



HAL
open science

Des atomes chargés et des photons : quelques phénomènes observables en piège radiofréquence

Caroline Champenois

► **To cite this version:**

Caroline Champenois. Des atomes chargés et des photons : quelques phénomènes observables en piège radiofréquence. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université de Provence - Aix-Marseille I, 2010. tel-00516641

HAL Id: tel-00516641

<https://theses.hal.science/tel-00516641>

Submitted on 10 Sep 2010

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.

Université de Provence – Aix-Marseille I

MÉMOIRE

présenté en vue de l'obtention de

l'Habilitation à diriger des recherches

par

CAROLINE CHAMPENOIS

Des atomes chargés et des photons : quelques phénomènes observables en piège radiofréquence.

le 22 juin 2010, devant la commission d'examen composée de

M. Rainer Blatt	Rapporteur
Mme Annette Calisti	Examineur
M. Jean Dalibard	Rapporteur
M. Richard Thompson	Examineur
Mme. Fernande Vedel	Examineur
M. Frédéric Zolla	Rapporteur

Remerciements

Dix ans se sont passés depuis mon arrivée au laboratoire PIIM et mes premiers remerciements vont à Fernande Vedel qui m'a chaleureusement accueillie dans l'équipe Confinements d'Ions et Manipulation Laser en février 2000. Grâce à elle et à Marie Houssin, Martina Knoop et Michel Vedel, j'ai très vite trouvé ma place au sein de l'équipe. Je les remercie tous de m'avoir fait confiance. Mon arrivée au laboratoire PIIM ne se serait pas si bien passée sans l'aide de Jacques Vigué qui a passé outre quelques contraintes administratives pour faciliter mon installation à Marseille, à la fin de ma thèse sous sa direction à Toulouse. Je le remercie pour ce soutien et l'attention permanente qu'il a porté et porte encore à mes travaux. Beaucoup de personnes ont investi du temps et de l'énergie pour pérenniser ma situation professionnelle, en premier lieu Fernande Vedel, mais aussi Bernard Coupet et Gilbert Albinet, alors chacun directeur d'une UFR de l'université de Provence, et que je ne saurais oublier de remercier après dix ans passés au sein de cette université. Pendant ces dix années, j'ai eu le plaisir de travailler avec de nombreuses personnes. J'aimerais citer tout d'abord celles qui ont rejoint l'équipe depuis mon arrivée, Gaétan Hagel, Jofre Pedregosa et Olivier Morizot et celles qui partagent leur savoir-faire entre différentes équipes, Didier Guyomarc'h, Vincent Long et la petite dernière Émeline Bizri. Je n'oublierais pas celles et ceux qui rendent notre vie de chercheur plus facile en prenant en charge efficacement beaucoup de tâches administratives, en tête dans cette catégorie, Hulya Kirmaci qui a su dompter les multiples logiciels de gestion que nos tutelles respectives nous imposent. Qu'ils soient tous remerciés des échanges fructueux que nous avons ensemble, et de la joie que j'ai à travailler en équipe. Nous avons eu le plaisir d'accueillir, au sein du groupe, plusieurs doctorants à qui nous avons tenté de transmettre nos savoir et savoir-faire. Parmi eux j'aimerais particulièrement remercier Caroline Lisowski, Cédric Zumsteg et Mathieu Marcianté pour leurs nombreuses questions et les discussions intéressantes qui en ont suivi. Je voudrais adresser une mention spéciale à Mathieu qui, avec l'aide d'Annette Calisti, nous a permis d'accéder à la dynamique des systèmes coulombiens en piège rf. Ces études ont vraiment étendu notre domaine d'investigation et la perspective de les coupler aux résultats de l'expérience en construction est très motivante.

D'autres collaborations fructueuses m'ont donné la satisfaction de travailler avec des collègues d'horizons différents, qu'ils soient thématiques ou géographiques, et j'aimerais profiter de ces quelques lignes pour remercier sincèrement Yves Elskens, Dominique Escande et Florent Calvo pour leur contribution à TADOTI^a, Giovanna Morigi, Juergen Eschner, Michael Drewsen et Masatoshi Kajita pour nos travaux communs sur l'interaction laser(s)-ion(s), Ferdinand Schmidt-Kaler et Pierre Dubé pour nos quelques jours de manip ensemble et enfin Brian Odom pour ses sempiternelles questions qui font beaucoup réfléchir.

Depuis mon installation à Marseille, j'ai toujours trouvé auprès de Jean Dalibard l'aide

^aAcronyme choisi pour notre projet d'étude de la thermodynamique et dynamique des ions piégés

dont j'avais besoin pour répondre à mes questions. Je suis honorée par sa présence dans le jury en tant que rapporteur et je voudrais profiter de cette occasion pour lui exprimer ma gratitude. Il m'est très réconfortant de le savoir prêt à partager méthodes, pistes et références quand je suis coincée entre un atome et des photons. En rejoignant l'équipe CIML j'ai aussi rejoint la famille des trappeurs d'ions. Cette famille a ses grandes figures et je suis honorée par la présence de deux d'entre elles dans le jury, Rainer Blatt et Richard Thompson. Qu'ils soient ici tous les deux remerciés d'avoir accepté d'associer leur nom au mien à l'occasion de cette habilitation à diriger des recherches. Une mention spéciale revient à Rainer Blatt qui a porté à ma connaissance quelques références que j'ignorais et a accepté de rédiger un rapport sur mon mémoire, bien qu'écrit en français. Frédéric Zolla a lui aussi endossé cette tâche même si son domaine de prédilection est assez éloigné des ions piégés. J'espère que l'organisation des ions froids dans des potentiels de formes variées l'ont assez amusé pour lui faire avaler les interactions laser à trois photons! Merci Frédéric d'avoir joué le jeu. Enfin, merci à Annette Calisti d'avoir rejoint ce jury, j'espère que notre collaboration continuera à porter ses fruits.

Depuis deux ans, Martina Knoop a pris la relève de Fernande Vedel et assure la direction de l'équipe avec autant de brio. Je tiens ici à lui exprimer ma gratitude pour la vie d'équipe qu'elle a su maintenir, pour les tracasseries administratives qu'elle nous épargne, pour l'œil vigilant qu'elle garde sur les comptes et le calendrier et pour sa prise en compte de nos objections et suggestions quand une décision collective s'impose, ce qui est souvent la règle dans l'équipe. Encore merci, "les cOochooons dans l'Espace" ne sont pas au bout de leurs aventures!

La vie trépidante de chercheuse maman et de maman chercheuse ne se mène pas sans quelques soucis d'organisation et ces remerciements sont l'occasion de dire ma gratitude à mon conjoint Jean-Yves pour notre partage harmonieux des tâches familiales, qui nous permet à tous les deux de mener notre vie professionnelle au mieux. Merci à mes enfants Simon et Lise pour leur intérêt pour mon travail et leur patience quand j'oublie leurs petites affaires. Et enfin merci à tatie Jackie, tatie Sylvie, Patou, Éliane et surtout Monique pour avoir veillé et veiller encore sur Simon et Lise quand ils étaient bébés, quand ils sont malades, quand ils sortent de l'école et maintenant quand ils rentrent du collège. Notre confiance réciproque me permet de travailler sereinement et de partir au bout du monde sans m'inquiéter.

Je ne remercie pas l'AERES et autre entreprise à auto-critique et formatage qui consomment de façon pantagruélique, et à perte, notre temps et notre inventivité. Mais cessons là avant que je ne devienne désagréable...

Sommaire

I	Introduction	1
II	Interaction laser-ion piégé et rôle du mouvement de l'ion	5
II.1	Confiner des particules chargées avec des champs oscillants	5
II.1.1	L'approximation adiabatique	5
II.1.2	Choisir une géométrie, le quadrupole comme générateur de pseudopotentiel harmonique	7
II.1.3	Au delà de l'approximation adiabatique, " <i>Characterization of a miniature Paul-Straubel trap</i> "	9
II.2	Interaction entre un ion en piège quadripolaire et un faisceau laser	19
II.2.1	Traitement classique du mouvement	19
II.2.2	Description quantique du mouvement et régime de Lamb-Dicke	25
II.2.3	Détection de l'état interne d'un ion unique de calcium, " <i>Metastable level lifetimes from electron-shelving measurements with ion clouds and single ions</i> "	29
II.2.4	Contraintes pour la métrologie optique avec un ion unique, " <i>Evaluation of the ultimate performances of a Ca⁺ single-ion frequency standard</i> "	40
II.3	Refroidissement laser d'ions piégés	57
II.3.1	Refroidissement Doppler	57
II.3.2	Refroidissement sous la limite Doppler sans résoudre les bandes latérales, " <i>Two-step Doppler cooling of a three-level ladder system with an intermediate metastable level</i> "	59
II.3.3	Démonstration expérimentale : " <i>Doppler cooling of calcium ions using a dipole-forbidden optical transition</i> "	68
III	Processus cohérents avec des ions piégés : le mouvement en plus	75
III.1	Processus cohérents à deux photons	75
III.1.1	Piégeage cohérent de population	75
III.1.2	Influence du mouvement sur le piégeage cohérent de population, " <i>Dark resonances as a probe for the motional state of a single ion</i> "	78
III.2	Processus cohérents à trois photons	89
III.2.1	Une résonance noire comme référence de fréquence, " <i>Terahertz frequency standard based on three-photon coherent population trapping</i> "	90
III.2.2	Piégeage cohérent de population : " <i>Quantum coherence and three-photon resonances in a single trapped atom</i> "	96
IV	Dynamique et thermodynamique de nuages refroidis par laser	109
IV.1	Lois d'échelle d'un nuage dense en piège linéaire	110
IV.1.1	<i>Tutorial: "About the dynamics and thermodynamics of trapped ions"</i>	111
IV.1.2	Conception d'une expérience : choix des paramètres dimensionnants	122
IV.1.3	Théorème du Viriel et répartition des énergies potentielles	129
IV.1.4	Étude des lois d'échelle en masse	131
IV.2	Structures d'équilibre d'un petit nombre d'ions refroidis	132

IV.2.1	Le refroidissement laser Doppler dans les simulations de dynamique moléculaire .	132
IV.2.2	Structure annulaire de quelques ions en multipole: " <i>Ion ring in a linear multipole trap for optical frequency metrology</i> "	134
IV.3	Un outil indispensable à la réalisation de larges échantillons : la photonionisation . .	144
IV.3.1	Taux de photo-ionisation à deux photons	145
IV.3.2	Réalisation d'un jet atomique adapté au piège	146
V	Conclusions et perspectives	149
	Références	153
	Curriculum Vitæ	i

Chapitre premier

INTRODUCTION

Bien que l'idée même de l'existence d'atomes soit apparue très tôt chez les anciens grâce à Leucippe de Milet, Démocrite, puis Epicure et Lucrèce, il a fallu attendre 1980 pour qu'un dispositif expérimental permette l'observation d'un atome unique et sa mise à disposition pour des expériences¹. Cette prouesse a été rendue possible par la conjonction de l'invention du piège de Paul et de la mise au point d'une technique de refroidissement laser. Le piège de Paul² permet de confiner des particules chargées pendant des temps très longs et le refroidissement laser permet, entre autres, de réduire suffisamment l'étendue de la trajectoire d'un ion dans un tel piège pour le garder résonnant avec le laser.

Le piège de Paul, conçu comme une variante d'un spectromètre de masse, utilise le mouvement forcé d'une charge dans un champ électrique oscillant (plus précisément radiofréquence), dont l'amplitude augmente à partir du centre du piège dans les trois directions de l'espace. Le premier piège radiofréquence (rf) a fonctionné en 1954 et son fonctionnement a été décrit et rapporté par Wolfgang Paul en 1956 sous le terme de *Ionenkäfig*, ou cage à ions. Selon sa taille, un tel piège peut confiner de un à plusieurs milliers d'ions de façon routinière.

Le refroidissement laser, qui exploite l'échange de quantité de mouvement entre un atome et le champ électromagnétique par la pression de radiation a été proposé en 1975 par Hänsch et Schalow³ pour des particules libres et par Wineland et Dehmelt⁴ pour des particules piégées. Les premiers atomes refroidis par laser en 1978 étaient des ions piégés, des ions de Mg^+ en piège de Penning^a par Wineland *et al.*⁵ suivis par des ions de Ba^+ en piège de Paul par Neuhauser *et al.*⁶. Deux ans suffirent pour parvenir à l'observation d'un ion unique par Neuhauser *et al.* en 1980¹. Ces réussites furent suivies par d'impressionnants progrès dans la technologie des pièges et dans le contrôle des degrés internes et externes de liberté des ions piégés, faisant des pièges radiofréquences un outil de choix pour la spectroscopie de haute résolution et qui conduit Wolfgang Paul et Hans Dehmelt à recevoir le prix Nobel de physique en 1989 "Pour le développement de la technique du piègeage d'ions". Les progrès réalisés depuis les années 1980 se concrétisent aujourd'hui par des protocoles d'information quantique impliquant 8 qubits^{7,8} et des horloges atomiques d'incertitude atteignant⁹ les 10^{-18} .

Appliqué à de larges échantillons d'ions, le refroidissement laser permet aussi d'atteindre des régimes de densité et de température pour lesquels se produisent des transitions de phase gaz/liquide et liquide/cristal, différentes formes de cristaux de Coulomb pouvant être observés en fonction du nombre d'ions et du profil du potentiel de confinement. Les expériences sur des larges échantillons ne peuvent conduire au même degré de contrôle que celui atteint pour un

^aces pièges ont la même géométrie que les pièges de Paul mais le champ électrique oscillant y est remplacé par un champ magnétique statique

ion unique ou une chaîne d'ions mais elles permettent des études concernant de façon générale les phénomènes collectifs dans les systèmes subissant des forces internes à longue portée. Des ions piégés froids peuvent servir de système modèle pour ces études, la versatilité du dispositif expérimental permettant de faire varier la température et le nombre d'ions piégés sur plusieurs ordres de grandeur. Le refroidissement laser a pour l'instant été utilisé principalement dans des pièges quadripolaires, sur des systèmes de taille inférieure à 10^5 ions. Par ailleurs, les pièges linéaires multipolaires^b sont exploités en chimie-physique pour étudier les collisions froides, confinant jusqu'à quelques milliers d'ions refroidis par collisions avec un gaz tampon¹⁰. Le refroidissement laser en multipoles linéaires n'a pour l'instant été réalisé que dans les expériences de K. Okada et collaborateurs^{11,12} sur des échantillons de taille inférieure à 10^4 ions. Des études antérieures¹³ réalisées dans un octupole 3D ont permis, par ailleurs, d'étudier les profils de densité à l'intérieur du piège, par une résolution spatiale de la fluorescence du nuage.

Le mémoire présenté ici reprend une partie de ma contribution aux travaux de l'équipe Confinement d'Ions et Manipulation Laser du laboratoire PIIM, que j'ai rejoint en 2000. Cette équipe inscrit ses recherches autour du confinement d'ions en piège de Paul et de leur interaction avec des lasers. Le projet historique de l'équipe porte sur l'utilisation d'un ion unique de calcium refroidi par laser pour la métrologie des fréquences optiques. L'aboutissement de ce projet implique de relever de nombreux défis techniques concernant la stabilisation en fréquences des lasers et leur utilisation pour le contrôle de l'état interne et externe d'un ion. C'est plutôt à cette deuxième facette que mon travail s'adresse, autour du contrôle de l'état quantique d'un ion unique piégé, par des protocoles à un, deux ou trois photons, cohérents ou non. Par ailleurs, un nouveau projet expérimental est en préparation depuis plus d'un an et concerne le confinement de grands échantillons, refroidis par laser. L'originalité du projet repose sur l'utilisation d'un piège linéaire double, comportant une partie quadripolaire et une partie multipolaire. Cette dualité permettra de comparer le comportement collectif d'un ensemble d'ions, comme les transitions de phase, en fonction du profil du potentiel de confinement. De plus, la mise en série des deux pièges de symétrie différente permet aussi de tester des protocoles de transport optimal pour transférer les ions d'un piège à l'autre, avec un minimum de chauffage.

Ce rapport est organisé comme suit. Sont présentés dans un premier temps les résultats originaux concernant le refroidissement laser d'ions piégés et les performances attendues pour une horloge optique basée sur un ion unique de calcium. Différentes méthodes numériques utilisées pour prendre en compte le mouvement des ions dans leur interaction avec un ou des lasers y sont introduites. Le chapitre suivant est consacré à des phénomènes cohérents à deux et trois photons et à la perte de cohérence induite par le mouvement des ions. L'influence du mouvement sur la cohérence de l'état interne construit par l'interaction avec deux lasers permet de proposer une méthode originale pour caractériser le mouvement d'un ion unique. Un phénomène de piégeage cohérent de population observable dans l'ion calcium est démontré et son exploitation pour un étalon de fréquence THz est proposée. Dans le dernier chapitre sont abordées les problématiques liées au confinement de larges échantillons (pouvant atteindre 10^7 ions) et leur couplage avec des lasers. Les lois d'échelles régissant l'équilibre thermodynamique et la dynamique de grands nuages sont analysées, en vue de la conception d'une nouvelle expérience, dédiée à l'étude des phénomènes collectifs dans de larges échantillons refroidis. Un modèle de champ moyen, dit

^bDans ce manuscrit, je nomme multipole un piège rf linéaire qui comporte au moins 6 barreaux, par opposition au quadropole.

plasma non neutre est utilisé pour déduire le comportement d'un nuage à l'équilibre thermodynamique et son profil de densité. Dans la limite d'un petit nombre d'ions piégés, les simulations par dynamique moléculaire nous permettent d'étudier le refroidissement des ions et leur organisation à basse température. Ceci nous permet de proposer l'exploitation de la structure en anneau formée par quelques dizaines d'ions en multipole, pour un étalon de fréquence optique d'un nouveau type. Chaque chapitre comporte une introduction générale au sujet abordé et reprend, en les commentant, les articles publiés concernant ce sujet, quand ceux-ci concernent des travaux personnels. Ce mémoire s'achève en abordant des perspectives sur les travaux à mener dans les prochaines années.

Chapitre II

INTERACTION LASER-ION PIÉGÉ ET RÔLE DU MOUVEMENT DE L'ION

Ce chapitre concerne principalement l'interaction entre un laser et un ion en piège radiofréquence quadripolaire et pour comprendre les spectres observés ainsi que le rôle et les limitations du refroidissement laser, il est important de rappeler quelques propriétés essentielles du mouvement de l'ion dans le piège. C'est le but de la première partie de ce chapitre. Une analyse plus complète de ce mouvement peut être trouvée dans des livres^{14,15} et nous nous bornerons ici à rappeler les notions nécessaires à la compréhension de l'interaction laser-ion piégé. Les particularités de cette interaction par rapport au cas des atomes libres résident dans le caractère périodique du mouvement. Plusieurs formalismes permettant de prendre en compte le mouvement de l'ion lors de son interaction avec un ou des lasers sont présentés dans la deuxième partie du chapitre. Cette partie contient aussi les études concernant l'excitation sur une transition très peu probable de l'ion calcium, choisie comme transition d'horloge pour un potentiel étalon de fréquence optique. La dernière partie de ce chapitre est dédiée au refroidissement laser Doppler des ions piégés et contient une méthode originale de refroidissement Doppler à deux photons-deux couleurs.

II.1 Confiner des particules chargées avec des champs oscillants

II.1.1 L'approximation adiabatique

La loi de Laplace régissant le potentiel électrique dans un espace vide de charge ($\Delta V = 0$), interdit le confinement d'une particule chargée seulement par des champs statiques. Par exemple, un jeu d'électrodes et de potentiels capables de créer un potentiel harmonique confinant dans le plan (x, y) aura forcément un effet déconfinant dans la direction z :

$$\Phi(x, y, z) = A(x^2 + y^2 - 2z^2).$$

L'idée de W. Paul est donc d'utiliser un potentiel oscillant :

$$\Phi_{rf}(x, y, z, t) = A(x^2 + y^2 - 2z^2) \cos(\Omega t). \quad (\text{II.1})$$

De façon générale, le potentiel appliqué est la somme d'une contribution oscillante (plus précisément radiofréquence-rf) et d'une contribution statique :

$$\Phi(\mathbf{r}, t) = \Phi_{rf}(\mathbf{r}, t) + \Phi_s(\mathbf{r}), \quad (\text{II.2})$$

6 II.1 Confiner des particules chargées avec des champs oscillants

mais pour comprendre le mouvement d'un ion (masse m , charge q) à l'intérieur d'un tel potentiel, supposons tout d'abord qu'il n'y a pas de potentiel statique ($\Phi_s(\mathbf{r}) = 0$). Si le champ électrique oscillant $\mathbf{E}_0(\mathbf{r}) \cos(\Omega t)$ est uniforme ($\mathbf{E}_0(\mathbf{r}) = \mathbf{E}_0$), le mouvement de la particule se réduit à un simple mouvement forcé à la pulsation Ω et d'amplitude \mathbf{a} :

$$\mathbf{r}(t) = -\frac{q\mathbf{E}_0}{m\Omega^2} \cos(\Omega t) = -\mathbf{a} \cos(\Omega t). \quad (\text{II.3})$$

Mais si $\mathbf{E}_0(\mathbf{r})$ n'est pas uniforme, le mouvement peut être interprété comme la somme d'un mouvement lent induit par l'enveloppe de l'amplitude du champ rf et appelé *macro-mouvement* et du mouvement forcé par la rf, appelé *micro-mouvement*, dont l'amplitude $\mathbf{a}(\mathbf{r}, t)$ dépend du champ rf local .

$$\mathbf{r}(t) = \underbrace{\mathbf{R}_0(t)}_{\text{macro}} + \underbrace{\mathbf{R}_1(t)}_{-\mathbf{a}(\mathbf{r}, t) \cos(\Omega t)} \quad (\text{II.4})$$

Le champ électrique local régissant les équations du mouvement peut être écrit sous la forme d'un développement spatial

$$\mathbf{E}_0(\mathbf{r}(t)) = \mathbf{E}_0(\mathbf{R}_0) - (\mathbf{a} \cdot \nabla) \mathbf{E}_0(\mathbf{R}_0) \cos(\Omega t) + \dots \quad (\text{II.5})$$

Une solution simple à ce problème peut être obtenue en faisant deux approximations :

- le développement au premier ordre de \mathbf{E}_0 autour de \mathbf{R}_0 .
- **l'approximation adiabatique** qui suppose que : *le temps typique d'évolution de \mathbf{a} et $\dot{\mathbf{R}}_0$ est bien plus long qu'une période rf.*

En remplaçant $\mathbf{a}(\mathbf{r}, t)$ par $\mathbf{a}(\mathbf{R}_0(t))$ on montre facilement que

$$m\ddot{\mathbf{R}}_0 = -\frac{q^2}{4m\Omega^2} \mathbf{grad}(E_0^2). \quad (\text{II.6})$$

Cette équation montre qu'en ce qui concerne le macro-mouvement $\mathbf{R}_0(t)$ tout se passe comme si la particule était piégée dans un potentiel statique^{16,17}, appelé **pseudopotentiel** :

$$V^*(\mathbf{r}) = \frac{q^2 E_0^2(\mathbf{r})}{4m\Omega^2}. \quad (\text{II.7})$$

Si on réintroduit le potentiel statique $\Phi_s(\mathbf{r})$, selon le principe de superposition, le macro-mouvement est régi par un potentiel effectif

$$V_{eff}^*(\mathbf{r}) = \frac{q^2 E_0^2(\mathbf{r})}{4m\Omega^2} + q\Phi_s(\mathbf{r}). \quad (\text{II.8})$$

Le mouvement forcé par la rf se déduit du macro-mouvement \mathbf{R}_0 par

$$\mathbf{R}_1(t) = -\frac{q\mathbf{E}_0(\mathbf{R}_0)}{m\Omega^2} \cos(\Omega t). \quad (\text{II.9})$$

Le potentiel $V^*(\mathbf{r})$ mène effectivement à un piégeage si $E_0^2(\mathbf{r})$ augmente avec r (mais ce n'est pas suffisant). Ainsi, le plus loin se trouve l'ion du centre du piège, la plus large est l'amplitude du micro-mouvement.

II.1.2 Choisir une géométrie, le quadrupole comme générateur de pseudopotentiel harmonique

Revenons à notre motivation principale : un potentiel confinant dans les trois directions de l'espace pour une particule chargée. Nous savons maintenant qu'il faut faire un détour par un champ rf et s'assurer que $E_0^2(\mathbf{r})$ se comporte comme (x^2, y^2, z^2) si on veut un profil harmonique dans ces trois directions. Ceci est réalisable si

$$\Phi_{rf}(\mathbf{r}, t) = -(\alpha x^2 + \beta y^2 + \gamma z^2) \cos(\Omega t). \quad (\text{II.10})$$

avec $\alpha + \beta + \gamma = 0$. En pratique, deux géométries sont utilisées; un piège 3D de symétrie cylindrique où $\alpha = \beta = -\gamma/2$ et un piège 2D de symétrie de translation où $\alpha = -\beta, \gamma = 0$ et où un potentiel statique est nécessaire au confinement le long de l'axe de symétrie Oz (voir figure II.1 pour les lignes d'équipotentiels de ces deux configurations).

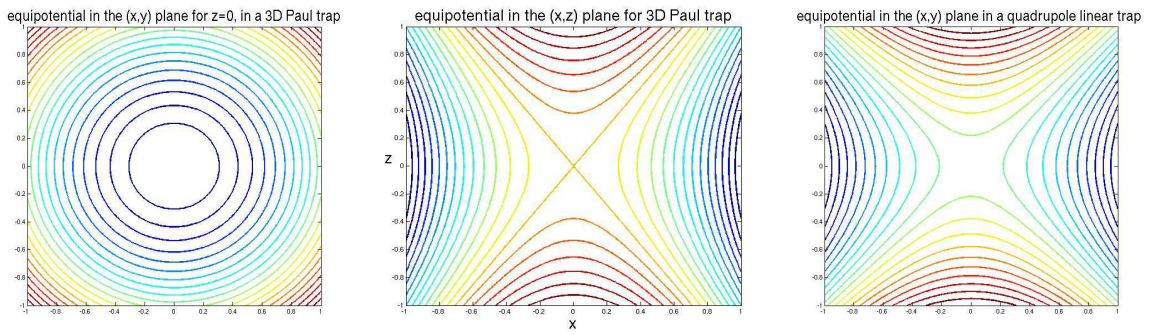


Figure II.1 : À gauche, lignes équipotentiels dans le plan $x - y$ dans un piège 3D idéal (axe de symétrie: Oz). Au centre, lignes équipotentiels dans le plan $x - z$ pour le même piège. À droite, lignes équipotentiels dans le plan $x - y$ pour un piège linéaire idéal.

Nous allons dans la suite plutôt envisager le cas 3D car c'est celui qui correspond aux expériences menées au sein du groupe et qu'il est aisé d'extrapoler les propriétés suivantes au cas 2D. En 3D, la géométrie de piège typique est constituée d'un anneau et de deux chapeaux. Avec des différences de potentiel statique V_s et rf $V_0 \cos(\Omega t)$ appliquées entre l'anneau et les chapeaux, le potentiel créé entre les électrodes peut être décrit par

$$\Phi(\mathbf{r}, t) = (V_0 \cos(\Omega t) + V_s) \frac{x^2 + y^2 - 2z^2}{2r_0^2}. \quad (\text{II.11})$$

à condition que la distance entre les deux chapeaux $2z_0$ soit égale à $\sqrt{2}r_0$ où r_0 est le rayon interne de l'anneau² (voir figure II.2). Une telle répartition du potentiel peut être atteinte si les surfaces des électrodes correspondent exactement aux surfaces équipotentiels qui sont ici des hyperboloïdes de révolution ($x^2 - 2z^2 = \text{constante}$)(voir figure II.2).

Même si le piège est idéalement fabriqué, le potentiel ne sera jamais comme représenté par l'équation (II.11), tout simplement parce qu'il est de taille finie. Depuis les années 1980, plusieurs expériences utilisent des pièges miniatures (voir figure II.2, à droite), voire aujourd'hui

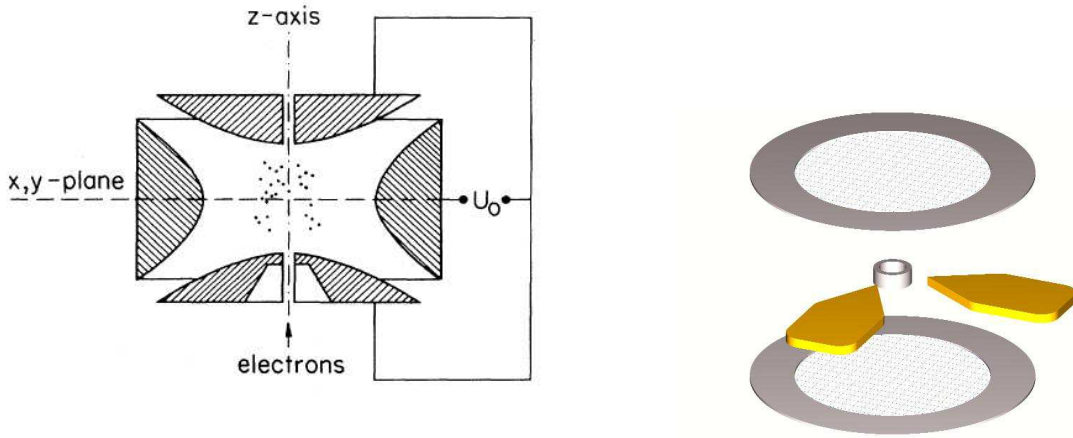


Figure II.2 : À gauche, un piège de Paul tel qu'il est présenté dans sa leçon donnée à l'occasion du prix Nobel par W. Paul, $2r_0$ est le plus petit diamètre interne de l'anneau. Pour une géométrie idéale, la hauteur $2z_0$ entre les chapeaux doit être égale à $\sqrt{2}r_0$. À droite, un exemple de piège miniature, le piège P1 de Marseille, de diamètre intérieur de 1.4 mm.

des micro-pièges, qui n'obéissent pas à la géométrie parfaite imposée par l'équation (II.11). En augmentant la distance au centre du piège, des termes d'ordre supérieur deviennent non négligeables. Ceci n'est pas anodin quand des grands échantillons d'ions doivent être confinés et que des zones loin du centre sont visitées par les ions, alors que dans le cas d'ions uniques ou de chaînes d'ions en piège linéaire ces termes d'ordre supérieur peuvent être oubliés sans risque.

Ainsi, dans la suite, nous supposons que l'équation (II.11) est une bonne représentation du potentiel vu par un ion unique ou les quelques ions confinés au centre. Cette approximation est d'autant plus pertinente que le refroidissement laser réduit énormément l'amplitude d'oscillation des ions dans le piège. Dans l'approximation adiabatique, le potentiel effectif est donc

$$V_{eff}^*(\mathbf{r}) = \frac{q^2 V_0^2}{4m\Omega^2 r_0^4} (x^2 + y^2 + 4z^2) + \frac{qV_s}{2r_0^2} (x^2 + y^2 - 2z^2), \quad (\text{II.12})$$

où la convention utilisée est celle d'une différence de potentiel entre anneau et chapeaux de $U_0 = V_0 \cos(\Omega t) + V_s$.

À l'intérieur de ce potentiel harmonique, le mouvement d'un ion peut être décrit par deux fréquences (une pour le plan (x, y) et une pour l'axe z). Pour exprimer la dépendance de ces fréquences avec les paramètres de piégeage, il est utile d'introduire des paramètres qui seront pleinement justifiés plus loin :

$$\begin{aligned} q_x = q_y &= -\frac{2qV_0}{m\Omega^2 r_0^2} ; & q_z &= +\frac{4qV_0}{m\Omega^2 r_0^2} \\ a_x = a_y &= +\frac{4qV_s}{m\Omega^2 r_0^2} ; & a_z &= -\frac{8qV_s}{m\Omega^2 r_0^2}. \end{aligned} \quad (\text{II.13})$$

Les fréquences du mouvement sont alors¹⁸

$$\omega_{x,y} = \frac{\Omega}{2} \sqrt{a_{x,y} + q_{x,y}^2/2} \quad ; \quad \omega_z = \frac{\Omega}{2} \sqrt{a_z + q_z^2/2}. \quad (\text{II.14})$$

Dans la suite logique de notre décomposition du mouvement en macro- et micro-mouvement, l'équation du mouvement d'un ion sur un des axes propres du piège est alors

$$x(t) = X \cos(\omega_x t + \phi_x) \left(1 + \frac{q_x}{2} \cos(\Omega t) \right), \quad (\text{II.15})$$

et de même pour les deux autres directions de l'espace.

II.1.3 Au delà de l'approximation adiabatique, caractérisation d'un piège miniature

Dans le cas particulier de la géométrie quadripolaire, (où le pseudopotentiel est harmonique), les équations du mouvement *pour un ion unique* peuvent être résolues analytiquement, sans approximation sur les temps typiques d'évolution. Dans un potentiel décrit par (II.11), les équations différentielles contrôlant les différentes coordonnées spatiales sont linéaires et non-couplées (ce qui ne sera plus vrai pour des géométries d'ordre supérieur). Chaque coordonnée peut donc être étudiée indépendamment et obéit à une équation de la forme

$$\ddot{x} = -\frac{qx}{mr_0^2} (V_0 \cos \Omega t + V_s). \quad (\text{II.16})$$

L'introduction d'une variable de temps réduite $\xi = \Omega t/2$ conduit à l'équation bien connue de Mathieu

$$\frac{d^2 x}{d\xi^2} + (a_x - 2q_x \cos(2\xi))x(\xi) = 0 \quad (\text{II.17})$$

qui appartient à la famille des équations différentielles à coefficients périodiques. Les solutions de cette équation se trouvent dans de nombreux livres de calculs et nous ne rappelons ici que les points pertinents pour la suite de l'exposé :

- les solutions sont de la forme

$$x(t) = A e^{i\omega_x t} \sum_n C_{2n} e^{in\Omega t} + B e^{-i\omega_x t} \sum_n C_{2n} e^{-in\Omega t} \quad (\text{II.18})$$

avec $\omega_x = \beta_x \Omega/2$, β_x ne dépendant que des a_x et q_x introduits par les équations (II.13).

- ces solutions sont stables si $0 \leq \beta_i \leq 1$. Cette condition définit des zones dans les plans (a_x, q_x) et (a_z, q_z) : les zones de stabilité. En pratique, les pièges rf fonctionnent dans la zone de stabilité la plus basse, celle incluant le point (0,0) (voir figure II.3).

Les solutions de l'équation de Mathieu peuvent être développées à l'ordre le plus bas. Ce développement est pertinent si $(|a_x|, q_x^2) \ll 1$ et donc $\beta_x \ll 1$. Dans ce cas limite,

$$\beta_x \simeq \sqrt{a_x + \frac{q_x^2}{2}} \quad (\text{II.19})$$

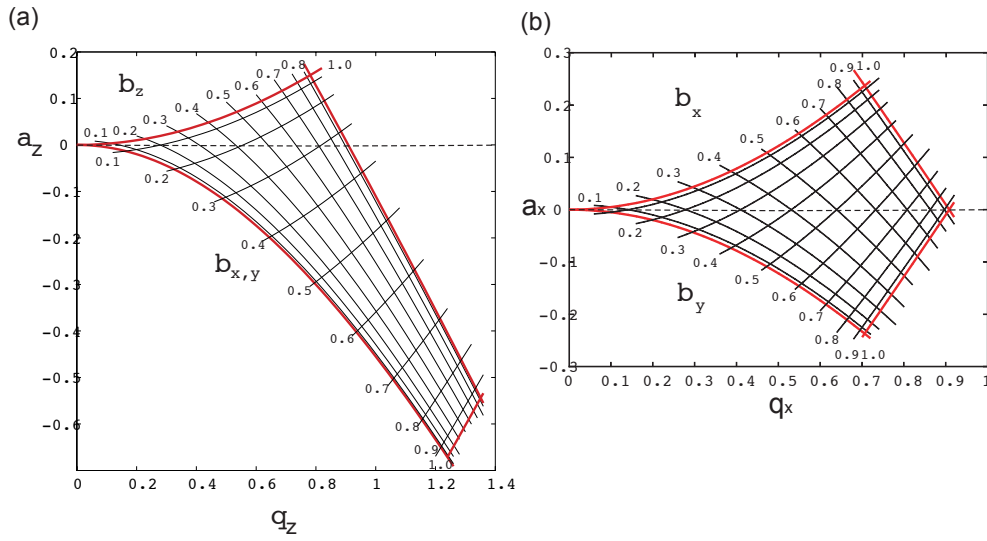


Figure II.3 : Diagramme de stabilité (zone hachurée) de l'équation de Mathieu utilisé pour les pièges rf, (a): piège de Paul 3D, (b): piège linéaire. Les lignes noires représentent des iso- β , notées $b_{x,y}$ et b_z . (Figure aimablement fournie par R. Blatt).

et

$$x(t) = X \cos(\omega_x t) \left(1 + \frac{q_x}{2} \cos \Omega t \right). \quad (\text{II.20})$$

Cette équation est exactement celle obtenue dans le cadre de l'approximation adiabatique en (II.15) et un aperçu en est donné sur la figure II.4. Pour un piège de Paul idéal, $a_z = -2a_{x,y}$ et $q_z = -2q_{x,y}$. Ceci impliquerait par exemple que $\omega_z = 2\omega_x$ pour $V_s = 0$.

Dans la pratique, il règne dans le piège des champs statiques qui n'ont pas la géométrie quadripolaire et qui sont dus par exemple à des déphasages entre les potentiels rf des électrodes ou à des potentiels de contact entre différents métaux, par exemple le calcium lui-même qui est vaporisé lors de la création des ions et qui se dépose sur les électrodes. L'effet de ces champs est de déplacer le minimum du potentiel effectif confinant l'ion¹⁹. La conséquence est la non superposition de ce minimum de potentiel avec le point de champ rf nul, donnant lieu à un mouvement forcé excédentaire par rapport au cas idéal. L'allure d'une telle trajectoire est donnée dans la figure II.4 (figure de droite). La réduction de ce déplacement est nécessaire à toute expérience de haute résolution car le mouvement forcé ne peut être réduit par refroidissement laser et l'effet Doppler qu'il introduit peut être fatal à l'expérience envisagée.

Indépendamment de cet effet, on a déjà mentionné plus haut qu'un piège produira une distribution quadripolaire de potentiel décrite par l'Eq. (II.11) uniquement au centre du piège. Les écarts à la géométrie idéale entraînent une réduction de l'efficacité de piégeage et des termes d'ordres supérieurs dans le potentiel créé. Ces termes induisent des résonances non-linéaires entre les mouvements propres d'oscillation dans le piège²⁰ qui peuvent se traduire par des zones d'instabilité à l'intérieur des diagrammes de stabilité des équations de Mathieu, voire une troncature de ces diagrammes²¹⁻²³. L'identification des résonances non-linéaires et des zones d'instabilité est très utile pour caractériser un piège avant d'aller plus avant dans les

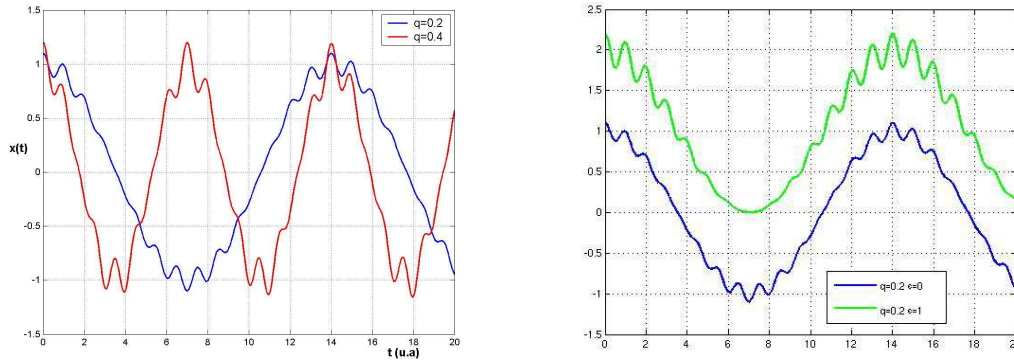


Figure II.4 : À gauche: tracé de l'équation $X \cos(\omega_x t) \left(1 + \frac{q_x}{2} \cos \Omega t\right)$ pour $q_x = 0.2$ et 0.4 . À droite: comparaison dans le cas $q_x = 0.2$ avec une trajectoire incluant un micro-mouvement en excès caractérisé par un déplacement relatif du centre de la trajectoire $\epsilon_x = 1$. L'équation du mouvement $X \cos \omega_x t$ devient alors $X(\epsilon_x + \cos \omega_x t)$.

expériences. Les techniques expérimentales que nous avons utilisées pour caractériser le piège de Paul représenté à droite de la figure II.2 ainsi que les méthodes d'interprétation des résultats expérimentaux sont présentées dans l'article reproduit dans la suite. On y met en évidence deux types de résonances non-linéaires, celles qui induisent un couplage entre les mouvements propres le long des axes de symétrie du piège et celles qui couplent la fréquence rf de confinement à ces mouvements. Ces dernières induisent un échange d'énergie de la source rf vers l'énergie cinétique des ions, appelé chauffage rf, qui peut mener jusqu'à l'expulsion des ions hors du piège. Si plusieurs ions sont confinés, les perturbations induites par la répulsion Coulombienne sur les équations du mouvement²⁴ sont aussi une cause de chauffage rf, d'autant plus notable que l'échantillon est dense.

Characterization of a miniature Paul-Straubel trap

C. Champenois, M. Knoop^a, M. Herbane, M. Houssin, T. Kaing, M. Vedel, and F. Vedel

Université de Provence, Physique des Interactions Ioniques et Moléculaires^b, Centre de Saint-Jérôme, Case C21, 13397 Marseille Cedex 20, France

Received 14 November 2000 and Received in final form 1st February 2001

Abstract. Frequency standard applications and ultra-high resolution spectroscopy of a confined single ion require traps of drastically reduced dimensions (about or below 1 mm). These small dimensions increase the sensitivity of the trapping behavior to imperfections in the trap geometry and to patch potentials. For the aim of the metrological laser interrogation of a single Ca^+ ion, a miniature cylindrical ring trap was built. In order to optimize the laser cooling process and to reach strong binding conditions, the boundaries of the stability diagram and the zones of low confinement as well as the ion motion properties were characterized.

PACS. 32.80.Pj Optical cooling of atoms; trapping – 07.75.+h Mass spectrometers

1 Introduction

In recent years the existing classic hyperbolic Paul traps [1] used for experiments in metrology [2], atomic physics [3] and mass spectrometry [4] are often replaced by miniature devices [5], designed and optimized for specific applications [6–9]. Actually, for small and even non-ideal geometry, the effective potential in the trap center is similar to the one of an ideal Paul trap as long as the ion excursion is very small compared to the trap dimensions [10]. For ease of machining and alignment, a cylindrical geometry is often chosen and has been investigated in [8]. A 1 mm-trap proves to be a versatile device since the trapping of an energetic ion cloud can be achieved, as well as the confinement and immobilisation of a single ion with access to low vibration-motion states. In future mass spectrometry, analysis will be drastically shortened by simultaneous trapping of ion clouds in various small devices, the size of each defining a particular mass range [9]. Storing a single ion in such an environment allows to reach the strong binding condition and the Lamb-Dicke regime. Indeed, small traps require very high rf frequencies to reach the necessary storage parameters and therefore imply larger frequencies of motion [11].

Nevertheless, the miniaturization of the trap electrodes does not only have advantageous attributes. The small size of the ion cage makes the potential sensitive to imperfections and flaws. The difference with a pure quadrupole field causes couplings between the axial or radial component of the motion and the rf trapping potential or between the axial and radial motion components only, which contributes by additional frequencies in the motion spectrum [12]. These anharmonicities are the source of the

so-called “black canyons” which can exist in the stability diagram [13]. Finally, patch potentials can build up during ion creation which will perturb the electric field. To minimize stray light, laser beams have to be tightly focussed into the center of the trap and imaging has to be designed very precisely. To benefit from all the positive aspects of using a miniature trap, the device must then be tested and its properties carefully investigated.

The present study comes within the project involving the Ca^+ ion for a frequency standard in the optical domain [14,15]. The proposed clock-transition at 729 nm relates the $4S_{1/2}$ ground state and the metastable $3D_{5/2}$ state with a natural linewidth of about 200 mHz [16,17]. One of the principal advantages of Ca^+ is the potential accessibility of all the involved wavelengths by laser diodes.

The outline of the paper is the following. After describing the experimental setup in Section 2, we present the different methods we have employed to characterize the trap. We report on the measurements of the frequencies of the ion motion using an external excitation in Section 3. The following section gives an improved quantification of the miniature trap, that is the limits of the stability diagram and non-linear couplings. Finally, the possible effects of the radiation pressure on the motional properties of the ions will be quantified in Section 5.

2 Experimental setup

Our trap has been designed for metrologic applications based on the laser interrogation of a single ion. Access to the Lamb-Dicke regime, where the first-order Doppler broadening becomes discrete, requires strong confinement of the ions. This can only be achieved with a high confinement frequency $\Omega/2\pi$, involving a trap size of the order

^a e-mail: mknop@up.univ-mrs.fr

^b UMR 6633 CNRS-UAM1

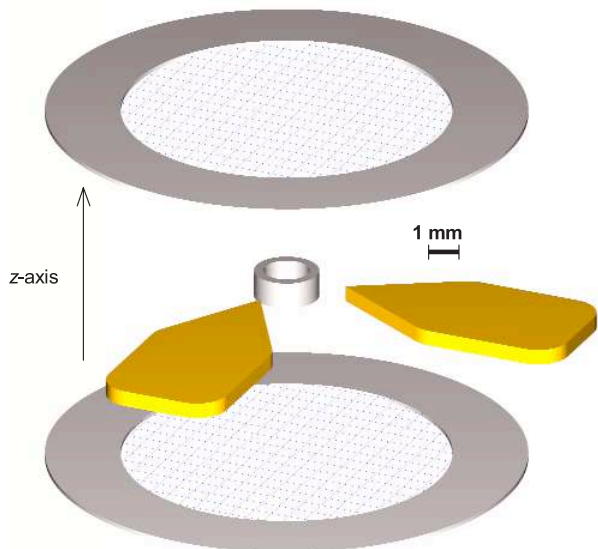


Fig. 1. Artist's view of the cylindrical miniature trap showing the different electrodes for correction of the trap potential.

of a millimeter compatible with the values of the trapping AC voltage experimentally accessible.

For a good visualisation of the confined particles and easy access for the laser beams, a trap geometry of the Paul-Straubel-type [7,8,18] has been chosen. This consists of a cylindrical ring with an inner diameter of $2r_1 = 1.4$ mm and an overall height of $2z_1 = 0.85$ mm (Fig. 1). Two compensation electrodes are formed by flat rings with 13 mm diameter, with their inner openings of 10.5 mm covered by a micrometric wire mesh having a transmission of 86%. These electrodes are placed at a distance of 5.5 mm from the center of the trap and screen the inner volume of the device from electrical stray fields. Application of a constant potential allows then compensation of the resulting trap potential in the z -direction. Small corrections on the confinement potential in the x - and y -direction can be applied by two positioning electrodes tapering into a point in the plane of the ring. In the course of the described experiments all the compensation electrodes were held at ground. Typical working parameters for the rf confinement potential applied to the ring are $\Omega/2\pi = 11.6$ MHz and $V_{AC} = 700V_{rms}$, which leads to a potential well depth of about 9.2 eV. To reduce residual magnetic effects all the electrodes (bulk and mesh) are made from molybdenum with the exception of the two copper positioning electrodes. The complete trap and electrodes assembly is placed in a stainless steel vacuum vessel with an inner diameter of 10 cm. A 100 l/s ion pump can maintain a vacuum pressure below 1×10^{-10} mbar.

Ions are loaded from an atomic calcium beam evaporated from a small oven and ionized inside the trap by electron bombardment. Doppler laser-cooling is carried out on the Ca^+ resonance line $4S_{1/2}-4P_{1/2}$ at 397 nm starting at the ion creation. In absence of collisions, synchronous repumping of the low-probability $3D_{3/2}-4P_{1/2}$ transition

at 866 nm is necessary to maintain an efficient cooling cycle. In the following work, creation parameters have been kept constant to maintain a fixed ion number. A typical cloud contains a few hundreds ions at a temperature of about 300 K. This value is due to the large size of the cloud, and represents an equilibrium between rf heating and laser-cooling.

The laser-cooling of the trapped ions at 397 nm is carried out with a commercial intracavity frequency-doubled titanium-sapphire laser (Coherent 899-21). A single-mode laser diode at 866 nm (SDL 5402-H1) mounted in a traditional external cavity and stabilized onto a low-finesse ($\mathcal{F} = 200$) reference cavity repumps the ions in the $4P_{1/2}$ level. The two counter-propagating laser beams are reshaped to prepare clean and symmetric waists without astigmatism in the trap center. The diode laser output passes through a singlemode optical fiber. Both beams are tightly focussed into the trap giving waist diameters of less than $60 \mu\text{m}$, which cross the trap under an angle of 53 degrees with the z -axis (the observation axis). The laser powers employed in the course of the present experiment are typically about $200 \mu\text{W}$ for the cooling laser and $500 \mu\text{W}$ for the repumper.

For the detection of the ions, the fluorescence light at 397 nm is collected by an aspheric lens mounted close to the trap. The optics set-up outside the vessel permits observation of the confined ions using an intensified CCD camera (Photonic Science ISIS 4) and a photomultiplier in the photon-counting mode (Hamamatsu H-4730). Typical clouds of a couple of hundred ions have a diameter of about $100 \mu\text{m}$, which is larger than the waist of the cooling laser. Furthermore, using a sensitive camera makes it possible to see the part of the cloud which corresponds to the fraction of the cooling beam beyond the $1/e^2$ limit which defines the waist.

The experiments devoted to characterizing the quality of ion storage, described below, were performed using two different methods. The first consists in applying an additional AC voltage of small amplitude (“tickle”) [19] to one of the endcaps, the other being grounded. If the excitation frequency comes into resonance with one of the ion motion frequencies, the cloud will be heated leading to a decrease of the observed fluorescence signal. Scanning the tickle frequency between 0 to $\Omega/4\pi$ enables us to visualize very precisely all the frequencies of motion, including those resulting from the Mathieu solution as well as the ones induced by possible couplings due to additional non-quadrupolar terms of the real potential. During the second type of investigation, a continuous voltage U_{DC} applied to the connected endcaps was varied adiabatically. This evidences the boundaries of the Mathieu stability diagram and the inhomogeneities due to anharmonicities, as observed previously for standard-sized traps [13,20,21]. This last technique does not imply any external perturbation and measures the storage capability in the absence of any excitation.

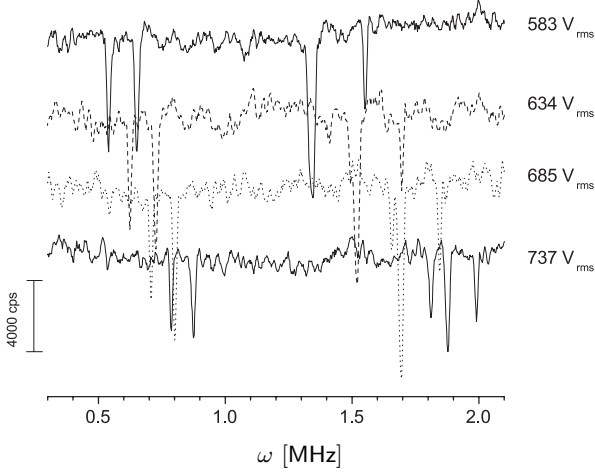


Fig. 2. Fluorescence at 397 nm as function of the applied tickle frequency. The graph shows part of the frequency spectrum of a small Ca^+ -ion cloud for different values of V_{AC} and $U_{DC} = 0$. Once the ions are in resonance with the excitation frequency, the energy absorption leads to a sudden decrease of the fluorescence.

3 Frequencies of motion

The frequency spectrum gives an useful estimate of the dynamic properties of the ion motion and also the efficiency of the confinement in such a device. This has been investigated for different alternative potentials V_{AC} applied to the ring in the case of a constant voltage U_{DC} . The amplitude of the tickle has been chosen to be sufficiently large to reveal the main existing couplings without usually losing any ions. Figure 2 shows a spectra formed by negative peaks in the variation of the collected fluorescence. The signal loss can reach up to 80% of the overall signal. Indeed, at the occurrence of a mechanical resonance, the energy deposition on the ions in resonance leads to an increase of the Doppler broadening and fewer ions are in resonance with the laser excitation. Moreover, larger trajectories of hotter ions inflate the cloud size and produce a drop in the ion density. Both effects reduce instantaneously the intensity of the fluorescence. While sweeping the tickle frequency, the fluorescence signal after resonance immediately comes back to its initial value, indicating a persistent cooling of the cloud. We can then deduce that the ions do not leave the laser beam during resonance. Occasionally, the breakdown of fluorescence can also be attributed to the effective loss of ions from the trap.

If the confining potential were purely quadrupolar the coefficients of the Mathieu equations could be written as

$$a_z = -2a_x \quad \text{and} \quad q_z = -2q_x \quad (1)$$

with

$$a_z = \frac{8eU_{DC}}{mr_1^2\Omega^2} \quad \text{and} \quad q_z = -\frac{4eV_{AC}}{mr_1^2\Omega^2}. \quad (2)$$

The fundamental frequencies $\omega_{x,y,z}/2\pi$ are directly connected to the values of the trapping frequency $\Omega/2\pi$,

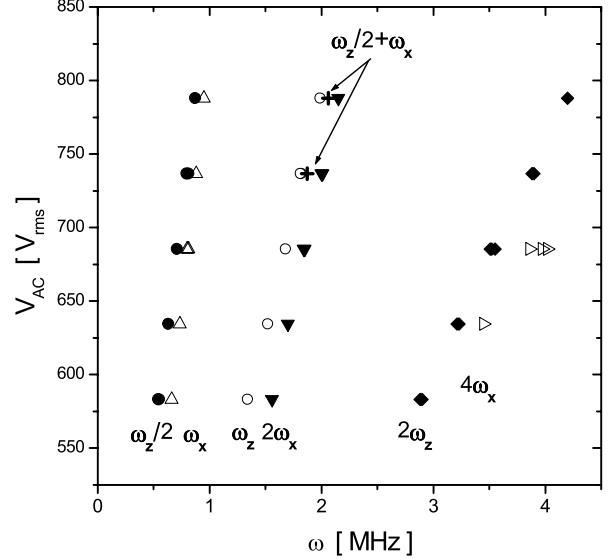


Fig. 3. The various observed frequencies of motion of the ion cloud obtained from frequency spectra as shown in Figure 2. Multiples, submultiples and couplings of the fundamental frequencies are obtained with a precision higher than 99%.

through the parameters $\beta_{x,y,z}$ [22] by

$$\omega_u = \frac{1}{2} \beta_u \Omega \quad \text{with} \quad u = x, y, z. \quad (3)$$

Ideally, $\omega_x = \omega_y$ due to the rotational symmetry of the trap. For $q_z \leq 0.4$, β_u can be calculated with the so-called adiabatic approximation [23]:

$$\beta_u = \sqrt{a_u + \frac{q_u^2}{2}}. \quad (4)$$

If $U_{DC} = 0$, as it is the case here, $\beta_z = 2\beta_x$ and then ω_z and $2\omega_x$ should be identical. However, this degeneracy is not observed in the real trap.

The excitation is applied in a unipolar mode along the z -axis (the rotational axis), and can be considered as the sum of a dipole and a quadrupole potential. We can expect the strongest resonance to be at $\omega_z/2\pi$. Due to the geometry of excitation, resonances of the radial motion $\omega_{x,y}$ are also excited through the radial-component of the excitation potential.

Figure 2 shows the linear resonances ω_z and ω_x as well as their multiples and sub-multiples (parametric resonances [24]). The observation of these additional frequencies besides the fundamental ones is the signature of the micro/macromotion coupling due to the non-ideal shape of the trap. All the observed frequencies are reported in Figure 3. The frequency combination $\omega_z/2 + \omega_x$, which gives evidence of the coupling between the radial and axial motion component, as in [21], is also found. Indeed, for a trap of cylindrical shape, the fields and equations of ion motion depend on x, y and z [25], contrary to the case of an ideal Paul trap where the axial and radial motion are uncoupled. Moreover, the cooling laser-beam which

crosses the trap diagonally couples the different degrees of freedom.

The potential of the described device is similar to that of an ideal Paul trap only in the center area of the ring. Hence, in order to produce the same potential well depth as in the ideal Paul trap, the voltages applied to the cylindrical miniature trap have to be higher. In order to keep the definition of the parameters of stability, a and q , of the Paul-Straubel trap compatible with the “traditional” case, a correction factor \mathcal{L} must be introduced in the relations (2) [8]:

$$a_z = \frac{8eU_{\text{DC}}}{mr_1^2\Omega^2\mathcal{L}} \quad \text{and} \quad q_z = -\frac{4eV_{\text{AC}}}{mr_1^2\Omega^2\mathcal{L}}. \quad (5)$$

Experimental and theoretical studies have shown that for the “standard” Paul ion trap the maximum cloud size can be found at working parameters around $q_z = 0.55$ and $a_z = -0.03$ [26–28]. Taking into account these values in the measurements of the amplitude of fluorescence as a function of the applied V_{AC} allows us to make a first estimation of the correction factor of our trap to be $\mathcal{L} = 6.8 \pm 0.5$. A more precise technique for calculating this correction factor for a given working point, consists in measuring the fundamental frequencies of the ion motion. With equation (5) it is actually possible to estimate \mathcal{L} using the adiabatic approximation along the q_z -axis of the stability diagram where $U_{\text{DC}} = 0$.

The correction factor \mathcal{L} was evaluated from the measured values of ω_x and ω_z . In order to explain the observations mentioned above, it appears necessary to define a correction factor for each direction. Equations (1) have to be replaced by [8]

$$a_z\mathcal{L}_z = -2a_x\mathcal{L}_x \quad \text{and} \quad q_z\mathcal{L}_z = -2q_x\mathcal{L}_x. \quad (6)$$

These correction factors take into account the different causes of deviations from the ideal case. The main contribution for \mathcal{L} is the loss of trapping efficiency of the cylindrical trap compared to an ideal Paul trap due to the discrepancy between the presented geometry and the quadrupolar one. In fact, the geometric defects are not identical in the radial and axial direction, the trapping efficiency is therefore modified in a different way for x and z . In our experiment, patch potential effects may build up over time mainly on the ring electrode. This would lead to a distortion in the symmetry of revolution of the confinement potential. The effect on the loss factor would then concern a possible difference between the x and y -directions. An effect of the patch potential should show a (slight) evolution in the course of time. The presented measurements have been carried out over a period of a couple of weeks without showing any modification caused by the build-up of a contact potential.

The larger the cloud is, the further away from its center are the ions and therefore the values of \mathcal{L}_z and \mathcal{L}_x are subject to variation. It has been observed experimentally, that for rf potentials increasing from 580 to 790 V_{rms} , \mathcal{L}_z decreases from 8.0 to 7.6, whereas \mathcal{L}_x increases very slowly from 7.0 to 7.1. For a very high rf potential, the well depth

increases and the two correction factors should become even closer since the ion cloud is concentrated in the center of the trap, where the potential shape is less sensitive to deviations from the quadrupole case.

4 Characterization of the stability diagram

Theoretical and experimental studies have shown that the stability diagram and the frequencies of motion of an ion cloud in a trap of cylindrical geometry can be calculated in a similar way to its hyperbolic counterpart with identical dimensions r_0 and z_0 [25,29]. In fact, while changing from the hyperboloidal geometry to a cylindrical one, the limits of the Mathieu stability diagram tend to smaller a, q -values while the influence of space charge shifts the diagram to higher values. In order to define the effective boundaries of the stability diagram the following experimental procedure was run. In the first step, an ion cloud (~ 500 ions) is created at an rf voltage V_{AC} with a zero potential U_{DC} applied to the endcaps. Then, a positive (or negative) potential U_{DC} is applied to the endcaps (which is equivalent to the application of $-U_{\text{DC}}$ on the ring) and is slowly increased from 0 to ± 150 V. During this scan, the overall fluorescence of the ion cloud is recorded. The boundaries of the stability diagram are clearly illustrated by the disappearance of any fluorescence signal due to the complete loss of the ions. A new cloud must be created for each scan and this is always done at $U_{\text{DC}} = 0$. These measurements have been carried out for V_{AC} varying between 500 and 1000 V_{rms} .

For a clear visualisation, we need to draw the effective iso- β lines and thus to calculate β_x and β_z . Using the correction factor $\mathcal{L}_{x,z}$, equations (5) transform the measured boundaries from $(U_{\text{DC}}, V_{\text{AC}})$ coordinates into (a_z, q_z) coordinates (see Fig. 4). We have used the mean values of Section 3, $\mathcal{L}_z = 7.8 \pm 0.2$ and $\mathcal{L}_x = 7.05 \pm 0.05$. This is more accurate than to use an average value shared by the two directions; a common value plainly could not reflect the real behaviour of the potential. In our experiment, $U_{\text{DC}} = 150$ V corresponds to $a_z = 0.14$ and $V_{\text{AC}} = 1000V_{\text{rms}}$ leads to $q_z = 0.66$.

The resulting measured limits of the stability diagram reproduce the form of the theoretical stability region, except for its right-hand side boundary, theoretically defined by $\beta_z = 1$ (see Fig. 4). We observed that no ion cloud could survive the crossing of this right-hand-side border. Furthermore, all attempts to create and to trap ions on the other side of this border ($1000V_{\text{rms}} < V_{\text{AC}} < 1400V_{\text{rms}}$ and $U_{\text{DC}} = 0$) failed. We thus considered this right-hand side boundary to be the real limit of the stability diagram of the trap. A similar reduction of the surface of the stability diagram compared to the ideal Paul-trap shape has been predicted by Benilan *et al.* [25]. In a theoretical study, they have found that the limits of the stability diagram of a cylindrical trap are shifted to smaller values of q_z when the dimensions z_1 and r_1 approach each other. In this case, the $\beta_z = 1$ limit crosses the q_z -axis at $q_z = 0.65$ for $r_1 = z_1$ (instead of $q_z = 0.908$ for an ideal Paul trap). Yet, a more precise analysis of the experimental stability

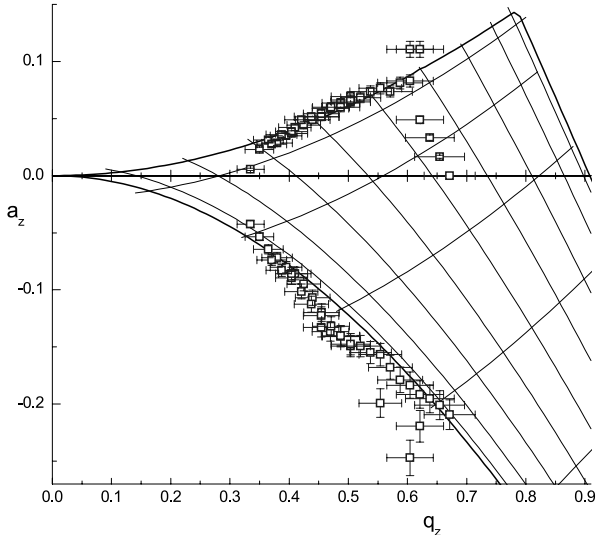


Fig. 4. Limits of the stability diagram as observed from the fluorescence of a small Ca^+ -ion cloud as compared to the stability diagram of an ideal Paul trap (solid lines). The observed right-hand-side limit corresponds to a $\beta_z = 1/2$ canyon, no ion could be confined beyond this boundary.

diagram taking into account the ω_z measurements shows that the observed right-hand side border actually corresponds to a $\beta_z = 1/2$ canyon. The non-linear resonances occurring along this line are so strong that no ions can stay in the trap. Moreover, on the high- q_z side of the $\beta_z = 1/2$ canyon, a multitude of very close lying canyons can exist [12, 30].

Another characterization of the ion cloud consists in locating its motional resonances in a $(V_{\text{AC}}, U_{\text{DC}})$ diagram visualized by the absences in the fluorescence signal for given combinations of $(V_{\text{AC}}, U_{\text{DC}})$ -values. A good knowledge of the position of these canyons is very important in order to select the best trapping parameters. We record the fluorescence emitted by the cloud at fixed values of the rf potential V_{AC} , while slowly scanning the potential U_{DC} from 0 to ± 150 V. For neighbouring V_{AC} values, a given non-linear resonance can be tracked in the stability diagram as shown in Figure 5. We may thus visualize a canyon in the stability diagram, characterized by a constant rational β_x or β_z value or a combination of them. The assignment of the “effective” β_x or β_z -values (using \mathcal{L}_x and \mathcal{L}_z) gives a projection of the inner shape of the stability diagram. In Figure 6 the identified canyons with their assignments are plotted. We could isolate four rational iso- β_x and three rational iso- β_z canyons. Most of these canyons can be assigned with a precision better than 4%. The assignment of the canyons $\beta_x = 2/9$ and $\beta_x = 1/6$ can only be made to the 7%-level. In Figure 6 these canyons can also be seen to have a slightly deviated direction. Finally, the $\beta_z = 1/3$ canyon is found with a 10%-precision, in fact these resonances have been observed to be large. The assignment has also been confirmed by consideration of the inter-canyon distance. All these canyons prove the existence of couplings between the macromotion along the

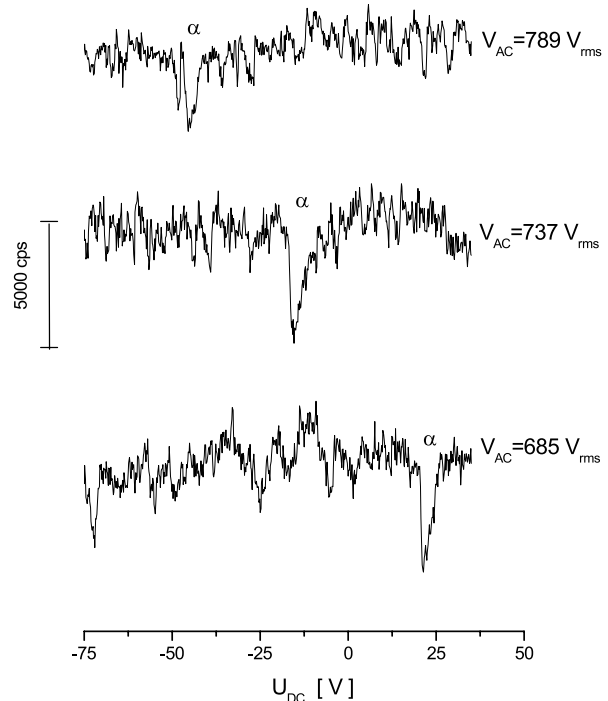


Fig. 5. Cross-section of the stability diagram for different values of V_{AC} . The canyon α – which corresponds to $\beta_z = 1/3$ – can be tracked for various working points.

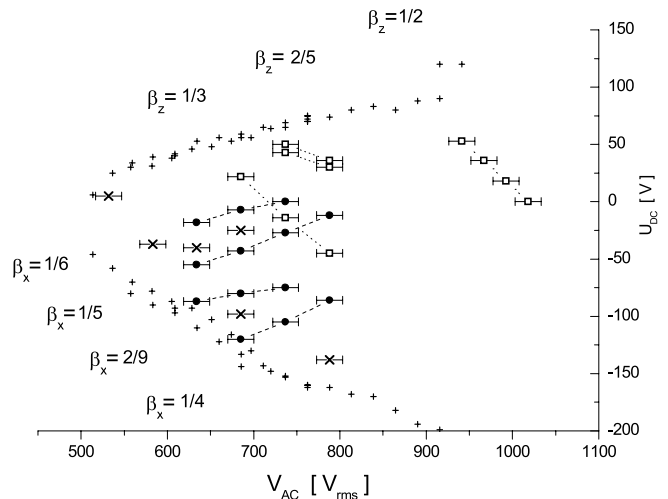


Fig. 6. “Black canyons” in a part of the stability diagram. Points of low confinement coincide with lines of constant rational β_x or β_z indicating a coupling of the macro- and the micromotion. The lines are a guide to the eye, and indicate points of identical β -value. (\square) and (\bullet) stand for iso- β_z and β_x -canyons respectively. The measured limits of the stability diagram are visualized by (+), for clarity the error bars on these values have been omitted in this graph. A few strong resonances (indicated by \times) could not be assigned with a common β -value at the 5%-level.

axial and the radial directions with the rf pulsation [12]. One of the resonances we observe ($\beta_z = 2/5$) presents a doubling of its structure. This kind of doubling could be explained by a defect of the axial symmetry of the trap. The canyons observed and assigned inside the stability region are consistent with the previous assignation of the $\beta_z = 1/2$ canyon. The present experimental stability diagram shows that, for the characterization of such a device as the miniature trap, the stability diagram boundaries alone, do not provide enough reliable information.

5 Evaluation of the effects of the radiation pressure

The possibility of measuring a shift of the motion frequencies with high precision can show evidence even for very small effects as, for example, the influence of a friction force $-\rho v$ (with ρ the damping factor, and v the velocity of the ions) on the shape of the stability diagram, as calculated by Winter and Ortjohann [31] for macroscopic particles in an air flow. These authors have shown that the stability diagram can be modified a lot by a friction force as soon as the ratio $2\rho/m\Omega$ (m the mass of the ion) reaches values close to one. Furthermore, numerical simulations concerning ions have suggested that $2\rho/m\Omega$ must become of the order of 1 to produce a non-negligible distortion of the stability diagram [33].

The radiation pressure force has been studied in many articles for cooling of free neutral atoms as well as trapped ions. As the natural frequency width $\Gamma/2\pi$ of the transition involved in the cooling (23 MHz) is larger than the frequencies of micro- and macromotion $\Omega/2\pi$, $\omega_z/2\pi$ and $\omega_x/2\pi$ (11.6 MHz, 1.5 MHz and 0.75 MHz, resp.), the absorption and emission of photons by the trapped ions are the same as for free atoms [11]. We can then use the general expression of the radiation pressure force in a travelling wave along the direction of the laser propagation, as in [32]:

$$F = F_0 - \rho v \quad (7)$$

with the constant force

$$F_0 = \hbar k \frac{\Gamma}{2} \frac{s_0}{s_0 + 1 + \left(\frac{2\Delta}{\Gamma}\right)^2} \quad (8)$$

where k is the wave-vector of the 397 nm cooling laser, Δ the detuning between the laser frequency and the atomic transition frequency, s_0 is the saturation parameter in resonance, and the damping factor ρ is defined by:

$$\rho = -\hbar k^2 \frac{4s_0(\Delta/\Gamma)}{\left[s_0 + 1 + \left(\frac{2\Delta}{\Gamma}\right)^2\right]^2} \quad (9)$$

and is positive for red detuned light, as in our experiment.

The friction force $-\rho v$ may distort the ion dynamics and the stability diagram by introducing a damping term

in the motion of the ion. The perturbations induced are largest when the damping coefficient ρ reaches its maximum value $\rho_{\max} = \hbar k^2/4$ for $\Delta = -\Gamma/2$ and $s_0 = 2$ [32]. The maximal damping can not be increased as it depends only on the transition wavelength. In our case the maximum value ρ_{\max} that can be reached is 6×10^{-21} kg/s and then $2\rho/m\Omega$ can never be greater than 2.6×10^{-3} which is much smaller than one. In our experiment, the detuning Δ was of the order of 5Γ and s_0 varied roughly between 0.01 and 5 (corresponding to variation of the laser-cooling power between 8 μ W and 900 μ W). For even larger values of the detuning and of the saturation parameter, the damping coefficient tends toward zero and no friction force occurs. We checked the radiation pressure influence on the observed mechanical resonances by looking at the frequency spectra. Once the cooling transition $4S_{1/2}-4P_{1/2}$ is no longer saturated (for laser power values below 200 μ W) we can observe that the width of the resonances increases while the cloud becomes hotter. There is no detectable shift in the ω -values. Therefore we cannot expect any significant modification of the stability diagram, whatever the laser cooling power. An influence of the friction force would be detectable in other experiments using lighter ions and lower trapping frequencies.

Furthermore, the radiation pressure force could have another effect on the dynamics of the cloud. Besides a damping component, this force also has a constant term F_0 (see Eq. (7)) which has the same effect as a constant and uniform electric field: it shifts the mean position of an ion in the rf trap along the laser beam propagation direction [34]. As the laser beam has non-zero projections on the z -axis and on the radial plane (along a direction we call X_L), the mean position of an ion is shifted in these two directions by the amounts

$$\Delta Z = \frac{F_{0z}}{m\omega_z^2} \quad \text{and} \quad \Delta X_L = \frac{F_{0xL}}{m\omega_x^2} \quad (10)$$

where m is the mass of a calcium ion. The upper limit of the force F_0 is given by $\hbar k\Gamma/2$. This maximum value causes a translational shift of the ions of about 10 nm in both directions and will not modify here the dynamics of the cloud in the trap.

6 Conclusion

In this paper we have reported on the construction and the implementation of a miniature cylindrical ion cage. In order to work under metrologic conditions, it is imperative to characterize the trap boundaries in a precise way to be able to make a sound choice of the working parameters. The trapping characteristics were explored by confining a laser-cooled Ca^+ -ion cloud and observing its properties. We infer that the measurement of the limits of the stability diagram alone do not provide sufficient information. The measurements of the motional resonances of the cloud and the pursuit of their evolution throughout the stability diagram have been corroborated by a method detecting the non-linear resonances in the trap. In particular, the actual

β_z -boundary value of 1/2 instead of 1 is a signature of the considerable inhomogeneity of the first zone of the stability diagram in the capability to confine. The correction factors, \mathcal{L}_z and \mathcal{L}_x , are found to be different, due to the asymmetric distortion of the miniature trap geometry. In the final step, we have evaluated the order of magnitude for the influence of the radiation pressure force on the ion dynamics and on their positions in the trap. For the Ca^+ ions, these values lie below the spectral as well as the spatial limit of the detection. The present characterization of the miniature trap contributes to the catalogue of small geometries for new mass spectrometry and will enable us in the close future to choose the optimal working conditions to capture one single Ca^+ ion and to put it in the quasi zero-field area of the trap.

References

1. W. Paul, *Rev. Mod. Phys.* **62**, 531 (1990).
2. *Proceedings of the Fifth Symposium on Frequency Standards and Metrology*, edited by J.C. Bergquist (World Scientific Ltd, Singapore, 1996).
3. K. Enders, E. Stachowska, G. Marx, C. Zölch, U. Georg, J. Dembczynski, G. Werth, *Phys. Rev. A* **56**, 265 (1997).
4. *Practical Aspects of Ion Trap Mass Spectrometry*, Vols. 1–3 of *Modern Mass Spectrometry*, edited by R. March, J. Todd (CRC Press, New York, 1995).
5. W. Neuhauser, M. Hohenstatt, P.E. Toschek, H. Dehmelt, *Phys. Rev. Lett.* **12**, 233 (1978).
6. E. Beaty, *J. Appl. Phys.* **61**, 2118 (1987).
7. N. Yu, W. Nagourney, H. Dehmelt, *J. Appl. Phys.* **6**, 3779 (1991).
8. C. Schrama, E. Peik, W. Smith, H. Walther, *Opt. Commun.* **101**, 32 (1993).
9. E. Badman, R. Johnson, W. Plass, R. Cooks, *Anal. Chem.* **70**, 4896 (1998).
10. C.-S. O, H. Schuessler, *Int. J. Mass Spectr. Ion Proc.* **35**, 305 (1980).
11. D. Wineland, W. Itano, *Phys. Rev. A* **20**, 1521 (1979).
12. Y. Wang, J. Franzen, K. Wanczek, *Int. J. Mass Spectr. Ion Phys.* **124**, 125 (1993).
13. D. Eades, J. Johnson, R. Yost, *J. Am. Soc. Mass Spectr.* **4**, 917 (1993).
14. G. Werth, in *Frequency standards and metrology*, edited by A. de Marchi (Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, 1989), pp. 293, 299.
15. A. Madej, J. Bernard, in *Frequency Measurement and Control, Topics in Applied Physics*, edited by A. Luiten (Springer Verlag, New York, 2000).
16. M. Knoop, M. Vedel, F. Vedel, *Phys. Rev. A* **52**, 3763 (1995).
17. E. Biemont, C. Zeippen, *Comm. At. Mol. Phys.* **33**, 29 (1996), and references therein.
18. H. Straubel, *Naturwissenschaften* **18**, 506 (1955).
19. F. Vedel, M. Vedel, *Phys. Rev. A* **41**, 2348 (1990).
20. R. Alheit, C. Henning, R. Morgenstern, F. Vedel, G. Werth, *Appl. Phys. B* **61**, 277 (1995).
21. M. Vedel, J. Rocher, M. Knoop, F. Vedel, *Appl. Phys. B* **66**, 191 (1998).
22. R. March, R. Hughes, in *Quadrupole Storage Mass Spectrometry*, Vol. 102 of *Chemical analysis*, edited by J. Winefordner (John Wiley and Sons, New York, 1989).
23. H. Dehmelt, *Adv. At. Mol. Phys.* **3**, 53 (1967).
24. L. Landau, E. Lifschitz, *Mécanique* (Mir, Moscou, 1966), Vol. 102.
25. M.-N. Benilan, C. Audoin, *Int. J. Mass Spectr. Ion Proc.* **11**, 421 (1973).
26. M. Baril, A. Septier, *Rev. Phys. Appl.* **9**, 525 (1974).
27. R. Ifflaender, G. Werth, *Metrologia* **13**, 167 (1977).
28. M. Vedel, J. André, S. Chaillat-Negrel, F. Vedel, *J. Phys. France* **42**, 541 (1981).
29. R. Mather, R. Waldren, J. Todd, R. March, *Int. J. Mass Spectr. Ion Phys.* **33**, 201 (1980).
30. R. Alheit, S. Kleineidam, F. Vedel, M. Vedel, G. Werth, *Int. J. Mass Spectr. Ion Proc.* **154**, 155 (1996).
31. H. Winter, H. Ortjohann, *Am. J. Phys.* **59**, 807 (1991).
32. H. Metcalf, P. van der Straten, *Laser cooling and trapping* (Springer Verlag, New York, 1999).
33. R. Blümel, *Phys. Rev. A* **51**, 620 (1995).
34. D. Berkeland, J. Miller, J. Bergquist, W. Itano, D. Wineland, *J. Appl. Phys.* **83**, 5025 (1998).

II.2 Interaction entre un ion en piège quadripolaire et un faisceau laser

Quand un grand nombre d'ions froids est piégé, la répulsion coulombienne perturbe les équations du mouvement et celui-ci ne peut plus être décrit comme la superposition d'oscillations harmoniques. L'interaction ion piégé-laser diffère alors peu de celle vécue par des atomes libres et dans le cas de raies larges (plus larges que les fréquences du mouvement), on peut oublier les particularités du mouvement²⁵⁻²⁷. La description de l'interaction ion piégé-laser prend beaucoup d'intérêt pour un ion unique (ou une chaîne d'ions uniques en piège linéaire) dont le mouvement est très bien décrit par un oscillateur harmonique. Il est alors possible de coupler de façon cohérente les degrés internes et externes de liberté de l'ion²⁸. En effet, l'hamiltonien du système est, dans ce cas limite, équivalent à l'hamiltonien de Jaynes-Cummings décrivant le couplage de photons avec les modes propres d'une cavité^{29,30}. D'ailleurs cette analogie a inspiré plusieurs expériences avec des ions piégés³¹ (création d'états non-classiques de vibration, d'états cohérents...). Dans cette partie, nous reprenons un formalisme développé au fil des années^{27,28} et qui considère des ions uniques en quadropole où les oscillations sont caractérisées par $\omega_x, \omega_y, \omega_z$ et la plupart du temps, on traite l'atome comme un système à deux niveaux.

II.2.1 Traitement classique du mouvement

On note les deux niveaux atomiques pertinents $|g\rangle, |e\rangle$ et l'énergie interne du système $E_e - E_g = \hbar\omega_0$. L'hamiltonien de l'atome non couplé, de quantité de mouvement \mathbf{p} est alors

$$\hat{H}_0 = \frac{\hbar\omega_0}{2} (|e\rangle\langle e| - |g\rangle\langle g|) + \frac{\mathbf{p}^2}{2m}. \quad (\text{II.21})$$

Dans un premier temps, le mouvement est traité classiquement et l'hamiltonien d'interaction laser-atome dans une onde progressive en $\cos(\omega_L t - k_L x - \psi)$ peut être écrit comme

$$\hat{V} = \frac{\hbar\Omega_L}{2} (|e\rangle\langle g| + |g\rangle\langle e|) \left(e^{i(\omega_L t - k_L x - \psi)} + H.c. \right) \quad (\text{II.22})$$

où $\Omega_L/2\pi$ est la fréquence de Rabi du couplage (qui n'est pas toujours dipolaire) et ω_L la pulsation du laser. L'évolution propre du système peut être éliminée en passant en image d'interaction où $\hat{V}^I = \hat{U}_0^\dagger(t)\hat{V}\hat{U}_0(t)$ (\hat{U}_0 est l'opérateur d'évolution associé à \hat{H}_0). Lors de cette transformation, le terme $|e\rangle\langle g|$ introduit $\exp(-i\omega_0 t)$ alors que $|g\rangle\langle e|$ introduit $\exp(i\omega_0 t)$. Par conséquent, l'hamiltonien de couplage \hat{V}^I comporte des termes comme $\exp(\pm i(\omega_0 + \omega_L)t)$ qui tournent très vite à l'échelle de l'évolution du système et des termes quasi-resonants $\exp(\pm i(\omega_0 - \omega_L)t)$. Comme très souvent dans les interactions atome-laser, on ne prend en compte que ces termes quasi-resonants ce qui constitue l'approximation de l'onde tournante (ou Rotating Wave Approximation-RWA). Dans le cadre de cette approximation,

$$\hat{V}^I = \frac{\hbar\Omega_L}{2} \left(|e\rangle\langle g| e^{-i\Delta t} e^{i(k_L x + \psi)} + |g\rangle\langle e| e^{i\Delta t} e^{-i(k_L x + \psi)} \right). \quad (\text{II.23})$$

où $\Delta = \omega_L - \omega_0$ est le désaccord du laser avec la transition atomique. Ceci est une expression générale pour l'interaction atome-laser mais qu'y-a-t'il de plus pour un ion oscillant dans l'onde laser?

Rappelons que dans notre cas, le mouvement est bien décrit par

$$x(t) = X \cos(\omega t) \left(1 + \frac{q}{2} \cos \Omega t \right)$$

le long de chaque axe propre du piège. Supposons tout d'abord que

1. le faisceau laser se propage le long de l'axe Ox .
2. $q \ll 1$ ce qui entraîne que $x(t) \simeq X \cos(\omega t)$.

Alors la modulation de phase induite par le mouvement de l'ion, dans le couplage atome-laser, est périodique, donnant lieu à un effet analogue à la diffraction par un réseau, mais dans le domaine temporel :

$$e^{ik_L x} = e^{ik_L X \cos \omega t} = \mathcal{J}_0(k_L X) + i\mathcal{J}_1(k_L X)e^{\pm i\omega t} - \mathcal{J}_2(k_L X)e^{\pm i2\omega t} \dots \quad (\text{II.24})$$

où les \mathcal{J}_n sont les fonctions de Bessel. Tout se passe comme si l'atome était excité par plusieurs lasers de fréquence $\omega_L, \omega_L \pm \omega, \omega_L \pm 2\omega \dots$ avec un couplage $\Omega_L \mathcal{J}_0(k_L X), \Omega_L \mathcal{J}_1(k_L X), \Omega_L \mathcal{J}_2(k_L X) \dots$. L'indice de modulation $k_L X$ contrôle la force relative de chaque excitation et le nombre de bandes à prendre en compte pour décrire l'excitation laser (grossièrement, il suffit de se souvenir que $\mathcal{J}_q(u)$ devient non négligeable quand u est au moins aussi grand que q). Dans le cas où les transitions ne sont pas saturées, cette excitation par une source fictive multi-fréquence peut être résolue en sommant indépendamment la réponse à l'excitation par chaque bande. Pour un atome à deux niveaux, cela donne pour la probabilité P_e d'être dans l'état excité:

$$P_e(\Delta) = \sum_{q=-\infty}^{q=+\infty} \frac{1}{2} \frac{\Omega_L^2 \mathcal{J}_q^2(k_L X)}{\Omega_L^2 \mathcal{J}_q^2(k_L X) + 2(\Delta - q\omega)^2 + \Gamma^2/2}. \quad (\text{II.25})$$

Le spectre résultant de ces multiples contributions est illustré sur la figure II.5 et a des propriétés différentes selon les conditions suivantes :

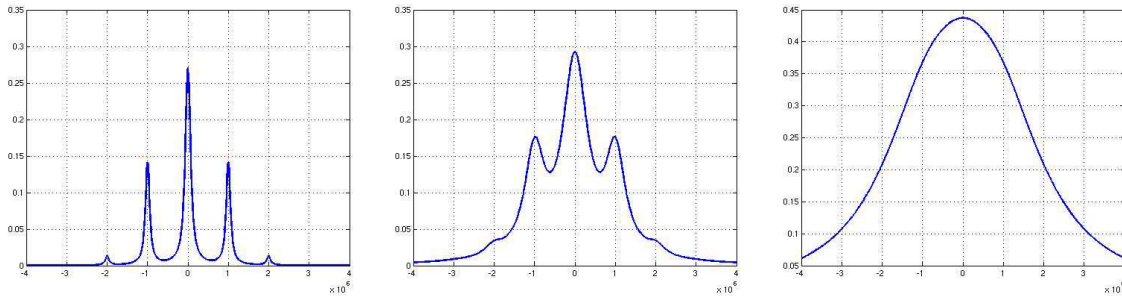


Figure II.5 : Spectre calculé pour un atome à deux niveaux dans le cas d'un mouvement classique caractérisé par $k_L X = 1$, $\omega/2\pi = 1$ MHz. L'excitation laser est caractérisée par une fréquence de Rabi égale à la largeur naturelle : $\Omega_L = \Gamma$ et $\Gamma/2\pi = 10^5$ Hz (gauche), $\Gamma/2\pi = 5 \cdot 10^5$ Hz (centre), $\Gamma/2\pi = 2 \cdot 10^6$ Hz (droit).

