par le rapport des pressions partielles, $r = P_{\text{Ar}}/P_{\text{N}_2}$ permettant d’obtenir la température d’inversion T_{inv} est donnée par (6) :

$$r = -\frac{\delta_{\text{N}_2} + 2\gamma_{\text{N}_2}}{\delta_{\text{Ar}}} (T_{\text{inv}} - T_0). \quad (6)$$

La composition du mélange argon-azote donnant lieu à une température d’inversion de 29 °C, température correspondant au maximum de signal, est de $r = P_{\text{Ar}}/P_{\text{N}_2} = 0,60$. La figure 11 montre le déplacement de fréquence mesuré en fonction de la température pour une cellule de cette composition réalisée à l’Observatoire de Paris.

En fonction de la température de fonctionnement voulue, on pourra choisir la composition du mélange annulant la sensibilité en température à l’aide de la figure 12. Nous avons vérifié la validité de nos coefficients en mesurant la température d’inversion pour plusieurs compositions du mélange argon-azote.

Le reste de l’étude présentée ici, est réalisée avec la cellule de la figure 11.

5. Effet du champ magnétique

La fréquence ν_{00} de la transition 0-0 croît avec le champ magnétique de $42,745 \text{ mHz} \cdot \mu\text{T}^{-2}$ [1]. Dans le cas d’un schéma d’excitation en double Λ le signal varie aussi avec le champ magnétique, comme le montre la figure 13.

Ceci s’explique par la présence d’autres transitions dont la fréquence est très proche de la fréquence d’horloge, et qui s’écartent avec le champ magnétique. Il s’agit de transitions Λ entre les niveaux Zeeman de part et d’autre des niveaux $m = 0$, telles que $\Delta m = \pm 2$ (fig. 14).

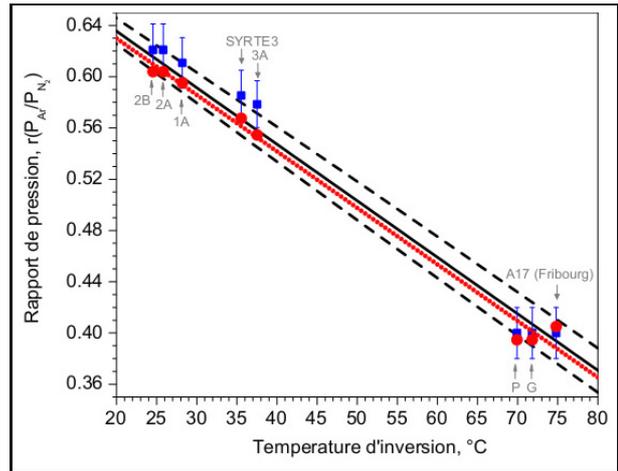


Fig. 12. – Composition du mélange argon-azote en fonction de la température d’inversion désirée. Les disques sont les points expérimentaux, avec les références des cellules. Les droites continues correspondent à l’équation (6) (dessus), et l’ajustement sur les points expérimentaux (dessous), les droites en pointillé correspondent à l’incertitude sur les coefficients collisionnels.

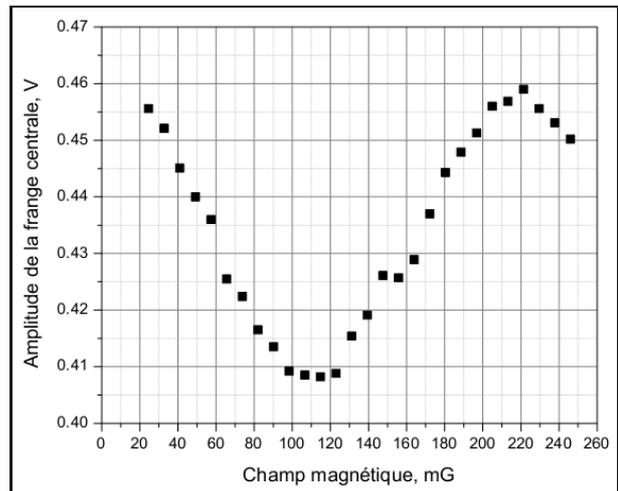


Fig. 13. – Amplitude de la frange centrale de Ramsey en fonction du champ magnétique statique (1 mG = 0,1 μT).