- si l'excitation se fait sur une transition large ($\Gamma > q_{max}\omega$)^a, la nature oscillante du mouvement n'est pas importante pour décrire le spectre. En effet, on peut montrer^{25,26} que pour $\Gamma \gg \omega$, les ions peuvent être considérés comme libres en ce qui concerne l'interaction laser. Ce régime est souvent nommé *régime de confinement faible*.
- pour une transition telle que $\Gamma < \omega$ (le *régime de confinement fort*), l'ion a le temps de faire beaucoup d'oscillations entre chaque absorption/émission et la nature oscillante du mouvement se manifeste dans le spectre Doppler par des bandes résolues dont les positions et amplitudes sont des outils très efficaces pour caractériser expérimentalement le mouvement de l'ion et mesurer précisément les fréquences propres d'oscillation dans le piège. De plus, si le nombre de bandes latérales excitées est réduit il est possible de pointer la fréquence centrale et ainsi de s'affranchir de l'effet Doppler du premier ordre. Pour atteindre cette configuration sur une transition optique, il faut que l'ion soit refroidi par refroidissement laser Doppler.

Dans une expérience, le laser ne se propage pas forcément le long d'un des axes propres du piège et le micro-mouvement (intrinsèque et excédentaire) peut ne pas être négligeable. Alors,

$$\mathbf{k}_L \cdot \mathbf{r} = k_x (X \cos \omega_x t + \epsilon_x) \left(1 + \frac{q_x}{2} \cos \Omega t \right) + k_z (Z \cos \omega_z t + \epsilon_z) \left(1 + \frac{q_z}{2} \cos \Omega t \right) \quad (\text{II.26})$$

et la même décomposition spectrale en fonctions de Bessel peut être menée, tant que les différentes fréquences ne sont pas dans un rapport rationnel et que chaque excitation est dans le régime linéaire.

Dans la plupart des conditions expérimentales d'excitation d'un ion calcium, il y a au moins deux champs lasers qui couplent trois niveaux simultanément. Ceci est dû à la nécessité d'avoir un laser repompeur pour observer de la fluorescence, comme expliqué en II.2.3 et montré sur la figure II.6 (dans ce cas, l'ion calcium est couplé aux lasers à 397 nm et 866 nm simultanément).

Quand il faut prendre en compte les sous-niveaux Zeeman de chacun des niveaux impliqués, ce n'est plus trois mais huit niveaux qu'il faut coupler et il n'existe pas de solution analytique pour l'évolution de ces systèmes. Les simulations numériques offrent alors un outil adaptable à toutes les situations. Dans la plupart de mes travaux, j'utilise la théorie de la matrice densité pour évaluer analytiquement, comme c'est le cas dans l'article présenté en II.3.2, ou plus souvent numériquement, la probabilité d'occupation des niveaux atomiques et/ou la cohérence entre ces niveaux sous l'effet du couplage laser. L'évolution temporelle de la matrice densité $\hat{\rho}$ est régie par les équations de Bloch optiques (EBO) qui permettent de prendre en compte ces couplages lasers, à travers l'hamiltonien \hat{V} et les diverses sources de décohérence³² telles que l'émission spontanée (Γ_{sp}) ou la largeur spectrale des lasers (Γ_L), par un opérateur de Liouville $\mathcal{L}(\hat{\rho})$:

$$i\hbar \frac{d\hat{\rho}}{dt} = [\hat{H}_{at} + \hat{V}, \hat{\rho}] + \mathcal{L}(\hat{\rho}). \quad (\text{II.27})$$

Pour un système à deux niveaux (notés 1 et 2) et dans l'approximation de l'onde tournante (RWA), ces équations s'écrivent (avec $\rho_{11} + \rho_{22} = 1$ et $\rho_{12} = \rho_{21}^*$)

$$\frac{d\rho_{11}}{dt} = \frac{i\Omega_L}{2} (\rho_{12} - \rho_{21}) + \Gamma_{sp}\rho_{22};$$

^a q_{max} est l'indice le plus haut des bandes excitées

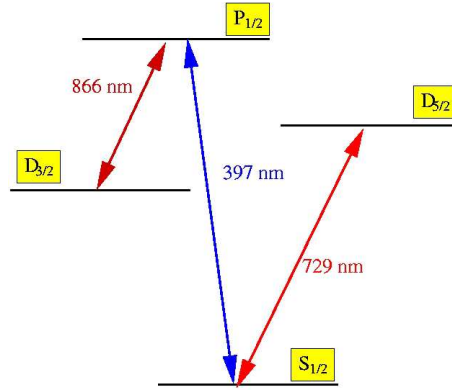


Figure II.6 : Premiers niveaux d'énergie de l'ion calcium et les longueurs d'onde des transitions utilisées dans ce texte. Le système en V dont il est fait référence dans le texte est constitué des niveaux $P_{1/2}$, $S_{1/2}$, $D_{5/2}$ et des couplages à 397 et 729 nm. Le système en Λ dont il est question en III.1.1 est constitué des niveaux $S_{1/2}$, $P_{1/2}$, $D_{3/2}$ et des couplages à 397 et 866 nm.

$$\frac{d\rho_{12}}{dt} = -\left(i\Delta + \frac{\Gamma_{sp}}{2} + \frac{\Gamma_L}{2}\right)\rho_{12} + \frac{i\Omega_L}{2}(\rho_{11} - \rho_{22}), \quad (\text{II.28})$$

où, comme avant, Ω_L est la fréquence de Rabi du couplage laser ($\hbar\Omega_L = -\mathbf{d}\cdot\mathbf{E}$ en mode dipolaire électrique) et Δ le désaccord du laser par rapport à la résonance atomique. Pour une forme générale de l'opérateur de Liouville, applicable à des systèmes à plus de 2 niveaux, on pourra consulter la thèse de C. Raab³³ (Université d'Innsbruck).

La prise en compte du mouvement du ou des ions est possible au prix de quelques approximations. Dans le régime classique, le mouvement de l'ion dans l'onde laser a un effet de modulation de phase déjà vu plus haut. La solution analytique de l'Eq. (II.25) basée sur les fonctions de Bessel n'est pertinente que dans le régime linéaire d'excitation où chaque bande peut être traitée en ignorant sa voisine et n'est utilisable que pour un système pour lequel il existe une solution analytique des EBO (ce qui limite pratiquement à un système à deux niveaux). Dans les EBO, il y a deux façons de prendre en compte le mouvement de l'ion dans l'onde laser, soit par une modulation de phase de l'excitation $\Omega_L \rightsquigarrow \Omega_L \exp(i\mathbf{k}_L \cdot \mathbf{x}(t))$ soit une modulation de fréquence $\Delta \rightsquigarrow \Delta - \mathbf{k}_L \cdot \mathbf{v}(t)$. Les deux méthodes sont équivalentes si $\mathbf{v}(t) = \dot{\mathbf{x}}(t)$ mais la deuxième peut être plus facile à programmer. Dans le cas d'un mouvement dépendant du temps comme le mouvement harmonique d'un ion dans le pseudo-potential d'un quadropole, $\mathbf{v}(t) = \mathcal{V} \cos(\omega t) \mathbf{u}_x$, une prise en compte rigoureuse implique une intégration temporelle suffisamment longue pour couvrir la durée caractéristique la plus grande, avec un pas de temps suffisamment petit pour suivre la dynamique imposée par le phénomène de durée caractéristique la plus courte. Dans le cas de bandes latérales résolues, où $\omega > \Gamma$, il faut donc intégrer sur plusieurs périodes du mouvement pour atteindre le régime stationnaire de l'interaction atome-laser. Dans le cas d'une raie de largeur effective^b très faible de plusieurs ordres de grandeur devant la fréquence d'oscillation dans le piège, comme c'est le cas sur la transition quadropolaire, l'intégration numérique nécessite de couvrir plus de 1000 périodes d'oscillation. La longueur du temps de calcul rend alors cette méthode

^bc'est-à-dire la largeur expérimentale, qui peut être élargie par saturation, par exemple

inadaptée et nous verrons une méthode plus appropriée en III.2.2. Par contre, cette méthode est tout à fait pertinente pour des raies larges comme celles impliquées dans le refroidissement laser. Elle a l'avantage d'être générale et de ne pas supposer une équation particulière du mouvement. Des exemples de profil Doppler sont donnés sur la figure II.7 dans différents régimes d'interaction atome-laser mais pour les mêmes caractéristiques du mouvement, définies par un indice de modulation $k_L X$ de 2.5, une température équivalente^c de 62 mK et un nombre moyen d'occupation des niveaux vibrationnels $\langle n \rangle = 270$. Dans ce régime, cette méthode est bien plus pertinente que celle basée sur les fonctions de Bessel et celle qui sera introduite dans la suite, en II.2.2.

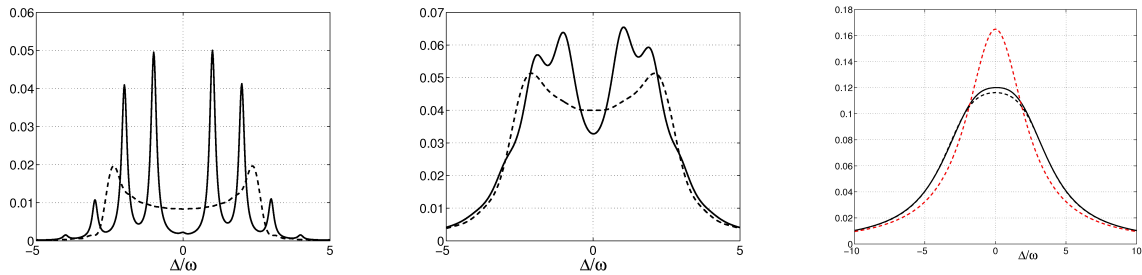


Figure II.7 : Spectre d'absorption calculé pour un atome à deux niveaux, oscillant dans l'onde laser de longueur d'onde 397 nm avec une vitesse $\mathcal{V} \cos(\omega t)$ définie par $\mathcal{V} = 5$ m/s et $\omega/2\pi = 5$ MHz. Ceci correspond à un indice de modulation $k_L X$ de 2.5. L'interaction laser-atome se produit dans les trois cas avec $\Omega_L = \Gamma/2$ et la largeur naturelle Γ de la transition vaut $2\pi \times 1$ MHz (courbe de gauche), $2\pi \times 5$ MHz (courbe centrale) et $2\pi \times 20$ MHz (courbe de droite). Les courbes en trait plein montrent les résultats obtenus par un suivi dans le temps de l'oscillation de l'ion alors que les pointillés montrent les résultats obtenus pour une distribution de vitesse sinusoïdale. Sur la figure de droite, la courbe pointillée rouge montre le résultat d'une intégration pour $\mathcal{V} = 0.5$ m/s.

Les courbes de la figure II.7 permettent de comparer les résultats obtenus avec un suivi dans le temps du mouvement de l'atome dans l'onde laser, intégré sur plusieurs périodes, à ceux obtenus pour des vitesses constantes dans le temps, mais dont la distribution de densité a une répartition sinusoïdale : $v_k = \mathcal{V} \cos(\omega t_k)$. Tant que $\Gamma \leq \omega$, les résultats sont très différents et seule la première méthode permet de rendre compte des bandes latérales du mouvement dans le spectre. Pour $\Gamma = 4 \times \omega$ (courbe de droite), les bandes latérales ne sont plus identifiables dans le spectre et les deux méthodes donnent des résultats quasi-identiques. Pour un rapport encore plus grand entre Γ et ω , il n'y a plus de différences entre les résultats obtenus par les deux méthodes, vérifiant ainsi la propriété admise depuis les premiers articles de Itano et Wineland sur le sujet^{25,26} qui dit que quand la raie étudiée est bien plus large que la fréquence d'oscillation, on peut oublier le caractère oscillant du mouvement. La figure II.8 montre d'autres exemples de spectres calculés pour un indice de modulation plus petit ($k_L X = 0.5$). Les profils Doppler obtenus sont très différents en fonction de la largeur naturelle de la raie et la méthode utilisée permet d'exploiter les spectres observés dans tous les cas. Il faut noter ici qu'un mouvement

^ccette température est définie par $k_B T = m\mathcal{V}^2/2$

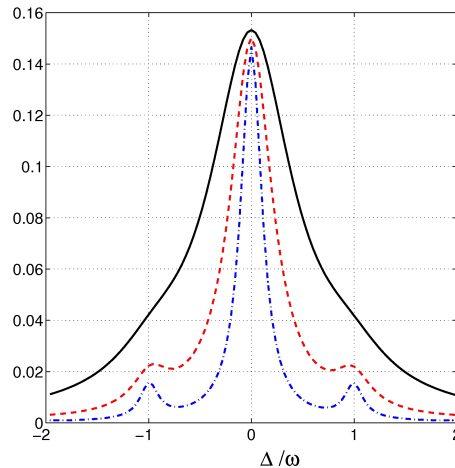


Figure II.8 : Spectre d'absorption d'un atome à deux niveaux, oscillant dans l'onde laser de longueur d'onde 397 nm avec une vitesse $\mathcal{V} \cos(\omega t)$ définie par un indice de modulation $k_L X$ de 0.5 et une interaction laser-atome caractérisée par $\Omega_L = \Gamma/2$. En noir, trait plein : $\mathcal{V} = 5$ m/s, $\omega/2\pi = 25$ MHz et $\Gamma/2\pi = 20$ MHz. En rouge, trait pointillé : $\mathcal{V} = 10$ m/s, $\omega/2\pi = 50$ MHz et $\Gamma/2\pi = 20$ MHz. En bleu, trait mixte : $\mathcal{V} = 10$ m/s, $\omega/2\pi = 50$ MHz et $\Gamma/2\pi = 10$ MHz.

classique d'oscillateur harmonique n'est pas la représentation rigoureuse du mouvement d'un ion refroidi par laser. En effet, le refroidissement laser Doppler résulte en une distribution de vitesses thermiques³⁴ qui se traduit par une distribution de l'amplitude d'oscillation \mathcal{V} . Les courbes des figures II.7 et II.8 doivent donc être convoluées avec une distribution d'amplitude pour refléter un spectre expérimental. Le résultat de cette convolution est présentée en II.9 dans un des cas particuliers déjà montré en II.7. Les résultats montrent que le profil obtenu pour une distribution de vitesse v_k est exactement un profil gaussien alors que l'enveloppe des bandes latérales obtenues quand on conserve l'effet de modulation de phase en diffère légèrement.

Comme la raie utilisée pour le refroidissement Doppler de l'ion calcium fait 23 MHz de large et que les fréquences typiques d'oscillation sont de l'ordre du MHz, on pourrait croire qu'il est inutile de prendre en compte la modulation de phase induite par le mouvement dans l'onde et qu'une distribution de vitesses peut tout aussi bien expliquer les spectres observés. Ce n'est pas si évident quand on s'intéresse au spectre du système complet, à trois niveaux. Dans ce système couplé par deux lasers, se produit un phénomène de piégeage cohérent de population pour une valeur particulière des désaccords. Ce phénomène est expliqué et étudié plus loin en III.1.1 mais ce qui nous intéresse ici est que la résonance noire alors visible dans le spectre est beaucoup fine que la largeur naturelle du niveau excité impliqué. Il est alors pertinent de conserver le caractère oscillant du mouvement dans les simulations pour comprendre son effet sur le profil de cette résonance noire. Par contre, dans l'article présenté en II.3.2, l'enjeu est de démontrer un refroidissement Doppler alternatif, qui permet de descendre la température limite sous la limite Doppler usuelle sans résoudre les bandes latérales dans le spectre. Le caractère oscillant du mouvement y est donc négligé et le formalisme développé pour les atomes neutres non piégés y est exploité.

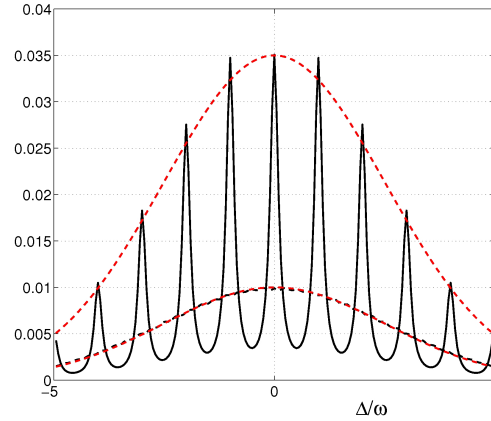


Figure II.9 : Spectre d'absorption d'un atome à deux niveaux, équivalent au système de la courbe de gauche de la figure II.7, avec une distribution d'amplitude de vitesse gaussienne, d'écart type égal à \mathcal{V} . Les courbes pointillés rouge représentent une simple distribution gaussienne d'écart type $k_L \mathcal{V}$.

II.2.2 Description quantique du mouvement et régime de Lamb-Dicke

Dans le cas d'un mouvement oscillant, lorsque l'ion atteint des températures de l'ordre de $\hbar\omega/k_B$, une description classique du mouvement ne suffit pas pour expliquer le spectre observé. Il devient alors nécessaire d'utiliser une représentation quantique du mouvement dans l'interaction laser-atome. Le passage en image d'interaction résulte maintenant en un couplage de la forme

$$\hat{V}^I = \frac{\hbar\Omega_L}{2} (|e\rangle\langle g|e^{-i(\Delta t - \psi)} \exp(i\eta\hat{a}^\dagger e^{i\omega t} + i\eta\hat{a}e^{-i\omega t}) + \text{H.c.}) \quad (\text{II.29})$$

avec $\eta = k_L x_0$, le paramètre de Lamb-Dicke (x_0 est la taille de la fonction d'onde dans le niveau vibrationnel fondamental $\sqrt{\hbar/(2m\omega)}$) et \hat{a}^\dagger et \hat{a} , les opérateurs de création et annihilation de phonons du potentiel harmonique. Par la présence de \hat{a}^\dagger et \hat{a} , l'hamiltonien \hat{V}^I met en évidence le couplage des degrés internes et externes de liberté par une impulsion laser. Les états propres de l'hamiltonien non couplé sont maintenant $|g\rangle|n\rangle$, $|e\rangle|m\rangle$. Pour chaque transition associée à une modification de l'état vibrationnel, une fréquence de Rabi effective peut être définie par

$$\Omega_{n,n+p} = \Omega_L |\langle n+p | e^{i\eta(\hat{a} + \hat{a}^\dagger)} | n \rangle|. \quad (\text{II.30})$$

Cette expression est développée dans le cas général dans un article de R. Glauber de 1969³⁵ mais il est plus instructif ici d'en faire un développement de Taylor en fonction du petit paramètre η . Au second ordre en η :

$$\begin{aligned}
 n \rightarrow n & \quad \Omega_{n,n} = \Omega_L(1 - \eta^2 n) \\
 n \rightarrow n + 1 & \quad \Omega_{n,n+1} = \Omega_L \eta \sqrt{n+1} \\
 n \rightarrow n - 1 & \quad \Omega_{n,n-1} = \Omega_L \eta \sqrt{n} \\
 n \rightarrow n + 2 & \quad \Omega_{n,n+2} = \Omega_L \eta^2 / 2 \sqrt{(n+1)(n+2)} \\
 n \rightarrow n - 2 & \quad \Omega_{n,n-2} = \Omega_L \eta^2 / 2 \sqrt{n(n-1)}
 \end{aligned}$$

Ce développement laisse voir que la force de couplage sur la bande d'ordre p se comporte comme $(\eta\sqrt{n})^p$. Pour $\eta\sqrt{n} \ll 1$, les termes du second ordre sont négligeables et seules les bandes latérales d'ordre 1 sont excitées. Cette limite correspond au régime de Lamb-Dicke pour un ion oscillant, qui peut se définir formellement par le régime de validité de l'approximation $\exp(ikx) \sim 1 + ikx$. Les expériences de métrologie optique menées dans l'équipe ainsi que toutes les expériences basées sur l'exploitation d'une raie très fine dans le spectre des ions nécessitent d'atteindre ce régime. En pratique, cela impose que la largeur du spectre Doppler soit suffisamment réduite pour que la bande centrale (non déplacée par effet Doppler du premier ordre) soit prépondérante sur les bandes latérales d'ordre 1 et que celles d'ordre 2 soient hors du spectre. C'est le refroidissement laser Doppler qui doit permettre d'atteindre ce régime.

L'amplitude d'une bande résulte de la contribution de toutes les transitions impliquant des niveaux vibrationnels différents. La probabilité d'occupation $P(n)$ du niveau n dépend du processus utilisé pour préparer l'état de l'ion. Par exemple, le refroidissement laser Doppler conduit à une distribution thermique de n . Pour avoir un ordre de grandeur, dans un piège miniature typique, le refroidissement Doppler conduit à une distribution caractérisée par $\bar{n} \simeq 5 - 15$. Un aperçu des spectres que l'on peut observer pour différentes températures est donné par la figure II.10. Dans le premier piège à ion unique de calcium de Marseille on a $\bar{n} \simeq 10$ à la limite Doppler. Dans ces conditions, il est nécessaire d'avoir $\eta \ll 1$ pour atteindre $\eta\sqrt{\bar{n}} < 1$ à la fin du processus de refroidissement Doppler. Il est primordial que cette contrainte soit intégrée lors de la conception du piège puisque la dépendance de η décrite par

$$\eta = \frac{2\pi}{\lambda} \sqrt{\frac{\hbar}{2m\omega}} \quad (\text{II.31})$$

montre que pour une transition et un ion donnés, la fréquence d'oscillation dans le piège contrôle le régime de Lamb-Dicke. Typiquement, pour la transition d'horloge du calcium, une fréquence d'oscillation de 1 MHz conduit à une valeur de η proche de 0.1.

Supposons maintenant que le piège a été conçu pour que le refroidissement Doppler permette d'atteindre le régime de Lamb-Dicke, l'hamiltonien d'interaction est alors réduit à

$$\hat{V}^I = \frac{\hbar\Omega_L}{2} |e\rangle\langle g| \left(\hat{1}e^{-i(\Delta t - \psi)} + i\eta\hat{a}^\dagger e^{-i((\Delta - \omega)t - \psi)} + i\eta\hat{a}e^{-i((\Delta + \omega)t - \psi)} + \text{H.c.} \right). \quad (\text{II.32})$$

L'interaction laser se réduit alors à trois composantes :

$$\begin{aligned}
 n \rightarrow n & \quad \Omega_{n,n} = \Omega_L \\
 n \rightarrow n + 1 & \quad \Omega_{n,n+1} = \Omega_L \eta \sqrt{n+1} \\
 n \rightarrow n - 1 & \quad \Omega_{n,n-1} = \Omega_L \eta \sqrt{n}
 \end{aligned}$$

Comme $\Omega_{n,n\pm 1}$ dépend du niveau vibrationnel n , l'excitation doit être calculée pour chaque n et pondérée par sa probabilité d'occupation $P(n)$. Dans le cas du refroidissement laser, cette

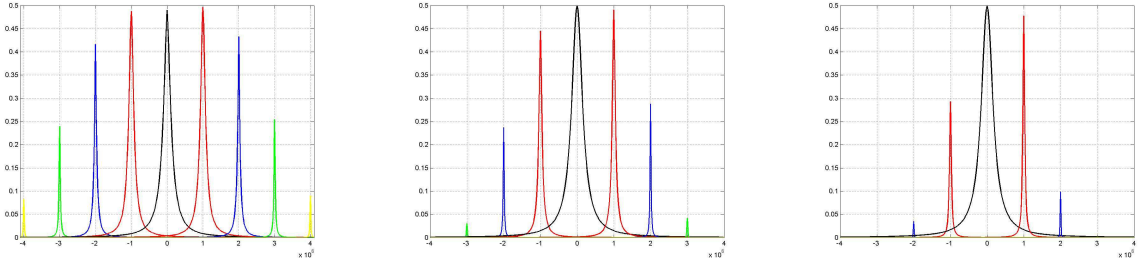


Figure II.10 : Contribution de chaque bande dans les spectres calculés dans le cas quantique pour un ion de calcium $^{40}\text{Ca}^+$ et une distribution thermique d'occupation des niveaux vibrationnels. Fréquence de Rabi $\Omega_L/2\pi = 1$ kHz, largeur spectrale du laser $\Gamma_L/2\pi = 10$ kHz, $\lambda_L = 730$ nm, $\omega/2\pi = 1$ MHz : $\eta_0 = 0.094$. À gauche : $T = 2.5$ mK et $\bar{n} = 51.6$, au centre : $T = T_D = 0.5$ mK, $\bar{n} = 10$, à droite : $T = 0.1$ mK $\bar{n} = 1.6$. Si on choisit une fréquence de Rabi plus faible, les bandes latérales du second ordre sont déjà très faibles pour $T = T_D$. La dissymétrie entre l'amplitude des bandes $\pm q$ est la signature du régime quantique du mouvement.

probabilité est très bien représentée par l'équilibre thermodynamique

$$P(n) = \frac{1}{1 + \bar{n}} \left(\frac{\bar{n}}{1 + \bar{n}} \right)^n. \quad (\text{II.33})$$

La probabilité d'excitation à résonance sur la première bande latérale bleue (BLB) $\Delta n = +1$ (soit $\Delta = +\omega$) est

$$S_{BLB} = \sum_{n=0}^{\infty} P(n) \frac{1}{2} \frac{\Omega_L^2 \eta^2 (n+1)}{\Omega_L^2 \eta^2 (n+1) + \Gamma^2/2}, \quad (\text{II.34})$$

celle pour la première bande latérale rouge (BLR) $\Delta n = -1$ (soit $\Delta = -\omega$) est légèrement différente

$$S_{BLR} = \sum_{n=1}^{\infty} P(n) \frac{1}{2} \frac{\Omega_L^2 \eta^2 n}{\Omega_L^2 \eta^2 n + \Gamma^2/2} \quad (\text{II.35})$$

Par la relation $P(n+1) = \bar{n}/(1+\bar{n})P(n)$, on peut montrer une relation générale qui permet de mesurer expérimentalement le nombre moyen d'occupation \bar{n} :

$$\frac{S_{BLR}}{S_{BLB}} = \frac{\bar{n}}{1 + \bar{n}}. \quad (\text{II.36})$$

Cette dissymétrie entre les bandes bleues et rouges, illustrée dans les spectres calculés de la figure II.10 est une signature du régime quantique du mouvement. En effet, le modèle classique développé en II.2.1 ne permet pas d'expliquer cette différence, observée expérimentalement sur des ions suffisamment froids. Elle est importante si la population de l'état fondamental vibrationnel est non négligeable car alors $\bar{n} \rightarrow 0$ et l'amplitude de la bande rouge tend vers 0^d.

Quand le nombre moyen d'occupation des états vibrationnels est élevé, la méthode précédente devient fastidieuse à mettre en place et n'est pas la plus adaptée pour rendre compte du

^dil n'y a pas de niveau $n = -1$ pour permettre une transition "rouge" au départ de $n = 0$

mouvement de l'ion dans le spectre. Dans la limite semi-classique où le mouvement est toujours décrit par un oscillateur harmonique quantique mais où \bar{n} est suffisamment grand pour que $\bar{n} \pm 1 \simeq \bar{n}$, on peut utiliser la méthode du développement en série de Floquet^e, qui est pertinente si seulement les premières bandes latérales du mouvement sont excitées (voire marginalement les deuxièmes). Cette condition, équivalente au régime de Lamb-Dicke, impose $\eta\sqrt{\bar{n}} < 1$. Il faut que η soit suffisamment petit^f pour permettre $\eta\sqrt{\bar{n}} < 1$ avec $\bar{n} \geq 10$.

L'idée est de développer l'hamiltonien de couplage atome-laser $\hat{V}^I(t)$ au premier ordre en η (comme en II.2.2), ce qui permet de définir des hamiltoniens indépendants du temps à partir de la fréquence d'oscillation ω :

$$\hat{V}^I(t) = \hat{V}_{(0)}^I + e^{i\omega t}\hat{V}_+^I + e^{-i\omega t}\hat{V}_-^I, \quad (\text{II.37})$$

avec $\hat{V}_{(0)}^I$ l'hamiltonien pour un ion immobile et \hat{V}_\pm^I l'hamiltonien qui couple les états vibrationnels n et $n \pm 1$:

$$\begin{aligned} \hat{V}_{(0)}^I &= \frac{\hbar\Omega_L}{2}|2\rangle\langle 1| + \text{H.c} \\ \hat{V}_\pm^I &= i\eta\frac{\hbar\Omega_L}{2}|2\rangle\langle 1| + \text{H.c}. \end{aligned}$$

L'évolution de la matrice densité sous cet hamiltonien est calculable facilement si on décompose la matrice densité en série de Floquet associée aux niveaux vibrationnels n :

$$\rho = \sum_{n=-\infty}^{\infty} \rho^{(n)} e^{in\omega t}. \quad (\text{II.38})$$

On obtient alors un jeu d'équations couplées entre les matrices densité représentant les états sur les niveaux n et $n \pm 1$:

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t}\rho^{(n)} &= -in\omega\rho^{(n)} - \frac{i}{\hbar}[\hat{H}_0 + \hat{V}_{(0)}^I, \rho^{(n)}] \\ &\quad - \frac{i}{\hbar}[\hat{V}_+^I, \rho^{(n-1)}] - \frac{i}{\hbar}[\hat{V}_-^I, \rho^{(n+1)}] + \mathcal{L}\rho^{(n)}. \end{aligned} \quad (\text{II.39})$$

Dans la pratique, là où il y a une matrice pour générer la solution des EBO pour un ion immobile, il y en a 9 pour un ion oscillant dans la limite semi-classique. Les 8 matrices supplémentaires se déduisent facilement de la matrice d'origine, qu'il faut aussi décaler en énergie propre de $\pm\hbar\omega$. Par l'hypothèse $n \pm 1 \simeq n$, et le traitement numérique qui ne dépend pas explicitement de n , on voit bien que cette méthode ne permet pas de prévoir le profil dissymétrique des bandes latérales dans la limite ultra-froide $n \rightarrow 0$ qu'on a vu en II.2.2.

Cette méthode s'adapte à n'importe quelle structure interne et un exemple d'utilisation de cette méthode dans un système à quatre niveaux couplés par trois lasers est donné dans l'article reproduit en III.2.2. De plus, elle s'extrapole facilement au cas où plusieurs fréquence du mouvement sont présentes dans le spectre, dans la mesure où elles ne sont pas dans un rapport rationnel. C'est cette méthode que j'ai utilisée pour comprendre les spectres de bandes latérales

^eUn grand merci à Giovanna Morigi qui m'a appris cette méthode

^fle paramètre de Lamb-Dicke η est défini en II.2.2

obtenus dans notre expérience, sur la transition $S_{1/2} \rightarrow D_{5/2}$ en champ magnétique non nul. Ces spectres, dont un exemple est sur la figure II.11, incluent quatre transitions entre sous-niveaux Zeeman ($\Delta m_J = \pm 1$ depuis $m_J = \pm 1/2$) et les bandes latérales du premier et deuxième ordre induites par les oscillations le long de l'axe de symétrie du piège (ω_z) et dans le plan radial (ω_x). La prise en compte des bandes de deuxième ordre nécessite une petite pirouette, comparée aux Eq. (II.39), mais ne change pas la structure de la méthode. Les spectres observés et calculés sont loin d'être identiques mais le calcul aide à comprendre l'origine de l'allure des spectres.

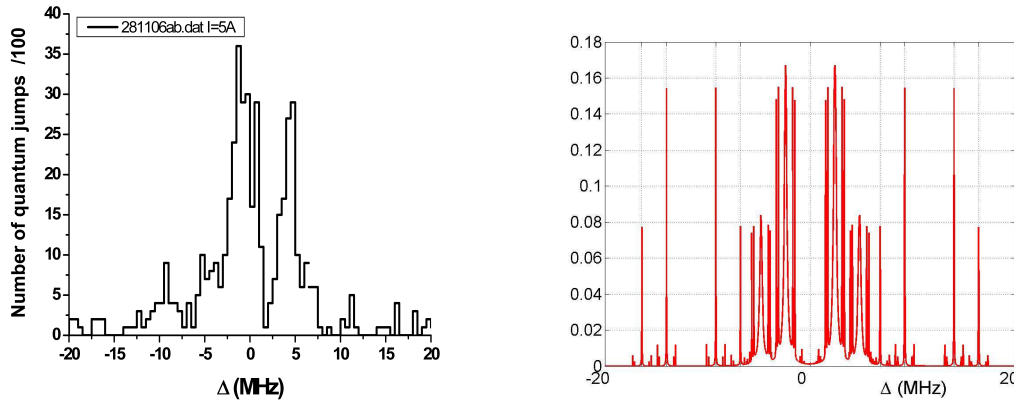


Figure II.11 : Spectre expérimental (à gauche) et calculé par la méthode de Floquet (à droite) de la transition $S_{1/2} \rightarrow D_{5/2}$ d'un ion de calcium $^{40}\text{Ca}^+$. Il inclut les 4 transitions $\Delta m_J = \pm 1$ depuis $m_J = \pm 1/2$ dans un champ magnétique de 3 gauss.

Comment réalise-t-on dans la pratique le spectre Doppler d'une transition qui émet en moyenne un photon par seconde? La réponse est dans le paragraphe suivant.

II.2.3 Détection de l'état interne d'un ion unique de calcium

Observer un spectre Doppler où les bandes latérales sont résolues nécessite que $\Gamma \ll \omega$. Dans la pratique, on réalise de tels spectres sur la transition d'horloge du calcium dont le taux d'émission spontanée est de l'ordre de 1 par seconde. Il n'est donc pas réaliste d'envisager la collection des photons émis sur cette transition, sachant que l'efficacité de collection dépasse rarement 0.1%. La méthode qui permet de surmonter ce problème a été inventée par H. Dehmelt (prix Nobel de physique 1989) et a été baptisée *electron shelving*³⁶ ou mettre l'électron sur l'étagère. Le principe de cette méthode repose sur la structure interne des ions qui permet de créer (en première approximation), un système en V. La méthode fait ici référence à la structure de l'ion calcium mais elle est transposable à toute une famille d'ions.

La figure II.6 montre les premiers niveaux d'énergie de l'ion calcium. La transition dipolaire électrique $4sS_{1/2} \rightarrow 4pP_{1/2}$ à 397 nm est utilisée pour le refroidissement Doppler et pour la détection d'un ou plusieurs ions par les photons diffusés à cette longueur d'onde. La transition $4sS_{1/2} \rightarrow 3dD_{5/2}$ à 729 nm est une transition quadrupolaire électrique, dite transition d'horloge quand on veut développer une horloge à fréquence optique. Voici donc le schéma en V nécessaire

à l'*electron shelving*. En pratique, pour que cela fonctionne il faut un troisième laser accordé sur la transition dipolaire $3dD_{3/2} \rightarrow 4pP_{1/2}$ à 866 nm pour empêcher le pompage de l'ion dans l'état $D_{3/2}$, d'une durée de vie aussi de l'ordre de la seconde. La présence de ce laser repompeur ne change en rien le principe de la méthode : Sur la transition dipolaire, le taux de fluorescence collectée est de l'ordre de 10 000-50 000 c/s alors que sur la transition quadripolaire, le temps typique d'évolution de l'état interne est de l'ordre de 100 ms, ce qui est comparable voire plus grand que le temps d'acquisition du signal dans ce type d'expérience. Par conséquent, quand les lasers excitent ces deux transitions, le signal récolté peut prendre deux valeurs (voir figure II.12). Soit l'atome est dans le sous-espace $\{S_{1/2}; P_{1/2}\}$ et le signal est élevé, soit il est dans l'état métastable, y reste une seconde en moyenne, et le signal est bas. L'électron responsable de l'état électronique est ainsi "sur l'étagère" et le signal récolté est bas (c'est le bruit de fond). Ces sauts abruptes dans le signal, appelés sauts quantiques, sont la signature de l'excitation de l'atome dans l'état métastable $D_{5/2}$. Le fait que le signal n'ait que deux valeurs démontre la présence d'un émetteur unique. Les premières observations expérimentales d'*electron shelving* eurent lieu en 1986 dans trois laboratoires, le groupe de H. Dehmelt à Washington³⁷, le groupe de P. Toschek à Hamburg³⁸ et le groupe du NIST³⁹ (D. Wineland, W. Itano, J. Bergquist et collaborateurs).

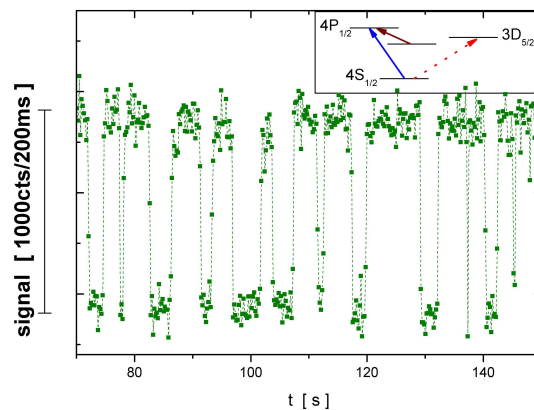


Figure II.12 : Sauts quantiques mesurés dans le signal de fluorescence émis par un ion de calcium unique. En vignette, les transitions excitées par laser lors de l'observation de ce signal.

La mesure de la durée moyenne des séquences de signal bas permet de mesurer la durée de vie de l'état métastable. Nous avons réalisé une telle mesure sur un ion unique et un nuage d'ions, dans le même dispositif expérimental. La comparaison des deux expériences est très instructive car les biais statistiques sont de nature différente pour un émetteur unique et un nuage même petit (de 50 à 100 ions), le nombre d'événements rares étant non négligeable. Par ailleurs, l'évaluation des biais expérimentaux que sont les collisions, la perte d'ions et l'effet Stark alternatif induit par les différents lasers fournit une très bonne étude préparatoire à la réalisation d'une horloge. La réduction de ces biais est nécessaire avant toute poursuite de l'expérience. La mesure de la durée de vie nécessite une excitation séquentielle sur la transition d'horloge, le laser d'horloge étant bloqué quand l'ion est dans l'état excité, pour éviter sa désexcitation stimulée.

Metastable level lifetimes from electron-shelving measurements with ion clouds and single ions

M. Knoop^a, C. Champenois, G. Hagel, M. Houssin, C. Lisowski, M. Vedel, and F. Vedel

Physique des Interactions Ioniques et Moléculaires, CNRS – Université de Provence (UMR 6633), Centre de Saint Jérôme, Case C21, 13397 Marseille Cedex 20, France

Received 12 September 2003 / Received in final form 14 November 2003

Published online 24 February 2004 – © EDP Sciences, Società Italiana di Fisica, Springer-Verlag 2004

Abstract. The lifetime of the $3d^2D_{5/2}$ -level in singly-ionized calcium has been measured by the electron-shelving technique on different samples of rf trapped ions. The metastable state has been directly populated by exciting the dipole-forbidden $4S_{1/2} - 3D_{5/2}$ transition. In ion clouds, the natural lifetime of this metastable level has been measured to be (1095 ± 27) ms. For the single-ion case, we determined a lifetime of (1152 ± 20) ms. The 1σ -error bars at the 2%-level have different origins for the two kinds of experiments: data fitting methods for lifetime measurements in an ion cloud and control of experimental parameters for a single ion. De-shelving effects are extensively discussed. The influence of differing approaches for the processing of the single-ion quantum jump data on the lifetime values is shown. Comparison with recent measurements shows excellent agreement when evaluated from a given method.

PACS. 32.70.Cs Oscillator strengths, lifetimes, transition moments – 32.80.Pj Optical cooling of atoms, trapping

1 Introduction

High-precision atomic lifetime measurements are a challenge for experimental and theoretical atomic physics. Increasing volume and precision of astrophysical observations have generated a growing need for precise atomic lifetime data [1]. Among all the interesting atomic systems, atoms with a closed inner shell and a single additional valence electron offer the possibility to accurately compare the results of atomic data modeling and experimental values.

There have been various theoretical approaches to the low-lying metastable doublet levels of $^{40}\text{Ca}^+$ which have generated somewhat dispersed metastable lifetime predictions [2–10]. In the past decade the lifetimes of the metastable D-levels of the singly-ionized calcium have also been measured several times [11–21]. Most of these measurements have been carried out in rf traps, showing a clear evolution towards longer lifetimes throughout the years, as error sources have been identified. In particular, before 1999, the coupling of the metastable D-levels to the P-state due to off-resonant excitation by the repumper laser [18], had not been taken into account at all. As will be shown in this paper, ion-ion collisions in a relative hot and dense ion cloud ($k_B T \simeq 1$ eV, $n \simeq 10^8$ cm⁻³) may also contribute a few percent to the lifetime reduction. These two effects explain the gap between the earlier ion-cloud measurements and recent single-ion measurements. The

experiments which have been carried out on single laser-cooled ions show a typical error bar of the order of 2%, with the exception of one experiment [20], where the announced uncertainty is inferior to 0.6% and which gives the highest value ever measured for the $3D_{5/2}$ -lifetime. In this article, we present our new measurements of the lifetime of the $3D_{5/2}$ -state which have been carried out in a different way. In fact, we achieve population of the metastable level by direct pumping of the electric quadrupole transition which connects the ground state to the $3D_{5/2}$ -state. We have also been able to establish a connection between the different published values, the discrepancy being mainly due to differing data analysis.

Single trapped ions are now extensively used for metrology and quantum information [22]. Storage times can exceed days, and the control of the trapping environment along with the degree of laser stabilization have been improved to access linewidths of optical transitions down to the Hz-level [23]. Our experimental project aims to propose a frequency standard in the optical domain, based on the interrogation of the $4S_{1/2} - 3D_{5/2}$ electric quadrupole transition of a single laser-cooled Ca^+ -ion. The measurement of the metastable $3D_{5/2}$ -level lifetime is an important step in this direction, allowing to identify and to control effects which may reduce this lifetime, and which could thus contribute to the broadening of the clock transition.

In this paper, we briefly present our experimental device, and introduce the technique we have used to measure

^a e-mail: mknoop@up.univ-mrs.fr

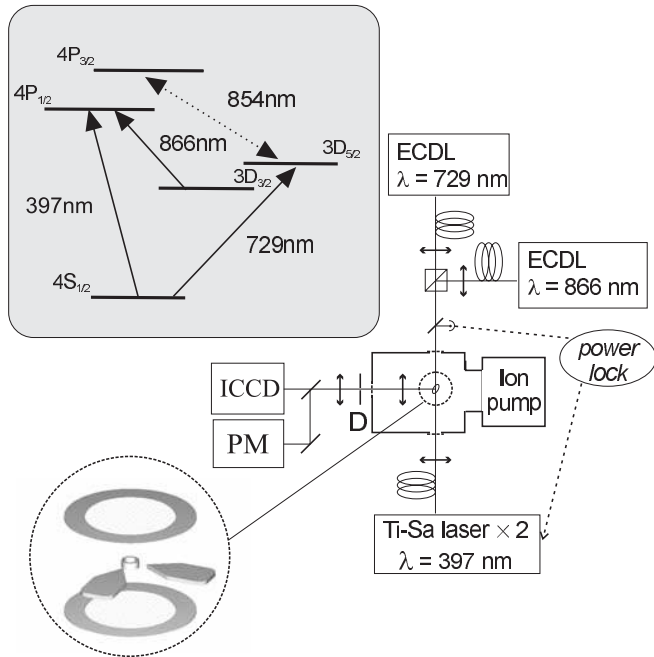


Fig. 1. Experimental set-up of the miniature ion trap. The insets show the Ca^+ lowest lying levels and the geometry of the miniature trap surrounded by the four compensation electrodes.

metastable lifetimes in ion clouds and single ions. We then present the different data processing methods. The fourth part of this article is devoted to the discussion of the uncertainties of our measurements. We finally present and discuss our results in the context of previous experiments.

2 Experimental set-up

We use a miniature ion trap to confine single ions and ion clouds up to approximately 500 particles. The trap is a modified Paul trap, a so-called Paul-Straubel trap [24] consisting of a cylindrical molybdenum ring with an inner diameter of $2r_0 = 1.4$ mm and a total ring height of $2z_1 = 0.85$ mm (Fig. 1). Two circular mesh electrodes at 5.5 mm on each side from the trap center, allow the definition of well controlled electrical boundary conditions. Two copper tip electrodes in the plane of the trapping ring are used as positioning electrodes to correct for imperfections and asymmetries in the trapping potential and thus to reduce the micromotion of the confined ions. The applied trapping frequency $\Omega/2\pi = 11.6$ MHz with an rf voltage amplitude of 300 V, gives rise to a total pseudopotential well depth of 1.9 eV and motional frequencies around $\omega_i/2\pi = 1.5$ MHz. The trap has been fully characterized and is described in detail in [25]. The trapping setup is mounted into an ultra-high vacuum vessel and baked out at 150 °C during a couple of days. Vacuum conditions can be controlled by the ion pump current, a Bayard-Alpert gauge and a mass spectrometer operating up to 64 a.m.u. Ions in the trap are created from a calcium

oven heated by a direct current of 3 A. The effusive atom beam is crossed with a low-energy electron beam in the center of the trap producing singly-ionized calcium ions.

Laser-cooling is carried out on the $4S_{1/2} - 4P_{1/2}$ electric dipole transition at 397 nm using an intracavity frequency-doubled TiSa-laser [Coherent 899]. The output intensity of this laser is stabilized by a single-pass acousto-optical modulator (AOM), the error signal is fed back from a beam pick-up photodiode after crossing the trap. The optical power used for laser-cooling is about $50 \mu\text{W}$ in the case of an ion cloud, and an order of magnitude lower for a single ion, focussed in a $20 \mu\text{m}$ -diameter waist (measured at $1/e^2$ power level). The linewidth of this laser has been found to be below 10 MHz in the course of our experiments. Due to a branching ratio to the $3D_{3/2}$ -level larger than 5%, repumping from this level is required, and is assured by a single-mode diode laser at 866 nm mounted in a Littrow-configuration external cavity (ECDL). This diode laser is stabilized to a low finesse ($\mathcal{F} = 200$) reference cavity reducing its linewidth to about 1 MHz and improving its frequency stability. Stable operation during a whole day is achieved by locking the length of the reference cavity to a hyperfine transition of neutral caesium making use of an additional ECDL at 852 nm and a standard saturated-absorption setup. Typical power for the 866 nm-diode is about $200 \mu\text{W}$ focussed into a $70 \mu\text{m}$ -diameter waist. A broad-area laser diode is used to probe the electric quadrupole transition $4S_{1/2} - 3D_{5/2}$ at 729 nm. The nominal output power of this laser diode is 100 mW and its free-running linewidth is as large as 2 nm. This diode has been set up in an external cavity in Littrow configuration and pre-stabilized by electronic feedback onto a low-finesse reference cavity ($\mathcal{F} = 200$). We thus obtain a laser linewidth in the MHz-range and a laser intensity of approximately $350 \mu\text{W}$ per $60 \mu\text{m}$ -diameter waist size in the trap [26].

Two mechanical shutters in the 729 nm-beam line allow to cut the light from this laser completely. Their closing time is in the ms-range, inferior to the smallest measurement interval used throughout the experiment. All the laser beams used in this experiment are brought to the ion trap by single-mode optical fibers. This ensures the spatial filtering of the laser beams and gives rise to well controlled waist sizes at the position of the ion. However, the main advantage of these fibers is to increase the pointing stability of the laser beams, which improves the day-to-day reproducibility of the measurements essential for trapping single ions.

Detection of the fluorescence of the ions at 397 nm is made outside the vacuum vessel (Fig. 1). The fluorescence signal is spatially filtered by a small diaphragm (diameter below $500 \mu\text{m}$) and then projected onto an intensified CCD camera (ICCD) and a photomultiplier (PM) in photon counting mode. A variable beamsplitter between these two devices allows to choose the fraction of signal sent to the photomultiplier between 10 and 100%. The maximum fluorescence count is about 10000 counts/s for a single ion. Data is collected and stored by a personal computer, that also controls the ion creation process and actuates

the laser shutters. Excellent temporal synchronization is assured by buffer-controlled read-out on the data acquisition board. The typical duration of a measurement bin is 50 ms for the ion cloud measurements and 30 ms for the single-ion measurements.

3 Electron shelving

All our lifetime measurements have been performed in the same trap, in a very similar way for a small ion cloud or a single ion. In both cases, ions have been laser-cooled on the strong $4S_{1/2} - 4P_{1/2}$ electric dipole transition and detected by the scattered 397 nm-photons. We have used the technique of electron-shelving proposed by Dehmelt [27] for the whole set of measurements. This method allows to observe transitions on the forbidden electric quadrupole line via the switching of the strong laser-cooling transition at 397 nm. In our experiment the $3D_{5/2}$ -state has been populated by direct optical pumping of the dipole-forbidden $4S_{1/2} - 3D_{5/2}$ transition, technique which has not yet been applied in the lifetime measurements with single trapped Ca^+ -ions. The direct excitation of this electric quadrupole transition allows an unambiguous definition of initial conditions.

3.1 Measurements in an ion cloud

A typical ion cloud contains 50 to 100 Ca^+ -ions which are laser-cooled to a temperature of about 50 K, temperature which is defined as a measure of the kinetic energy of the trapped particles. This temperature value stands for an equilibrium between the heating of the ions by the trapping field and the laser-cooling.

To measure the $3D_{5/2}$ -level lifetime in an ion cloud we use approximately $350 \mu\text{W}$ of 729 nm-power. Once the resonant laser beam is admitted onto the ions, a fraction of the ions is pumped into the $3D_{5/2}$ -state and the observed fluorescence signal at 397 nm decreases. The experimental signal is shown in Figure 2. When the population of the $3D_{5/2}$ -state has reached an equilibrium state which is represented by a constant fluorescence level, we shut off the 729 nm diode laser. The ion population then decays to the ground state with a time constant governed by the $3D_{5/2}$ -state natural lifetime. This decay can be observed on the 397 nm fluorescence signal as the decaying ions return into the laser-cooling cycle and scatter blue photons. The revival function of the 397 nm fluorescence is fitted with a least-squares method (LSF) by the function $F(t) = S_0 + S(1 - \exp(-t/\tau_m))$ where τ_m is the measured lifetime for a given set of experimental parameters, S the net ion signal and S_0 the low-level signal being composed by the fluorescence signal of the ions remaining in the laser-cooling cycle and the background signal due to stray light. Actually, the measured lifetime τ_m is the natural lifetime of the $3D_{5/2}$ -level affected by different de-shelving effects as will be discussed in Section 4. The result for the measured lifetime in an ion cloud is $\tau_{nat} = 1095 \text{ ms}$ with an 1σ -statistical uncertainty of 7.5 ms.

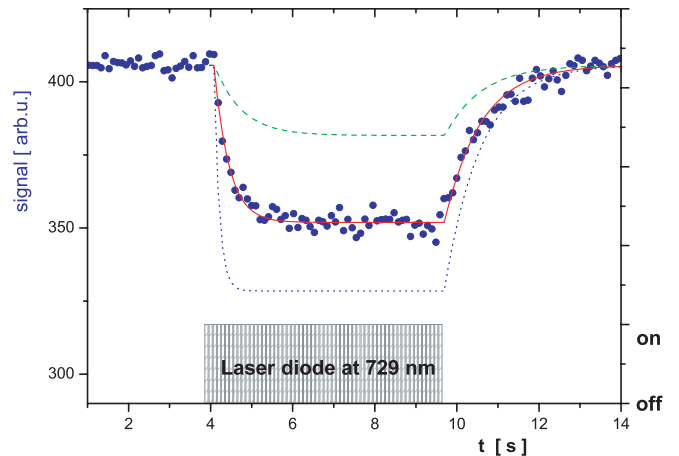


Fig. 2. Electron-shelving data in an ion cloud. The applied 729-nm laser power has been recorded simultaneously and is shown in the lower trace. The lines show simulation data by the density matrix formalism with various power levels for the probing laser at 729 nm ($0.25I_0$ (dashed), I_0 (solid), $4I_0$ (dotted)).

We have made simulations in an ion cloud of the population of all the atomic levels involved ($S_{1/2}$, $P_{1/2}$, $D_{3/2}$, $D_{5/2}$) with the use of the density matrix formalism taking into account the ion motion in the trap. The oscillatory movement of the ion cloud is described by a distribution of the velocity amplitudes at a single frequency [28]. In this coupled four-level system, the fraction of ions which are pumped into the metastable $D_{5/2}$ -state depends on the relative detuning of the three lasers used for cooling, repumping and probing of the clock transition, a phenomenon comparable to the occurrence of dark resonances. The simulation shows, that it is possible to pump almost the entire ion population into the metastable state if the ions are nearly at rest [29]. The second parameter which is critical for the reproduction of the shelving curves is of course the laser power. The lines in Figure 2 visualize the simulated fluorescence curves for a cloud of 50 ions with a temperature of 100 K, assuming that the fluorescence is directly proportional to the $P_{1/2}$ -population. In the plotted simulations the relative laser detuning has been fixed while the power levels of the probing laser at 729 nm are varied. The right choice of relative laser detunings and absolute laser power levels enables us to reproduce accurately both the speed of the decrease of the fluorescence as ions leave the laser cooling cycle ($t = 4-9 \text{ s}$) and the fraction of the ions being pumped into the $D_{5/2}$ -level. As a matter of course, the revival of the fluorescence depends only on the lifetime of the $3D_{5/2}$ -state for the given set of experimental parameters.

3.2 Measurements with a single ion

Experiments with single ions have been carried out during twelve 6 h-runs with single ions laser-cooled to temperatures below 1 K. As the temperature of the ion is

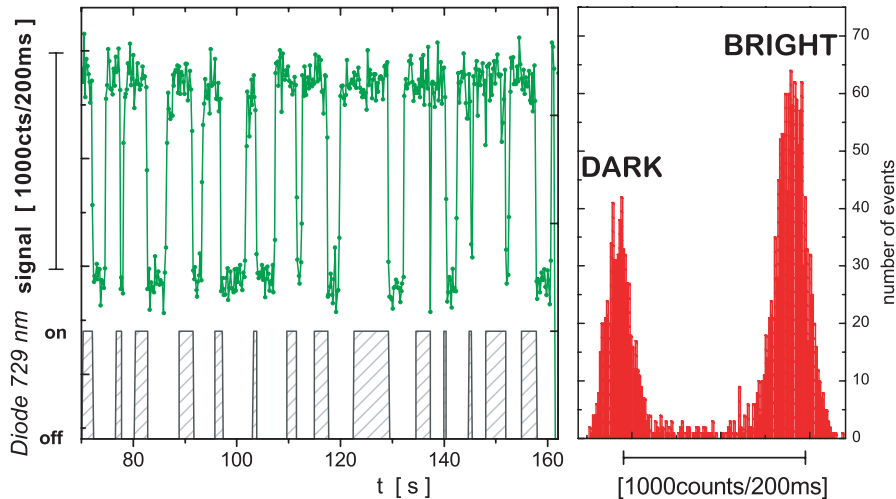


Fig. 3. *Left:* quantum jumps of a single Ca^+ ion in the temporal evolution of the fluorescence signal, the lower trace shows the switching of the exciting diode laser at 729 nm; *right:* histogram of the fluorescence signal visualizing the distinction between the upper and the lower trace.

estimated from the asymmetric Doppler profile which is largely depending on the optical power used for laser-cooling, this value is an upper limit to the estimate of the kinetic energy.

When the electron-shelving technique is applied to a single ion, the observed fluorescence signal becomes binary. Actually, while the ion is in the laser-cooling cycle, a large number of blue photons is scattered giving rise to a high photon count rate (“bright” level), see Figure 3. When the 729 nm laser diode is admitted onto the ion, it will be pumped into the $3D_{5/2}$ -level. The fluorescence rate at 397 nm will then abruptly fall to the low level, which corresponds to the background light (“dark” level). As soon as we detect a “dark” level signal, the 729-nm laser is shut off to avoid any coupling between the levels, as discussed in detail in Section 4. The sudden changes in fluorescence due to transitions between atomic levels are called quantum jumps. Figure 3 shows the good distinction between the bright and the dark level. This allows to define an unambiguous threshold value for the determination of the duration of the quantum jumps. Typically, we have set the threshold value at the half of the net signal value, which is the difference between the mean upper trace and the mean lower trace. The timebase of the data acquisition has been chosen to give a maximum separation of bright and dark level together with best temporal resolution. Thus, variation of the threshold value separating dark and bright level between one third and two third of the net signal did not result in variations of the quantum jump length distribution.

The duration of the dark intervals have been processed by two different methods. First, they have been binned in a histogram and fitted by a least-squares method (LSF) using an exponential decay curve ($F(t) = A \exp(-t/\tau_m)$) with two free parameters (A and τ_m) at a 95% confidence level (Fig. 4). Taking into account the de-shelving by the 866 nm-diode as discussed in Section 4, the obtained lifetime value is $\tau_{nat} = 1088$ ms with a fitting uncertainty of 15 ms. This fitting procedure assumes that the mea-

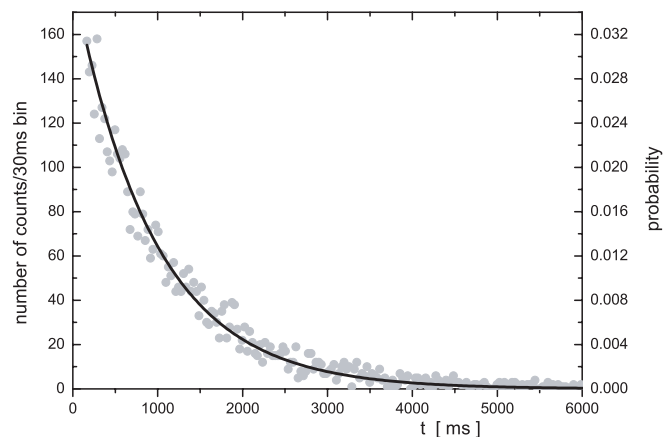


Fig. 4. Histogram of the duration of the measured dark intervals observed with a single ion. The left y -axis scale represents the absolute event counts, while the right scale indicates the probability of the event.

sured number of events for each bin spreads around the fitted equation with a Gaussian probability distribution. Actually, the probability of very long events is in most cases very low (see Fig. 4), suggesting that deviations from the mean are not governed by a Gaussian distribution. It is then appropriate to apply the most general evaluation method, assuming a multinomial distribution, and calculating the lifetime by a maximum likelihood estimate (MLE). Recent measurements [20, 21] have evaluated the metastable lifetime by using the method of the MLE obtaining values larger than 1150 ms. We have used the following formula [21] to calculate the lifetime by

$$\tau_m = \frac{\Delta t}{\ln(1 + \frac{\Delta t}{\bar{t}})}, \quad \text{with} \quad \bar{t} = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N n_i t_i \quad (1)$$

where Δt is the bin size of the histogram, \bar{t} is the mean value of the n_i measured dark intervals of duration t_i , and N is the total number of measured events.

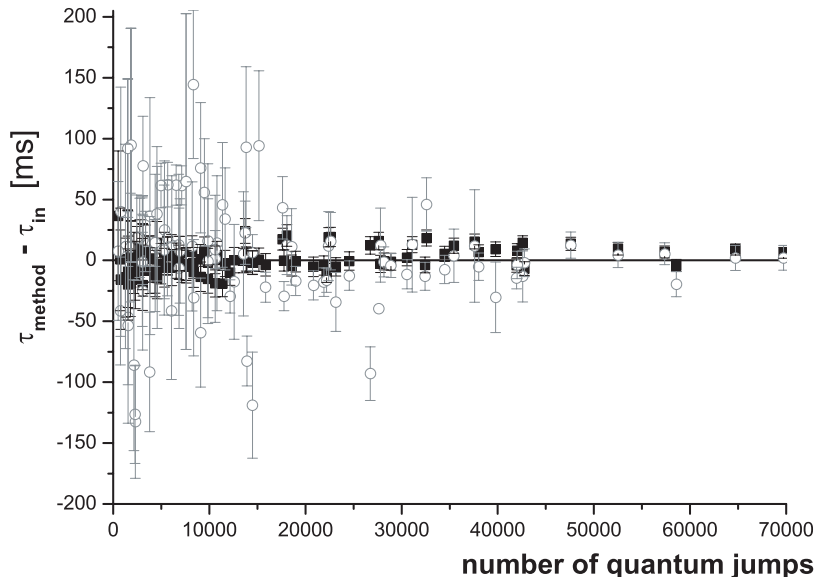


Fig. 5. Comparison of simulated lifetime data using MLE (■) and LSF (○) as a function of the number of quantum jumps. The graph shows the difference between the evaluated lifetimes and the lifetime injected into the simulation process (τ_{in}). Both methods tend to produce identical results on a 2%-level only starting around 40 000 events.

The statistical uncertainty for each data set can be exactly computed by

$$\sigma = \sqrt{\frac{\tau^2}{N} \left[1 + \frac{1}{12} \left(\frac{\Delta t}{\tau} \right)^2 + \mathcal{O} \left(\frac{\Delta t}{\tau} \right) \right]}. \quad (2)$$

Depending on the number of quantum jumps per run, the statistical uncertainty has been found to be below 3%. Extrapolation to zero 866 nm-intensity gives a value for the natural lifetime of $\tau_{nat} = 1152$ ms, with a fitting uncertainty of 19 ms, which is discussed in Section 4.2.

To determine the appropriate method for the evaluation of the quantum jump data, we have simulated quantum jump events using the Monte-Carlo method, governed by a fixed input lifetime τ_{in} and with the same time base as in our experiment. These quantum jump lengths have been allotted randomly in files of different size starting at about 500 quantum jumps up to about 100 000. Each file has been processed by a least-squares fit to an exponential decay curve of the histogram of durations and by the maximum-likelihood estimate for the whole data set. The two data processing methods have been carried out in a totally identical way to the treatment of the experimental data. The obtained values are plotted in Figure 5 as a function of the number of quantum jump events contained in the processed file. As can be seen, LSF data are more widely scattered around the input lifetime of the simulation. At about 10 000 events the scattering of the MLE data is roughly a factor of three smaller than for LSF, values for both methods converge on a 2%-level only for runs with more than 40 000 valid quantum jumps. Actually, the MLE method is well-known in mathematics as a precise unbiased estimator, it reaches asymptotically the Cramér-Rao bound which describes the best attainable error [30]. In general, as the average time needed to record one quantum jump is of the order of two or three seconds including the preparation time, a few-hour run of data

acquisition yields several thousands quantum jumps. In this range the difference between both methods may easily reach 10% of the absolute values, the 5.5%-discrepancy of our experimental results largely fits into this window. In summary, the number of quantum jump events we acquire in the course of a one-day run, imposes the use of MLE to reach minimum statistical uncertainties.

4 Evaluation of uncertainties

Among the uncertainties on the measured lifetimes of the metastable $3D_{5/2}$ -level of Ca^+ we distinguish between the ones which are due to physical effects which may affect the apparent lifetime of the state and those due to data analysis.

4.1 De-shelving effects

The lifetimes we measure in the course of our experiments are function of the experimental parameters as various physical effects tend to shorten the observed lifetimes. The major de-shelving effects are collisions with the residual gas, heating or loss of the ions, and coupling of the atomic levels by laser light. The measured lifetime τ_m can therefore be expressed as

$$\frac{1}{\tau_m} = \frac{1}{\tau_{nat}} + n_B(\Gamma_{quench} + \Gamma_{mix}) + \gamma_{heat} + \gamma_{loss} + \gamma_{coupling}. \quad (3)$$

with n_B the residual particle density in the trapping device. We will discuss the influence of these de-shelving effects in detail in the following, their quantitative influence on the measured lifetimes is summarized in Table 1.

We have looked for an eventual effect of the trapping potential and of the detuning of the 397 nm laser. Both parameters could influence the temperature of the trapped

Table 1. Error budget for the measurements of the $3D_{5/2}$ metastable lifetime. Data has been processed using least-squares fit (LSF) and multinomial maximum-likelihood estimate (MLE). The fitting uncertainty in the extrapolation of the quantum jump data includes the uncertainty on the power measurement.

evaluation method	ion cloud measurement		quantum jump measurements	
	LSF		LSF	MLE
	$\tau = 1095$ ms		$\tau = 1088$ ms	$\tau = 1152$ ms
fitting uncertainty	7.5 ms		15 ms	19 ms
data analysis	17.5 ms		-	-
collisions	(2.1 ± 1.9) ms and (16.8 ± 12) ms		3.5 ms	3.5 ms
heating	1.1 ms		-	-
ion loss	8.4 ms		-	-
total error bar (1σ)	27 ms		16 ms	20 ms

ions and eventually give rise to an increased amount of collisions. Nevertheless, we could not evidence any variation of the measured lifetime in the limit of the announced error bars.

4.1.1 Collisional effects

The apparent lifetime of the metastable state can be reduced by inelastic collisions with (neutral) particles from the residual gas background. The base pressure of the ultra-high vacuum vessel is below 5×10^{-10} mbar as measured by the ion pump current and the two gauges. From our previous measures of quenching and j -mixing reaction rates in hot ion clouds [15,31] and from the measured composition of the residual gas background by the mass spectrometer, we can deduce that the only non-negligible component giving rise to inelastic collisions is hydrogen. In fact, the partial hydrogen pressure for ion cloud experiments is inferior to 2×10^{-9} mbar, and below the resolution of the mass spectrometer (1×10^{-9} mbar) for single ion experiments. The difference in the pressure values for both types of experiments is due to the duration and frequency of the ion creation process.

For the ion cloud experiments the residual hydrogen pressure results in a value of $n_B \Gamma_{quench} \leq (1.8 \pm 0.7) \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ due to quenching while the contribution of the fine-structure mixing collisions is $n_B \Gamma_{mix} \leq (14 \pm 10) \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$.

The observation of quantum jumps in a single ion allows the direct measurement of the collision rate in the absence of the 729-nm laser. Every once in a while, the ion undergoes a quantum jump due to an inelastic collision with a particle from the residual gas. We have recorded these quantum jumps which are the result of collisional transfer between the fine-structure levels and from the ground-state. At a base pressure of 2×10^{-10} mbar we have measured an average of 1 quantum jump every 5 minutes resulting in a collision rate of $n_B \Gamma_{coll} \leq 3 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$.

4.1.2 Ion heating

Temperature changes in the ion cloud could play a role in the determination of lifetimes due to changing colli-

sion rates and to varying frequency overlap (and therefore varying excitation efficiency) between the ions and the applied lasers. In the ion cloud experiments we have adjusted the 729-nm laser power to make sure that not more than one half of the ion cloud is pumped into the metastable state. As the laser-cooling is permanently applied to the rest of the ion cloud, sympathetic cooling of the dark ions prevents these from heating [32]. We can yet estimate the influence of ion heating from the signal variations at fixed laser frequencies, the upper limit is $\gamma_{heat} \leq 1 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$.

As for the single ions, heating becomes visible if the laser-cooling parameters (mainly the frequency and the power of the 397-nm laser) are largely detuned. After a dark interval the ion will then slowly return to the “bright” fluorescence level over several measurement bins. In our lifetime measurements, we have made sure that the laser-cooling parameters are optimized and that the ion signal returns to the upper fluorescence trace in a time shorter than one measurement bin (30 ms), even for dark times which are superior to 10 seconds. Moreover, to ensure efficient cooling of the ion, we maintain it in the laser-cooling cycle for at least 600 ms before the 729 nm laser is again admitted to the trap.

4.1.3 Ion loss

The revival function of the fluorescence in the ion cloud could be biased by competing decay processes, in particular ion loss. Ion loss is not visible on a single revival function but it will be detectable on the over-all fluorescence signal after a one-hour run. The upper limit for the influence of ion loss on the lifetime measurements in an ion cloud is given by $\gamma_{loss} < 7 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$.

If the ion is lost, while we are observing quantum jumps, we have to reload a new ion. To make sure, that the vacuum conditions are identical throughout the whole set of experiments, we wait for about half an hour before we restart data acquisition.

4.1.4 Level coupling by laser light

All the laser beams used in this experiment may couple the different atomic levels due to the Stark effect induced

by their electromagnetic field. However, atomic level coupling by the 397 nm laser is negligible in our experiment, laser power at this wavelength being around $50 \mu\text{W}$ for an ion cloud and below $10 \mu\text{W}$ for the experiments with a single ion.

729 nm

One important factor for the reduction of the metastable lifetime is coupling by the 729-nm laser. In fact, even at low laser powers, this radiation may induce transitions to the ground state by stimulated emission on the $4S_{1/2} - 3D_{5/2}$ line. We have taken precautions to avoid any coupling by this laser.

In any case we have to shut off the laser by a mechanical shutter in front of the trap for the observation of the revival function in the ion cloud measurements. The applied power at 729 nm is measured by a beam pick-up photodiode at the entrance of the trap. The instant when the power falls to zero is used to fix the starting point for the fit of the revival function.

In the single ion experiments complete extinction of the laser at 729 nm is essential to avoid reduction of the length of the dark intervals. We use a system of two synchronized mechanical shutters, one at the entrance of the optical fiber and one at its output, to guarantee maximum isolation from this radiation. When both shutters are closed, the 729-nm light level is inferior to the detection limit. For the excitation of quantum jumps, the 729-nm laser is applied to the laser-cooled ion, when the fluorescence level falls below threshold, the shutters are immediately closed. During the first measurement bins the 729-nm radiation is thus still present in the trap and we have to remove these earliest points to make sure that the decay conditions are well defined. In our evaluation of the distribution of the quantum jumps, we use data starting only at the fifth bin, which means that we do not take into account the first 120 ms of a quantum jump, and that quantum jumps whose duration is equal or inferior to that value are completely omitted. As a consequence, low-signal bins due to noise, which are typically of the length of one bin are also eliminated.

866 nm

The main effect which reduces the lifetime of the metastable state is the coupling by the repumper laser at 866 nm [18], which is necessary for laser-cooling. We insist on this point, as this “helper” laser is often applied with optical power levels largely beyond saturation to compensate for spatial and spectral instabilities.

The determination of the laser intensities seen by the ions is difficult to realize with high precision. On the one hand, absolute calibration of a power meter is in general not constant in time. More delicate still is the measure of the waist size in the ultrahigh-vacuum vessel. We have measured the waist sizes on different days by a commercial instrument (*Melles Griot BeamAnalyzer*) just in front of the entrance of the trap by deviation with a high-quality mirror. This measurement is just an estimate of the waist

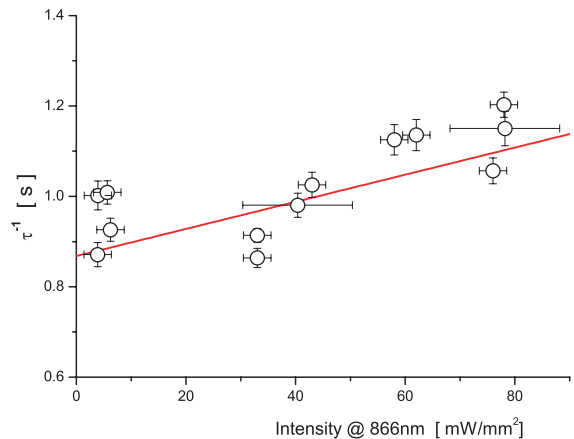


Fig. 6. De-shelving effect due to the intensity of the 866 nm radiation. The y -error bar represents the 1σ -statistical uncertainty for the MLE of each point, while the x -error bar stems from the uncertainty in the evaluation of the laser intensity seen by the ion. For the extrapolation of the data to zero, x - and y -error bars are taken into account.

dimension, as the position and shape of the focal point after the vacuum windows are certainly distorted. Additionally, the trajectory of the ion may be smaller than the waist of the laser. As a consequence, the error bar on the laser intensity seen by a single ion is difficult to estimate and may easily reach 10%, and up to 30% for very low power levels (below $1 \mu\text{W}$).

We have checked our lifetime measurements versus the intensity of the repumper laser (see Fig. 6), observing a reduction of the apparent lifetime of the $3D_{5/2}$ -level due to the AC Stark effect which couples the $3D_{5/2}$ - and $4P_{3/2}$ -states. Data points are somewhat scattered, due to the finite number of quantum jumps per run (cf. Sect. 4.2) and the above discussed uncertainty in the power measurement. The extrapolation to zero is made by a weighted least-squares fit to all the measured data points taking into account errors in both coordinates [33]. On a 2σ -scale, all points but one fall into the confidence level limits of the fit. As a matter of fact, the points at lower power levels have a larger intensity error bar, and do thus contribute less than may be expected from the linear representation. The measured lifetime of the ions varies as $\tau_m^{-1} = \tau_{nat}^{-1} + (3.0 \pm 0.6) \times 10^{-3} I$ where I is the intensity of the laser at 866 nm in mW/mm^2 , and τ_m and τ_{nat} are the measured and natural lifetimes, respectively. The quantitative dependence of the lifetime on the 866 nm-intensity we have found is of the same order of magnitude as in previous measurements [18, 20].

4.2 Data analysis effects

To determine the $3D_{5/2}$ -level lifetime from the ion-cloud experiments we fitted more than 1700 revival graphs using a least-squares fitting method. Because we could not evidence any dependence of the lifetime on any experimental parameter, the complete set of decay constants

has been taken into account to establish the final value. It has been found for these values that different methods of data analysis gave slightly different results. Actually, the mean value of the fitted time constants is not identical to the fit of the sum of the revival curves. Furthermore, harmonic and geometric mean are not identical. We have simulated shelving data of the ion cloud at a given decay rate having the same Gaussian noise pattern as our experimental data. These generated data are free from experimental bias such as ion loss or laser instabilities. Fitting these data demonstrated the variations from the different evaluation approaches, which could be as large as 1.6% and forms the major contribution to the total error bar.

For a single ion, the total number of quantum jumps taken into account is superior to 40 000. As has been discussed in Section 3.2 the number of quantum jumps which can be acquired in a one-day run is limited to roughly 10 000. For measurement times longer than this, temperature drifts start to play a role in our actual experimental set-up, and ion loss may also occur. For the experimental points in Figure 6 the mean quantum jump number per set of experimental parameters is of the order of 4000, giving a statistical uncertainty of about 2–3% per data set. These individual uncertainties together with the uncertainties on the power measurements are then used to weight the data points in the extrapolation of the lifetime values to zero repumper power, resulting in an overall statistical uncertainty of 1.8%.

Table 1 summarizes the quantitative influence of the different effects which define the precision of our measurements. Data analysis effects play a major role in the evaluation of the electron-shelving curves in a small ion cloud, whereas the main error contributions in single-ion measurements come from the limited number of quantum jumps and the estimation of the applied laser intensity independent of the data processing method. The total error bars represent an uncertainty on the measurement of the lifetimes of 2.5% in the case of the ion cloud and 1.5% and 1.8% for the single-ion experiments.

5 Discussion and conclusions

From the described measurements, the natural lifetime of the $3d^2D_{5/2}$ -level lifetime has been found to be $\tau_{IC} = (1095 \pm 27)$ ms in an ion cloud and $\tau_{QJ} = (1152 \pm 20)$ ms in a single ion. These two values are very close, though their 1σ error bars do not overlap. This discrepancy could be an evidence that ion-ion-collisions in the trap eventually contribute to the reduction of the lifetime. In the laser-cooled ion cloud the particle density of the Ca^+ -ions is roughly 10^8 cm^{-3} . If we suppose an eventual lifetime reduction on the 1%-level, we can estimate the upper limit of the contribution of ion-ion collisions to be $\Gamma_{iic} \leq 1.2 \times 10^{-10} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$.

As has been discussed in Section 3.2, we consider that the estimation of the lifetime in single ion measurements is optimal when made by the method of maximum likelihood. Nevertheless, we have also evaluated our data

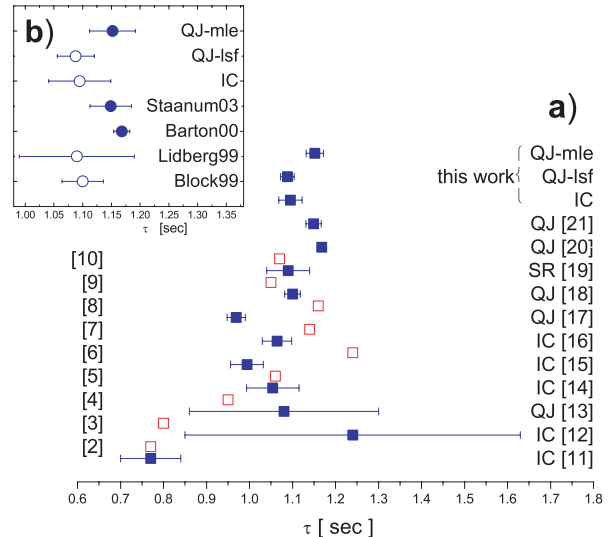


Fig. 7. (a) Comparison of theoretical (\square) and experimental (\blacksquare) lifetimes for the $3D_{5/2}$ -level of singly-ionized calcium, measurements have been made on ion clouds (IC), single ions (QJ), or in a storage ring (SR). (b) Zoom of the six most recently measured lifetimes, represented with 2σ error bars. The inset distinguishes the different evaluation approaches for the experimental data: least-squares fitting (LSF) method to an exponential decay curve (\circ) and estimate using the maximum-likelihood method (MLE) (\bullet).

by using the least-squares minimization of the exponential fitting curve and have found (1088 ± 16) ms. This value is in very good agreement with experimental values which have been determined in the past by least-squares methods [18,19] with comparable number of events and probability distributions. One of the causes generating the discrepancy between these earlier values and recent measurements [20,21] as well as our value $\tau_{QJ} = (1152 \pm 20)$ ms could thus possibly be the choice of the data processing method, which may account for differences of a couple of percent depending on the number of considered quantum jumps per run.

Figure 7 shows all the measurements and calculations that have been carried out on the Ca^+ -ion over the last years. A wide variety of theoretical models has been used to calculate the lifetime of the metastable state. If we consider only the more recent publications, the values still span over more than 20% of the average lifetime value. Since 1999, experimental measurements are converging towards a value around 1100 ms. Usually, lifetimes are given with a 1σ error bar, which corresponds to a poor confidence level. We have plotted the most recent measurements with a 2σ error bar standing for a 95% confidence level (see inset in Fig. 7). Values obtained in the storage ring [19] suffer from a strong collisional background and thus exhibit the largest error bars. The other values have been obtained on laser-cooled single ions in linear and spherical traps. In the figure, a graphical distinction has been made between values obtained by a least-squares

fit of the exponential decay curve or maximum likelihood estimates.

In general, the overlap of the recent experimental results is very good, and in particular, the agreement of our value with the one from the Åarhus group [21] is excellent. The all-over precision of the experimental determination of the metastable lifetime measurement is very high, making the Ca^+ -ion an ideal candidate for the comparison with theoretical models.

In conclusion, we have measured the lifetime of the metastable state to a 2.0%-level and shown the influence of the data processing method on the obtained value. Measurement of the $3d^2D_{3/2}$ -level lifetime would be interesting to allow direct comparison of the fine-structure levels. The actual experimental protocol does not allow such a measurement due to the coupling by the repumper laser. A comparable metastable-level lifetime has been measured in the Ba^+ -ion [34]. We plan to apply this latter technique for the measurement of the $3D_{3/2}$ lifetime in Ca^+ .

The high degree of control of our experimental parameters, that we need for the preparation of the metrological project, has now been achieved. The next step will be the localization of the ion in the trap to better than a fraction of the emitted wavelength, giving access to the Lamb-Dicke regime, where the first-order Doppler broadening can be eliminated [35]. Stabilization of the clock laser to an ULE cavity will be required to make the laser linewidth compatible with the observed ion features.

This work has benefited from fruitful discussions with Peter Sta anum, David Lucas and Bruno Torr esani. Our project has been financially supported by the Bureau National de M etrologie.

References

1. E. Traebert, Phys. Scripta **61**, 257 (2000)
2. D.E. Osterbrock, Astrophys. J. **114**, 469 (1951)
3. B. Warner, Mon. Not. R. astr. Soc. **139**, 115 (1968)
4. M. Ali, Y. Kim, Phys. Rev. A **38**, 3992 (1988)
5. C. Zeippen, Astron. Astrophys. **229**, 248 (1990)
6. C. Guet, W. Johnson, Phys. Rev. A **44**, 1531 (1991)
7. N. Vaeck, M. Godefroid, C. Froese-Fischer, Phys. Rev. A **46**, 3704 (1992)
8. T. Brage, C. Froese-Fischer, N. Vaeck, M. Godefroid, A. Hibbert, Phys. Scripta **48**, 533 (1993)
9. S. Liaw, Phys. Rev. A **51**, R1723 (1995)
10. E. Biemont, C. Zeippen, Comm. At. Mol. Phys. **33**, 29 (1996)
11. S. Urabe, M. Watanabe, H. Imajo, K. Hayasaka, Opt. Lett. **17**, 1140 (1992)
12. F. Arbes, T. Gudjons, F. Kurth, G. Werth, F. Marin, M. Inguscio, Z. Phys. D **25**, 295 (1993)
13. S. Urabe, K. Hayasaka, M. Watanabe, H. Imajo, R. Ohmukai, R. Hayayashi, Appl. Phys. B **57**, 367 (1993)
14. F. Arbes, M. Benzing, T. Gudjons, F. Kurth, G. Werth, Z. Phys. D **29**, 159 (1994)
15. M. Knoop, M. Vedel, F. Vedel, Phys. Rev. A **52**, 3763 (1995)
16. T. Gudjons, B. Hilbert, P. Seibert, G. Werth, Europhys. Lett. **33**, 595 (1996)
17. G. Ritter, U. Eichmann, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **30**, L141 (1997)
18. M. Block, O. Rehm, P. Seibert, G. Werth, Eur. Phys. J. D **7**, 461 (1999)
19. J. Lidberg, A. Al-Khalili, L.-O. Norlin, P. Royen, X. Tordoir, S. Mannervik, J. Phys. B **32**, 757 (1999)
20. P.A. Barton, C.J.S. Donald, D.M. Lucas, D.A. Stevens, A.M. Steane, D.N. Stacey, Phys. Rev. A **62**, 032503 (2000)
21. P. Sta anum, I.S. Jensen, R. Martinussen, D. Voigt, M. Drewsen, *35th EGAS*, abstracts, p. 123 (European Physical Society, 2003) and <http://arXiv.org/abs/physics/0311103>
22. P. Gill, *Proceedings of the Sixth Symposium on Frequency Standards and Metrology* (World Scientific Ltd, Singapore, 2002)
23. R.J. Rafac, B.C. Young, J.A. Beall, W.M. Itano, D.J. Wineland, J.C. Bergquist, Phys. Rev. Lett. **85**, 2462 (2000)
24. C. Schrama, E. Peik, W. Smith, H. Walther, Opt. Commun. **101**, 32 (1993)
25. C. Champenois, M. Knoop, M. Herbane, M. Houssin, T. Kaing, M. Vedel, F. Vedel, Eur. Phys. J. D **15**, 105 (2001)
26. M. Houssin, P. Courteille, C. Champenois, M. Herbane, M. Knoop, M. Vedel, F. Vedel, Appl. Opt. **42**, 4871 (2003)
27. H. Dehmelt, Bull. Am. Phys. Soc. **20**, 60 (1975)
28. M. Schubert, I. Siemers, R. Blatt, Phys. Rev. A **39**, 5098 (1989)
29. C. Champenois, M. Knoop, G. Hagel, M. Houssin, C. Lisowski, M. Vedel, F. Vedel, in preparation
30. M.G. Kendall, A. Stuart, *The Advanced Theory of Statistics* (Charles Griffin & Company Ltd., London, 1964), Vol. 2
31. M. Knoop, M. Vedel, F. Vedel, Phys. Rev. A **58**, 264 (1998)
32. D.J. Larson, J.C. Bergquist, J.J. Bollinger, W.M. Itano, D.J. Wineland, Phys. Rev. Lett. **57**, 70 (1986)
33. W.H. Press, B.P. Flannery, S.A. Teukolsky, W.T. Vetterling, *Numerical Recipes* (Cambridge University Press, 1988), Chap. 15.3
34. N. Yu, W. Nagourney, H. Dehmelt, Phys. Rev. Lett. **78**, 4898 (1997)
35. R.H. Dicke, Phys. Rev. **89**, 472 (1953)

II.2.4 Contraintes pour la métrologie optique avec un ion unique

Pour réaliser un spectre de bandes latérales résolues, la méthode décrite plus haut pour l'observation des sauts quantiques n'est pas adaptée à cause de l'effet Stark alternatif, ou light-shift, qui provoque un élargissement de la transition quadripolaire par le couplage de l'état fondamental sur la transition dipolaire. La solution technique choisie le plus souvent est de procéder à une excitation séquentielle des transitions. Après excitation sur la transition d'horloge, l'ion a une probabilité p_m d'être dans l'état métastable. Quand on rallume le (ou les) lasers de refroidissement, l'état interne de l'atome est projeté soit dans l'état fondamental (et les cycles de fluorescence reprennent, signal haut), soit dans l'état métastable (le signal est bas). Cette projection induit une incertitude sur la mesure appelé bruit de projection quantique⁴⁰ ou *Quantum Projection Noise (QPN)*. Après une excitation cohérente, la variance associée à cette mesure est $p_m(1 - p_m)$ et le bruit minimal sur la mesure est $\sqrt{p_m(1 - p_m)}$. Par conséquent, il est nécessaire de réaliser plusieurs mesures à la même fréquence (typiquement 100) pour atteindre un rapport signal sur bruit suffisant. Sachant qu'une mesure occupe approximativement 100 ms, il faut environ 10 s par point du spectre et donc plus d'une heure pour un spectre de bandes latérales. Il est clair que ces mesures ne sont faisables que si le laser sur la transition d'horloge a un spectre plus fin que la résolution visée et si sa dérive en fréquence est inférieure à un pas sur une heure (typiquement 1 kHz). Ces contraintes expliquent le soin apporté à l'asservissement de ce laser et la nécessité d'une référence de fréquence optique stable à mieux que le Hz par seconde pour contrôler le laser pendant le temps nécessaire à la construction d'un signal atomique. Cette référence est maintenant disponible dans l'équipe grâce aux efforts de mes collègues. Les contraintes sur l'environnement de l'ion et sur le laser d'horloge sont détaillées dans la suite.

Dans l'article⁴¹ qui suit, les performances d'une horloge basée sur un ion unique de calcium sont estimées, dans l'hypothèse où l'isotope 43 du calcium sert d'étalon de fréquence. Cet isotope, peu abondant, a longtemps été considéré comme le meilleur candidat calcium à cause de son spin nucléaire qui confère au spectre une structure hyperfine permettant des transitions $m_F = 0 \rightarrow m_{F'} = 0$ indépendantes du champ magnétique, au premier ordre d'approximation. Le corollaire de cette structure hyperfine est la multiplication des sources laser nécessaires à la détection et au refroidissement de l'ion. Par ailleurs, depuis la rédaction de cet article, deux méthodes^{42,43} ont démontré expérimentalement la réduction d'un des effets systématiques les plus importants dans les horloges à ions uniques de la famille du calcium, le déplacement quadripolaire (voir article suivant). Une de ces méthodes exploite les sous-niveaux Zeeman de la structure fine des isotopes les plus abondants, qui n'ont pas de spin nucléaire. Ainsi la complexité technique induite par l'utilisation d'un isotope impair n'est plus justifiée aujourd'hui, à condition d'assurer la stabilité du champ magnétique. Les mises à jour induites par ce changement de stratégie sont proposées à la suite de l'article de 2004.



ELSEVIER

Available online at www.sciencedirect.com



Physics Letters A 331 (2004) 298–311

PHYSICS LETTERS A

www.elsevier.com/locate/pla

Evaluation of the ultimate performances of a Ca^+ single-ion frequency standard

C. Champenois*, M. Houssin, C. Lisowski, M. Knoop, G. Hagel,
M. Vedel, F. Vedel

*Physique des Interactions Ioniques et Moléculaires, Unité Mixte de Recherche 6633 CNRS-Université de Provence,
Centre de Saint-Jérôme, Case C21, 13397 Marseille Cedex 20, France*

Received 27 July 2004; received in revised form 3 September 2004; accepted 6 September 2004

Available online 15 September 2004

Communicated by P.R. Holland

Abstract

The frequency stability of an optical frequency standard at 729 nm, based on a single calcium ion, is numerically studied. It is investigated through the Allan deviation, whose minimum is estimated to reach $\sigma_y(\tau) \approx 2.5 \times 10^{-15} / \sqrt{\tau}$ with τ the integration time. The systematic frequency shifts have been calculated and lead to an achievable relative uncertainty of $\pm 4 \times 10^{-16}$, supposing the use of the odd isotope $^{43}\text{Ca}^+$ and a vessel cooled to 77 K.

© 2004 Elsevier B.V. All rights reserved.

PACS: 32.60.+i; 32.70.Jz; 32.80.Pj; 32.80.Qk

Keywords: Optical frequency standard; Allan deviation; Systematic effects; Trapped ion

1. Introduction

Thanks to the recent progress made in atom and ion cooling and trapping, laser stabilization and high-resolution optical spectroscopy, narrow optical transitions are considered as a basis for frequency stan-

dards. At this time, two kinds of experiments are under study in various groups: one uses an ensemble of laser-cooled neutral atoms in a fountain, an optical lattice or a BEC, the other one uses a single trapped laser-cooled ion (for a recent review see [1]). The present work is motivated by strong progress in storing, cooling and coherently manipulating single ions in Paul traps. Together with the ultra-precise optical frequency measurements achieved by frequency chains and frequency combs, this progress leads to the realization

* Corresponding author.

E-mail address: caroline.champenois@up.univ-mrs.fr
(C. Champenois).

of single-ion frequency standards, as for Hg^+ [2], Sr^+ [3,4], Yb^+ [4] and In^+ [5], and proposed for Ca^+ [6]. Our experimental project aims to build an optical frequency standard using the electric quadrupole transition $4S_{1/2} \rightarrow 3D_{5/2}$ of a single calcium ion at 729 nm. Among the frequency standard candidates, Ca^+ possesses the major advantage that the required radiations for cooling and exciting the clock transition can be produced directly by solid state or diode lasers. In addition, the existence of an isotope having semi-integer nuclear spin ($I = 7/2$) allows to eliminate the first-order Zeeman shift, canceling a major source of line shift and broadening.

The performances of a frequency standard are defined by the stability of its local oscillator (a laser in the optical case) and the precision achieved in the observation of an atomic transition. Frequency instability is due to deviations from a mean frequency throughout varying probe time intervals, while frequency uncertainty is caused by the atomic frequency fluctuations induced by environmental conditions and by the experimental conditions for observation. The quality factor of optical atomic transitions can reach 10^{15} , which is 5 orders of magnitude higher than for microwave frequency standards and thus provides hope for better ultimate performances than the existing standards.

The interrogation scheme used to probe the atomic transition influences the frequency stability of the proposed standard via the variation of the duration of the probe cycle. In the first part of this Letter we discuss the choice of this scheme, by using numerical simulations to compare single-pulse spectroscopy with time-domain Ramsey interferometry. Systematic effects expected for a standard based on $^{43}\text{Ca}^+$ may reduce its accuracy and precision, they are discussed in the second part. For this evaluation, we employ the specific parameters of the Ca^+ -ion trap experiment in Marseille [6] as an example, but the discussion is kept as general as possible to remain applicable to other atomic species.

2. Frequency stability

Frequency stability is one of the major characteristics of a frequency standard. It can be quantified by the Allan deviation $\sigma_y(\tau)$ measured for an average

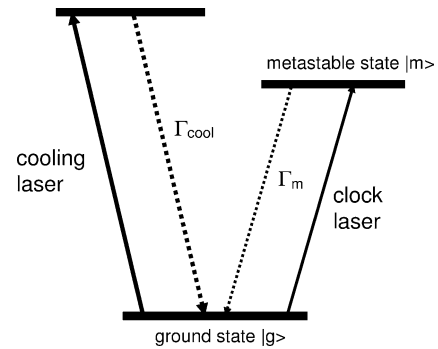


Fig. 1. Transitions involved in the cooling and probing of an ion for a frequency standard. In practice, the cooling scheme may involve several lasers because of a possible hyperfine structure and/or a possible decay towards other metastable states. In most cases, Γ_{cool} is of the order of 20 MHz whereas Γ_m is of the order of 1 Hz.

time τ :

$$\sigma_y(\tau) = \frac{1}{Q S/N} \sqrt{\frac{T_c}{\tau}}, \quad (1)$$

where $Q = f_0/\Delta f$ is the quality factor defined by the ratio of the clock frequency over its observed linewidth, S/N the signal-to-noise ratio and T_c the cycle time required for the interrogation of the ion.

The schemes to probe an optical transition of a single ion consist of a preparation stage, an excitation of the clock transition, and a final detection stage. The cycle time T_c is the sum of the corresponding time durations T_{prep} , T_{exc} , and T_{det} . During the preparation stage, the ion is laser cooled and optically pumped into the internal state chosen to be the ground state (see Fig. 1). The light scattered by the cooling transition is also used for detection of the ion. The probing of the clock transition by the local oscillator (a laser) is done by direct laser excitation. During this stage, all the preparation lasers are shut off. After excitation of the clock transition, the cooling lasers are switched on again. The quantum jump method [7] allows then to know if the atom is excited or not: the absence of fluorescence during the detection stage proves that the ion is “shelved” in the metastable upper state whereas the presence of fluorescence signal means that the ion is still in the cooling cycle. Repetition of this measurement as a function of the clock laser frequency allows to measure the transition probability distribution. In the following, we discuss the laser characteristics and the maximum duration required for these various

stages. The choice of the suited interrogation scheme is essential to minimize the Allan deviation.

2.1. Preparation and detection

We suppose the ion cooled to the Doppler limit in an RF-trap and located at the center of the trap, where the RF-trapping field is minimum and has little influence on the ion motion. Since the trap creates a quasi-harmonic potential, the motion of the ion is a superposition of oscillations at different frequencies due to the spatial anisotropy of the trapping device. If we suppose, for simplicity's sake, that there is only one frequency of motion $\omega_{\text{tr}}/2\pi$ in the trap, the resulting atomic absorption spectrum is composed of a central frequency corresponding to the atomic transition $\omega_0/2\pi$ and sidebands separated by multiples of the motional frequency $(\omega_0 \pm p\omega_{\text{tr}})/2\pi$ (p integer). The sidebands are resolved if the width of each band is smaller than their mutual separation (the strong confinement condition [8]). This can be achieved in miniature traps with high motional frequencies (≈ 1 MHz) for all the narrow transitions considered as potential basis for frequency standards ($\Gamma_m \ll \omega_{\text{tr}}$, see Fig. 1). The intensity of each band p in the spectrum depends on the oscillation amplitude X of the ion in the trap like $J_p^2(kX)$ [8] where k is the laser wavevector of the probed transition and J_p the Bessel function of order p . As the functions $J_p^2(kX)$ have negligible values when $p \gtrsim kX$, the smaller is kX , the less sidebands are visible. Laser-cooling the ion reduces its oscillation amplitude X and thus the number of observable sidebands. A major step in the preparation of the ion is to access the Lamb–Dicke regime which is characterized by the reduction of the spectrum to few sidebands with a preponderant weight on the central frequency, this regime is reached if $kX \lesssim 1$.

The motion of the ion can be described by the occupation rate of the vibrational quantum levels, characterised by the mean vibrational quantum number $\langle n \rangle$. This vibrational state can also be characterized from the classical point of view by an oscillation amplitude $X = \lambda_{\text{tr}}\sqrt{2\langle n \rangle + 1}$, where the length $\lambda_{\text{tr}} = \sqrt{\hbar/2m\omega_{\text{tr}}}$ measures the size of the fundamental harmonic oscillator eigenstate $|n=0\rangle$. This length depends on the atomic mass by $1/\sqrt{m}$ and, as an example, is equal to 11 nm for a calcium ion with $\omega_{\text{tr}} = 2\pi \times 1$ MHz. The Lamb–Dicke condition $kX \lesssim 1$ can also be expressed

by $k\lambda_{\text{tr}}\sqrt{2\langle n \rangle + 1} \lesssim 1$. The Lamb–Dicke parameter $\eta = k\lambda_{\text{tr}}$ quantifies the ability for a system {ion + trap} to reach the Lamb–Dicke regime for a given transition. It is of the order of 0.1 for optical transitions (e.g., 0.095 for calcium's clock transition in the trap taken as example).

In most cases, the frequency of motion in the trap is of the order of 1 MHz, whereas the atomic dipole transition used for laser cooling has a width Γ_{cool} close to $2\pi \times 20$ MHz. On such broad transition ($\Gamma_{\text{cool}}/2 \gg \omega_{\text{tr}}$) the Doppler limit for laser cooling can be approximated by the one of a free atom [8]. This leads to a thermal population of the harmonic trap vibrational levels characterized by $\langle n \rangle \simeq \Gamma_{\text{cool}}/2\omega_{\text{tr}} \simeq 10$. The Lamb–Dicke condition $\eta\sqrt{2\langle n \rangle + 1} \lesssim 1$ is then fulfilled by the vibrational state reached by Doppler cooling ($\langle n \rangle \simeq 10$). This fulfillment sets the transition free of first-order Doppler effect, while the second-order Doppler effect is very small (see Section 3.4). Furthermore, the residual distribution of occupied vibrational levels still allows to drive coherent dynamics on the clock transition, as required for the interrogation schemes and confirmed numerically in the following. Since the time needed to reach the Doppler cooling limit is of the order of milliseconds while the optical pumping is faster than the millisecond, we can estimate T_{prep} to 5 ms.

The duration required for the detection stage depends on the fluorescence signal collected on the strong dipole transition. For such transitions with a width of ≈ 20 MHz, one can expect at least 10^4 counts per second (cps) over a stray light level of less than 100 cps. In these conditions, 10-ms periods are sufficient to acquire enough signal to decide if the atom has been excited into the metastable state. As a consequence, 15 ms is a realistic estimation for the sum of the preparation and detection contributions to the cycle duration. To this minimum cycle duration must be added the excitation duration time T_{exc} . In the following subsection, we theoretically study the minimization of this probe time for different excitation schemes, assuming that the total cycle time $T_c = T_{\text{exc}} + 15$ ms.

2.2. Choice of the excitation scheme

2.2.1. Evaluation of the minimum Allan deviation

The width Δf of the observed transition and its signal-to-noise ratio depends on the laser excitation

scheme. The choice of a high-frequency clock transition (in the optical domain) allows to reach smaller Allan deviations than the ones obtained on frequency standards in the microwave domain. Until now, the narrowest optical transition linewidth has been observed on a Hg^+ ion [9] and has allowed to reach a relative frequency stability of 7×10^{-15} over 1 s averaging. In this Letter, we discuss possible excitation schemes independently of the ion implied. We introduce a reduced Allan deviation $\sigma' = \sigma_y(\tau) \times f_0 \sqrt{\tau}$ to quantify the expected frequency stability of the standard, keeping in mind that reduced Allan deviations between 1 and 10 have already been measured by several groups on lasers locked on atomic optical transitions.

Let p_m be the probability for the ion to be in the metastable state once excited by the clock laser. The frequency of the transition, to which the clock laser will be locked, is deduced from the probability p_m measured several times on the low and high frequency sides of the transition. This method of frequency discrimination requires the excitation probability p_m to be around 0.5, where the slope of the probability distribution is the steepest and the frequency sensitivity is the highest.

Several sources of noise can limit the signal-to-noise ratio. Among these is the quantum projection noise [10] which is dominant once the technical noise has been reduced. The laser excitation creates a linear superposition of the ground ($|g\rangle$) and metastable ($|m\rangle$) states: $\sqrt{1-p_m}|g\rangle + \sqrt{p_m}|m\rangle$. During the detection stage, the atomic state is projected on one of these two atomic states. The variance of such a measurement is $p_m(1-p_m)$ and causes a minimum noise $\sqrt{p_m(1-p_m)}$ on the transition probability. This can be overcome by using squeezed states [11], which we do not consider here.

The maximum signal-to-noise ratio which can then be observed is

$$\frac{S}{N} = \sqrt{\frac{p_m}{1-p_m}}, \quad (2)$$

which is maximum at resonance ($p_m = 1$), where the frequency discrimination is inefficient. Thus, maximum frequency sensitivity and maximum signal-to-noise ratio are not compatible. Additionally, the finite upper-state lifetime leads to spontaneous decay which, for long excitation time, can reduce the maximum ex-

citation probability. As a consequence, finding a compromise between all these incompatible requirements deserve precise studies of the excitation scheme.

Two excitation schemes have been experimentally tested by several groups: a single Rabi pulse or two temporally separated Ramsey pulses. The first one has been performed on Hg^+ [2], In^+ [12], Sr^+ and Yb^+ [4], and the second one on Hg^+ [2] and Sr^+ [3]. In the following we discuss the principal features of each method and then compare them. To quantify the relative stability allowed by the discussed methods, we evaluate the reduced Allan deviation by

$$\sigma' = \sigma_y(\tau) f_0 \sqrt{\tau} = \Delta f \sqrt{\frac{1-p_m}{p_m}} \sqrt{T_c}. \quad (3)$$

For a high frequency sensitivity, we assume that the laser probes the transition on each side of the line, on the two frequencies corresponding to an excitation probability p_m which is half of the maximum probability measured for zero detuning (p_m can never exceed 1/2). The deduced Δf when these probabilities are equal is then the FWHM of the experimental linewidth. The evolution of the density matrix of the two levels $|g\rangle$ and $|m\rangle$ is computed numerically. The atomic system is defined by the metastable lifetime τ_m fixed to 1 second ($\Gamma_m = 1/\tau_m$), and it is driven by a Rabi pulsation Ω . The motion of the ion is taken into account by a distribution of thermal vibrational levels, characterised by the mean vibration number $\langle n \rangle$ and defined by $P(n) = \langle n \rangle / (1 + \langle n \rangle)^n$. The excitation probability p_m is then an incoherent weighted sum of the probability for each vibrational level to be excited in the metastable state. For a given laser intensity, the Rabi pulsation from vibrational level $|n\rangle \rightarrow |n\rangle$ is proportional to $(1 - \eta^2 n)$ whereas it is proportional to $\eta \sqrt{n+1}$ for a $|n\rangle \rightarrow |n+1\rangle$ transition. We choose for η the value of 0.095 calculated for a calcium ion in the trap described above. As the Doppler cooling leads to $\langle n \rangle \simeq 10$, the excitation probability on the $|n\rangle \rightarrow |n\rangle$ band is higher than the $|n\rangle \rightarrow |n \pm 1\rangle$ bands so these last ones were neglected. If Ω is the Rabi pulsation for the $|n=0\rangle \rightarrow |n=0\rangle$ transition, $\Omega L_n(\eta^2)$ is the one for the $|n\rangle \rightarrow |n\rangle$ transition, L_n being the Laguerre polynomial [13]. The linewidth Γ_L of the laser spectrum (FWHM) is taken into account by adding a source of decoherence equal to this width in the operator controlling the evolution of the density matrix [14].

For a laser detuning Δ_L and in the rotating wave approximation the density matrix evolves according to

$$\dot{\rho}_{gg} = -\dot{\rho}_{mm} = \frac{i\Omega}{2}(\rho_{gm} - \rho_{mg}) + \Gamma_m \rho_{mm}, \quad (4)$$

$$\dot{\rho}_{gm} = -i\Delta_L \rho_{gm} + \frac{i\Omega}{2}(\rho_{gg} - \rho_{mm}) - \frac{\Gamma_m \rho_{gm}}{2} - \frac{\Gamma_L \rho_{gm}}{2}. \quad (5)$$

2.2.2. Single pulse excitation

To avoid power broadening, the narrow transition can be experimentally observed if the Rabi pulsation Ω is smaller than the linewidth and the interrogation time longer than the lifetime. But because of the finite lifetime of the excited state, the maximum excitation probability is low and requires several seconds to be reached, reducing the relative stability even if the observed linewidth is close to the natural width. In an ideal context where the experiment is not limited by the laser stability, the calculations show that the smallest reduced Allan variance is reached with a single pulse which should last at least 1 s and drive the tran-

sition with Ω of the order of $2\Gamma_m$. With today's laser stability a cycle time of a few seconds for a single measure seems not realistic. We rather consider excitation schemes with durations inferior to 1 second, since a cycle has to be repeated several times before a signal can be built up to counteract on the frequency of the local oscillator.

In Fig. 2, are plotted the excitation probability at half maximum p_m , the full width at half maximum Δf and the reduced stability as defined by Eq. (3), versus the cycle time $T_c = T_{\text{exc}} + 15$ ms, assuming a single Rabi pulse. These curves reflect Rabi oscillations, which show maximum excitation probability for $T_{\text{exc}} = (2q + 1)\pi/\Omega$ (q integer). For $T_{\text{exc}} = 2q\pi/\Omega$, the excitation probability is minimum on resonance and shows some maximum for other detunings. The computed FWHM has then no physical significance, which is not relevant here as a clock is never operated with this excitation duration. The interesting feature is the minimum of the reduced Allan variance observable for the shortest T_{exc} . Two cases with different Rabi pulsation Ω ($\Omega = 10\Gamma_m$ and $\Omega = 100\Gamma_m$) are compared in Fig. 2. For both cases, excitation proba-

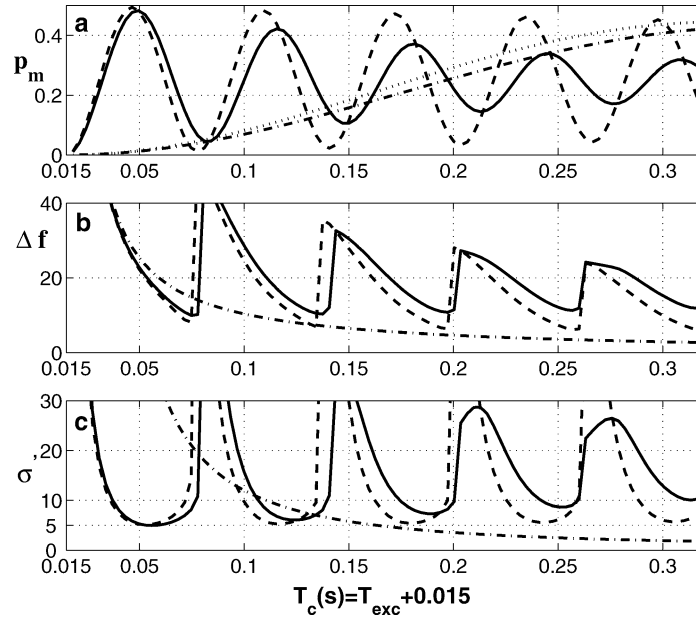


Fig. 2. Calculations of the reduced relative stability σ' (c), from the probability at half maximum p_m (a) and the width Δf (Hz) (b) of the excitation probability profile, for an increasing excitation time T_{exc} ($T_c = T_{\text{exc}} + 0.015$ s). This stability is calculated for a metastable lifetime $\tau_m = 1/\Gamma_m = 1$ s and a single Rabi pulse ($\Omega = 10\Gamma_m$ or $\Omega = 100\Gamma_m$) for two thermal vibrational states characterised by $\langle n \rangle = 0$ and $\langle n \rangle = 10$. Dotted line: $\Omega = 10\Gamma_m$ and $\langle n \rangle = 0$, dash-dotted line: $\Omega = 10\Gamma_m$ and $\langle n \rangle = 10$, broken line: $\Omega = 100\Gamma_m$ and $\langle n \rangle = 0$, solid line: $\Omega = 100\Gamma_m$ and $\langle n \rangle = 10$. On (b) and (c), the dotted and dash-dotted line are almost superimposed and only one curve is plotted on the graph.

bility and full width at half maximum are computed for an ion whose oscillatory motion corresponds to the Doppler cooling limit ($\langle n \rangle = 10$) or to the fundamental vibrational state ($\langle n \rangle = 0$). The first result to mention is that the first minima of the reduced Allan variance are identical for these two vibrational states, for the chosen Rabi pulsation. It confirms that Doppler cooling is sufficient for state preparation. The results shown in Fig. 2 suggest that the discrepancy between the $\langle n \rangle = 10$ and the $\langle n \rangle = 0$ vibrational state increases with the pulse duration. We have checked that in the case of the short pulses we consider in the following, the results are nearly the same for these two vibrational distributions and thus, from now on, only the cases concerning $\langle n \rangle = 0$ are dealt with.

To illustrate the influence of the strength of the Rabi pulsation in Fig. 2, the excitation is driven by $\Omega = 10\Gamma_m$ and $\Omega = 100\Gamma_m$. In the first case, the minimum reduced Allan deviation is close to 1 but requires an excitation of more than 300 ms. In the second case, the first minimum is reached for a cycle duration of 50 ms, but this shortening of the cycle duration is paid by an increase of σ' equal to 4.5. This trend is general and a further increase of the Rabi pulsation leads to an increase of the minimum Allan deviation as well as a decrease of the required cycle time.

We now take into account the effect of a finite laser linewidth on the minimum reduced Allan deviation and compare the value computed for a laser as broad as the atomic transition ($\Gamma_L/2\pi = 0.2$ Hz) to the one computed with a 20 Hz broad laser (FWHM). In this latter case, the performances of the clock are greatly reduced first by the reduction of the excitation probability and second by the broadening of the observed transition. The first drawback can be overcome by the increase of the Rabi pulsation but this is paid by a further increase of the transition broadening. As a consequence, for a given laser linewidth and a given metastable lifetime, there is an optimal Rabi pulsation which results in a minimum reduced Allan deviation. This is illustrated in Fig. 3 where for $\Gamma_L/2\pi = 20$ Hz, σ' is minimum ($\sigma' = 12.4$) for $100\Gamma_m \lesssim \Omega \lesssim 125\Gamma_m$ and a cycle time of 40 ms, whereas for $\Gamma_L/2\pi = 0.2$ Hz, σ' is minimum for $\Omega \simeq 4\Gamma_m$ and is then equal to 1.7 but for a cycle time of 625 ms. In the case of the broadest laser linewidth, these results confirm the intuitive idea that for optimum stability, the pulse length T_{exc} is limited by the laser linewidth $T_{\text{exc}}\Gamma_L \simeq \pi$ and that the Rabi pulsation is then approximately set by the resonant π -pulse condition $\Omega T_{\text{exc}} \simeq \pi$. When the laser linewidth is comparable to the transition natural width ($\Gamma_L/2\pi = 0.2$ s $^{-1}$), the optimum stability is

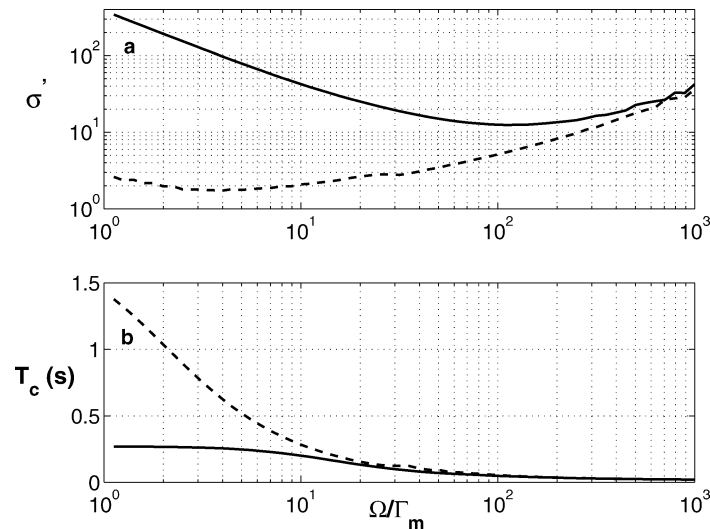


Fig. 3. (a) Minimum reduced Allan deviation and (b) cycle duration T_c required to reach this minimum versus the Rabi pulsation. Computation done for a metastable lifetime $\tau_m = 1/\Gamma_m = 1$ s and a single Rabi pulse by a laser of width Γ_L (FWHM), with an ion in the vibrational ground state ($\langle n \rangle = 0$). Broken line: $\Gamma_L/2\pi = 0.2$ Hz and solid line: $\Gamma_L/2\pi = 20$ Hz.

reached for a shorter excitation time $T_{\text{exc}}\Gamma_L(\Gamma_m) \simeq 0.6$ and a Rabi pulsation under the resonant π -pulse condition $\Omega T_{\text{exc}} \simeq 2.5$, which could not be deduced from the intuitive concept.

2.2.3. Comparison with Ramsey interferometry

The introduction of the separated fields method or Ramsey interferometry [15] was soon followed by breakthroughs in high resolution spectroscopy and is expected to overcome the limitations met with single pulse excitation. With this method the line profile is recorded after two pulses of duration T such as $\Omega T = \pi/2$, separated by a free evolution time T_{free} . When the laser detuning is scanned, the profile shows Ramsey fringes resulting from an interference pattern and for short enough pulse duration (or a high enough Rabi pulsation), the width of the central fringe is equal to $1/2T_{\text{free}}$ and is then independent from the Rabi pulsation. For a chosen pulsation Ω , the evolution of p_m , Δf and σ' does not show oscillations with T_c , like for a single Rabi pulse. σ' takes very high values for short T_c and decreases toward a limit for longer T_c . This limit depends on the choice of the pulsation Ω .

When the width of the laser is taken into account by the relaxation it causes on the coherence, for a given Rabi pulsation, the reduced Allan deviation decreases for increasing free evolution time until it reaches critical time where the width of the laser broadens the line. This behaviour results in a minimum of the reduced Allan deviation reached for this critical cycle time and depending on the laser linewidth and the Rabi pulsation. For increasing Rabi pulsation Ω , this minimum Allan deviation decreases towards a limit which depends very little on the laser linewidth as it varies by less than a factor of 2 over the whole range of the considered linewidth ($0.1 \leq \Gamma_L/2\pi \leq 100$ Hz). This is made possible by the short interaction time with the laser, allowed by a strong Rabi pulsation Ω . In the case where the experiment is not limited by the available laser power, Ω must be chosen to reach a minimum Allan deviation close to the limit but also to cause a negligible light-shift on the atomic levels. This light-shift is evaluated in Section 3.3 and our calculations and numerical computations show that a Rabi pulsation $\Omega = 1000 \text{ s}^{-1}$ allows to reach the Allan deviation limit to better than 1% and to cause a negligible light-shift.

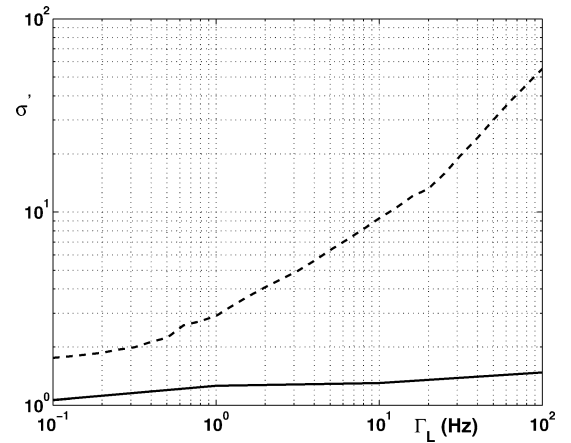


Fig. 4. Minimum reduced Allan deviation versus the laser linewidth $\Gamma_L/2\pi$ (Hz), for a metastable lifetime $\tau_m = 1/\Gamma_m = 1$ s. The dashed line shows the minimum achievable reduced deviation with a single Rabi pulse (the cycle time and Rabi pulsation are computed to minimize σ'). The solid line shows the minimum deviation achievable with a two Ramsey pulses excitation for a fixed Rabi pulsation of $1000\Gamma_m = 1000 \text{ s}^{-1}$.

Fig. 4 shows this minimum reduced Allan deviation for a laser linewidth from 0.1 Hz to 100 Hz (FWHM), compared with the one reached with a Rabi excitation scheme, where the best Ω and T_c are found to reach the minimum Allan deviation, like explained in Fig. 3. The minimum Allan deviation expected for a narrow laser (0.1 Hz) for a Ramsey excitation scheme is 1.06 and for a Rabi scheme is 1.76. These values are very close to each other but their evolution with the width of the laser is very different in the two cases. As shown in Fig. 4, for a Rabi excitation scheme, the minimum Allan deviation increases with the laser linewidth to reach $\sigma' = 55$ for $\Gamma_L/2\pi = 100$ Hz whereas it reaches 1.48 for a Ramsey scheme with the same laser linewidth. This evolution illustrates the great advantage of Ramsey two separated pulses excitation over a Rabi single pulse. This can be explained by the high Rabi pulsation value ($\Omega \gg \Gamma_m$) chosen for the two Ramsey pulses, necessary to reach a narrow central linewidth. The atom–laser interaction is then very short ($\simeq 1$ ms) and therefore the decoherence induced by the laser linewidth has little influence on the excitation probability and the width of the central fringe. As a consequence, for the laser linewidths considered here, the reduced Allan deviation is almost not affected. On the contrary, for a single Rabi pulse,

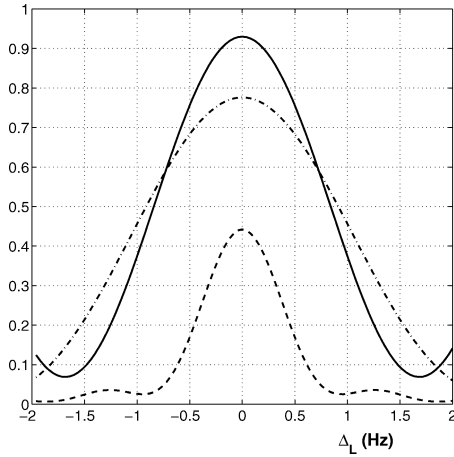


Fig. 5. Excitation profile leading to minimum Allan deviation for a laser linewidth $\Gamma_L = 0.1$ (Hz), for a metastable lifetime $\tau_m = 1$ s. Solid line: profile reached for two Ramsey pulses, with $\Omega = 1000\Gamma_m$ and $T_c = 313$ ms. Dashed and dot-dashed line: profiles reached for a single Rabi pulse, two configurations lead to the same $\sigma' = 1.76$: $\Omega = 2\Gamma_m$ and $T_c = 1.093$ s (dashed line) and $\Omega = 7\Gamma_m$ and $T_c = 392$ ms (dot-dashed line).

the pulsation Ω has to be increased with growing laser linewidth to shorten the pulse duration and keep an excitation probability as high as possible. With this excitation scheme an increase of the Rabi pulsation implies an increase of the linewidth by power broadening, leading to a larger Allan deviation.

To give an insight of how such performances are reached, the excitation probability profiles calculated for the conditions giving the minimum Allan deviation for a 0.1 Hz laser linewidth are shown in Fig. 5. For a Ramsey scheme and the chosen Rabi pulsation of 1000 s^{-1} , the optimum cycle time is 313 ms and results in a 1.76 Hz wide profile (Δf) with $p_m = 0.465$. For a single pulse, the minimum Allan deviation can be reached by two different Rabi pulses. One with $\Omega = 2 \text{ s}^{-1}$ and lasting 1.093 s gives rise to a narrow ($\Delta f = 0.86$ Hz) but few excited profile ($p_m = 0.22$). Another one with $\Omega = 7 \text{ s}^{-1}$ lasting 392 ms leads to a broader profile ($\Delta f = 2.28$ Hz) with higher excitation ($p_m = 0.39$). These three profiles illustrate the compromise required between high excitation probability and narrow linewidth to reduce the Allan deviation. They show that different conditions can reach this compromise. In any case, the Ramsey excitation scheme results in Allan deviation smaller than for a Rabi scheme. Furthermore, this method has the advan-

Table 1

Minimum Allan deviation expected for different optical frequency standard candidates, computed with a very narrow laser ($\Gamma_L/2\pi = 0.1$ Hz) and two Ramsey pulses with $\Omega = 1000 \text{ s}^{-1}$

Atom	τ_m (s)	λ (nm)	σ'_{mini}	$\sigma_y(\tau)$
In ⁺	0.2	236	1.78	$1.4 \times 10^{-15}/\sqrt{\tau}$
Ca ⁺	1.15	729	1.05	$2.5 \times 10^{-15}/\sqrt{\tau}$
Hg ⁺	0.08	282	2.78	$2.6 \times 10^{-15}/\sqrt{\tau}$
Sr ⁺	0.4	674	1.40	$3.1 \times 10^{-15}/\sqrt{\tau}$
Yb ⁺	0.05	436	4.04	$5.9 \times 10^{-15}/\sqrt{\tau}$

tage of keeping low deviation even for laser linewidth broader than the transition.

2.2.4. Influence of the metastable level lifetime

We have computed the minimum reduced Allan deviation for different metastable level lifetimes τ_m , for a very narrow laser ($\Gamma_L/2\pi = 0.1$ Hz) and excitation by two Ramsey pulses with $\Omega = 1000 \text{ s}^{-1}$ as this value allows to reach the limit of the Allan deviation. The results are summarized in Table 1. The computed Allan deviations are very close for all the ion optical frequency standard candidates (between 1.4 and $5.9 \times 10^{-15}/\sqrt{\tau}$) confirming quantitatively the prediction that optical frequency standard will overtake the performances of existing microwave standards in the long run.

2.2.5. Summary

First, our studies confirm that a Ramsey excitation scheme is more appropriate than a Rabi one to take full advantage of very narrow atomic transition in the goal of building a frequency standard. They also show that the finite laser linewidth implies an optimum cycle time for a given Rabi pulsation, which cannot be deduced intuitively from this linewidth as it ranges from $T_c = 120$ ms for the shortest metastable lifetime listed on Table 1 ($\tau_m = 0.05$ s) to 312 ms for the longest metastable level lifetime $\tau_m = 1.15$ s (Ca⁺). The Allan deviation expected for a Ca⁺ standard is $2.5 \times 10^{-15}/\sqrt{\tau}$ which ranks well among the other candidates for optical frequency standard.

3. Frequency standard accuracy and precision

Besides the frequency stability, the other relevant parameters defining the quality of a frequency stan-

dard are its accuracy and its precision. The standard frequency may be shifted from the atomic resonance value by any interaction of the atom with external fields. If this shift is constant, it only reduces the standard accuracy but not its precision. If this shift varies in time or cannot be evaluated exactly, the precision is reduced also. As these effects contribute to the uncertainty of the future frequency standard, all the interactions of the ion with its surrounding must be controlled to minimise and/or to maintain any shift of the clock frequency. We evaluate these shifts for a calcium ion in order to choose the best internal state and prepare an environment for which these shifts are minimum.

The ground state $|g\rangle$ of the calcium ion is $|S_{1/2}\rangle$ and the metastable state $|m\rangle$ is $|D_{5/2}\rangle$ with a measured lifetime of 1152 ± 23 ms [16] which leads to a natural width for the clock transition of 138 ± 3 mHz. We require that during the excitation of the transition by the clock laser, all other lasers are shut off. This assures that there are no light-shifts of the levels $S_{1/2}$ and $D_{5/2}$ caused by the cooling lasers. The other major effects that can shift the standard frequency are due to the local magnetic and electric fields and to the intensity of the clock laser itself. In the Lamb–Dicke regime, the Doppler effect shifts the line only by its second-order contribution. We first focus on the Zeeman effect as it governs the choice of the isotope and atomic sublevels used for the standard.

3.1. Zeeman effect

To avoid any uncontrolled or time-varying shifts, the frequency standard must be made as independent as possible of environmental conditions. The first-order Zeeman effect can be eliminated by the use of atomic Zeeman sublevels with no projection of the total moment on the magnetic field. This can be realised by the use of an isotope with a half integer nuclear spin. The most abundant one (0.135% in a natural sample) is $^{43}\text{Ca}^+$ with a nuclear spin $7/2$. The hyperfine structure of this isotope can be found on Fig. 6. Alternatively, the first-order Zeeman effect could be eliminated on the $^{40}\text{Ca}^+$ transition by cancellation between

$$|S_{1/2}, m = 1/2\rangle \rightarrow |D_{5/2}, m = 1/2\rangle$$

and

$$|S_{1/2}, m = -1/2\rangle \rightarrow |D_{5/2}, m = -1/2\rangle.$$

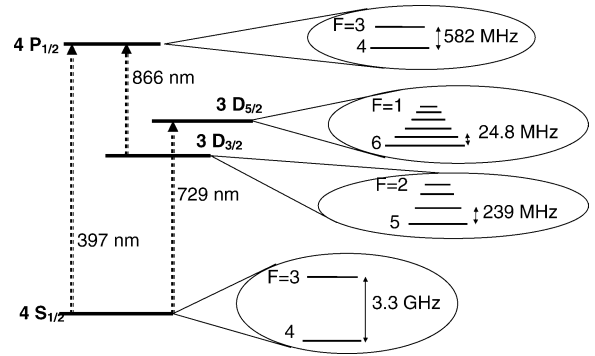


Fig. 6. Hyperfine structure of the levels involved in the preparation, excitation and detection of $^{43}\text{Ca}^+$ ($I = 7/2$) [17,18].

The exact cancellation of the first-order Zeeman effect to better than one hertz requires a stability of the magnetic field better than $10^{-4} \mu\text{T}$ for at least a few seconds, which seems difficult to realise. As a consequence the use of the odd isotope appears to be the easiest solution to eliminate the first-order Zeeman shift from the standard frequency.

The second-order Zeeman shift depends on the choice of the hyperfine sublevels. We calculate these shifts by searching the eigenvalues of the Zeeman Hamiltonian for the $|F, m_F\rangle$ states. The Zeeman shift of the fundamental hyperfine levels

$$|S_{1/2}, F = 3 \text{ or } F = 4, m_F = 0\rangle$$

are at least 2 orders of magnitude smaller than the shift of the metastable hyperfine levels

$$|D_{5/2}, F = 1, \dots, 6, m_F = 0\rangle$$

and are not relevant for the choice of the level. Fig. 7 shows the quadratic Zeeman shifts for the different hyperfine levels of $D_{5/2}$ for sublevels $m_F = 0$. These curves illustrate the great variation of these shifts with the hyperfine sublevel. Depending on the level involved, the second-order Zeeman effect can be as large as $98.04 \text{ Hz}/\mu\text{T}^2$ for $F = 1$ or reduced to $-9.05 \text{ Hz}/\mu\text{T}^2$ for $F = 6$ (see Fig. 7). This last level should be used as a basis to reduce the second-order Zeeman effect of the standard. As the $|S_{1/2}\rangle \rightarrow |D_{5/2}\rangle$ transition is electric-quadrupole, the selection rules $\Delta F = 0, \pm 1, \pm 2$ imply that the fundamental sublevel involved in the standard should be $|S_{1/2}, F = 4, m_F = 0\rangle$.

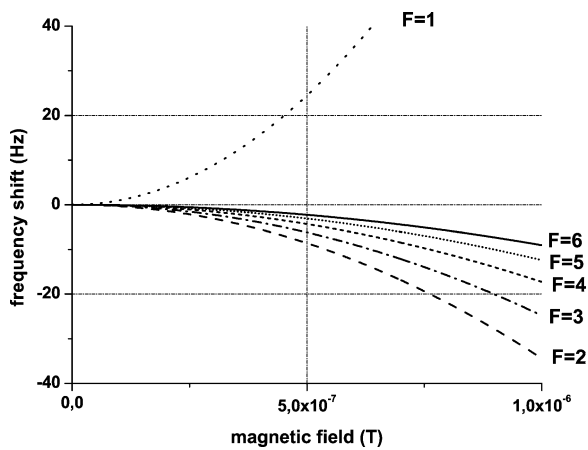


Fig. 7. Zeeman shift of the metastable hyperfine sublevels of $D_{5/2}$ versus the magnetic field, for Zeeman sublevel $m_F = 0$.

To eliminate the uncertainty due to the Zeeman effect, the local magnetic field must be kept on the $0.1 \mu\text{T}$ level. A controlled magnetic field is still needed to split all the Zeeman sublevels and to be able to select the $|m_F = 0\rangle \rightarrow |m_F = 0\rangle$ transition. The two closest transitions $|S_{1/2}, 4, \pm 1\rangle \rightarrow |D_{5/2}, 6, \pm 1\rangle$ are split apart by $\pm 3.5 \text{ kHz}/\mu\text{T}$. So a magnetic field of $0.1 \mu\text{T}$ allows to isolate the $m_F = 0 \rightarrow m_F = 0$ transition and can be measured by the observation of these neighbouring transitions. Nevertheless, such a magnetic field may not be sufficient to maintain a high level of scattered light by the atomic system, as observed for other ions under study [4]. But it is possible to recover a high level signal by spinning of the laser polarisation [4,19] and we do not consider, at this level, this reduction of the signal as a limitation. Without any magnetic field applied, the local field caused by the earth and the experimental setup is of the order of 10^{-4} T and such fields can be produced by 1 A in Helmholtz coils. Furthermore, magnetic field fluctuations of $0.2 \mu\text{T}$ over one day have been observed in an unshielded environment [20]. As a consequence, in a thermalized and shielded environment, it is technically possible with standard current supplies of 1 A stabilized to the mA level, to compensate for the already existing magnetic field and to add the desired magnetic field of $0.1 \pm 0.05 \mu\text{T}$. In these conditions, the frequency uncertainty due to the Zeeman effect is

$$B = 0.1 \pm 0.05 \mu\text{T} \rightarrow \delta f_Z = -0.09 \pm 0.09 \text{ Hz.} \quad (6)$$

Indeed, it is possible to prepare the atomic system in the $|S_{1/2}, F = 4, m_F = 0\rangle$ state thanks to the property of dipole transition that forbids $|F, m_F = 0\rangle \rightarrow |F, m_F = 0\rangle$ transitions. After the cooling stage, two lasers polarised parallel to the magnetic field ($\Delta m_F = 0$) and resonant with the $|S_{1/2}, F = 4$ and $F = 3\rangle \rightarrow |P_{1/2}, F = 4\rangle$ transitions optically pump the system in the $|S_{1/2}, F = 4, m_F = 0\rangle$ state in few microseconds, then ready for the probe stage. Actually, the cooling and optical pumping stage are not so simple due to a possible decay from $P_{1/2}$ to $D_{3/2}$ level (see Fig. 6), whose lifetime is the same order of magnitude as $D_{5/2}$ and so requires three repumping lasers, to empty the possibly occupied $F = 3, 4, 5$ levels. If the repumping lasers are σ ($= \sigma^+ + \sigma^-$) polarised, the cooling and optical pumping remains efficient, as long as the three repumping lasers' detunings are different from the two cooling ones, to avoid dark resonances [21] and as long as their polarization is spun to prevent pumping into dark states [19]. With its very low natural abundance, the use of such an isotope is technically challenging, but it has been shown that photoionisation processes allow to create $^{43}\text{Ca}^+$ ions even from a non-enriched calcium sample [22].

3.2. Interaction with DC electric fields and their gradients

The second-order Stark effect shifts the standard frequency through the coupling of the levels $S_{1/2}$ and $D_{5/2}$ to all the other atomic levels by electric dipole interaction with any DC or slowly varying electric fields. These fields also shift the $D_{5/2}$ level by the coupling of its electric quadrupole moment to any electric field gradient. In a usual miniature spherical trap, the confining electric field has no static component, oscillates at a frequency of the order of 10 MHz and its shape in the center can be very well approximated by a quadrupole. In the exact center of the trap there should be no oscillating field but an oscillating field gradient. However, in a real Paul trap, patch potentials deform the harmonic potential well created by the RF field. They separate the minimum potential point from the zero RF-field point and static bias voltages have to be applied in the three directions to make these two points meet again and reduce any static field to less than V/cm. This step is required to be able to cool an ion to the Doppler limit and to reach the Lamb–

Dicke regime [23] and can lead to an increase of the static electric field gradient. Such gradient can realistically reach 1 V/mm on 1 mm (the typical diameter of a Paul–Straubel trap). The local electric field is then the sum of the quadrupole oscillating field that traps the ion, the bias static field lower than V/cm and the isotropic field radiated by the vessel considered as a blackbody. Since the frequencies of this radiated field are far below the optical resonance of Ca^+ , the field can be taken into account by its mean-square value averaged over all the blackbody spectrum, whose value is given by [24]

$$\langle E_{\text{BB}}^2 \rangle = 831.9^2 \left(\frac{T}{300} \right)^4 \quad (7)$$

in $(\text{V/m})^2$ with T in Kelvin. At room temperature, this field overtakes the static bias field resulting from compensation of patch potentials. Nevertheless, it can be drastically reduced by cooling the vessel, a thermalization at 77 K sets this field below the level of V/cm, comparable to the bias static one.

Thanks to a symmetry property of the second-order Stark Hamiltonian (which behaves like a second-order tensor), the Stark shift of $S_{1/2}$ is independent of the hyperfine level and Zeeman sublevel. As a consequence, it is also independent of the polarisation of the electric field and behaves like a scalar (this property is true for any level with $J < 1$). An electric field couples the ground state $4S_{1/2}$ to all the $nP_{1/2}$ and $nP_{3/2}$ levels but in the fact, the sum of the oscillator strength on $4P_{1/2}$ and $4P_{3/2}$ is already equal to 1 [25] and there is no point taking into account other couplings to $n > 4$ levels. The second-order Stark shift on $4S_{1/2}$ is then easily evaluated to $-9.5 \text{ mHz}/(\text{V/cm})^2$.

The Stark effect on the $D_{5/2}$ level can be split into a scalar term, independent on F and m_F and a tensorial part, depending on these two quantum numbers and on the angle θ between the electric field and the magnetic field defining the quantification axis. The sum of all the oscillator strengths of the transitions between $3D_{5/2}$ and $nP_{3/2}$ ($n \geq 4$), $nF_{5/2}$ ($n \geq 4$) and $nF_{7/2}$ ($n \geq 4$) is only 0.48 (according to the Harvard database [25]), suggesting that there are other couplings with levels belonging to the continuum. Then our evaluation can only be a rough estimation, but it gives a correct order of magnitude. We find

$-3.9 \text{ mHz}/(\text{V/cm})^2$ for the scalar part and

$$+ \left(2.1 \frac{\text{mHz}}{(\text{V/cm})^2} \right) \frac{3 \cos^2 \theta - 1}{2}$$

for the tensorial part and associate an uncertainty as high as the value itself to take into account that there are missing couplings. The total frequency shift due to DC Stark effect is then

$$\begin{aligned} \delta f_S(S_{1/2} \rightarrow D_{5/2}, F = 6, m_F = 0) \\ = 5.6(\pm 4) + 2.1(\pm 2) \frac{3 \cos^2 \theta - 1}{2} \frac{\text{mHz}}{(\text{V/cm})^2}. \end{aligned} \quad (8)$$

At room temperature, the DC Stark shift is mainly due to the isotropic radiated field and is therefore

$$\begin{aligned} \delta f_S(S_{1/2} \rightarrow D_{5/2}, F = 6, m_F = 0) \\ = 0.39(\pm 0.27) \text{ Hz}. \end{aligned} \quad (9)$$

If the vessel is cooled to 77 K, the contribution of the radiated field is of the same order as the bias static field so its direction is unknown and its amplitude of the order of 1 V/cm. Such a field induces an uncertainty on the frequency of

$$\begin{aligned} \delta f_S(77 \text{ K})(S_{1/2} \rightarrow D_{5/2}, F = 6, m_F = 0) \\ \leq 12 \text{ mHz}. \end{aligned} \quad (10)$$

As for the coupling of the electric quadrupole moment of the $3D_{5/2}$ state to any electric field gradient, it depends on the hyperfine level, its Zeeman sublevel and on the shape as well as on the symmetry axis of the electric potential [26]. The coupling strength is due to a non-spherical repartition of the electronic charge density and depends on the atomic orbitals of the considered level. The quadrupole moment $\Theta(3D_{5/2})$ of the fine structure state can be defined as [26]:

$$\begin{aligned} \Theta(3D_{5/2}) \\ = -\frac{e}{2} \left\langle 3D_{5/2}, m_J = \frac{5}{2} \left| 3z^2 - r^2 \right| 3D_{5/2}, m_J = \frac{5}{2} \right\rangle. \end{aligned} \quad (11)$$

This is calculated by considering the electronic orbital of $3D_{5/2}$ as pure $3d$ without any mixing with other electronic orbitals. For a single electron atom [27]

$$\Theta = \frac{e}{2} \langle r^2 \rangle \frac{2J - 1}{2J + 2}. \quad (12)$$

In our case:

$$\Theta(3D_{5/2}) = \frac{2e}{7} \langle r^2 \rangle_{3d}. \quad (13)$$

In [26], the Cowan code is used to compute $\langle r^2 \rangle_{5d}$ for Hg^+ . A good enough and simple estimation of $\langle r^2 \rangle$ in alkali like ion is provided by the quantum defect method [28] which gives a simple relation between the energy E_{nl} of the electronic level and an effective quantum number $n^*(l)$ by

$$E_{nl} = -\frac{\tilde{Z}^2}{n^{*2}(l)} \text{ a.u.}, \quad \tilde{Z} = Z - N + 1. \quad (14)$$

$\langle r^2 \rangle_{3d}$ can then be calculated using the one-electron orbital properties, with \tilde{Z} and n^* instead of Z and n . This method gives for Ca^+

$$\langle r^2 \rangle_{3d} = 6.6a_0^2, \quad (15)$$

where a_0 is the Bohr radius. The energy shift of the hyperfine sublevel $|F = 6, m_F = 0\rangle$ of $3D_{5/2}$ is

$$\delta E = \frac{7}{11} \left(\frac{2e}{7} \langle r^2 \rangle_{3d} \right) \left(\frac{1}{2} \frac{\partial^2 V}{\partial x^2} \right) \Pi, \quad (16)$$

where Π is a geometrical factor equal to $(3 \cos^2 \beta - 1)$ if the field has a quadrupole symmetry ($V \propto x^2 + y^2 - 2z^2$), β being the angle between its symmetry axis and the magnetic field defining the quantization axis [26]. The frequency shift of the standard transition under investigation is then

$$\delta f = 8.1 \times 10^{-7} \left(\frac{1}{2} \frac{\partial^2 V}{\partial x^2} \right) \Pi \text{ Hz}. \quad (17)$$

The hyperfine level has little influence on this shift as, for example, for the level $F = 2$, $7/11$ is replaced by $17/35$. With the expected gradient of 1 V/mm over 1 mm , the uncertainty induced by this effect reaches the hertz level, which is high compared to the width of the clock transition in Ca^+ . Any modification of the patch potential, due, for example, to the ion creation process, alters this shift and reduces the reproductibility of the standard. Still, this effect can be eliminated by averaging the transition frequency measured with the magnetic field along three perpendicular directions, as the geometrical Π factor is then averaged to zero [26]. The remaining uncertainty will then depend on the precision of the angle setting between the three

measurements. This precision depends a lot on the vessel design and experimental setup, and it seems difficult to estimate this uncertainty as long as we have not performed the experiment. Nevertheless, other authors [29] have projected to reduce by 50 the uncertainty induced by this shift and we assume that a reduction by a factor of 10 is readily achievable, which sets the uncertainty induced by the quadrupole effect to $\pm 0.1 \text{ Hz}$. At this point, it is important to mention that in spherical traps, the field gradient is inferior to the one in linear traps, due to the confining geometry. As a consequence, in order to minimize the shift induced by the gradient a spherical trap is preferred to a linear trap.

3.3. Interaction with AC electric fields

During the excitation of the clock transition, only one laser is applied. It can still cause an AC Stark shift (or light-shift) of $S_{1/2}$ and $D_{5/2}$ by coupling them to $P_{1/2}$ and $P_{3/2}$ by dipole interaction or by coupling them to other Zeeman sublevels of $D_{5/2}$ and $S_{1/2}$ by quadrupole interaction (the coupling with $D_{3/2}$ is far less strong). The first two couplings produce a shift proportional to the laser intensity I_{729} equal to $1.1 \times 10^{-4} I_{729} \text{ Hz}$. The laser intensity required to produce the highest Rabi pulsation of 1000 s^{-1} considered in Section 2.2.3 on the $|S_{1/2}, 4, 0\rangle \rightarrow |D_{5/2}, 6, 0\rangle$ transition is $0.75 \mu\text{W/mm}^2$, which leads to a light-shift caused by dipole coupling equal to 0.08 mHz , which is, however, negligible compared to the natural width of the transition.

Light-shifts of a few kHz due to quadrupole interaction with other Zeeman sublevels have been measured on $^{40}\text{Ca}^+$ isotope [30]. In these experiments Rabi pulsations of 1 MHz were used with laser detunings of the order of 1 MHz . Here we calculate this shift in the context of the clock transition excitation for a Rabi pulsation equal to 1000 s^{-1} and a magnetic field of $0.1 \mu\text{T}$. The frequency detuning required to probe the clock transition depends on the laser linewidth and on the Rabi pulsation used, and is of the order of 1 Hz . By choosing $\pm 10 \text{ Hz}$ for this detuning the light-shift is then not underestimated. We find an effect equal to $\pm 6 \text{ mHz}$ decreasing to $\pm 0.06 \text{ mHz}$ if the magnetic field is $1 \mu\text{T}$. The sign depends on the sign of the detuning. Two reasons make this effect very small: the small Rabi pulsation considered for such experiments and the small detuning required to

Table 2
Uncertainty budget for the frequency transition of $|S_{1/2}, 4, 0\rangle \rightarrow |D_{5/2}, 6, 0\rangle$ in $^{43}\text{Ca}^+$

Effect	Fields/conditions	Shift (Hz) @ 300 K	@ 77 K
Second-order Zeeman effect	0.1 μT	-0.09 ± 0.09	-0.09 ± 0.09
Stark effect	Radiated and bias static field	$+0.39 \pm 0.27$	≤ 0.012
$D_{5/2}$ coupled to the field gradient	1 V/mm ²	± 0.1	± 0.1
AC Stark effect @ 729 nm	0.75 $\mu\text{W}/\text{mm}^2$, 0.1 μT	± 0.006	± 0.006
Second-order Doppler effect	Ion cooled to the Doppler limit	-2×10^{-4}	-2×10^{-4}
Global shift and uncertainty		$+0.3 \pm 0.4$	-0.09 ± 0.19
Relative shift and uncertainty		$+7(\pm 9) \times 10^{-16}$	$-2(\pm 4) \times 10^{-16}$

probe the two sides of the transition (of the order of a few Hz). With such small detuning, the couplings of $|S_{1/2}, 4, 0\rangle$ with $|D_{5/2}, 6, 2\rangle$ and with $|D_{5/2}, 6, -2\rangle$ compensate each other (and vice versa for $|D_{5/2}, 6, 0\rangle$ with $|S_{1/2}, 4, \pm 2\rangle$). Nevertheless, with the laser power and magnetic field values planned for the optical clock realisation, this effect overtakes the ones induced by dipole couplings.

3.4. Second-order Doppler shift

The second-order Doppler effect shifts the frequency transition by

$$\frac{\delta f_D}{f_0} = -\frac{\langle v^2 \rangle}{2c^2}. \quad (18)$$

The motion of the ion can be described by a thermal oscillation at the secular pulsation ω_{tr} superimposed by an oscillation driven by the radio-frequency field applied to the trap. The average kinetic energy results from these two contributions which can be considered as equal with a good approximation, in the typical case where the trap is operated close to the origin of its stability diagram [23]. The amplitude of oscillation X of the secular motion is evaluated in Section 2.1 for an ion cooled to the Doppler limit. The mean-square secular velocity is calculated by $\langle v^2 \rangle = V_0^2/2$ where $V_0 = \omega_{\text{tr}}X$ and $X = \lambda_{\text{tr}}\sqrt{2\langle n \rangle + 1}$ (cf. Section 2.1). The contribution of this mean square velocity is computed twice in the evaluation of the second-order Doppler shift, to take into account the radio-frequency driven motion. With the values chosen in Section 2.1, the velocity amplitude V_0 is equal to 0.32 m/s leading to a second-order Doppler relative shift given by

$$\frac{\delta f_D}{f_0} = -5.6 \times 10^{-19}. \quad (19)$$

In the case of the Ca^+ clock transition ($f_0 = 4.11 \times 10^{14}$ Hz), the absolute shift is 0.22 mHz, which is negligible in the reduction of the clock precision. This calculation confirms that Doppler laser cooling is sufficient also to reduce the second-order Doppler effect to negligible values.

3.5. Uncertainty budget

Table 2 gives the uncertainty budget expected for an atomic clock based on $^{43}\text{Ca}^+$. At room temperature, and with the considered magnetic field, the major source of frequency shift and uncertainty is the Stark effect induced by the radiated electromagnetic field. This effect is drastically reduced in a vessel cooled to 77 K and then the major source of uncertainty becomes the coupling with the field gradient through the quadrupole moment of $D_{5/2}$ which limits the ultimate precision of the clock. It can be compensated by measuring the frequency with three perpendicular directions of magnetic field. Nevertheless, the obtained precision will depend on the design of the experimental setup and the ability to control the directions of the laser propagation and magnetic field. The projections made for all these major systematic shifts show that an atomic frequency standard based on $|S_{1/2}, 4, 0\rangle \rightarrow |D_{5/2}, 6, 0\rangle$ of $^{43}\text{Ca}^+$ can reach an uncertainty of 4×10^{-16} , with room for improvement by better compensation of the quadrupole shift and better stabilization of the magnetic field.

4. Conclusion

We have presented a theoretical evaluation of the ultimate performances that can be expected from

an optical frequency standard based on an electric quadrupole transition of a trapped single $^{43}\text{Ca}^+$ ion. We studied its stability through its Allan deviation, assuming that the signal-to-noise ratio would be limited by the quantum projection noise. Our results show that a frequency instability of $\approx 2.5 \times 10^{-15}/\sqrt{\tau}$ can be expected. We also show that a Ramsey excitation scheme allows to take advantage of a very narrow transition, even with a laser broader than this transition, whereas this is not possible with a single Rabi pulse. The minimum Allan deviation is also computed for the other ions which are candidates for an optical frequency standard and calcium ranks well within this list.

In a second section, all the systematic frequency shifts have been estimated and the environmental conditions studied in order to minimize the frequency uncertainty. This minimization is limited by the precision reached in the successive orientation of 3 mutually perpendicular magnetic fields to compensate the coupling of the $D_{5/2}$ quadrupole with a field gradient. A technical challenge for the future optical frequency standard will be to point these three perpendicular magnetic fields and to reduce the field gradient. In this context, a miniature spherical trap is more appropriate than a linear one to a frequency standard. Our projections show that with a first-step alignment and a cooled vessel, a standard based on $|S_{1/2}, 4, 0\rangle \rightarrow |D_{5/2}, 6, 0\rangle$ of $^{43}\text{Ca}^+$ can reach an uncertainty of 4×10^{-16} , an order of magnitude smaller than the most precise actual microwave frequency standard [31].

Acknowledgements

The authors would like to thank F. Schmidt-Kaler for very helpful discussions. Our project has been supported by the Bureau National de Métrologie.

References

- [1] E. Braun, J. Helmcke, *Meas. Sci. Technol.* 14 (2003) 1159.
- [2] R. Rafac, B. Young, J. Beall, W. Itano, D. Wineland, J. Bergquist, *Phys. Rev. Lett.* 85 (12) (2000) 2462.
- [3] L. Marmet, A. Madej, *Can. J. Phys.* 78 (2000) 495.
- [4] P. Gill, G. Barwood, H. Klein, G. Huang, S. Webster, P. Blythe, K. Hosaka, S. Lea, H. Margolis, *Meas. Sci. Technol.* 14 (2003) 1174.
- [5] M. Eichenseer, A.Y. Nevsky, C. Schwedes, J. von Zanthier, H. Walther, *J. Phys. B* 36 (2003) 553.
- [6] C. Champenois, M. Knoop, M. Herbane, M. Houssin, T. Kaing, M. Vedel, F. Vedel, *Eur. Phys. J. D* 15 (2001) 105.
- [7] H. Dehmelt, *Adv. At. Mol. Phys.* 3 (1967) 53.
- [8] D. Wineland, W. Itano, *Phys. Rev. A* 20 (4) (1979) 1521.
- [9] S. Diddams, T. Udem, J. Bergquist, E. Curtis, R. Drullinger, L. Hollberg, W. Itano, W. Lee, C. Oates, K. Vogel, D. Wineland, *Science* 293 (2001) 825.
- [10] W. Itano, J. Bergquist, J. Bollinger, J. Gilligan, D. Heinzen, F. Moore, M. Raizen, D. Wineland, *Phys. Rev. A* 47 (5) (1993) 3554.
- [11] D. Wineland, J. Bollinger, W. Itano, D. Heinzen, *Phys. Rev. A* 50 (1) (1994) 67.
- [12] T. Becker, J. von Zanthier, A.Y. Nevsky, C. Schwedes, M. Skvortsov, H. Walther, E. Peik, *Phys. Rev. A* 63 (2001) 051802R.
- [13] C. Blockley, D. Walls, H. Risken, *Europhys. Lett.* 17 (1992) 509.
- [14] C. Cohen-Tannoudji, in: *Frontiers in Laser Spectroscopy*, Les Houches 1975, North-Holland, Amsterdam, 1977, p. 58.
- [15] N. Ramsey, *Molecular Beams*, Oxford Univ. Press, Oxford, 1956.
- [16] M. Knoop, C. Champenois, G. Hagel, M. Houssin, C. Lisowski, M. Vedel, F. Vedel, *Eur. Phys. J. D* 29 (2003) 163.
- [17] F. Arbes, M. Benzing, T. Gudjons, F. Kurth, G. Werth, *Z. Phys. D* 31 (1994) 27.
- [18] W. Nörtershäuser, K. Blaum, K. Icker, P. Müller, A. Schmitt, K. Wendt, B. Wiche, *Eur. Phys. J. D* 2 (1998) 33.
- [19] D. Berkeland, M. Boshier, *Phys. Rev. A* 65 (2002) 033413.
- [20] S. Bize, S. Diddams, U. Tanaka, C. Tanner, W. Oskay, R. Drullinger, T. Parker, T. Heavner, S. Jefferts, L. Hollberg, W. Itano, J. Bergquist, *Phys. Rev. Lett.* 90 (15) (2003) 150802.
- [21] G. Janik, W. Nagourney, H. Dehmelt, *J. Opt. Soc. Am. B* 2 (8) (1985) 1251.
- [22] D.M. Lucas, A. Ramos, J.P. Home, M.J. McDonnell, S. Nakayama, J.-P. Stacey, S.C. Webster, D.N. Stacey, A.M. Steane, *Phys. Rev. A* 69 (2004) 012711.
- [23] D. Berkeland, J. Miller, J. Bergquist, W. Itano, D. Wineland, *J. Appl. Phys.* 83 (1998) 5025.
- [24] W. Itano, I. Lewis, D. Wineland, *Phys. Rev. A* 25 (2) (1982) 1233.
- [25] R.L. Kurucz, Atomic line database, CD-ROM 23, <http://cfa-www.harvard.edu/amdata/ampdata/kurucz23/sekur.html>, 2003.
- [26] W. Itano, *J. Res. Natl. Inst. Stand. Technol.* 105 (2000) 829.
- [27] I. Sobelman, *Atomic Spectra and Radiative Transitions*, Springer-Verlag, Berlin, 1992.
- [28] B. Bransden, C. Joachain, *Physics of Atoms and Molecules*, Longman, Paris, 1994.
- [29] P. Gill, G. Barwood, G. Huang, H. Klein, P. Blythe, K. Hosaka, R. Thompson, S. Webster, S. Lea, H. Margolis, in: *Trapped Ion Optical Frequency Standards*, EGAS 2003, Brussels, *Phys. Scr. T* 112 (2004).
- [30] H. Häffner, S. Gulde, M. Riebe, G. Lancaster, C. Becher, J. Eschner, F. Schmidt-Kaler, R. Blatt, *Phys. Rev. Lett.* 90 (2003) 143602.
- [31] A. Bauch, *Meas. Sci. Technol.* 14 (2003) 1159.

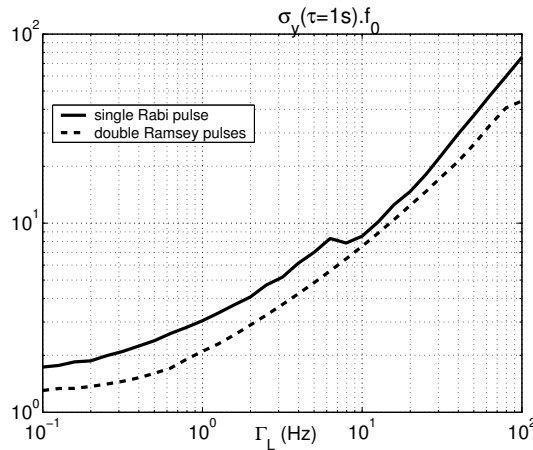


Figure II.13 : figure 4 corrigée de l'article précédent

Dans l'article précédent, à cause d'une mauvaise prise en compte de l'effet de décohérence induit par la largeur spectrale du laser d'horloge, il y a une erreur sur la courbe de la figure 4 concernant les pulses de Ramsey. La figure 4 doit être remplacée par la figure II.13.

Comme mentionné avant l'article, la stratégie actuelle est d'utiliser l'isotope 40 du calcium comme étalon de fréquence plutôt que l'isotope 43 envisagé dans l'article de 2004. De plus, depuis la rédaction de cet article, la publication de calculs et de mesures expérimentales permet de réduire les incertitudes annoncées dans ce même article. La prise en compte de ces nouvelles données nécessite de réévaluer certains effets systématiques :

effet Zeeman Dans le cas du calcium 40 de structure fine demi-entière, l'élimination de l'effet Zeeman du premier ordre se fait par la moyenne entre deux mesures de fréquence, par exemple $f(S_{1/2}, m_J = +1/2 \rightarrow D_{5/2}, m_J = +1/2) + f(S_{1/2}, m_J = -1/2 \rightarrow D_{5/2}, m_J = -1/2)$. Cette méthode est efficace si le champ magnétique est stationnaire au cours du temps, une dérive entre les mesures induisant un effet Zeeman résiduel. Pour maintenir une incertitude liée à cet effet résiduel inférieure à 0,1 Hz, il faut contrôler les fluctuations de champ magnétique vu par l'ion à mieux que $2 \cdot 10^{-5} \mu\text{T}$. Cette contrainte est certainement très drastique mais pas irréalisable si l'expérience possède plusieurs blindages magnétiques. En effet, deux expériences de métrologie basées sur un ion unique de strontium 88 sont elles aussi sensibles au premier ordre au champ magnétique (une au NRC-Canada et une au NPL-Royaume Uni). Elles possèdent toutes deux une couche de blindage magnétique et leurs auteurs rapportent dans le premier cas une dérive de 14 nT en 5 heures (*communication privée de P. Dubé*) et dans le deuxième cas des fluctuations de l'ordre de quelques nT (*communication privée de H. Margolis*). Il faut atténuer ces dérives et fluctuations de deux ordres de grandeur, ce qui devrait être possible par l'ajout de deux couches de blindage, les chercheurs du JPL[§] ayant noté que 3 écrans de μ métal leur avaient permis de réduire d'un facteur 1000 ces fluctuations. Quant à l'effet Zeeman du second ordre, avec les champs magnétiques envisagés dans l'article, il est de l'ordre de 16 mHz sur cette

[§]J. Prestage et collaborateurs, Jet Propulsion Laboratory, Pasadena, USA

transition et ses fluctuations resteront négligeables tant que les autres effets ne seront pas éliminés.

déplacement quadrupolaire Aujourd'hui, il est démontré que cet effet peut être réduit au moins d'un facteur 10 par des mesures avec trois directions de champs magnétiques perpendiculaires^{44,42,45} ou avec des sous-niveaux Zeeman différents⁴³. De plus, l'incertitude sur la valeur du quadrupole du niveau $D_{5/2}$ est aujourd'hui levée grâce aux mesures extrêmement précises réalisées dans le groupe de R. Blatt à Innsbruck⁴⁶, confirmées par les calculs de l'équipe de M. Safronova⁴⁷. La valeur du quadrupole $\Theta(D_{5/2})$ évaluée à 1.9 u.a. dans l'article précédent est maintenant connue avec un chiffre significatif supplémentaire ($\Theta(D_{5/2}) = 1.83(1)$ u.a.) et l'incertitude sur le déplacement induit par le couplage quadrupolaire peut être de façon très réaliste majorée à 0.1 Hz, soit 2.10^{-16} en valeur relative.

effet Stark induit par le rayonnement du corps noir ou BBR-*blackbody radiation shift*. Dans l'article de 2004, c'est la source d'incertitude prépondérante à cause d'une connaissance insuffisante des dipôles de transition couplant l'état métastable $D_{5/2}$ et déterminant la polarisabilité de cet état. En 2007, M. Safronova et ses collaborateurs publient un calcul très précis⁴⁸ (et muni de barres d'erreur) de la polarisabilité des états $S_{1/2}$ et $D_{5/2}$. Ces calculs permettent de réduire d'un facteur 10 l'incertitude annoncée dans l'article de 2004 pour le BBR shift. Ce déplacement est maintenant connu comme $\delta f_S(BBR) = 0.36 \pm 0.03$ Hz, à 300 K, et n'est donc plus le facteur limitant la précision d'une future horloge à ion calcium. Un passage à 77 K, comme il était envisagé en 2004 n'est donc plus justifié.

bilan À 300 K, le bilan des déplacements de fréquence pour $^{40}\text{Ca}^+(S_{1/2}, m_J = \pm 1/2 \rightarrow D_{5/2}, \pm m_J)$ est donc estimé à $+7(\pm 3)10^{-16}$. La réduction de son incertitude est limitée par l'estimation de la capacité à compenser le déplacement quadrupolaire et à maintenir un champ magnétique stationnaire.

L'intérêt de l'isotope 40 sur l'isotope 43 réside principalement dans le plus faible nombre de transitions optiques impliquées dans le refroidissement et la préparation de l'ion, celles-ci étant démultipliées par la structure hyperfine dans le cas de l'isotope 43. Néanmoins, les estimations précédentes montrent que l'effet limitant la précision d'une horloge basée sur l'isotope 40 du calcium sera certainement l'incertitude et les fluctuations du champ magnétique local et l'utilisation de cet isotope ne sera justifiée que si celles-ci sont contrôlées. L'incertitude annoncée ici de $3 \cdot 10^{-16}$ est basée sur une estimation de la capacité à contrôler et/ou compenser les effets systématiques les plus importants. Nos estimations sont très raisonnables et on peut s'attendre à ce qu'une véritable mesure fasse au moins aussi bien. Ceci permettrait de placer la précision de l'étalon à ion calcium à un niveau comparable à celui des meilleures horloges optiques à ion unique dont la précision atteint aujourd'hui la gamme des 10^{-17} . La championne dans la catégorie ion "vraiment" unique est l'horloge à ion Hg^+ développée au NIST⁴⁵ dans le groupe de D. Wineland et J. Bergquist et dont l'incertitude des effets systématiques est évaluée à $7.2 \cdot 10^{-17}$. La précision de la mesure de sa fréquence d'horloge était, en 2006, limitée par l'incertitude de celle de la fontaine à césium ayant servi de référence et de celle du peigne de fréquence ayant servi de chaîne de fréquence. Le tout amène l'incertitude relative de mesure à $9.1 \cdot 10^{-16}$. Ce record est battu par les deux horloges à ion Al^+ mises au point dans le même groupe⁹. Dans ces horloges,

l'ion d'horloge a un compagnon et leur degré de liberté interne sont intriqués pour que la lecture de l'état interne de Al^+ puisse se faire sur la transition dipolaire intense du compagnon, transition très difficilement accessible dans le cas de Al^+ et peu efficace pour le refroidissement laser. Ce nouveau type d'horloge, qui utilise les techniques de la logique quantique, permet d'exploiter les propriétés métrologiques^h de l'ion Al^+ tout en s'affranchissant de ses piètres qualités en terme de couplage sur des transitions optiques. Pour s'affranchir de l'incertitude introduite par une mesure de fréquence faisant référence à une horloge à césium, deux horloges à Al^+ sont comparées entre elles. Leur stabilité relative a été mesurée⁹ à $2.8 \cdot 10^{-15}/\sqrt{\tau}$ et l'incertitude sur leur écart en fréquence estimée à $1.8 \cdot 10^{-17}$. Ceci fait de l'horloge à Al^+ l'horloge la plus précise aujourd'hui.

II.3 Refroidissement laser d'ions piégés

Comme il est expliqué en II.2.2 et en II.2.4, le refroidissement laser Doppler doit être suffisant pour atteindre le régime de Lamb-Dicke et obtenir les performances souhaitées pour une horloge. Dans la pratique, le refroidissement Doppler des ions piégés est très proche de celui des atomes libres²⁵⁻²⁷ à ceci près que dans un piège 3D, une seule direction de propagation suffit à assurer le refroidissement, à condition de ne pas choisir l'axe de symétrie du piège pour cette direction et en considérant que les imperfections de l'anneau permettent de coupler les deux directions du mouvement dans le plan radial. De plus, la force de rappel exercée par le piège rend inutile une configuration de type mélasse (deux faisceaux identiques contra-propageants). Historiquement, les premières démonstrations de refroidissement laser sur un nuage d'ions (mais pas jusqu'à la limite Doppler) ont été publiées en 1978 pour 50 ions Ba^+ en piège de Paul par P. Toschek et collaborateurs⁶ et pour des ions Mg^+ en piège de Penning (piège de même géométrie mais alliant un champ électrique et un champ magnétique statique) par D. Wineland, R. Drullinger et F. Walls⁵ au NBS (devenu NIST).

II.3.1 Refroidissement Doppler

Nous ne rappellerons pas ici les propriétés du refroidissement Doppler^{3,4,26,27,49} mais plutôt quelques ordres de grandeur utiles pour identifier les régimes pertinents du refroidissement des ions piégés (Γ_Q est la largeur naturelle de la transition quadrupolaire, Γ_D celle de la transition dipolaire) :

$$\Gamma_Q \quad < \quad \omega_{rec} \quad < \quad \omega_{x,y,z} \quad < \quad \Gamma_D$$

$$\simeq 1 \text{ Hz} \quad \simeq 10 \text{ kHz} \quad \simeq 1 \text{ MHz} \quad \simeq 10 \text{ MHz}$$

- Si la fréquence de recul $\omega_{rec} = \hbar k_L^2/2m$ et les fréquences du mouvement séculaire $\omega_{x,y,z}$ sont très petites devant la largeur naturelle Γ de la raie considérée, un cycle absorption/émission a lieu sur une durée beaucoup plus courte que la période d'oscillation. La

^hla transition d'horloge de l'ion Al^+ n'est sensible à l'effet Zeeman qu'au deuxième ordre mais ce qui la distingue de la majorité des autres horloges est l'absence de quadrupole permanent pour les niveaux impliqués, ce qui supprime l'effet du gradient du champ électrique statique, et une polarisabilité statique moindre d'un ordre de grandeur se qui limite l'effet du champ rayonné par l'enceinte et l'environnement du piège

vitesse de l'ion change peu durant un cycle et le modèle de raie large couramment utilisé pour formaliser le refroidissement Doppler d'atomes libres s'applique ici.

- Comme le montrent les ordres de grandeur précédents, il est important que la fréquence de recul soit très petite devant les fréquences d'oscillation dans le piège pour pouvoir atteindre le régime de Lamb-Dicke car $\eta_{x,y,z} = \sqrt{\omega_{rec}/\omega_{x,y,z}}$.

Dans l'hypothèse où la limite Doppler est atteinte, on peut caractériser la distribution thermique de population des niveaux vibrationnels par le niveau moyen occupé \bar{n} , défini par :

$$\bar{n} = \frac{e^{-\hbar\omega/k_B T_D}}{1 - e^{-\hbar\omega/k_B T_D}} = \frac{e^{-2\omega/\Gamma_D}}{1 - e^{-2\omega/\Gamma_D}}. \quad (\text{II.40})$$

Dans la limite où la raie de refroidissement est beaucoup plus large que les fréquences d'oscillation dans le piège ($\omega \ll \Gamma_D/2$), cette expression prend la forme simplifiée $\bar{n} \simeq \Gamma_D/2\omega$ dont la valeur numérique est de l'ordre de 10.

Dans la pratique, il ne suffit pas de respecter ces préceptes pour être dans le régime de Lamb-Dicke. En effet, comme on l'a mentionné plus haut (voir en II.1.3) le déplacement du fond du puits de potentiel hors du noeud de champ rf provoque un micro-mouvement excédentaire dont l'amplitude peut très bien dépasser la longueur d'onde réduite $\lambda/2\pi$. Ce mouvement forcé ne peut être refroidi par laser et il est nécessaire de ramener le fond du puits de potentiel au point de champs rf nul par l'ajout de potentiels statiques. Plusieurs méthodes ont été développées au cours du temps pour diagnostiquer ce micro-mouvement excédentaire et compenser au mieux les potentiels parasites qui en sont la cause¹⁹. Nous en proposons une nouvelle, exposée en III.1, basée sur le brouillage d'un phénomène cohérent par l'effet Doppler. La mise au point de cette méthode repose sur la prise en compte de l'effet Doppler dans les simulations numériques de l'évolution de l'état interne d'un ion piégé sous l'effet des différents couplages laser présents dans l'expérience. Le principe de cette méthode de simulation est présenté en III.1.2.

Quand des températures plus basses que la limite Doppler sont nécessaires, comme pour certains protocoles d'information quantique qui requièrent $n = 0$, la méthode choisie est le refroidissement par bandes latérales^{4,50,51}. Cette méthode est efficace si les bandes latérales du mouvement sont résolues dans le spectre Doppler et si le régime de Lamb-Dicke est déjà atteint. Dans la pratique, ce mode de refroidissement est donc réalisé sur la transition quadropolaire électriqueⁱ $S_{1/2} \rightarrow D_{5/2}$, après une phase de refroidissement Doppler sur la transition intense $S_{1/2} \rightarrow P_{1/2}$. La méthode repose sur l'excitation de la transition quadropolaire sur sa première bande latérale rouge (BLR) qui correspond à un désaccord laser $\Delta = -\omega_x$. En résonance sur cette bande, l'excitation a lieu malgré un déficit en énergie de $\hbar\omega_x$ fourni par l'énergie cinétique de l'ion dans le piège. Dans le régime de Lamb-Dicke, la probabilité d'émission est presque concentrée sur la bande centrale, ce qui assure une perte d'énergie interne de $\hbar\omega_x$ à chaque cycle absorption/émission. Le taux d'émission naturelle étant de l'ordre de un photon par seconde sur cette transition, il est nécessaire d'augmenter artificiellement ce taux pour atteindre une vitesse de refroidissement suffisante pour compenser les sources de chauffage (principalement dû au potentiel rf). Ceci est obtenu par couplage dipolaire électrique du niveau métastable $D_{5/2}$ avec le niveau $P_{3/2}$, par l'intermédiaire d'un laser résonant avec cette transition. L'élargissement

ⁱmais ça pourrait aussi bien être la transition $S_{1/2} \rightarrow D_{3/2}$

ainsi provoqué sur chaque bande du spectre Doppler ne nuit pas au protocole tant que cette largeur effective reste bien plus faible que la distance entre bandes et permet d'augmenter le taux d'émission de photons de plusieurs ordres de grandeur.

II.3.2 Refroidissement sous la limite Doppler sans résoudre les bandes latérales

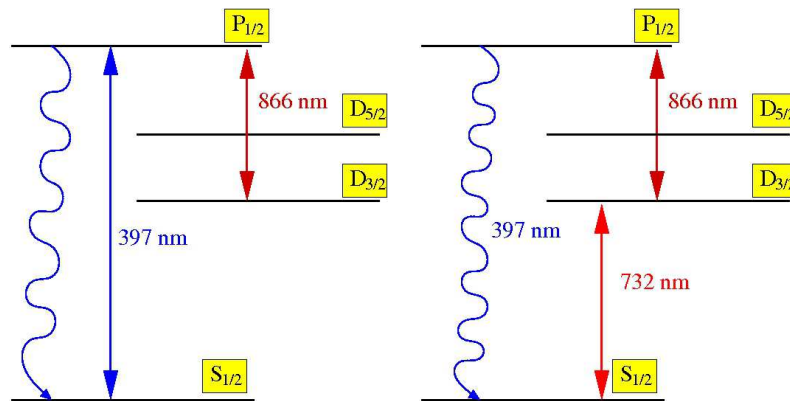


Figure II.14 : Premiers niveaux d'énergie de l'ion calcium $^{40}\text{Ca}^+$ et couplages lasers impliqués dans le refroidissement Doppler "traditionnel", à gauche, et par Doppler à deux photons, à droite. La flèche ondulée représente la transition sur laquelle l'émission de photons est majoritaire.

Nous proposons dans le paragraphe suivant une méthode alternative de refroidissement sous la limite Doppler⁵², qui exploite la même configuration de couplage laser que le refroidissement par bandes latérales, mais qui ne nécessite en rien la résolution de ces bandes dans le spectre Doppler et est basé sur un modèle de raie large, ou plutôt élargie. La motivation est de proposer une méthode de refroidissement Doppler qui ne nécessite pas de sources laser dans le domaine bleu et proche-UV, domaine auquel appartiennent les principales transitions dipolaires exploitées actuellement pour le refroidissement Doppler des ions, et qui est plus simple à mettre en oeuvre que du refroidissement par bandes latérales. Dans la perspective de micro-pièges intégrés, il est très intéressant de s'affranchir de sources UV car celles-ci provoquent une ablation des surfaces constituants les micro-pièges. L'exemple de l'ion calcium est visible sur la figure II.14 où, à gauche est donné le schéma habituellement exploité pour le refroidissement Doppler (avec repompage) et à droite, l'alternative sans source bleue. On remarque sur ce dernier schéma que l'émission de photons se fait quand même sur la transition bleue, même si toutes les sources d'excitation appartiennent au domaine rouge ou proche IR. Ceci permet une détection du signal de fluorescence sur fond noir et un rapport signal sur bruit uniquement limité par le bruit des détecteurs. Ceci est très avantageux pour les applications de métrologie ou d'information quantique où la durée de mesure de l'état interne est limité par ce rapport signal sur bruit.