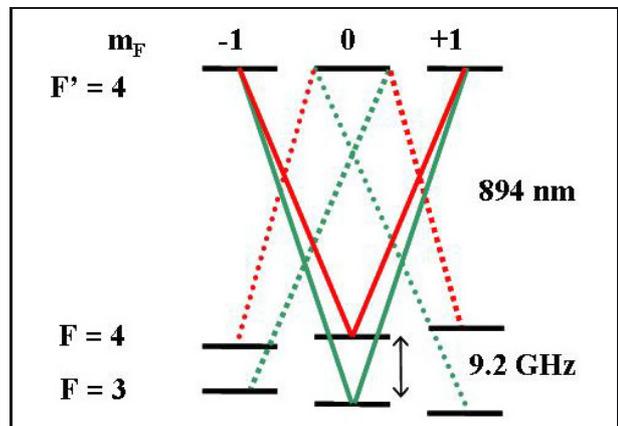


Fig. 14. – Schéma des transitions voisines de la transition 0-0 : le schéma double Λ (en trait continu) et les deux transitions Λ entre niveaux Zeeman voisins (en pointillé).

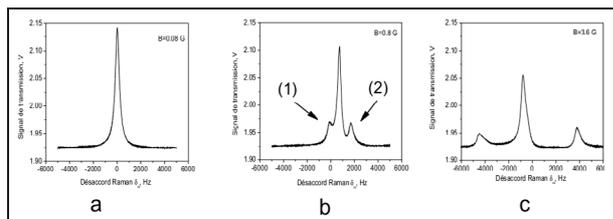


Fig. 15. – Transition 0-0 et transitions voisines pour différentes valeurs du champ magnétique statique : (a) $B = 8 \mu\text{T}$, (b) $B = 80 \mu\text{T}$ et (c) $B = 360 \mu\text{T}$.

Ces transitions sont bien visibles pour une interrogation continue et un champ magnétique fort (fig. 15). Elles s'écartent de la transition 0-0 comme $\pm 11,1649 \text{ Hz} \cdot \mu\text{T}^{-1} + 2,671 \text{ mHz} \cdot \mu\text{T}^{-2}$ [13].

En interrogation de Ramsey chaque transition donne une série de franges sinusoidales, qui se superposent et vont s'écarter avec le champ magnétique, d'où une suite de maximums et minimums du signal (fig. 13). La présence de ces transitions voisines risque d'entraîner une sensibilité accrue du signal d'horloge au champ magnétique dont il faudra tenir compte.

6. Effet de la puissance du laser

Comme le montre la figure 16, l'amplitude du signal augmente linéairement avec l'intensité du laser (ou la puissance pour une surface constante), aussi bien en mode continu qu'en mode impulsionnel. Le comportement de la largeur est très différent ; elle augmente linéairement en mode continu (fig. 16-bas), conformément à l'équation (4), tandis qu'elle est constante pour une interrogation de Ramsey.

Le signal passe par un maximum en fonction de la température de la cellule. En effet les cellules sont à la pression de vapeur saturante du césium, la densité du gaz augmente avec la température, d'où un accroissement du signal. Au-delà d'une certaine température la densité de gaz est trop grande, le milieu devient optiquement épais, les collisions Cs-Cs ne sont plus négligeables, la relaxation augmente, l'amplitude du signal diminue. La température optimale augmente aussi avec l'intensité du faisceau laser comme le montre la figure 17, probablement parce qu'une plus forte intensité permet de contrebalancer un peu l'effet d'un milieu devenu plus absorbant.

La fréquence de la résonance varie aussi avec l'intensité laser (fig. 18). L'interrogation de type Ramsey permet de gagner un ordre de grandeur sur la valeur du déplacement [14]. Contrairement à ce qui est attendu pour le déplacement lumineux d'une résonance noire [15, 16], le déplacement n'est pas linéaire avec l'intensité du faisceau laser.

Selon Kozlova [13] le déplacement observé est la résultante de nombreux effets. Il est lié à la dissymétrie du pic de résonance qui peut être induite par un décalage entre le fond de l'absorption Doppler et le centre de la résonance noire, le recouvrement des transitions voisines,

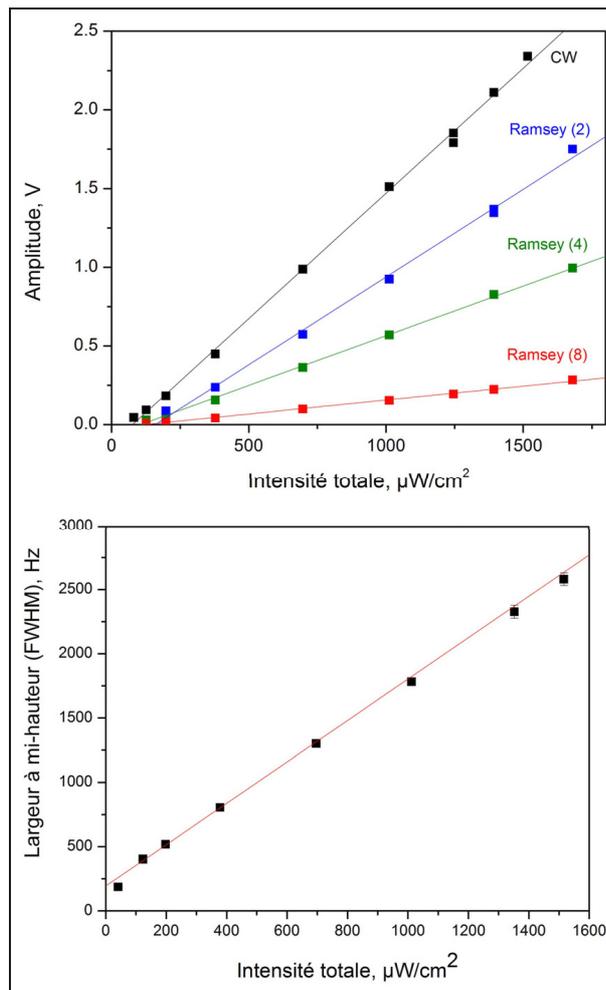


Fig. 16. – Effet de l'intensité du faisceau laser : en haut, amplitude du signal en fonction de l'intensité du faisceau laser, pour une interrogation continue (CW) ou Ramsey ; les chiffres entre parenthèses correspondent au temps séparant deux pulses en millisecondes ; en bas, largeur du signal en fonction de l'intensité pour une interrogation continue.

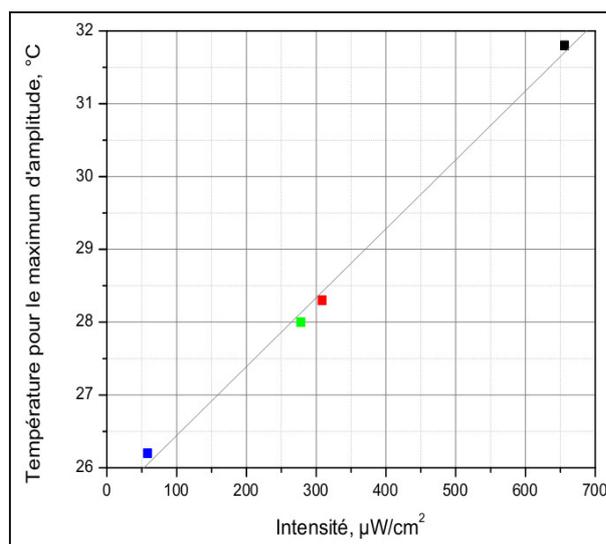


Fig. 17. – Température optimale de la cellule en fonction de l'intensité du faisceau laser, la droite en trait plein est la droite des moindres carrés.

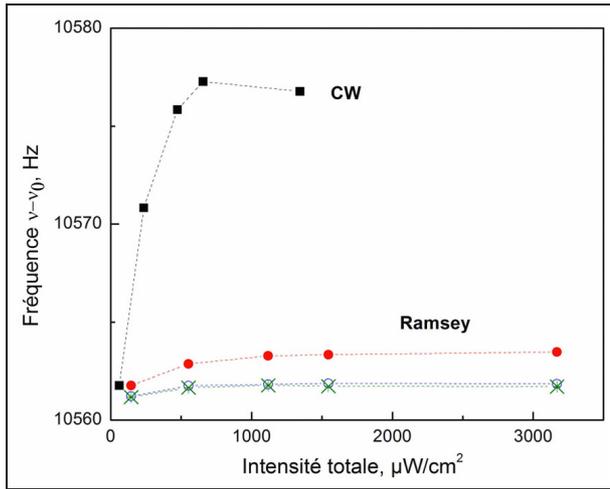


Fig. 18. – Fréquence de résonance mesurée en fonction de l'intensité du faisceau laser totale, en mode continu (cw) et Ramsey ; Pour l'interrogation de Ramsey, les séquences (τ, T_R) sont de bas en haut (4 ms, 8 ms), (2 ms, 8 ms), (2 ms, 4 ms).