Une distinction notable entre le protocole de refroidissement Doppler à deux photons proposé ici et le refroidissement par bande latérale tient dans le recul donnant lieu à un refroidissement qui résulte de la somme des deux vecteurs d'onde des deux lasers impliqués. L'importance

des deux contributions est vérifiée expérimentalement dans l'article reproduit en II.3.3 où un refroidissement efficace est obtenu quand les deux lasers sont contra-propageants alors qu'il est inefficace dans le cas contraire. Dans le refroidissement par bande latérale, seule la transition quadripolaire est prise en compte et ce sont des considérations énergétiques et non de recul qui expliquent le refroidissement.

PHYSICAL REVIEW A 77, 033411 (2008)

Two-step Doppler cooling of a three-level ladder system with an intermediate metastable level

C. Champenois,^{*} G. Hagel, M. Knoop, M. Houssin, C. Zumsteg, and F. Vedel
*Physique des Interactions Ioniques et Moléculaires (CNRS UMR 6633), Université de Provence, Centre de Saint Jérôme,
 Case C21, 13397 Marseille Cedex 20, France*

M. Drewsen
*QUANTOP, Danish National Research Foundation Center for Quantum Optics, Department of Physics and Astronomy,
 University of Aarhus, DK-8000 Århus C, Denmark*
 (Received 25 October 2007; published 17 March 2008)

Doppler laser cooling of a three-level ladder system using two near-resonant laser fields is analyzed in the case of the intermediate level being metastable while the upper level is short lived. Analytical as well as numerical results, e.g., obtainable scattering rates and achievable temperatures are presented. When appropriate, comparisons with two-level single-photon Doppler laser cooling is made. These results are relevant to recent experimental Doppler laser cooling investigations addressing intercombination lines in alkaline-earth-metal atoms and quadrupole transitions in alkaline-earth-metal ions.

DOI: [10.1103/PhysRevA.77.033411](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.77.033411)

PACS number(s): 37.10.De, 37.10.Vz, 32.80.Wr

I. INTRODUCTION

Today, laser cooling of atoms is widely used in experiments where high precision spectroscopy or precise control of the atomic motion is required. A large variety of schemes has been developed and applied to suit atoms with specific level structures and for obtaining particular temperature ranges [1]. In general, the lower the wanted temperature, the more sensitive the light scattering process must be on the velocity of the atom. For Doppler laser cooling, which is the most simple laser cooling, this means the narrower the linewidth of the optical transition, the lower the obtainable temperature. However, since the maximum cooling force in the Doppler cooling scheme is dependent on the photon scattering rate, narrow linewidth transitions will lead to longer cooling times than wider transitions.

The aim of the present study is to show that by driving, with two stepwise near-resonant laser fields, a three-level ladder system having an intermediate metastable level and a dipole emitting upper level, it is indeed possible to obtain both short cooling times and at the same time low temperatures through changes of the laser parameters. The present results concern in particular alkaline-metal-like ions Ba^+ , Sr^+ , or Ca^+ [2], but also contain information relevant for Doppler cooling of alkaline-earth-metal atoms using intercombination lines [3,4]. In addition to the excellent laser cooling properties, the presented scheme has the major advantage that individual ions can be detected by dipole emitted light from the upper level to the ground level at a wavelength being the sum of those of the two excitation fields. By the appropriate choice of laser parameters, a large scattering rate can be obtained, which can lead to an essentially background-free detection as it has been demonstrated experimentally recently [2].

Previously, ladder (or cascade) schemes have been studied in Refs. [5–8] in the prospect of two-photon two-color Dop-

pler cooling on narrow lines as demonstrated experimentally in Ref. [6] on alkaline-earth metals using an intercombination line. In these studies, the excited state of a laser-driven transition is coupled by a second laser to an upper more stable level. In the present study, the excited metastable level is coupled to a higher short-lived level, to enhance its coupling with the ground state. Such an excitation scheme is used, for example, for sideband cooling. While sideband cooling processes have already been studied theoretically [9] and experimentally [10,11] in the low saturation regime, the purpose of the present study is to go beyond the low saturation regime and to consider Doppler cooling in the regime where the sidebands are not resolved, as considered experimentally previously [2]. Our analysis applies to any atomic system that can be described by the ladder scheme depicted in Fig. 1. Nevertheless, when numerical applications are needed, we refer to parameters describing the alkali-metal-like ions Ba^+ , Sr^+ , or Ca^+ .

This paper is organized as follows. Section II introduces the theoretical model used to predict the population of the

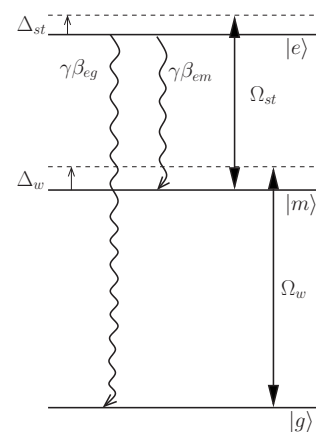


FIG. 1. Ladder level scheme. The straight arrows represent the laser coupling between states $|g\rangle$, $|m\rangle$, and $|e\rangle$. The wavy lines indicate radiative decay taken into account in the model.

^{*}caroline.champenois@univ-provence.fr

internal states. In Sec. III the response of an atom at rest to the laser excitation is studied, focusing on the expected signal. The Doppler cooling efficiency of the proposed excitation scheme is studied in Sec. IV, and in Sec. V conclusions are reported.

II. THEORETICAL MODEL

The considered atomic system is composed by three electronic levels which are coupled by laser fields, according to the ladder scheme depicted in Fig. 1. State $|g\rangle$ is the ground state, $|m\rangle$ is metastable, and the excited state $|e\rangle$ decays radiatively into $|g\rangle$ and $|m\rangle$. This configuration of levels occurs, for instance, in alkaline-earth metal atoms such as Sr and Ca, rare-earth atoms such as Yb, and in alkali-like ions with a metastable d orbital, such as Hg⁺, Yb⁺, Ba⁺, Sr⁺, or Ca⁺. In these last cases, the relevant levels can be identified with the states $|g\rangle=|S_{1/2}\rangle$, $|m\rangle=|D_{3/2}\rangle$, and $|e\rangle=|P_{1/2}\rangle$. Then, the transition $|g\rangle\rightarrow|m\rangle$ is an electric quadrupole transition with a linewidth in the range from 0.01 to 0.1 Hz, while $|g\rangle$ and $|m\rangle$ couple to the excited state $|e\rangle$ with electric dipole transitions. We denote by ω_{ij} ($i, j = g, m, e$) the resonance frequencies of the transitions. Transitions $|g\rangle\rightarrow|m\rangle$, marked by w (weak), and $|m\rangle\rightarrow|e\rangle$, marked by st (strong) are coupled by lasers at frequency ω_w and ω_{st} , the strengths of the couplings are characterized by the Rabi frequencies Ω_w and Ω_{st} and the detunings defined as $\Delta_w = \omega_w - \omega_{mg}$ and $\Delta_{st} = \omega_{st} - \omega_{em}$. The radiative process coupling $|e\rangle$ to states $|g\rangle$ and $|m\rangle$ is characterized by the decay rate γ and the branching ratio β_{eg}/β_{em} ($\beta_{em} + \beta_{eg} = 1$). The radiative decay of state $|m\rangle$, whose natural lifetime is of the order of 1 s for the mentioned ions, is neglected in the analytical model we present below.

We denote by ρ the density matrix for the atom's internal degrees of freedom, while we treat the center-of-mass variables classically. $x(t)$ denotes the time-dependent position of the atom. The master equation for the density matrix ρ is

$$\frac{\partial}{\partial t}\rho = -\frac{i}{\hbar}[H, \rho] + \mathcal{L}\rho, \quad (1)$$

where Hamiltonian H gives the coherent dynamics and is decomposed into the terms

$$H = H_0 + H_I, \quad (2)$$

where

$$H_0 = -\hbar\Delta_w|m\rangle\langle m| - \hbar(\Delta_w + \Delta_{st})|e\rangle\langle e| \quad (3)$$

gives the internal energies in the reference frames of the lasers while

$$H_I = \frac{\hbar\Omega_w}{2}e^{ik_w x(t)}|m\rangle\langle g| + \frac{\hbar\Omega_{st}}{2}e^{ik_{st} x(t)}|e\rangle\langle m| + \text{H.c.} \quad (4)$$

gives the laser coupling, where the k_j denote the laser wave vectors ($j = w, st$). The relaxation operator

$$\begin{aligned} \mathcal{L}\rho = & -\frac{1}{2}\gamma(\rho|e\rangle\langle e| + |e\rangle\langle e|\rho) \\ & + \beta_{eg}\gamma|g\rangle\langle e|\rho|e\rangle\langle g| + \beta_{em}\gamma|m\rangle\langle e|\rho|e\rangle\langle m| \end{aligned} \quad (5)$$

describes the radiative processes.

The response of the atomic system to laser excitation is revealed by the occupation probabilities of the atomic levels, which can be monitored by the number of scattered photons. Detection of the atoms is made on the transition with the highest fluorescence rate $|e\rangle\rightarrow|g\rangle$ (branching ratio $\beta_{eg}/\beta_{em} > 1$ for the ions mentioned above) which lies in the blue domain (< 500 nm). For the excitation scheme discussed in the following, this allows for photon detection without scattered light background since the excitation wavelengths lie in the red and near-infrared domain (> 680 nm). This major advantage does not hold for Hg⁺ or Yb⁺ for which the excitation and emission wavelengths are very close. In the following, we focus on the case of Ba⁺, Sr⁺, and Ca⁺ for the choice of the relevant parameters needed to describe the atomic system.

It should be noted that the dipole (strong) and the quadrupole (weak) couplings differ by some orders of magnitude. Nevertheless, powerful lasers in the red and near-infrared domain are now widely available and, assuming proper focusing of the laser beam, Rabi frequencies of the order of 1 MHz can be reached on the quadrupole transition. To give an idea of the feasible Rabi frequencies, let us mention that, for Ca⁺, 200 mW of laser power at 729 nm focused on a waist radius of 50 μm results in $\Omega_w \approx 1$ MHz [2].

III. INTERNAL DYNAMICS OF A LOCALIZED PARTICLE

In this section we look for the solutions of Eq. (1) when the motion of the particle can be neglected. For numerical applications and when approximations are needed in analytical expressions, parameters leading to a strong driving of the $|m\rangle\rightarrow|e\rangle$ transition with reduced sensitivity to Doppler shift are chosen ($\gamma^2 \ll \Omega_{st}^2, \Delta_{st}^2$). Furthermore, to remain close to experimental conditions, we do not require excessively large Rabi frequency on the $|g\rangle\rightarrow|m\rangle$ transition and assume $\Omega_w^2 \ll \gamma^2, \Omega_{st}^2$.

In order to get some insight in the problem, the dressed state picture of the system can be of help in the limiting case where the weak coupling beam can be considered as a probe of the atom dressed by the photons of the strong transition. In this picture, the $|m\rangle$ state is broadened and shifted by the strong coupling Ω_{st} . For negative detuning Δ_{st} we expect the $|g\rangle\rightarrow|m\rangle$ transition resonance to be shifted to $\delta_{LS} = -(\sqrt{\Omega_{st}^2 + \Delta_{st}^2} + \Delta_{st})/2$. This is confirmed in Fig. 2 where the line shape of the excitation probability in the $|m\rangle$ state $\varphi_m = \langle m|\rho|m\rangle$ shows a maximum very close to this value. Increasing the detuning Δ_{st} decreases the light shift as well as the power-broadened linewidth of the $|g\rangle\rightarrow|m\rangle$ transition, resulting in an increase of the maximum of φ_m for constant coupling strength Ω_{st} .

In an experiment, the measured signal is proportional to the probability $\varphi_e = \langle e|\rho|e\rangle$ to be in the $|e\rangle$ state. Its dependence with the detuning Δ_{st} does not follow the same rule as φ_m and Fig. 2 clearly shows that a maximum excitation probability can be reached for a good choice of this detuning. This behavior is studied in the following through resolution of the optical Bloch equations resulting from the master equation (1).

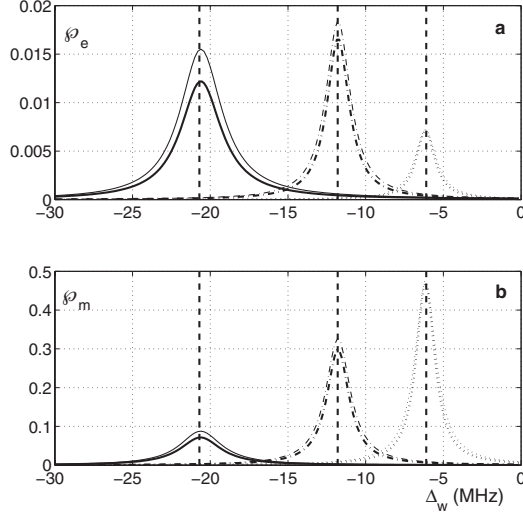


FIG. 2. Steady state population of level $|e\rangle$ (a) and $|m\rangle$ (b) versus Δ_w for $\gamma/2\pi=20$ MHz, $\Omega_{st}/2\pi=100$ MHz, and $\Omega_w/2\pi=1$ MHz. $\Delta_{st}/2\pi=-100$ MHz (solid line), $\Delta_{st}/2\pi=-200$ MHz (dotted-dashed line), $\Delta_{st}/2\pi=-400$ MHz (dashed line). In each case, the thick lines give results for $\beta_{eg}=1$ and the narrow lines for $\beta_{eg}=0.75$. The vertical dashed lines show the light shifts δ_{LS} calculated for the three sets of curves.

A. Maximum fluorescence rate

The steady state solution of Eq. (1) can be written analytically, assuming conservation of the total population ($\varphi_g + \varphi_m + \varphi_e = 1$) and without any approximation made. For the population φ_e , this solution can be written as

$$\varphi_e = \Omega_{st}^2 \Omega_w^2 / \mathcal{D} \quad (6)$$

with

$$\begin{aligned} \mathcal{D} = & \beta_{eg} \{ 4\Delta_w(\Delta_w + \Delta_{st}) [4\Delta_w(\Delta_w + \Delta_{st}) + 2\Omega_w^2 - 2\Omega_{st}^2] \\ & + 4\Delta_w^2 \gamma^2 + \Omega_{st}^4 \} + (\beta_{eg} - 1) 2\Omega_w^2 (2\Delta_w^2 + 4\Delta_w \Delta_{st} - \Omega_{st}^2) \\ & + 2\Omega_w^2 [4(\Delta_w + \Delta_{st})^2 + \gamma^2 + \Omega_w^2]. \end{aligned} \quad (7)$$

This equation is used to estimate the maximum scattering rate that can be expected from this excitation scheme, the effective linewidth of the forbidden transition once coupled by the strong laser excitation, and the dependence of these two entities on the laser coupling parameters. Despite its complexity, Eq. (6) can be connected to the dressed state picture if one keeps in mind that for $\Delta_w = \delta_{LS}$, $4\Delta_w(\Delta_w + \Delta_{st}) = \Omega_{st}^2$.

In the limit where $\Omega_w^2 \ll \gamma^2 |\Delta_w / \Delta_{st}|$, the condition for maximum occupation probability of the $|e\rangle$ state, and thus for maximum fluorescence signal, can also be derived analytically from Eq. (6). In first order in $\gamma^2 / (\Omega_{st}^2 + \Delta_{st}^2)$, this maximum is found for

$$\Delta_w = \delta_{LS} \left(1 - \frac{\gamma^2}{4(\Omega_{st}^2 + \Delta_{st}^2)} \right). \quad (8)$$

This correction to the light shift can be omitted in the evaluation of the maximum population φ_e^M as it adds a correction in second order in $\gamma^2 / (\Omega_{st}^2 + \Delta_{st}^2)$, which is negligible for the set of parameters of interest. For $\Omega_w^2 \ll \Omega_{st}^2$, this maximum is

$$\begin{aligned} \varphi_e^M = & 1 \left/ \left(4 + \frac{2\Delta_{st}}{\delta_{LS}} + \beta_{eg} \frac{4\delta_{LS}^2 \gamma^2}{\Omega_{st}^2 \Omega_w^2} \right. \right. \\ & \left. \left. + (\beta_{eg} - 1) \frac{4\delta_{LS}(\delta_{LS} + 2\Delta_{st})}{\Omega_{st}^2} + \frac{2\gamma^2}{\Omega_{st}^2} \right). \end{aligned} \quad (9)$$

This last equation rules the maximum scattering rate, observed when the detuning of the weak transition is adjusted to the light shift induced by the strong coupling. Assuming this detuning Δ_w is adjusted, for each Rabi frequency Ω_w (which is experimentally the limiting factor) there is an optimal set $(\Omega_{st}, \Delta_{st})$ which maximizes φ_e^M . This optimal set can be found numerically but better understanding can be gained in the particular case of large detunings $\Delta_{st}^2 \gg \Omega_{st}^2$ for which the light shift can be approximated by the simple form $\delta_{LS} = \Omega_{st}^2 / 4\Delta_{st}$. With this simplification, the optimal set is described by the analytic expression

$$\left(\frac{\Omega_{st}}{\Delta_{st}} \right)_{\text{opt}}^2 = 4 \frac{\Omega_w}{\gamma} \sqrt{\frac{2}{\beta_{eg}}}, \quad (10)$$

which corresponds to the maximum population

$$\varphi_e^M |_{\text{opt}} = \frac{1}{4 + 2(\beta_{eg} - 1) + 2\sqrt{2}\beta_{eg}\gamma/\Omega_w + 2\gamma^2/\Omega_{st}^2}. \quad (11)$$

This expression is simplified in

$$\varphi_e^M |_{\text{opt}} \approx \frac{\Omega_w}{\gamma} \frac{1}{2\sqrt{2}\beta_{eg}}, \quad (12)$$

if γ^2 / Ω_{st}^2 is negligible compared to γ / Ω_w .

Equation (12) confirms the dependence of the maximum population φ_e^M with β_{eg} , observed on Fig. 2. Indeed, this population increases when the branching factor β_{eg} decreases. For the ions considered in this work, this factor is of the order of 0.75 for Ba^+ and 0.95 for Ca^+ and Sr^+ . Since the previous equations show that different values of β_{eg} result only in a variation of the maximum population [Eq. (12)] and optimal set of parameters to reach it [Eq. (10)], β_{eg} is fixed to 1 in the following. This simplification results mainly in a slight underestimation of the number of scattered photons but allows to handle more general equations.

Beside the dependence on the branching factors, it is worth noting that the optimal population given in Eq. (12) behaves like Ω_w / γ , and not like Ω_w^2 / γ^2 , as a simple two-level picture would have suggested. This linear behavior is confirmed by numerical calculations, even out of the range of the simplifying approximation $\Omega_{st}^2 \ll \Delta_{st}^2$. This is illustrated in Fig. 3 where the probabilities of occupation of the three levels, derived from Eq. (1) with no approximations, are plotted for different values of Ω_w . For each detuning on the strong transition Δ_{st} , the weak transition detuning is adjusted

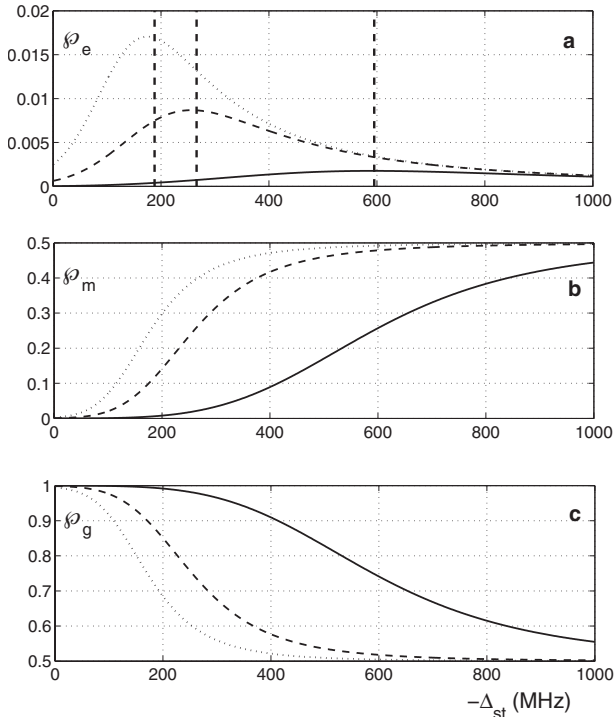


FIG. 3. Steady state population of level $|e\rangle$ (a), $|m\rangle$ (b), $|g\rangle$ (c) versus $-\Delta_{st}$ for an atomic system close to Ba^+ , Sr^+ , or Ca^+ : $\gamma/2\pi = 20$ MHz, in the simplified case where $\beta_{eg} = 1$. The different curves are for different values of $\Omega_w/2\pi$: 0.1 MHz (solid line), 0.5 MHz (dashed line), and 1 MHz (dotted line). $\Omega_{st}/2\pi = 100$ MHz for all curves and Δ_w is adjusted to δ_{LS} for each value of Δ_{st} . The vertical dashed lines show the optimum detunings as defined by Eq. (10), for the three sets of curves.

to the light shift due to the strong coupling: $\Delta_w = \delta_{LS}$. For a given value of Ω_{st} , these curves confirm an optimum value for Δ_{st} which maximizes the resonance value ϕ_e^M . The numerical results also confirm the linear dependence of the maximal population with Ω_w and obey the simplified analytic solution given in Eq. (12) to better than 3%. Following Eq. (10), the optimum of Δ_{st} is expected to behave like $1/\sqrt{\Omega_w}$. This is also confirmed by the numerical results which show that the simplified equation (10) reproduces numerical observation for optimal Δ_{st} to better than 7% for the value of Ω_w chosen for this figure.

We can compare this result with the case where the strong coupling is maximum ($\Delta_{st} = 0$). Then $\delta_{LS} = \pm \Omega_{st}/2$ and in the regime described by $\Omega_{st} > \gamma/2$, the maximum of ϕ_e^M is $(\Omega_w/\gamma)^2/\beta_{eg}$. For the realistic conditions we are concerned with (namely $\Omega_w < \gamma$), the maximum population in $|e\rangle$ and thus the maximum number of scattered photons is smaller by a factor proportional to γ/Ω_w to what can be expected for large detuning Δ_{st} [see Eq. (12) for comparison].

To know if the ladder scheme can result in enough scattered photons to be efficiently detected, it is useful to compare this scheme with the one usually used for detection and Doppler cooling of the considered trapped ions [12]. It consists in the excitation on the $|g\rangle \rightarrow |e\rangle$ and $|m\rangle \rightarrow |e\rangle$ transitions, the last one being required for repumping ions decayed

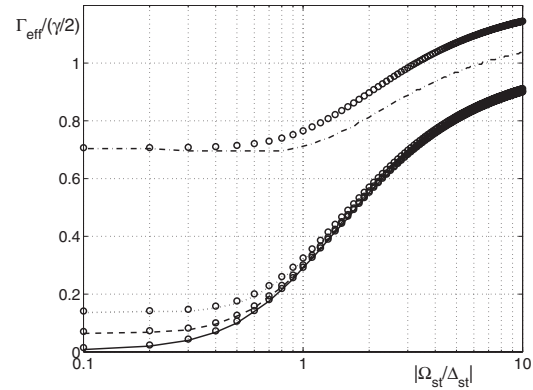


FIG. 4. FWHM of the resonance curve of ϕ_e with Δ_w , in units of $\gamma/2$, as a function of the ratio $|\Omega_{st}/\Delta_{st}|$, for a system identical to Fig. 3. $\Delta_{st}/2\pi = -200$ MHz and Ω_{st} varies from $0.1|\Delta_{st}|$ to $10|\Delta_{st}|$. The different curves are for different values of Ω_w which are 0.1 MHz (solid line), 0.5 MHz (dashed line), 1 MHz (dotted line), and 5 MHz (dotted-dashed line). The lines give the numerical results from the master equation, with no approximations. The symbols plot the FWHM as given by Eq. (15).

in the metastable state. This system forms a Λ scheme and solving the optical Bloch equations for this system, one can show that the maximum occupation probability in the $|e\rangle$ state is close to 20%. The parameters chosen for Fig. 3 show a maximum close to 2% for the ladder scheme. The complete absence of background signal due to scattered light largely compensates a reduction of absolute fluorescence signal by an order of magnitude. Furthermore, an occupation probability of the excited state as high as 10% can be found by numerical calculations with Rabi frequencies on the weak transition of 7 MHz. These are achieved by tight focusing of laser power superior to 500 mW.

B. Resonance linewidth

The linewidth Γ_{eff} of the fluorescence resonance profile with the laser detuning Δ_w and its dependence on the two couplings can also be studied numerically. This study gives evidence for two different types of behavior for this linewidth (see Fig. 4): When Ω_{st} is small compared to Δ_{st} , the linewidth has a constant value, which increases linearly with Ω_w . Once $\Omega_{st} > \Delta_{st}$, the linewidth grows with Ω_{st} and becomes independent on Ω_w . To reflect this behavior in the analytic expression of the resonance linewidth, we first assume that Ω_w is the smallest parameter of the problem ($\Omega_w^2 \ll \Omega_{st}^2, \Delta_{st}^2, \gamma^2, \Delta_w^2$), and extract a limit linewidth we call Γ_0 [full width at half-maximum (FWHM)],

$$\Gamma_0 = \frac{2\delta_{LS}}{1 + 4(\Omega_{st}^2 + \Delta_{st}^2)/\gamma^2} \sqrt{2 + 4(\Omega_{st}^2 + \Delta_{st}^2)/\gamma^2}. \quad (13)$$

This expression is simplified in the regime where $\gamma^2 \ll \Omega_{st}^2 + \Delta_{st}^2$ and can be written as

$$\Gamma_0 \approx \frac{\gamma}{2} \left(1 - \frac{1}{\sqrt{1 + \Omega_{st}^2/\Delta_{st}^2}} \right). \quad (14)$$

Then, we assume that the increasing weak transition coupling power broadens this limit linewidth, resulting in the effective linewidth Γ_{eff} ,

$$\Gamma_{\text{eff}} = \sqrt{\Gamma_0^2 + 2\Omega_w^2}. \quad (15)$$

For strong saturation ($\Omega_{st}^2/\Delta_{st}^2 \gg 1$), $\Gamma_0 \approx \gamma/2(1 - \Delta_{st}/\Omega_{st})$ tends to the maximum value of $\gamma/2$, and $\Gamma_{\text{eff}} \approx \Gamma_0$. For low saturation, the limit linewidth behaves like $\Gamma_0 \approx \gamma/2(\Omega_{st}^2/2\Delta_{st}^2)$ and tends to 0, the main contribution to the linewidth is then due to the weak coupling, $\Gamma_{\text{eff}} \approx \sqrt{2}\Omega_w$.

This dependence of Γ_{eff} with $|\Omega_{st}/\Delta_{st}|$ is shown in Fig. 4 for different values of Ω_w and a far detuned strong coupling laser $\Delta_{st} = -10\gamma$. The comparison between Eq. (15) and the exact FWHM of the resonance profile of φ_e with Δ_w , calculated numerically, shows a very good agreement as long as Ω_w remains weak compared to $\gamma/2$. When this approximation is not valid, the methods used above result in an overestimation of the linewidth for $\Omega_{st} \geq \Delta_{st}$ (dashed-dotted line in Fig. 4). These curves show that the effective linewidth of the excitation scheme can be adjusted continuously by the ratio $|\Omega_{st}/\Delta_{st}|$. When this ratio is chosen to optimize the maximum of φ_e [see Eq. (10)], the effective linewidth can be evaluated through Eq. (15). For $\Omega_w/\gamma \ll 1$, $\Gamma_0 \approx \sqrt{2}\Omega_w$, and $\Gamma_{\text{eff}} \approx 2\Omega_w$. This value gives the lower boundary for an estimation of the effective linewidth when parameters are set to optimize the excited population.

IV. TWO-STEP DOPPLER COOLING

So far we have neglected the effect of the center-of-mass motion on the atomic dynamics. In the following, the considered atoms are trapped in a harmonic potential, as in Ref. [2], their motion is periodic and can give rise to sidebands [13]. To quantify the efficiency of the proposed two-step Doppler cooling, we assume that the effective linewidth Γ_{eff} is larger than the frequencies of oscillation ω_i of the ions in the trap. Practically, it means that the sidebands are not resolved in the absorption spectra and from the point of view of laser-atom interactions, the atoms can be considered as free [13]. Furthermore, we also assume that the recoil frequency $\hbar k_j^2/2m$ (j being w or st) is smaller than the effective linewidth [14] and that the frequencies of oscillation are high enough so that the root mean square of the velocity v_{rms} is not significantly changed during one oscillation period. Within these boundary conditions, the effect of the atom motion can be taken into account in the master equation [Eq.

(1)] and its stationary state solution [Eq. (6)] by the Doppler effect which shifts the detuning from Δ_{st} to $\Delta_{st} - \mathbf{k}_{st} \cdot \mathbf{v}$ and Δ_w to $\Delta_w - \mathbf{k}_w \cdot \mathbf{v}$.

To simplify the notations, we consider a one-dimensional problem, extrapolation to three dimensions being obvious. We assume that the two lasers propagate along the same axis, so v is the velocity along that axis and the positive sign is defined with respect to \mathbf{k}_w . Consequently, the projection k_{st} is positive (negative) if the laser on the strong transition copropagates (counterpropagates) with the laser on the weak transition. By definition, k_w is always positive.

For traveling waves, the radiative force F leading to Doppler cooling results from momentum transferred to the atom by photons on absorption-emission cycles. It is exactly the gradient of the atom-light interaction potential [14] given in Eq. (4), $F = \hbar k_w \Omega_w \text{Im}(\rho_{gm}) + \hbar k_{st} \Omega_{st} \text{Im}(\rho_{me})$. Using the relations induced for the stationary state density matrix by the master equation, one can show that this definition is equivalent to $F(v) = \hbar k_w \beta_{eg} \gamma \varphi_e(v) + \hbar k_{st} \gamma \varphi_e(v)$. In the simplifying case where the decay from $|e\rangle$ to $|m\rangle$ is neglected ($\beta_{eg} = 1$), the radiative force is

$$F(v) = \hbar(k_w + k_{st}) \gamma \varphi_e(v). \quad (16)$$

This is exactly the result one would obtain by analogy with a two-level system where the momentum transferred on each absorption-emission cycle is $\hbar(k_w + k_{st})$ (when averaged on several cycles) and where the number of cycles per unit time is the excited state scattering rate γ times the probability to be in this excited state φ_e . The introduction of the effective momentum $\mathbf{k}_{\text{eff}} = (\mathbf{k}_w + \mathbf{k}_{st})$ as the momentum transferred to the atoms is very significant. It demonstrates that the role of the coupling on the strong transition is not only to shorten the lifetime of the metastable state $|m\rangle$, which would be independent on the relative direction of the two lasers. This sensitivity of the cooling process to the relative direction of propagation has been experimentally demonstrated in Ref. [2].

$F(v)$ can be split in a constant force F^0 , which acts on an immobile atom and in a velocity-dependent force $F(v) - F^0$, responsible for the cooling process. For trapped particles, F^0 shifts the center of the trajectory by $F^0/m\omega_i^2$ and is not involved in the cooling. The cooling force, proportional to $\varphi_e(v) - \varphi_e(v=0)$ can be considered as a damping force $-\beta v$ only at first order in v (i.e., for $v \ll \Gamma_{\text{eff}}/k_x$) [15].

In the approximation where Ω_w is the smallest relevant coupling parameter, the analytic expression of the slope of φ_e with v is simple enough to give an insight to the dependence of β with the coupling parameters

$$\beta \approx -\hbar(k_w + k_{st})^2 \gamma \varphi_e^2(0) \frac{8\gamma^2 \Delta_w k_w + 8[4\Delta_w(\Delta_{st} + \Delta_w) - \Omega_{st}^2][\Delta_w(k_{st} + k_w) + (\Delta_{st} + \Delta_w)k_w]}{\Omega_{st}^2 \Omega_w^2 (k_w + k_{st})}. \quad (17)$$

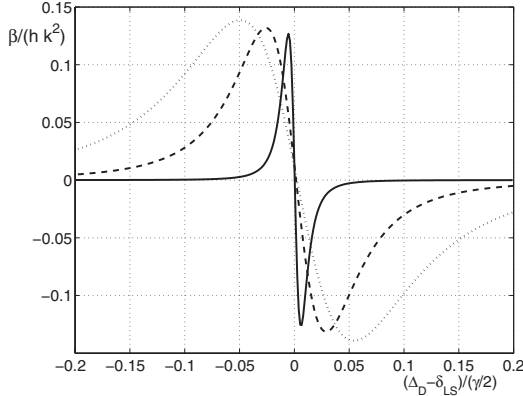


FIG. 5. Damping factor β in units of $\hbar k^2$ versus the relative detuning of the weak transition from the light shift. Ca^+ wavelengths are used ($\lambda_w=732$ nm and $\lambda_{st}=866$ nm) and $\gamma/2\pi=20$ MHz. The three curves are for different values of $\Omega_w/2\pi$: 0.1 MHz (solid line), 0.5 MHz (dashed line), and 1 MHz (dotted line), $\Delta_{st}/2\pi$ is fixed to -10γ and Ω_{st} is chosen to obtain the maximum signal, according to Eq. (10).

First, one can check that for negative detuning Δ_{st} and negative relative detuning $\Delta_w - \delta_{LS}$, the β coefficient is positive and damping effectively takes place. Second, the particularity of the regime of large detunings Δ_{st} and low saturation ($\Omega_{st}^2 \ll \Delta_{st}^2$) for the strong transition is revealed by Eq. (17). Indeed, in this limit, the detuning Δ_w (which is very close to δ_{LS}), is negligible compared to Δ_{st} and then, only k_w controls the slope of \wp_e with v . It means that the velocity dependence of the force is proportional to $k_w v$, and that, at first order in v , the efficiency of the strong coupling is not reduced by the Doppler effect. Nevertheless, the relative direction of the two lasers remains relevant for the effective momentum \mathbf{k}_{eff} transferred to the atoms as the ratio between the sum and the difference of the two wave vectors k_w and k_{st} is equal to 11.9 for Ca^+ , 4.4 for Sr^+ , and 1.9 for Ba^+ .

When the light shift becomes non-negligible compared to Δ_{st} , the slope becomes steeper for copropagating lasers. However, the major effect of the relative direction of propagation remains the size of the effective momentum \mathbf{k}_{eff} . In the following, we consider only the case where the two lasers are copropagating and call k the maximum effective momentum. Figure 5 shows the damping coefficient β for three different values of Ω_w , in a regime where the effective linewidth depends on Ω_w . The efficiency of the damping shows a maximum, which corresponds to a minimum of the cooling time, for detuning $\Delta_w - \delta_{LS}$ increasing with the linewidth of the signal. Numerical results show that, for fixed Rabi frequency on the weak transition Ω_w , β is maximized and so the cooling time minimized for Ω_{st}/Δ_{st} close to its optimum defined to reach maximum fluorescence [see Eq. (10)]. In practice, maximizing the fluorescence rate also results in reducing the cooling time and this optimum condition was used for plots in Fig. 5. The curves show that, with this condition, the maxima of the damping are very close and that the advantage of an increase in Ω_w is mainly to broaden the frequency range where damping is efficient.

The temperature reached by Doppler cooling results from the equilibrium between the damping due to the momentum

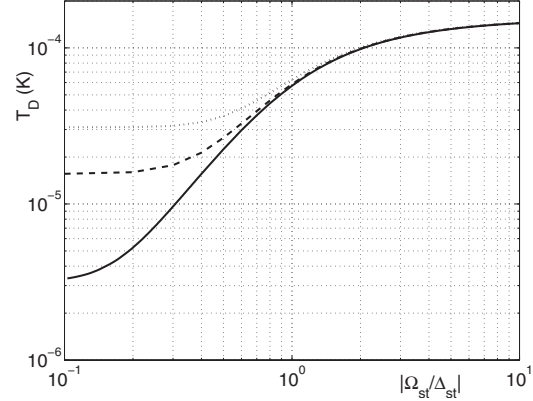


FIG. 6. Doppler limit temperature versus $|\Omega_{st}/\Delta_{st}|$ for Ca^+ wavelength ($\lambda_w=732$ nm and $\lambda_{st}=866$ nm) and $\gamma/2\pi=20$ MHz, $\beta_{eg}=1$. For a given ratio $|\Omega_{st}/\Delta_{st}|$ the curves are identical for different Δ_{st} . The different curves are for different values of $\Omega_w/2\pi$: 0.1 MHz (solid line), 0.5 MHz (dashed line), and 1 MHz (dotted line).

transfer and the diffusion induced by spontaneous emission. By conservation of energy, the scattered photons have the momentum k and by analogy with two-level systems, the diffusion coefficient is [16]

$$D = \frac{1}{2} \hbar^2 k^2 \gamma \wp_e(0) \quad (18)$$

and the temperature reached is $k_B T = D/\beta$.

Numerical calculations show that the minimum temperature T_D is reached for $\Delta_w - \delta_{LS} = -\Gamma_{\text{eff}}/2$, as expected by analogy with a two-level system. They also show that the relevant parameter for the strong coupling is the ratio $|\Omega_{st}/\Delta_{st}|$ since for identical ratio, different values of Δ_{st} or Ω_{st} give the same results. The minimum temperature T_D is plotted in Fig. 6 versus $|\Omega_{st}/\Delta_{st}|$, for the wavelengths of Ca^+ and with copropagating lasers. As with the effective linewidth, the limit temperature can be adjusted continuously down to a few μK by the choice of Ω_{st}/Δ_{st} , the lowest temperature being controlled by Ω_w . As a comparison, the limit temperature reached by Doppler cooling on the allowed dipole $|g\rangle \rightarrow |e\rangle$ transition on Ca^+ ions is 0.55 mK. Contrary to a two-level system, the Doppler limit temperature can be lowered, but to the detriment of the fluorescence rate. Nevertheless, as low temperatures can be reached by continuously reducing the effective linewidth, the cooling process can be started with a high damping factor, resulting in a total cooling time shorter than if the cooling process would be made permanently on a very narrow transition. As for the capture range, defined by the velocity for which the cooling force is maximal, numerical results confirm the intuitive idea that it increases with the effective linewidth Γ_{eff} , which in practice, increase with $|\Omega_{st}/\Delta_{st}|$ and/or Ω_w (see Sec. III B). It is possible to reach a broad capture range at the same time as keeping a high damping factor and fluorescence rate by increasing $|\Omega_{st}/\Delta_{st}|$ and obeying the optimum condition defined in Sec. III A [Eq. (10)]. This is shown in Fig. 7 where the dependence of

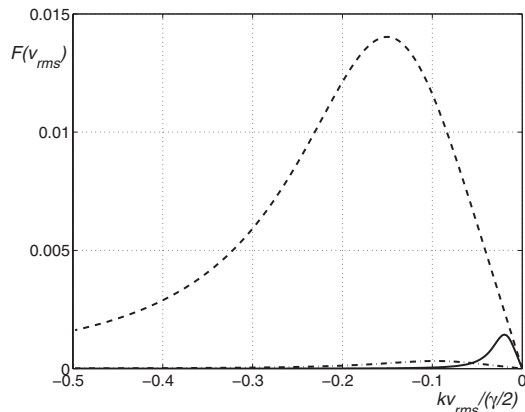


FIG. 7. Effective force $\bar{F}(v_{\text{rms}})$ in units of $\hbar k \gamma$ versus $kv_{\text{rms}}/(\gamma/2)$ for Ca^+ wavelength ($\lambda_w=732$ nm and $\lambda_{st}=866$ nm) and $\gamma/2\pi=20$ MHz, $\beta_{eg}=1$. The different curves are for different values of $\Omega_w/2\pi$: 0.1 MHz (solid line and dotted-dashed line) and 1 MHz (dashed line). Δ_{st} is fixed to -10γ and Ω_{st} is chosen to obtain the maximum signal, according to Eq. (10), only for the curves plotted with the solid line and the dashed line, $\Omega_{st}=34$ MHz (solid line), 106 MHz (dashed and dotted-dashed line), $\Delta_w=\delta_{LS}-\Gamma_{\text{eff}}/2$.

the effective force \bar{F}_{rms} with the root-mean-square velocity is plotted for the condition leading to the minimum Doppler limit, $\Delta_w=\delta_{LS}-\Gamma_{\text{eff}}/2$. Within the assumption defined at the beginning of this section, this effective force can be approximated by $F(v_{\text{rms}})-F(-v_{\text{rms}})$.

The lowest temperatures shown in Fig. 6 have only a theoretical meaning as, in practice, for reaching these temperatures, the effective linewidth of the system must be reduced and reach values smaller than the recoil and the oscillation frequencies. Then, to make predictions, other mechanisms than the Doppler cooling must be taken into account, as the well-known sideband cooling which will not

be developed here but for which efficiency has been experimentally demonstrated [10,11].

V. CONCLUSIONS

We have studied a two-step photoexcitation process in a ladder system with a metastable intermediate state, as can be found, e.g., in alkaline-earth-metal atoms and in alkaline-metal-like ions. In the case of Ca^+ , Sr^+ , and Ba^+ , the two excitation wavelengths belong to the red or infrared domain whereas the scattered photons lie in the blue domain, which offers the possibility of fluorescence detection without stray light background. Our numerical and analytical studies show that this excitation process can be a powerful alternative for the detection of ions or readout of their internal state. Indeed, the number of photons can easily be reached one-tenth of what is expected from direct excitation on a dipole-allowed transition and the absence of background signal due to scattered light can compensate this lower signal. Furthermore, we demonstrate that two-step Doppler cooling can efficiently take place and that resolution of oscillation sidebands is not required to reach temperatures lower than $100 \mu\text{K}$. The width of the resonance profile and the Doppler limit temperature can be varied continuously by tuning the power and/or detuning on the dipole-allowed transition. This cooling mechanism can be of great interest for traps with low oscillation frequencies or with geometry leading to a high stray light level such as microtraps.

ACKNOWLEDGMENTS

One of the authors (C.C.) is grateful to Jean Dalibard for precious advice and another author (M.D.) acknowledges the hospitality of laboratory PIIM and thanks Université de Provence for financial support. The present collaboration has benefited from financial support by the French Embassy in Denmark.

- [1] H. Metcalf and P. van der Straten, *Laser Cooling and Trapping* (Springer, New York, 1999).
- [2] R. J. Hendricks, J. L. Sørensen, C. Champenois, M. Knoop, and M. Drewsen, Phys. Rev. A **77**, 021401(R) (2008).
- [3] E. A. Curtis, C. W. Oates, and L. Hollberg, Phys. Rev. A **64**, 031403(R) (2001).
- [4] T. Binnewies, G. Wilpers, U. Sterr, F. Riehle, J. Helmcke, T. E. Mehlstäubler, E. M. Rasel, and W. Ertmer, Phys. Rev. Lett. **87**, 123002 (2001).
- [5] W. C. Magno, R. L. Cavasso Filho, and F. C. Cruz, Phys. Rev. A **67**, 043407 (2003).
- [6] N. Malossi, S. Damkjær, P. L. Hansen, L. B. Jacobsen, L. Kindt, S. Sauge, J. W. Thomsen, F. C. Cruz, M. Allegrini, and E. Arimondo, Phys. Rev. A **72**, 051403(R) (2005).
- [7] G. Morigi and E. Arimondo, Phys. Rev. A **75**, 051404(R) (2007).
- [8] J. W. Dunn, J. W. Thomsen, C. H. Greene, and F. C. Cruz,

Phys. Rev. A **76**, 011401(R) (2007).

- [9] I. Marzoli, J. I. Cirac, R. Blatt, and P. Zoller, Phys. Rev. A **49**, 2771 (1994).
- [10] F. Diedrich, J. C. Bergquist, W. M. Itano, and D. J. Wineland, Phys. Rev. Lett. **62**, 403 (1989).
- [11] C. Roos, T. Zeiger, H. Rohde, H. C. Nägerl, J. Eschner, D. Leibfried, F. Schmidt-Kaler, and R. Blatt, Phys. Rev. Lett. **83**, 4713 (1999).
- [12] W. Neuhauser, M. Hohenstatt, P. E. Toschek, and H. Dehmelt, Phys. Rev. A **22**, 1137 (1980).
- [13] D. J. Wineland and W. M. Itano, Phys. Rev. A **20**, 1521 (1979).
- [14] J. Dalibard, S. Reynaud, and C. Cohen-Tannoudji, J. Phys. B **17**, 4577 (1984).
- [15] W. M. Itano and D. J. Wineland, Phys. Rev. A **25**, 35 (1982).
- [16] J. P. Gordon and A. Ashkin, Phys. Rev. A **21**, 1606 (1980).

II.3.3 Refroidissement Doppler d'ions calcium utilisant une transition interdite en mode dipolaire

La technique proposée dans l'article précédent a été validée expérimentalement⁵³ avec le dispositif expérimental du groupe de M. Drewsen à Aarhus, sur un système de quatre ions en piège rf linéaire. Dans le schéma original tel qu'il est proposé plus haut, le système en échelle envisagé est $S_{1/2} \rightarrow D_{3/2} \rightarrow P_{1/2}$ (voir figure II.14). Pour la réalisation expérimentale, le système atomique est compliqué par le fait que le groupe a choisi de ne pas utiliser la transition $S_{1/2} \rightarrow D_{3/2}$ dont la fréquence exacte n'est pas connue avec précision. La fréquence de la transition $S_{1/2} \rightarrow D_{5/2}$ est elle déterminée plus facilement mais le système en échelle correspondant $S_{1/2} \rightarrow D_{5/2} \rightarrow P_{3/2}$ n'est pas fermé à cause de la désexcitation possible de $P_{3/2}$ vers $D_{3/2}$. Le protocole de refroidissement envisagé nécessite donc un laser repompeur. J'ai vérifié numériquement que le système à 5 niveaux couplé par 3 lasers se comporte comme le système à trois niveaux envisagé dans l'article de principe. L'article qui suit est donc bien une validation expérimentale de l'efficacité du refroidissement Doppler proposé et de sa possibilité à refroidir sous la limite Doppler de la transition dipolaire électrique.

PHYSICAL REVIEW A 77, 021401(R) (2008)

Doppler cooling of calcium ions using a dipole-forbidden transitionRichard J. Hendricks,¹ Jens L. Sørensen,¹ Caroline Champenois,² Martina Knoop,² and Michael Drewsen^{1,*}
¹QUANTOP—Danish National Research Foundation Center for Quantum Optics, Department of Physics and Astronomy,
University of Aarhus, DK-8000 Århus C, Denmark²Physique des Interactions Ioniques et Moléculaires (CNRS UMR 6633), Université de Provence, Centre de Saint Jérôme,
Case C21, 13397 Marseille Cedex 20, France

(Received 12 July 2007; published 4 February 2008)

Doppler cooling of calcium ions has been experimentally demonstrated using the $S_{1/2} \rightarrow D_{5/2}$ dipole-forbidden transition. Scattering forces and fluorescence levels a factor of 5 smaller than for the usual Doppler cooling on the dipole-allowed $S_{1/2} \rightarrow P_{1/2}$ transition have been achieved. Since the light scattered from the ions can be monitored at (violet) wavelengths that are very different from the excitation wavelengths, single ions can be detected with an essentially zero background level. This, as well as other features of the cooling scheme, can be extremely valuable for ion-trap-based quantum-information processing.

DOI: [10.1103/PhysRevA.77.021401](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.77.021401)

PACS number(s): 37.10.De, 37.10.Gh

In the last few decades, a large variety of laser cooling techniques have been proposed and demonstrated [1,2]. These include Doppler cooling [3,4], sideband cooling [5–8], stimulated cooling [9], polarization gradient cooling [10–12], magnetically induced laser cooling [13], Raman cooling [14,15], and intercombination line cooling [16,17]. A characteristic of these cooling schemes is a trade-off between the velocity range where the cooling mechanism is efficient and the final achievable minimum temperature. As a consequence, most experiments today use more than one cooling mechanism. For quasifree neutral atoms with degenerate ground state sublevels, a combination of Doppler and polarization gradient cooling can be used relatively easily to obtain dense ensembles of atoms in the microkelvin range [10,18]. For neutral atoms lacking ground state sublevels, such as most alkaline-earth-metal elements, a more elaborate cooling scheme such as a second Doppler cooling stage on a weak intercombination line is required in order to obtain ultracold atoms [16,17,19]. With respect to trapped ions, a two-step cooling process consisting of a Doppler cooling phase followed by a resolved-sideband cooling phase is typically used to cool from initial high thermal energies to close to the ground state of the trapping potential. For the sideband cooling step, either a Raman cooling scheme [7], an electromagnetically induced transparency cooling process [8], or excitation on a weak, narrow-linewidth transition [6,20] is used.

In this Rapid Communication, we demonstrate a scheme for Doppler cooling of $^{40}\text{Ca}^+$ ions that relies on the combined action of driving the $S_{1/2} \rightarrow D_{5/2}$ electric quadrupole transition and the dipole-allowed $D_{5/2} \rightarrow P_{3/2}$ transition [Fig. 1(a)]. While the required velocity dependence of the cooling force is obtained through excitation of the $S_{1/2} \rightarrow D_{5/2}$ quadrupole transition by an intense laser beam at 729 nm, a copropagating 854 nm “assisting” laser beam is applied to drive the $D_{5/2} \rightarrow P_{3/2}$ dipole transition. This latter laser field increases the effective decay rate Γ' of the $D_{5/2}$ state, as well as increasing the cooling force because of the

extra momentum transferred to the ions by the 854 nm photons. Ground state cooling using a resolved sideband of the $S_{1/2} \rightarrow D_{5/2}$ quadrupole transition has already been demonstrated in the regime where Γ' is smaller than the relevant motional mode frequency of the trapped ions ω [20]. In contrast to this, we here consider Doppler cooling, where $\Gamma' > \omega$. By using a narrow-bandwidth 729 nm laser, lowering the intensities, and changing the detunings of the lasers the presented cooling scheme can, however, be transformed into a resolved-sideband cooling scheme with little additional complexity. In our experiments, scattering forces and fluorescence levels only about a factor of 5 smaller than for the usual Doppler cooling on the dipole-allowed $S_{1/2} \rightarrow P_{1/2}$ transition have been achieved. As discussed at the end of this Rapid Communication, the Doppler cooling scheme presented here has several features of particular interest for quantum-information processing with trapped ions.

A reduced level scheme of Ca^+ is shown in Fig. 1(a), together with the laser excitations and fluorescence paths of interest for the presented cooling scheme. The key laser-excited transitions in the cooling scheme are the $S_{1/2} \rightarrow D_{5/2}$

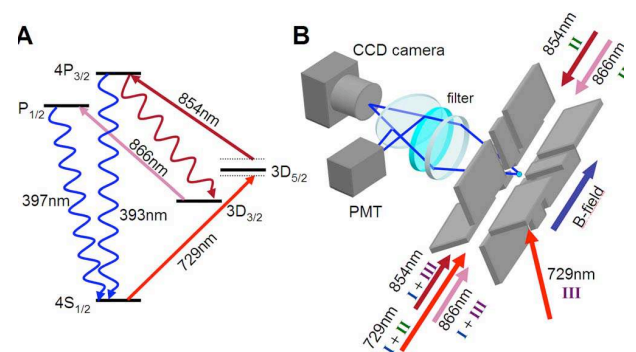


FIG. 1. (Color online) (a) Relevant energy levels and transitions of the $^{40}\text{Ca}^+$ ion. (b) Experimental setup. Three different situations are illustrated, I: Axial cooling where the cooling and assisting lasers are copropagating. II: Axial cooling with counterpropagating cooling and assisting lasers. III: Three-dimensional cooling with the cooling laser at an angle of 45° to the trap axis and the assisting laser parallel to the trap axis.

*drewsen@phys.au.dk

HENDRICKS *et al.*

PHYSICAL REVIEW A 77, 021401(R) (2008)

electric quadrupole transition at 729 nm, which has a natural width of just $\Gamma_c = 2\pi \times 0.14$ Hz [21], and the 854 nm $D_{5/2} \rightarrow P_{3/2}$ dipole transition, which has a linewidth of $\Gamma = 2\pi \times 23$ MHz. Ions excited to the $P_{3/2}$ level will predominantly decay to the $S_{1/2}$ ground state by the emission of light at 393 nm. They can also, however, decay with probabilities 0.07 and 0.008 to the $D_{5/2}$ and $D_{3/2}$ levels, respectively, emitting infrared light. To prevent optical pumping into the $D_{3/2}$ level, a repumper laser at 866 nm is used to excite ions to the $P_{1/2}$ level, from where the ground state can be reached via the emission of a 397 nm photon.

The experimental setup is sketched in Fig. 1(b). The $^{40}\text{Ca}^+$ ions are stored in a segmented linear radio-frequency trap (details of which can be found in [22]) housed in an ultrahigh-vacuum chamber with a residual pressure of approximately 6×10^{-10} mbar. The ions are loaded into the trap via isotope-selective photoionization [23], and the trap parameters are set such that the single-ion axial and radial motional frequencies are approximately $2\pi \times 0.56$ MHz and $2\pi \times 0.95$ MHz, respectively. Sets of Helmholtz coils are used to null the magnetic field to a level of about 5 mG.

The 729 nm light, which has a linewidth of approximately 200 kHz, is generated by a Ti:sapphire laser stabilized to an external optical cavity. Up to 250 mW of power is available in a beam focused to a waist of $50 \mu\text{m}$ at the trap center. This leads to a maximum achievable quadrupole transition Rabi frequency of $\sim 2\pi \times 1$ MHz [24]. The beam propagates either parallel to or at an angle of 45° to the axis of the trap, with the latter configuration enabling cooling of both the axial and radial motion of the trapped ions. The light is always linearly polarized within the horizontal plane. The 854 nm assisting and the 866 nm repumper laser beams are derived from extended-cavity diode lasers locked to external optical cavities and have linewidths of about 300 kHz. A maximum of 3 mW is available at each wavelength, and beam waists of $\sim 280 \mu\text{m}$ are used. Both beams can either co- or counterpropagate with the 729 nm laser beam when the latter is directed along the axis of the trap. The polarization of both these lasers is rotated at a frequency of 4 MHz using an electro-optic modulator to prevent the formation of “dark” states [25]. In order to keep the ac Stark shift and broadening of the $D_{5/2}$ level Doppler insensitive at low ion velocities, the 854 nm laser is kept at a constant detuning of approximately 100 MHz. With a power of 1 mW this leads to an effective decay rate of the $D_{5/2}$ level, Γ' , of about $2\pi \times 2$ MHz, which is larger than the single-ion oscillation frequencies.

Since the laser power at 729 nm is limited and the overlap between the trapping volume and the 729 nm laser beam is small, cooling of the ions using the 729 and 854 nm lasers is not very efficient in the phase immediately after loading, where the ions have kinetic energies in the eV range. For this reason, in all experiments the ions are first Doppler cooled in all directions using the $S_{1/2} \rightarrow P_{1/2}$ dipole-allowed transition at 397 nm in the presence of the 866 nm repumper. Mechanical shutters with a switching time of approximately 0.1 ms are used to change between the 397 and 729 nm cooling configurations.

Ions are detected by imaging the 393 and 397 nm fluorescence light onto both a photomultiplier-tube-based photon-

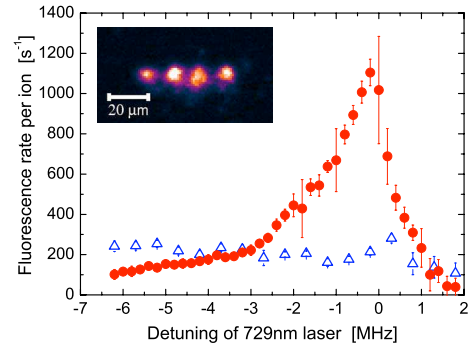


FIG. 2. (Color online) Detected fluorescence rate from four ions as a function of the 729 nm laser detuning for copropagating (red, filled circles) and counterpropagating (blue, open triangles) cooling and assisting laser beams. The inset shows a CCD image of the four ions.

counting module and an image-intensified charge-coupled device (CCD) camera. Filters are used to prevent any light at red or infrared wavelengths from reaching the detectors. The overall detection efficiencies of the photon-counting module and the CCD camera system are 3.6×10^{-4} and 8.4×10^{-5} , respectively.

In Fig. 2, the detected fluorescence rate from a string of four ions is presented as a function of the 729 nm cooling laser detuning. Each plotted point is an average of 20 consecutive measurements, with the error bars representing the standard deviation of these. Each individual measurement is preceded by precooling on the dipole-allowed transition, and the fluorescence level is measured over 200 ms after these precooling beams are switched off. For all data points the 729 nm laser beam propagates along the axis of the trap, with the assisting laser beam being either co- or counterpropagating. For the counterpropagating case, the fluorescence level does not change significantly with the detuning, indicating that there is little change in the velocity distribution of the ions. In the copropagating scenario, however, the fluorescence signal shows a pronounced resonant structure indicating a strong mechanical effect of the light fields. This striking difference, which is not pronounced in resolved sideband cooling, can be explained by the fact that the two-photon momentum kick received by the ion when excited to the $P_{3/2}$ level is about 13 times smaller in the counterpropagating situation than in the case of copropagating beams. At the largest negative detunings, the fluorescence rate for copropagating beams is clearly lower than for counterpropagating beams, indicating that the ions are so efficiently cooled that they Doppler tune out of resonance.

Another way to characterize the cooling effect is to monitor the change in position (jumping) of a single sympathetically cooled ion in an ion string over time. Only if the kinetic energy of the ions is high enough to overcome the rearrangement potential barrier, typically corresponding to ~ 1 K, will a jump take place. In Fig. 3, the fraction of times R that a single, nonfluorescing, sympathetically cooled ion in a four-ion string is observed to change position during a 200 ms period of cooling is presented as a function of the detuning of the 729 nm laser. The corresponding integrated fluores-

DOPPLER COOLING OF CALCIUM IONS USING A...

PHYSICAL REVIEW A 77, 021401(R) (2008)

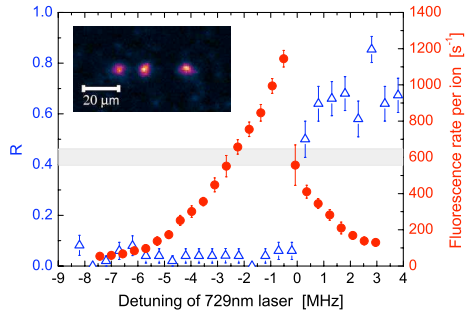


FIG. 3. (Color online) Fraction of times, R , that a nonfluorescing ion in an ion string is seen to switch position as a function of 729 nm laser detuning (blue, open triangles), along with the corresponding fluorescence rate (red, filled circles). The average jump rate without the 729 nm laser is also shown (shaded horizontal bar). The inset shows a CCD image of the four-ion string, with the gap indicating the position of the nonfluorescing ion.

cence is also plotted. Clearly there is a dramatic change in the parameter R around zero detuning, which indicates that cooling is indeed taking place at all negative detunings and heating at positive detunings. This conclusion is further supported by comparison with the value of R when no cooling beams are present. The nonzero value of R in this case is mainly due to trap-induced heating [26]. Since the resonance of the 729 nm cooling transition is shifted from that of the unperturbed transition by the presence of the 854 nm assisting laser, we have defined the zero detuning in Figs. 2 and 3 to be the frequency at which R starts to increase steeply.

Based on the observed fluorescence rates and the efficiencies of the photon-detecting devices, the maximum achieved scattering forces in the co- and counterpropagating configurations are estimated to be 4.2×10^{-21} and 3.3×10^{-22} N, respectively. While the latter is nearly two orders of magnitude smaller than for standard Doppler cooling using the $S_{1/2} \rightarrow P_{1/2}$ dipole-allowed transition, the copropagating geometry gives a force that is only about a factor of 5 lower. The widths of the resonances in the fluorescence are limited by several effects, but assuming Doppler broadening due to the finite temperature of the ions to be dominant, a conservative estimate of the ion temperature of a few millikelvin is obtained.

With the 729 nm cooling laser propagating at an angle of 45° to the axis of the trap, both axial and radial motions of the ions have been cooled. Using such a configuration, single ions have remained laser cooled for periods of up to a few minutes. This time seems to be limited by a nonsufficient velocity capture range with the present power level of the 729 nm laser to recool ions that have collided with background atoms or molecules.

A simple way to overcome this problem would be to increase the velocity capture range by increasing the power of the 729 nm laser. At this wavelength, narrow-bandwidth lasers with output powers of several watts have been demonstrated [27]. A complementary path to enlarge the velocity capture range is to exploit the fact that the $S_{1/2} \rightarrow D_{5/2}$ transition actually consists of ten Zeeman components, which can be split by applying a magnetic field. For a negative

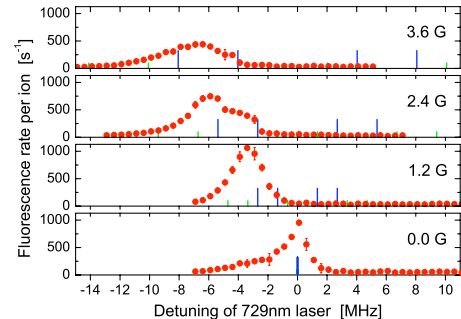


FIG. 4. (Color online) Detected fluorescence as a function of 729 nm laser detuning for different magnetic field strengths. The vertical blue bars indicate the positions of the four $\Delta m_j = \pm 1$ Zeeman components to which the laser couples.

detuning of the 729 nm laser with respect to all the Zeeman-split transitions, a cooling force with a maximum value at different velocities will exist for each of the Zeeman lines. In Fig. 4, a series of fluorescence spectra is presented for cooling experiments in the axial cooling geometry with various magnetic field strengths applied parallel to the trap axis. In this geometry only the four $\Delta m_j = \pm 1$ lines are active [24]. As the magnetic field is increased from zero to 1.2 G, a significant broadening is observed without any drop in maximum fluorescence. At higher magnetic fields the Zeeman splitting of the lines becomes comparable to the width of the power-broadened forbidden transition, leading to optical pumping into the more weakly coupled Zeeman substate. This results in a lower scattering rate, which is visible in the upper two panels of Fig. 4.

The presented Doppler cooling scheme could be made slightly simpler by exciting the 733 nm $S_{1/2} \rightarrow D_{3/2}$ transition instead of the $S_{1/2} \rightarrow D_{5/2}$ transition. In this case the 866 nm laser acts as the assisting laser without need for any repumper laser. In quantum logic (metrology) experiments where $S_{1/2}$ and $D_{5/2}$ substates are the qubit (relevant) states this scheme would be favorable, since the two cooling lasers can also be used in projection measurements [20,28].

Independent of which transition is used, the benefits of the presented Doppler cooling scheme are manifold. First, it reduces the number of lasers and laser beams needed to eventually obtain ground state cooling. Only changes to the intensities and frequencies of the two cooling lasers are needed to meet the conditions for resolved-sideband cooling previously demonstrated on the $S_{1/2} \rightarrow D_{5/2}$ quadrupole transition [20]. Second, light scattered from the ions is at violet wavelengths that are very different from the red and infrared excitation wavelengths. This is equivalent to the situation in two-photon microscopy [29], and leads to an essentially zero spurious scattering background level. This feature can be extremely valuable for fast readout of qubits in ion-trap quantum-information processing [30,31]. Third, the requirement that the 729 or 733 nm laser have a high intensity and consequently small focus is very compatible with modern microtraps, in which tight laser focuses are in any case required. These traps have typical electrode spacings of $\sim 100 \mu\text{m}$ [32], and the presented cooling scheme benefits

HENDRICKS *et al.*PHYSICAL REVIEW A **77**, 021401(R) (2008)

from the excellent overlap between the trapping volume and the laser beams that can be achieved. Fourth, only lasers in the red and infrared part of the spectrum, where narrow-bandwidth high-power lasers are widely available, are applied. Such technological aspects may play an important role when deciding on a specific ion species for large-scale quantum-information processing [33]. Finally, in connection with sympathetic cooling of complex molecular ions, the problem of photofragmentation might in some cases be reduced by using red instead of violet light [34].

Although in the present investigations we have focused on the $^{40}\text{Ca}^+$ ion, the cooling scheme can also be applied to the other isotopes of calcium as well as other ions with a similar atomic level structure, such as Sr^+ , Ba^+ , and Hg^+ [24]. For sympathetic cooling of complex molecules, Ba^+ is a particularly interesting ion since the $S_{1/2} \rightarrow D_{3/2}$ transition is at

2051 nm—a wavelength at which large molecules often do not absorb and at which powerful commercial fiber lasers exist.

In conclusion, a Doppler cooling scheme relying on excitation of the $S_{1/2} \rightarrow D_{5/2}$ electric quadrupole transition in the $^{40}\text{Ca}^+$ ion has been demonstrated. The cooling scheme, which is readily extendable to other alkaline-earth-ion species, contains several features that are interesting for ion-trap-based quantum-information processing and cold complex molecular ion research.

This work is financially supported by the Carlsberg Foundation and by the EU under Contract No. IST-517675-MICROTRAP. M.D. gratefully acknowledges the hospitality of the Laboratoire PIMM-CIML at the Université de Provence under a visiting professor grant.

-
- [1] C. Adams and E. Riis, *Prog. Quantum Electron.* **21**, 1 (1997).
 [2] D. Leibfried, R. Blatt, C. Monroe, and D. Wineland, *Rev. Mod. Phys.* **75**, 281 (2003).
 [3] J. V. Prodan, W. D. Phillips, and H. Metcalf, *Phys. Rev. Lett.* **49**, 1149 (1982).
 [4] S. Chu, L. Hollberg, J. E. Bjorkholm, A. Cable, and A. Ashkin, *Phys. Rev. Lett.* **55**, 48 (1985).
 [5] W. Neuhauser, M. Hohenstatt, P. Toschek, and H. Dehmelt, *Phys. Rev. Lett.* **41**, 233 (1978).
 [6] F. Diedrich, J. C. Bergquist, W. M. Itano, and D. J. Wineland, *Phys. Rev. Lett.* **62**, 403 (1989).
 [7] C. Monroe *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 4011 (1995).
 [8] C. F. Roos *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **85**, 5547 (2000).
 [9] A. Aspect, J. Dalibard, A. Heidmann, C. Salomon, and C. Cohen-Tannoudji, *Phys. Rev. Lett.* **57**, 1688 (1986).
 [10] P. D. Lett, R. N. Watts, C. I. Westbrook, W. D. Phillips, P. L. Gould, and H. J. Metcalf, *Phys. Rev. Lett.* **61**, 169 (1988).
 [11] J. Dalibard and C. Cohen-Tannoudji, *J. Opt. Soc. Am. B* **6**, 2023 (1989).
 [12] P. J. Ungar *et al.*, *J. Opt. Soc. Am. B* **6**, 2058 (1989).
 [13] S.-Q. Shang, B. Sheehy, P. van der Straten, and H. Metcalf, *Phys. Rev. Lett.* **65**, 317 (1990).
 [14] M. Kasevich and S. Chu, *Phys. Rev. Lett.* **69**, 1741 (1992).
 [15] J. Reichel *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 4575 (1995).
 [16] T. Binnewies *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **87**, 123002 (2001).
 [17] E. A. Curtis, C. W. Oates, and L. Hollberg, *Phys. Rev. A* **64**, 031403(R) (2001).
 [18] C. Salomon *et al.*, *Europhys. Lett.* **12**, 683 (1990).
 [19] T. Mukaiyama, H. Katori, T. Ido, Y. Li, and M. Kuwata-Gonokami, *Phys. Rev. Lett.* **90**, 113002 (2003).
 [20] C. F. Roos *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **83**, 4713 (1999).
 [21] P. A. Barton *et al.*, *Phys. Rev. A* **62**, 032503 (2000).
 [22] J. L. Sørensen *et al.*, *New J. Phys.* **8**, 261 (2006).
 [23] N. Kjærgaard *et al.*, *Appl. Phys. B: Lasers Opt.* **71**, 207 (2000).
 [24] D. F. V. James, *Appl. Phys. B: Lasers Opt.* **66**, 181 (1998).
 [25] G. P. Barwood *et al.*, *Opt. Commun.* **151**, 50 (1998).
 [26] L. Deslauriers *et al.*, *Phys. Rev. A* **70**, 043408 (2004).
 [27] H. Müller *et al.*, *Opt. Lett.* **31**, 202 (2006).
 [28] C. F. Roos *et al.*, *Nature (London)* **443**, 316 (2006).
 [29] W. Denk, J. H. Strickler, and W. W. Webb, *Science* **248**, 73 (1990).
 [30] D. Leibfried *et al.*, *Nature (London)* **438**, 639 (2005).
 [31] H. Häffner *et al.*, *Nature (London)* **438**, 643 (2005).
 [32] D. Stick *et al.*, *Nat. Phys.* **2**, 36 (2005).
 [33] D. Kielpinski, C. Monroe, and D. J. Wineland, *Nature (London)* **417**, 709 (2002).
 [34] K. Kato and K. Yamanouchi, *Chem. Phys. Lett.* **397**, 237 (2004).

Le protocole de refroidissement présenté dans les deux articles précédents met à profit une transition fine sur un refroidissement de type Doppler. Cette méthode n'est donc pas le monopole des ions piégés et une technique similaire a permis, par exemple, de descendre sous la limite Doppler usuelle la température d'un jet de magnésium^{54,55}. Les méthodes développées pour les ions piégés peuvent donc être mises à profit dans des expériences avec des atomes neutres, et vice-versa. Une illustration brillante de l'échange fructueux entre ces deux types d'expérience est donné par le confinement d'atomes neutres dans des réseaux optiques, basés sur la force dipolaire exercée par un laser puissant et très désaccordé. Grâce à ce mode de confinement, la discrétisation du spectre Doppler, bien connue chez les ions piégés, et dû au profil harmonique du potentiel au fond des puits, est mise à profit dans les horloges à réseaux optiques où le régime de Lamb-Dicke est atteint "par définition", la taille des puits étant inférieure à la moitié de la longueur d'onde du piège⁵⁶. Cette méthode permet aux horloges à réseau optique de pouvoir rivaliser en précision avec les horloges à ions unique⁵⁷. Néanmoins, il est d'usage de considérer dans la communauté atomes (et ions) froids que le piégeage optique par interaction dipolaire est réservé aux neutres alors que les ions doivent être confinés par interaction coulombienne avec un champ électrique. Cette séparation de principe est aujourd'hui remise en cause par la démonstration du piégeage dipolaire d'un ion unique par l'équipe de T.Schätz⁵⁸. Grâce à une transition continue entre le piégeage rf et le piégeage dipolaire, un ion unique de magnésium est confiné optiquement en moyenne pendant 1.8 ms. Après cette démonstration de principe, on peut penser que le temps de piégeage optique pourra être augmenté et qu'il sera exploité pour des expériences nouvelles où un ion et un atome neutre pourront cohabiter dans le même piège. Il faut noter que l'expérience a lieu dans un piège linéaire et que seul le confinement dans le plan radial est remplacé par un confinement dipolaire, un potentiel statique assurant toujours le confinement le long de l'axe de symétrie par couplage coulombien, ce qui ne suffira pas à un atome neutre.

Le chapitre suivant aborde toujours des phénomènes de couplage atome-laser mais où la cohérence entre plusieurs excitations est primordiale. Ces phénomènes peuvent tout aussi bien avoir lieu dans des ions piégés que dans des atomes neutres, mais la structure interne nécessaire à l'existence de certains de ces phénomènes se rencontre plus souvent dans la famille des ions communément piégés.

Chapitre III

PROCESSUS COHÉRENTS AVEC DES IONS PIÉGÉS : LE MOUVEMENT EN PLUS

Un ion unique, refroidi en piège de Paul, est un très bon sujet pour des protocoles cohérents d'interaction laser. À deux photons, le paradigme de ces protocoles est le piégeage cohérent de population dont la signature est une résonance noire dans le spectre de fluorescence. Dans le premier paragraphe de ce chapitre, nous rappelons le concept général du piégeage cohérent de population à deux photons avant de reproduire un article où la dépendance du contraste de la résonance noire avec le mouvement de l'ion est exploité comme diagnostic du micro-mouvement en excès. Dans le deuxième paragraphe, l'extension de ce concept à un processus à trois photons est proposée pour des ions de la famille du calcium. L'existence d'une configuration sans effet Doppler est mise à profit pour proposer une référence de fréquence, dans le domaine THz, cette fois. Le gain en stabilité ainsi que les limitations en termes d'effets systématiques sont calculés dans un article reproduit dans ce paragraphe. Un deuxième article, plus fondamental, analyse cette résonance à trois photons dans deux cas particuliers de configuration laser et propose une prise en compte de l'effet Doppler oscillant quand celui-ci n'est pas annulé géométriquement.

III.1 Processus cohérents à deux photons

III.1.1 Piégeage cohérent de population

Le niveau fondamental $S_{1/2}$, l'état métastable $D_{3/2}$ et l'état excité $P_{1/2}$ de l'ion calcium et de ses congénères forment un système en Λ quand ils sont couplés par le laser de refroidissement à 397 nm (transition bleue-B) et le laser repompeur à 866 nm (transition rouge-R) (voir figure II.14). L'explication du concept de piégeage cohérent de population (*coherent population trapping CPT*) est beaucoup plus naturelle dans la base des états habillés par des photons⁵⁹ et cette approche, introduite par E. Arimondo⁶⁰, permet d'envisager beaucoup d'effets. Dans cette base, les états propres du système non couplé {atome + N_B photons bleus + N_R photons rouges} seront notés

$$\begin{aligned}|P\rangle &= |P_{1/2}, N_B - 1, N_R - 1\rangle \\ |S\rangle &= |S_{1/2}, N_B, N_R - 1\rangle \\ |D\rangle &= |D_{3/2}, N_B - 1, N_R\rangle\end{aligned}$$

et leur énergie propre dépend du désaccord du laser bleu $\Delta_B = \hbar(\omega_B - \omega_{SP})$ et du laser rouge $\Delta_R = \hbar(\omega_R - \omega_{DP})$ où $\omega_{B/R}$ sont les fréquences des lasers bleu et rouge et ω_{SP}, ω_{SD} les

fréquences propres des transitions atomiques. Ce système est représenté sur la figure III.1 dans le cas d'un zéro d'énergie propre choisi pour l'état $|S\rangle$. La force des couplages dipolaires est quan-

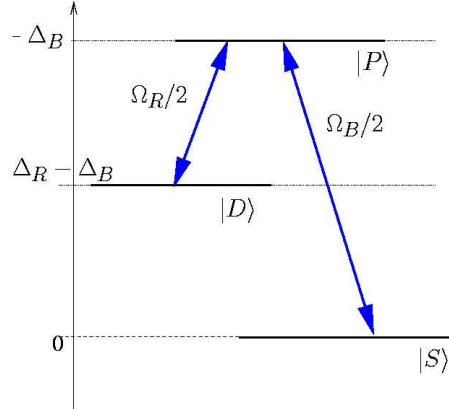


Figure III.1 : Système en Λ formé par les états habillés $\{|P\rangle, |S\rangle, |D\rangle\}$ et les couplages lasers sur les transitions dipolaires bleue ($S_{1/2} \rightarrow P_{1/2}$ à 397 nm) et rouge ($D_{3/2} \rightarrow P_{1/2}$ à 866 nm).

tifiée par la pulsation de Rabi associée ($\hbar\Omega = \mathbf{d} \cdot \mathbf{E}$) et dans la base $\{|P\rangle, |S\rangle, |D\rangle\}$, l'hamiltonien de couplage dipolaire \hat{H}_{AL} s'écrit comme⁵⁹ :

$$\begin{pmatrix} |P\rangle & |S\rangle & |D\rangle \\ -\Delta_B & \frac{\Omega_B}{2} & \frac{\Omega_R}{2} \\ \frac{\Omega_B}{2} & 0 & 0 \\ \frac{\Omega_R}{2} & 0 & \Delta_R - \Delta_B \end{pmatrix} \quad (\text{III.1})$$

La recherche des nouveaux états propres de ce système couplé fait apparaître deux états particuliers, combinaisons linéaires de l'état fondamental et de l'état métastable. Premièrement un état non couplé aux champs lasers $|\psi_{NC}\rangle$:

$$|\psi_{NC}\rangle = (-\Omega_R |S\rangle + \Omega_B |D\rangle) / \bar{\Omega} \quad (\text{III.2})$$

tel que $\hat{H}_{AL} |\psi_{NC}\rangle = 0$ et son état orthogonal

$$|\psi_C\rangle = (+\Omega_B |S\rangle + \Omega_R |D\rangle) / \bar{\Omega} \quad (\text{III.3})$$

avec $\bar{\Omega} = \sqrt{\Omega_B^2 + \Omega_R^2}$. La réécriture de l'hamiltonien de couplage \hat{H}_{AL} dans la nouvelle base $\{|P\rangle, |\psi_C\rangle, |\psi_{NC}\rangle\}$ met en évidence le statut particulier de $|\psi_{NC}\rangle$ dont le couplage au reste du système {atome+photons} est nul si la condition de résonance à deux photons $\Delta_B - \Delta_R = 0$ est

respectée :

$$\begin{pmatrix} |P\rangle & |\psi_C\rangle & |\psi_{NC}\rangle \\ 0 & \frac{\bar{\Omega}}{2} & 0 \\ \frac{\bar{\Omega}}{2} & \frac{\Omega_B^2 \Delta_B + \Omega_R^2 \Delta_R}{\bar{\Omega}^2} & \frac{\Omega_B \Omega_R}{\bar{\Omega}^2} (\Delta_R - \Delta_B) \\ 0 & \frac{\Omega_B \Omega_R}{\bar{\Omega}^2} (\Delta_R - \Delta_B) & \frac{\Omega_B^2 \Delta_R + \Omega_R^2 \Delta_B}{\bar{\Omega}^2} \end{pmatrix} \quad (\text{III.4})$$

Dans cette condition, l'état $|\psi_{NC}\rangle$ est isolé des champs lasers mais pas du champ électromagnétique du vide qui est responsable de l'émission spontanée de l'état $P_{1/2}$ vers les états $S_{1/2}$ et $D_{3/2}$ et dont nous avons omis l'existence jusqu'ici. Au cours de l'excitation laser, l'état $|\psi_{NC}\rangle$ est peuplé par émission spontanée depuis l'état $|P\rangle$ mais n'est dépeuplé par aucun mécanisme^a. Après quelques cycles d'absorption-émission, la population atomique est piégée dans l'état $|\psi_{NC}\rangle$ qui est une combinaison linéaire *cohérente* de deux états propres atomiques, d'où le terme piégeage cohérent de population. La démonstration que nous venons de faire est reproduite de façon schématique sur la figure III.2.

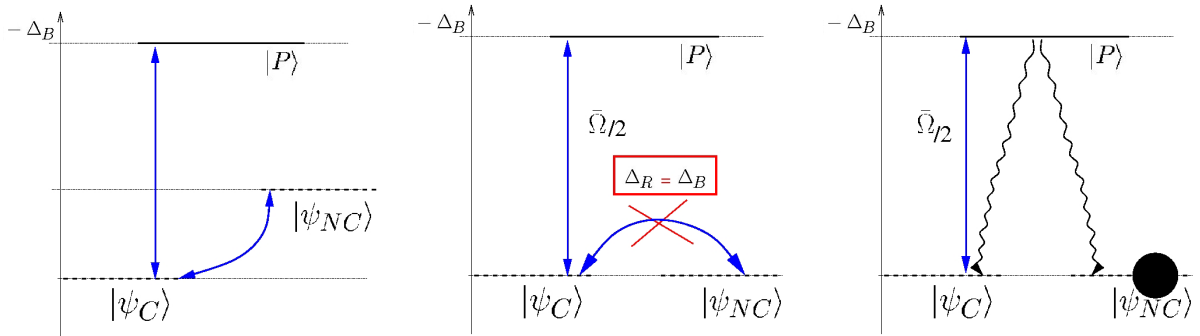


Figure III.2 : Couplage laser dans un système en Λ dont les *pieds* sont stables ou métastables par rapport à l'émission spontanée. À gauche, couplage dans la base habillée $\{|P\rangle, |\psi_C\rangle, |\psi_{NC}\rangle\}$, au centre, même chose dans le cas particulier de la résonance à deux photons $\Delta_B - \Delta_R = 0$, à droite, évolution de la population si on ajoute l'émission spontanée depuis $|P\rangle$.

Expérimentalement, le CPT se traduit par une extinction de la fluorescence émise par le ou les ions dès que la condition de résonance $\Delta_B - \Delta_R = 0$ est vérifiée. Dans la pratique, pour réaliser un spectre, un des lasers est à fréquence fixe et l'autre est balayée. Dès que $\Delta_B - \Delta_R = 0$, la fluorescence disparaît et on observe une *résonance noire* qui signe la projection de l'état atomique dans l'état non couplé (voir un profil de résonance noire sur la figure III.3). La largeur de la résonance observée traduit la largeur de l'état non couplé, elle ne serait élargie que par saturation⁶¹. En fait, tout comme une largeur de raie traditionnelle, la largeur de la raie noire est aussi limitée par la largeur spectrale des lasers responsables du couplage. Plus précisément, c'est la largeur spectrale du désaccord relatif $\Delta_B - \Delta_R$ qui est responsable de la largeur "incompressible" de la raie noire. Le formalisme précédent ne permet pas d'expliquer

^asi on néglige l'émission spontanée depuis l'état $D_{3/2}$ dont le taux est inférieur à 1 s^{-1}

formellement cet effet. Il faut donc ajouter des ingrédients au modèle présenté plus haut pour introduire les causes d'élargissement, c'est-à-dire les sources de décohérence.

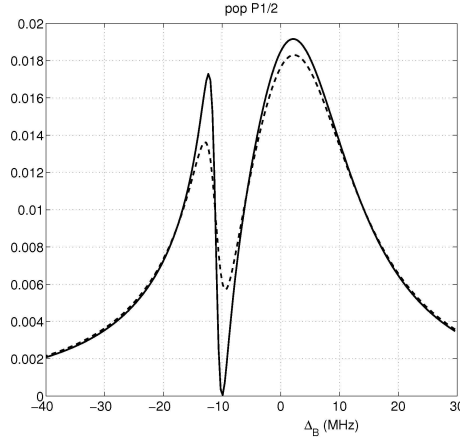


Figure III.3 : Résonance noire dans le spectre calculé d'un ion de calcium immobile quand le désaccord du laser à 866 nm Δ_R est balayé. Les paramètres de l'interaction laser sont, pour la transition à 397 nm $\Omega_B = 2\pi \times 10$ MHz, $\Delta_B = -2\pi \times 10$ MHz, pour la transition à 866 nm $\Omega_R = 2\pi \times 1$ MHz. Résultat attendu pour des lasers sans diffusion de phase (trait plein) et des lasers de largeur spectrale de 1 MHz chacun (pointillés).

III.1.2 Influence du mouvement sur le piégeage cohérent de population

Reprenons notre démonstration précédente en gardant à l'esprit que le système n'est pas parfait, il y a des sources de décohérence qui peuvent brouiller la formation d'une combinaison linéaire d'états propres, par exemple la diffusion en phase relative des lasers et le mouvement de l'ion dans l'onde laser. Dans le cas où le système en Λ est couplé par deux lasers indépendants, l'état non couplé dépend de la phase relative $\phi_R - \phi_B$ des lasers par^b

$$|\psi_{NC}\rangle = e^{-i\phi_B} \frac{-\Omega_B |D\rangle + \Omega_R e^{-i(\phi_R - \phi_B)} |S\rangle}{\Omega}. \quad (\text{III.5})$$

Les dérives de phase relative des deux lasers se traduisent par une variation dans le temps de l'état non couplé. Pour suivre cet état dans sa gigue, le système doit émettre des photons et la résonance n'est plus noire mais grise (voir figure III.3). De plus, la gigue (ou *jitter*) des lasers se traduit par une incertitude sur la condition de résonance à deux photons qui a donc elle aussi la largeur des lasers (en fait la largeur quadratique moyenne $\sqrt{\Gamma_{L_B}^2 + \Gamma_{L_R}^2}$). Pour s'affranchir de cet effet, il est nécessaire d'asservir en phase les deux lasers, comme pour les horloges CPT qui utilisent la résonance noire entre les deux niveaux hyperfins du césium comme référence de fréquence⁶². Techniquement, quand la différence de fréquence entre les deux lasers est dans le domaine des

^b Ω_B et Ω_R sont supposées réelles

GHz, il est possible d'obtenir des lasers asservis en phase en produisant le deuxième laser à partir du premier par des techniques de modulations de phase couplées ou non à des techniques d'injection maître-esclave. Quand les deux lasers sont dans des gammes spectrales si différentes que 397 et 866 nm, une méthode possible est d'asservir les deux lasers sur le même peigne de fréquence. Nous ne possédons pas de tel peigne au laboratoire, aussi toutes les résonances mesurées ont une largeur minimale de l'ordre de 2 MHz.