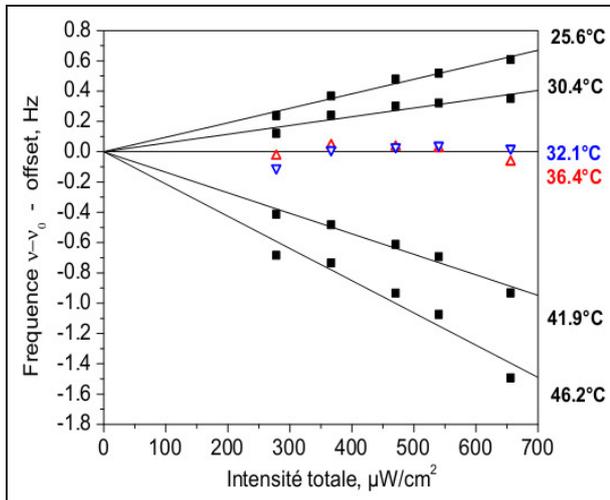


Fig. 19. – Déplacement de fréquence de la transition d'horloge mesurée en fonction de l'intensité totale du faisceau laser, pour différentes températures de la cellule.

transitions $\Delta m = 1$ et $\Delta m = 2$, etc. Ces effets peuvent masquer le déplacement lumineux.

Pour des intensités plus faibles, le déplacement s'approche d'un comportement linéaire. Comme le montre la figure 19, il dépend aussi de la température.

Cette dépendance peut s'expliquer par la variation de la densité de césium, et donc de l'absorption dans la cellule, la variation de la largeur Doppler, et la variation du désaccord optique à cause de la dépendance du déplacement collisionnel de la transition optique dû aux collisions avec les gaz tampons. La figure 19 et la figure 20-haut pourraient laisser croire qu'il existe une température pour laquelle l'effet de puissance disparaît. En fait, il subsiste un comportement non linéaire comme le montre la figure 20-bas.

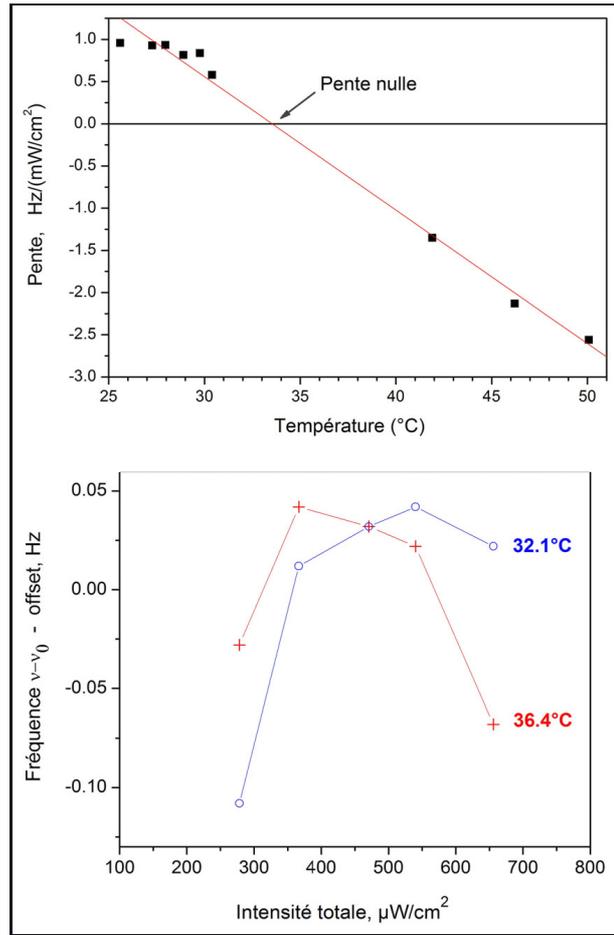


Fig. 20. – (haut) : effet de l'intensité du faisceau laser, en $\text{Hz}/(\mu\text{W}\cdot\text{cm}^{-2})$, en fonction de la température de la cellule ; (bas) : déplacement en fonction de l'intensité du faisceau laser pour des températures proches de celle qui devrait annuler l'effet sur la figure de gauche.

Ces résultats montrent que l'effet de la puissance du faisceau laser est un effet complexe, ne provenant pas seulement de l'effet lumineux mais résultant de nombreux phénomènes. Une étude ultérieure doit permettre de déterminer comment, en agissant sur ces phénomènes, le minimiser ou l'annuler. Cet effet est considéré comme l'un des effets limitant la stabilité à long terme des horloges classiques à rubidium.

7. Stabilité de la fréquence et effet Dick

En fonctionnement en horloge la fréquence de l'oscillateur est asservie sur la résonance atomique en maintenant la fréquence moyenne à la résonance, et en modulant la phase de $\pm\pi/2$ à chaque cycle. Le signal est démodulé et traité par l'ordinateur qui corrige la fréquence du synthétiseur (fig. 6). La figure 21 montre la stabilité relative de la fréquence obtenue, mesurée par l'écart type d'Allan. La boucle d'asservissement n'est pas ici optimisée pour les temps courts, ce qui explique la partie de la courbe entre 1 s et 10 s. La remontée de la stabilité à partir d'une certaine valeur du temps d'intégration est

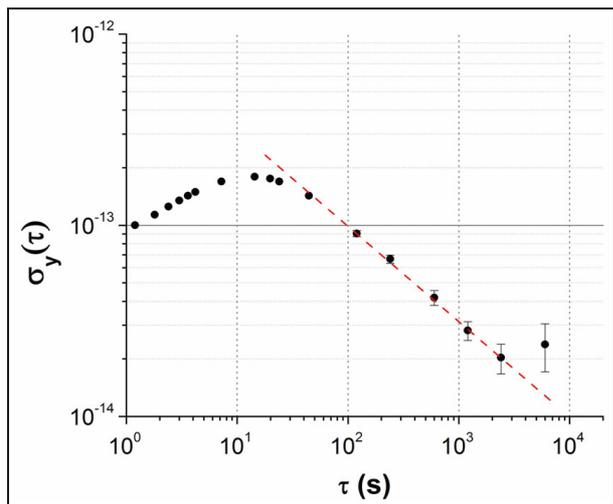


Fig. 21. – Écart type d'Allan de l'horloge comparée à un maser à hydrogène du laboratoire.

une caractéristique des horloges à cellule. Elle peut avoir plusieurs origines, effet de la puissance du faisceau laser, effet de la température de la cellule, variation de la composition du gaz dans la cellule ou effet du vieillissement, variations du champ magnétique. Dans les horloges commerciales, la source principale de dérive à long terme n'est pas élucidée. Ici il s'agit en grande partie d'une variation de la puissance du laser sur des temps longs. Une stabilité relative de fréquence de 2×10^{-14} est obtenue pour un temps d'intégration de 2 000 s.

La stabilité à court terme, quand elle est déterminée par du bruit blanc de fréquence, est donnée par :

$$\sigma_y(t) = \frac{\sigma_s}{\nu_0 p} \sqrt{\frac{T_c}{t}}, \quad (7)$$

où t est le temps de moyennage, σ_s est l'écart type du signal mesuré, p est la pente du discriminateur de fréquence, T_c est la durée d'un cycle d'interrogation (1/2 période de modulation). Le signal d'erreur est fourni par la différence des signaux entre deux cycles consécutifs. Le signal est affecté par toutes les sources de bruit affectant les atomes, mais aussi par le bruit du signal d'interrogation provenant du bruit de l'oscillateur local. Nous avons calculé l'effet Dick qui tient compte des effets d'échantillonnage du bruit de l'oscillateur. L'information spectrale à basse fréquence vue par les atomes est corrigée par la boucle d'asservissement. Les fluctuations de fréquence de l'oscillateur à des fréquences supérieures à la bande passante de l'asservissement ne sont pas corrigées. Cependant les fluctuations à des fréquences de Fourier proches des multiples de la fréquence d'échantillonnage $f_c = 1/T_c$, sont converties en basses fréquences par effet de repliement de spectre, et les atomes y répondent par des fluctuations de probabilité de transition P . Cet effet modélisé par J. Dick est détaillé dans Santarelli *et al.* [17]. La fonction de sensibilité $g(t)$ du signal d'horloge, à un saut de phase $\Delta\varphi$ à l'instant t , est définie par :

$$g(t) = 2 \lim_{\Delta\varphi \rightarrow 0} \frac{\delta P(t, \Delta\varphi)}{\Delta\varphi}. \quad (8)$$