Si de plus l'ion se déplace dans l'onde laser, l'état de l'ion est aussi décrit par la quantité de mouvement p de l'ion le long de l'axe de propagation et il faut prendre en compte dans l'énergie propre du système l'énergie cinétique le long de cet axe $p^2/2m$. Les états habillés non couplés deviennent alors

$$\begin{aligned} |P, p\rangle &= |P_{1/2}, p, N_B - 1, N_R - 1\rangle \\ |S, p - \hbar k_B\rangle &= |S_{1/2}, p - \hbar k_B, N_B, N_R - 1\rangle \\ |D, p - \hbar k_R\rangle &= |D_{3/2}, p - \hbar k_R, N_B - 1, N_R\rangle \end{aligned}$$

où $\hbar k_B$ et $\hbar k_R$ sont respectivement la quantité de mouvement d'un photon bleu et d'un photon rouge.

La condition de résonance noire, qui formellement s'exprime comme la condition de non couplage $\langle \psi_C | \hat{H}_0 + \hat{p}^2/2m | \psi_{NC} \rangle = 0$, devient maintenant

$$(\Delta'_B - \Delta'_R) + \frac{p(k_R - k_B)}{m} = 0 \quad (\text{III.6})$$


avec Δ'_R et Δ'_B les désaccords laser corrigés de l'énergie de recul du photon : $\Delta' = \Delta + \hbar k^2/2m$.

Dès que $k_R \neq k_B$ (ce qui est le cas pour l'ion calcium), l'état non couplé est stationnaire seulement si l'ion est immobile dans l'état $P_{1/2}$. Dans le cas d'un ion oscillant dans un piège de Paul, la condition de résonance noire oscille dans le temps et l'ion émet des photons pour suivre l'état non couplé. La résonance est *grise* comme dans le cas de lasers non asservis en phase et le contraste de la résonance noire est d'autant plus faible que l'amplitude du mouvement et que le vecteur d'onde effectif $k_R - k_B$ sont grands. Dans l'article qui suit, cet effet est mis à profit pour caractériser le mouvement de l'ion et plus particulièrement le micro-mouvement excédentaire dû aux potentiels de contact (voir II.2.1) dans la configuration de sensibilité maximale au mouvement, c'est-à-dire pour deux lasers contra-propageants. Cet article nous a permis de proposer le contraste de résonance(s) noires(s)^c comme diagnostique de la compensation du micro-mouvement excédentaire. Dans la pratique, il s'agit de ramener le fond du puits de potentiel au point de champs rf nul par l'ajout de tensions statiques dans les 3 dimensions.

La méthodologie utilisée pour ce travail repose sur une comparaison entre les résultats expérimentaux et les résultats numériques. Les résultats expérimentaux ont été obtenus sur un ion unique de calcium en piège de Paul. La fréquence du laser bleu est fixe pour ne pas modifier les conditions du refroidissement laser et la fréquence du laser rouge est balayée pour différentes positions du fonds du puits de potentiel dans le champs rf de confinement. Les résultats numériques sont obtenus par résolution des équations de Bloch optiques pour un atome en mouvement. Dans le cas du système en Λ envisagé ici, décliné en sous-niveaux Zeeman, il y a 8 vecteurs dans

^cil y a plusieurs résonances noires quand les sous-niveaux Zeeman ne sont pas dégénérés

la base des états propres atomiques et c'est donc une matrice 64x64 qui permet de calculer l'évolution temporelle du système. Pour cet article, le mouvement de l'ion est traité de façon classique par l'intermédiaire d'un désaccord dépendant du temps, induit par l'effet Doppler du premier ordre $\Delta' - k.v(t)$ où $v(t)$ est la vitesse instantanée de l'ion. Cette méthode de calcul, exposée précédemment en II.2.1, est fastidieuse car elle requiert des temps d'intégration relativement longs pour couvrir plusieurs périodes du mouvement et atteindre la convergence du calcul. Néanmoins, cette méthode a l'avantage de pouvoir prendre en compte le mouvement séculaire aussi bien que le micro-mouvement en excès, ce que ne permet pas la méthode semi-classique qui sera vue en III.2.2 .

C. LISOWSKI
 M. KNOOP 
 C. CHAMPENOIS
 G. HAGEL
 M. VEDEL
 F. VEDEL

Dark resonances as a probe for the motional state of a single ion

Physique des Interactions Ioniques et Moléculaires (CNRS UMR 6633), Université de Provence, Centre de Saint Jérôme, Case C21, 13397 Marseille Cedex 20, France

Received: 5 November 2004 / Final version: 15 April 2005
 Published online: 7 June 2005 • © Springer-Verlag 2005

ABSTRACT Single, rf-trapped ions find various applications ranging from metrology to quantum computation. High-resolution interrogation of an extremely weak transition under best observation conditions requires an ion almost at rest. To avoid line-broadening effects such as the second-order Doppler effect or rf heating in the absence of laser cooling, excess micromotion has to be eliminated as far as possible. In this paper the motional state of a confined three-level ion is probed, taking advantage of the high sensitivity of observed dark resonances to the trapped ion's velocity. Excess micromotion is controlled by monitoring the dark-resonance contrast with varying laser-beam geometry. The influence of different parameters such as the cooling laser intensity has been investigated experimentally and numerically.

PACS 32.80.Pj; 39.30.+w

1 Introduction

Dark resonances in a three-level system, also called coherent population trapping, are a well-known example of destructive quantum interference based on the interaction of two light fields generating the coherent superposition of two atomic states. Various applications of the coherent population trapping scheme can be found in atomic physics from high-resolution spectroscopy to subrecoil laser cooling of an atom cloud [1] or electromagnetically induced transparency (EIT) cooling of single ions [2–4]. Dark resonances have been readily observed in trapped ions, almost exclusively with co-propagating laser beams [5–8]. In general, the observed splitting of the various Zeeman levels is used for an exact quantitative calibration of the local magnetic field.

Single ions confined in radio-frequency (rf) traps are ideal candidates for different applications of high-resolution spectroscopy such as quantum information or frequency standards in the optical domain [9]. They can be stored in the trap from hours up to months in a quasi-interaction-free environment, oscillating at fixed frequencies in an effective pseudo-potential well. Laser cooling of a single trapped ion allows to reach the Doppler-cooling limit, which is in the mK range.

To eliminate residual Doppler broadening on a given transition, the ion's excursion along the laser-propagation direction must be smaller than the inverse wavenumber to fulfil the Lamb–Dicke condition [10]. The excitation spectrum of the considered transition is then decomposed into a central carrier and a few sidebands separated by the ion's frequencies of motion (Lamb–Dicke regime).

The excellent spatial localization required by the Lamb–Dicke condition can only be achieved in the low-field region of the rf trapping field. Experimentally, this is realized with the confinement of single ions in the potential minimum of the trap, with one exception where two ions have been stored in an extraordinarily steep, elliptical potential [11]. For this purpose, the pseudo-potential at the position of the ion has to be nearly perfectly symmetric. Flaws in the potential due to asymmetries or patch potentials caused by atom deposition during ion creation may distort the created potential and deviate the minimum of the trap's AC electric field from the minimum of the pseudo-potential well. The resulting displacement of the average position of the ion in the trap causes an increase of the velocity amplitude at the confinement frequency, called excess micromotion, and has to be corrected. The influence of parasitic potentials can be compensated by direct voltages applied to supplementary correction electrodes in the vicinity of the trap.

Different experimental techniques have been employed to reduce the excess micromotion of a single trapped ion ([12] and references therein, [13]). In this paper, we present an additional and straightforward method for the localization of an ion in the miniature trap. We have used coherent population trapping as a tool to minimize the micromotion of the confined ion. Dark resonances depend ideally only on the lifetimes of the two involved atomic states, which in the present experiment are the $4S_{1/2}$ ground state and the metastable $3D_{3/2}$ state (natural lifetime close to 1 s [14, 15]) of a single calcium ion confined in a miniature cylindrical ring trap. In practice, the lifetime of the dark state is shortened by the linewidth of the lasers, leading to a reduction of the visibility of the dark resonance. The oscillating Doppler shifts encountered by the ion also tend to wash out the dark resonance if the dark state is not stable on the observation time scale. The study of the phenomenon reveals that the maximum sensitivity to the velocity amplitude of the ion is reached with counter-propagating laser beams. The proposed technique is based on the fact that the depth of dark resonances observed in the fluorescence

of a single ion increases with the degree of immobilization of the ion. Excess micromotion drastically reduces the lifetime of the dark state, smoothing the observed dark-resonance dip.

In this article, Sect. 2 describes the micromotion generated in the radio-frequency trap; the existing methods to reduce this effect are very briefly reviewed. In Sect. 3, we introduce the formalism for dark resonances, along with the modelling used to obtain a high degree of control of the experimental conditions. Section 4 presents numerical results, while Sect. 5 is devoted to the experimental observation of dark resonances and its use as a tool to reduce excess micromotion. The influence of the main control parameters (laser power, beam geometry, and magnetic field) is discussed.

Although we try to keep our discussion of the dark resonances in a three-level system as general as possible, we use the case of a single trapped calcium ion as an illustration throughout the description of the modelling. Experimental details are given in Sect. 5; the level scheme with the relevant transitions of the calcium ion is depicted in Fig. 1.

2 Micromotion in a Paul trap

The motion of a trapped ion in an ideal Paul trap is described by the Mathieu equation [16]

$$\frac{d^2 u}{d\tau^2} + [a_u - 2q_u \cos(2\tau)] u = 0 \quad \text{with } \tau = \frac{\Omega}{2} t, \quad (1)$$

valid for the three directions $u = x, y, z$. The values of the coefficients a_u and q_u , which determine the range of stable confinement of a particle, are defined by the trapping voltage

V_{AC} and its frequency $\Omega/2\pi$, the superimposed DC voltage V_{DC} , and the radius r_0 of the trap as well as the e/m ratio of the trapped ion. To first order in a_u and q_u , the stable solution of Eq. (1) is

$$u(t) = R_u \cos \omega_u t \left(1 + \frac{q_u}{2} \cos \Omega t \right). \quad (2)$$

The motion of the confined ion is composed of the harmonic oscillation at frequencies $\omega_u/2\pi$ with amplitudes R_u called ‘secular motion’ and the AC-driven ‘micromotion’ at the frequency of the trapping field $\Omega/2\pi$. In opposition to the secular motion, micromotion cannot be cooled because it is driven motion. According to Eq. (2), a smaller secular motion amplitude R_u leads to a reduced contribution of the micromotion. A displacement D_u of the average position of the ion, due to asymmetries in the geometry of the trap and the applied electric fields, causes excess micromotion and can be taken into account as

$$u(t) = (R_u \cos \omega_u t + D_u) \left(1 + \frac{q_u}{2} \cos \Omega t \right) \quad (3)$$

in the equation of motion. This excess micromotion can possibly prevent the access to the Lamb–Dicke regime. A complete review of the origin and consequences of the micromotion is given in Ref. [12].

Three experimental methods are commonly used to control excess micromotion of an ion in a radio-frequency trap. Best results are obtained by using all of them, as the collected information is complementary in the three cases. The control parameter is in any case the set of DC voltages applied to the compensation electrodes surrounding the trap. The simplest approach is the observation of the spatial displacement of a trapped ion as the confining potential is lowered. Parasitic potentials then gain in importance and move the ion out of the trap centre. This method requires spatial detection of the ion’s fluorescence and is limited to the plane of observation. Another means for the rejection of excess micromotion is to probe the fluorescence linewidth of the laser-cooling transition. When the blue laser is scanned, only the low-frequency side of the atomic resonance is experimentally visible, as the high-frequency detunings induce a Doppler laser heating effect, causing a sudden drop in fluorescence signal. This profile is difficult to calibrate in terms of absolute temperature, but gives a good relative control signal of the ion’s kinetic energy when laser powers are fixed. At a given laser frequency, the half-maximum fluorescence signal decreases, for better compensation, as the ion becomes colder and its blue transition linewidth narrower. A more specific observation of the micromotion’s influence is the measure of the correlation of the emitted fluorescence photons with the confinement frequency $\Omega/2\pi$ [12]. Actually, the oscillatory motion of the ion causes a frequency modulation of the laser field in the rest frame of the ion, and induces a modulation of the emitted photons at the trapping frequency $\Omega/2\pi$. To cancel the micromotion, the amplitude of this modulation signal has to be minimized. Best compensation results are obtained by the use of different laser axes for an access to the different projections in space.

The ultimate measurement to determine the absolute degree of localization of the ion in the trap is the detection of

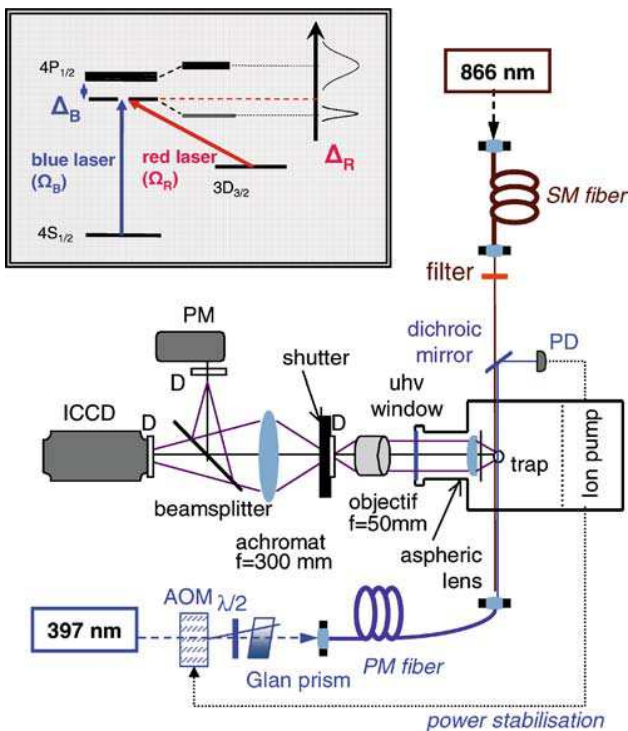


FIGURE 1 Experimental setup with counter-propagating laser beams. The inset shows the first energy levels of a Ca^+ ion dressed by the blue photons

LISOWSKI et al. Dark resonances as a probe for the motional state of a single ion

vibrational sidebands in the spectrum of the ion. The trapped ion oscillates at secular frequencies $\omega_u/2\pi$ and at the confinement frequency $\Omega/2\pi$. The oscillatory motion at a fixed frequency creates a frequency modulation of the laser excitation through the Doppler effect and leads to sidebands in the ion spectrum. The relative height of the sidebands is related to the amplitude of the corresponding oscillation, and their minimization is thus an indicator for the localization of the ion [17]. One experimental realization consists in monitoring sidebands in the emission spectrum of a single ion using a heterodyne technique [13]. However, in the majority of cases, sideband observation is made in the excitation spectrum of the ion. This requires that the natural linewidth of the excited transition is inferior to the ion's vibrational frequencies. In the present experiment, this must be realized on the ultra-narrow $4S_{1/2}$ - $3D_{5/2}$ transition using the quantum-jump technique. The experimental realization necessitates a highly stabilized laser to excite the $4S$ - $3D$ transition and the need to work on quantum-jump statistics for the detection of this dipole-forbidden transition.

In the following, we show how the visibility of the dark resonance varies with experimental conditions and how we can use this observation to probe the minimization of the micromotion of the confined particle.

3 Formalism and modelling

In a three-level system driven by two lasers in Λ configuration, coherent superposition of the atomic states coupled by the radiation fields leads to the appearance of a non-absorbing state when the detunings of the two lasers are equal. In this case, one of the stationary states $|\psi_{\text{NC}}\rangle$ is a coherent superposition of the ground and metastable states $S_{1/2}$ and $D_{3/2}$, which is not coupled to the excited state $P_{1/2}$ by the atom-laser interaction V_L ($\langle P_{1/2} | V_L | \psi_{\text{NC}} \rangle = 0$). Once in this state, the atom can neither absorb nor scatter photons and the fluorescence disappears. This feature, called dark resonance, has been used to cool atoms below the recoil limit by velocity-selective coherent population trapping [18], and ions to the vibrational ground state by electromagnetically induced transparency (EIT) [3].

In the general case, the two transitions are driven by different lasers; the non-coupled state then depends on the relative phase of the lasers, labelled (B) and (R) for blue and red, as

$$|\psi_{\text{NC}}\rangle = e^{-i(\omega_B t + \phi_B)} \frac{-\Omega_B |D_{3/2}\rangle + \Omega_R e^{-i((\omega_R - \omega_B)t + \phi_R - \phi_B)} |S_{1/2}\rangle}{\bar{\Omega}}, \quad (4)$$

with $\bar{\Omega} = \sqrt{\Omega_B^2 + \Omega_R^2}$, where we suppose the two Rabi frequencies, Ω_B and Ω_R , to be real. This dependence implies a high stability of the applied lasers to observe the complete extinction of the emitted fluorescence.

If the travelling wave nature of the laser fields and the motion of the atom are taken into account, the laser couples $|P_{1/2}, p\rangle$ with $|S_{1/2}, p - \hbar k_B\rangle$ and $|D_{3/2}, p - \hbar k_R\rangle$, where p , $\hbar k_B$, and $\hbar k_R$ are respectively the projection of the atom momentum and the blue and the red photon momenta along the

common propagation axis of the two lasers. Then, the non-coupled state is not an eigenstate of the kinetic energy and is coupled to its orthogonal state $|\psi_C\rangle$ by the kinetic energy operator:

$$|\psi_C\rangle = \frac{\Omega_R e^{-i(\omega_R t + \phi_R)} |D_{3/2}, p - \hbar k_R\rangle + \Omega_B e^{-i(\omega_B t + \phi_B)} |S_{1/2}, p - \hbar k_B\rangle}{\bar{\Omega}}. \quad (5)$$

In the basis of the atom dressed by N_B blue photons and N_R red photons, we study the evolution of the system inside the family state \mathcal{F}_p :

$$\mathcal{F}_p = \{ |S_{1/2}, p - \hbar k_B, N_B + 1, N_R\rangle; |P_{1/2}, p, N_B, N_R\rangle; |D_{3/2}, p - \hbar k_R, N_B, N_R + 1\rangle \}. \quad (6)$$

The lifetime of the non-coupled state is shortened by its coupling to its orthogonal state, which is

$$\begin{aligned} \langle \psi_C | H_0 + \frac{p^2}{2m} | \psi_{\text{NC}} \rangle \\ = \frac{\Omega_B \Omega_R}{\bar{\Omega}^2} \left(\hbar(\Delta'_B - \Delta'_R) + p \frac{\hbar(k_R - k_B)}{m} \right), \end{aligned} \quad (7)$$

where Δ'_R and Δ'_B are the laser detunings corrected by the photon recoil energy: $\Delta' = \omega - \omega_{\text{at}} + \hbar^2 k^2 / 2m$. In the case of two identical-wavelength transitions driven by co-propagating laser beams ($k_R = k_B$), the non-coupled state is stationary as soon as the corrected detunings are equal. If the two laser beams are counter-propagating or in the more general case of different wavelengths ($|k_R| \neq |k_B|$), the non-coupled state is stationary only if the atom is at rest in the excited state ($p = 0$). $(-\Omega_B |D_{3/2}, -\hbar k_R\rangle + \Omega_R |S_{1/2}, -\hbar k_B\rangle) / \bar{\Omega}$ is then a perfect trap state, as long as we neglect its finite lifetime caused by spontaneous emission. In the case of a moving atom ($p \neq 0$), the dark-resonance condition can be interpreted as an equality of the two detunings corrected by the Doppler shifts:

$$\Delta'_B - \Delta'_R - (k_B - k_R) p / m = 0. \quad (8)$$

It appears from Eqs. (7) and (8) that the lifetime of the non-coupled (or dark) state is reduced by the oscillating Doppler shifts, as the relative laser detuning is fixed. The observation of the dark resonances can then be used to quantify the motional state of an ion, and the highest sensitivity to this motion is obtained for $k_R = -k_B$.

To identify the dependence of the dark-resonance profile on each experimental parameter (laser linewidth, laser intensity and detuning, motional state of the ion), we numerically studied the atomic system through the evolution of its density matrix. As the quantity of detected photons is proportional to the population of the $4P_{1/2}$ level, the dark resonances are visualized by calculating this population as a function of the red laser detuning. The states involved in the simulation are the eight Zeeman sublevels of the $S_{1/2}$, $P_{1/2}$, $D_{3/2}$ states, coupled by the blue laser (B) on the $4S_{1/2} \rightarrow 4P_{1/2}$ transition and the red laser (R) on the $3D_{3/2} \rightarrow 4P_{1/2}$ transition. The blue and red laser linewidths Γ_{LB} and Γ_{LR} (FWHM) are taken into account by relaxation on coherences. The mechanical effect of light on the motion of the atom is neglected as well as the recoil energy, which is much smaller than the relevant

energy scale of our simulations. The motion of the ion is then treated classically and taken into account by a time-dependent Doppler shift, using the same approach as in Ref. [19]:

$$\Delta_B(t) = \Delta_B^0 - k_B V(t); \Delta_R(t) = \Delta_R^0 \pm k_R V(t), \quad (9)$$

where the sign of the red-transition Doppler shift depends on the propagation configuration of the lasers ($-$ for co-propagating beams, $+$ for counter-propagating beams). Δ^0 is the detuning set by the laser frequency. For the sake of simplicity, we suppose here that only one secular frequency (ω_r) contributes to the Doppler shift, which can be written, according to the equation of motion (3) with $V_0 = \omega_r R_r$:

$$\Delta(t) = \Delta^0 \pm k V_0 \left(\sin \omega_r t \left(1 + \frac{q_r}{2} \cos \Omega t \right) + \sqrt{2} \cos \omega_r t \sin \Omega t + \frac{D_r}{R_r} \sqrt{2} \sin \Omega t \right), \quad (10)$$

using the relation $\omega_r = q_r \Omega / (2\sqrt{2})$ valid in the adiabatic approximation [20] for a trap with zero applied DC field ($a_r = 0$).

The natural widths of the involved atomic transitions are of the same order as the secular and rf trapping frequencies ($\Gamma_B/2\pi = 22.5$ MHz, $\Gamma_R/2\pi = 1.35$ MHz, $\omega_r/2\pi = 1$ MHz, $\Omega/2\pi = 11.6$ MHz). For the modelling of the internal state the evolution of the density matrix has to be followed and integrated over several periods, until a steady state is reached. Technically, convergence is accomplished when the level populations averaged over one secular period are not modified by adding one period to the integration time.

If the magnetic field is set to zero, the atomic population is trapped in the $D_{3/2}$, $m_J = \pm 3/2$ states and fluorescence disappears and hides the dark resonance we are looking for. To prevent this optical pumping and keep the detected fluorescence signal as high as possible, a minimal magnetic field must be applied (see Sect. 5.1 for details).

4 Numerical results

Numerical simulations using the described model have been carried out to evidence the influence of the excess micromotion, the laser intensity, and the laser-beam geometry. To describe the dark-resonance behaviour in a quantitative way, we define the ‘contrast’ \mathcal{C} of the dark resonance as the depth of the observed dip divided by the total signal we would observe at the same frequency if there was no dark resonance. This is done by numerical extrapolation of the experimental signal.

The sensitivity of the dark resonances to the excess micromotion of the ion is illustrated in Fig. 2, where the probability of occupation of the $P_{1/2}$ state is plotted versus the detuning of the red laser with fixed amplitude of secular oscillation V_0 and for identical laser parameters. To keep the discussion general and take advantage of the described method even for a non-ideal system, the velocity amplitude V_0 is chosen to be 1 m/s, which corresponds to a temperature of 10 times the theoretical Doppler laser cooling limit for calcium ions. Anyway, simulations show that for the chosen laser parameters, the dark resonance can be observed up to temperatures 100 times the Doppler-cooling limit. The laser linewidths used in

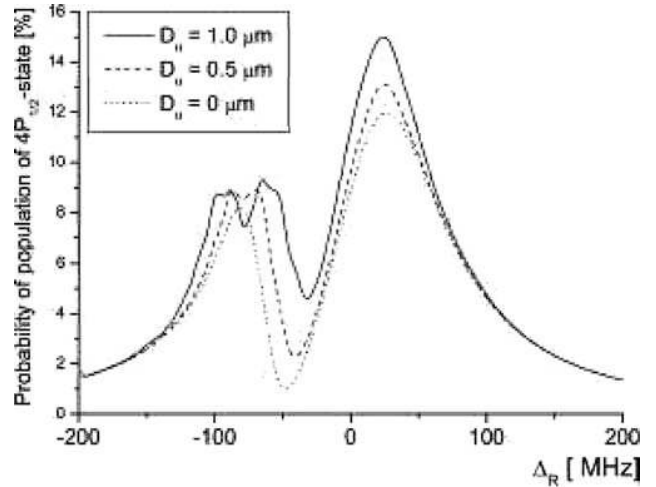


FIGURE 2 Numerical simulation of dark resonances in the counter-propagating laser-beam geometry, for a velocity amplitude $V_0 = 1$ m/s and different displacements D_u off the trap centre ($\Omega_B = 120$ MHz, $\Omega_R = 30$ MHz, $\Delta_B = -50$ MHz)

the simulation ($\Gamma_{LB} = 1$ MHz, $\Gamma_{LR} = 0.2$ MHz) are the measured linewidths for the lasers in our experiment. The Rabi frequencies ($\Omega_B = 120$ MHz, $\Omega_R = 30$ MHz) and the blue laser detuning ($\Delta_B = -50$ MHz) are the highest values chosen such that the simulations reproduce the width and profile of the experimental spectra. The precision of this fit is of the order of 10%, which is sufficient for the comparison we want to make. As in our experiment, the magnetic field has been set to 1 G. With the laser line widths considered here, the splitting of the Zeeman sublevels cannot be observed in the dark resonance.

The spectra obtained for three different displacements D_u in the counter-propagating laser-beam configuration are plotted in Fig. 2. The depth of the dark resonance is reduced for increasing displacement and illustrates how the observation of the contrast of dark resonances can be used for the reduction of the excess micromotion. The curve with zero excess micromotion ($D_u = 0$) shows a contrast \mathcal{C} of 91%. Finite laser line widths and secular motion prevent the dark-resonance dip from falling completely to the background light level and limit the maximum contrast.

When the displacement D_u increases from 0 to 0.5 and 1 μm , the contrast is reduced to 83% and 73%, respectively. With the laser parameters given above, the blue spectral line widths corresponding to the shown spectra do not increase, and the slope of the blue resonance transition is unchanged, as the power broadening is too important. This means that neither the rf correlation technique nor the measurement of the spectral line width can give information about the reduction of the micromotion, whereas the contrast of the dark resonance can vary from 73% to 91%, which can be detected experimentally with high efficiency.

Observation of dark resonances can be made easier by using a higher Rabi frequency Ω_B for the blue laser while keeping Ω_R fixed, even though the dark-resonance phenomenon occurs independently of the employed Rabi frequencies. In the dressed-atom picture, higher Rabi frequencies increase the splitting of the states resulting from the coupling of $S_{1/2}$

LISOWSKI et al. Dark resonances as a probe for the motional state of a single ion

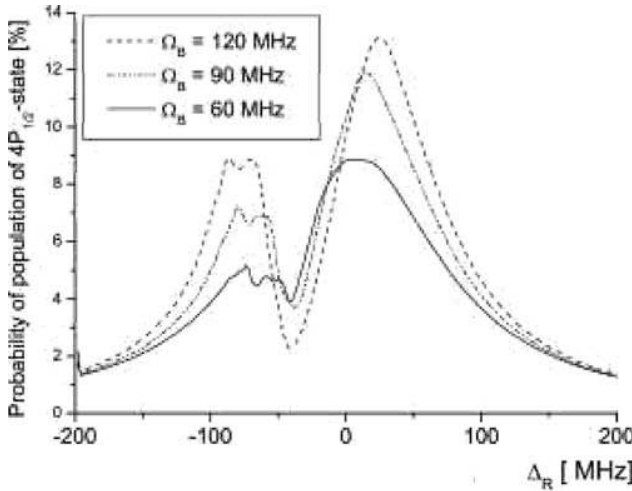


FIGURE 3 Numerical simulation of the observable fluorescence signal for different blue Rabi frequencies Ω_B . The two laser beams are counter-propagating and the motion of the ion is described by $V_0 = 1$ m/s and $D_u = 0.5$ μ m. Micromotion sidebands are visible in the spectrum at lower values of Ω_B ($\Omega_R = 30$ MHz, $\Delta_B = -50$ MHz)

and $P_{1/2}$ by the blue laser (see inset of Fig. 1 for details). The spectrum observed by scanning the red laser is then split into the Autler–Townes doublet and the sharp dark-resonance profile is replaced by a broader feature that is less sensitive to the oscillating Doppler shifts. The influence of different values of Ω_B is illustrated in Fig. 3, where the excitation probability to $P_{1/2}$ is plotted for different Rabi frequencies. The graphs show that the increased doublet splitting can also be advantageous for the reduction of the excess micromotion, as \mathcal{C} has a minimum value, depending on the laser parameters Ω_B , Ω_R , and Δ_B , even if the dark resonance is washed out. This can be used in particular to start the compensation process while the excess micromotion amplitude is still high. In the cases studied in Fig. 3, the contrast is 53% for $\Omega_B = 60$ MHz and increases to 83% for $\Omega_B = 120$ MHz. In return, micromotion sidebands, which are visible as an additional structure in the spectrum calculated for Ω_B , are smoothed by power broadening for $2\Omega_B$. This dependence on the Rabi frequencies implies that the use of the dark-resonance contrast for the reduction of the displacement D_u has to be made at constant laser power.

5 Experimental results

We trap singly ionized calcium in a miniature cylindrical radio-frequency trap. The main laser-cooling transition connects the $4S_{1/2}$ ground state to the $4P_{1/2}$ level at 397 nm (called the blue transition (B)), shown in the inset of Fig. 1. This upper state has a lifetime of 7 ns and a branching ratio to the metastable $3D_{3/2}$ state of about 6%. A closed laser-cooling cycle therefore requires a repumper laser at 866 nm (red transition (R)) to empty the $3D_{3/2}$ state. Our experimental setup is based on a miniature ring trap with an inner diameter of 1.4 mm. The trapping frequency of $\Omega/2\pi \simeq 11.6$ MHz with an amplitude of about $V_{AC} = 300$ V is applied to the ring, generating a pseudo-potential well with a depth of a few eV, allowing the confinement of ions for very long periods. Two tip electrodes in the plane of the ring (x, y) and two larger

mesh electrodes along the ring axis (z_1, z_2), distant by approximately 5 mm from the ring centre, permit corrections of the potential by application of direct voltages. The trapping characteristics of this device are described in detail elsewhere [21].

The experimental geometry is as in Ref. [22] and in Fig. 1, where the case of counter-propagating laser beams is depicted. The ultra-high-vacuum vessel containing the miniature trap allows the propagation of the laser beams along an axis having a 55° angle according to the trap's z axis. The ion's fluorescence is observed in the xy plane of the trap either spatially resolved by an intensified CCD or as an integrated signal by a photomultiplier in photon-counting mode. Laser beams are transported to the trap by single-mode fibres, polarization-maintaining in the case of the blue laser. Laser polarizations are modified by means of quarter- and half-wave plates.

Since dark resonances require identical detuning for both lasers, their observation can be readily realized by keeping one laser fixed, while probing the atomic resonance by scanning the other laser. In order to observe a full fluorescence spectrum without losing the ion by Doppler laser heating, the blue cooling laser is fixed on the red-frequency side of the $4S_{1/2}-4P_{1/2}$ transition (approximately at -1 to $-2\Gamma_B$) and the frequency of the repumper laser at 866 nm is scanned. Throughout the experiments presented in this section, the laser-beam geometry has been chosen to be counter-propagating, except for Fig. 8.

An experimentally recorded dark-resonance signal as well as its corresponding numerical simulation are plotted in Fig. 4. The excellent agreement between experiment and simulation allows us to deduce the effective experimental parameters, which in this case produce lower Rabi frequencies ($\Omega_B = 60$ MHz, $\Omega_R = 15$ MHz) than those used in Figs. 2 and 3. The dashed curve in this graph is the simulation using exactly identical parameters but changing the laser geometry to co-propagating beams. The dark resonance is then much more pronounced, confirming the dependence of the signal on the laser-beam geometry.

5.1 Magnetic field

To make sure that laser-polarization effects do not play a role, the local magnetic field has to be controlled in a rigorous way. We apply a magnetic field sufficient to define a quantization axis but small enough to limit the splitting of the Zeeman sublevels to values lower than the natural width of the involved transition. In our experimental setup, the local magnetic field is controlled by three pairs of orthogonal Helmholtz coils. The residual \vec{B} field at the position of the ion has been compensated making use of an optical pumping effect. Laser cooling is carried out on the $4S_{1/2}-4P_{1/2}$ transition, while a repumper on the $3D_{3/2}-4P_{1/2}$ transition at 866 nm avoids trapping of the ion in the metastable $3D_{3/2}$ state. A bias magnetic field \mathbf{B}_0 (≈ 1 G) is applied perpendicularly to the propagation axis of the lasers, the repumping laser being linearly polarized parallel to this field. If the total magnetic field is parallel to \mathbf{B}_0 , the ion is pumped in the $3D_{3/2}$, $m_J = \pm 3/2$ states, which are not coupled to the laser, making the fluorescence disappear. Any residual magnetic field perpendicular to \mathbf{B}_0 mixes these

dark states with the $3D_{3/2}, m_J = \pm 1/2$ states and fluorescence is then observed again. If the repumping laser polarization is purely linear, the observed fluorescence can be reduced to zero when the applied magnetic field exactly compensates the local field (see Fig. 5). This procedure is carried out for all three axes of the magnetic field, changing the quantization axis and the corresponding laser polarizations. The method, based on optical pumping in a dark state, is independent of the linewidth and detuning of the lasers if we assume that the bias magnetic field is small enough to keep the splitting of the Zeeman sublevels comparable to the excitation linewidth of the lasers. As a consequence, this technique is not sensitive to the motion of the ion and presents the advantage of being useable for a single ion as well as for an ion cloud.

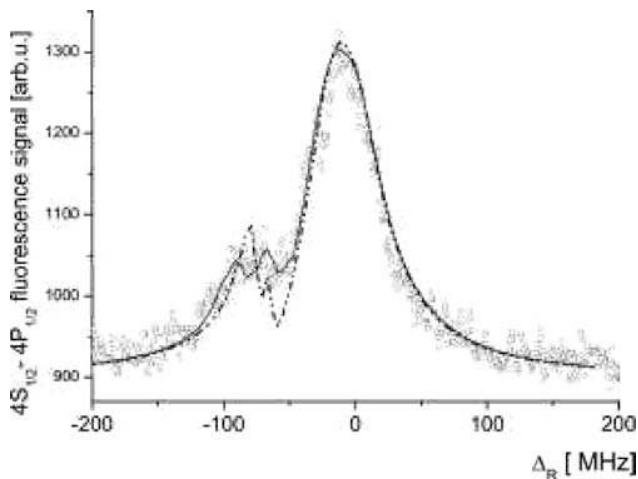


FIGURE 4 Experimental observation of a dark resonance (○), adjusted by the numerical simulation with counter-propagating laser beams (solid line). The dashed line is the numerical simulation with an identical parameter set and with co-propagating laser beams ($\Omega_B = 60$ MHz, $\Omega_R = 15$ MHz, $\Delta_B = -50$ MHz, $V_0 = 1$ m/s, $D_u = 0.8$ μ m)

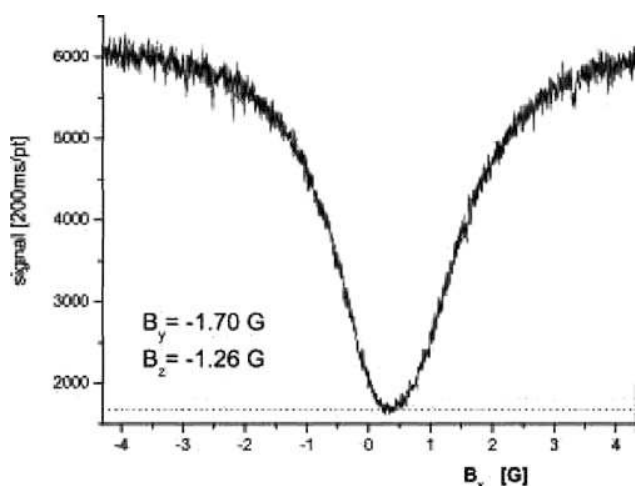


FIGURE 5 Fluorescence of a single ion versus the applied perpendicular magnetic field in a Hanle-type experiment for the determination of the magnetic field zero values. The red laser is linearly polarized along the x direction. The dotted line corresponds to the background light level

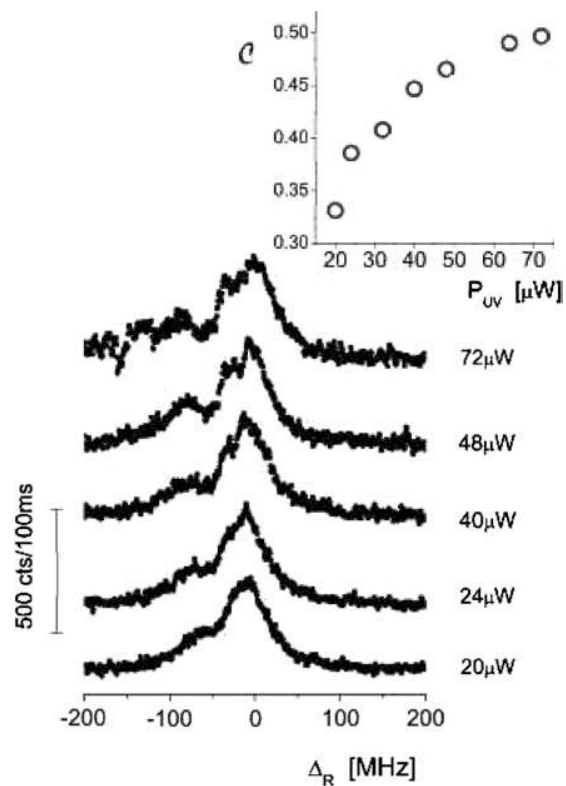


FIGURE 6 Fluorescence signal observed with counter-propagating laser beams. The graph shows the influence of the laser power on the level splitting; the offset of the curves is due to the varying laser power. The applied blue laser powers are marked on the right-hand side of the curves, where the lowest value corresponds to about $2\Gamma_B$ while the highest power is equivalent to $4\Gamma_B$. The inset shows the increasing contrast of the fluorescence signal with higher laser power

5.2 Laser intensity

As discussed above, higher laser intensity at 397 nm splits the coupled atomic levels to a greater extent and increases the visibility of the Autler–Townes doublet. The five graphs in Fig. 6 have been taken with increasing laser power, starting from 20 μ W, which corresponds to a Rabi frequency of about $2\Gamma_B$, as determined from numerical adjustments. The increase of the contrast with the applied blue laser power follows a saturation curve as represented in the inset of the figure. For laser intensities higher than $10\Gamma_B$ the transition is largely saturated, and the maximum contrast is reached.

The influence of the red probe laser intensity has also been checked while keeping the blue laser power fixed. As expected, this only broadens the scanned atomic transition, without increasing the contrast of the signal, as power-broadening effects prevail on the light-shift effect.

5.3 Micromotion

For counter-propagating laser beams, dark resonances have merely been observed in our experiment when the ion is well localized, which means that part of the excess micromotion has already been eliminated by a rough

LISOWSKI et al. Dark resonances as a probe for the motional state of a single ion

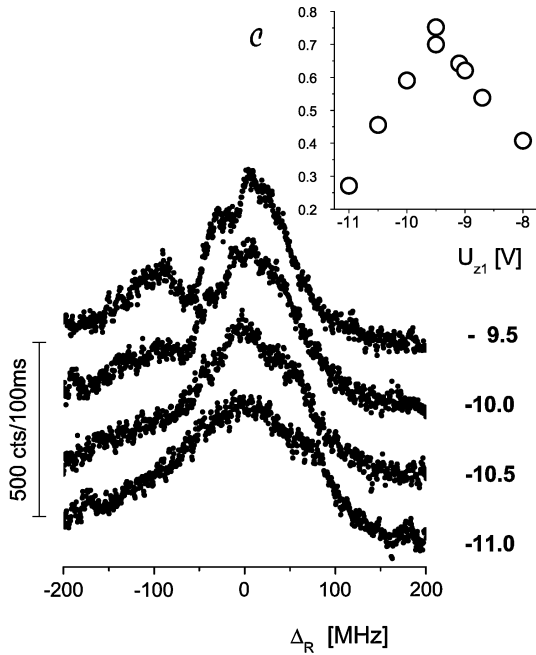


FIGURE 7 Influence of the micromotion on the observed dark-resonance contrast \mathcal{C} with counter-propagating laser beams, laser intensities: $\Omega_B \approx 4\Gamma_B$, $\Omega_R \approx 10\Gamma_R$. For better visibility, the graph only shows selected curves which have been offset by a fixed value. The compilation of the contrast data in the *inset* allows an unambiguous determination of the best compensation parameter

compensation of the parasitic potentials. Simulations have shown the dependence of the contrast of the dark resonance on the degree of localization of the ion (see Fig. 2). The smaller the ion's amplitude of motion, the deeper the observed dark resonance. The curves plotted in Fig. 7 show the changing contrast in the observation of the dark resonance, as a function of modified compensation voltages applied to the correction electrodes. All curves have been recorded at fixed blue and red laser intensities. Depending on their distance from the centre of the trap, a DC voltage applied to one of the correction electrodes moves the ion by about 100 to 400 nm per volt. Variations of a tenth of a volt have an impact on the micromotion and can be detected through the variation of the dark-resonance contrast. In addition, we have made sure that the applied static voltages do not modify the ion's position in the laser beams. The inset of Fig. 7 shows the contrast \mathcal{C} of the observed signal versus the applied compensation voltage and a maximum can be unambiguously distinguished. We have verified that this maximum corresponds to a reduced spectral linewidth of the blue cooling transition. The blue linewidth represents an estimate of the ion's kinetic energy when approximated by a Doppler profile. It cannot be taken as an absolute measure as it depends strongly on the applied (blue) laser intensity; however, it is a good relative indication of the kinetic energy state of the ion when the Doppler broadening is larger than the power broadening. Compensation parameters have been tested using all four correction electrodes, resulting in the best localization of a single ion within a precision of 10–40 nm, which corresponds to the order of magnitude of the size of a Doppler-cooled wave packet.

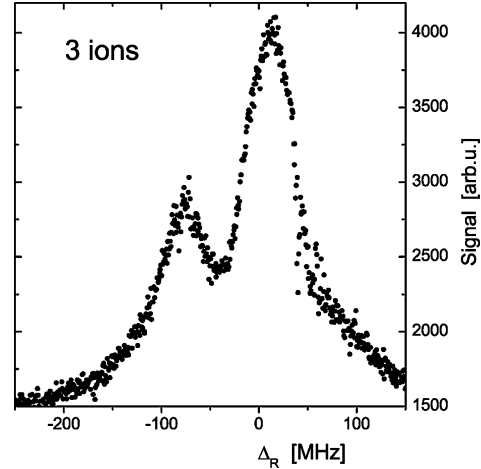


FIGURE 8 Dark resonance observed in the fluorescence of a three-ion cloud with co-propagating laser beams

5.4 Laser-beam geometry

Equation (8) shows that the dark-resonance condition changes on the time scale of the oscillation period of the ion, which is at least three orders of magnitude smaller than the observation time. For fixed laser detunings, the Doppler shifts fulfil the dark-resonance condition only for a fraction of the oscillation period; this fraction decreases with increasing velocity amplitude and with increasing wave-vector difference $\mathbf{k}_B - \mathbf{k}_R$. In the case of a Ca^+ ion $|\mathbf{k}_B| \approx |2\mathbf{k}_R|$; we then expect the sensitivity to ion oscillation to be three times higher for the counter-propagating configuration than for the co-propagating one (cf. Fig. 2).

This behaviour has been checked experimentally by using the alternative beam geometry where both lasers enter the trap from the same direction. In this configuration, dark resonances can be observed in almost any case, even with a small ion cloud, which is not possible in our experiment with the antiparallel geometry. As an example, Fig. 8 shows the fluorescence spectrum of three ions observed with co-propagating laser beams.

To evidence the difference between co- and counter-propagating laser-beam geometry we have plotted the highest dark-resonance contrast \mathcal{C} as a function of the experimental linewidth of the $4S_{1/2}-4P_{1/2}$ transition in Fig. 9. Again, the measured fluorescence linewidth gives a relative indication of the degree of localization of the trapped ion, as the smaller it is, the closer the ion is to the centre of the trap. The general tendency of Fig. 9 is clearly visible: while dark resonances could not be observed at all for the counter-propagating geometry unless a certain level of localization has been reached, the co-propagating geometry allows the observation of dark resonances for much hotter ions and even for small ion clouds. The highest contrast values achieved for the counter-propagating laser-beam geometry exceed 80%, reflecting an excellent localization of the ion. In this beam configuration, the steeper slope in the variation of the contrast values as depicted in Fig. 9 can be used a sensitive tool to reveal the degree of localization of the trapped ions with a high sensitivity.

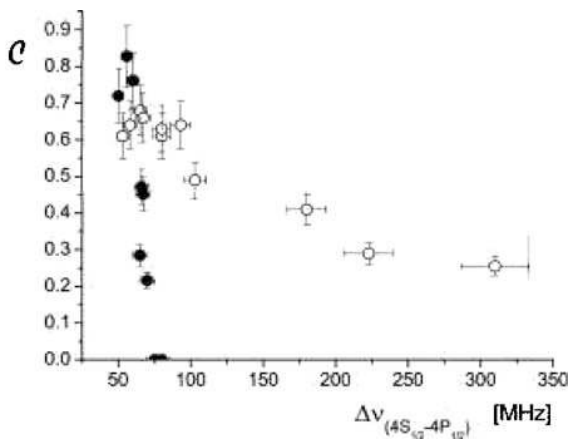


FIGURE 9 Comparison of the-dark resonance contrast for co- (○) and counter-propagating (●) laser-beam geometries. In the graph the highest measured contrast is plotted as a function of the observed transition line width on the $4S_{1/2}-4P_{1/2}$ transition. The data for the co-propagating geometry has been taken with a single ion for line widths below about 100 MHz, and with very small ion clouds (inferior to 10 particles) for line widths above. For this experiment, the blue transition line widths are due to micromotion and not to power broadening

6 Conclusion

In this paper, we have presented a novel approach to reduce the micromotion of an ion confined in a miniature electrodynamic trap. Only the lasers for cooling and detection of the ion are necessary for the implementation of the proposed technique, in contrast to other techniques, in particular the probing of the vibrational sidebands, which require a highly stabilized laser to probe a narrow-linewidth transition. We use the contrast of the dark resonances observed with two counter-propagating laser beams to collect information about the motional state of the ion. Numerical simulations and experiments have shown that this contrast is very sensitive to the localization of the ion, while a larger micromotion amplitude smears out the coherent population trapping effect. Observation of fluorescence is made on time bins which are long compared to the inverse motional frequencies of the ion. On this time scale, the oscillation amplitudes along the three directions are coupled in the trap.

Comparison with other compensation techniques is not straightforward, as the different methods produce various signal levels and use different sets of experimental parameters. In any case, the maximum fluorescence signal has to be monitored as a function of the compensation voltages to make sure that a decrease in the observed signal height is not due to the fact that the ion has been pushed out of the laser beams. The spatial displacement of the confined particle with lowered pseudo-potential well depth requires the use of a detector with high spatial resolution and can only be applied to reduce effects which appear in the plane of observation. The exploration of the linewidth on the $4S_{1/2}-4P_{1/2}$ transition is an easy method to roughly minimize excess micromotion, keeping in mind that the linewidth depends also on the applied laser intensities and frequencies, which may modify the efficiency of laser cooling. Since excess micromotion may also deform the excitation spectrum of the ion, it is important to record the entire frequency response at fixed laser intensities. The

fluorescence correlation method which shows the modulation of the ion's fluorescence with the micromotion frequency Ω gives best signal-to-noise ratios in the low-intensity limit but requires an integration time of at least a couple of seconds to accumulate sufficient signal in each time channel of a time-to-amplitude converter [12].

Due to the wide panel of recorded signals a quantitative comparison of the different compensation methods cannot be made in a precise way. As a matter of fact, best results for the reduction of excess micromotion are obtained by using at least two different methods. Measurements along multiple laser axes have to be performed to assure a complete extinction of excess micromotion for all projections in space. We have shown that even in the case where the blue laser linewidth is not modified, dark resonances can still be observed. It is thus possible to use this means of micromotion reduction when the rf correlation technique and the observation of the blue transition linewidth fail. The main advantage of the dark-resonance technique is nevertheless its simplicity and the absence of need for any other recording or excitation devices than those used for fluorescence observation.

In summary, we have proposed a complementary method to reduce excess micromotion of a single trapped ion making use only of the experimental means necessary to detect the ion's fluorescence. In a more general way, this technique can be applied to any three-level ion having a Λ energy scheme, the highest sensitivity being reached for $k_B = k_R$.

REFERENCES

- 1 E. Arimondo, Coherent population trapping in laser spectroscopy. In *Progress in Optics*, vol. XXXV, ed. by E. Wolf (Elsevier Science, Amsterdam, 1996), Chap. V, p. 258
- 2 G. Morigi, J. Eschner, C.H. Keitel, *Phys. Rev. Lett.* **85**, 4458 (2000)
- 3 C.F. Roos, D. Leibfried, A. Mundt, F. Schmidt-Kaler, J. Eschner, R. Blatt, *Phys. Rev. Lett.* **85**, 5547 (2000)
- 4 G. Morigi, *Phys. Rev. A* **67**, 033402 (2003)
- 5 G. Janik, W. Nagourney, H. Dehmelt, *J. Opt. Soc. Am. B* **2**, 1251 (1985)
- 6 Y. Stalgies, I. Siemers, B. Appasamy, T. Altevogt, P.E. Toschek, *Europhys. Lett.* **35**, 259 (1996)
- 7 D. Reiss, K. Abich, W. Neuhauser, Ch. Wunderlich, P.E. Toschek, *Phys. Rev. A* **65**, 053401 (2002)
- 8 F. Kurth, T. Gudjons, B. Hilbert, T. Reisinger, G. Werth, A.-M. Maartensson-Pendrill, *Z. Phys. D* **34**, 227 (1995)
- 9 P. Gill, in *Proceedings of the Sixth Symposium on Frequency Standards and Metrology* (World Scientific, Singapore, 2002)
- 10 R.H. Dicke, *Phys. Rev.* **89**, 472 (1953)
- 11 B.E. King, C.J. Myatt, Q.A. Turchette, D. Leibfried, W.M. Itano, C. Monroe, D.J. Wineland, *Phys. Rev. Lett.* **81**, 3631 (1998)
- 12 D.J. Berkeley, J.D. Miller, J.C. Bergquist, W.M. Itano, D.J. Wineland, *J. Appl. Phys.* **83**, 5025 (1998)
- 13 Ch. Raab, J. Eschner, J. Bolle, H. Oberst, F. Schmidt-Kaler, R. Blatt, *Phys. Rev. Lett.* **85**, 538 (2000)
- 14 M. Knoop, M. Vedel, F. Vedel, *Phys. Rev. A* **52**, 3763 (1995)
- 15 J. Lidberg, A. Al-Khalili, L.-O. Norlin, P. Royen, X. Tordoir, S. Mannervik, *J. Phys. B* **32**, 757 (1999)
- 16 W. Paul, *Rev. Mod. Phys.* **62**, 531 (1990)
- 17 F. Diedrich, J.C. Bergquist, W.I. Itano, D.J. Wineland, *Phys. Rev. Lett.* **62**, 403 (1989)
- 18 A. Aspect, E. Arimondo, R. Kaiser, N. Vansteenkiste, C. Cohen-Tannoudji, *Phys. Rev. Lett.* **61**, 826 (1988)
- 19 M. Schubert, I. Siemers, R. Blatt, *Phys. Rev. A* **39**, 5098 (1989)
- 20 H.G. Dehmelt, *Adv. At. Mol. Phys.* **3**, 53 (1967)
- 21 C. Champenois, M. Knoop, M. Herbane, M. Houssin, T. Kaing, M. Vedel, F. Vedel, *Eur. Phys. J. D* **15**, 105 (2001)
- 22 M. Knoop, C. Champenois, G. Hagel, M. Houssin, C. Lisowski, M. Vedel, F. Vedel, *Eur. Phys. J. D* **29**, 163 (2004)

III.2 Processus cohérents à trois photons

On aura compris qu'il y a piégeage cohérent de population quand les états habillés associés à deux niveaux stables ou métastables sont dégénérés (voir figure III.1). Nous allons montrer qu'on peut réaliser la même condition dans un système à quatre niveaux dont trois sont stables ou métastables. Pour cela on ajoute au système en Λ exposé en III.1.1 le couplage quadripolaire entre le niveau fondamental $S_{1/2}$ et le niveau métastable qui est envisagé comme support à une horloge optique $D_{5/2}$ dont l'état habillé est noté $|Q\rangle$. Le tout forme un système en N qui est montré sur la figure III.4 et pour lequel la transition quadripolaire sera baptisée transition d'horloge^d.

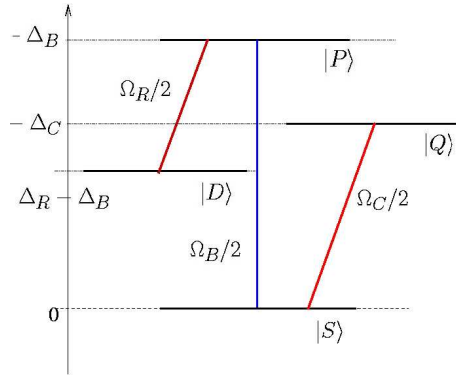


Figure III.4 : Système en N formé par les états habillés $\{|Q\rangle, |S\rangle, |P\rangle, |D\rangle\}$ et les couplages lasers sur les transitions bleue ($S_{1/2} \rightarrow P_{1/2}$ à 397 nm), rouge ($D_{3/2} \rightarrow P_{1/2}$ à 866 nm) et d'horloge ($S_{1/2} \rightarrow D_{5/2}$ à 729 nm)

L'idée principale repose sur la faiblesse du couplage sur la transition d'horloge par rapport aux couplages dipolaires bleu et rouge. On peut donc traiter ce faible couplage comme une perturbation du système. La base des états habillés reste très pertinente pour ce problème et elle devient

$$\begin{aligned} |P\rangle &= |P_{1/2}, N_B - 1, N_R - 1, N_C\rangle \\ |S\rangle &= |S_{1/2}, N_B, N_R - 1, N_C\rangle \\ |D\rangle &= |D_{3/2}, N_B - 1, N_R, N_C\rangle \\ |Q\rangle &= |D_{5/2}, N_B, N_R - 1, N_C - 1\rangle \end{aligned}$$

La perturbation induite par le couplage quadripolaire est en premier ordre en $\alpha_C = \Omega_C/2\Delta_C$ et se traduit par une faible modification des états propres $|S\rangle$ et $|Q\rangle$ de l'hamiltonien total qui deviennent, en négligeant les termes du deuxième ordre en α_C :

$$|S_Q\rangle = \mathcal{N}(|S\rangle + \alpha_C|Q\rangle) \quad (\text{III.7})$$

$$|Q_S\rangle = \mathcal{N}(|Q\rangle - \alpha_C|S\rangle) \quad (\text{III.8})$$

^det muni du label C comme *clock*

dans l'hypothèse où $\Delta_C \neq 0$ et où $\Omega_C \ll |\Delta_C|$, \mathcal{N} est une constante de normalisation. Les énergies propres de ces deux états sont $\alpha_C \Omega_C/2$ et $-\Delta_C - \alpha_C \Omega_C/2$ et ces deux états sont couplés à l'état excité $|P\rangle$ par $(\Omega_B/2)$ et $(-\alpha_C \Omega_B/2)$. On a donc deux schémas en Λ superposés et si la condition de résonance à trois photons, corrigée du light-shift ($-\alpha_C \Omega_C/2$),

$$\Delta_B - \Delta_R - \Delta_C - \alpha_C \Omega_C/2 = 0, \quad (\text{III.9})$$

est vérifiée, il y a piégeage cohérent de population dans l'état non couplé

$$|\psi_{NC}\rangle = \mathcal{N}' (\mathcal{E}|D\rangle + |Q_S\rangle) \quad (\text{III.10})$$

avec $\mathcal{E} = \alpha_C \Omega_B/\Omega_R$ et \mathcal{N}' un facteur de normalisation. Dans la mesure où $\alpha_C \ll 1$ et où Ω_B/Ω_R est de l'ordre de 1, dans l'état non couplé, la probabilité d'occupation de l'état $|Q\rangle$ est égale à 1 à des corrections en α_C^2 et \mathcal{E}^2 près. Ce processus de CPT à trois photons peut donc conduire à l'excitation dans l'état métastable $D_{5/2}$ avec une probabilité proche de 1 et de façon stationnaire (tant que la condition de résonance III.9 est vérifiée). Comme nous l'avons vu en III.1.2, ceci est vrai sur des échelles de temps courtes devant la durée de vie de l'état $D_{5/2}$ ($\simeq 1$ s), ce qui n'est pas vraiment une limitation, mais surtout si la gigue relative des trois lasers et l'effet Doppler ne rendent pas l'état non couplé non stationnaire. En ce qui concerne la gigue relative des trois lasers, la solution est la même que pour une résonance à deux photons : asservir les lasers sur un peigne de fréquence. Par contre, l'influence de l'effet Doppler peut être complètement éliminée (au premier ordre) car à trois photons, il existe toujours une configuration pour laquelle la condition (III.9) est vérifiée quelque soit la vitesse du ou des ions : $\Delta \vec{k} = \vec{k}_B - \vec{k}_R - \vec{k}_C = 0$. Dans la pratique, il suffit de faire co-propager les trois lasers pour avoir un vecteur d'onde effectif réduit d'un facteur 0.003.

III.2.1 Une résonance noire à trois photons comme étalon de fréquence

L'absence de sensibilité à l'effet Doppler mis en avant plus haut est un atout majeur comparé aux processus à un ou deux photons car elle permet, entre autres, d'envisager des expériences avec un large échantillon d'ions sans que les performances du processus en soient réduites^e (modulo l'effet Doppler du 2^e ordre). Dans l'article présenté dans la suite, ceci est mis à profit pour proposer un étalon de fréquence basé sur la résonance noire associée au CPT à trois photons, dans un nuage d'ions et non plus sur un ion unique. L'augmentation du rapport signal sur bruit et donc de la stabilité à court terme qui en découle permet d'envisager un autre type d'horloge où la ultra-haute précision obtenue avec des ions uniques est échangée contre une meilleure stabilité. Il est à noter que la résonance noire est aussi élargie par saturation et que le signal par ion résulte d'un compromis entre élargissement homogène de la raie et maximisation du rapport signal sur bruit. Dans le cas du calcium, l'étalon de fréquence ainsi proposé correspond à la différence d'énergie entre les niveaux $D_{5/2}$ et $D_{3/2}$ et est dans le domaine des THz (1.82 THz plus précisément). À cette fréquence, les molécules n'offrent pas ou très peu de transitions exploitables et cette résonance à trois photons offre une alternative pour atteindre un domaine

^eDans les pièges rf, augmenter le nombre d'ions se traduit toujours par une augmentation de l'amplitude du mouvement car les ions se repoussant, ils occupent des volumes du piège où l'amplitude du champ rf et donc l'amplitude du mouvement forcé sont plus élevées qu'au centre.

non accessible aux techniques usuelles d'interaction laser-atome, comme le refroidissement laser. Utiliser trois photons pour générer une fréquence THz peut sembler injustifié et irréaliste mais quand on a en tête que l'absorption des THz dans l'atmosphère ou les fibres est telle que leur transmission est limitée à quelques mètres, construire un signal d'horloge à partir de photons "optiques" gagne de l'intérêt. En effet, leur propagation peut être envisagée sur des kilomètres. À charge de passer dans le domaine THz à l'arrivée pour profiter de l'étalon de fréquence!

Terahertz Frequency Standard Based on Three-Photon Coherent Population Trapping

C. Champenois,* G. Hagel, M. Houssin, M. Knoop, C. Zumsteg, and F. Vedel

Physique des Interactions Ioniques et Moléculaires (CNRS UMR 6633), Université de Provence, Centre de Saint Jérôme, Case C21, 13397 Marseille Cedex 20, France

(Received 21 March 2007; published 6 July 2007)

A scheme for a terahertz frequency standard based on three-photon coherent population trapping in stored ions is proposed. Assuming the propagation directions of the three lasers obey the phase matching condition, we show that stability of few 10^{-14} at 1 s can be reached with a precision limited by power broadening to 10^{-11} in the less favorable case. The referenced terahertz signal can be propagated over long distances, the useful information being carried by the relative frequency of the three optical photons.

DOI: 10.1103/PhysRevLett.99.013001

PACS numbers: 32.80.Qk, 06.30.Ft, 32.80.Pj, 42.50.Gy

Thanks to the progress made in the generation of continuous terahertz radiation, terahertz spectroscopy is strongly gaining in interest in different domains, in particular, for imaging in astronomy and biology and for material analysis [1]. In this Letter we propose a frequency standard in the terahertz domain, based on a three-photon dark resonance where the three wavelengths belong to the visible domain. Atomic frequency standards in the optical domain can now reach performances in the 10^{-16} range [2,3]; the proposed terahertz frequency standard aims at a lower relative precision of about 10^{-11} , which can be realized in a robust and easily achievable experimental configuration and with a large atomic sample, allowing frequency stabilities of a few parts in 10^{14} at 1 s.

In the scheme described here, the terahertz reference signal is produced by coherent population trapping (CPT) in a three-photon process [4] involving visible lasers in a Doppler-free configuration [5]. For instance, this process can occur in several ions commonly used for optical metrology or quantum computation. For these atoms (Ca^+ , Sr^+ , Ba^+ , Hg^+), the narrow dark line resulting from CPT corresponds to the magnetic-dipole transition between the $nD_{3/2}$ and $nD_{5/2}$ metastable states, whose frequency lies in the terahertz range. This electric-dipole forbidden line has been studied and probed directly in former experiments [6–8], but in a configuration sensitive to the Doppler effect. The proposed experiment can be seen as analogous to a two-photon CPT microwave cesium clock [9] where a trade-off is made between robustness and clock precision. Two-photon CPT is also considered for an optical clock based on neutral ^{88}Sr [10], and a three-photon coherent process has been proposed as an optical frequency standard in alkaline earth atoms in [11].

In this Letter, we first introduce the three-photon coherent process resulting in the sharp line that can serve as a frequency standard. This process is largely discussed in [4] and we mention only the points useful for metrological application. Then, the expected performances of such a standard are studied to show a possible stability better than 8×10^{-14} at 1 s.

The scheme we propose can apply to any atomic system composed of four electronic levels which are coupled by laser fields, according to the N -shaped scheme depicted in Fig. 1 and where states $|S\rangle$, $|D\rangle$, and $|Q\rangle$ are (meta)stable while state $|P\rangle$ is short lived and decays radiatively into $|S\rangle$ and $|D\rangle$. This level configuration is realized, for instance, in alkali-like ions with a metastable d orbital, such as Hg^+ , Ba^+ , Sr^+ , or Ca^+ . In this Letter we focus on this last case where the levels can be identified with the states $|S\rangle = |S_{1/2}\rangle$, $|P\rangle = |P_{1/2}\rangle$, $|D\rangle = |D_{3/2}\rangle$, and $|Q\rangle = |D_{5/2}\rangle$. The dark line can be observed by collecting the photon signal on the $|S\rangle \rightarrow |P\rangle$ transition. Here, all the transitions are electric-dipole allowed except $|S_{1/2}\rangle \leftrightarrow |D_{5/2}\rangle$ (named $|S\rangle \leftrightarrow |Q\rangle$ in Fig. 1), which is an electric quadrupole transition with a linewidth of the order of 1 Hz. The magnetic-dipole transition $|D_{3/2}\rangle \leftrightarrow |D_{5/2}\rangle$ ($|D\rangle \leftrightarrow |Q\rangle$) considered as the frequency standard has a spontaneous

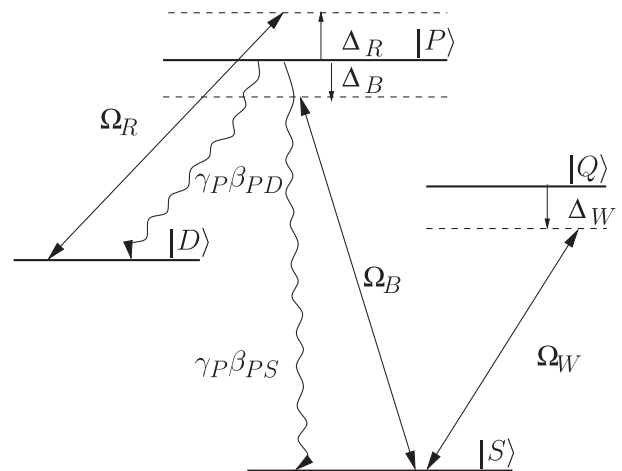


FIG. 1. N level scheme. The states $|D\rangle$, $|P\rangle$, $|S\rangle$ coupled by laser couplings Ω_R and Ω_B form a Λ configuration, state $|S\rangle$ couples weakly to the metastable state $|Q\rangle$ by Ω_W . The wavy lines indicate the radiative decay. Parameters and possible atomic species are discussed in the text.

emission rate of the order of 10^{-6} s^{-1} which can be neglected.

For our purpose, the evolution of the internal degrees of freedom of a motionless atom can be understood in the dressed state picture, where the noncoupled eigenstates are defined by

$$H_0 = \hbar\Delta_R|D\rangle\langle D| + \hbar\Delta_B|S\rangle\langle S| + \hbar(\Delta_B - \Delta_W)|Q\rangle\langle Q| \quad (1)$$

with detunings defined as $\Delta_B = \omega_B - \omega_{PS}$, $\Delta_R = \omega_R - \omega_{PD}$, and $\Delta_W = \omega_W - \omega_{QS}$ (B, R, W stand, respectively, for the $|S\rangle \leftrightarrow |P\rangle$, $|D\rangle \leftrightarrow |P\rangle$, and $|S\rangle \leftrightarrow |Q\rangle$ transitions, ω_X is the laser frequency on the transition labeled X and ω_{IJ} is the frequency of the atomic transition $|I\rangle \leftrightarrow |J\rangle$). $\Omega_{R,B,W}$ are the corresponding Rabi frequencies characterizing the laser couplings. The radiative processes taken into account couple $|P\rangle$ to states $|S\rangle$ and $|D\rangle$ by the decay rate γ_P and branching ratio β_{PS}/β_{PD} ($\beta_{PS} + \beta_{PD} = 1$). The radiative decay of states $|Q\rangle$ and $|D\rangle$, whose lifetime is of the order of 1 s, is neglected in the analytical model we present below. It should be noted that the dipole and the quadrupole couplings differ by a few orders of magnitude. Nevertheless, as the process described in this manuscript is of interest when state $|Q\rangle$ is weakly coupled to the Λ scheme ($|S\rangle, |P\rangle, |D\rangle$), coupled by the two strong lasers), it is thus experimentally feasible with standard laser sources.

Considering that $|Q\rangle$ is weakly coupled to $|S\rangle$, the subsystem ($|S\rangle, |Q\rangle$) can be diagonalized and solved analytically to first order in $\alpha_W = \Omega_W/2\Delta_W \ll 1$. The new eigenstates are then

$$|S_Q\rangle = \mathcal{N}(|S\rangle + \alpha_W|Q\rangle), \quad |Q_S\rangle = \mathcal{N}(|Q\rangle - \alpha_W|S\rangle) \quad (2)$$

(where \mathcal{N} is the normalization factor) with eigenfrequencies light shifted by $\pm\alpha_W\Omega_W/2$. $|Q_S\rangle$ being coupled to $|P\rangle$ by the Rabi frequency $-\alpha_W\Omega_B$, the dressed states configuration ends up in a Λ scheme (formed by $|Q_S\rangle, |P\rangle$, and $|D\rangle$); see Fig. 2, well known to give rise to coherent

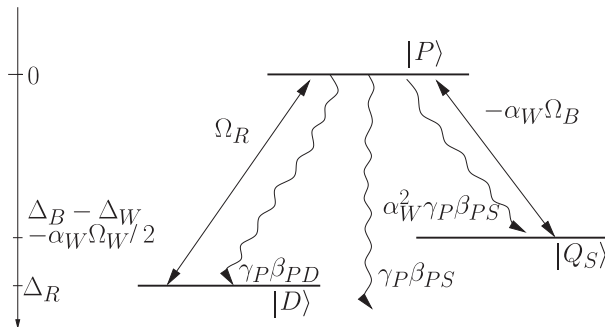


FIG. 2. Part of the dressed state picture relevant for the three-photon resonance condition, giving rise to the coherent dark state (see text for details).

population trapping into a dark state when the metastable states $|Q_S\rangle$ and $|D\rangle$ are degenerated when dressed by the laser photons [12]. This condition is fulfilled on the light-shifted three-photon resonance condition $\Delta_R + \Delta_W - \Delta_B + \alpha_W\Omega_W/2 = 0$. Detuned from the two-photon resonance condition (i.e., $\Delta_R - \Delta_B \neq 0$; see [4] for justification), the atomic system is then pumped into the dark state

$$|\Psi_{\text{dark}}\rangle = \mathcal{N}'(\mathcal{E}|D\rangle + |Q_S\rangle) \quad (3)$$

with $\mathcal{E} = \alpha_W\Omega_B/\Omega_R$ and normalization factor \mathcal{N}' .

The sharp line produced in the fluorescence spectra by pumping into the dark state can be used to assure $\Delta_R + \Delta_W - \Delta_B + \alpha_W\Omega_W/2 = 0$. Experimentally, this is realized by locking one of the three lasers on the dark line. For the following laser frequencies, it translates into

$$\omega_R + \omega_W - \omega_B = \omega_{QD} - \alpha_W\Omega_W/2. \quad (4)$$

Provided the light-shift $\alpha_W\Omega_W/2$ is made negligible or controlled, the frequency combination $\omega_R + \omega_W - \omega_B$ can be referenced to the magnetic-dipole transition frequency ω_{QD} which lies between 1.8 THz for Ca^+ and 451 THz for Hg^+ (see Table I).

The stability of the dark state requires the reduction of the relative phase diffusion of the three lasers to a diffusion rate smaller than the dark linewidth. This can be achieved by reducing the spectral width of each laser or, as a less stringent condition, by phase locking the three lasers on the same reference like a frequency comb [13]. The fundamental limit for the linewidth of the coherent dark line, defined by the lifetime of the metastable states, may not be reached, mainly because of power broadening, which is known to be one of the main limiting factors in two-photon CPT clock [14]. For evaluating the dark linewidth, the system can be approximated by the Λ scheme depicted in Fig. 2 where the decay from $|P\rangle$ to $|Q_S\rangle$ is $\alpha_W^2\gamma_P\beta_{PS}$. Because of spontaneous emission from $|P\rangle$ to $|S_Q\rangle$, the decoherence rate between $|P\rangle$ and $|Q_S\rangle$ or $|D\rangle$ is equal to $\gamma_P/2$. An analytical expression of the linewidth of the coherent dark line can be found in [15] for very general cases. Such an expression is simplified when, for $\alpha_W^2 \ll 1$ and $\alpha_W^2\Omega_B^2 \ll \Omega_R^2$, one has $\beta_{PD}\Omega_B^2 \gg \beta_{PS}\Omega_R^2$, which is obeyed for realistic working parameters. Then, if the decoherence sources like the laser relative phase diffusion are neglected, the dark linewidth (FWHM) can be approximated by

$$\Gamma_{\text{eff}} = \frac{\Omega_R^2}{\gamma_P\sqrt{1 + (3 - \gamma_\Lambda/\gamma_P)(\Omega_R^2/\gamma_P^2\beta_{PD})} + 4\Delta_R^2/\gamma_P^2} \quad (5)$$

with $\gamma_\Lambda = \gamma_P(\beta_{PD} + \alpha_W^2\beta_{PS})$. When collected on the $|P\rangle \rightarrow |S\rangle$ transition, the fluorescence rate emitted around the dark resonance scales with

TABLE I. Wavelengths involved in the three-photon process and frequency of the reference transition.

Ions	B	R	W	$D_{3/2} - D_{5/2}$
Ca ⁺	397 nm	866 nm	729 nm	1.82 THz
Sr ⁺	422 nm	1092 nm	674 nm	8.40 THz
Ba ⁺	493 nm	650 nm	1761 nm	24.0 THz
Hg ⁺	194 nm	10.67 μm	282 nm	451 THz

$$S = \gamma_P \frac{\Gamma_{\text{eff}}^2 \beta_{PS}}{\Omega_R^2 \beta_{PD}}. \quad (6)$$

According to these last two equations, the linewidth can be tuned continuously by Ω_R and, in practice, results from a trade-off between the desired signal over noise ratio $S/N = \sqrt{\eta S/2}$ (with η the detection efficiency, 1/2 for half-maximum and assuming no background) and signal linewidth $\Delta \geq \Gamma_{\text{eff}}$. Both parameters control the stability of the frequency standard, as can be clearly seen in the Allan deviation

$$\sigma_y(\tau) = \frac{\Delta}{\omega_{QD}(S/N)} \sqrt{\frac{T_c}{\tau}} \quad (7)$$

which quantifies the stability versus the integration time τ , T_c being the cycle time. Increasing the S/N ratio can be realized without power broadening the transition by increasing the number of ions. For ions in radio frequency (rf) trap, this option is rarely used because of the Doppler effect due to the micromotion (the rf driven motion), which increases with the number of ions [16,17]. In the case of a three-photon resonance, there is a (first order) Doppler-free configuration [5] which is defined by the phase matching condition

$$\Delta \mathbf{k} = \mathbf{k}_R - \mathbf{k}_B + \mathbf{k}_W = \mathbf{0}. \quad (8)$$

The driven micromotion cannot be laser cooled and its contribution to the second-order Doppler effect cannot be nulled. Assuming the thermal macromotion (motion in the pseudopotential created by the rf field) is laser cooled, the relative shift induced by second-order Doppler effect can be estimated [17] from the number N_i of trapped ions, their mass M in atomic units, and the secular frequency of oscillation ν_S (megahertz):

$$\Delta f_{D2}/f_0 = -3.0 \times 10^{-14} (\nu_S N_i / M)^{2/3}. \quad (9)$$

In a centimeter-size trap, where $N_i = 10^5$ and $\nu_S = 0.1$ MHz are typical values, this relative shift is -1.2×10^{-12} for calcium ions, the lightest of the species considered here. For this ion, the resulting frequency shift on the magnetic-dipole transition is then 2.2 Hz and a broadening of the same order is expected. Tolerating such a shift, the

S/N ratio behaves like $\sqrt{\eta N_i S/2}$, if one assumes that the signal increases linearly with the number of ions.

As a starting point and considering this broadening, let us assume a reachable precision of 10 Hz, then the dark line can be power broadened to that value for maximum signal. The expected stability can then be estimated by assuming a cycling time of 1 s (long enough for coherence to build) and a detection efficiency of 10^{-4} . We obtain $\sigma_y \approx 8 \times 10^{-14} \tau^{-1/2}$ for Ca⁺, $2 \times 10^{-14} \tau^{-1/2}$ for Sr⁺, $1 \times 10^{-14} \tau^{-1/2}$ for Ba⁺, and $4 \times 10^{-17} \tau^{-1/2}$ for Hg⁺ (where the transition stands in the optical domain). The terahertz radiation can be produced by photomixing the B radiation with the one resulting from the frequency sum of the R and W radiations. The generation of the terahertz signal from three visible laser beams allows propagation and dissemination of the frequency standard over long distances, despite the high absorption coefficient known for terahertz radiation in air or in fibers.

The accuracy of the proposed standard depends on all the effects that can induce a frequency shift of the dark line from the ideal equation $\omega_R + \omega_W - \omega_B = \omega_{QD}$. Beside the Doppler effect, the first effect to deal with is the one due to the method itself. The laser coupling between $|S\rangle$ and $|Q\rangle$, needed to create the Λ scheme generating the dark state, gives rise to a light-shift $\alpha_W \Omega_W/2$ [Eq. (4)]. Nevertheless, values as small as $\alpha_W < 10^{-4}$ and $\Omega_W < 10$ kHz are sufficient to efficiently create this coupling, and to keep the induced light shift smaller than 1 Hz, without any effect on the collected signal [see Eq. (6)]. By definition, the dark state is not light shifted by the direct coupling mentioned in Fig. 2 but by far off resonance coupling between one of the three lasers with the other two transitions [18]. According to the level configuration of the considered ions, the largest shift comes from the coupling between $|D_{5/2}\rangle$ and the $|P_{3/2}\rangle$ state lying close to $|P_{1/2}\rangle$, induced by the laser labeled R coupling $|D_{3/2}\rangle$ to $|P_{1/2}\rangle$. Among the considered ions, Ca⁺ has the smallest fine structure splitting and will therefore show the biggest shift, which is estimated to be lower than 0.1 Hz for Ω_R below 1 MHz.

The other effects limiting the accuracy and precision of a possible terahertz standard are the dc-Stark shift, the quadrupole shift caused by the coupling between the electric field gradient and the electronic quadrupole of the $|D_{3/2}\rangle$ and $|D_{5/2}\rangle$ states and the Zeeman shift. The dc-Stark effect depends on the polarizability of the $|D_{3/2}\rangle$ and $|D_{5/2}\rangle$ states. As mentioned in [19] for Ca⁺ and in [20] for Sr⁺, there is an uncertainty on these polarizabilities for some species. Nevertheless, from available atomic transition data, one can deduce a compensation between the polarizabilities of these two states which bring the absolute value of the order of few 10^{-40} J/(V/m)² to a differential value of the order of few 10^{-42} J/(V/m)², which translates into $|\delta f_S| \approx 10^{-5} E^2$ Hz with E in volts per centimeter. At room temperature, the biggest contribution comes from the isotropic blackbody field radiated by the vessel.

This field can be taken into account by its mean-squared value averaged over the whole spectrum: $\langle E_{BB}^2 \rangle = 831.9^2(T/300)^4$ (V/m)² [21], which results in a dc-Stark shift below 0.01 Hz.

The quadrupole shift can be written like [22]

$$\Delta f_Q(n, J, m_J) = \frac{J(J+1) - 3m_J^2}{J(2J-1)} \Theta(n, J) A \Pi / h \quad (10)$$

with $\Theta(n, J)$ the electric quadrupole of state $|n, J\rangle$, $A = (\partial^2 V / 2 \partial x^2)$ defining the local electric field gradient, and Π a geometrical factor depending on the shape and orientation of the electric field ($\Pi = 2$ if the field is quadrupolar with its symmetry axis along the quantization axis). If one assumes that the $|n, D_J\rangle$ states are pure d orbitals, the quadrupole varies like $(2J-1)/(2J+2)$ and $\Theta(n, 3/2) = (7/10)\Theta(n, 5/2)$. Calculations for all the ions mentioned and for $J = 3/2, 5/2$ [23] show that the quadrupole $\Theta(n, J)$ rank from 0.5 to $4ea_0^2$. For the states with the smallest Zeeman shift ($m_J = \pm 1/2$), the frequency shift for one ion is $\delta f_Q = (11/40)\Theta(n, 5/2)A\Pi/h$. If the highest value for $\Theta(n, 5/2)$ is used, δf_Q reaches 1 Hz for $A\Pi = 150$ V/cm². This value is the order of magnitude of the gradient of the trapping field and of the Coulomb field in the considered regime and the quadrupole shift cannot be neglected here.

As for the Zeeman effect, a small magnetic field B is needed to split the Zeeman sublevels chosen for the transition $|D_{3/2}, m_J^{3/2}\rangle \rightarrow |D_{5/2}, m_J^{5/2}\rangle$. The first-order Zeeman shift is minimal for the $m_J^{3/2} = \pm 1/2 \rightarrow m_J^{5/2} = \pm 1/2$ transition, and is then equal to ± 0.28 MHz/G. A 2 mG field is then necessary to split these two transitions by 1 kHz. The Zeeman shift can be nulled by adding the frequency of these two transitions, assuming that the magnetic field is constant. The second-order Zeeman effect is negligible here. In the regime chosen for our estimation ($N_i = 10^5$ and $\nu_S = 0.1$ MHz) and for perfect compensation of first-order Zeeman shift at the hertz level, the magnetic field must be stable and homogenous on a millimeter size to better than 3.6 μ G. Such a stability requires magnetic shielding but is experimentally feasible.

From this overview of the systematic shifts expected for an ion cloud, it appears that the important effects for the magnetic-dipole transition come from the second-order Doppler shift, the quadrupole shift, and the Zeeman shift, which limit the precision of the proposed terahertz standard to the hertz level, depending on the size of this cloud.

In conclusion, we show that a terahertz frequency standard can be realized from three-photon CPT in trapped ion clouds. A stability in the $10^{-14}\tau^{-1/2}$ range can be expected, depending on the chosen species. Such a level of stability is reached to the detriment of precision which is mainly reduced by power broadening, and to a smaller extent by second-order Doppler effect, quadrupole shift, and first-order Zeeman shift.

The authors would like to thank P. Dubé for his comments on the manuscript.

*caroline.champenois@univ-provence.fr

- [1] K. Kawase, Opt. Photonics News **15**, No. 10, 34 (2004).
- [2] W. H. Oskay *et al.*, Phys. Rev. Lett. **97**, 020801 (2006).
- [3] M. M. Boyd, A. D. Ludlow, S. Blatt, S. M. Foreman, T. Ido, T. Zelevinsky, and J. Ye, Phys. Rev. Lett. **98**, 083002 (2007).
- [4] C. Champenois, G. Morigi, and J. Eschner, Phys. Rev. A **74**, 053404 (2006).
- [5] G. Grynberg, F. Biraben, M. Bassini, and B. Cagnac, Phys. Rev. Lett. **37**, 283 (1976).
- [6] G. Werth, in *Possible Precision Far-Infrared Spectroscopy on Trapped Ions*, Proceedings of the "Applied Laser Spectroscopy" Summer School, San Miniato, 1989, edited by W. Demtroeder and M. Inguscio (Plenum, New York, 1990).
- [7] A. A. Madej, J. D. Sankey, G. R. Hanes, K. J. Siemsen, and A. R. W. McKellar, Phys. Rev. A **45**, 1742 (1992).
- [8] K. J. Siemsen, A. A. Madej, J. D. Sankey, B. G. Whitford, R. F. Clark, and G. Magerl, in *Proceeding of the IEEE 46th Frequency Control Symposium* (IEEE, New York, 1992), p. 76.
- [9] T. Zanon, S. Guerandel, E. de Clercq, D. Holleville, N. Dimarcq, and A. Clairon, Phys. Rev. Lett. **94**, 193002 (2005).
- [10] R. Santra, E. Arimondo, T. Ido, C. Greene, and J. Ye, Phys. Rev. Lett. **94**, 173002 (2005).
- [11] T. Hong, C. Cramer, W. Nagourney, and E. N. Fortson, Phys. Rev. Lett. **94**, 050801 (2005).
- [12] E. Arimondo, in *Progress in Optics*, edited by E. Wolf (Elsevier Science, New York, 1996), Vol. XXXV, Chap. V, p. 258.
- [13] T. Udem, J. Reichert, R. Holzwarth, and T. W. Hänsch, Opt. Lett. **24**, 881 (1999).
- [14] S. Knappe, P. Schwindt, V. Shah, L. Hollberg, and J. Kitching, Opt. Express **13**, 1249 (2005).
- [15] T. Zanon-Willette, Ph.D. thesis, Université Paris VI, 2005.
- [16] H. Dehmelt, Adv. At. Mol. Phys. **5**, 109 (1969).
- [17] D. Wineland, W. Itano, J. Bergquist, J. Bollinger, F. Diedrich, and S. Gilbert, in *Proceedings of the 4th Symposium on Frequency Standard and Metrology, Ancona, Italy*, edited by A. Demarchi (Springer-Verlag, Berlin, 1988), p. 71.
- [18] T. Zanon-Willette, A. D. Ludlow, S. Blatt, M. M. Boyd, E. Arimondo, and J. Ye, Phys. Rev. Lett. **97**, 233001 (2006).
- [19] C. Champenois, M. Houssin, C. Lisowski, M. Knoop, M. Vedel, and F. Vedel, Phys. Lett. A **331**, 298 (2004).
- [20] A. A. Madej, J. E. Bernard, P. Dubé, L. Marmet, and R. S. Windeler, Phys. Rev. A **70**, 012507 (2004).
- [21] W. Itano, I. Lewis, and D. Wineland, Phys. Rev. A **25**, 1233 (1982).
- [22] W. Itano, J. Res. Natl. Inst. Stand. Technol. **105**, 829 (2000).
- [23] W. M. Itano, Phys. Rev. A **73**, 022510 (2006).