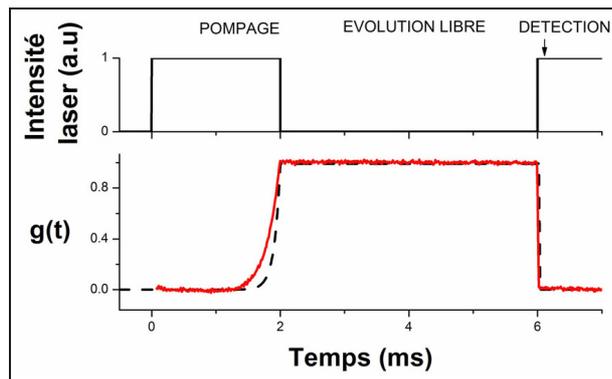


Fig. 22. – Fonction de sensibilité d'une horloge à piégeage cohérent : (haut), séquence laser, cycle de 2 ms de pompage et 4 ms de temps d'évolution libre ; (bas), fonction de sensibilité : en trait pointillé, la courbe théorique, en trait plein la courbe expérimentale.

Un modèle numérique a permis de calculer la forme de cette fonction dans le cas d'une horloge à résonance noire, et celle-ci a été confirmée par une mesure. La forme obtenue (fig. 22) diffère de celle obtenue pour une transition classique dans un système à deux niveaux.

L'écart entre la courbe expérimentale et la courbe théorique de la figure 22 s'explique par des valeurs différentes des fréquences de Rabi entre le modèle et l'expérience. Afin de calculer la contribution du bruit de fréquence de l'oscillateur local, au bruit total, nous avons utilisé la procédure de calcul de l'effet Dick, dont nous présentons les principales étapes. On définit les coefficients suivants :

$$g_m^c = \frac{1}{T_c} \int_0^{T_c} \cos\left(\frac{2\pi}{T_c} mt\right) g(t) dt$$

$$g_m^s = \frac{1}{T_c} \int_0^{T_c} \sin\left(\frac{2\pi}{T_c} mt\right) g(t) dt \quad (9)$$

$$g_0 = \frac{1}{T_c} \int_0^{T_c} g(t) dt$$

$$g_m^2 = (g_m^s)^2 + (g_m^c)^2, \quad (10)$$

avec T_c , la durée d'un cycle pompage-détection. La contribution à la stabilité de la fréquence de l'horloge du bruit de l'oscillateur local est donnée par :

$$\sigma_y = \sqrt{\frac{1}{\tau} \sum_m S_y \left(\frac{m}{T_c}\right) \left(\frac{g_m}{g_0}\right)^2}, \quad (11)$$

où S_y est la densité spectrale de puissance du bruit de fréquence relative de l'oscillateur. La figure 23 représente les coefficients g_m calculés en fonction de l'harmonique m dans notre cas.

Dans le cas d'une interrogation micro-onde classique, les coefficients g_m décroissent d'abord de 20 dB par décade [18, 19], puis assez rapidement de 40 dB par décade.

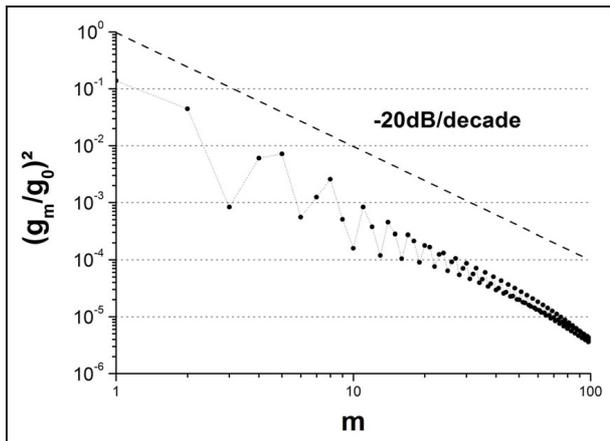


Fig. 23. – Paramètre $(g_m/g_0)^2$ intervenant dans le calcul de la stabilité de fréquence de l'oscillateur asservi en fonction de l'harmonique de la fréquence $1/T_c$; la droite en pointillé est un guide pour l'œil.

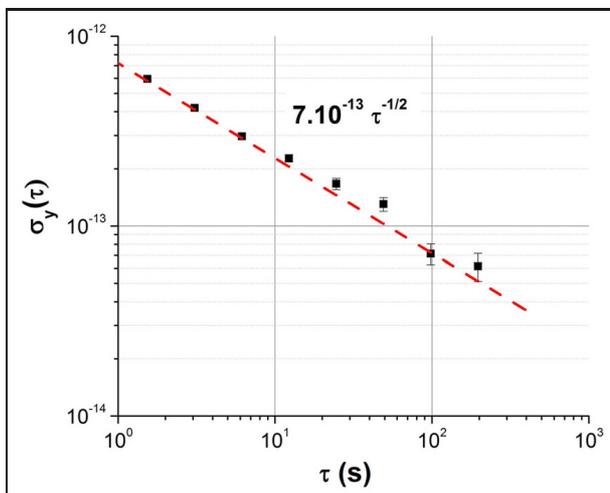


Fig. 24. – Écart type d'Allan de l'horloge comparée à un maser à hydrogène du laboratoire ; la pente en $\tau^{-1/2}$ est caractéristique d'un bruit blanc de fréquence.

Ici au contraire la pente en -20 dB par décade s'étend jusqu'aux harmoniques élevées ; ce qui veut dire que l'on va être sensible au bruit de l'oscillateur jusqu'à des harmoniques très élevées, et que le choix de l'oscillateur local le plus adapté devra en tenir compte.

Cette étude a permis d'estimer la contribution du bruit de phase de notre oscillateur à quartz à la stabilité de fréquence totale du montage actuel à $6,4 \times 10^{-13}$, ce qui en fait une des limitations majeures puisque la stabilité relative de fréquence actuelle est de $7 \times 10^{-13} \tau^{-1/2}$ (fig. 24).

8. Conclusion

Cet article présente le principe d'une horloge à piégeage cohérent de population ainsi que les principaux effets pouvant affecter la stabilité de sa fréquence : interactions césium-gaz tampon, effets de la puissance du faisceau laser et du champ magnétique et enfin bruit de

fréquence de l'oscillateur local. Les coefficients du déplacement collisionnel de la fréquence hyperfine du césium, en fonction de la température ont été mesurés avec une bonne précision et pourront servir de référence à la construction de futures horloges à cellule de vapeur de césium, qu'elles utilisent le piégeage cohérent de population ou non. L'étude des effets de la puissance du laser a, quant à elle, permis une première approche du problème, existant sur toutes les horloges compactes et étant notamment identifié comme facteur limitant dans les horloges classiques à rubidium. Cette étude préliminaire a montré la complexité des effets de la puissance du laser dans une cellule de vapeur où de nombreux effets différents sont mêlés. Elle doit être approfondie. Enfin l'effet du bruit de fréquence de l'oscillateur local sur une horloge à impulsions utilisant une résonance noire a été modélisé, mesuré et identifié comme dominant dans le budget de bruit de la stabilité de fréquence à court terme de ce prototype. L'autre contribution importante provient du bruit de puissance des lasers. Aujourd'hui cette stabilité est de 7×10^{-13} à 1 s, soit la meilleure obtenue sur une horloge à piégeage cohérent de population, et proche de celle d'un maser passif. Elle peut encore être améliorée en utilisant un oscillateur à quartz dont le spectre de bruit est mieux adapté à la fonction de sensibilité, et en limitant le bruit de puissance du laser ou son effet. Une grande marge de progression est encore possible puisque la limite donnée par le bruit de grenaille est estimée à 2×10^{-14} à 1 s. L'application du piégeage cohérent de population aux horloges atomiques est donc prometteur, non seulement pour les horloges miniatures, mais aussi pour les horloges industrielles ou spatiales de grande stabilité de demain.

Remerciements

Nous tenons à remercier Pierre Bonnay (GEPI, Observatoire de Paris), et Annie Gérard pour la réalisation de cellules de césium de grande qualité. Nous sommes reconnaissants à Michel Lours, Laurent Volodimer et José Pinto, du service électronique, pour leurs contributions et leur assistance experte. Nous remercions également Noël Dimarcq pour ses précieux conseils, ainsi que Thomas Zanon, Natascia Castagna et Rodolphe Boudot pour leur importante contribution à différents stades de ce projet. Ces travaux ont reçu le soutien financier de la Délégation Générale pour l'Armement (DGA), contrat DGA n° 2009.34.0052, et du LNE. La bourse de thèse de doctorat d'Olga Kozlova a également été financée par la DGA.

Références

- [1] VANIER J. et AUDOIN C., "The quantum physics of atomic frequency standards", *IOP Publishing*, Bristol and Philadelphia, 1989.
- [2] KNAPPE S., "MEMS Atomic Clocks", *Comprehensive microsystems*, Elsevier, 3, 2008, 571–612.
- [3] BOUDOT R., DZIUBAN P., HASEGAWA M., CHUTANI R., GALLIOU S., GIORDANO V. et GORECKI C., "Coherent population trapping resonances in Cs-Ne vapor microcells for miniature clocks applications", *J. Appl. Phys.*, 109, 2011, 014912.