III.2.2 Piégeage cohérent de population à trois photons

L'article reproduit ici présente en détail le formalisme esquissé plus haut mais aussi le cas particulier de résonance à trois photons que je résume par 2+1: les désaccords obéissent alors à

$$\begin{aligned}\Delta_B - \Delta_R &= 0, \\ \Delta_C &= 0\end{aligned}\tag{III.11}$$

simultanément. Le temps typique d'évolution sur la transition d'horloge est plus long que celui sur les transitions bleue et rouge de plusieurs ordres de grandeur. Le système {atome+photons} atteint donc l'état non couplé à deux photons décrit par l'Eq. (III.2) avant que le couplage faible avec le niveau d'horloge $|Q\rangle$ ne perturbe le système. On assiste ensuite à des oscillations de Rabi entre l'état non-couplé à deux photons et l'état $|Q\rangle$, amorties par un faible couplage avec l'état couplé (voir Eq. III.3). L'état stationnaire est donc une combinaison non cohérente de probabilité moitié sur l'état $|Q\rangle$ et moitié sur l'état $|\psi_{NC}\rangle$, qui lui est une combinaison cohérente des états $|S\rangle$ et $|D\rangle$. Contrairement à la résonance à trois photons, ce cas particulier 2+1 subit l'effet Doppler de la même façon que la résonance simple à deux photons et les longueurs d'onde des transitions de l'ion calcium ne permettent pas d'annuler cet effet. C'est la méthode du développement en série de Floquet, introduite en II.2.2, qui est utilisée ici pour estimer numériquement l'influence de l'effet Doppler d'un ion sur ces deux types de résonances (trois et 2+1), dans le cas d'un mouvement purement oscillant et dans le régime de Lamb-Dicke. Bien que ce domaine de validité soit restreint, cette méthode permet de rendre compte des particularités de l'effet Doppler dans le cas des résonances qui nous intéressent ici par une méthode numérique relativement simple à implémenter dans un programme de résolution des équations de Bloch optiques (EBO). Ceci est très pertinent si on envisage à partir de ce CPT des méthodes d'intrication entre degrés internes et externes de liberté.

PHYSICAL REVIEW A **74**, 053404 (2006)**Quantum coherence and population trapping in three-photon processes**

Caroline Champenois*

*Physique des Interactions Ioniques et Moléculaires (CNRS UMR 6633), Université de Provence,
Centre de Saint Jérôme, Case C21, 13397 Marseille Cedex 20, France*

Giovanna Morigi

Grup d'Optica, Departament de Fisica, Universitat Autònoma de Barcelona, 08193 Bellaterra, Spain

Jürgen Eschner

*ICFO—Institut de Ciències Fotòniques, Mediterranean Technology Park, 08860 Castelldefels, Barcelona, Spain
(Received 30 July 2006; published 3 November 2006)*

The spectroscopic properties of a single tightly trapped atom are studied, when the electronic levels are coupled by three laser fields in an N -shaped configuration of levels, whereby a Λ -type level system is weakly coupled to a metastable state. We show that depending on the laser frequencies the response can be tuned from coherent population trapping at two-photon resonance to a behavior at three photon resonance, where the metastable state can get almost unit occupation in a wide range of parameters. For certain parameter regimes the system switches spontaneously between dissipative and coherent dynamics over long time scales.

DOI: [10.1103/PhysRevA.74.053404](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.74.053404)

PACS number(s): 32.80.Pj, 42.50.Gy, 42.50.Lc.

I. INTRODUCTION

Atomic coherence has been demonstrated to be an efficient tool for achieving control of the interaction between electromagnetic fields and an atomic sample. It is at the basis, for instance, of the realization of quantum nonlinear optical devices [1–3], quantum phase gates [4–6], atomic transistors [7], and high-precision measurement techniques [8].

A paradigmatic system exhibiting atomic coherence effects is the so-called Λ configuration of atomic levels, where two (meta)stable states are coupled by two light fields to the same excited state. When the coupling happens at two-photon resonance, the system exhibits coherent population trapping, by forming an atomic coherence between the two stable states which decouples from the radiation [9]. More complex configurations of levels offer richer dynamics, whose understanding is relevant for applications of coherent control of complex systems [10–12]. The interpretation of their dynamics is often nontrivial, yet in some parameter regimes analogies may be found with simpler level systems which are better understood. This usually helps developing tools for controlling and manipulating the quantum dynamics of the more complex system through external parameters [10,13,14].

In this work we study how the dynamics of a Λ system is modified by an additional coupling of one of the stable states to a fourth, metastable state, as depicted in Fig. 1. Due to its shape, we denote this configuration as N -level scheme. We show that even weak coupling to the fourth level gives rise to strong modification of the dynamics whenever the three-photon resonance condition between the outer levels is fulfilled. In particular, in certain parameter regimes the fourth state exhibits quasi-unit occupation probability; in other situations the behavior switches from dissipative transient to coherent asymptotic dynamics.

Our analysis applies to alkalilike atomic species, as well as to some alkaline-earth elements. We consider in particular the case of a single $^{40}\text{Ca}^+$ ion in a radiofrequency trap. For this system we also study the effect of the oscillatory motion on the dynamical behavior.

N -level schemes have been extensively studied in Refs. [15–17] in the framework of electromagnetically induced absorption [18]. A peculiar difference of those systems with the scheme we investigate here is the stability of the fourth level, which critically affects the response of the system. As a result, the narrow lines at three-photon resonance, which we report in this manuscript, cannot be explained in terms of transfer of coherence [15,16], but are instead intimately related to coherent population trapping, as we will argue. Coherent population trapping and dark resonances have been discussed in Refs. [19,20] for a configuration similar to the one we discuss here, with the important difference that in Refs. [19,20] the unstable state can decay in all three stable states. In this latter system, Doppler-free-like absorption resonances [21] and three-photon electromagnetically induced transparency (EIT) [22] have been observed. We will comment on how our model system reproduces and differs from these studies. Finally, three-photon resonances have been studied in connection with metrology [23,24]. Indeed, the type of system we consider is encountered in atomic clocks, where transition $|S\rangle \rightarrow |Q\rangle$ is the clock transition of, say, a $^{40}\text{Ca}^+$ ion or a ^{87}Sr atom, and the dynamics we predict may have applications for high-precision optical clocks. In this context, we also study how the oscillatory motion inside an ion trap modifies the spectroscopic signals.

This article is organized as follows. In Sec. II the theoretical model is introduced, in Sec. III the theoretical analysis and predictions are reported, and in Sec. IV we extend it when the oscillatory motion of a trapped atom is considered. In Sec. V discussions and conclusions are reported, and in the appendix the model at the basis of calculations in Sec. IV is described.

*Electronic address: caroline.champenois@up.univ-mrs.fr

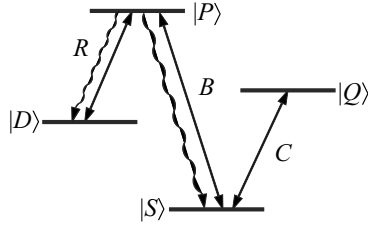


FIG. 1. N Level scheme. The states $|D\rangle$, $|P\rangle$, $|S\rangle$ form a Λ configuration; additionally, state $|S\rangle$ couples weakly to the metastable state $|Q\rangle$. The solid lines and letters R, B, C indicate the laser couplings, the wavy lines the radiative decay channels. Parameters and possible atomic species are discussed in the text.

II. THEORETICAL MODEL

The atomic system we consider is composed by four electronic levels which are coupled by laser fields, according to the N -shaped scheme depicted in Fig. 1. Here, states $|S\rangle$, $|D\rangle$, and $|Q\rangle$ are (meta)stable, state $|P\rangle$ is unstable and decays radiatively into $|S\rangle$ and $|D\rangle$. This configuration of levels is realized, for instance, in alkaline-earth atoms with hyperfine structure and in alkalilike ions with a metastable d orbital, such as Hg^+ , Ba^+ , Sr^+ , or Ca^+ . In this manuscript we make reference to the typical parameters of a $^{40}\text{Ca}^+$ ion. In this case, the relevant levels can be identified with the states $|S\rangle = |S_{1/2}\rangle$, $|P\rangle = |P_{1/2}\rangle$, $|D\rangle = |D_{3/2}\rangle$, and $|Q\rangle = |D_{5/2}\rangle$. Here, the transition $|S\rangle \rightarrow |Q\rangle$, marked by C in Fig. 1, is an electric quadrupole transition with a linewidth of the order of 0.1 Hz, while $|S\rangle$ and $|D\rangle$ couple to the excited state $|P\rangle$ with electric dipole transitions (marked by B and R , respectively). We denote by ω_{ij} ($i, j = S, P, D, Q$) the resonance frequencies of the transitions. Transitions $|S\rangle \rightarrow |P\rangle$ and $|D\rangle \rightarrow |P\rangle$ are coupled by lasers at frequency ω_B and ω_R and Rabi frequencies Ω_B and Ω_R , respectively. These three states form a Λ -configuration of levels. Transition $|S\rangle \rightarrow |Q\rangle$ is driven by a laser at frequency ω_C and Rabi frequency Ω_C .

We denote by ρ the density matrix for the ion's internal degrees of freedom, while we treat the center of mass variables classically. We denote by $x(t)$ the time-dependent position of the atom. The master equation for the density matrix ρ is

$$\frac{\partial}{\partial t} \rho = -\frac{i}{\hbar} [H, \rho] + \mathcal{L}\rho, \quad (1)$$

where Hamiltonian H gives the coherent dynamics and is decomposed into the terms

$$H = H_0 + H_I,$$

where

$$H_0 = -\hbar\Delta_B|P\rangle\langle P| - \hbar\Delta_C|Q\rangle\langle Q| + \hbar(\Delta_R - \Delta_B)|D\rangle\langle D| \quad (2)$$

gives the internal energies in the reference frames of the lasers, with detunings defined as $\Delta_B = \omega_B - \omega_{PS}$, $\Delta_R = \omega_R - \omega_{PD}$, and $\Delta_C = \omega_C - \omega_{QS}$, while

$$H_I = \frac{\hbar\Omega_B}{2} e^{ik_B x(t)} |P\rangle\langle S| + \frac{\hbar\Omega_R}{2} e^{ik_R x(t)} |P\rangle\langle D| + \frac{\hbar\Omega_C}{2} e^{ik_C x(t)} |Q\rangle\langle S| + \text{H.c.} \quad (3)$$

gives the laser coupling, where Ω_j denote the Rabi frequencies and k_j the corresponding laser wave vectors ($j = B, R, C$). The relaxation operator

$$\begin{aligned} \mathcal{L}\rho = & -\frac{1}{2} \gamma_P (\rho|P\rangle\langle P| + |P\rangle\langle P|\rho) + \beta_{PS} \gamma_P |S\rangle\langle P|\rho|P\rangle\langle S| \\ & + \beta_{PD} \gamma_P |D\rangle\langle P|\rho|P\rangle\langle D| \end{aligned} \quad (4)$$

describes the radiative processes, coupling $|P\rangle$ to states $|S\rangle$ and $|D\rangle$, with decay rate $\gamma_P \approx 20$ MHz and branching ratio $\beta_{PS}/\beta_{PD} \approx 15$ for Ca^+ and $\beta_{PS} + \beta_{PD} = 1$.

The radiative decay of state $|Q\rangle$, whose lifetime is about 1 s for Ca^+ , will be neglected in the analytical model we present below, but it is taken into account in the numerical calculations. It should also be noted that there is a large difference, by some orders of magnitude, between the dipole and the quadrupole couplings. In this manuscript we will focus on situations in which state $|Q\rangle$ is weakly coupled to the Λ scheme, and which are thus experimentally feasible with standard laser sources. Finally, we will make reference to the dynamics of a *single* ion, as it can be realized in radio-frequency traps, and we will characterize its response by means of the occupation probabilities of the atomic levels, which can be monitored by resonance fluorescence or electron shelving techniques [25]. We will also take into account the ion's oscillatory motion in the trap.

III. INTERNAL DYNAMICS OF A LOCALIZED PARTICLE

In this section we focus on the solutions of Eq. (1) when the motion of the particle can be neglected, i.e., for steep traps and efficient cooling, such that the amplitude of its residual oscillations is much smaller than the laser wavelength. We study the dynamics with simple analytical models and compare their predictions with the results obtained from numerically solving the optical Bloch equations, derived from Eq. (1). We analyze the steady state and the time evolution under two particular conditions (i) the three-photon resonance case

$$\Delta_B - \Delta_R - \Delta_C = 0 \text{ and } \Delta_C \neq 0 \quad (5)$$

in which states $|D\rangle$ and $|Q\rangle$ are resonantly coupled by three-photon processes and (ii) the (2+1)-photon resonance case

$$\Delta_R - \Delta_B = 0 \text{ and } \Delta_C = 0 \quad (6)$$

in which states $|S\rangle$ and $|D\rangle$ are coupled resonantly by a two-photon transition while $|S\rangle$ and $|Q\rangle$ are coupled resonantly by a one-photon process.

The major difference between the two cases is that when the (2+1)-photon resonance condition (ii) is fulfilled, the steady state response of the Λ -system alone would be characterized by a dark resonance, or coherent population trapping, resulting from the destructive interference between the

two excitation paths $|S\rangle \rightarrow |P\rangle$ and $|D\rangle \rightarrow |P\rangle$ [9]. This has profound consequences also for the four-level dynamics, as will be shown below.

A. Dressed states analysis

In order to get some insight, we evaluate the dressed states of the system in the two limiting cases. We first focus on the three-photon resonance, condition (5), in the situation when the coupling between states $|Q\rangle$ and $|S\rangle$ can be treated perturbatively. We hence assume $\Delta_C \neq 0$ and $\Omega_C \ll |\Delta_C|$. The coupling between $|Q\rangle$ and $|S\rangle$ is in first order in the perturbation parameter $\alpha_C = \Omega_C/2\Delta_C$, and corrections to the states $|Q\rangle$ and $|S\rangle$ are at second order in α_C , according to

$$|S_Q\rangle = \mathcal{N}(|S\rangle + \alpha_C|Q\rangle), \quad (7)$$

$$|Q_S\rangle = \mathcal{N}(|Q\rangle - \alpha_C|S\rangle), \quad (8)$$

where \mathcal{N} gives the correct normalization. The eigenfrequencies for these two states are $\alpha_C\Omega_C/2$ and $-\Delta_C - \alpha_C\Omega_C/2$, as displayed in Fig. 2(a). Here, $|D\rangle$ and $|Q_S\rangle$ are resonantly coupled by an effective two-photon process, and the system can be pumped into the eigenstate

$$|\Psi_{NC}\rangle = \mathcal{N}'(\mathcal{E}|D\rangle + |Q_S\rangle) \quad (9)$$

with

$$\mathcal{E} = \frac{\Omega_B}{\Omega_R} \alpha_C$$

and normalization factor \mathcal{N}' . This state is stable at second order in α_C , it has the property of a dark state which is occupied asymptotically, thus signalling coherent population trapping [9]. According to this description, the corresponding electronic occupations at steady state $\mathcal{P}_j^{(NC)} = |\langle j|\Psi_{NC}\rangle|^2$ ($j = Q, D, S, P$), are

$$\mathcal{P}_Q^{(NC)} = \frac{1}{1 + \alpha_C^2 + \mathcal{E}^2} + \mathcal{O}(\alpha_C^4, \mathcal{E}^4), \quad (10)$$

$$\mathcal{P}_D^{(NC)} = \frac{\mathcal{E}^2}{1 + \mathcal{E}^2} + \mathcal{O}(\alpha_C^4, \mathcal{E}^4), \quad (11)$$

$$\mathcal{P}_S^{(NC)} = \frac{\alpha_C^2}{1 + \alpha_C^2 + \mathcal{E}^2} + \mathcal{O}(\alpha_C^4, \mathcal{E}^4), \quad (12)$$

while $\mathcal{P}_P^{(NC)} = \mathcal{O}(\alpha_C^4)$. Hence, the parameter \mathcal{E} , or more precisely the ratio Ω_B/Ω_R compared to $1/\alpha_C$, determines the distribution of population between states $|Q\rangle$ and $|D\rangle$. A typical experimental situation is that Ω_B and Ω_R are similar, such that we concentrate on the case $\Omega_B/\Omega_R \ll 1/\alpha_C$, i.e., $\mathcal{E} \ll 1$, and we see that the atom will occupy $|Q\rangle$ with almost unit probability. In this regime, the linewidth of state $|Q\rangle$ is due to higher-order coupling in α_C to state $|P\rangle$, and scales with $(\alpha_C^2\Omega_B/\Omega_R)^2$.

We now consider the case in which the 2+1-photon resonance condition (6) is fulfilled. We still restrict the discussion to the regime in which Ω_C is weak compared to all other

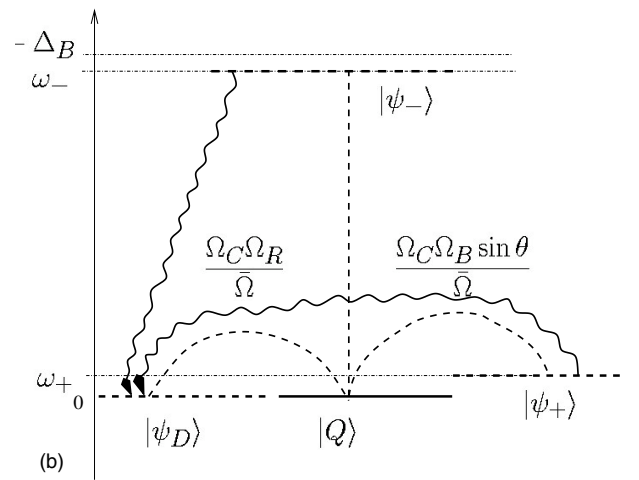
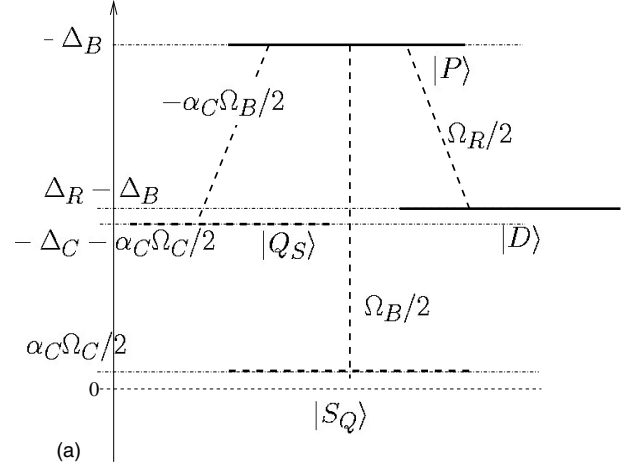


FIG. 2. Dressed states picture for (a) the three-photon resonance case and (b) the (2+1)-photon resonance case. See text for parameters and definitions.

coupling terms. In this case it is convenient to consider the eigenstates of the Λ system formed by $\{|S\rangle, |P\rangle, |D\rangle\}$,

$$|\psi_D\rangle = (\Omega_R|S\rangle - \Omega_B|D\rangle)/\bar{\Omega},$$

$$|\psi_+\rangle = \cos\theta|P\rangle + \sin\theta(\Omega_B|S\rangle + \Omega_R|D\rangle)/\bar{\Omega},$$

$$|\psi_-\rangle = -\sin\theta|P\rangle + \cos\theta(\Omega_B|S\rangle + \Omega_R|D\rangle)/\bar{\Omega}$$

with $\bar{\Omega} = \sqrt{\Omega_R^2 + \Omega_B^2}$ and $\tan\theta = (\Delta_B + \sqrt{\Delta_B^2 + \bar{\Omega}^2})/\bar{\Omega}$ with $0 \leq \theta < \pi/2$. The dressed states of the diagonalized Λ system are at frequencies

$$\omega_D = 0$$

and

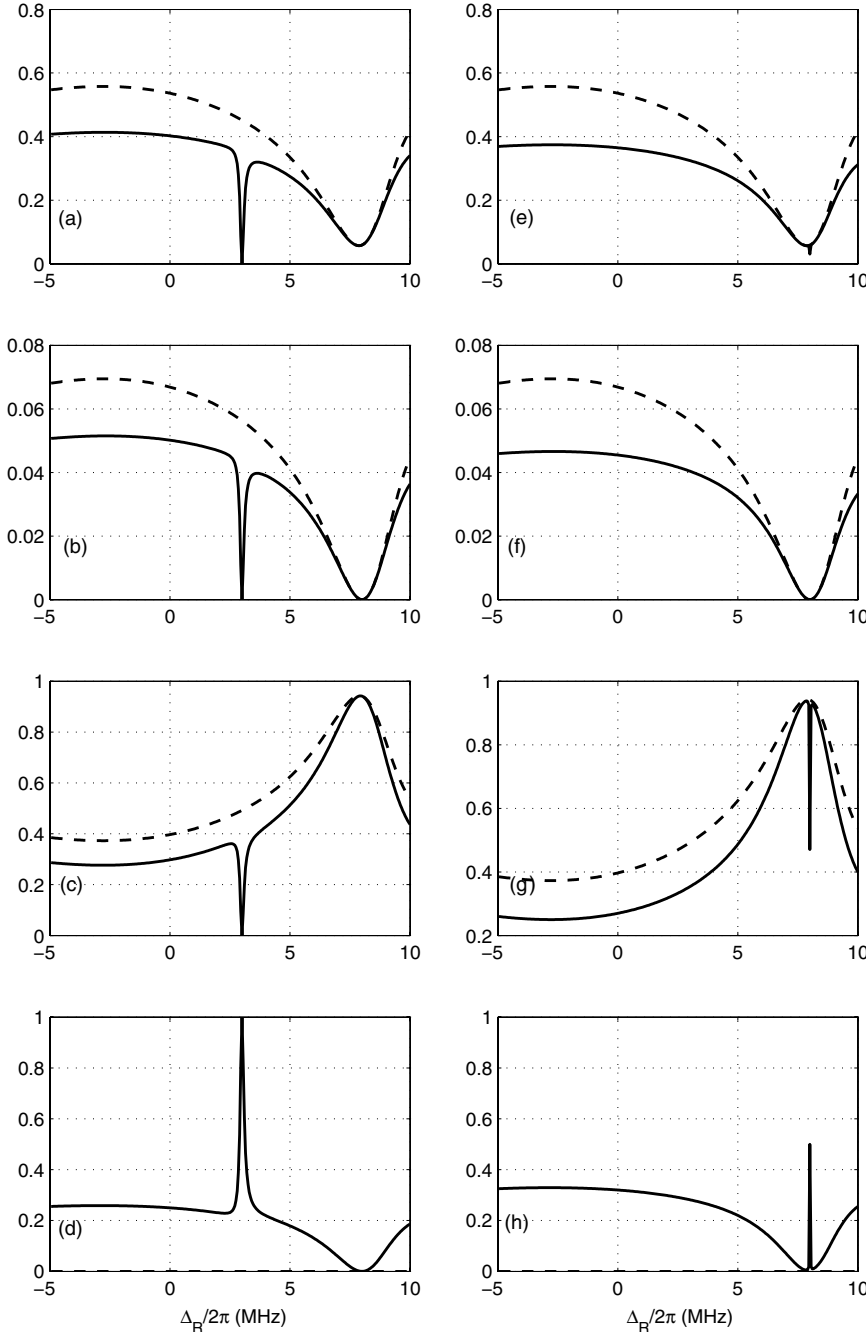


FIG. 3. Steady state populations \mathcal{P}_j as a function of the detuning $\Delta_R/2\pi$. Displayed are \mathcal{P}_S , \mathcal{P}_P , \mathcal{P}_D , and \mathcal{P}_Q , from top to bottom. The parameters are $\Delta_B=2\pi \times 8$ MHz, $\Omega_C=2\pi \times 0.05$ MHz, $\Omega_B=2\pi \times 10$ MHz, and $\Omega_R=2\pi \times 2.5$ MHz. In (a)–(d) $\Delta_C=2\pi \times 5$ MHz, such that the three-photon resonance is fulfilled at $\Delta_R=2\pi \times 3$ MHz; in (e)–(g) $\Delta_C=0$, such that the (2+1)-photon resonance is found at $\Delta_R=2\pi \times 8$ MHz. The dashed lines give the steady state populations for the same parameters but no coupling to $|Q\rangle$ ($\Omega_C=0$).

$$\omega_{\pm} = -\frac{1}{2}(\Delta_B \mp \sqrt{\Delta_B^2 + \bar{\Omega}^2}).$$

The level scheme in this basis is sketched in Fig. 2(b). Here, $|\psi_D\rangle$ is the dark state of the Λ system [9]. At (2+1)-photon resonance, state $|Q\rangle$ is resonantly coupled to the dark state $|\psi_D\rangle$ at rate $\tilde{\Omega}_C = \Omega_C \Omega_R / \bar{\Omega}$, and for sufficiently weak coupling, $\Omega_C \ll |\omega_{\pm}|$, there will be a time scale on which the dynamics of the system can be reduced to resonant two-level dynamics between these two states. For longer times, off-resonant coupling between $|Q\rangle$ and $|\omega_{\pm}\rangle$ gives rise to damp-

ing, and the system approaches the steady state at a rate which scales with the ratio $\Omega_B^2 / \bar{\Omega}^2$. This damping gives rise also to the small residual linewidth of the (2+1)-photon resonance in the spectra shown in the next section.

B. Steady state

In order to illustrate the spectroscopic significance of the dressed states, we now discuss the steady-state populations \mathcal{P}_j of the electronic levels ($j=S, P, D, Q$) as a function of Δ_R , for the two cases $\Delta_C \neq 0$ and $\Delta_C = 0$, see Fig. 3. For highlighting the peculiarities of the four-level dynamics, we compare

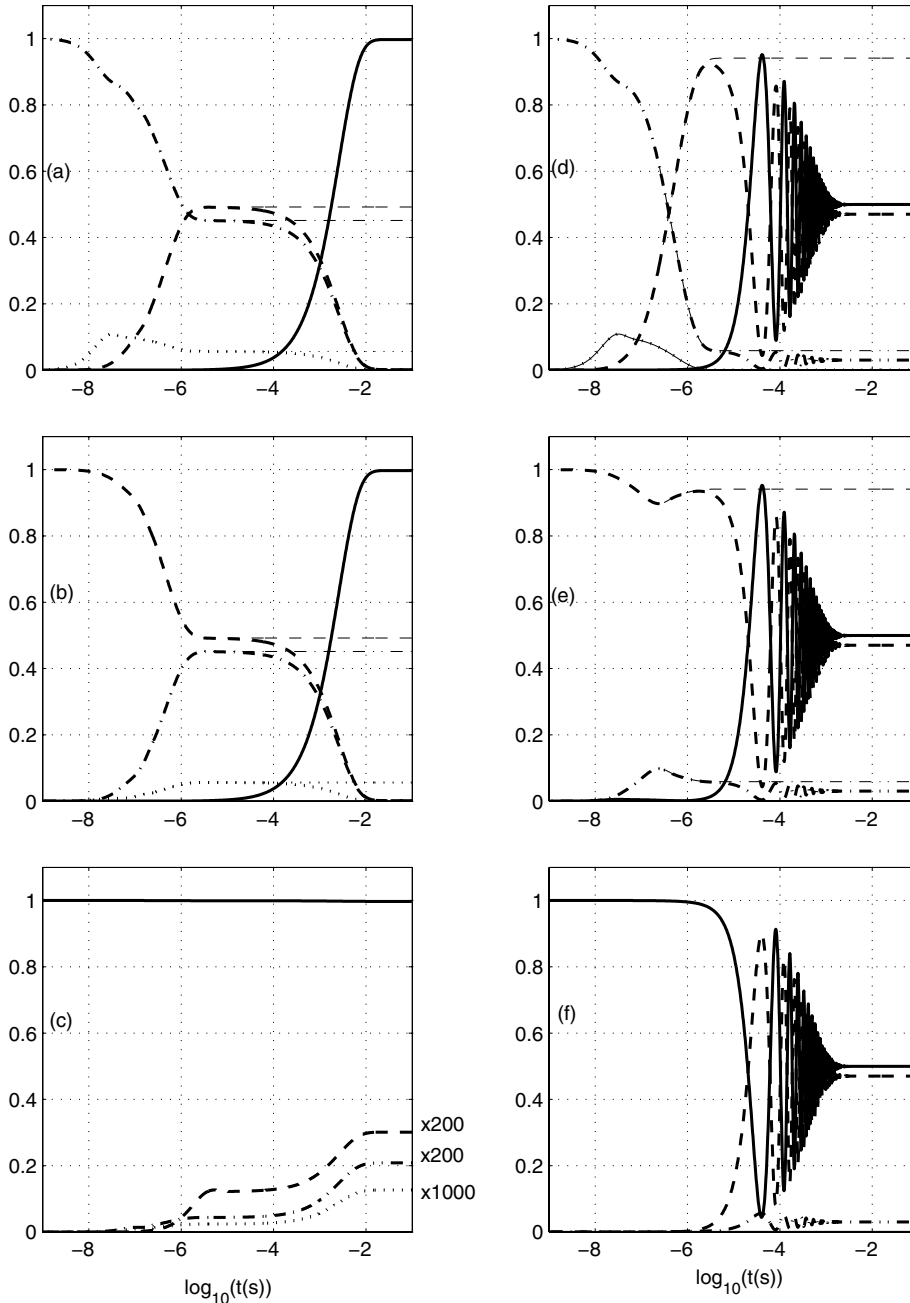


FIG. 4. Time evolution of the atomic level populations at three- (left) and (2+1)-photon resonance (right), for different initial states. The lines correspond to the $|Q\rangle$ state (solid), $|D\rangle$ state (dashed), $|S\rangle$ state (dash-dotted), and $|P\rangle$ state (dotted). The initial state is $|S\rangle$ in (a), (d), $|D\rangle$ in (b), (e), and $|Q\rangle$, in (c), (f). Parameters in (a)–(c) are the same as in Figs. 3(a)–3(d), and in (d)–(f) the same as in Figs. 3(e)–3(h). The thinner curves give the result in absence of coupling to state $|Q\rangle$ ($\Omega_C=0$), plotted on a logarithmic time scale.

them to the behavior of the unperturbed Λ system ($\Omega_C=0$), whose stationary level occupations are indicated by the dashed curves; they exhibit the dark resonance at $\Delta_R=\Delta_B$, corresponding to suppressed population of $|P\rangle$. The effect of the weak coupling to state $|Q\rangle$ is represented by the solid curves.

Figures 3(a)–3(d) display the case $\Delta_C \neq 0$. One observes that coupling to $|Q\rangle$ does not change the behavior around the dark resonance, but it induces a critical change when Δ_R is at three-photon resonance: at this value all population is transferred to state $|Q\rangle$, Fig. 3(d), while all other states are correspondingly emptied. The width of this resonance is controlled by the ratio Ω_R/Ω_B , as discussed in the previous

section. With the parameters chosen in Fig. 3 ($\Omega_R/\Omega_B=0.25$), the resonance is narrow but it can be made broader by increasing this ratio. In general, occupation of state $|Q\rangle$ at three-photon resonance is controlled by the parameter \mathcal{E} , as has been pointed out in the dressed state picture in Sec. III A. The important finding in this context is that in the regime $\mathcal{E} \ll 1$, \mathcal{P}_Q is very close to unity, independent of the value of Ω_C . This is only limited for very small values of the coupling by the decay of level $|Q\rangle$. In practical terms, this allows for robust preparation of the atom in $|Q\rangle$, by tuning the lasers to the three-photon resonance.

Figures 3(e)–3(h) display the stationary populations as a function of Δ_R when $\Delta_C=0$. At (2+1)-photon resonance, the

coupling to $|Q\rangle$ gives rise to a transfer of 50% of the atomic population from the dark state of the Λ system to $|Q\rangle$. In contrast to the case of $\Delta_C \neq 0$, this is indeed the maximum occupation that $|Q\rangle$ can achieve for $\Delta_C=0$. This is understood considering the dressed state picture in Sec. III A: for $\Delta_C=0$ dark state $|\psi_D\rangle$ and $|Q\rangle$ form a resonantly coupled two-level system, where damping is weak and arises only from off-resonant coupling. Hence, at steady state the populations of the two states are the stationary populations of a saturated dipole.

The two examples reported here show that a weak coupling to a fourth state which is metastable can change dramatically the response of a Λ system when the detunings fulfill, or are around, the three-photon resonance condition. Three-photon processes were previously studied in Refs. [19,20] in an atomic model system where decay of state $|P\rangle$ into $|Q\rangle$ is allowed. This constitutes a major difference to the dynamics discussed here: in the model of Refs. [19,20] one does not observe the narrow three-photon resonance for weak coupling Ω_C , as population is optically pumped into $|Q\rangle$ for a wide range of values of Δ_R .

C. Time evolution at three-photon resonance

Let us now consider how the atomic level occupation evolves as a function of time. Figures 4(a)–4(c) display the time evolution for different initial conditions when the atom is driven at three-photon resonance and when $|\Delta_C| \gg \Omega_C$, i.e., under conditions for which the atom is found in $|Q\rangle$ at steady state. The thinner curves are plotted for comparison and indicate the corresponding three-level dynamics, evaluated by setting $\Omega_C=0$. When the initial state is $|S\rangle$ or $|D\rangle$ [Figs. 4(a) and 4(b)], one can identify a clear hierarchy of couplings: on a short time scale, within about $1 \mu\text{s}$ for the chosen parameters, the system evolves to the steady state of the Λ configuration. On a longer time scale ($\sim 1 \text{ ms}$), population is transferred to state $|Q\rangle$ through its coupling to the Λ scheme. When the system has been prepared in state $|Q\rangle$ [Fig. 4(c)], it essentially remains in that state during all time, apart from a small redistribution of population from $|Q\rangle$ to $|D\rangle$ on the slow time scale.

Such a dynamical behavior indicates the appearance of quantum jumps [26–28], i.e., of randomly alternating phases of full and no fluorescence: after the emission of a photon, which projects the atom into either $|S\rangle$ or $|D\rangle$, the atom quickly assumes a quasisteady state (the steady state of the Λ system) which has significant population in $|P\rangle$ and is therefore likely to scatter more photons. The average duration of these bright periods is given by the slow time scale on which the system evolves into $|Q\rangle$. With the parameters of this example, an average of about 3×10^3 photons are scattered during a bright period. When the system has made a transition to $|Q\rangle$, signalled by a dark time much longer than the typical interval between two scattered photons [29], then it will remain there for the average duration of the dark periods, i.e., the long time scale on which $|Q\rangle$ couples to the remaining three states [Fig. 4(c)].

Figures 4(d)–4(f) display the time evolution out of various initial states, when the (2+1)-photon resonance is ful-

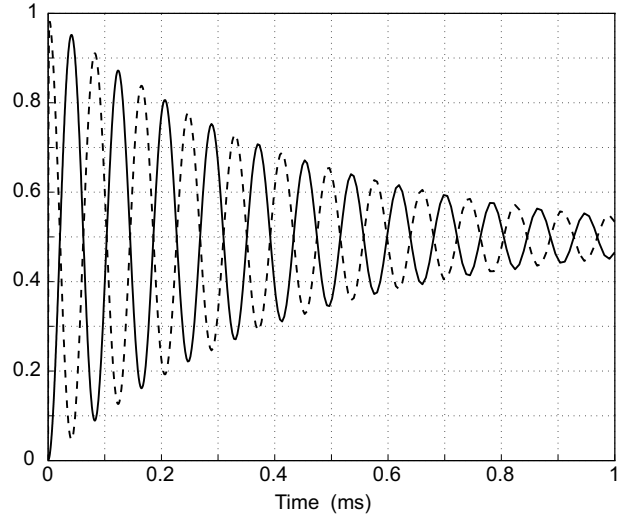


FIG. 5. Rabi oscillations between states $|\psi_D\rangle$ (dashed line) and $|Q\rangle$ (solid line), corresponding to Fig. 4(d) but plotted on a linear time scale.

filled. The dynamics are again well separated into different time scales: the system accesses very quickly (within $\sim 1 \mu\text{s}$) the steady state of the Λ system, which in this case is the dark state of Eq. (13) with no population in $|P\rangle$. On the very long time scale ($>1 \text{ ms}$), the global steady state including $|Q\rangle$ is assumed. The important observation, peculiar for this (2+1)-photon case, are oscillations on the intermediate time scale, between the populations of $|D\rangle$, $|S\rangle$, and $|Q\rangle$, whereby $|D\rangle$ and $|S\rangle$ oscillate in phase with each other, and in antiphase with $|Q\rangle$. This is consistent with the dressed state analysis of Sec. III A and corresponds to Rabi oscillations between the dark state $|\psi_D\rangle$ and the state $|Q\rangle$. Figure 5 highlights these oscillations, whose frequency is determined by the effective Rabi coupling $\Omega_C \Omega_R / \bar{\Omega}$. Hence, the overall dynamics of the (2+1)-photon resonance case are characterized by an initial dissipative behavior which evolves into a period of coherent dynamics, i.e., Rabi oscillations between $|\psi_D\rangle$ and $|Q\rangle$; finally, these Rabi oscillations are also damped out through off-resonant coupling to states $|\psi_{\pm}\rangle$, which decay incoherently.

We remark that in this situation a single atom would be observed to switch spontaneously between incoherent and coherent dynamics: as the damping of the Rabi oscillations corresponds to the emission of a photon, it will trigger the dynamics of Fig. 4(d) to start again. This type of quantum-jump behavior should be revealed in an experiment through long-time oscillations of the $g^{(2)}(\tau)$ photon-photon correlation function.

Moreover, the coherent coupling between the dark and the $|Q\rangle$ state can be brought to an extreme behavior: in the limit $\Omega_R \ll \Omega_B$ the dark state practically coincides with state $|D\rangle$, and one observes Rabi oscillations between states $|D\rangle$ and $|Q\rangle$, where population is directly and coherently transferred between the two states by means of three-photon processes.

IV. EFFECTS OF THE CENTER-OF-MASS MOTION

So far we have neglected the effect of the center-of-mass motion on the atomic dynamics. The motion may however

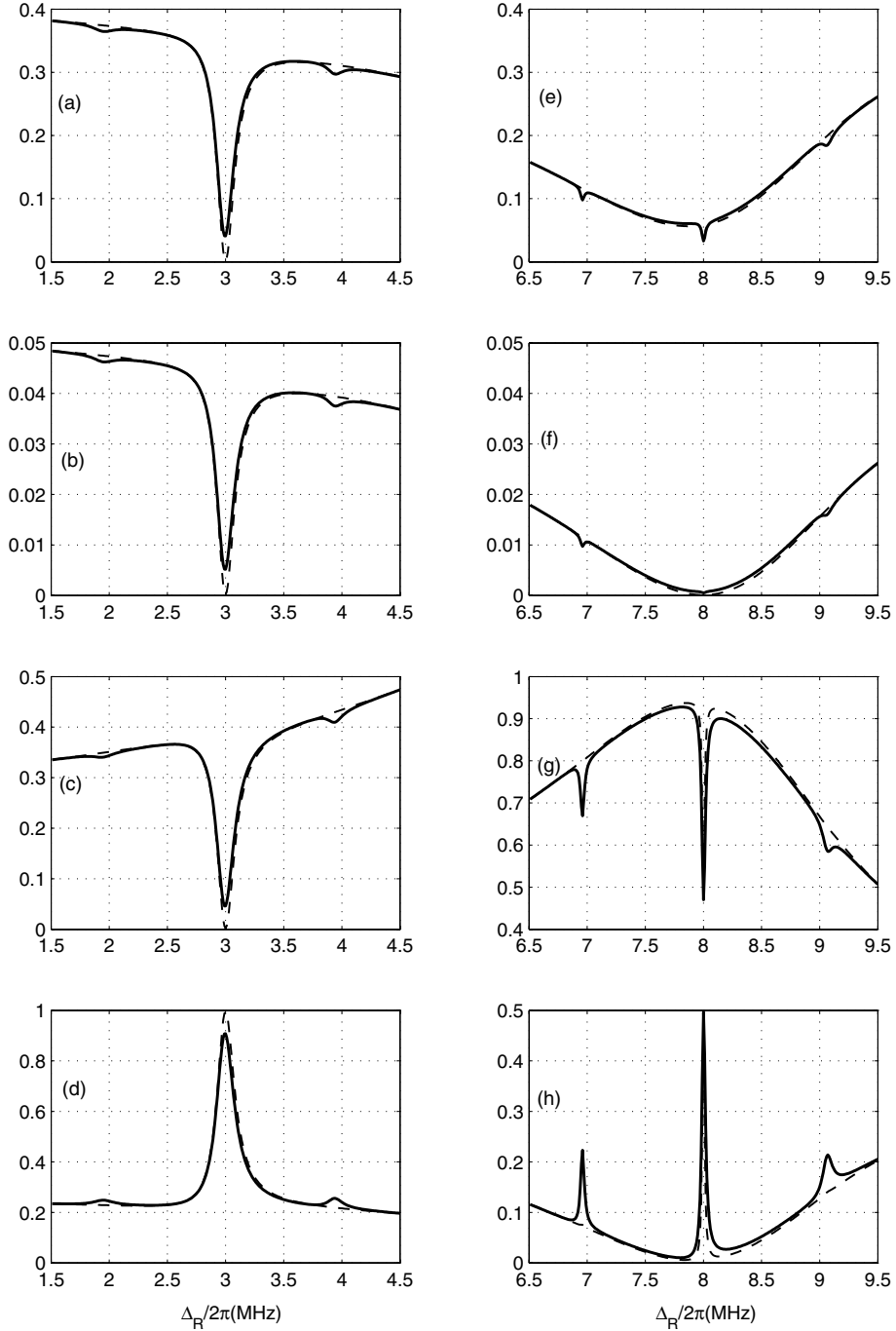


FIG. 6. Steady state populations \mathcal{P}_S , \mathcal{P}_P , \mathcal{P}_D , and \mathcal{P}_Q (from top to bottom) versus detuning $\Delta_R/2\pi$ for the same parameters as in Fig. 3 and taking into account the oscillation of the Ca^+ ion in a trap at frequency $\nu=2\pi\times 1$ MHz and Lamb-Dicke parameters $|\eta_{B,R,C}|=(0.1,0.046,0.054)$. The dashed line corresponds to the case of copropagating lasers (minimal $\Delta\vec{k}=\vec{k}_B\times 0.003$), the solid line to \vec{k}_R and \vec{k}_C copropagating against \vec{k}_B (maximal $\Delta\vec{k}=\vec{k}_B\times 2$). The left column illustrates the three-photon resonance, the right one the (2+1)-photon resonance.

critically affect the atomic response, and the N -type level scheme we are considering has been subject of several studies of how inhomogeneous broadening affects light transmission in atomic vapors [20–22]. Let us start with some general considerations for our particular system. In the dressed state

picture at three-photon resonance [condition (5)], motion of the atom at momentum \vec{p} gives rise to a Doppler effect which lifts the degeneracy between states $|D\rangle$ and $|Q\rangle$. It thus gives rise to an instability of state $|\Psi_{NC}\rangle$, Eq. (9), which now couples to state $|\Psi_C\rangle=\mathcal{N}'(|D\rangle-\mathcal{E}|Q_S\rangle)$ at rate

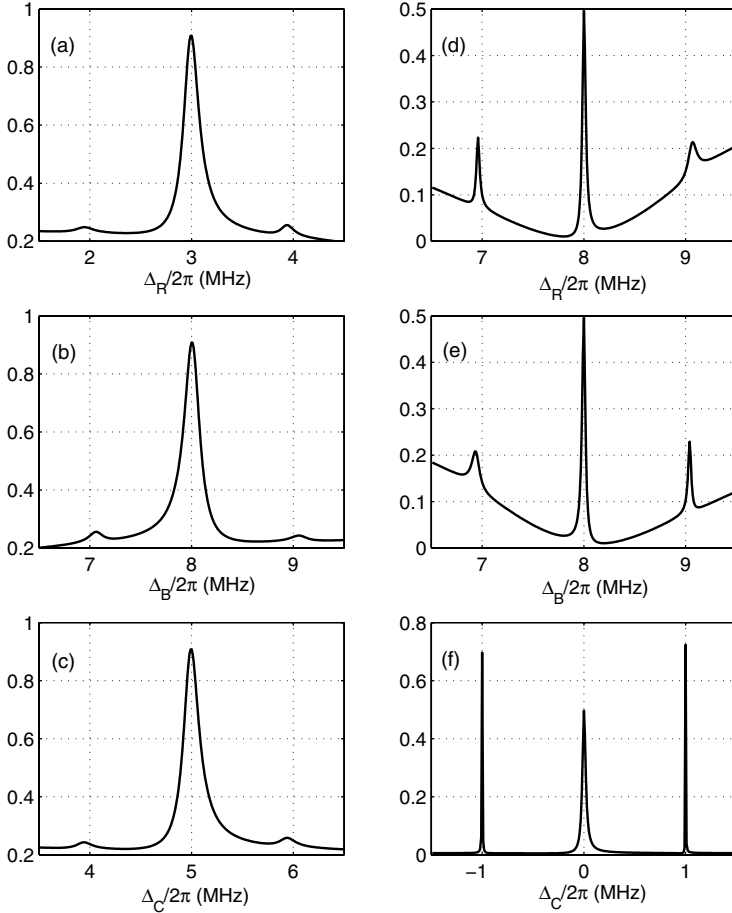


FIG. 7. Steady state population \mathcal{P}_Q versus detunings $\Delta_R/2\pi$, $\Delta_B/2\pi$, and $\Delta_C/2\pi$ (from top to bottom), for the same parameters as in Fig. 6, and for \vec{k}_R and \vec{k}_C copropagating against \vec{k}_B ($\Delta\vec{k} \approx \vec{k}_B \times 2$). The left column illustrates the three-photon resonance, the right one the (2+1)-photon resonance.

$$\mathcal{R} = \langle \Psi_{NC} | H | \Psi_C \rangle \approx \mathcal{E} \frac{\vec{p}}{m} \cdot (\vec{k}_R - \vec{k}_B + \vec{k}_C). \quad (13)$$

This coupling may sensitively affect the dynamics of the system, due to the narrow resonance condition. It vanishes, however, in the geometric Doppler-free three-photon resonance condition (phase-matching condition)

$$\Delta\vec{k} = \vec{k}_R - \vec{k}_B + \vec{k}_C = \vec{0}.$$

This configuration has been studied in Refs. [20,22]. In addition, in the same configuration but for $\Delta\vec{k} \neq \vec{0}$, Doppler-insensitive three-photon resonances have been observed when $|S\rangle \rightarrow |Q\rangle$ is in the radio-frequency regime [22]. In this special case, the radio-frequency coupling gives rise to sidebands and thus to a discrete spectrum of excitations on the transition $|S\rangle \rightarrow |Q\rangle$ which couple quasiresonantly to $|D\rangle$ for different velocity classes [20].

In our model system, $^{40}\text{Ca}^+$, all transitions are in the optical regime. We account for the oscillatory motion of the ion inside the trapping potential by a time-dependent position

$$\vec{x}(t) = \vec{x}_0 \cos \nu t,$$

where \vec{x}_0 is the classical oscillation amplitude and ν the frequency of oscillation [30]. In the Hamiltonian (3), the effect is a modulation of the radiative coupling. In this manuscript

we will assume the Lamb-Dicke regime, using the Lamb-Dicke parameters $\eta_j = \vec{k}_j \cdot \vec{x}_0 / 2$ ($j=S, P, D, Q$) as small perturbative parameters. We then use a Floquet ansatz for studying the stationary response of the system. The basic equations are reported in the Appendix.

Figure 6 shows the steady state populations of the four electronic levels around the three-photon resonance (left column) and the (2+1)-photon resonance (right column) for different laser beam geometries. The dashed curves correspond to the case where the lasers are copropagating, which for Ca^+ gives rise to a small three-photon Doppler effect: the two metastable states have very close energy levels, and in this configuration, the effective wave vector is $\Delta\vec{k} = \vec{k}_B \times 0.003$. We see that, in this case, the effect of the motion does not change appreciably the steady state occupation.

The solid lines in Fig. 6 correspond to a Doppler sensitive geometry, where \vec{k}_B counter-propagates against \vec{k}_R and \vec{k}_C . For this geometry one can observe sidebands in the resonance profile. Moreover, there are major differences between the three-photon and the (2+1)-photon resonance cases, in which the sideband signals are significantly narrower and higher. One also observes that in the three-photon resonance case the height of the central band of \mathcal{P}_Q is reduced by the effect of the motion to a value smaller than unity [Fig. 6(d)] while for the (2+1)-photon resonance the central band of \mathcal{P}_Q still reaches the maximum value 1/2. Further insight can be

gained by comparing the spectra obtained by scanning the three different lasers, as shown in Fig. 7. One clearly observes that the sidebands are especially high when they fall in the dark-resonance region, and that they may be larger than the central band when the $(2+1)$ -resonance condition is fulfilled between the dark state and one of the sidebands [Fig. 7(f)]. In this latter case, they achieve a value larger than $1/2$ due to the contribution of three-photon processes which include one sideband transition.

V. DISCUSSION AND CONCLUSIONS

The weak coupling of a Λ -shaped three-level system to a fourth metastable state modifies critically the dynamics at three-photon resonance. In a wide regime of parameters, the metastable level is occupied with unit probability at steady state. The time evolution shows that the dynamics of the system is characterized by two time scales, a short one corresponding to the dynamics of the Λ system alone, and a longer one corresponding to its coupling to the metastable state: on this time scale population is transferred into it. When the Λ system is driven at two-photon resonance and the three-photon resonance condition is fulfilled, the system first accesses the three-level dark state through dissipation and then switches to coherent dynamics, characterized by Rabi oscillations between dark and metastable state. By choosing the coupling properly, these dynamics can reduce to direct coherent transfer (Rabi oscillations) between the two extremal states coupled at three-photon resonance.

In general, the center-of-mass motion modifies substantially the response of the system, due to the sensitivity of the narrow resonances to Doppler shifts. The narrow three-photon resonance is recovered in configurations of the laser beams for which the Doppler effect on the three-photon transition is suppressed. In this manuscript we have considered the effect of the oscillatory motion of a tightly trapped atom, and we have observed that the motional sidebands which appear in the spectra can be significantly enhanced due to interfering two- and three-photon processes.

In an experimental realization, finite laser bandwidths will be detrimental for the creation of quantum coherences. The three-photon resonance can be still observed by broadening its linewidth, increasing the ratio Ω_B/Ω_R . Numerical calculations show that more than 97% occupation of state $|Q\rangle$ can be reached with lasers of bandwidth 10 kHz (HWHM) under the three-photon resonance condition. For the same parameters, the effect of the laser bandwidth at $(2+1)$ -photon resonance leads to a reduction of the population by only 0.2% with respect to the ideal case.

In conclusion, we have shown that the weak perturbation of a Λ system, achieved by coupling to a metastable state,

gives rise to interesting dynamics. We have provided simple pictures for understanding them. These can find applications for high-precision measurement, for instance for metrology in the spirit of Refs. [8,24], quantum state preparation and manipulation as, for instance, in transistors for single atoms as in Ref. [7].

ACKNOWLEDGMENTS

C.C. thanks Jean Dalibard for very helpful and stimulating discussions. G.M. acknowledges discussions with Ramon Corbalán and the kind hospitality of the Laboratoire PIIM-CIML at the Université de Provence under a visiting professor grant. This work was partly supported by the French Ministère des affaires étrangères (Picasso 09133XH), by the Spanish Ministerio de Educación y Ciencia (Acción Integrada, HU2004-0015; LACSMY Project No. FIS2004-05830; programa Ramon-y-Cajal; QLIQS Project No. FIS2005-08257), and by the European Commission (SCALA Integrated Project, Contract No. 015714).

APPENDIX: OSCILLATORY MOTION OF THE TRAPPED ATOM

In the Lamb-Dicke regime, we decompose

$$H_I(t) = H_I^{(0)} + e^{i\nu t}H_I^+ + e^{-i\nu t}H_I^-,$$

with

$$H_I^{(0)} = \frac{\hbar\Omega_B}{2}|P\rangle\langle S| + \frac{\hbar\Omega_R}{2}|P\rangle\langle D| + \frac{\hbar\Omega_C}{2}|Q\rangle\langle S| + \text{H.c.},$$

$$H_I^\pm = i\eta_B \frac{\hbar\Omega_B}{2}|P\rangle\langle S| + i\eta_R \frac{\hbar\Omega_R}{2}|P\rangle\langle D| + i\eta_C \frac{\hbar\Omega_C}{2}|Q\rangle\langle S| + \text{H.c.}$$

The solution can be found using a Floquet ansatz for the density matrix, hence writing

$$\rho = \sum_{n=-\infty}^{\infty} \rho^{(n)} e^{in\nu t}. \quad (\text{A1})$$

Substituting into the master equation, we find the coupled equations

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} \rho^{(n)} = & -in\nu \rho^{(n)} - \frac{i}{\hbar} [H_0 + H_I^{(0)}, \rho^{(n)}] - \frac{i}{\hbar} [H_I^+, \rho^{(n-1)}] \\ & - \frac{i}{\hbar} [H_I^-, \rho^{(n+1)}] + \mathcal{L} \rho^{(n)} \end{aligned} \quad (\text{A2})$$

which have been obtained by neglecting higher orders in the Lamb-Dicke expansion.

- [1] D. A. Braje, V. Balic, S. Goda, G. Y. Yin, and S. E. Harris, Phys. Rev. Lett. **93**, 183601 (2004).
 [2] V. Balic, D. A. Braje, P. Kolchin, G. Y. Yin, and S. E. Harris, Phys. Rev. Lett. **94**, 183601 (2005).

- [3] M. D. Eisaman, L. Childress, A. André, F. Massou, A. S. Zibrov, and M. D. Lukin, Phys. Rev. Lett. **93**, 233602 (2004).
 [4] M. D. Lukin and A. Imamoglu, Phys. Rev. Lett. **84**, 1419 (2000).

CHAMPENOIS, MORIGI, AND ESCHNER

PHYSICAL REVIEW A **74**, 053404 (2006)

- [5] C. Ottaviani, D. Vitali, M. Artoni, F. Cataliotti, and P. Tombesi, *Phys. Rev. Lett.* **90**, 197902 (2003).
- [6] I. Friedler, D. Petrosyan, M. Fleischhauer, and G. Kurizki, *Phys. Rev. A* **72**, 043803 (2005).
- [7] A. Micheli, A. J. Daley, D. Jaksch, and P. Zoller, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 140408 (2004).
- [8] R. Santra, E. Arimondo, T. Ido, C. Greene, and J. Ye, *Phys. Rev. Lett.* **94**, 173002 (2005).
- [9] E. Arimondo, in *Progress in Optics*, edited by E. Wolf (Elsevier Science, Amsterdam, 1996), Vol. XXXV, Chap. V, p. 258.
- [10] G. S. Agarwal and W. Harshawardhan, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 1039 (1996).
- [11] M. D. Lukin, P. R. Hemmer, and M. O. Scully, *Adv. At., Mol., Opt. Phys.* **42**, 347 (2000).
- [12] G. Morigi, S. Franke-Arnold, and G. L. Oppo, *Phys. Rev. A* **66**, 053409 (2002).
- [13] B. S. Ham and P. R. Hemmer, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 4080 (2000).
- [14] M. D. Lukin, *Rev. Mod. Phys.* **75**, 457 (2003).
- [15] A. V. Taichenachev, A. M. Tumaikin, and V. I. Yudin, *Phys. Rev. A* **61**, 011802(R) (1999).
- [16] C. Goren, A. D. Wilson-Gordon, M. Rosenbluh, and H. Friedmann, *Phys. Rev. A* **67**, 033807 (2003).
- [17] C. Goren, A. D. Wilson-Gordon, M. Rosenbluh, and H. Friedmann, *Phys. Rev. A* **69**, 053818 (2004).
- [18] A. M. Akulshin, S. Barreiro, and A. Lezama, *Phys. Rev. A* **57**, 2996 (1998).
- [19] M. D. Lukin, S. F. Yelin, M. Fleischhauer, and M. O. Scully, *Phys. Rev. A* **60**, 3225 (1999).
- [20] S. F. Yelin, V. A. Sautenkov, M. M. Kash, G. R. Welch, and M. D. Lukin, *Phys. Rev. A* **68**, 063801 (2003).
- [21] C. Y. Ye, A. S. Zibrov, Y. V. Rostovtsev, and M. O. Scully, *Phys. Rev. A* **65**, 043805 (2002).
- [22] A. S. Zibrov, C. Y. Ye, Y. V. Rostovtsev, A. B. Matsko, and M. O. Scully, *Phys. Rev. A* **65**, 043817 (2002).
- [23] B. Appasamy, I. Siemers, Y. Stalgies, J. Eschner, R. Blatt, W. Neuhauser, and P. E. Toschek, *Appl. Phys. B* **B60**, 473 (1995).
- [24] T. Hong, C. Cramer, W. Nagourney, and E. N. Fortson, *Phys. Rev. Lett.* **94**, 050801 (2005).
- [25] H. Dehmelt, *Bull. Am. Phys. Soc.* **20**, 60 (1975).
- [26] W. Nagourney, J. Sandberg, and H. Dehmelt, *Phys. Rev. Lett.* **56**, 2797 (1986).
- [27] T. Sauter, W. Neuhauser, R. Blatt, and P. E. Toschek, *Phys. Rev. Lett.* **57**, 1696 (1986).
- [28] J. C. Bergquist, R. G. Hulet, W. M. Itano, and D. J. Wineland, *Phys. Rev. Lett.* **57**, 1699 (1986).
- [29] G. Nienhuis, *Phys. Rev. A* **35**, 4639 (1987).
- [30] Both the driven (micro) and the secular (macro) motion of a trapped ion may be described this way; unless quantum effects in the macro-motion are relevant, the thermal state of a laser cooled ion is modeled by additional integration over a thermal distribution of oscillation amplitudes.

J'ai mis en évidence la résonance noire à trois photons présentée ici en cherchant tout autre chose, comme c'est souvent le cas dans notre métier. J'ai observé la première manifestation de ce phénomène de façon numérique, en cherchant la combinaison optimale des paramètres d'excitation laser pour les expériences d'*electron shelving* présentées en II.2.3. Cette recherche était stimulée par l'observation expérimentale d'une probabilité de pompage dans l'état "étagère" $D_{5/2}$ supérieure à 0.5, lors des expériences d'*electron shelving* sur un nuage, quand les trois lasers sont envoyés sur les ions en même temps. Cette probabilité, supérieure à la valeur à saturation pour un système à deux niveaux, était l'indice d'un effet combiné des trois transitions. C'est par hasard que je me suis rendue compte que la population atomique pouvait être pompée totalement dans l'état $D_{5/2}$ quand la condition de résonance à trois photons était vérifiée. Expérimentalement, des taux de pompage supérieur à $2/3$ ont été observés sur des nuages, limités par la gigue des lasers et l'effet Doppler car la géométrie des faisceaux laser ne conduisait pas à l'élimination de cet effet.

Au-delà de son implication dans la métrologie des fréquences, le niveau $D_{5/2}$ de l'ion calcium est aussi le support des qubits optiques utilisés, entre autre, dans le groupe de R. Blatt^{63,64} à Innsbruck. Le groupe de S. Urabe à Osaka^{65,66} explore lui la possibilité de faire des opérations logiques avec les deux niveaux métastables $D_{3/2}$ et $D_{5/2}$, proposant ainsi un qubit dans le domaine THz. Jusqu'ici, ce groupe a surtout utilisé une excitation Raman stimulée, basée sur deux transitions dipolaires, pour coupler de façon cohérente ces deux niveaux. Le CPT à trois photons pourrait offrir une alternative à la manipulation cohérente de l'état interne dans le cadre du traitement quantique de l'information. Il est aisé de rendre cette résonance sensible à l'effet Doppler si l'état interne et l'état externe doivent être intriqués, comme c'est le cas très souvent dans les protocoles d'intrication⁶⁷. Jusqu'ici et à ma connaissance, aucune application n'a été proposée dans ce sens, certainement par manque de visibilité sur la possibilité d'un transfert cohérent entre niveaux métastables, par exemple. Toujours en collaboration avec Giovanna Morigi, j'ai essayé plusieurs protocoles inspirés du STIRAP⁶⁸, mais je ne suis pas encore parvenu à rendre le taux de perte de cohérence et de population non négligeable. Ces tentatives faites et à faire sont reprises dans le chapitre concernant les perspectives de mon travail.

Chapitre IV

VERS L'ÉTUDE DE LA DYNAMIQUE ET THERMODYNAMIQUE DE GRANDS NUAGES D'IONS REFROIDIS

Les travaux décrits dans ce chapitre représentent une partie des études préparatoires à la construction d'une nouvelle expérience développée au sein du groupe qui vise à étudier des phénomènes collectifs sur de larges échantillons ($\leq 10^7$ ions) dans des potentiels de confinement de profil différent. Pour cela, le piège sera constitué de deux parties, une quadrupolaire et l'autre multipolaire, les ions pourront être transférés d'une partie à l'autre tout en restant refroidis par laser.

Alors que la tendance actuelle porte les efforts de nombreux groupes de recherche vers la miniaturisation des systèmes de confinement d'ions en vue de leur intégration dans une architecture d'ordinateur quantique⁶⁹, les phénomènes collectifs observables sur de grands échantillons restent encore peu explorés. Pourtant, le confinement de nuages (typiquement $10^2 - 10^4$ ions) est un outil quotidien pour une partie de la communauté physico-chimiste qui y étudie des collisions froides réactives et tente, entre autre, d'y reproduire des conditions pertinentes pour l'astrochimie^{70,71,10}. Pour ces expériences, l'outil privilégié pour le confinement de grands échantillons est le multipole linéaire^a et les ions y sont refroidis par collisions avec un gaz tampon de température pouvant aller de 300 à 4 K. Les densités atteintes dans ces pièges sont telles que l'interaction coulombienne entre particules piégées est négligeable devant le potentiel de confinement. Un des intérêts majeurs de ces dispositifs est leur capacité à confiner des molécules aussi bien que des atomes chargés.

Les multipoles ont aussi démontré leur utilité dans le cadre de la métrologie des fréquences micro-ondes, pour le confinement des ions mercure, support d'un étalon à 40,5 GHz^b qui fonctionne lui aussi sans refroidissement laser mais avec refroidissement par gaz tampon⁷² (du néon dans le cas présent). L'excitation optique nécessaire au pompage optique et à la détection de l'état interne après l'interrogation de la transition d'horloge est réalisée avec une lampe à mercure (isotope $^{202}\text{Hg}^+$). Le facteur limitant la stabilité à long terme de cet étalon est la variation de l'effet Doppler du second ordre, due aux fluctuations du nombre d'ions piégés (de l'ordre de 10^7). La contribution du micro-mouvement à l'effet Doppler dépend du nombre d'ions piégés par l'intermédiaire du champ rf vu par les ions, qui augmente quand on s'éloigne du centre. Pour le même nombre d'ions piégés, l'amplitude maximale du champ rf peut être réduite par l'utilisation de multipoles au lieu de quadrupoles. En effet, dans le cas d'un nuage suffisamment dense, on

^aOn appelle ici multipole les pièges linéaires qui comportent plus de 4 barreaux, par opposition aux quadrupoles.

^bPlus précisément c'est la transition $F = 0 \rightarrow F = 1$ du niveau fondamental de l'isotope $^{199}\text{Hg}^+$ qui fournit cette référence de fréquence.

peut montrer que l'effet Doppler du second ordre induit par le micro-mouvement s'écrit⁷³

$$\delta f_{D2} = -f_0 \frac{q^2 N_L}{8\pi\epsilon_0 m(k-1)c^2}, \quad (\text{IV.1})$$

où $2k$ est le nombre de barreaux du piège. Ce gain linéaire avec le nombre de barreaux explique pourquoi aujourd'hui le prototype d'horloge de l'équipe du JPL (J. Prestage et collaborateurs) possède 16 barreaux⁷⁴. Il est le successeur des pièges⁷⁵ à 4 puis 12 barreaux développés au fil des années au JPL.

Dans ces deux principales applications des multipôles (collisions froides et métrologie micro-onde), les ions ne sont pas refroidis par laser et les densités atteintes pour le nuage d'ions sont telles que la prise en compte de l'interaction coulombienne n'est pas primordiale pour comprendre la dynamique et l'état d'équilibre d'un ensemble d'ions. À l'opposé, dans les quadrupoles, plusieurs expériences avec des nuages refroidis par laser ($\leq 5 \cdot 10^4$ ions) ont mis en évidence la transition de phase de gaz à liquide⁷⁶ et de liquide à cristallisé^{77,78}. Alors que différents effets étaient observés en quadrupole, tels que des transitions entre différentes structures⁷⁹ et le refroidissement sympathique par couplage coulombien^{80,81}, une seule expérience a vu le refroidissement laser puis la cristallisation d'un nuage d'ions (taille maximale de l'ordre de 10^4 ions) dans un multipôle^{11,12}, un octopôle dans ce cas précis. Remarquons que le refroidissement laser et la cristallisation de grands nuages d'ions ($> 10^5$ ions) sont par contre rendus plus faciles à observer dans des pièges de Penning^{82,83} grâce à l'absence de chauffage rf.

Ce chapitre commence par une étude en champ moyen du comportement de grands nuages en quadrupoles et multipôles linéaires. Ceci permet de mettre en évidence les paramètres contrôlant la taille et les énergies potentielles des nuages en vue du choix des dimensions de l'expérience. La seconde partie présente un cas particulier de structure stable mise en évidence pour quelques ions en multipôle et proposée comme support à un étalon de fréquence. Finalement, la troisième partie s'intéresse au mode de création des ions qu'il est nécessaire d'analyser pour assurer un flux d'ions suffisant à la création de large nuages.

IV.1 Lois d'échelle d'un nuage dense en piège linéaire

Un des enjeux de cette étude est d'identifier les paramètres de piègeage contrôlant la taille du nuage et par conséquent celle du piège. Pour cela, j'ai exploité un modèle développé à l'origine pour des gros nuages d'ions en pièges de Penning⁸⁴, le modèle du plasma non neutre ou *non-neutral plasma* (NNP). Ce modèle se transpose très bien au piège rf quadrupolaire, dans l'approximation du pseudopotentiel et a d'ailleurs déjà été utilisé par Cutler *et al.*⁸⁵ pour estimer l'effet Doppler du deuxième ordre sur des ions en piège quadrupolaire. Par contre, l'extension de ce modèle à des ions en pièges multipolaires n'avait été menée que pour un piège 3D¹³ et pas encore exploitée pour estimer des valeurs absolues de dimensions de nuages. Le principe de l'étude basée sur ce modèle et son exploitation pour le dimensionnement des pièges sont publiés en tant que tutoriel dans un numéro spécial *Modern Applications of Trapped Ions* de J. Phys. B. L'article est reproduit dans la paragraphe suivant, aussi nous ne présentons ici que les grandes lignes de ce modèle pour nous concentrer sur les enjeux précis du projet qui nous concerne.

Le modèle NNP est un modèle de fluide continu chargé, à l'équilibre thermodynamique. Il ne permet pas de rendre compte de l'éventuelle organisation interne d'un nuage d'ions froids

en couches structurées mais est tout à fait pertinent pour déterminer le profil de densité du nuage et le volume occupé. D'ailleurs cette pertinence est confirmée a posteriori par l'accord entre les lois d'échelle que l'on peut déduire de ce modèle et celles démontrées par une étude numérique en piège isotrope 3D, réalisée principalement par mes collaborateurs Florent Calvo et Ersin Yurtsever⁸⁶. Techniquement, le couplage entre une équation de type Boltzmann exprimant l'équilibre thermodynamique et l'équation de Poisson liant la densité de charges au potentiel qu'elle crée, conduit à une équation différentielle qui contrôle le profil de densité et qui est intégrable à partir d'une subroutine standard dans le cas d'une symétrie sphérique (ce qui était le cas de Cutler *et. al.*) ou d'une symétrie cylindrique de longueur infinie (ce qui se rapproche de notre cas). Nous avons donc fait l'hypothèse d'un nuage suffisamment allongé pour qu'on puisse l'identifier à une portion de nuage de longueur infinie. Il est important de garder à l'esprit qu'un modèle de fluide continu n'est pertinent pour traiter un nuage d'ions que si la taille du nuage est bien plus grande que la longueur caractéristique des effets collectifs, appelée longueur de Debye. Cette longueur est d'autant plus petite que la température de l'échantillon est faible et que sa densité est grande. Pour un nuage à 300 K, ce modèle est applicable dès que le nombre d'ions par unité de longueur est au moins de 10^5 ions par mm. C'est dans ce cadre de travail que nous nous plaçons ici. En effet, nous visons un nombre total d'ions de l'ordre de 10^7 et de façon générale, on a tout intérêt à former un nuage le plus dense possible, pour réduire l'encombrement du double piège et pour avoir une meilleure collection optique.

Cette nouvelle expérience fait l'objet d'une collaboration avec le CNES^c dans le cadre d'une étude prospective sur les étalons de fréquence micro-onde à ions mercure ($^{199}\text{Hg}^+$). Les étalons développés par le JPL^{87,74} et mentionnés plus haut affichent déjà des performances de stabilité long terme proche de 10^{-16} . La phase d'excitation de la transition d'horloge a lieu dans un 16-pole mais les phases de préparation (pompage optique) et de détection après excitation ont lieu dans un quadrupole, plus ouvert. Un des défis de cet étalon est le transfert, sans perte d'ions, du quadrupole au multipole, et retour. Dans le projet qui nous lie au CNES, nous nous proposons d'étudier plus spécifiquement ce transfert pour des nuages d'ions calcium de taille pouvant aller jusqu'à 10^7 ions, taille requise pour les étalons micro-onde. Dans ces étalons, le refroidissement des ions est réalisé par collisions avec un gaz tampon à 300 K aussi nous envisageons dans la suite les caractéristiques d'un nuage à 300 K et celles d'un nuage refroidi par laser car nous mènerons ces deux types d'études dans le même dispositif expérimental. Dans le cas d'un nuage refroidi par laser, des expériences réalisées en quadrupole⁷⁸ ainsi que les simulations de dynamique moléculaire (DM)^{88,89} montrent que les températures à attendre sont de l'ordre de 10 mK.

IV.1.1 Tutoriel : de la dynamique et thermodynamique des ions piégés

Voici ici résumée la méthode utilisée pour obtenir une équation du profil de densité d'un nuage en piège linéaire. Comme cette étude porte sur l'équilibre d'un ensemble de charges vu comme un fluide chargé, elle n'a de sens que si l'approximation du pseudo-potential introduite en II.1.1 est vérifiée et que l'effet du micro-mouvement sur les propriétés d'équilibre peut être négligé. Dans ces conditions et en faisant l'hypothèse ergodique, les travaux de Dubin, Driscoll, O'Neil

^cContrat 60180/00 du 9 octobre 2006 et Contrat 81915/00 du 17 octobre 2008

et Prasad^{90,91,84} montrent que l'équilibre thermodynamique d'un plasma non-neutre peut être décrit par une distribution de Gibbs à N particules dès que $N \geq 100$ (pour des N plus petits, les fluctuations sont trop grandes pour pouvoir identifier la moyenne sur la distribution micro-canonique à celle sur la distribution canonique-ou de Gibbs). Intégrée sur les N vitesses et $N - 1$ positions, la distribution de Gibbs se résume au profil de densité du plasma $n(\mathbf{r})$:

$$n(\mathbf{r}) = \mathcal{N} \exp \left[-\frac{\mathcal{E}(\mathbf{r})}{k_B T} \right] \quad (\text{IV.2})$$

où \mathcal{N} est une constante de normalisation et $\mathcal{E}(\mathbf{r})$ est l'énergie d'une particule en \mathbf{r} . Cette énergie contient la contribution du potentiel de confinement, représenté ici par son potentiel effectif (pseudo-potentiel et potentiel statique) $V^*(\mathbf{r}) = q\phi_T(\mathbf{r})$ et du potentiel répulsif de Coulomb, représenté par son champ moyen $q\phi_q(\mathbf{r})$ et créé par toutes les charges entourant le point \mathbf{r} (l'effet de la charge image est négligé car les charges sont suffisamment éloignées des surfaces conductrices⁹²). Le profil de densité de charge et le potentiel créé par ces charges sont aussi liés par l'équation de Poisson

$$\Delta\phi_q(\mathbf{r}) = -\frac{qn(\mathbf{r})}{\epsilon_0} \quad (\text{IV.3})$$

et ces deux équations permettent d'obtenir une équation différentielle régissant le profil de densité qui est simplifiée si on s'intéresse plutôt au profil logarithmique de la densité^{90,91}. Le problème de la normalisation s'élimine en définissant la densité par rapport à la densité au centre $n(\mathbf{0}) = n_0$, on a alors :

$$n(\mathbf{r}) = n_0 \exp[\Psi(\mathbf{r})] \quad (\text{IV.4})$$

$$\Psi(\mathbf{r}) = -\frac{q}{k_B T} (\phi_T(\mathbf{r}) + \phi_q(\mathbf{r}) - \phi_T(\mathbf{0}) - \phi_q(\mathbf{0})). \quad (\text{IV.5})$$

En combinant les équations (IV.5) et (IV.3), on obtient alors,

$$\Delta\Psi(\mathbf{r}) = \frac{q^2 n_0}{k_B T \epsilon_0} \left[\exp[\Psi(\mathbf{r})] - \frac{\epsilon_0}{qn_0} \Delta\phi_T(\mathbf{r}) \right]. \quad (\text{IV.6})$$

Cette équation est l'équation maîtresse du profil de densité d'un fluide chargé dans un pseudo-potentiel de symétrie quelconque. Avant d'entrer dans l'analyse numérique de la solution de cette équation, on peut déjà remarquer que la longueur caractéristique de cette équation est clairement apparente sous la forme $(k_B T \epsilon_0 / (q^2 n_0))^{1/2}$ qui est la longueur de Debye du système, d'où l'utilisation de variables réduites dans la suite. De plus cette équation met en évidence le statut particulier de quadrupole par rapport à tous les multipoles. En effet, le quadrupole est la seule géométrie pour laquelle l'intervention du potentiel de confinement dans le profil de densité (dernier terme dans l'équation IV.6) correspond à un terme constant. On peut d'ailleurs remarquer que seul le pseudo-potentiel associé au potentiel rf joue un rôle dans cette équation, le potentiel statique nécessaire au confinement le long de l'axe de symétrie obéissant à l'équation de Laplace $\Delta\phi_{dc} = 0$.

Une introduction générale aux pièges linéaires d'ordre quelconque est présenté dans l'article qui suit. Elle permet de mettre en évidence les particularités du quadrupole par rapport aux autres géométries. L'analyse du profil de densité qui y est présenté ainsi que les lois d'échelle qui ont été démontrées à cette occasion nous permettent par la suite de déduire les paramètres dimensionnant le piège que nous voulons pour nos expériences.

TUTORIAL

About the dynamics and thermodynamics of trapped ions

C Champenois

Physique des Interactions Ioniques et Moléculaires, UMR 6633, CNRS and Université de Provence,
Centre de Saint Jérôme, Case C21, 13397 Marseille Cedex 20, France

E-mail: caroline.champenois@univ-provence.fr

Received 16 February 2009, in final form 14 April 2009

Published 15 July 2009

Online at stacks.iop.org/JPhysB/42/154002

Abstract

This paper introduces the dynamics of charged particles in a radiofrequency trap in a very general manner to point out the differences between the dynamics in a quadrupole and in a multipole trap. When dense samples are trapped, the dynamics is modified by the Coulomb repulsion between ions. To take into account this repulsion, we propose to use a method, originally developed for particles in a Penning trap, that models the ion cloud as a cold fluid. This method can not reproduce the organization of cold clouds as crystals but it allows one to scale the size of large samples with the trapping parameters and the number of trapped ions, for different linear geometries of trap.

1. Introduction

Quadrupole radiofrequency traps appear to be the obvious choice for most applications where charged particles need to be trapped, cooled and manipulated by laser interactions. Optical frequency metrology and quantum information processing give examples of such a control of the ion motion by atom–laser interaction as shown in several contributions to this special issue. Up to now, all the protocols make use of the harmonic nature of the potential induced by the radiofrequency field and were demonstrated with one or few ions. On the other hand, higher order radiofrequency traps are efficiently used with large samples where buffer gas cooling is preferred to laser cooling. This is the case, for example, for microwave frequency standards working with large samples of Hg^+ ions [1, 2] or with experiments studying cold reactions with molecules [3, 4]. In the prospect of new experiments where one could think of applying quantum information processing methods to a larger sample (of atomic or molecular ions), it may be useful to consider using higher order radiofrequency traps than the usual quadrupole trap. The first purpose of this paper is to give a general background about the dynamics of ions in radiofrequency traps to point out the differences between the dynamics inside a quadrupole and a multipole trap (here we call a multipole trap a linear radiofrequency trap

with a higher symmetry order than a quadrupole). The second objective of this paper is to present a mean-field approach already used for particles in Penning traps and called the *nonneutral plasma*. Using this method, it is possible to scale the size of a trapped sample with the relevant physical parameters of the problem. This general approach is useful to understand what is so special about the quadrupolar geometry even when large samples are trapped. This paper is organized in two parts, the first one describes the dynamics of single charged particle in a radiofrequency field of very general geometry. The second part introduces the mean-field approach that allows one to take into account the Coulomb repulsion in large samples. This model is used in the linear geometry to establish relations between the trapping parameters and the characteristics of the trapped sample.

2. General description of radiofrequency trapping

2.1. The most general case

Let us try to get some insights into the dynamics of trapped ions (mass m and charge q) starting with a non-specific geometry. The development presented here is greatly inspired from a broad review written by Gerlich about multipoles and their use to study ion–molecule reaction dynamics [5]. Let us assume

that the potential between a set of electrodes can be written as the sum of a static voltage $\Phi_s(\mathbf{r})$ and a radiofrequency voltage $\Phi_{rf}(\mathbf{r}, t)$ oscillating at frequency Ω and responsible for the effective trapping of the charged particle. The motion of a single ion is then governed by the local electric field

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \nabla\Phi_s(\mathbf{r}) + \nabla\Phi_{rf}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{E}_s(\mathbf{r}) + \mathbf{E}_0(\mathbf{r})\cos(\Omega t). \quad (1)$$

To compute the trajectory of this ion, the difficulty lies in the integration of the equations of motion in a time varying electric field. So we first assume that there is no static electric field ($\mathbf{E}_s(\mathbf{r}) = 0$). If the electric field were homogeneous, the motion would revert to the rf-driven oscillation

$$\mathbf{r}(t) = -\frac{q\mathbf{E}_0}{m\Omega^2}\cos(\Omega t) = -\mathbf{a}\cos(\Omega t), \quad (2)$$

where \mathbf{a} is the amplitude of this oscillation. As $\mathbf{E}_0(\mathbf{r})$ is non-homogeneous, this amplitude varies in space and the motion can be split into two contributions: the motion driven by the rf field $\mathbf{R}_1(t) = -\mathbf{a}(t)\cos(\Omega t)$ and a slower motion $\mathbf{R}_0(t)$ induced by the variation of the amplitude of the radiofrequency field. The local electric field can then be expanded as

$$\mathbf{E}_0(\mathbf{r}(t)) = \mathbf{E}_0(\mathbf{R}_0) - (\mathbf{a}(t) \cdot \nabla)\mathbf{E}_0(\mathbf{R}_0)\cos(\Omega t) + \dots \quad (3)$$

The resolution proposed here for the dynamical equations relies on two approximations:

- (i) the first order expansion of \mathbf{E}_0 around \mathbf{R}_0 in equation (3) and
- (ii) the *adiabatic approximation* which assumes that the typical evolution time scale of \mathbf{a} and \mathbf{R}_0 is far longer than the rf period.

In this frame of approximations, the slow dynamics is determined by

$$m\ddot{\mathbf{R}}_0 = -\frac{q^2}{4m\Omega^2}\mathbf{grad}(E_0^2) \quad (4)$$

and, as far as $\mathbf{R}_0(t)$ is concerned, it is as if the particle is trapped in a static potential well, called the *pseudo* potential:

$$V^*(\mathbf{r}) = \frac{q^2 E_0^2(\mathbf{r})}{4m\Omega^2}. \quad (5)$$

Building a pseudopotential well implies $\mathbf{grad}(E_0^2(\mathbf{r})) > 0$ in the three directions. In practice, the fulfilment of this condition is not sufficient to assure the stability of the ion's trajectory. A conservative stability criterion is given by a local adiabaticity criterion, introduced by Teloy and Gerlich [3, 5], and defined by the relative variation of \mathbf{E}_0 seen over the amplitude of the driven motion oscillation:

$$\eta_{ad} = \frac{|2(\mathbf{a} \cdot \nabla)\mathbf{E}_0|}{|\mathbf{E}_0|} = \frac{2q|\nabla\mathbf{E}_0|}{m\Omega^2}. \quad (6)$$

This adiabaticity parameter depends on the location in the trap except for the particular case of quadratic radiofrequency voltage for which $\nabla\mathbf{E}_0$ is homogeneous. In the multipole case, numerical simulations and experimental observations mentioned by Gerlich [5] show that the empirical limit $\eta_{ad} < 0.3$ guarantees adiabaticity in most cases. A more recent experimental study of the loss mechanism in a 22-pole trap [6] complementary to a more general model of effective

trapping volume for multipole [7] has demonstrated stability up to $\eta_{ad} < 0.36 \pm 0.02$. A safe criterion for stability could then be $\eta_{ad}(R_{\max}) < 0.34$.

If the static electric field is switched on again, according to the superposition theorem, the motion is governed by the effective static potential

$$V^*(\mathbf{r}) = \frac{q^2 E_0^2(\mathbf{r})}{4m\Omega^2} + q\Phi_s(\mathbf{r}). \quad (7)$$

The rf-driven motion (also called micromotion) $\mathbf{R}_1(t)$ is deduced from the motion in the pseudopotential (called macromotion):

$$\mathbf{R}_1(t) = -\frac{q\mathbf{E}_0(\mathbf{R}_0)}{m\Omega^2}\cos(\Omega t), \quad (8)$$

and its amplitude is proportional to the local rf-electric field. As this electric field must increase with \mathbf{R}_0 for effective trapping, the micromotion amplitude increases with the distance from the trap centre. As this driven motion cannot be cooled, the only way to reduce this amplitude is to keep the ion at the node of the electric field.

2.2. Focus on the linear trap

In most experiments requiring a precise control of the dynamics and kinetic energy of the ions, micromotion is a side effect that can bring a large contribution to the Doppler effect and reduces the precision reached on the kinetic energy of the ions. In a linear geometry where a radiofrequency voltage is applied only in the transverse plane with a translation symmetry along the remaining axis, the node of the radiofrequency electric field is the symmetry axis. When large samples are trapped, it gives rise to a reduced micromotion compared to spherical traps, as the ions are closer to the node of the electric field. In this section, we assume such a linear geometry where the trap consists of $2k$ equally spaced rods as electrodes for transverse trapping and where the confinement along the axis of symmetry is reached by a static potential (the geometry of the electrodes used for the axial confinement is not very relevant in this paper).

As a first step, we ignore this static potential and assume that voltages $+V(t)/2 = U_s/2 - V_0/2\cos(\Omega t)$ and $-V(t)/2$ are applied on alternate electrodes (so the voltage difference between neighbouring electrodes is $V(t)$, note that in Gerlich's paper this voltage is chosen to be $2V(t)$). The $2k$ electrodes are rods located at the same distance r_0 from the trap axis and solutions of the Laplace equation $\Delta\Phi = 0$ are linear combinations of

$$\Phi_k(\mathbf{r}, t) = \Phi_0(t)(r/r_0)^k \cos(k\theta), \quad (9)$$

where (r, θ) are the polar coordinates in the (x, y) plane. The contribution of each order k is fixed by the boundary conditions defined by the shape and position of the electrodes. Figure 1 shows the equipotential lines in the transverse plane of an ideal multipole where only one contribution of defined symmetry order defines the potential. This potential distribution can be realized ideally if the electrode surfaces exactly match the equipotential surfaces. Deriving the radiofrequency electric

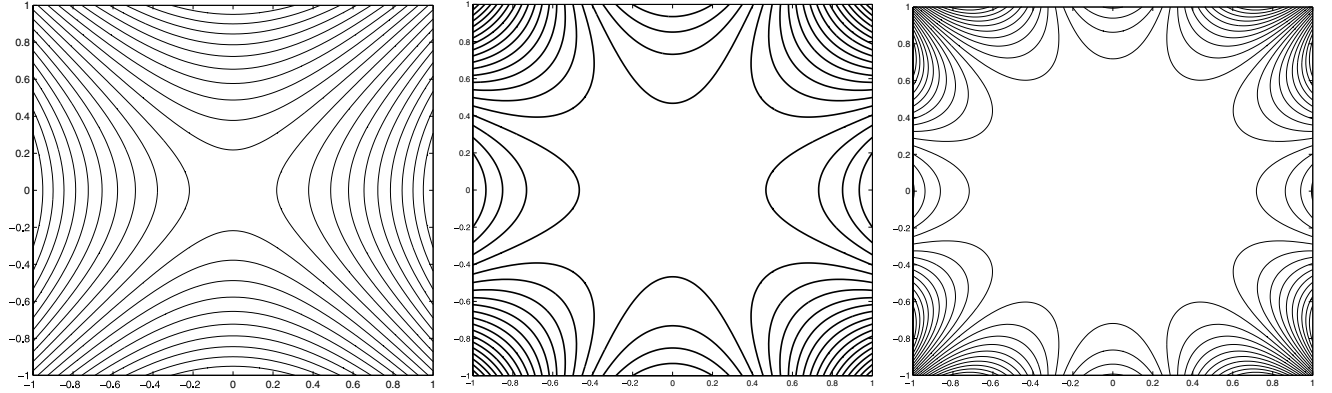


Figure 1. Equipotential curves in the plane of a $2k$ -pole with a spatial dependence of the rf potential defined by $(r/r_0)^k \cos(k\theta)$. From left to right, $2k = 4, 8, 12$.

field generated by such a potential, the equations governing the motion in the plane of a $2k$ -pole are

$$\begin{aligned} \ddot{x}/r_0 - F_k(t)(r/r_0)^{k-1} \cos(k-1)\theta &= 0 \\ \ddot{y}/r_0 + F_k(t)(r/r_0)^{k-1} \sin(k-1)\theta &= 0 \end{aligned} \quad (10)$$

with $F_k(t) = kqU_s/(2mr_0^2) - kqV_0/(2mr_0^2) \cos(\Omega t)$. As an example, let us have a look at the equations of motion of an ion in an octupole ($2k = 8$):

$$\begin{aligned} \ddot{x} + F_4(t)(x^3 - 3y^2x)/r_0^2 &= 0 \\ \ddot{y} - F_4(t)(y^3 - 3x^2y)/r_0^2 &= 0. \end{aligned} \quad (11)$$

These equations are nonlinear and coupled. The nonlinearity makes the stability of individual trajectories sensitive to their initial conditions. As a consequence, it is not possible to define absolute stability conditions based only on the working parameters of the trap. An estimation of the local stability is provided by the adiabaticity criterion (equation (6)). For a $2k$ -pole, it increases like r^{k-2} and is uniform only in the quadrupolar case ($2k = 4$):

$$\eta_{ad} = k(k-1) \frac{qV_0 r^{k-2}}{m\Omega^2 r_0^k}. \quad (12)$$

In a quadrupole, and only in a quadrupole, the equations of motion take the simple forms

$$\ddot{x} - F_2(t)x = 0 \quad \ddot{y} + F_2(t)y = 0, \quad (13)$$

which are linear and uncoupled for x and y . The introduction of the reduced time scale $\xi = \Omega t/2$ leads to the well-known Mathieu equation

$$\frac{d^2 u}{d\xi^2} + (a_u - 2q_u \cos(\Omega t))u(\xi) = 0 \quad (14)$$

($u = x, y$), which belongs to the family of differential equations with periodic coefficients. Solutions of this equation can be found in many textbooks [8, 9]. The solutions have the form

$$u(t) = A e^{i\omega_u t} \sum_n C_{2n} e^{in\Omega t} + B e^{-i\omega_u t} \sum_n C_{2n} e^{-in\Omega t} \quad (15)$$

with $\omega_u = \beta_u \Omega/2$, β_u depending only on the Mathieu parameters a_u and q_u through continuous fractions. a_u and q_u depend on the trapping parameters by

$$q_x = \frac{2qV_0}{m\Omega^2 r_0^2}; \quad q_y = -\frac{2qV_0}{m\Omega^2 r_0^2} \quad (16)$$

$$a_x = -\frac{4qU_s}{m\Omega^2 r_0^2}; \quad a_y = \frac{4qU_s}{m\Omega^2 r_0^2}. \quad (17)$$

These solutions are stable if $0 \leq \beta_u \leq 1$. This condition defines areas in the plane defined by (a_u, q_u) : the stability regions. In practice and because of technical limitations, radiofrequency traps are operated in the lowest stability region (the one including $(0, 0)$).

The solutions of the Mathieu equation can be expanded in the lowest order approximation which requires $(|a_u|, q_u^2) \ll 1$ and implies that $\beta_u \ll 1$. In this limit $\beta_u = \sqrt{a_u + q_u^2/2}$ and

$$u(t) = U \cos(\omega_u t) \left(1 + \frac{q_u}{2} \cos \Omega t\right). \quad (18)$$

This is exactly what we would obtain using the pseudopotential well resulting from the adiabatic approximation. It says that the main motion (or macromotion) is a harmonic oscillation of frequency ω_x , perturbed by the driven radiofrequency motion (or micromotion). The amplitude of this micromotion is proportional to the harmonic oscillation amplitude and to the Mathieu equation parameter q_u .

The Mathieu equations, or more generally the equations of motion given by equation (10), are strictly true for a single ion in an ideal trap and do not include the Coulomb repulsion between ions. When several ions are trapped, the correlations between ions (often called space charge effect in its mean-field approach) can be ignored for warm enough or very dilute samples where the averaged Coulomb repulsion is low compared to the kinetic energy. The coupling parameter $\Gamma = q^2/(4\pi\epsilon_0 ak_B T)$, the ratio of the average nearest-neighbour Coulomb repulsion energy and the thermal energy, quantifies this competition between correlation and thermal motion (the usual definition sets a as the Wigner–Seitz radius and is related to the density by $4\pi na^3/3 = 1$). For low Γ ($\Gamma \ll 1$), the Coulomb repulsion can be ignored and it is relevant to use the single ion equations of motion to learn about the ion dynamics.

With laser cooling techniques, Γ as high as a few hundred can be reached. As soon as $\Gamma \geq 1$, correlations cannot be ignored to calculate dynamics or equilibrium properties of the trapped ions. This problem is widely addressed by two methods. The first one is based on computer simulations of the experiment by calculating the position and velocity of each ion by a Monte Carlo method [10], when only the statistical equilibrium is studied, or by molecular-dynamics simulations [11–13] when information about the dynamics is also required. These computer simulations are an efficient tool to calculate the crystal structure appearing in trapped ions as soon as $\Gamma \geq 100$, depending on the trapping parameter, the number of ions and the temperature [12, 14–16]. It is even possible to include buffer gas or laser Doppler cooling in the model, by an effective damping force [13, 17] or by a stochastic force induced by the momentum kicks in each collision or absorption/emission process [18]. In this paper I wish to present another method which has been developed for electrons or ions in Penning traps but which is very relevant for ions in radiofrequency traps, using a model for the atomic sample called the *non-neutral plasma*. This model uses a mean-field approach where the ion–ion Coulomb repulsion is taken into account by the total field created by the charge distribution. One can show [19] that the equilibrium state of such a system in a harmonic pseudopotential is equivalent to that of a one component plasma (OCP), a model system where the charged particles are embedded in a neutralizing background charge. It allows one to calculate the density and size of trapped charged samples in the dense and cold limit, a requirement which fits very well with laser-cooled atoms. Contrary to the molecular dynamics or Monte Carlo methods, it cannot reproduce the internal Coulomb crystal structure observed in experiments but it is of great help to scale the size of a linear trap with the desired number of ions. This is the question that I try to answer in the following section. Most of the concepts introduced here can be found in the review by Dubin and O’Neil [19] concerning the thermal equilibrium states of trapped non-neutral plasmas.

3. The mean-field approach

When a large sample is trapped, a mean-field approach can be used to study the global behaviour of the sample. This treatment has been mostly used in the context of Penning traps, for electrons or ions [20, 21] but also in 3D radiofrequency quadrupole traps (or Paul traps) [22]. In this model, a thermal equilibrium state is assumed and the sample is treated like a cold fluid. This approximation holds if the plasma size is large compared to the Debye length λ_D . This length characterizes the scale over which a mean-field approach is relevant to treat the Coulomb repulsion. It depends on the density n and temperature T of the plasma as $\lambda_D = \sqrt{k_B T \epsilon_0 / q^2 n}$ and decreases for cold and dense plasmas. The cold fluid model allows one also to calculate the aspect ratio (radius over length) of a cloud trapped in a harmonic potential [23]. These predictions have been confirmed experimentally with laser-cooled ions in a Penning trap [24] and in a linear rf quadrupole in the isotropic [25] and anisotropic [26] cases.

In the context of radiofrequency trap, the equilibrium state concept requires us to use the pseudopotential approach to represent the trapping potential. Like in the previous section, we assume a linear geometry but the same points developed here could be applied to a 3D multipole trap. To find an experimental characterization of the thermal equilibrium of an atomic cloud trapped in a 3D octopole trap, the reader should refer to [27] where the density profile is studied by means of laser-induced fluorescence resolved in space. In the linear geometry, the pseudopotential in the transverse plane of an ideal multipole is defined by (see equation (7))

$$V^*(\mathbf{r}) = \frac{q^2 V_0^2}{32 \mathcal{E}_k} \left(\frac{r}{r_0} \right)^{2k-2} + \frac{q U_s}{2} \left(\frac{r}{r_0} \right)^k \cos k\theta. \quad (19)$$

where $\mathcal{E}_k = m \Omega^2 r_0^2 / (2k^2)$ is a characteristic energy. In the following, we consider that there is no static voltage U_s applied to the rods but we take into account the static potential required for axial confinement and its effect on the transverse pseudopotential. The total effective potential becomes

$$V^*(\mathbf{r}) = \frac{q^2 V_0^2}{32 \mathcal{E}_k} \left(\frac{r}{r_0} \right)^{2k-2} + \frac{q \kappa V_{\text{end}}}{2 z_0^2} (2z^2 - r^2), \quad (20)$$

where κ is a loss factor depending on the geometry of the end electrodes relative to the rods. It includes all screening effects that can explain the reduction between the potential applied on the end electrodes V_{end} and that effectively seen by the ions. For $2k = 4$, the shape of the transverse pseudopotential remains quadratic and no major impact is expected from the transverse deconfining effect of the axial confinement. On the contrary, for $2k = 8, 12, \dots$, the shape of the pseudopotential is modified. The axis of the trap becomes an unstable position and the potential minimum is shifted to $r = r_{\text{min}}$ defined by

$$r_{\text{min}}^{2k-4} = \frac{r_0^{2k-2}}{z_0^2} \frac{16 \mathcal{E}_k \kappa V_{\text{end}}}{(k-1)q V_0^2}. \quad (21)$$

We see later that this shift of the potential minimum from the centre of the trap has no effect on the density distribution calculated in the mean-field model.

According to the work of Dubin, Driscoll, O’Neil and Prasad [19, 28, 29] and assuming the ergodic hypothesis, the thermal equilibrium state of a non-neutral plasma with non-negligible correlations can be described by the N -particle Gibbs distribution for plasmas as small as $N \geq 100$ (for smaller N , fluctuations are too big to identify the average over the microcanonical and the canonical—or Gibbs—distribution). Integrated over the N velocities and $N - 1$ positions, the Gibbs distribution gives access to the plasma density distribution $n(\mathbf{r})$:

$$n(\mathbf{r}) = \mathcal{N} \exp \left[-\frac{\mathcal{E}(\mathbf{r})}{k_B T} \right], \quad (22)$$

where \mathcal{N} is a normalization constant and $\mathcal{E}(\mathbf{r})$ is the energy of a particle at position \mathbf{r} . It results from the contribution of the confining potential $V^*(\mathbf{r}) = q\phi_T(\mathbf{r})$ and the mean-field Coulomb repulsion potential $q\phi_q(\mathbf{r})$ created by all the charges surrounding point \mathbf{r} (the image charge effect is neglected as we assume the charges are far enough from any conducting surface [30]). The normalization issue can be solved by defining the

density with respect to the density in the centre of the trap $n(\mathbf{0}) = n_0$:

$$n(\mathbf{r}) = n_0 \exp[\Psi(\mathbf{r})] \quad (23)$$

$$\Psi(\mathbf{r}) = -\frac{q}{k_B T} (\phi_T(\mathbf{r}) + \phi_q(\mathbf{r}) - \phi_T(\mathbf{0}) - \phi_q(\mathbf{0})). \quad (24)$$

The density distribution and the potential created by the charges are related by the Poisson equation

$$\Delta \phi_q(\mathbf{r}) = -\frac{qn(\mathbf{r})}{\epsilon_0}. \quad (25)$$

This system of equations is then self-consistent but one can get rid of some normalization difficulties by studying only the logarithmic density profile $\Psi(\mathbf{r})$ [28, 29] and using equations (24) and (25), one can show that

$$\Delta \Psi(\mathbf{r}) = \frac{q^2 n_0}{k_B T \epsilon_0} \left[\exp[\Psi(\mathbf{r})] - \frac{\epsilon_0}{qn_0} \Delta \phi_T \right]. \quad (26)$$

It is obvious from equation (26) that the Debye length relative to the central density $\lambda_D = \sqrt{k_B T \epsilon_0 / (q^2 n_0)}$ will be the relevant length scale for the density profile. This equation also shows that the static contribution to the effective potential V^* has no impact on the density profile as this contribution obeys the Laplace equation $\Delta \phi = 0$ and that only the pseudopotential associated with the radiofrequency field controls this profile. Equation (26) also points out the difference between quadrupoles and multipoles, regarding the density profile of a non-neutral plasma. Indeed, in the cold fluid limit ($T \rightarrow 0$), to prevent divergence of the density, $\exp[\Psi(\mathbf{r})] - \frac{\epsilon_0}{qn_0} \Delta \phi_T$ must also tend to 0 which means that $n(\mathbf{r}) \rightarrow \epsilon_0 \Delta \phi_T / q$. This equation can also be deduced from the condition for mechanical equilibrium of a shell of ions for which the trapping field balances the field created by the charges inside the shell. In our radiofrequency multipole context, this becomes

$$\lim_{T \rightarrow 0} n(r) = \frac{\epsilon_0 (k-1)^2 V_0^2}{8 \mathcal{E}_k r_0^2} \left(\frac{r}{r_0} \right)^{2k-4} \quad (27)$$

which is uniform only for the quadrupolar geometry. For higher order geometry, the density is expected to increase with the distance from the centre of the trap, leading to an empty centre and a geometry like a tube. This is confirmed by molecular dynamics simulations presented in [31] for calcium ions in an octopole.

We now want to use the differential equation (26) to scale a cloud size. It appears that the situation is very different for a quadrupole from other multipole geometries. So we first deal with quadrupole geometry, which is very close to the Penning trap configuration, and then expand our method to higher order geometry.

3.1. In a linear quadrupole

In the particular case of a linear quadrupole, the pseudopotential can be written as

$$\phi_T(r, z) = \frac{m}{2q} \omega_r^2 r^2 + \frac{m}{2q} \omega_z^2 z^2 \quad (28)$$

with $\omega_r^2 = \omega_x^2 - \omega_z^2/2$, ω_x being defined by the solution of the Mathieu equation [8]. As mentioned above, the contribution determining the density profile is

$$\Delta \phi_T(r, z) = 2 \frac{m}{q} \omega_x^2 \quad (29)$$

and does not depend on the static end voltage. The second term in the differential equation (26) is then a constant $2m\epsilon_0\omega_x^2/(q^2 n_0)$ that can be understood as the ratio of the uniform limit density $n_c = 2m\epsilon_0\omega_x^2/q^2$ that is reached for low temperature, divided by the realized central density n_0 . This ratio is bigger than 1 as the limit density n_c is the highest reachable density for a given harmonic potential. In the following, this ratio n_c/n_0 is expressed as $\gamma + 1$, γ measuring how far the system is from the uniform limit density ($\gamma > 0$). Finally, the differential equation determining the density distribution is

$$\Delta \Psi(r, z) = \frac{1}{\lambda_D^2} [\exp[\Psi(r, z)] - \gamma - 1]. \quad (30)$$

To simplify the integration, we introduce the reduced coordinates $(\rho, \xi) = (r/\lambda_D, z/\lambda_D)$ and solve

$$\Delta \Psi(\rho, \xi) = \exp[\Psi(\rho, \xi)] - \gamma - 1. \quad (31)$$

Case of a prolate cloud $L \gg R$. In the following, we assume that the cloud is prolate and the dependence of the density with z is negligible compared to its dependence with r . This simplifies the problem to the integration of a one-dimensional differential equation

$$\frac{1}{\rho} \frac{\partial \Psi}{\partial \rho} + \frac{\partial^2 \Psi}{\partial \rho^2} = \exp[\Psi(\rho)] - \gamma - 1. \quad (32)$$

To have an insight into the role of γ in this equation, it is useful to look for an approximate solution, valid close to the trap centre. For $\Psi(\rho) \ll 1$, $\exp[\Psi(\rho)] - 1 \simeq \Psi(\rho)$. In this approximation, the solution of the differential equation (32) is $\gamma(1 - I_0(\rho))$ where $I_0(\rho)$ is the modified Bessel function of order 0. Using the lowest order expansion of $I_0(\rho)$, one can deduce that for $\rho^2 \ll 4/\gamma$, $n(\rho) \simeq n_0(1 - \gamma\rho^2/4)$. So the smaller the γ , the larger (in the reduced parameter) the range where the density profile is nearly flat.

Integration of equation (32) (with the limit conditions $\Psi(0) = 0$ and $\Psi'(0) = 0$) results in the profile $\Psi(\rho)$ and its exponential $n(\rho)/n_0$ which implicitly depends on γ . To get real values for the number of trapped ions, the absolute density profile $n(r)$ and the size of the sample, one has to find other relations between the relevant functions and parameters.

- First, in the frame of our approximation, the total number of ions is

$$N = \iint n(r) 2\pi r dr dz = 2L \int n(r) 2\pi r dr \quad (33)$$

if L is the half length of the cloud. By using the reduced parameter ρ and the definition of λ_D , one can show that

$$\frac{N}{2L} = \frac{k_B T \epsilon_0}{q^2} \int \exp[\Psi(\rho)] 2\pi \rho d\rho. \quad (34)$$

This number of ions depends implicitly on the central density n_0 through the parameter $\gamma = n_c/n_0 - 1$. Here, the

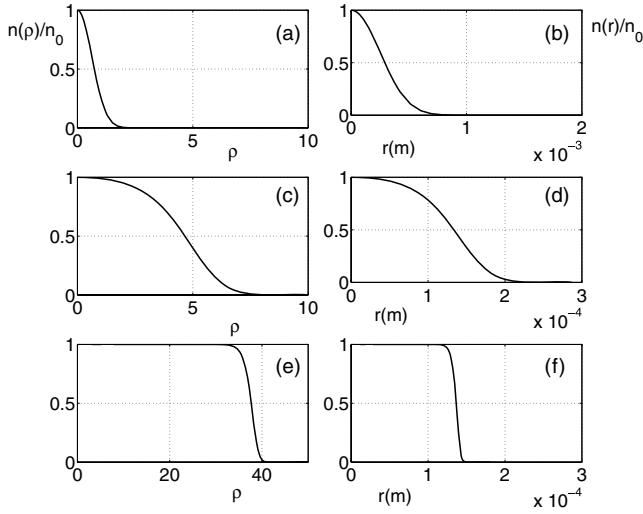


Figure 2. Density profiles versus the reduced radius ρ (**a**, **c**, **e**) or the radius r (**b**, **d**, **f**) for a prolate cloud with 10^5 ions per mm, at different temperatures (**a**, **b**: $T = 10\,000$ K, $\gamma = 5$, **c**, **d**: $T = 300$ K, $\gamma = 0.04$, **e**, **f**: $T = 5$ K, $\gamma = 10^{-15}$). The scaling factor λ_D between ρ and r is calculated for Ca^+ ions in a trap with $\omega_x/2\pi = 1$ MHz. Note that the x -axis of figure **b** has a different scale from **d** and **f**, and that the x -axis of figure **e** has a different scale from **a** and **c**.

number of ions per unit length $N/2L$, the temperature T and the central density n_0 are the three relevant parameters for the density profile problem and only two of them are free as they are related by equation (34).

- Second, to relate the two physical free parameters $N/2L$ and T to the real size of the cloud, it is useful to note that, even if λ_D does not appear explicitly in the differential equation, it is not a free parameter since

$$\frac{\lambda_D^2}{\gamma + 1} = \frac{k_B T}{2m\omega_x^2}. \quad (35)$$

As an experimentalist, one may want to know what the size of an ion cloud will be. The solution is there: for a given temperature T and a given number of ions per unit length ($N/2L$), γ has to be found to fulfil the condition fixed by equation (34). Then λ_D is deduced from equation (35) and the radial size of the cloud is given by $R = \lambda_D \rho_{\max}$. The strength of the harmonic pseudopotential $\sqrt{m}\omega_x$ plays a role only in this scaling. It becomes necessary to know its value only when the size of the cloud is required. Examples of integrated radial profiles in the reduced and full scale coordinate are shown in figure 2 for the same number of ions per unit length and the same potential well $m\omega_x^2$ but for different temperatures. This figure illustrates the differences between a warm and dilute cloud where $\rho_{\max} \simeq 1$ ($T = 10\,000$ K, cases **a** and **b**) and a colder and denser cloud where $\rho_{\max} \gg 1$ ($T = 5$ K, cases **e** and **f**), where the cold fluid model is relevant.

As mentioned above, theoretically, it is not appropriate to model warm and dilute samples by the cold fluid model, nevertheless, we can use the radial size calculated in this condition as an indication and compare it to the radius of the same sample cooled down. This is very important for

experimental issues, as the actual number of laser-cooled trapped ions can be limited by the size it takes just after or during the ionization process. Indeed, when ions are created by electron bombardment, their initial temperature can reach an order of magnitude of $10\,000$ K and comparison of plots (b, d, f) of figure 2 shows that the radial size of the same sample at $10\,000$ K is nearly 4 times the size at 300 K and 6 times the one at 5 K. This illustrates one of the advantages of photoionization over electron bombardment to ionize a neutral beam. During the photoionization [32], the ions can be continuously loaded and laser cooled and the sample never reaches as high a temperature as by electron bombardment. Then the cloud remains smaller and more ions should be loaded in a trap, with less radiofrequency heating [33, 34].

For a laser-cooled non-neutral plasma ($N/2L \geq 10^3 \text{ mm}^{-1}$, $T \leq 1$ K), or for a room temperature dense sample ($N/2L \geq 10^5 \text{ mm}^{-1}$, $T = 300$ K), γ is negligible in equation (35) which can be simplified to

$$\lambda_D^2 = \frac{k_B T}{2m\omega_x^2}. \quad (36)$$

This shows that in the cold fluid limit, for a given set (T , $N/2L$), the size of a cylindrical cloud scales as $(m\omega_x^2)^{-1/2}$.

For temperatures close to the Doppler limit, the density profile of large enough sample ($\geq 10^3 \text{ ions mm}^{-1}$) is flat and expands to values of $\rho \gg 1$. We can then approximate the density profile by $\exp[\Psi(\rho)] = 1$ for $\rho \leq \rho_{\max}$ and $\exp[\Psi(\rho)] = 0$ for $\rho > \rho_{\max}$. The relation between the number of ions and the temperature is then simplified to

$$\frac{N}{2L} = \frac{k_B T \epsilon_0}{q^2} \pi \rho_{\max}^2. \quad (37)$$

As a consequence, the radial size R of the cloud is given by

$$R = \sqrt{\frac{N}{2L}} \frac{1}{\sqrt{m}\omega_x} \sqrt{\frac{q^2}{2\pi\epsilon_0}}, \quad (38)$$

which is independent of the temperature and can be considered as the minimum limit radius R_m for a sample. This limit for the size of a prolate cold cloud is equivalent to a maximum limit for the density

$$\frac{N}{\pi R^2 2L} \rightarrow \frac{2m\omega_x^2 \epsilon_0}{q^2}, \quad (39)$$

which is of course the limit density n_c we introduced at the beginning of the text.

To have an idea of this size, for a laser-cooled non-neutral plasma of Ca^+ in a linear quadrupole trap, the limit radius is given by the following relation where $\omega_x/2\pi$ is in MHz:

$$R = \sqrt{\frac{N}{2L}} \frac{1}{\omega_x/2\pi} \times 1.31 \times 10^{-8}. \quad (40)$$

Another issue concerns the phase transition to crystals. In finite size samples like that we deal with here, the transition from the liquid to the crystal state is not abrupt. Molecular dynamics simulations [12] and experiments [33] have shown that it takes place for values of the coupling parameter Γ between 150 and 200. As the ions arrange themselves into concentric spheroidal shells, the diffusion inside a shell persists even for Γ as big as 300 [12]. To study experimentally

such phase transitions in a finite system, it is then important to make sure that Γ as high as a few hundred can be reached. For a laser-cooled dense sample, Γ reaches a maximum limit Γ_c depending on the limit density n_c ($a \rightarrow (4/3\pi n_c)^{1/3}$) and the temperature reached by the cooling:

$$\Gamma_c = \left(\frac{q^2}{4\pi\epsilon_0} \right)^{2/3} \frac{(2m\omega_x^2)^{1/3}}{k_B T}. \quad (41)$$

This relation shows that the maximum Γ that can be reached in an experiment depends on the temperature of the sample, and the harmonic pseudopotential $m\omega_x^2$. As an example, for calcium ions and for $\omega_x/2\pi$ in MHz,

$$\Gamma_c = 4.8 \frac{(\omega_x/2\pi)^{2/3}}{T}. \quad (42)$$

Several experiments [35, 36] with laser-cooled ions in linear radiofrequency traps have shown that because of heating processes such as radiofrequency heating, the Doppler limit is not reached with large samples and that an optimistic estimation for the limit temperature is 10 mK. In this condition, one has to make sure to produce a high enough ω_x to be able to explore a wide range of Γ .

All the behaviour we have just described for a quadrupole linear trap cannot be extrapolated to multipole traps because the cold fluid limit does not result in a uniform density but rather in a profile density increasing with the radius (see equation (27)). Nevertheless, we can reasonably assume a thermal equilibrium and a Gibbs distribution for multipole also. Indeed, the experimental results of the evaporation of ions from a linear 22-pole [7] are consistent with Boltzmann statistics to characterize the velocity distribution.

3.2. In a linear multipole

In this section, we use the method developed for the quadrupole linear trap in the more general case of a multipole linear trap. The differential equation governing the logarithmic density can also be written for a multipole potential, the major difference is that now the Laplacian of the pseudopotential depends on r :

$$\phi_{\text{trap}}(r, z) = \frac{qV_0^2}{32\mathcal{E}_k} \left(\frac{r}{r_0} \right)^{2k-2} - \frac{m}{4q} \omega_z^2 r^2 + \frac{m}{2q} \omega_z^2 z^2. \quad (43)$$

With the reduced parameters (ρ, ξ) as defined above, the general differential equation (26) for a multipole is

$$\Delta\Psi(\rho, \xi) = \exp[\Psi(\rho, \xi)] - \frac{\epsilon_0 V_0^2 (2k-2)^2 \lambda_D^{2k-4}}{n_0 32\mathcal{E}_k r_0^{2k-2}} \rho^{2k-4} \quad (44)$$

$$= \exp[\Psi(\rho, \xi)] - \alpha \rho^{2k-4}. \quad (45)$$

In practice, the numerical integration depends only on $\alpha = (\epsilon_0 V_0^2 (2k-2)^2 \lambda_D^{2k-4}) / (n_0 32\mathcal{E}_k r_0^{2k-2})$. The use of the reduced parameter must not hide the limit of this method which refers the density profile to the central density n_0 . This is certainly a limitation here as, from molecular dynamics simulations [31], an empty core is expected in the cold limit. We see further in the text how to interpret results obtained from this model. As the integration of Ψ does not give access directly to the central

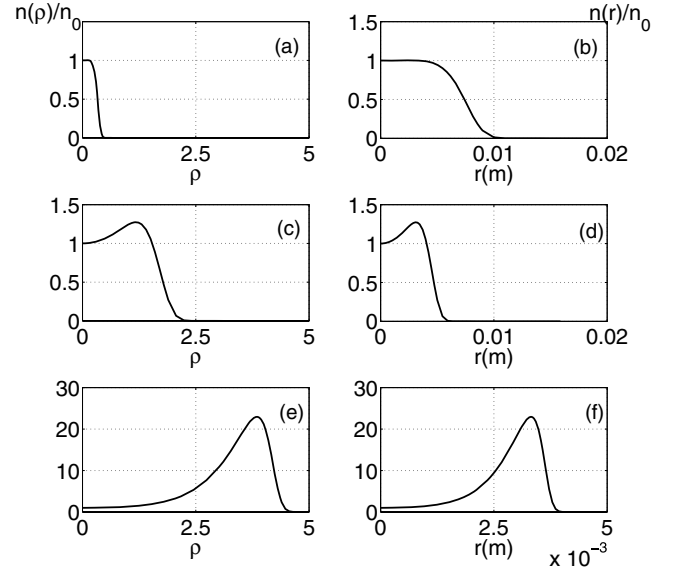


Figure 3. Density profiles versus the reduced radius ρ (a, c, e) or the radius r (b, d, f) for a prolate cloud with 1.6×10^4 ions per mm, at different temperatures (a, b : $T = 10\,000$ K, $\alpha = 19\,000$, c, d : $T = 300$ K, $\alpha = 1.8$, e, f : $T = 5$ K, $\alpha = 0.13$). The scaling factor λ_D between ρ and r is calculated for Ca^+ ions in an octopole with $r_0 = 1$ cm, $V_0 = 800$ V and $\Omega/2\pi = 10$ MHz. Note that the x -axis of figure f has a different scale from b and d.

density n_0 , to scale the size of the sample one has to use the same trick as in section 3.1, which is to find a combination of α and λ_D independent of n_0 . From the definition of λ_D , it is easy to see that α scales like n_0^{1-k} , so the good combination is

$$\frac{\lambda_D^2}{\alpha^{1/(k-1)}} = \left(\frac{32k_B T \mathcal{E}_k r_0^{2k-2}}{(2k-2)^2 q^2 V_0^2} \right)^{1/(k-1)}. \quad (46)$$

The idea of the numerical integration is the same as in section 3.1. First we assume a translation symmetry along Oz and do the integration along ρ only. Second, as the total number of ions per unit length is always defined by equation (34), the three coupled parameters are now T, α and $N/2L$. The smaller the α , the higher the number of ions for a given temperature. Then, the real size of the cloud is defined by $\lambda_D \rho_{\text{max}}$. Figure 3 shows the density profile of the same cloud in the same octopole trap but for a different temperature. For a matter of numerical integration, only profiles for clouds as big as 1.6×10^4 ions mm^{-1} at 5 K could be calculated. For a denser or colder sample, the profile is so steep that the adaptative step procedure I use for integration reached the lowest step allowed by the subroutine¹. This limitation explains why high reduced parameter ρ cannot be reached by the simulation, contrary to the quadrupole case. The main difference from the quadrupole geometry is visible for the case of lower temperature (e, f) where the density reaches a maximum more than 20 times higher than the central density. This illustrates also the limitation we mentioned above for the cold fluid model, in comparison with molecular dynamics

¹ For the figures of this paper, I used matlab and the PDE routine allowing the steepest profile was ode15s.

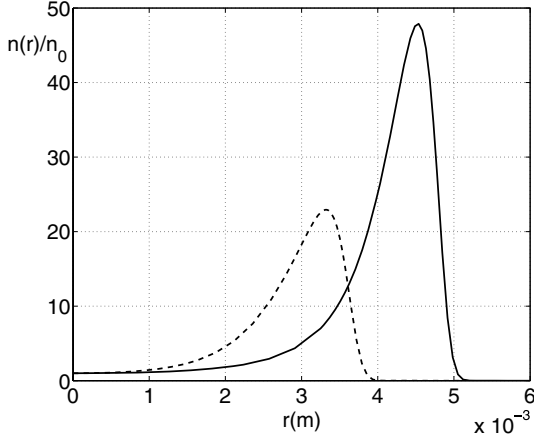


Figure 4. Density profile of a calcium cloud of 1.6×10^4 ions mm^{-1} at 5 K in two traps of different order but with the same parameters as for figure 3: $r_0 = 1$ cm, $V_0 = 800$ V and $\Omega/2\pi = 10$ MHz. Dashed line: $k = 4$, $\alpha = 0.13$, $\lambda_D = 0.86$ mm, $n_0 = 3.2 \times 10^{10} \text{ m}^{-3}$. Solid line: $k = 6$, $\alpha = 0.0056$, $\lambda_D = 1.4$ mm, $n_0 = 1.2 \times 10^{10} \text{ m}^{-3}$.

simulations [31]. Choosing the density in the centre of the trap n_0 as a reference for the density profile prevents one from finding an empty core but the high ratio between the maximum density and n_0 can be interpreted as a demonstration of this phenomenon. This effect increases with the order of the multipole as can be seen in figure 4 which shows a comparison between the density profile in a 8-pole and a 12-pole, for the same number of ions per length and the same trapping parameters. In the higher order geometry, the radial size of the cloud is 20% bigger than in the lower order geometry and the ratio of the maximum density over the central density is two times bigger. For the validity of our cold fluid model, it is worth noting that, by analogy with the quadrupole case, we defined the Debye length λ_D relatively to the central density, which results in high values for λ_D , compared to the radial size of the cloud (see figure 3 for values). Nevertheless, the relevance of our model depends on the local Debye length $\lambda_D(\rho)$ compared to the size of the sample. We can see in figure 4 that, close to the edge of the cloud, this length $\lambda_D(\rho)$ is a lot smaller than λ_D , as the local density is far higher than n_0 . Consequently, using the cold fluid model to scale such a cloud seems valid in the cold and dense limit.

As for a quadrupole, the cold fluid limit allows one to estimate the minimum size of a cloud by assuming the $T \rightarrow 0$ limit. To prevent divergence of the density at this limit, $\exp[\Psi(\rho)] - \alpha\rho^{2k-4} \rightarrow 0$, with our previous notation. The maximum reduced radius visited by the ions is then determined by the linear density $N/2L$:

$$\frac{N}{2L} = \frac{k_B T \epsilon_0}{q^2} \frac{\alpha \pi}{k-1} \rho_{\text{max}}^{2k-2}. \quad (47)$$

The dependence of the cold fluid limit radius R_m on the trapping parameters can then be expressed as

$$R_m = r_0 \left(\frac{N}{2L} \frac{8\mathcal{E}_k}{\pi \epsilon_0 (k-1) V_0^2} \right)^{1/2(k-1)}. \quad (48)$$

To put values into this equation, let us choose the case of calcium ions in an octopole ($k = 4$) and express $\Omega/2\pi$ in MHz, then

$$R_m = \left(\frac{N}{2L} \right)^{1/6} \left(\frac{(\Omega/2\pi) r_0^4}{V_0} \right)^{1/3} \times 0.45. \quad (49)$$

As an example, for $V_0 = 400$ V, $\Omega/2\pi = 1$ MHz and $r_0 = 1$ cm, the radial size of a cylindrical sample of $N/2L = 4.2 \times 10^4$ ions mm^{-1} is $R_m = 2.4$ mm in the cold fluid limit. As a comparison, at 300 K, the numerical integration gives $R = 3.8$ mm.

Also like in quadrupole traps, the set of trapping parameters is constrained by stability criterion for the trajectories of the ions. But contrary to quadrupole traps, there is no absolute criterion but one can use the local adiabaticity criterion of Teloy and Gerlich introduced in section 2.1. For a perfect multipole like that we assume here,

$$\eta_{ad} = \frac{(k-1)qV_0}{2k\mathcal{E}_k} \left(\frac{r}{r_0} \right)^{k-2}. \quad (50)$$

To be sure to remain in the adiabatic regime, we want to keep $\eta_{ad} \leq \eta_{\text{lim}}$ and then the radial size $R \leq r_{\text{max}}^{ad}$ with

$$r_{\text{max}}^{ad} = r_0 \left(\eta_{\text{lim}} \frac{2k\mathcal{E}_k}{(k-1)qV_0} \right)^{1/(k-2)}. \quad (51)$$

To have an idea of how this criterion is respected, it can be useful to compare, for a given set of trapping parameters, the smallest achievable radial size R_m and the highest allowed radius for adiabatic trajectories r_{max}^{ad} :

$$\frac{R_m}{r_{\text{max}}^{ad}} = \left(\frac{N}{L\pi\epsilon_0} \right)^{1/2(k-1)} \left(\frac{q}{k\eta_{\text{lim}}} \right)^{1/(k-2)} \times \left(\frac{k-1}{\mathcal{E}_k} \right)^{k/2(k-1)(k-2)} \left(\frac{V_0}{2} \right)^{1/(k-1)(k-2)}. \quad (52)$$

For calcium ions in an octopole, this becomes

$$\frac{R_m}{r_{\text{max}}^{ad}} = \left(\frac{N}{2L} \frac{V_0}{\eta_{\text{lim}}^3 r_0^4 \Omega^4} \right)^{1/6} \times 12.9. \quad (53)$$

As an example, for the same parameters as above ($V_0 = 400$ V, $\Omega/2\pi = 1$ MHz, $r_0 = 1$ cm) and for the same number of ions per unit length $N/2L = 4.2 \times 10^4$ ions mm^{-1} , $R_m/r_{\text{max}}^{ad} = 0.75$ and the adiabaticity criterion is obeyed over all the cold sample (we used $\eta_{\text{lim}} = 0.3$ here).

By looking at equations (46), (48) and (52), one can note that if the ratio Ω/V_0 is conserved, the absolute radial size is also conserved but not the ratio R_m/r_{max}^{ad} . In practice, by substituting Ω/V_0 by $2\Omega/2V_0$, R_m/r_{max}^{ad} is reduced by a factor $\sqrt{2}$. One can use this difference in behaviour to scale ones trap and make sure that the desired sample fits inside the adiabatic volume.

4. Conclusion

In this paper, we have described the dynamics of charged particles in a radiofrequency trap in a very general manner to point out the differences between the dynamics in a quadrupole and in a multipole trap. When dense samples are trapped, the dynamics is modified by the Coulomb repulsion between ions.

To take into account this repulsion in the equilibrium state of the cloud, we use a method that models the ion cloud as a cold fluid. In the case of prolate clouds, it allows one to scale the size of the samples with the trapping parameters and the number of trapped ions, for different linear geometries of trap. We think this can be useful to build an experiment where a large number of ions needs to be trapped.

Acknowledgments

The author would like to thank several collaborators for their help and precious advice during the writing of this paper, Masatoshi Kajita, Martina Knoop, Jofre Pedregosa, Richard Thompson and Fernande Vedel.

References

- [1] Prestage J D, Tjoelker R L and Maleki L 2001 Frequency measurement and control: advanced techniques and future trends *Recent Developments in Microwave Ion Clocks* (Berlin: Springer) (chapter)
- [2] Prestage J D and Weaver G L 2007 Atomic clocks and oscillators for deep-space navigation and radio science *Proc. IEEE* **95** 2235
- [3] Telyo E and Gerlich D 1974 Integral cross sections for ion–molecule reactions: I. The guided beam technique *Chem. Phys.* **4** 417–27
- [4] Mikosch J, Kreckel H, Wester R, Plašil R, Glosík J, Gerlich D, Schwalm D and Wolf A 2004 Action spectroscopy and temperature diagnostics of H_3^+ by chemical probing *J. Chem. Phys.* **121** 11030–7
- [5] Gerlich D 1992 Inhomogeneous rf fields: a versatile tool for the study of processes with slow ions *State-Selected and State-to-State Ion–Molecule Reaction Dynamics: Part I* (*Advances in Chemical Physics Series* vol 82) ed C-Y Ng and M Buer (New York: Wiley)
- [6] Mikosch J, Frühling U, Trippel S, Otto R, Hlavenka P, Schwalm D, Weidemüller M and Wester R 2008 Evaporation of trapped anions studied with a 22-pole ion trap in tandem time-of-flight configuration *Phys. Rev. A* **78** 023402
- [7] Mikosch J, Frühling U, Trippel S, Schwalm D, Weidemüller M and Wester R 2007 Evaporation of buffer-gas-thermalized anions out of a multipole rf ion trap *Phys. Rev. Lett.* **98** 223001
- [8] Ghosh P K 2005 *Charged Particle Traps* (Oxford: Oxford University Press)
- [9] Major F G, Gheorghe V N and Werth G 2005 *Charged Particle Traps* (Berlin: Springer)
- [10] Pollock E L and Hansen J P 1973 Statistical mechanics of dense ionized matter: II. Equilibrium properties and melting transition of the crystallized one-component plasma *Phys. Rev. A* **8** 3110–22
- [11] Rahman A and Schiffer J P 1986 Structure of a one-component plasma in an external field: a molecular-dynamics study of particle arrangement in a heavy-ion storage ring *Phys. Rev. Lett.* **57** 1133–6
- [12] Dubin D H E and O’Neil T M 1988 Computer simulation of ion clouds in a Penning trap *Phys. Rev. Lett.* **60** 511–4
- [13] Prestage J D, Williams A, Maleki L, Djomehri M J and Harabetian E 1991 Dynamics of charged particles in a Paul radio-frequency quadrupole trap *Phys. Rev. Lett.* **66** 2964–7
- [14] Schiffer J P, Drewsen M, Hangst J S and Hornekaer L 2000 Temperature, ordering, and equilibrium with time-dependent confining force *Proc. Natl Acad. Sci.* **97** 10697
- [15] Drewsen M, Brodersen C, Hornekaer L, Hangst J S and Schiffer J P 1998 Large ion crystals in a linear Paul trap *Phys. Rev. Lett.* **81** 2878–81
- [16] Zhang C B, Offenbergh D, Roth B, Wilson M A and Schiller S 2007 Molecular-dynamics simulations of cold single-species and multispecies ion ensembles in a linear Paul trap *Phys. Rev. A* **76** 012719
- [17] Schiller S and Lämmerzahl C 2003 Molecular dynamics simulation of sympathetic crystallization of molecular ions *Phys. Rev. A* **68** 053406
- [18] Walther H 1993 Phase transition of stored laser-cooled ions *Advances in Atomic, Molecular, and Optical Physics* vol 31 (New York: Academic) p 137
- [19] Dubin D H E and O’Neil T M 1999 Trapped non-neutral plasmas, liquids, and crystals (the thermal equilibrium states) *Rev. Mod. Phys.* **71** 87
- [20] Davidson R C 1974 Theory of non-neutral plasmas *Frontiers in Physics* (Reading, MA: Benjamin)
- [21] Ichimaru S 1982 Strongly coupled plasmas: high-density classical plasmas and degenerate electron liquids *Rev. Mod. Phys.* **54** 1017–59
- [22] Cutler L S, Flory C A, Giffard R P and McGuire M D 1986 Doppler effects due to thermal macromotion of ions in an rf quadrupole trap *Appl. Phys. B* **39** 251
- [23] Turner L 1987 Collective effects on equilibria of trapped charged plasmas *Phys. Fluids* **30** 3196
- [24] Brewer L R, Prestage J D, Bollinger J J, Itano Wayne M, Larson D J and Wineland D J 1988 Static properties of a non-neutral $^9\text{Be}^+$ -ion plasma *Phys. Rev. A* **38** 859–73
- [25] Hornekaer L, Kjaergaard N, Thommesen A and Drewsen M 2001 Structural properties of two-component Coulomb crystals in linear Paul traps *Phys. Rev. Lett.* **86** 1994
- [26] Frölich U, Roth B and Schiller S 2005 Ellipsoidal Coulomb crystals in a linear radio-frequency trap *Phys. Plasmas* **12** 073506
- [27] Walz J, Siemers I, Schubert M, Neuhauser W, Blatt R and Telyo E 1994 Ion storage in the rf octupole trap *Phys. Rev. A* **50** 4122–32
- [28] O’Neil T M and Driscoll C F 1979 Transport to thermal equilibrium of a pure electron plasma *Phys. Fluids* **22** 266
- [29] Prasad S A and O’Neil T M 1979 Finite length thermal equilibria of a pure electron plasma column *Phys. Fluids* **22** 278
- [30] Dubin D H E 1993 Equilibrium and dynamics of uniform density ellipsoidal non-neutral plasmas *Phys. Fluid B* **5** 295
- [31] Okada K, Yasuda K, Takayanagi T, Wada M, Schuessler H A and Ohtani S 2007 Crystallization of Ca^+ ions in a linear rf octupole ion trap *Phys. Rev. A* **75** 033409
- [32] Kjaergaard N, Hornekaer L, Thommesen A M, Videsen Z and Drewsen M 2000 Isotope selective loading of an ion trap using resonance-enhanced two-photon ionization *Appl. Phys. B* **71** 207
- [33] Hornekaer L and Drewsen M 2002 Formation process of large ion Coulomb crystals in linear Paul traps *Phys. Rev. A* **66** 013412
- [34] Ryjkov V L, Zhao X and Schuessler H A 2005 Simulations of the rf heating rates in a linear quadrupole ion trap *Phys. Rev. A* **71** 033414
- [35] Mølhave K and Drewsen M 2000 Formation of translationally cold MgH^+ and MgD^+ molecules in an ion trap *Phys. Rev. A* **62** 011401
- [36] Roth B, Ostendorf A, Wenz H and Schiller S 2005 Production of large molecular ion crystals via sympathetic cooling by laser-cooled Ba^+ *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **38** 3673

IV.1.2 Conception d'une expérience : choix des paramètres dimensionnants

L'enjeu ici est de définir les paramètres pertinents définissant le piège double envisagé pour l'expérience en construction, à partir des lois d'échelle démontrées dans l'article qui précède. Le piège contient une partie quadrupolaire où, à priori, les ions seront créés, et dans le prolongement de l'axe de symétrie, une partie octopolaire (voir l'allure d'un tel piège sur la figure IV.1). Le

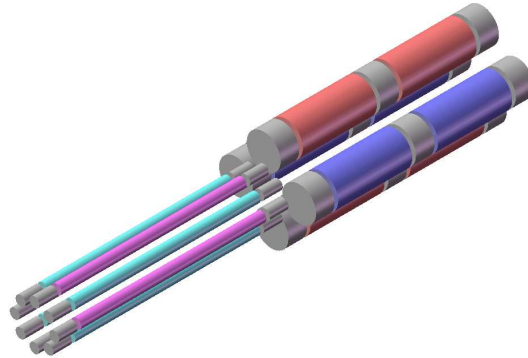


Figure IV.1 : Vue en perspective du piège double en construction dans l'équipe. Au premier plan, un octupôle linéaire, au deuxième plan un quadrupôle linéaire de même diamètre intérieur. Les deux parties sont faites de barreaux cylindriques, de tailles différentes. Les barreaux sont connectés alternativement à $+V_0/2 \cos(\Omega t)$ et $-V_0/2 \cos(\Omega t)$ mais la fréquence et l'amplitude du potentiel rf sont différents pour les deux parties (dessin de Jofre Pedregosa).

refroidissement laser pourra être réalisé dans les deux parties et les ions pourront être transférés d'une partie à l'autre par application de tensions statiques variables le long de l'axe Oz . Nous avons l'ambition de confiner et transférer jusqu'à 10^7 ions car c'est à partir de ce nombre d'ions qu'une horloge micro-onde atteint des performances compétitives. Une autre facette du travail expérimental qui sera mené dans cette nouvelle expérience concerne les transitions de phase (gaz/liquide et liquide/cristal) en quadrupole et multipole. Ces études n'ont pas besoin d'un tel nombre d'ions pour être intéressantes mais le piège est dimensionné pour pouvoir accueillir 10^7 ions à 300 K comme à 10 mK. Un de nos objectifs dans l'étude de ces transitions de phase dans un quadrupole est de caractériser expérimentalement le changement de phase cristalline quand les effets de taille finie deviennent négligeables. Pour un petit nombre d'ions ($\leq 10^4$), des ions froids dans un potentiel harmonique s'organisent en couches concentriques (pelures d'oignon), le rapport de forme de ces couches étant définies par la forme du potentiel en 3D⁹³⁻⁹⁵. Quand le nombre d'ions augmente, les effets de taille finie sont atténués au centre du cristal et des études numériques de dynamique moléculaire (DM) en quadrupole isotrope (3D) ont montré^{96,97} qu'à partir de $2 \cdot 10^4$ ions, une structure qui possède un cœur de symétrie cubique centrée (cc, bcc en anglais), enrobé de quelques couches concentriques devient plus stable qu'un ensemble complet de couches concentriques. Néanmoins, M. Drewsen et ses collaborateurs⁹⁸ ont observé dans leur quadrupole linéaire une structure présentant la phase cc au centre avec seulement un nombre d'ions de l'ordre de 10^3 . Des simulations de DM du mouvement des ions dans le piège de cette expérience ont montré que cette structure est métastable et ne correspond pas au minimum absolu

d'énergie. Il reste donc encore beaucoup à explorer dans ce domaine particulier des transitions de phase en piège quadrupolaire.

Par ailleurs, les transitions de phase en multipôles ont jusqu'ici été peu étudiées car les températures et densités atteintes par le refroidissement par collisions avec un gaz tampon ne permettent d'atteindre la phase cristalline. Les seuls travaux expérimentaux concernant des ions refroidis par laser en multipôle ont été réalisés par Okada et ses collègues^{11,12} et concernent des échantillons encore petits ($N \leq 10^4$) d'ions calcium. La nature des cristaux observés laissent penser que malgré la nature octopolaire du piège, le potentiel confinant n'a pas le profil attendu et la comparaison entre calculs de DM et observations expérimentales doit être poursuivie. Le profil du potentiel de confinement a une grande influence sur la structure des cristaux car, comme il est décrit dans l'article précédent (en IV.1.1), la densité des échantillons froids reflète le laplacien du pseudo-potentiel ($n(\mathbf{r}) \propto \Delta V^*(\mathbf{r})$). Dans un multipôle, la structure attendue est donc une structure creuse au centre, dont la densité augmente avec la distance au centre. Ces structures en tubes bouchés ou cigares creux ont été démontrées par des calculs de DM en piège linéaire¹¹ et des calculs de type Monte-Carlo en piège isotrope⁸⁶.

1.2.1 Définition du piège quadrupolaire

Un des objectifs dans la conception du piège est d'y limiter le chauffage radiofréquence qui s'oppose au refroidissement laser et qui peut aller jusqu'à induire une perte d'ions quand le gain en énergie cinétique ne peut être compensé. On appelle chauffage rf l'augmentation d'énergie cinétique du macro-mouvement par transfert d'énergie depuis la source rf. Les causes du chauffage rf sont beaucoup mieux identifiées dans un quadrupôle que dans un multipôle et sont associées aux collisions entre les ions eux mêmes et avec les atomes du gaz résiduel et aux défauts du piège qui induisent des termes anharmoniques dans l'équation du potentiel. Dans un quadrupôle, la première étape pour limiter ce chauffage est de réduire au mieux les anharmonicités du piège^{99,22,20,100}. En effet, les termes anharmoniques dans l'équation du potentiel rf induisent des résonances non linéaires entre les différentes fréquences propres du mouvement et la radio-fréquence. Nous avons traité cette problématique lors de la conception du quadrupôle pour réduire les contributions anharmoniques dans le plan radial aussi bien que le long de l'axe de symétrie, sur des distances utiles atteignant la moitié des dimensions du piège, les résultats que nous avons obtenus sont exposés dans une publication¹⁰¹.

Pour limiter l'influence des termes anharmoniques néanmoins présents, il faut confiner les ions au plus proche de l'axe du piège pour éviter qu'ils visitent les zones où les anharmonicités sont les plus importantes, c'est-à-dire limiter R/r_0 (R est le rayon du nuage et r_0 le rayon intérieur du piège). Il faut également limiter le chauffage rf intrinsèque, qui existe même quand le piège est idéal, et qui est dû aux déformations du potentiel effectif vu par un ion induites par la répulsion coulombienne entre ions^{102,103,89}. Ceci est assuré par le choix d'un fonctionnement du quadrupôle caractérisé par un paramètre de Mathieu q_x petit ($q_x \leq 0.3$). Le choix de ce paramètre de fonctionnement permet d'assurer un régime adiabatique aux trajectoires des ions. Le paramètre de Mathieu q_x , ne dépend que des paramètres du piège et du rapport q/m de l'ion :

$$q_x = \frac{2qV_0}{m\Omega^2 r_0^2}. \quad (\text{IV.7})$$

Dans la pratique, il faut maintenir $q_x \geq 0.1$ pour s'assurer des trajectoires stables même avec un

piège non idéal. Plus q_x est faible, plus le chauffage rf est faible aussi.

Finalement, les deux contraintes sur la partie quadrupolaire ne sont pas indépendantes puisque l'équation qui caractérise la taille d'un nuage long, à la limite des basses températures^d peut être réécrite comme

$$\frac{R}{r_0} \propto \sqrt{\frac{N}{2L}} \frac{1}{\sqrt{q_x V_0}}. \quad (\text{IV.8})$$

Cette équation, qui ne dépend pas explicitement de la masse des ions, résume la stratégie qui doit guider le choix des paramètres pertinents. Le compromis $q_x V_0$ est fixé par le nombre d'ions par unité de longueur visé pour le nuage ainsi que par sa taille relative, q_x seul étant contraint par les arguments d'adiabaticité présentés plus haut. La masse de l'ion piégé intervient ensuite explicitement lors du choix des deux autres paramètres définissant le piège, Ω et r_0 , par

$$\Omega r_0 = \sqrt{\frac{2q}{m}} \sqrt{\frac{V_0}{q_x}}. \quad (\text{IV.9})$$

On voit que pour un nombre d'ions et une taille relative équivalentes, le produit Ωr_0 est d'autant plus petit, et donc techniquement plus accessible, quand la masse de l'ion piégé est élevée.

Le modèle de fluide continu utilisé pour cette étude permet d'obtenir une expression analytique pour le rayon extérieur du nuage seulement à la limite des basses températures (en dessous de quelques K). La comparaison de ces valeurs avec les résultats de l'intégration numérique du profil de densité, pour un nuage à 300K, montre que le rayon extérieur est alors majoré d'un facteur d'environ 20 %. Dans la suite, ce coefficient de majoration est noté α , et la taille relative du nuage à 300 K s'écrit alors

$$\frac{R}{r_0} = (1 + \alpha) \sqrt{\frac{N}{2L}} \sqrt{\frac{2q}{\pi \epsilon_0}} \frac{1}{\sqrt{V_0 q_x}} = (1 + \alpha) \sqrt{\frac{N}{2L}} \frac{1}{\sqrt{V_0 q_x}} \times 1,1 \cdot 10^{-4}. \quad (\text{IV.10})$$

Pour maximiser le taux de collection des photons émis par les ions et limiter l'effet des imperfections du piège, le choix a été fait de maintenir $R/r_0 \leq 0.25$ et de pouvoir atteindre une densité linéique $N/2L$ supérieure à 10^6 ions/mm pour limiter la longueur du nuage à 1 cm, tout ceci dans un régime adiabatique. Ceci se traduit par

$$q_x V_0 \geq 279 \quad \text{et} \quad 0.1 < q_x < 0.3. \quad (\text{IV.11})$$

Les deux autres paramètres sont alors contraints par la relation

$$\Omega(\text{MHz}) \times r_0(\text{mm}) = 2,2 \sqrt{\frac{V_0}{q_x m}}, \quad (\text{IV.12})$$

Exploiter le refroidissement laser et étudier les transitions de phase vers des cristaux coulombiens imposent des contraintes plus exigeantes que celles régissant les études préliminaires à la réalisation d'une horloge micro-onde. Ces contraintes concernent la raideur du pseudo-potentiel dans le piège, qui doit être suffisamment élevée pour assurer des densités d'ions à basse température permettant d'atteindre la transition de phase vers une phase organisée. Le paramètre

^déquation (38) de l'article précédent

pertinent qui contrôle cette transition est le paramètre de couplage Γ_p des plasmas. Il est défini comme le rapport entre l'énergie coulombienne entre plus proches voisins et l'énergie d'agitation thermique:

$$\Gamma_p = \frac{q^2}{4\pi\epsilon_0 a_{WS} k_B T} \quad (\text{IV.13})$$

où a_{WS} est la distance entre plus proche voisin et pour un système isotrope et homogène est la distance de Wigner-Seitz $(4\pi n/3)^{-1/3}$. Il a été démontré théoriquement¹⁰⁴ qu'un système coulombien infini subit une transition de phase liquide/cristal à $\Gamma_p \sim 173$. Mais pour un système fini, le Γ_p de la transition augmente quand la taille diminue⁹⁷, et les expériences ont montré une phase organisée (mais avec de la diffusion dans la structure) pour des Γ_p estimés entre 150 et 200. Pour étudier ces transitions de phase et les caractéristiques des structures formées, il est donc nécessaire d'atteindre des Γ_p suffisants. Dans un pseudo-potential harmonique que l'on peut décrire comme

$$V^* = \frac{1}{2}m(\omega_x^2 - \omega_z^2/2)x^2 + \frac{1}{2}m(\omega_x^2 - \omega_z^2/2)y^2 + \frac{1}{2}m\omega_z^2 z^2 \quad (\text{IV.14})$$

où ω_x est la fréquence séculaire déduite des équations de Mathieu, la densité à température nulle est simplement^e $n_c = 2m\epsilon_0\omega_x^2/q^2$. Le paramètre de couplage à la limite froide peut alors s'exprimer en fonction de la raideur du pseudo-potential et de la température comme

$$\Gamma_p = \left(\frac{q^2}{4\pi\epsilon_0} \right)^{2/3} \frac{(2m\omega_x^2/3)^{1/3}}{k_B T}. \quad (\text{IV.15})$$

Les simulations numériques^{89f} ainsi que les expériences montrent que la température la plus basse accessible par refroidissement Doppler est de l'ordre de 10 mK, à cause des sources de chauffage, principalement le chauffage radio-fréquence. Pour atteindre un paramètre Γ_p de 200 pour un nuage d'ions calcium à 10 mK, il faut une raideur de piège supérieure à $2\pi \times 470$ kHz.

Pour des raisons techniques, nous sommes limités en fréquence car il est très difficile de réaliser des tensions de grandes amplitudes à grandes fréquences (la tension nécessaire croissant comme le carré de la fréquence) sur des charges capacitives telles que des pièges linéaires⁸. Nous avons donc choisi $q_x = 0.3$ et $\Omega/2\pi = 5.5$ MHz pour un rayon interne du piège quadropolaire de $r_0 = 4$ mm. Il faut alors fournir une différence de potentiel rf entre électrodes voisines de 1250 V pour obtenir les conditions décrites plus haut pour un nombre d'ions par unité de longueur de 10^6 ions/mm. Toutes ces contraintes sont résumées sur les abaques de la figure IV.2 qui montre que pour ce choix, le rayon attendu pour un nuage froid de 10^6 ions/mm est inférieur à 15% du rayon du piège et que la fréquence séculaire des ions calcium y sera de 550 kHz pour un paramètre de couplage supérieur à 200 à 10 mK.

La raideur du piège selon Oz nécessaire au confinement de 10^7 ions peut être déduite du modèle de goutte chargée⁹³ qui lie le rapport d'aspect $\rho = R/L$ d'un plasma froid au rapport d'aspect ω_z^2/ω_r^2 du potentiel harmonique de confinement. Pour un nuage allongé ($R \ll L$),

^evoir l'article précédent pour la démonstration ou écrire l'équilibre mécanique d'une coquille du nuage

^fet aussi celles de DM réalisées par M. Marcianté, doctorant

⁸La capacité équivalente à un piège linéaire, quadropole ou multipole varie de 20 à 40 pF pour les dimensions qui nous concernent

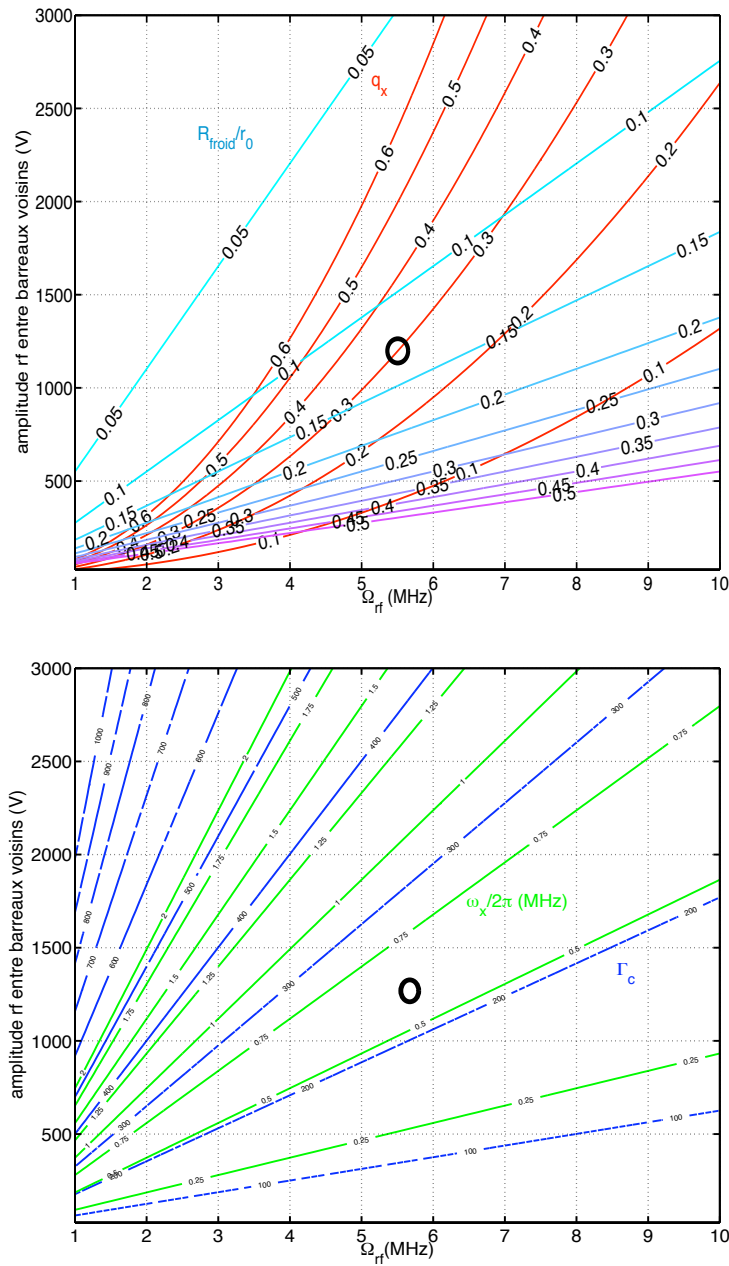


Figure IV.2 : Valeurs des paramètres contraignants pour un nuage de 10^6 ions/mm de calcium piégé dans un quadrupole linéaire de rayon intérieur $r_0 = 4$ mm, en fonction de la fréquence $\Omega/2\pi$ et de l'amplitude rf V_0 . En haut, lignes iso- q_x (en rouge) et iso- R/r_0 (en dégradé bleu) dans la limite d'un nuage dense et froid. En bas, lignes iso- Γ_c (en bleu-) et lignes iso- ω_x (MHz) en vert. Le rond noir indique le point de fonctionnement choisi pour l'expérience.

hypothèse dans laquelle nous nous plaçons dans tout ce chapitre, ce rapport d'aspect trouve une forme simplifiée en

$$\frac{\omega_z^2}{\omega_r^2} \simeq 2\rho^2 (\ln 2 - \ln \rho - 1). \quad (\text{IV.16})$$

Avec un nuage de 10^6 ions/mm, on peut estimer à 10 mm la longueur du nuage, soit un rapport d'aspect ρ de l'ordre de 1/10. Un tel rapport d'aspect nécessite un confinement axial $\omega_z = 0.2\omega_r$ soit $2\pi \times 120$ kHz avec les paramètres choisis.

1.2.2 Définition du piège octopolaire

L'analyse de la partie multipolaire du piège se présente de façon un peu différente car on ne peut pas définir un paramètre contrôlant la stabilité des trajectoires, tel que le coefficient q_x en quadrupôle. En effet, dans les géométries d'ordre supérieur au quadrupôle, la stabilité des trajectoires dépend de leurs conditions initiales et il n'est possible de définir qu'un paramètre d'adiabaticité η_{ad} , qui est de plus un paramètre local :

$$\eta_{ad}(r) = \frac{k(k-1)qV_0}{m\Omega^2 r_0^2} \left(\frac{r}{r_0}\right)^{k-2} \quad (\text{IV.17})$$

où $2k$ est le nombre de pôles du piège. Si on appelle r_{max}^{ad} le rayon limite pour lequel η_{ad} atteint la valeur limite η_{lim} que l'on s'autorise, les deux critères de dimensionnement que nous avons exposés dans la partie précédente concernant la taille relative et l'adiabaticité des trajectoires se traduisent maintenant par

$$\frac{R}{r_0} = (1 + \alpha) \left(\frac{N}{2L} \frac{4m\Omega^2 r_0^2}{\pi\epsilon_0 k^2 (k-1)V_0^2} \right)^{1/2(k-1)} < 0.25 \quad (\text{IV.18})$$

et

$$r_{max}^{ad} = r_0 \left(\eta_{lim} \frac{m\Omega^2 r_0^2}{k(k-1)qV_0} \right)^{1/(k-2)} \geq R \quad (\text{IV.19})$$

où α est toujours la majoration de la taille radiale du nuage entre un calcul à 300 K et la limite basse température. Dans un multipôle, ce facteur atteint 50 % pour des nuages peu denses (de l'ordre de 10^4 ions par mm) et il est de l'ordre de 20 % pour des densités de l'ordre de 10^5 ions par mm. Des études numériques et expérimentales ont montré que $\eta_{lim} = 0.3$ assurait l'adiabaticité des trajectoires des ions⁷⁰.

Avec des amplitudes rf de l'ordre de 1500 V, les nombres d'ions par unité de longueur $N/2L$ accessibles en multipôle sont plus faibles que ceux accessibles en quadrupôle, typiquement d'un facteur 4 ou 5. Avec un nombre de pôles augmentant, les densités accessibles et l'ouverture optique du piège sont de plus en plus faibles et nous avons fait le choix d'un multipôle d'ordre le plus faible ($2k = 8$) et la densité maximale visée est 4 fois plus faible que celle visée dans le quadrupôle (2.5×10^5 ions/mm). Dans la pratique, pour des ions de calcium et un piège linéaire octopolaire, la taille radiale du nuage est

$$R = r_0(1 + \alpha) \left(\frac{N}{2L}\right)^{1/6} \left(\frac{(\Omega/2\pi)r_0}{V_0}\right)^{1/3} \times 0,45 \quad (\text{IV.20})$$

et le rapport entre cette taille et le rayon maximal où le critère d'adiabaticité est observé est

$$\frac{R}{r_{max}^{ad}} = (1 + \alpha) \left(\frac{N}{2L} \frac{V_0}{\eta_{lim}^3 r_0^4 \Omega^4} \right)^{1/6} \times 12.9. \quad (IV.21)$$

Le comportement différent de ces deux rapports avec les paramètres de piégeage permet de trouver une zone de fonctionnement qui obéit à toutes les contraintes fixées. En ce qui concerne les transitions de phase, il y a peu d'études analytiques sur ce sujet, la densité n'étant pas uniforme à basse température. Les études numériques en octopole isotrope⁸⁶ montrent que les nombres d'ions pertinents pour l'étude de ces effets se situent entre 10^3 et 10^5 , un plus grand nombre d'ions entraînant la fusion du système par l'intérieur. Comme le piège est dimensionné pour accueillir 10^7 ions à 300 K, l'étude des transitions de phase n'impose a priori, pas de contraintes supplémentaires. Pour des questions de passage de faisceaux laser et de transfert d'ions, nous gardons le même rayon interne de 4 mm pour la deuxième partie du piège. La figure IV.3 permet d'appréhender la stratégie de compromis à suivre, car elle rassemble sur un même abaque les deux contraintes énoncées plus haut. La zone de choix possible est beaucoup plus restreinte que

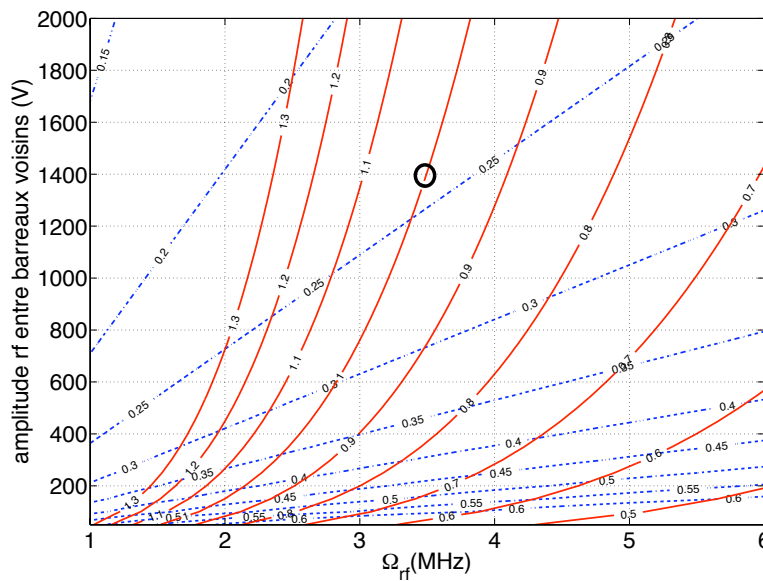


Figure IV.3 : Valeurs des paramètres contraignants pour un nuage de 2.5×10^5 ions/mm de calcium piégé dans un octopole linéaire de rayon intérieur $r_0 = 4$ mm, en fonction de la fréquence $\Omega/2\pi$ et de l'amplitude rf V_0 . Lignes iso- R/r_0 (en pointillé bleu) et lignes iso- R/r_{max}^{ad} (en rouge) dans la limite d'un nuage dense et froid. Le rond noir indique le point de fonctionnement choisi pour l'expérience.

pour un quadrupole et a le mauvais goût de s'étendre vers les grandes différences de potentiel rf. Nous avons choisi pour l'expérience la solution requérant le plus faible tension rf : sa fréquence est de $\Omega/2\pi = 3.5$ MHz et son amplitude entre électrodes voisines doit atteindre 1400 V pour satisfaire à nos contraintes, avec un nombre d'ions par unité de longueur de 2.5×10^5 ions/mm.

IV.1.3 Théorème du Viriel et répartition des énergies potentielles

Nous nous intéressons ici à la répartition de l'énergie totale du système {ions piégés} entre l'énergie cinétique E_C , l'énergie potentielle d'interaction coulombienne E_P^{Coul} et l'énergie potentielle associée au potentiel de confinement. Pour cette étude qui suppose un équilibre thermodynamique et des moyennes temporelles, il est pertinent de prendre en compte le confinement rf par l'intermédiaire de son pseudo-potentiel. Nous supposons donc ici que l'approximation adiabatique est vérifiée et nous décomposons l'énergie potentielle associée au confinement en énergie potentielle associée au potentiel continu $E_{P_{dc}}$ et au pseudo-potentiel rf $E_{P_{rf}}^*$. Le développement suivant est valide pour un quadrupole aussi bien que pour un multipole. Le théorème du Viriel, qui suppose un système à l'état stationnaire dont le barycentre est immobile, permet de relier les moyennes dans le temps (représentées par une barre) de l'énergie cinétique du système à celle de son Viriel \mathcal{V} par

$$\overline{E_C} = -\frac{1}{2}\overline{\mathcal{V}} \quad (IV.22)$$

où le Viriel est la somme sur les particules i du produit scalaire $\mathbf{f}_i \cdot \mathbf{r}_i$ de la force qui s'exerce sur cette particule et de sa position par rapport à un référentiel fixe. Le Viriel a deux contributions, celle des forces de répulsion coulombienne :

$$\overline{\mathcal{V}_{Coul}} = \overline{E_P^{Coul}} \quad (IV.23)$$

et celle associée au potentiel de confinement. Pour un pseudo-potentiel correspondant à un piège linéaire d'ordre $2k$ et de forme générale en αr^{2k-2} associé à un potentiel statique $\beta(z^2 - r^2/2)$ ($r^2 = x^2 + y^2$), le Viriel s'écrit

$$\overline{\mathcal{V}_{pp}} = -(2k - 2)\overline{E_{P_{rf}}^*} - 2\overline{E_{P_{dc}}} \quad (IV.24)$$

et le théorème du Viriel implique alors que

$$\overline{E_C} = -\frac{1}{2}\overline{E_P^{Coul}} + (k - 1)\overline{E_{P_{rf}}^*} + \overline{E_{P_{dc}}}. \quad (IV.25)$$

Pour les températures accessibles par refroidissement laser Doppler de larges échantillons (typiquement quelques dizaines de mK), l'énergie cinétique $\overline{E_C}$ est négligeable devant l'énergie coulombienne (paramètre plasma $\Gamma \geq 100$) et l'énergie de confinement. Le théorème du Viriel résulte en l'égalité suivante :

$$\overline{E_P^{Coul}} = (2k - 2)\overline{E_{P_{rf}}^*} + 2\overline{E_{P_{dc}}}. \quad (IV.26)$$

Par ailleurs, on montre dans l'article reproduit en IV.1.1, par des considérations thermodynamiques, que dans la limite de température nulle, le profil de densité d'un nuage piégé doit exactement épouser la distribution de charges qui produirait le pseudo-potentiel :

$$\lim_{T \rightarrow 0} n(\mathbf{r}) = \frac{\epsilon_0}{q^2} \Delta V^*(\mathbf{r}) = \frac{\epsilon_0}{q^2} \alpha (2k - 2)^2 r^{2k-4}. \quad (IV.27)$$

Cette équation peut aussi être obtenue en supposant l'équilibre mécanique de chaque section du nuage et en écrivant l'équilibre des forces sur une tranche le long de l'axe Oz et sur un anneau de

rayon fixé. Les énergies potentielles impliquées dans le théorème du Viriel dépendent du profil de densité par

$$\begin{aligned} E_{P_{rf}}^* &= \iiint d\mathbf{r} n(\mathbf{r}) V^*(\mathbf{r}), \\ E_{P_{dc}} &= \iiint d\mathbf{r} n(\mathbf{r}) V_{dc}(\mathbf{r}). \end{aligned} \quad (\text{IV.28})$$

En incluant le profil de densité en multipole, donné par l'équation (IV.27), on trouve

$$E_{P_{rf}}^* = 2L \frac{2\pi\epsilon_0}{q^2} \alpha^2 (k-1) R^{4k-4} = \frac{N^2}{2L} \frac{q^2}{4\pi\epsilon_0} \frac{1}{2(k-1)}. \quad (\text{IV.29})$$

où N est toujours le nombre d'ions et $2L$ la longueur du nuage le long de l'axe Oz . Il faut ici remarquer que l'énergie potentielle de confinement dans le pseudo-potential ne dépend pas explicitement des caractéristiques de ce potentiel mais seulement du nombre d'ions confinés et de la longueur de l'échantillon. Ce résultat est à rapprocher du résultat de J. Prestage *et al.*⁷⁴ concernant l'effet Doppler du deuxième ordre induit par le micro-mouvement $\delta f_{D2} = -f_0 \langle \bar{v}_\mu^2 \rangle / (2c^2)$, dans un nuage d'ions en piège linéaire d'ordre $2k$:

$$\delta f_{D2} = -f_0 \frac{N}{2L} \frac{q^2}{4\pi\epsilon_0} \frac{1}{2m(k-1)c^2}. \quad (\text{IV.30})$$

En fait, les équations (IV.29 et IV.30) disent la même chose si on se souvient que, dans l'approximation du pseudo-potential⁷⁰, l'énergie cinétique moyenne du micro-mouvement d'une particule $m\bar{v}_\mu^2/2$ est égale au pseudo-potential moyen de cette même particule, qui dans l'approximation ergodique est $E_{P_{rf}}^*/N$.

L'énergie potentielle associée au confinement par des tensions continues ne présente pas la même loi de comportement en fonction du nombre d'ions et affiche une dépendance explicite avec la raideur du potentiel :

$$E_{P_{dc}} = 2L \frac{4\pi\epsilon_0}{q^2} \alpha\beta(k-1) \left(\frac{L^2 R^{2k-2}}{3} - \frac{(k-1)R^{2k}}{k} \right) = N\beta \frac{L^2}{3} - N\beta \frac{(k-1)R^2}{k} \quad (\text{IV.31})$$

le dernier terme dépendant du nombre d'ions par $N^{k/(k-1)}$. À température "nulle", l'énergie du système est $E = (2k-1)E_{P_{rf}}^* + 3E_{P_{dc}}$ (voir Eq. (IV.26)). Pour les grands nombres d'ions, elle se comporte comme N^2 et tend vers $(2k-1)E_{P_{rf}}^*$. Ces lois d'échelle n'ont pas encore pu être vérifiées ni expérimentalement ni numériquement. Mais on peut aussi déduire une loi d'échelle pour l'énergie à température nulle dans le cas d'un multipole isotrope (en 3D). La même méthode (Viriel + modèle du fluide chargé froid) appliquée à un système d'ions piégés en octopole 3D ($k=4$) conduit à une loi d'échelle pour l'énergie en $N^{13/7}$ et pour le rayon du nuage froid en $N^{1/7}$. Ces prédictions ont été vérifiées numériquement par F. Calvo et E. Yurtsever⁸⁶ par le calcul des structures d'énergie minimales. Les calculs numériques montrent que les lois d'échelle déduites du modèle continu de fluide chargé froid sont vérifiées pour des ensembles aussi petits que $N=100$, ce qui est déjà mentionné par Dubin et O'Neil à propos des ions en piège de Penning¹⁰⁵.

Pour 10^6 ions/mm dans le quadrupole, l'énergie potentielle moyenne de confinement rf est de 0.72 eV par ion alors qu'elle vaut 0.06 eV pour 2.5×10^5 ions/mm dans un octopole. Le confinement axial induit une énergie potentielle plus élevée, de 4 eV par ion dans la partie quadrupolaire pour un nuage de 10 mm piégé par $\omega_z/2\pi = 120$ kHz, valeur déduite en IV.1.3 par le rapport d'aspect attendu dans le quadrupole. On voit donc que malgré un nombre d'ions piégés par unité de longueur élevé, l'énergie potentielle de confinement statique est prépondérante devant celle du confinement rf.

IV.1.4 Étude des lois d'échelle en masse

L'analyse présentée en IV.1.2 couplée à l'étude de la dépendance du micromouvement avec les paramètres du piège permet de mettre en évidence les conditions de comparaison de deux systèmes travaillant avec des masses différentes. De façon générale, les critères physiques contrôlant les paramètres d'un piège sont la taille relative du nuage par rapport au rayon interne du piège et le paramètre d'adiabaticité (qui se réduit au paramètre q_x pour un quadrupole). Dans l'objectif d'une horloge micro-onde, il faut aussi prendre en compte la vitesse quadratique moyenne du micromouvement, dont la fluctuation est responsable de l'instabilité principale de ces horloges, à travers l'effet Doppler du 2ème ordre.

En utilisant le modèle de fluide chargé froid pour calculer la profil de densité du nuage, et le théorème du Viriel, on a estimé cette vitesse et l'effet Doppler associé (Eq. IV.30). Le résultat surprenant de cette étude, et qui a déjà été exploité par l'équipe du JPL⁷⁴, est que cette vitesse quadratique moyenne de micro-mouvement ne dépend pas explicitement des paramètres physiques du piège (V_0, Ω, r_0) mais seulement de son ordre de symétrie, donné par k , de la masse de l'ion et du nombre d'ions par unité de longueur présents dans le piège :

$$v_\mu^2 \propto \frac{N}{2L} \frac{1}{m(k-1)}. \quad (\text{IV.32})$$

Cette expression met en évidence l'intérêt d'augmenter l'ordre des multipôles pour réduire l'effet Doppler du 2ème ordre. Elle montre aussi que pour réduire cet effet, on a tout intérêt à utiliser des pièges longs mais d'autres effets physiques et des problèmes d'encombrement limitent la longueur envisageable pour ces pièges. L'équation montre également que pour le même nombre d'ions par unité de longueur, l'effet Doppler diminue avec la masse de l'ion.

Pour obtenir une dynamique des ions comparable entre deux masses d'ions différentes m_1 et m_2 avec un nombre d'ions par unité de longueur identique, il faut accorder les paramètres de piège pour obtenir la même taille relative R/r_0 et la même adiabaticité en R , ceci implique

$$\left(\sqrt{m}\Omega r_0\right)_1 = \left(\sqrt{m}\Omega r_0\right)_2 \quad (\text{IV.33})$$

$$(V_0)_1 = (V_0)_2 \quad (\text{IV.34})$$

Dans l'hypothèse de pièges de dimensions identiques, il faut donc modifier la fréquence rf dans le rapport inverse des racines carrées des masses pour retrouver la même dynamique.

IV.2 Structures d'équilibre d'un petit nombre d'ions refroidis

Pour les petits nombres d'ions (typiquement inférieurs à quelques centaines), le modèle de fluide froid n'est plus pertinent et les calculs de dynamique moléculaire (DM) sont un outils précieux pour prévoir le comportement d'un ensemble d'ions froids en multipole. Si les paramètres de piégeage sont bien choisis (voir l'article en IV.2.2), on peut faire en sorte que la structure stable formée par les ions froids soit un anneau autour de l'axe Oz . Cette structure offre de nombreux intérêts car elle permet l'excitation laser simultanée de quelques dizaines d'ions dans des conditions identiques. La mise à profit d'un tel système pour la métrologie des fréquences optiques est justifiée dans l'article publié¹⁰⁶ reproduit en IV.2.2. Les effets systématiques induit par le champ rf et la géométrie particulière du système y sont estimés. La faisabilité de cette proposition est démontrée grâce aux simulations de DM réalisées par Mathieu Marcianté dans sa thèse. Ces simulations permettent de démontrer la forme de la structure stable et d'estimer la température atteinte par refroidissement laser Doppler. Avant de présenter cet article, abordons la méthode utilisée pour simuler numériquement le refroidissement laser et les diagnostics proposés pour la valider.

IV.2.1 Le refroidissement laser Doppler dans les simulations de dynamique moléculaire

Dans ses travaux de thèse, Mathieu Marcianté s'intéresse à la dynamique d'ions piégés, refroidis par laser. Une des motivations de ces études est de mettre en évidence le rôle de la répartition spatiale des ions sur la thermalisation des degrés de liberté. Ce problème se pose quand une seule espèce est piégée et que le refroidissement n'est pas isotrope (un seul faisceau laser, par exemple) et/ou quand deux espèces sont confinées et qu'une seule est refroidie par laser. Le couplage coulombien est alors couramment invoqué pour justifier que tous les degrés de liberté se thermalisent ("refroidissement sympathique") mais en fait, l'efficacité de ce couplage dépend beaucoup de la configuration spatiale du nuage.

Plusieurs méthodes s'offraient à nous pour la prise en compte de l'effet mécanique de l'interaction atome-laser et modéliser le refroidissement laser de l'échantillon. Le processus microscopique à l'origine du refroidissement laser Doppler est la pression de radiation exercée sur un atome quand il absorbe des photons. Le recul transféré $\hbar\mathbf{k}_L$ lors de l'absorption conduit à un freinage si on s'arrange pour privilégier l'absorption d'un photon quand il est contra-propageant avec l'atome. Pour cela il suffit de choisir un désaccord négatif pour le laser ($\omega_L < \omega_0$), pour qu'un effet Doppler positif ($-\mathbf{k}_L \cdot \mathbf{v}$) ramène le laser en résonance. L'émission spontanée étant isotrope, elle ne contribue pas au bilan de quantité de mouvement transférée mais induit une marche aléatoire dans l'espace des phases qui limite la température accessible par un tel mode de refroidissement^{107,49}. On peut montrer pour des atomes libres qu'une configuration de deux faisceaux laser identiques contra-propageants (dite *mélasse optique*) a un effet mécanique équivalent à une force de friction^{108,49} $-\xi\mathbf{v}$ quand le désaccord des lasers est négatif. Dans le cas d'un régime linéaire d'excitation, le coefficient de friction ξ peut être exprimé pour les faibles vitesses

$v \ll |\Delta|/k_L, \Gamma/k_L$ comme⁴⁹

$$\xi = -4\hbar k_L^2 \frac{I}{I_0} \frac{2\Delta/\Gamma}{(1 + (2\Delta/\Gamma)^2)^{1/2}}, \quad (\text{IV.35})$$

où I est l'intensité laser et I_0 l'intensité de saturation de la transition atomique, k_L le vecteur d'onde du laser, Δ le désaccord de la fréquence du laser avec la transition et Γ la largeur naturelle de la transition.