- [4] ALZETTA G., GOZZINI A., MOI L. et ORRIOLS G., “An experimental method for the observation of R.F. transitions and laser beat resonances in oriented Na vapour”, *Il Nuovo Cimento*, **36**, 1976, 5–20.
- [5] ARIMONDO E. et ORRIOLS G., “Nonabsorbing atomic coherences by coherent two-photon transitions in a three-level optical pumping”, *Lettere al Nuovo Cimento*, **17**, 1976, 333–338.
- [6] ARIMONDO E., “Coherent population trapping in laser spectroscopy”, *Progress in Optics*, **XXXV**, 1996, 257–353.
- [7] ZANON T., GUÉRANDEL S., de CLERCQ E., HOLLEVILLE D., DIMARCQ N. et CLAIRON A., “High contrast Ramsey fringes with coherent population trapping pulses in a double lambda atomic system”, *Phys. Rev. Lett.*, **94**, 2005, 193002.
- [8] BAILLARD X., GAUGUET A., BIZE S., LEMONDE P., LAURENT Ph., CLAIRON A. et ROSENBUSCH P., “Interference-filter-stabilized external-cavity diode lasers”, *Opt. Comm.*, **266**, 2006, 609–613.
- [9] BOUDOT R., GUÉRANDEL S. et de CLERCQ E., “Simple-Design low-noise NLTL-based frequency synthesizers for a CPT Cs Clock”, *IEEE Trans. Instrum. Meas.*, **58**, 2009, 36859–3665.
- [10] PITZ G., WERTEPNY D. et PERRAM G., “Pressure broadening and shift of the Cs D1 transition by the noble gases and N₂, H₂, H_D, CH₄, C₂H₆, CF₄ and ³He”, *Phys. Rev. A*, **80**, 2009, 062718.
- [11] KOZLOVA O., BOUDOT R., GUÉRANDEL S. et de CLERCQ E., “Temperature dependence cancellation of the Cs clock frequency in the presence of Ne buffer gas”, *IEEE Trans. Instr. Meas.*, **60**, 2011, 2262.
- [12] KOZLOVA O., GUÉRANDEL S. et de CLERCQ E., “Temperature and pressure shift of the Cs clock transition in presence of buffer-gases: Ne, N₂, Ar”, *Phys. Rev. A*, **83**, 2011, 062714.
- [13] KOZLOVA O., « 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 (physique), *Université Pierre et Marie Curie*, Paris, 16 janvier 2012.
- [14] CASTAGNA N., BOUDOT R., GUÉRANDEL S., de CLERCQ E., DIMARCQ N. et CLAIRON A., “Investigations on Continuous and Pulsed Interrogation for a CPT Atomic Clock”, *IEEE Ultr. Ferr. Freq. Cont.*, **56**, 2009, 246–253.
- [15] VANIER J., GODONE A. et LEVI F., “Coherent population trapping in cesium: Dark lines and coherent microwave emission”, *Phys. Rev. A*, **58**, 1998, 2345.
- [16] ZANON T., de CLERCQ E. et ARIMONDO E., “Ultra-high resolution spectroscopy with atomic or molecular dark resonances: exact steady-state line shapes and asymptotic profiles in the pulsed adiabatic regime”, *Phys. Rev. A*, **84**, 2011, 062502.
- [17] SANTARELLI G., AUDOIN C., MAKDISSI A., LAURENT P., DICK G. et CLAIRON A., “Frequency stability degradation of an oscillator slaved to a periodically interrogated atomic resonator”, *IEEE UFFC*, **45**, 1998, 887.
- [18] SORTAIS Y., « Construction d’une fontaine double à atomes froids de ⁸⁷Rb et ¹³³Cs ; étude des effets dépendant du nombre d’atomes dans une fontaine », Thèse de doctorat (physique quantique), *Université Pierre et Marie Curie*, Paris, 20 décembre 2001.
- [19] ESNAULT F.-X., « Étude des performances ultimes d’une horloge compacte à atomes froids : optimisation de la stabilité court terme », Thèse de doctorat (physique), *Université Pierre et Marie Curie*, Paris, 11 mars 2009.

Article reçu le 13 décembre 2012, version révisée reçue le 1^{er} juillet 2013.