Plusieurs simulations numériques de dynamique d'ions piégés^{109,89} prennent en compte le refroidissement laser par cette force de friction, en y ajoutant des collisions ad-hoc pour simuler la diffusion dans l'espace des phases induite par l'émission spontanée. Le taux de collision est alors réglé pour que la température atteinte s'approche d'une température mesurée. Comme une de nos motivations est de prendre en compte la géométrie du système et ses symétries, dans le pseudo-potentiel aussi bien que dans le vrai champ rf, il nous a semblé très vite pertinent de choisir une méthode qui conserve la sensibilité à la vitesse instantanée des ions, qui inclue le macro et le micro-mouvement, et aussi qui reflète au mieux le phénomène microscopique sans moyenne temporelle car le temps caractéristique du mouvement forcé par la rf (le micro-mouvement) est du même ordre de grandeur que le temps moyen qui sépare deux absorptions (durée de vie de l'état excité 7 ns et les calculs sont menés pour une période rf de 100 ns). À ma connaissance, jusqu'ici, deux seules simulations d'ions piégés ont introduit cet effet mécanique par une méthode que je qualifierais de *corpusculaire*. Elles étaient menées d'abord dans le groupe d'H. Walther et aujourd'hui par H. Schuessler et collaborateurs pour étudier numériquement les conditions de transition de phase vers un cristal coulombien^{77,110,11}. La méthode mise au point par M. Marcianti ressemble sur beaucoup de points à celles-ci et j'en détaille les grandes lignes ici :

- lors de l'absorption, la quantité de mouvement transféré à l'atome est $\hbar \mathbf{k}_L$.
- le recul associé à l'émission d'un photon est uniformément distribué sur une sphère de même rayon, sa direction étant définie par deux angles tirés au hasard.
- le système atomique est considéré à deux niveaux et la transition utilisée pour le refroidissement laser est bien plus large (largeur naturelle Γ) que l'énergie de recul $\hbar k_L^2/2m$, ce qui permet d'utiliser un modèle de raie large pour la prise en compte du mouvement dans l'excitation laser. Du plus, on néglige l'effet de modulation de phase induit par le mouvement sur le couplage atome-laser et on suppose qu'à chaque pas d'intégration t_k , l'état interne a atteint l'état stationnaire dépendant de la vitesse instantanée $\mathbf{v}(t_k)$ (voir II.3.1).
- le profil d'intensité du laser est supposé uniforme sur l'échantillon.
- dans ces conditions, un atome de vitesse $\mathbf{v}(t_k)$, dans l'état fondamental au temps t_k , absorbe un photon pendant $\delta t = t_{k+1} - t_k$ avec la probabilité

$$P_{abs} = \frac{\Gamma \delta t}{2} \frac{\Omega_L^2/2}{(\Delta - \mathbf{k}_L \cdot \mathbf{v})^2 + (\Gamma/2)^2 + \Omega_L^2/2}. \quad (\text{IV.36})$$

où Ω_L est la fréquence de Rabi du couplage dipolaire.

- la probabilité pour un ion excité d'émettre spontanément un photon pendant δt suit la loi de décroissance $(1 - \exp(-\Gamma\delta t))$.
- L'état interne de chaque ion est suivi parallèlement à son état externe et les processus d'absorption/émission sont contrôlés individuellement par comparaison d'un nombre aléatoire avec la probabilité concernée.

L'intégration des équations du mouvement sous l'effet des forces de confinement et de la répulsion coulombienne est un problème de dynamique "classique" et est traitée de façon standard. La convergence de l'algorithme peut y être contrôlée par la conservation de l'énergie. L'introduction du refroidissement laser Doppler et de la dissipation d'énergie qui lui est associée ne permet plus cette vérification. Aussi, pour valider les simulations, nous avons choisi de comparer les résultats numériques à un cas connu pour lequel une expression analytique est valide. M. Marciante a donc adapté son algorithme pour simuler le mouvement d'atomes libres, en remplaçant le puits de potentiel par des conditions aux bords périodiques. Il a aussi introduit non pas un mais deux faisceaux laser, dans une configuration de mélasse et dans le régime linéaire pour lequel l'approximation par une friction décrite par l'Eq. (IV.35) est valide. Dans ces conditions, on sait⁴⁹ que la température du système décroît de façon exponentielle avec un temps caractéristique de $m/(2\xi)$, où m est la masse de l'atome. L'adéquation à mieux que le 1/100 entre ce temps estimé à partir des simulations numériques et sa valeur attendue ainsi qu'entre la température limite atteinte et la limite Doppler attendue dans ce régime d'excitation $\hbar\Gamma/(2k_B)$ valide notre modèle numérique de prise en compte de l'effet mécanique de l'interaction atome-laser.

Les simulations de dynamique moléculaire que M. Marciante présentera dans son mémoire de thèse concernent des ions en quadrupole et en octupole. Une des études que nous avons menées ensemble et en collaboration avec M. Kajita concerne la structuration d'un petit nombre d'ions (quelques dizaines) dans un octupole linéaire. Elle est présentée dans ce qui suit.

IV.2.2 Métrologie des fréquences optiques en multipole : un anneau pour les gouverner tous

La structure d'équilibre de quelques dizaines d'ions en multipole linéaire peut être décrite par un tube dont l'axe de symétrie est l'axe de rotation du piège. Tous les ions sont à la même distance de l'axe, modulo l'amplitude d'agitation thermique. Cette agitation thermique correspond aux températures typiques observées dans des nuages en quadrupole linéaire, c'est-à-dire de 10 à 30 mK, en fonction des paramètres de confinement. On attribue au chauffage rf le fait que la limite Doppler ne puisse être atteinte par des échantillons qui s'étendent sur les trois directions. Il faut rappeler ici que seul le mouvement dans le plan radial contient le mouvement forcé par la rf, le confinement le long de l'axe de symétrie se faisant par un potentiel statique. Pour une gamme de rayons de tube adapté au nombre d'ions piégés (voir l'article suivant), ce tube se réduit à un anneau où les ions sont tous dans le même plan. Le maintien de cette structure dans un seul plan permet de découpler le mouvement dans le plan radial du mouvement le long de l'axe du piège. Les simulations de DM montrent qu'il est alors tout à fait possible d'atteindre la limite Doppler pour le mouvement le long de l'axe, même si la température d'agitation thermique dans le plan radial reste de l'ordre de 10 mK. De plus, pour un choix judicieux de ce rayon d'équilibre, contrôlé par les paramètres de piégeage, la température du mouvement axial reste proche de

la limite Doppler quelques millisecondes après l'extinction du laser de refroidissement. Ces propriétés permettent d'envisager cet anneau d'une à quelques dizaines d'ions comme support d'une horloge optique dans lequel tous les ions seraient interrogés en même temps. Par rapport à un dispositif à ion unique, on perd un peu en précision à cause des effets induits par le champ rf et l'extension spatiale de l'anneau mais on peut gagner en stabilité si l'augmentation du nombre d'ions ne se traduit pas par un élargissement de la raie.

L'étude de la stabilité de la structure annulaire et de son refroidissement est présentée dans l'article suivant, ainsi que l'évaluation des performances que l'on peut attendre pour une telle horloge.

PHYSICAL REVIEW A **81**, 043410 (2010)**Ion ring in a linear multipole trap for optical frequency metrology**C. Champenois,^{*} M. Marciante, J. Pedregosa-Gutierrez, M. Houssin, and M. Knoop*Physique des Interactions Ioniques et Moléculaires, UMR 6633 CNRS et Aix-Marseille Université, Centre de Saint Jérôme, Case C21, FR-13397 Marseille Cedex 20, France*

M. Kajita

National Institute for Information and Communications Technology, 4-2-1, Nukui-Kitamachi, Koganei, Tokyo 184-8795, Japan

(Received 26 November 2009; published 15 April 2010)

A ring crystal of ions trapped in a linear multipole trap is studied as the basis for an optical frequency standard. The equilibrium conditions and cooling possibilities are discussed through an analytical model and molecular dynamics simulations. A configuration is proposed that reduces the frequency sensitivity to the fluctuations of the number of trapped ions. The systematic shifts for the electric quadrupole transition of calcium ions are evaluated for this ring configuration. This study shows that a ring of 10 or 20 ions allows a better short-term stability to be reached than for a single ion without introducing limiting long-term fluctuations.

DOI: [10.1103/PhysRevA.81.043410](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.81.043410)

PACS number(s): 37.10.Ty, 37.10.Rs, 06.30.Ft

I. INTRODUCTION

Progress in atom and ion cooling and trapping, laser stabilization, and high-resolution spectroscopy makes narrow optical transitions the best candidates for frequency standards. Three experimental systems take the optical clocks to their highest performances: a laser-cooled neutral atom cloud in a magneto-optical trap (MOT) [1,2], an ensemble of laser-cooled neutral atoms in an optical lattice [3–5], and single trapped laser-cooled ions [6–9]. All systems have advantages and drawbacks. The main advantage of single-ion experiments is the quasiperfect control of the internal and external degrees of freedom, permitted by the trapping in radiofrequency (rf) electric fields in the quadrupole configuration. This ultimate control, possible only with a single particle, is paid for by a low signal-to-noise ratio which requires a long integration time, resulting in a small short-term stability when compared to neutral atom optical clocks where 10^6 – 10^8 atoms are interrogated at the same time.

At the same time, microwave frequency standards with large clouds of trapped ions ($>10^6$ ions) [10,11] have been developed to ensure a good short-term stability [characterized by an Allan deviation $\sigma_y(\tau) < 10^{-13}/\sqrt{\tau}$] and an excellent long-term stability [$\sigma_y(\tau) < 10^{-16}$ per day]. In the context of deep-space navigation [12], precision is not a major issue and a fractional frequency uncertainty of 10^{-11} is admitted to be sufficient. The main systematic effect which limits the long-term stability is the second-order Doppler effect induced by the rf-driven motion (called micromotion). This effect depends on the size of the cloud through the maximum amplitude of the electric field seen by the ions and requires a high stability of the ion number over a long time scale. For an equal number of trapped ions, this shift is reduced by using linear multipole traps where the electric field amplitude is almost null in the center part of the trap [13]. Large ion samples can thus be trapped with reduced micromotion, compared to the quadrupole geometry. For a dense enough ion cloud, one can show [12] that the maximum second-order Doppler shift

$\delta f_{D2} = -f_0 \langle v^2 \rangle / (2c^2)$ is simply written as

$$\delta f_{D2} = -f_0 \frac{q^2 N_L}{8\pi \epsilon_0 m (k-1) c^2}, \quad (1)$$

where f_0 is the frequency of the atomic clock transition, N_L is the number of ions per unit length, m is the mass of the ions, q their charge, $2k$ is the number of electrodes in the multipole trap, and c the speed of light. The $(k-1)^{-1}$ scaling justifies the choice of a higher-order multipole [14] for challenging clock applications. Indeed, in [12] a 16-pole trap is used to trap ions during the interrogation of their clock transition. Multipole rf traps are also widely used to study cold reactive collisions [15], and cooling with a buffer gas from 300 K to 4 K [16] allows one to control the kinetic energy of the collisions and to reproduce astrophysical conditions.

Laser cooling and crystal structures of cold ions in multipole traps are far less studied than in quadrupole traps. Laser cooling and observation of ion crystals in a linear octupole trap have been reported in [17,18]. A semianalytical and numerical study of the structure, scaling laws, and phase transitions of cold ions in an isotropic three-dimensional octupole can be found in [19]. These two studies show that a cold ion cloud can be described as a hollow core system, resulting from the balance between the Coulomb repulsion and a trapping potential nearly flat in the center and very steep at the border. Such a geometry can be also deduced by a cold fluid model [20]. When the number of trapped ions is reduced to the order of 100 or less, simulations show that for certain trapping parameters, the tube formed by the ions reduces to a ring crystal centered on the symmetry axis.

In this article, we propose to use laser-cooled ions trapped in a linear multipole rf trap and organized in a ring structure as a basis for an optical clock. The aim is not to compete with the highest precision a single-ion optical clock can offer, but to propose a tradeoff where a somewhat lower precision is compensated for by a gain in short-term stability offered by the interrogation of several ions at the same time. The main technological challenge in the realization of a single-ion

* caroline.champenois@univ-provence.fr

frequency standard is the clock laser which has to reach frequency stabilities of the order of 1 Hz/s. The present proposal allows total clock performances to be reached that are comparable to a single-ion experiment by relaxing the constraints on the laser performance by at least one order of magnitude. The improvement can be illustrated by the Allan variance which is used to quantify the stability:

$$\sigma_y(\tau) = \frac{1}{\pi Q R_{S/N}} \sqrt{\frac{T_c}{\tau}}, \quad (2)$$

with Q the quality factor of the measured transition, $R_{S/N}$ the signal-to-noise ratio of the excitation probability measurement, and T_c the cycle time required to build an atomic signal to counteract on the laser frequency. The $R_{S/N}$ is limited by the quantum projection noise [21] to \sqrt{N} , and using $N = 10$ or 20 ions allows the same stability value to be reached 10 or 20 times faster than with a single-ion clock, if the line is not broadened.

Compared to a chain of ions in a linear quadrupole trap, this ring configuration has the advantage of having the same symmetry as a transverse laser beam intensity profile, ensuring that every ion sees the same laser intensity. The second advantage of this symmetry is that the motion along the trap axis is characterized by a single oscillation frequency. Furthermore, the trapping parameters can be chosen to constrain the radial size of the ring, independent of the number of trapped ions, to first order (if this number obeys some stability conditions). As a consequence, the possible loss of one ion during a long time operation induces only a second-order perturbation on the ring equilibrium radius and causes very small frequency fluctuations. The compactness and symmetry of a ring compared to a chain made of the same number of ions is another advantage regarding the dispersion of the systematic shifts induced by local electric or magnetic fields.

The planar crystal structure of the present study could also be of use for quantum-computation experiments. Planar crystals in a quadrupole trap are proposed in [22] as an appropriate system for large-scale quantum computation, and their structure is studied in [23] by molecular dynamics simulations. The ring configuration we propose here for trapped ions could also be used for quantum simulations, as demonstrated in [24] with several Rydberg atoms at each site, to investigate many-body quantum states.

In the following section, we start by describing the features concerning the trapping and cooling of the sample, relevant for an optical clock of this kind. We then identify two configurations that obey the clock operation conditions: a ring of 10 ions and one of 20 ions. In Sec. III, the scaling laws and numerical values of the systematic shifts due to the ring configuration are given. In a second step (Sec. IV), the systematic shifts usually encountered by a single-ion clock are estimated for this ring configuration. In the last part, all contributions are summarized to propose an uncertainty budget for the 10- and 20-ion ring clock. The numerical calculations quantifying all the effects use the optical quadrupole transition of $^{40}\text{Ca}^+$ as the clock transition [25,26] and are carried out for a linear octupole trap ($2k = 8$). However, most of the equations can be transposed to other species and to higher-order traps.

II. SELF-ORGANIZATION OF IONS IN A RING

In the adiabatic approximation, the static pseudopotential associated with the rf electric field allows us to explain the dynamics and equilibrium positions of the ions in the transverse plane of the trap. For a perfect linear multipole trap of order $2k$, it is defined as [15]

$$V^*(r) = \frac{k^2 q^2 V_0^2}{16m\Omega^2 r_0^2} \left(\frac{r}{r_0}\right)^{2k-2}, \quad (3)$$

where r is the ion distance to the trap axis, V_0 is the amplitude of the rf potential difference between two neighboring electrodes, $\Omega/2\pi$ the frequency of this applied voltage, and r_0 the inner radius of the trap. To effectively trap the ions, a static potential has to be applied on electrodes placed on both ends of the linear trap. This geometry creates a potential well along the axis of symmetry Oz which we can consider as harmonic in the center of the trap. The full contribution of this static potential can be written as

$$V_{\text{stat}} = \frac{1}{2} m \omega_z^2 \left(z^2 - \frac{r^2}{2} \right), \quad (4)$$

where the harmonic well is characterized by the oscillation frequency ω_z . When the multipole is not a quadrupole ($2k \neq 4$), the two contributions $V^*(r)$ and V_{stat} for the trapping potential result in a potential shape (solid line in Fig. 1), where the minimum is shifted from $r = 0$ to $r = r_{\text{min}}$ defined by

$$r_{\text{min}}^{2k-4} = \frac{1}{k-1} \left(\frac{2m\Omega\omega_z r_0^k}{kqV_0} \right)^2. \quad (5)$$

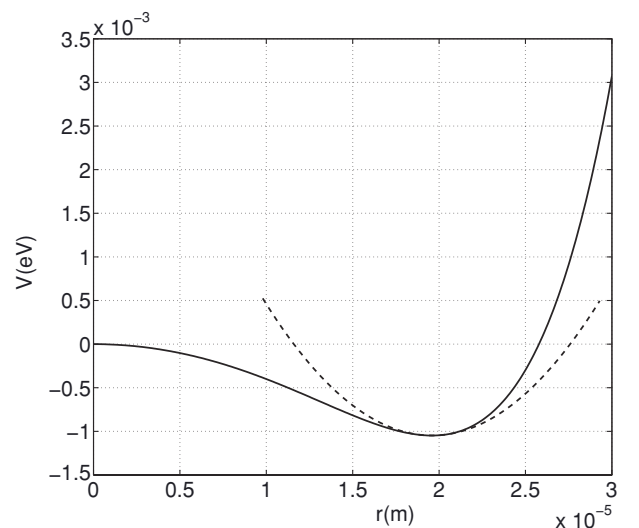


FIG. 1. Solid line: effective static potential (in eV) in the radial plane of an octupole trap ($2k = 8$), resulting from the contributions of $V^*(r)$, V_{stat} . Dashed line: the harmonic approximation of the potential well defined by r_{min} [Eq. (5)] and ω_{eff} [Eq. (8)]. The potentials are defined by $\omega_z/2\pi = 1$ MHz, $\Omega_z/2\pi = 20$ MHz, $V_0 = 394.4$ V, and $r_0 = 200$ μm , for calcium ions ($m = 40$ amu).

A. Equilibrium

The equilibrium position of a set of ions results from the balance between the Coulomb repulsion and the trapping potential. An analysis of the forces along the radial direction shows that two regimes of organization can be defined, based on the strength of the deconfinement contribution $-m\omega_z^2 r^2/4$ compared to the Coulomb repulsion induced on an ion at radial distance R by all the other ions. In the assumption of a ring of radius R in a single plane, the Coulomb potential energy for a set of N ions $E_p^C(N)$ is

$$E_p^C(N) = \frac{q^2}{4\pi\epsilon_0} \frac{N}{2} \frac{S_1(N)}{2R}, \quad (6)$$

with $S_1(N) = \sum_{n=1}^{N-1} 1/\sin(\pi n/N)$. If this contribution is negligible compared to the deconfinement, the radius of equilibrium R does not depend on the number of ions N . In the prospect of a clock where the major systematic shifts depend on the equilibrium position R through the local rf electric field, this condition has to be fulfilled to allow the ion number to not be strictly reproduced from day to day. In the following, we consider that the configuration is such that, at first order of approximation, the equilibrium position R is given by the minimum potential r_{\min} defined by Eq. (5) and does not depend on the number of ions in the ring. The Coulomb repulsion can be treated as a perturbation, and the radial position shift ϵ that it induces depends on various trap parameters such as

$$\epsilon = \frac{q^2}{4\pi\epsilon_0} \frac{S_1(N)}{4(k-2)r_{\min}^2 m\omega_z^2}. \quad (7)$$

With the ion number N and ring radius considered in the following, the relative Coulomb shift ϵ/r_{\min} is smaller than 0.02, justifying the assumption that $R \simeq r_{\min}$ to deduce the scaling laws for the systematic shifts.

With the typical trapping parameters used through this article, local potential depths equivalent to 10 K can be made, while temperatures as low as 10 mK can be reached in the radial direction by Doppler laser cooling. Laser-cooled ions will settle in the bottom of this well, and at this level, the radial pseudopotential can be approximated by a harmonic potential centered on r_{\min} (see Fig. 1). An analytical analysis shows that the second-order expansion of the radial potential around r_{\min} , $V^*(r) + V_{\text{stat}}(r) \simeq V^*(r_{\min}) + V_{\text{stat}}(r_{\min}) + m\omega_{\text{eff}}^2(r - r_{\min})^2/2$, is characterized by an effective oscillation frequency ω_{eff} which depends only on the axial frequency and the order of the multipole by

$$\omega_{\text{eff}} = \sqrt{k-2} \omega_z. \quad (8)$$

This shows that the strength of the axial trapping ω_z also defines the strength of the radial trapping around the equilibrium position R .

To make relevant predictions based on the pseudopotential [Eq. (3)], the adiabatic approximation at position r_{\min} has to be satisfied. Contrary to quadrupole traps, there is no absolute criterion for adiabatic operation of the multipole trap. However, the Mathieu parameter q_x used in quadrupole traps to characterize the trajectories of ions can be generalized to multipole with the main difference that this new parameter η depends on the ion's location in the trap [15,27]. For a perfect

multipole, this parameter is defined as

$$\eta(r) = k(k-1) \frac{qV_0}{m\Omega^2 r_0^2} \left(\frac{r}{r_0}\right)^{k-2} \quad (9)$$

and has been empirically limited to 0.3 to guarantee stability of the trajectories [15]. A more recent experimental study of the loss mechanism in a 22-pole trap [28] complementary to a model of effective trapping volume [29] has demonstrated stability up to $\eta(r) < 0.36 \pm 0.02$. Moreover, clock operation requires also a small micromotion amplitude to limit all the systematic effects induced by this motion and to minimize the rf heating that may occur, as in quadrupole traps. For this reason, and by analogy with linear quadrupole traps, we limit the set of trapping parameters to keep $\eta < 0.2$. For a ring of ions at a distance $R = r_{\min}$ from the center and including Eq. (5) into Eq. (9), the adiabatic parameter takes the simple form

$$\eta(R) = 2\sqrt{k-1} \frac{\omega_z}{\Omega}, \quad (10)$$

which does not explicitly depend on the equilibrium position or on the number of ions, and immediately fixes the range of the trapping frequency $\Omega/2\pi$ once the axial oscillation frequency is chosen. Indeed, in an octupole trap with $\omega_z/2\pi = 1$ MHz, it takes $\Omega/2\pi > 17$ MHz to ensure $\eta < 0.2$. Furthermore, the amplitude of the micromotion δR_μ also scales as $\eta(R)$ but increases with the distance to the center as

$$\delta R_\mu = R\eta(R) \frac{1}{2(k-1)}. \quad (11)$$

Therefore, a radial equilibrium position as small as possible is chosen, to reduce the rf-induced heating as well as the rf-induced systematic shifts, which depend on the local rf electric field and scale as R^{k-1} . The lower limit of this radius is set by the ion-ion distance. For a distance too small, the one-ring configuration is not stable, and the system relaxes to a double ring where the sum of the Coulomb and trapping potential energies is lower. Simple energy minimization, confirmed by molecular dynamics (MD) simulations, shows that in a double ring of an even number of ions, the ions alternate from one ring to the other in a configuration analogous to the zig-zag chain already observed in a quadrupole linear trap [30] (see Fig. 2). Writing the equilibrium condition along O_z for a double ring of N ions requires that R should be smaller than a limit R_l , which sets the lower stability limit for a one-ring configuration. This limit size depends only on the strength of the axial potential and the number of ions as

$$\begin{aligned} R_l &= \left(\frac{q^2/4\pi\epsilon_0}{4m\omega_z^2}\right)^{1/3} \left(\sum_{n=1}^{N/2} \frac{1}{\sin^3 \frac{(2n-1)\pi}{N}}\right)^{1/3} \\ &\simeq \left(\frac{q^2/4\pi\epsilon_0}{2m\omega_z^2}\right)^{1/3} \frac{N}{\pi} \end{aligned} \quad (12)$$

and therefore scales as N .

B. Doppler cooling

So far, we have been concerned by the static properties of the ring configuration. In this second section, we focus on the thermodynamic issues related to ion temperature required

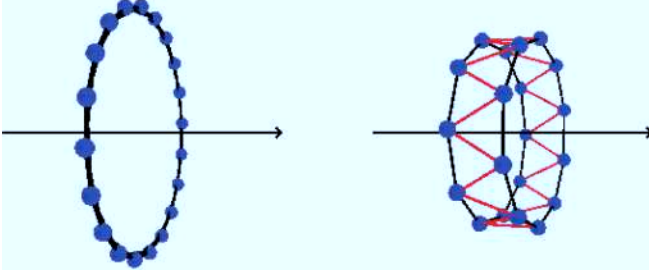


FIG. 2. (Color online) Equilibrium position of 20 calcium ions around the trap symmetry axis, calculated by MD simulations in the pseudopotential of a linear octupole trap. The potential is defined by $\omega_z/2\pi = 1$ MHz and $\Omega_z/2\pi = 20$ MHz and for 20 ions, the stability limit is $R_l = 23 \mu\text{m}$. Left: $V_0 = 3142$ V and $r_0 = 400 \mu\text{m}$, resulting in $r_{\min} > R_l$, the one-ring configuration is stable ($R = 28 \mu\text{m}$). Right: $V_0 = 5771$ V and $r_0 = 400 \mu\text{m}$, resulting in $r_{\min} < R_l$, the stable configuration is a double ring analogous to a closed zig-zag chain. Here the separation between the two planes is of the order of $3 \mu\text{m}$ and their radius is $21 \mu\text{m}$.

for clock operation. We first introduce these requirements and their consequences for the geometry of the setup and then propose two configurations that fulfill these requirements.

When the trapping parameters are adjusted to obtain a single ring of ions lying in the $z = 0$ plane, it seems mandatory to propagate the clock laser along the Oz direction, such that no line broadening is introduced by dispersion of the excitation strength on the clock transition from one ion to another. In this configuration, there is no micromotion along the laser axis, and the first-order Doppler effect is sensitive only to the thermal motion along the axial direction (called macromotion). To compete with the existing clocks, this effect has to be canceled. The method used for trapped ion frequency standards is to set the ion motion in the Lamb-Dicke regime, where the phase modulation induced by the ion motion inside the clock laser wave is small compared to 2π . For optical transitions, the wavelength is so small that laser cooling is required to reach that stage. One of the major issues of the laser-cooled ion trap design is to make sure that the Lamb-Dicke regime can be reached by Doppler laser cooling so that no other laser-cooling process is required for clock operation [31].

When the ion motion can be described by a harmonic oscillation $Z \cos \omega_z t$, a classical expansion of the laser-atom interaction [32] shows that the Doppler spectrum can be understood like the superposition of sidebands at frequency $f_0 \pm n\omega_z/2\pi$ with amplitude proportional to $|J_n^2(k_L Z)|$, if the transitions are not saturated. J_n is the Bessel function of order n and the modulation index $k_L Z$ depends on the clock laser wave vector k_L and the amplitude of oscillation $Z = V_Z/\omega_z$. The velocity amplitude of the oscillation V_Z depends on the temperature reached by the cooling T_z . When the Doppler laser-cooling limit is reached, $V_Z = \sqrt{\hbar\gamma/m}$ where γ is the spontaneous decay rate on the cooling transition (at 397 nm for the calcium ion). For the Ca^+ clock transition at 729 nm with ions at the Doppler limit $T_D(T_D = 0.54$ mK, with $1/\gamma = 7 \times 10^{-9}$ s), the modulation index is $2\pi \times 6.3 \times 10^5/\omega_z$. Choosing $\omega_z/2\pi = 1$ MHz is sufficient to ensure a modulation index smaller than unity, which sets the motion in the Lamb-Dicke regime and leads to a central band nearly 10 times stronger

than the first oscillation sidebands, which is a good enough operation condition for an optical clock [25]. We will see later in the text that a further increase of the axial oscillation frequency is detrimental to the performances of the clock, and the chosen value appears to be a good compromise between a small oscillation amplitude and small systematic shifts.

All the considerations introduced in the previous part about the equilibrium position of the ions inside the pseudopotential are not sufficient to control the dynamics of the set of ions. To get more insight into the system, molecular dynamics (MD) is used to simulate the ion motion under Coulomb repulsion and laser cooling, in the full rf potential, i.e.,

$$\Phi_k(\mathbf{r}, t) = V_0/2 \cos(\Omega t)(r/r_0)^k \cos(k\alpha), \quad (13)$$

where (r, α) are the polar coordinates in the (x, y) plane. Details of these simulations will be published elsewhere [33]. These simulations show that in the single-ring configuration, the axial and radial degrees of freedom are very weakly coupled, and the thermal equilibrium of each degree is characterized by very different temperatures. With laser cooling on the three directions of space, the simulations show that for a decoupled system, the Doppler limit temperature is reached in the axial direction, and the temperatures in the radial plane (T_r, T_α) reach 10 mK in the best configuration (laser detuning set at $-\gamma/2$ and coupling strength defined by a Rabi frequency equal to $\gamma/2$). The MD simulations show that if the trapping parameters result in a radius of the ring too close to the stability limit R_l , the axial and radial degrees of freedom are coupled, and the temperature for the axial motion does not reach the Doppler limit. Reaching the Doppler limit in the axial direction is mandatory for the Lamb-Dicke regime, and we can design potentials able to trap a ring made of 10–100 ions in a single plane, fulfilling this condition.

For clock operation, additional conditions have to be fulfilled. Indeed, to prevent light-shift on the clock transition, the cooling lasers must not be applied onto the ions during the clock transition excitation [25]. During this excitation, which needs to last at least several milliseconds, the system must remain at the same temperature. With simulations, we have found trapping and cooling conditions compatible with these requirements only for rings smaller than 20 ions. The 100-ion ring heats up very fast; and, in the best configuration, the axial temperature increases from 0.54 mK (the Doppler limit) to 2 mK in 1 ms. This rapid increase is due to rf heating as the micromotion amplitude increases with R [see Eq. (11)] which increases with N . On the contrary, for 10 ions set in a ring of radius $20 \mu\text{m}$ or for 20 ions set in a ring of radius $40 \mu\text{m}$, the cooling laser can be switched off for several ms with very little heating. To reach good statistics, we build a sequence of 2 ms of dark time (the clock interrogation) followed by 2 ms of laser cooling, and measure the temperature throughout the dark times. For the 10-ion ring, after 120 periods of cooling and noncooling time, the average axial temperature is 0.47 mK and the full width at half maximum (FWHM) of the distribution is 0.32 mK. Clock operation conditions for a 10-ion ring can thus be fulfilled (similar results can be obtained for the 20 ion ring). For comparison, all the configurations have the same axial and rf frequency $\omega_z/2\pi = 1$ MHz and $\Omega/2\pi = 20$ MHz, and therefore the same adiabatic coefficient at the position of

the ions $\eta(R) = 0.17$. The ring radius was controlled by the amplitude of the rf electric field.

The constraints on the trapping parameters and their relation can be summarized as follows: the minimum value of ω_z is fixed by the Lamb-Dicke regime. Once ω_z is chosen, the value of Ω is fixed by the adiabaticity criteria [Eq. (10)]. Then, for a given number of trapped ions N , the ratio V_0/r_0^4 is chosen to match r_{\min} with the smallest R that allows the ions to be kept in a single ring ($R > R_l$), which does not heat up when the cooling lasers are off. The MD analysis shows that it is possible to form a stable ring of 10–20 ions, with a temperature close to the Doppler limit in the axial direction and of the order of 10 mK in the radial direction. In the second part of this paper, we evaluate frequency shifts on the clock transition for two configurations tested by MD simulations: a 10-ion ring of radius 20 μm and a 20-ion ring of radius 40 μm . With the chosen trapping frequencies, it takes $V_0 = 394$ V for $r_0 = 200$ μm to reach $R = 20$ μm and $V_0 = 1578$ V for $r_0 = 400$ μm to reach $R = 40$ μm . Furthermore, we assume an axial temperature of 0.54 mK (the Doppler limit T_D for calcium ion) and a radial temperature T_r of 10 mK. This temperature controls the thermal motion amplitude along the radial direction δR through

$$\delta R = \sqrt{\frac{2k_B T_r}{m(k-2)\omega_z^2}}, \quad (14)$$

and is responsible for line broadening through every systematic shift depending on the radial position R . To give an order of magnitude of this effect, for calcium ions in a linear octupole trap with $\omega_z/2\pi = 1$ MHz, the thermal motion amplitude in the radial direction δR is 0.23 μm , to be compared with the amplitude of the micromotion δR_μ which is 0.56 μm for a 20 μm radius (and 1.1 μm for a 40 μm radius). These equilibrium and dynamic properties control several systematic shifts which are discussed in the following section.

III. SYSTEMATIC SHIFTS INDUCED BY THE RF ELECTRIC FIELD

Compared to a single-ion experiment, additional systematic shifts are introduced by the fact that the rf electric field is not null at the ion's equilibrium position. In this section, we focus on these extra effects and highlight their scaling law to point out the best compromise for a clock operation. The performances of a clock are evaluated by its accuracy and stability, and the laws scaling their dependance with the number of ions are different. For every shift depending on the equilibrium position R (which scales with N to obey the equilibrium condition $R > R_l$), there is a line broadening induced by the thermal oscillation amplitude δR (which does not depend on N) and a long-term fluctuation induced by the possible loss of one ion. This last effect depends on $\Delta\epsilon = \epsilon(N) - \epsilon(N-1)$ which scales with $1/N^2$. All shifts are evaluated for the quadrupole transition at 729 nm ($S_{1/2}, M_J \rightarrow D_{5/2}, M'_J$) of a $^{40}\text{Ca}^+$ ion which has no hyperfine structure. The trapping frequency is chosen to be $\Omega/2\pi = 20$ MHz, with an axial confinement of $\omega_z/2\pi = 1$ MHz.

A. Micromotion-induced second-order Doppler effect

The second-order Doppler shift induced by the micromotion is known to be the limiting factor for microwave ion clocks in multipole traps. The velocity amplitude of the micromotion V_μ is equal to $\Omega\delta R_\mu$ and the shift induced on the clock transition frequency f_0 can be expressed as

$$\delta f_{D2} = -f_0 \frac{\omega_z^2 R^2}{4(k-1)c^2}. \quad (15)$$

In analogy to large clouds in a multipole trap (Eq. (1)), this shift scales with $1/(k-1)$, pleading for higher-order multipole traps. But contrary to large clouds, the shift does not depend explicitly on the number of trapped ions but only on the trapping parameters, which can be very well controlled. The compromise to make for a clock operation is clearly visible from Eq. (15): the reduction of the second-order Doppler shift asks for ω_z and R values as small as possible, whereas the ion ring stability and cooling set a lower limit to these two parameters.

For a ring of radius 20 μm (respectively 40 μm) in an octupole trap ($k = 4$), the shift is $1.46 \times 10^{-14} \times f_0 = 6.0$ Hz (respectively, $5.85 \times 10^{-14} \times f_0 = 24.1$ Hz) on the 729 nm optical clock transition of Ca^+ . The shift itself does not reduce the precision and stability of the clock, but its uncertainty and fluctuations can.

The slow (on the rf time scale) thermal oscillation of the ions in the radial plane is responsible for a dispersion in the radial position $\pm\delta R$ and implies a broadening of the second-order Doppler shift $\Delta\delta f_{D2} = \pm\delta f_{D2}2\delta R/R$ (full width), which scales as $\omega_z R$, which itself is proportional to N and is lower than 1 Hz with the typical parameters we have chosen ($\Delta\delta f_{D2} = \pm 3.4 \times 10^{-16} \times f_0 = \pm 0.14$ Hz for $R = 20$ μm , and $\pm 6.7 \times 10^{-16} \times f_0 = \pm 0.28$ Hz for $R = 40$ μm).

In long-term operation, an ion can be lost, and the shift in the radial equilibrium position $\Delta\epsilon$ induces a modification of the frequency shift equal to $\delta f_{D2}2\Delta\epsilon/R$, which scales as $1/N$. For the 10-ion ring of radius 20 μm , the fractional fluctuation is $8.5 \times 10^{-17} \times f_0 = 0.03$ Hz, and it is $5.1 \times 10^{-17} \times f_0$ for a 20-ion ring of radius 40 μm . One can see that the 10^{-16} threshold we aim at for the long-term stability can already be reached with a ring configuration of 10 ions. Increasing the number of ions decreases the long-term fluctuations.

B. Stark effect induced by the electric trapping fields

The Stark effect results from the contribution from a scalar shift, which is proportional to the square amplitude of the electric field $E_{\text{rf}}^2/2 + E_{\text{dc}}^2$ (the 1/2 being due to the time averaging of the rf component) and a contribution from a tensorial part, which is sensitive to the angle between the magnetic field and the electric field at the position of the ion [34]. The scalar and tensorial shifts are proportional to the differential polarizability between the upper and lower states of the clock transition and the scalar contribution $\Delta\alpha^0 = -1.1 \times 10^{-6}$ Hz/(V/m)² [35] is independent of their Zeeman sublevels. For calcium ions, the tensorial contribution is of the same order of magnitude as the scalar one [25,26,35] and depends on the Zeeman sublevels M_J chosen for the $D_{5/2}$ state (the $S_{1/2}$ state has no contribution to the tensorial shift): $\Delta\alpha^2 = -6.1 \times 10^{-7} \times f(M_J)$ Hz/(V/m)² [35]

C. CHAMPENOIS *et al.*

PHYSICAL REVIEW A **81**, 043410 (2010)

with $f(M_J = \pm 1/2) = -4/5$, $f(M_J = \pm 3/2) = -1/5$, and $f(M_J = \pm 5/2) = 1$.

The amplitude of the rf electric field is deduced from Eq. (13) and for ions at distance R from the center, matching the potential minimum r_{\min} , its contribution to the scalar Stark shift can be written as

$$\delta f_S^0(\text{rf}) = -\frac{1}{2} \Delta\alpha^0 \frac{m^2}{2(k-1)q^2} \omega_z^2 \Omega^2 R^2. \quad (16)$$

The scalar Stark shift induced by the dc electric field can be expressed with respect to the rf contribution:

$$\delta f_S^0(\text{dc}) = \delta f_S^0(\text{rf}) \frac{(k-1)\omega_z^2}{2\Omega^2} = \delta f_S^0(\text{rf}) \frac{\eta^2(R)}{8}. \quad (17)$$

This relation clearly shows that for $\eta(R) \leq 0.2$, the contribution from the dc field is negligible compared to the rf field contribution. As the Coulomb repulsion is small compared to the dc radial electric field, the Stark effect induced by the Coulomb interaction is negligible compared to the dc contribution, which is itself negligible compared to the rf contribution. Therefore, only the rf contribution is taken into consideration in the uncertainty budget.

Like the second-order Doppler shift [Eq. (15)], the Stark effect scales with $1/(k-1)$ and is proportional to $\omega_z^2 R^2$. The new parameters that are introduced in the shift dependence are the mass of the ion and the trapping frequency. With the same parameters as mentioned before, $\delta f_S^0(\text{rf}) = 1.0 \times 10^{-14} \times f_0 = 4.1$ Hz, and the line broadening induced is $\pm 2.3 \times 10^{-16} \times f_0 = \pm 0.09$ Hz for the ring radius of $20 \mu\text{m}$. For the ring radius of $40 \mu\text{m}$, the shift $\delta f_S^0(\text{rf})$ is $4.0 \times 10^{-14} \times f_0 = 16.5$ Hz, and the induced broadening is $\pm 4.6 \times 10^{-16} \times f_0 = \pm 0.19$ Hz. The fractional long-term instability induced by $\Delta N = -1$ is 5.8×10^{-17} for the 10-ion ring of radius $20 \mu\text{m}$ (and 3.5×10^{-17} for the 20-ion ring of radius $40 \mu\text{m}$).

The tensorial Stark shift induced by the rf electric field depends on the angle θ between the local electric field and the magnetic field as [34]

$$\delta f_S^2(\text{rf}) = -\frac{1}{2} \Delta\alpha^2 f(M_J) \frac{3 \cos^2 \theta - 1}{2} \frac{E_{\text{rf}}^2}{2}. \quad (18)$$

In an rf trap, the amplitude of the rf electric field is constant over a ring, but its direction rotates in the radial plane. The projection of this electric field on a static frame is defined by $(\cos(k-1)\alpha, \sin(k-1)\alpha)$ if α is the angle between the ion radial direction and a reference axis chosen in the radial plane. If the geometric configuration is such that θ varies from one ion to the other, the dispersion of the Stark shift induces a line broadening of the order of 1 Hz for the $20\text{-}\mu\text{m}$ radius ring and of 4 Hz for the $40\text{-}\mu\text{m}$ radius ring. Such a broadening, which is bigger than any other broadening calculated so far, can be avoided by choosing a magnetic field oriented along the trap axis ($\theta = \pi/2$), to ensure the same Stark shift for all the ions of the ring. In this configuration and with the same trapping parameters, the tensorial Stark effect is $\delta f_S^2(\text{rf})/f(M_J) = -0.3 \times 10^{-14} \times f_0 = -1.1$ Hz, with a line broadening $\pm 0.6 \times 10^{-16} \times f_0 = \pm 0.02$ Hz for the ring radius of $20 \mu\text{m}$ [$\delta f_S^2(\text{rf})/f(M_J) = -1.1 \times 10^{-14} \times f_0 = -4.6$ Hz with a broadening of $\pm 1.3 \times 10^{-16} \times f_0 = \pm 0.05$ Hz for the ring radius of $40 \mu\text{m}$]. For

the first case, the fractional long-term frequency fluctuation induced by the loss of one ion is $1.4 \times 10^{-17} \times f(M_J)$ and is in the 10^{-18} range for the larger ring. The choice of the Zeeman sublevel used for the clock operation results from a compromise between several shifts, including the Zeeman shift itself. In the next section, we present these effects that are not directly related to the trapping electric field.

IV. OTHER SYSTEMATIC SHIFTS AND THEIR DISPERSION

A. Zeeman effect

The selection rules for a quadrupole transition forbid $\Delta M_J = 0$ transition when the magnetic field lies along the direction of propagation of the clock laser. As the magnetic field is chosen along the trap symmetry axis to prevent the dispersion of the tensorial Stark shift, the use of $\Delta M_J = 0$ transitions would require an angle between the trap axis and the direction of propagation of the laser. This option has to be rejected because of the large Doppler effect induced by the rf-driven motion. As a second choice, the $\Delta M_J = \pm 1$ transitions are allowed when the laser propagates along the magnetic field direction. Indeed, the $(S_{1/2}, M_J = \pm 1/2 \rightarrow D_{5/2}, M_J = \mp 1/2)$ transitions are only four times more sensitive to magnetic field fluctuations than their $(S_{1/2}, M_J = \pm 1/2 \rightarrow D_{5/2}, M_J = \pm 1/2)$ counterparts. The summation of the frequency of the two transitions $(S_{1/2}, M_J = \pm 1/2 \rightarrow D_{5/2}, M_J = \mp 1/2)$ should cancel the first-order Zeeman shift if the magnetic field is constant in time at every point of the ring. A field fluctuation δB induces an uncertainty and a line broadening on this transition of 2.2 MHz/G. From the frequency fluctuations evaluated in [36] for the Jet Propulsion Laboratory (JPL) Hg^+ microwave clock, and reached by a three-layer magnetic shielding, one can infer magnetic field fluctuations of the order of 6×10^{-7} G, for a magnetic field of 0.05 G.

The magnetic field has to be large enough to resolve the transitions between various Zeeman sublevels. In a Ca^+ experiment, having a 1-kHz separation between neighboring transitions requires a magnetic field of 6×10^{-4} G. If one assumes the relative stability demonstrated in the JPL microwave clock, the Zeeman shift fluctuations are of the order of 0.013 Hz, which result in a fractional uncertainty of 3×10^{-17} . If the same absolute stability can be reproduced, the Zeeman shift fluctuations reach 1.0 Hz, which is equivalent to a fractional uncertainty of 2.5×10^{-15} . The same degree of frequency stability can be reached with less stringent conditions on the magnetic field stability using the hyperfine transition $M_F = 0 \rightarrow M'_F = 0$ of the odd isotope $^{43}\text{Ca}^+$ [25,26]. Nevertheless, cooling and state detection with an odd isotope require more laser sources than with an even isotope, and this complexity may not be acceptable.

The Zeeman effect also reduces the stability of a single-ion cloud. The main difference here is that the magnetic field has to be kept constant and homogeneous over the $40 \mu\text{m}$ (or $80 \mu\text{m}$) of the ring diameter, compared to the $1 \mu\text{m}$ scale associated with a single ion. This is still a favorable condition compared to the several centimeters long cloud used at JPL.

B. Blackbody radiation shift

The blackbody radiation shift (BBR shift) is the Stark effect induced by the thermal electric field radiated by the vacuum vessel and every part inside it. For calcium ions, very precise theoretical calculations [35] for the polarizabilities implied in the BBR shift allow us to know the shift to better than 3%: $\delta f_{\text{BBR}} = 0.38(1)$ Hz. This result assumes that the radiated field is isotropic and that the temperature of the emitting surface is 300 K. As the BBR shift scales with T^4 , thermal fluctuations can be detrimental to high-precision clocks. A 10 K uncertainty keeps the frequency uncertainty and eventual broadening (less probable as the time scales involved are very long) at the 0.05-Hz level, which is negligible in the context of our clock project. In conclusion, for temperature fluctuations smaller than 10 K, a long-term instability lower than 10^{-16} can be reached.

C. Quadrupole shift

Another effect well known in single-ion optical clocks is the quadrupole shift induced by the gradient of the local electric field coupled to the electric quadrupole of the $D_{5/2}$ state (a $S_{1/2}$ state has none). Thanks to a recent experiment [37], in agreement with precise theoretical calculations [38], the quadrupole of the Ca^+ $D_{5/2}$ state is known to better than 1%: $\theta(D_{5/2}) = 1.83(1) e a_0^2$ (a.u.). The coupling with the rf electric field gradient gives rise to sidebands in the clock transition spectra that are well separated from the central band f_0 , so that the dc electric field gradient is the only relevant contribution for this shift. The dc trapping field has a quadrupole profile, and using the notation of [34], its gradient is $2A = -m\omega_z^2/(2q)$. For a magnetic field parallel to the trap symmetry axis and for $\omega_z/2\pi = 1$ MHz, the quadrupole shift is

$$\delta f_Q = 1.0 \times (3M_J^2 - 35/4) \text{ Hz}. \quad (19)$$

For the Zeeman sublevels $M_J = \pm 1/2$, the quadrupole shift induced by this dc trapping field is 8.0 Hz and does not depend on the position of the ions. If the axial trapping voltage is well controlled, this shift should not reduce the performance of the clock. It is not the case for the shift induced by extra dc fields which can build up in the trap, for example, by neutral atom deposition. These fields can easily induce shifts of the order of 1 Hz from day-to-day operation and are well known from

single-ion clock operation. Two methods are used to reduce their day-to-day fluctuations: ionizing the neutral beam far from the clock operation area before shuttling them and/or using photoionization [39,40] which requires a far smaller flux of neutrals than the traditional electron bombardment method. If required, the shift itself can be compensated by the combination of three measurements on different Zeeman sublevels [41]. The method based on frequency measurements with three orthogonal directions of the magnetic field, used for single-ion standard [6,34], cannot be applied here because of the tensorial Stark shift dispersion (see Sec. III B). Altogether, the uncertainty and fluctuations induced by this quadrupole shift must be made smaller than 0.04 Hz to keep the long-term fractional frequency fluctuations smaller than 10^{-16} .

D. Misalignment

If the propagation axis of the clock laser does not match the symmetry axis of the ring, the ions do not see the same laser power. The induced variations in the excitation probability contribute to the noise of the excitation detection and reduce the short-term stability of the clock. Assuming a single Rabi pulse to interrogate the clock transition and a maximum excitation probability on resonance ($\Omega_L T = \pi$, with Ω_L the Rabi frequency of the atom-laser coupling and T the pulse duration), the variation in the excitation probability for a detuning giving the maximum sensitivity is $\delta P_e(T) = 0.72\delta\Omega_L/\Omega_L$. If one considers a Gaussian laser beam of waist w_L and intensity profile $I_L(r) = I_0 \exp(-2r^2/w_L^2)$, one can connect the variation $\delta\Omega_L$ to a misalignment δr . The dispersion in the probability of excitation is then

$$\delta P_e(T) = 0.36 \frac{4r\delta r}{w_L^2}. \quad (20)$$

The quantum projection noise $1/2\sqrt{N}$ [21] is a fundamental limit which can only be beaten by entanglement and squeezing methods [42]. Making $\delta P_e(T)$ small compared to this noise is sufficient to make misalignment effects negligible. An easy solution is to make the laser waist a lot larger than the ring radius R . Already with $w_L = 2R$, a geometrical precision of $\delta r < 0.27R$ is enough to keep $\delta P_e(T) < 0.1$ and makes the contribution to the noise negligible.

TABLE I. Uncertainty budget for the frequency transition of $|S_{1/2}, M_J = \pm 1/2\rangle \rightarrow |D_{5/2}, M_J = \mp 1/2\rangle$ in $^{40}\text{Ca}^+$, based on a ring in an octupole linear trap with $\omega_z/2\pi = 1$ MHz, $\Omega/2\pi = 20$ MHz, and a rf electric field such that $R = 20 \mu\text{m}$ (10 ions) or $40 \mu\text{m}$ (20 ions), as given in the table.

Effect	Conditions	Shift (Hz)	Broadening	Long-term instability
Doppler (2°)	$R = 20 \mu\text{m}$	+6.0	± 0.14	8×10^{-17}
	$R = 40 \mu\text{m}$	+24.1	± 0.28	5×10^{-17}
Stark	$R = 20 \mu\text{m}$	+4.1	± 0.09	6×10^{-17}
	$R = 40 \mu\text{m}$	+16.5	± 0.19	3×10^{-17}
Zeeman	$\delta B \leq 6 \times 10^{-7}$ G		<1	2.5×10^{-15}
BBR	$T = 300 \pm 10$ K	$+0.38(1) \pm 0.05$		$< 10^{-16}$
Quadrupole	Trapping field	+8.0	<0.1	$\leq 10^{-17}$
Quadrupole	Extra dc		$\simeq 0.04$	$\leq 10^{-16}$
Total	$R = 20 \mu\text{m}$	+18.5	± 0.2	2.5×10^{-15}
Total	$R = 40 \mu\text{m}$	+49.0	± 0.4	2.5×10^{-15}

V. CONCLUSION

The shift and uncertainty budget presented in Table I shows that the rf electric field is responsible for the major shifts and broadenings. The total broadening of the transition is smaller than 1 Hz, which is smaller than or comparable to the spectral broadening induced by the finite time excitation on the clock transition, depending on the Rabi pulse duration [25]. Therefore, the broadening due to the rf-induced shifts does not alter the short-term stability, and having 10 or 20 ions instead of one effectively results in a gain in stability by \sqrt{N} .

Furthermore, the fluctuations of the rf-induced effects over long time scales are not the limiting factors for the long-term stability of the clock. Indeed, a single-ion standard encounters the same limitations concerning uncertainty and long-term stability, due to coupling to the local electric and magnetic fields. The challenge for a ring is to keep the stability constraints over larger spatial scales than for a single ion.

As we have seen earlier, increasing the number of trapped ions allows one to further reduce the long-term fluctuations induced by ion loss, which scale with $\delta N/N^3$ and to lower the short-term instability by increasing the signal-to-noise ratio. In this article, we limited our study to 10- and 20-ion rings to keep the temperature compatible with clock operation conditions

while the cooling lasers are off. An alternative to a sequential operation that could allow us to work with larger rings is to sympathetically cool the calcium ions by ions with a different mass (LC ions). Our MD simulations on 10 calcium ions show that conditions for axial and radial decoupling can be found, allowing the LC ions to reach their Doppler limit on the axial motion while calcium axial temperature fluctuates between 1 and 3 mK. These studies have to be extended [33] to larger samples to demonstrate a gain compared to the simple one-species ring we have considered in this article. Such large cold rings could find an interest in metrology and/or quantum information or simulation. With today's state of the art in magnetic field stabilization, the ion loss is not the limiting effect for the frequency stability of a clock based on a ring of ions, and this configuration can offer the possibility of testing a many-particle system for metrology.

ACKNOWLEDGMENTS

One of the authors (C.C.) thanks Tanja Mehlstäubler for stimulating discussions about the ring configuration. Fernande Vedel is also gratefully acknowledged for her suggestions. M. Kajita was supported by a visiting professor grant at the Université de Provence when part of this work was initiated.

-
- [1] T. Udem *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **86**, 4996 (2001).
 - [2] C. Degenhardt *et al.*, *Phys. Rev. A* **72**, 062111 (2005).
 - [3] M. Takamoto, F.-L. Hong, R. Higashi, and H. Katori, *Nature (London)* **435**, 321 (2005).
 - [4] T. Akatsuka, M. Takamoto, and H. Katori, *Nature Phys.* **4**, 954 (2008).
 - [5] N. D. Lemke *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **103**, 063001 (2009).
 - [6] H. S. Margolis, G. P. Barwood, G. Huang, H. A. Klein, S. N. Lea, K. Szymaniec, and P. Gill, *Science* **306**, 1355 (2004).
 - [7] A. A. Madej, J. E. Bernard, P. Dubé, L. Marmet, and R. S. Windeler, *Phys. Rev. A* **70**, 012507 (2004).
 - [8] T. Schneider, E. Peik, and C. Tamm, *Phys. Rev. Lett.* **94**, 230801 (2005).
 - [9] T. Rosenband *et al.*, *Science* **319**, 1808 (2008).
 - [10] P. Fisk, *Rep. Prog. Phys.* **60**, 761 (1997).
 - [11] J. Prestage, S. Chung, T. Le, L. Lim, and L. Maleki, in *Proceedings of IEEE International Frequency Control Symposium, Miami, 5–7 June 2006* (IEEE, New York, 2006).
 - [12] J. Prestage and G. Weaver, *Proc. IEEE* **95**, 2235 (2007).
 - [13] J. Prestage, R. Tjoelker, and L. Maleki, in *Proceedings of the 1999 Joint EFTF IFCS, Besancon, France, 1999*, p. 121 (unpublished).
 - [14] J. Prestage, R. Tjoelker, and L. Maleki, *Frequency Measurement and Control: Advanced Techniques and Future Trends* (Springer, Berlin, 2001), p. 195.
 - [15] D. Gerlich, in *State-Selected and State-to-State Ion-Molecule Reaction Dynamics, Part I*, edited by C.-Y. Ng and M. Baer, *Advances in Chemical Physics*, Vol. 82 (Wiley, New York, 1992).
 - [16] R. Wester, *J. Phys. B* **42**, 154001 (2009).
 - [17] K. Okada, K. Yasuda, T. Takayanagi, M. Wada, H. A. Schuessler, and S. Ohtani, *Phys. Rev. A* **75**, 033409 (2007).
 - [18] K. Okada, T. Takayanagi, M. Wada, S. Ohtani, and H. A. Schuessler, *Phys. Rev. A* **80**, 043405 (2009).
 - [19] F. Calvo, C. Champenois, and E. Yurtsever, *Phys. Rev. A* **80**, 063401 (2009).
 - [20] C. Champenois, *J. Phys. B* **42**, 154002 (2009).
 - [21] W. M. Itano, J. C. Bergquist, J. J. Bollinger, J. M. Gilligan, D. J. Heinzen, F. L. Moore, M. G. Raizen, and D. J. Wineland, *Phys. Rev. A* **47**, 3554 (1993).
 - [22] D. Porras and J. I. Cirac, *Phys. Rev. Lett.* **96**, 250501 (2006).
 - [23] I. M. Buluta, M. Kitaoka, S. Georgescu, and S. Hasegawa, *Phys. Rev. A* **77**, 062320 (2008).
 - [24] B. Olmos, R. González-Férez, and I. Lesanovsky, *Phys. Rev. Lett.* **103**, 185302 (2009).
 - [25] C. Champenois, M. Houssin, C. Lisowski, M. Knoop, M. Vedel, and F. Vedel, *Phys. Lett. A* **331**, 298 (2004).
 - [26] M. Kajita, Y. Li, K. Matsubara, K. Hayasaka, and M. Hosokawa, *Phys. Rev. A* **72**, 043404 (2005).
 - [27] E. Teloy and D. Gerlich, *Chem. Phys.* **4**, 417 (1974).
 - [28] J. Mikosch, U. Fröhling, S. Trippel, R. Otto, P. Hlavenka, D. Schwalm, M. Weidemüller, and R. Wester, *Phys. Rev. A* **78**, 023402 (2008).
 - [29] J. Mikosch, U. Fröhling, S. Trippel, D. Schwalm, M. Weidemüller, and R. Wester, *Phys. Rev. Lett.* **98**, 223001 (2007).
 - [30] M. G. Raizen, J. M. Gilligan, J. C. Bergquist, W. M. Itano, and D. J. Wineland, *Phys. Rev. A* **45**, 6493 (1992).
 - [31] W. M. Itano, L. L. Lewis, and D. J. Wineland, *Phys. Rev. A* **25**, 1233 (1982).

La structure en anneau qui est étudiée dans l'article précédent pourrait aussi être mise à profit pour des simulations quantiques. En effet, un système en anneau est aussi proposé par Olmos *et al.*^{111,112} pour y mettre en évidence des états quantiques à plusieurs particules. La différence principale avec notre anneau d'ions est que chaque site occupé par un ion y est occupé par plus d'un atome de Rydberg, leur confinement étant assuré par un réseau optique. Néanmoins, la présence de plusieurs atomes par site ne semble pas nécessaire car le blocage de Rydberg empêche l'excitation simultanée de plus de un atome par site. Une autre différence réside dans les températures atteintes par les deux systèmes, des atomes neutres en réseau optique atteignant des températures bien plus faibles que des ions en multipoles. En effet, les auteurs supposent dans leur étude que les atomes (des bosons, dans ce cas) occupent le niveau fondamental de leur puits de potentiel. Il serait intéressant d'étudier dans quelle mesure cette contrainte peut être relâchée pour pouvoir appliquer leurs idées à un système d'ions en anneau.

IV.3 Un outil indispensable à la réalisation de larges échantillons : la photonionisation

La création des ions à l'intérieur d'un piège rf repose sur l'ionisation d'un jet ou d'une vapeur de neutre, selon la pression de vapeur saturante de l'espèce choisie. Dans le cas du calcium qui est un métal qui se sublime (passage direct entre la phase solide et vapeur), c'est un jet atomique qui s'impose, les atomes de calcium s'adsorbant sur les parois de l'enceinte au premier choc sur celle-ci. Le processus d'ionisation largement utilisé jusqu'ici est le bombardement électronique, les électrons étant guidés et accélérés à quelques eV vers la zone de collision. C'est une méthode robuste et bien maîtrisée qui permet de mettre en évidence rapidement les paramètres de confinement optimum et de créer des nuages de taille moyenne pour faire par exemple les premiers tests de transfert. Néanmoins, ce processus est de plus en plus supplanté par la photo-ionisation où l'énergie nécessaire à la ionisation est fournie par l'absorption d'un ou plusieurs photons^{113–115}. Les expériences récentes ont montré que ce processus est beaucoup plus efficace que les collisions avec des électrons et nécessite donc un moindre flux de neutre pour le même taux d'ions créés. De plus, les ions créés ont une énergie cinétique moindre et ne sont pas perturbés par le(s) faisceau(x) laser d'ionisation. Il est donc possible d'accumuler des ions dans un piège en faisant durer l'exposition du jet de neutre avec les lasers d'ionisation. La voie la plus prometteuse pour la création de gros nuages d'ions calcium est de procéder au refroidissement laser des ions créés, simultanément à la photo-ionisation du calcium neutre. Ceci permet de réduire l'énergie cinétique de collision neutre-ion qui pourrait mener à l'éjection des ions du piège et de réduire aussi l'extension spatiale du nuage dans sa phase de création. Des expériences réalisées sur des ions calcium en quadrupole ont démontré⁷⁶ une augmentation de taille d'au moins un ordre de grandeur entre un nuage créé par bombardement électronique et par photo-ionisation, dans le même piège. Même si un canon à électrons sera installé dans l'expérience pour disposer d'un processus d'ionisation robuste, nous pensons que c'est la photo-ionisation (PI) qui permettra de créer de gros nuages aussi c'est sur ce processus que se portent les contraintes de taux de création. Le taux d'ions créés est alors proportionnel à la probabilité d'ionisation et au flux de neutres disponibles. Nous traitons ces deux facteurs limitant dans les deux paragraphes suivants, en introduisant les contraintes induites par la géométrie de l'expérience, sachant que les ions

doivent obligatoirement être créés à l'intérieur du puits de potentiel pour y rester confinés.

IV.3.1 Taux de photo-ionisation à deux photons

L'énergie nécessaire à la PI du calcium correspond à un photon de 203 nm. Les sources laser à cette longueur sont rares et très coûteuses aussi l'alternative utilisée est la PI à deux photons^{113–116}. Plusieurs combinaisons de longueur d'onde permettent d'atteindre le seuil d'ionisation, la combinaison qui a priori donne le taux d'ionisation le plus élevé^{114,115} est celle qui exploite la transition résonante du calcium $4s^2 \rightarrow 4s4p$ à $\lambda_1 = 423$ nm, couplée à la transition vers le continuum $4s4p \rightarrow 4s+\epsilon$ ($\lambda_2 < 389$ nm). La première transition étant résonante, un taux maximal de PI est assuré par une source laser de largeur spectrale inférieure à la largeur naturelle de la raie (ici 35 MHz) et accordable en longueur d'onde. Une telle source à 423 nm n'est plus disponible sur le marché aussi elle doit être réalisée par doublage de fréquence d'une source laser à 846 nm (une diode laser en cavité étendue). Pour la transition vers le continuum, il n'y a pas de condition de résonance mais de seuil et plusieurs groupes ont réussi à photo-ioniser le calcium avec une simple LED (diode électro-luminescente)^{115,116}, solution que nous utiliserons et garderons si le taux de création est suffisant pour nos besoins.

La source à 423 nm est maintenant disponible dans le groupe et a été mise en place par plusieurs stagiaires en master et licence dont Diego Guénot qui a pu observer la fluorescence d'un jet de calcium neutre excité par cette source. Le rayonnement à 423 nm est produit par doublage de fréquence en simple passage dans un cristal non-linéaire à quasi-accord de phase, du ppKTP (pp pour "periodically poled"). Ces cristaux à quasi-accord de phase sont faciles d'utilisation et les contraintes géométriques à respecter pour un doublage efficace sont l'alignement de la polarisation du fondamental sur un des axes propres du cristal, indiqué par le constructeur, et l'adaptation de la taille du faisceau dans le cristal. La taille optimale de faisceau fondamental résulte du compromis entre deux exigences contradictoires : focaliser au maximum le faisceau pour favoriser le rendement du processus non-linéaire et exploiter la plus grande partie possible de cristal en donnant au faisceau une longueur de Rayleigh du même ordre que la longueur du cristal (le notre fait 2 cm de long). L'autre contrainte concerne la température du cristal qui doit être asservie pour avoir un rendement de doublage maximal à la longueur d'onde souhaitée. La courbe de gain ayant une largeur de l'ordre du degré, cet asservissement est tout à fait réalisable avec des techniques usuelles au laboratoire, à partir d'éléments Peltier, par exemple. Les détails sur le façonnage du faisceau, l'étude du rendement du doublage de fréquence et enfin l'observation de la fluorescence du calcium neutre sont présentés dans les rapports de stage de D. Boland, B. Mangote et D. Guénot. Le rendement de doublage, mesuré pour la longueur d'onde de transition du calcium est estimé à 2%/W en simple passage ce qui nous assure, avec une source à 846 nm de 130 mW monomode, une production de 200 μ W à la longueur d'onde qui nous intéresse. Ce rendement est à comparer aux 2.3%/W publiés^{117,118} pour des cristaux de même longueur à des longueurs d'onde très proches.

Pour estimer la puissance nécessaire à la PI du calcium, on peut calculer la section efficace ou le taux d'ionisation à deux photons, dans l'hypothèse d'une LED de longueur d'onde proche du seuil d'ionisation et d'un régime perturbatif d'excitation laser où la transition résonante n'est pas saturée. Ce calcul a été réalisé par M. Marciante lors de son stage de M1. La partie délicate du calcul est celle de l'estimation des dipôles de transition entre l'état excité $4s4p$ et les états

du continuum. Pour cela^h, nous nous sommes inspirés des calculs de Bethe et Salpeter pour l'hydrogène¹¹⁹ et avons déterminé, à partir du défaut quantique, à quel état de l'hydrogène correspond le 4s4p du calcium. Grâce à une pirouette¹²⁰ qui permet de sommer sur les états d'un continuum, on peut estimer le taux de PI à

$$\Gamma_{PI} = \frac{1,7 \cdot 10^{-11}}{w_r^4} \text{s}^{-1} \text{mW}^{-2} \quad (\text{IV.37})$$

qui correspond à la probabilité qu'à un atome neutre présent dans les deux ondes lasers (que nous supposons superposées) d'être ionisé, pendant une seconde, pour des puissances laser exprimées en mW, w_r étant le rayon waist commun aux deux lasers (ici exprimé en m).

Le taux d'ions calcium créés par seconde \dot{N}^+ s'écrit alors

$$\dot{N}^+ = \Gamma_{PI} \times F^u \times \tau_i \times P_{L1} \times P_{L2} \quad (\text{IV.38})$$

où P_{L1} et P_{L2} sont les puissances des deux lasers (en mW), F^u est le flux d'atomes neutres utiles et où le temps d'interaction τ_i correspond ici au temps de traversée de l'onde laser $2w_r/v_a$ dans l'hypothèse où la vitesse des atomes v_a est transverse à l'onde laser (on prend pour v_a la vitesse moyenne du jet).

Nous avons aussi envisagé de réaliser la PI du calcium à deux photons de même couleur, pour mettre à profit la proximité du double de la longueur d'onde de la transition d'ionisation avec la longueur d'onde choisie comme standard du *Blue Ray* pour les lecteurs DVD "bleus", 405 nm. En effet, des sources lasers très bon marché sont disponibles à cette longueur d'onde, mais elles ne sont pas encore assez puissantes. J'ai calculé le taux de PI pour ce processus par une méthode proche de celle utilisée pour le calcul précédent. L'écart à résonance avec le niveau relais le plus proche est tel que le résultat donne un taux 10^{14} fois plus faible qu'en excitant la transition de résonance. Même avec des sources puissantes, un taux aussi faible ne permet pas d'envisager un processus à deux photons-une couleur pour la création de gros nuages mais peut devenir un jour réaliste pour la production d'ions uniques ou de quelques ions.

IV.3.2 Réalisation d'un jet atomique adapté au piège

Dans ce paragraphe, nous avançons les arguments qui ont décidé des caractéristiques très importantes du dispositif expérimental en construction et qui concernent la production d'un jet de calcium neutre par un four. L'équation (IV.38) montre que les caractéristiques du jet influencent le taux d'ions créés par le flux utile et la durée d'interaction. Le flux utile F^u dépend du processus d'ionisation à travers sa géométrie. Dans le cas de la photo-ionisation (PI), seuls les atomes croisant les deux faisceaux lasers (que l'on suppose ici superposés) sont utiles pour l'expérience. Il est donc important d'optimiser le flux de neutre à travers la surface utile et ce sont les caractéristiques du four (géométrie et température) ainsi que d'éventuelles fentes de collimation qui contrôlent ce flux.

La version simple du jet effusif est un simple trou dans une enceinte thermostatée. Les jets ainsi produits sont très divergents et arrosent quasiment les 180° en sortie, ce qui est dommageable pour la stabilité des potentiels électrostatiques autour du piège. Une façon simple de

^hguidés par F. Biraben et conseillés par D. Delande

collimater le jet est de donner au trou de sortie un profil de tube¹²¹, de rayon r_s plus petit que sa longueur l_s . Le demi-angle de sortie du fourⁱ est alors limité par θ_s tel que $\sin \theta_s = r_s/l_s$. La collimation a aussi pour effet de réduire le nombre d'atomes sortant du four. Le coefficient géométrique $1/\kappa = 8r_s/(3l_s)$, démontré dans le cas où $l_s \gg r_s$ pondère ainsi le nombre d'atomes Q sortant du four par seconde,

$$Q = \frac{1}{4}(1/\kappa)n v_a A_s \quad (\text{IV.39})$$

A_s étant la surface émettrice πr_s^2 et n la densité dans le four, calculée plus loin.

Le flux utile est celui qui traverse la surface définie par l'intersection du jet et de l'onde laser. Dans le cas où les lasers se propagent perpendiculairement à l'axe du piège, c'est la distance entre les barreaux qui définit la surface utile du jet, ce qui conduit à une baisse certaine du taux d'ions créés si la collimation du jet ne correspond pas exactement à l'écartement des barreaux. De plus, l'efficacité de confinement n'étant pas garantie dans le voisinage des barreaux, la surface utile effective n'est en fait que la moitié de l'intersection jet-lasers. À l'inverse, la géométrie colinéaire (lasers alignés sur l'axe du piège) permet de s'affranchir de la distance entre les barreaux^j et d'exploiter toute la zone de piégeage effectif lors de la phase de création.

Dans la suite, nous ne considérons que cette configuration colinéaire. La surface utile est la superposition d'une bande sur un cercle, de surface $2w_r \times 2R_j$ avec $R_j = d_{sL} \sin(\theta_s)$ le rayon du jet à l'endroit où il croise le laser, d_{sL} est la distance source-Lasers. Le taux d'ions créés est maximal si la surface utile est à l'intérieur du volume de piégeage effectif et la configuration idéale est celle qui adapte la taille de la surface utile à cette zone. Alors le flux utile est

$$F^u = (1/\kappa)n v_a r_s^2 \frac{w_r}{d_{sL} \sin(\theta_s)}. \quad (\text{IV.40})$$

Le taux d'ions créés peut alors s'écrire comme

$$\dot{N}^+ = 9,1 \cdot 10^{-11} n \frac{r_s^2}{w_r^2 d_{sL}} \times P_{L1} \times P_{L2}. \quad (\text{IV.41})$$

Cette expression ne dépend plus explicitement de la longueur de la source mais il faut garder à l'esprit que ce résultat n'est pertinent que pour un ouverture longue ($l_s \gg r_s$).

Pour quantifier ce taux, il est nécessaire d'avoir une idée de la densité de calcium dans le four. Cette densité se déduit de la pression de vapeur saturante du calcium. Deux publications assez anciennes^{122,123} donnent cette pression pour des températures entre 500 et 625 °C. Il y a un facteur 6 à 8 entre les pressions annoncées dans ces deux publications, pour les températures qui nous intéressent et nous utilisons les plus pessimistes des deux pour estimer le taux d'ions :

$$\log P(\text{mmHg}) = 8.15 - \frac{9670}{T} \quad (\text{IV.42})$$

soit pour la densité n de calcium neutre dans le four les valeurs suivantes :

ⁱles angles sont donnés par rapport à la normale à la surface de sortie

^jet si effectivement le jet est plus large que la distance inter-barreaux, on peut rajouter une fente en amont pour éviter le dépôt de calcium sur les barreaux

température	densité
300 °C	3.2×10^{13} at/m ³
400 °C	8.6×10^{15} at/m ³
500 °C	5.4×10^{17} at/m ³

Avec des valeurs réalistes telles que $P_{L1} = P_{L2} = 100 \mu\text{W}$, $w_r = 250 \mu\text{m}$ et une température de four de 400°C, on peut attendre un taux d'ions

$$\dot{N}^+ = 1,2 \cdot 10^8 \frac{r_s^2(\text{mm})}{d_{sL}(\text{mm})} \text{ s}^{-1}. \quad (\text{IV.43})$$

L'ouverture entre les barreaux est de 3 mm alors que la distance entre le centre du piège et l'endroit où les barreaux sont les plus proches est de 6 mm. Le rayon du jet lorsqu'il traverse les barreaux est $d_{sb}r_s/l_s$ et doit être inférieur à 1,5 mm si on veut adapter la divergence du jet pour qu'il passe à travers les barreaux de quadrupole, (d_{sb} est la distance source-barreaux et $d_{sL} = d_{sb} + 6$ mm). Dans l'hypothèse d'un four de rayon 1 mm et de longueur 20 mm, il faut que la distance source-barreaux soit inférieure à 30 mm et alors le taux d'ions est $\dot{N}^+ = 3.3 \times 10^6 \text{ s}^{-1}$. L'ordre de grandeur de ce taux de création rend tout à fait réalisable la création d'un nuage d'ions de 10^7 ions. Par contre, l'estimation précédente montre qu'il est crucial d'atteindre une température proche de 400°C dans le four, la densité et donc le taux de création chutant d'un facteur 270 si la température du four n'est que de 300°C.

Dans tout ce chapitre, nous avons présenté des évaluations aussi précises que possible concernant d'une part la dimension des nuages pour une température et un nombre d'ions donnés et d'autre part le taux d'ions créés dans l'expérience. Finalement, la taille des nuages que nous réussirons effectivement à piéger dépend de ces deux caractéristiques, mais aussi du processus d'ionisation lui-même, par sa durée, par exemple, et de l'efficacité du refroidissement laser pendant la création des ions. La conjonction de tous ses facteurs au sein d'un nouveau piège comporte beaucoup d'éléments imprévisibles que seule l'expérience pourra lever. Par rapport aux dispositifs à une seule zone de piégeage, nous avons l'avantage de pouvoir accumuler des ions en stockant un nuage dans une des extrémités du piège pendant qu'un nouveau lot d'ions est créé dans la partie dévolue à l'ionisation. Cette alternative est certainement un atout majeur pour réaliser des gros nuages et contourner les facteurs limitant la taille des nuages d'ions lors de la création.

Chapitre V

CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES

Les travaux présentés dans ce mémoire donnent un aperçu de la richesse des phénomènes accessibles à l'étude grâce à cet outil de choix qu'est un système d'ions piégés en interaction avec un ou plusieurs lasers. Ces phénomènes diffèrent selon que l'on piège un, quelques ou beaucoup d'ions. Selon les cas on peut exploiter le contrôle ultime qu'on possède sur le système {ion(s)+laser(s)}, comme dans les trois exemples d'application à la métrologie des fréquences, ou on peut utiliser les ions piégés comme système modèle, par exemple pour l'étude des phénomènes collectifs sous l'effet des interactions à longue portée, et c'est l'objectif de l'expérience en construction.

Grâce à Jofre Pedregosa, la conception de cette expérience est maintenant terminée et nous en préparons l'implémentation. L'achat d'un laser puissant à 397 nm, nécessaire au refroidissement des ions s'étendant sur une section de 1 mm de diamètre, a pu être financé grâce au soutien de l'ANR. Le plan de travail pour cette expérience est envisagé comme suit : la mise au point de la création des ions, par bombardement électronique et par photo-ionisation, sera réalisée dans une portion de la partie quadrupolaire du piège, réservée à cet usage, et séparée du reste du piège par un potentiel statique. L'efficacité du refroidissement laser et les températures limites atteintes seront étudiées tout d'abord dans la partie quadrupolaire, en fonction des paramètres de confinement. Un des objectifs de l'étude de la cristallisation en quadrupole est d'atteindre la taille critique pour laquelle on observe une structure cristalline indépendante des conditions aux limites et qui ne reflète plus la morphologie du potentiel de confinement.

Ensuite, nous passerons au transfert d'un nuage, de plus en plus gros, de la partie quadrupolaire à la partie multipolaire. La mise au point d'un protocole de transport optimal qui permettrait de transférer sans perdre ni chauffer les ions est un des enjeux de ce projet. Des protocoles de transport¹²⁴ (optimaux ou non) ont déjà été mis au point pour des atomes neutres en piège dipolaire^{125,126} et des ions en micro-piège¹²⁷. Ici, la mise en pratique est compliquée par le fait que nous ne pouvons jouer que sur trois tensions statiques pour générer le profil de confinement souhaité et le déplacer à la vitesse voulue.

Le chargement du multipole à partir du quadrupole, où les ions peuvent être refroidis, permet de contrôler les conditions initiales dans cette partie du piège et ainsi d'assurer plus facilement la stabilité des trajectoires et la reproductibilité des expériences. On pourra alors aborder la phase d'étude des transitions de phase en octupole. Outre la vérification expérimentale des lois d'échelle attendues, nous espérons observer la coexistence d'une phase fluide, au centre, et d'une phase organisée, à l'extérieur du nuage. Ce type de comportement est prévu⁸⁶ à 0 K en octopole 3D pour un nombre d'ions dépassant 10^5 ions. Atteindre les températures nécessaires à l'observation de phénomènes intéressants avec un nombre d'ions élevé est un défi que nous espérons relever.

Sur le plus long terme, nous aimerions changer de dispositif expérimental pour pouvoir nous affranchir du transport des ions et modifier le profil du potentiel de confinement in situ, pour y étudier la réorganisation des structures stables. Pour cela, il faut transformer la configuration électrique d'un piège du mode quadrupolaire au mode multipolaire et vice-versa. Pour des raisons de symétrie, il semble beaucoup plus réaliste d'utiliser un piège à 12 pôles qu'à 8. Comme l'ouverture optique et l'efficacité de confinement chute avec le nombre de barreaux, nous démarrerons cette expérience dans un deuxième temps, quand les problèmes de collection de photons et de confinement en multipole auront été résolus dans un piège à 8 pôles. Je suis convaincue que l'alliance du confinement multipolaire "ajustable" et des techniques déjà bien maîtrisées de contrôle des ions par interaction avec des lasers ouvrira la porte à l'observation de nombreux effets que nous n'avons pas encore anticipés.

La structure en anneau dont nous avons démontré théoriquement l'existence en multipole linéaire ne pourra pas être observée dans le piège en construction, car les champs électriques nécessaires ne sont pas réalisables dans un piège de si grande taille. Néanmoins, on peut envisager dans le futur de développer un mini-piège octupolaire capable de maintenir une telle structure stable sous refroidissement laser. Outre l'intérêt métrologique étudié dans l'article publié, cette structure peut servir de système modèle pour les états et les excitations à plusieurs particules, comme démontré théoriquement pour des atomes neutres de Rydberg piégés dans une structure stable^{111,112}. La possibilité d'exploiter le couplage dipole-dipole entre ions excités dans des états de Rydberg a par ailleurs été étudiée¹²⁸ pour une chaîne d'ions, en vue de proposer des portes logiques rapides. Instaurer ce fort couplage dipole-dipole entre ions constituant un anneau permettrait de réaliser les expériences proposées tout d'abord pour un gaz neutre en réseau optique^{111,112}. La quantification des limitations introduites par la température finie atteinte par le micro-mouvement des ions se fera certainement en collaboration avec les auteurs de ces travaux.

Dans l'objectif de prévoir la dynamique et l'auto-organisation des ions piégés, les simulations numériques par dynamique moléculaire offrent un outil efficace qui permet de prendre en compte différentes formes de potentiel ainsi que le refroidissement laser. Les travaux que M. Marciante mène pendant sa thèse^a ont une portée beaucoup plus vaste que la démonstration de la stabilité de la structure en anneau mentionnée plus haut. Ensemble, nous nous sommes intéressés au rôle du couplage coulombien dans la thermalisation des degrés de liberté d'un nuage en piège quadrupolaire linéaire. Ces travaux, soumis pour publication¹²⁹, ont confirmé une grande corrélation entre la morphologie des nuages froids et l'efficacité du couplage coulombien. Par ailleurs, les simulations ont permis de comparer les résultats obtenus dans l'approximation du pseudo-potentiel à ceux obtenus avec un champ électrique rf. Ces comparaisons montrent que, même si les températures limites atteintes sont différentes dans les deux cas, à cause du chauffage rf, la thermalisation des degrés de liberté se comporte elle de la même façon en fonction du rapport d'aspect du nuage. Nous voulons étendre notre étude aux ions en piège octupolaire linéaire en nous focalisant d'abord sur les structures à petits nombres d'ions (quelques dizaines), pour y quantifier l'efficacité du refroidissement sympathique d'une espèce non refroidie par laser par thermalisation avec une autre espèce, refroidie par laser. Si les ions ont des masses différentes, à basse température, ils s'organisent en anneaux ou tubes concentriques. On s'attend à ce que la distance entre les ions et la morphologie de la structure d'équilibre jouent un rôle majeur dans ce refroidissement. La mise en évidence de systèmes refroidis sympathiquement et at-

^aen co-tutelle avec A. Calisti, spécialiste de dynamique moléculaire dans les plasmas

teignant la limite Doppler, au moins selon l'axe de symétrie, permettrait de relâcher la contrainte d'un refroidissement séquentiel pour le protocole d'horloge optique proposé en IV.2.2 et donc d'augmenter le nombre d'ions utilisés comme référence.

Parallèlement à ces études expérimentales, j'aimerais mener plus loin les travaux relatifs aux phénomènes de piégeage cohérent de population à trois photons, introduit en III.2.2. Jusqu'ici, seules les propriétés stationnaires de ce phénomène ont été étudiées, en particulier pour la métrologie. Pourtant, à deux photons, le piégeage cohérent est aussi exploité dans un contexte dynamique pour le transfert stimulé de population d'un état stable ou métastable à un autre, sans peuplement de l'état excité et donc sans émission spontanée qui détruit la cohérence de l'état atomique. Les méthodes actuellement utilisées sont inspirées du STIRAP (STImulated Raman Adiabatic Passage), mis au point par K. Bergmann et ses collaborateurs⁶⁸. L'extrapolation du STIRAP de deux à trois photons n'est pas évidente et mes tentatives^b de simulations numériques de transfert cohérent de population ont toutes montré, pour l'instant, un taux de perte de cohérence substantiel. Une analyse plus poussée des conditions d'adiabaticité dans le cas de la résonance à trois photons est nécessaire pour identifier si les conditions de passage adiabatique sont compatibles avec le système lui-même. Dans le cas de l'ion calcium, ceci permettrait par exemple, le stockage d'information dans les sous-niveaux métastables qui servent de base aux qu-bit^c optiques. Comme on peut affranchir la résonance à trois photons de l'effet Doppler du premier ordre, il serait alors envisageable de manipuler l'état interne d'un échantillon d'ions simultanément alors que jusqu'ici, la plupart des protocoles d'intrication repose sur l'adressage individuel des ions.

^ben collaboration avec G. Morigi

^cpour quantum-bit, la brique élémentaire du calcul quantique

Références

- (1) W. NEUHAUSER, M. HOHENSTATT, P. TOSCHEK ET H. DEHMELT, *Localized Visible Ba⁺ Mono-Ion Oscillator*, Phys. Rev. A **22**, 1137 (1980).
- (2) W. PAUL, *Electromagnetic traps for charged and neutral particles*, Rev. Mod. Phys. **62**(3), 531 (1990).
- (3) T. HÄNSCH ET A. SCHAWLOW, *Cooling of gases by laser radiation*, Optics Comm. **13**, 68 (1975).
- (4) D. J. WINELAND ET H. G. DEHMELT, *Proposed $10^{14} \delta\nu < \nu$ Laser Fluorescence Spectroscopy on Tl⁺ Mono-Ion Oscillator III*, Bull. Am. Phys. Soc. **20**, 637 (1975).
- (5) D. J. WINELAND, R. E. DRULLINGER ET F. L. WALLS, *Radiation-Pressure Cooling of Bound Resonant Absorbers*, Phys. Rev. Lett. **40**(25), 1639 (1978).
- (6) W. NEUHAUSER, M. HOHENSTATT, P. TOSCHEK ET H. DEHMELT, *Optical-Sideband Cooling of Visible Atom Cloud Confined in Parabolic Well*, Phys. Rev. Lett. **41**, 233 (1978).
- (7) H. HÄFFNER, W. HANSEL, C. ROOS, J. BENHELM, D. C. AL KAR, M. CHWALLA, T. KÖRBER, U. RAPOLA, M. RIEBE, P. SCHMIDT, C. BECHER, O. GÜHNE, W. DÜR ET R. BLATT, *Scalable multiparticle entanglement of trapped ions*, Nature **438**, 643 (2005).
- (8) D. LEIBFRIED, E. KNILL, S. SEIDELIN, J. BRITTON, R. B. BLAKESTAD, J. CHIAVERINI, D. B. HUME, W. M. ITANO, J. D. JOST, C. LANGER, R. OZERI, R. REICHLER ET D. J. WINELAND, *Creation of a six-atom 'Schrodinger cat' state.*, Nature **453**, 4091 (2005).
- (9) C. W. CHOU, D. B. HUME, J. C. J. KOELEMENIJ, D. J. WINELAND ET T. ROSEN-BAND, *Frequency Comparison of Two High-Accuracy Al⁺ Optical Clocks*, Phys. Rev. Lett. **104**(7), 070802 (2010).
- (10) R. WESTER, *Radiofrequency multipole traps: tools for spectroscopy and dynamics of cold molecular ions*, J. Phys. B **42**(15), 154001 (2009).
- (11) K. OKADA, K. YASUDA, T. TAKAYANAGI, M. WADA, H. A. SCHUESSLER ET S. OHTANI, *Crystallization of Ca⁺ ions in a linear rf octupole ion trap*, Phys. Rev. A **75**(3), 033409 (2007).
- (12) K. OKADA, T. TAKAYANAGI, M. WADA, S. OHTANI ET H. A. SCHUESSLER, *Observation of ion Coulomb crystals in a cryogenic linear octupole rf ion trap*, Phys. Rev. A **80**(4), 043405 (2009).

- (13) J. WALZ, I. SIEMERS, M. SCHUBERT, W. NEUHAUSER, R. BLATT ET E. TELOY, *Ion storage in the rf octupole trap*, Phys. Rev. A **50**(5), 4122 (1994).
- (14) P. K. GHOSH, *Ion traps* (Oxford university press, 1995).
- (15) F. MAJOR, V. GHEORGHE ET G. WERTH, *Charged particle traps* (Springer, 2005).
- (16) L. LANDAU ET E. LIFCHITZ, *Mecanique* (Editions Mir, Moscou, 1969).
- (17) R. J. COOK, D. G. SHANKLAND ET A. L. WELLS, *Quantum theory of particle motion in a rapidly oscillating field*, Phys. Rev. A **31**(2), 564 (1985).
- (18) H. DEHMELT, *Radiofrequency spectroscopy of stored ions I: storage*, Advances in Atomic and Molecular Physics **3**, 53 (1967).
- (19) D. BERKELAND, J. MILLER, J. BERGQUIST, W. ITANO ET D. WINELAND, *Minimization of ion micromotion in a Paul trap*, J. Appl. Phys. **83**, 5025 (1998).
- (20) M. VEDEL, J. ROCHER, M. KNOOP ET F. VEDEL, *Evidence of radial-axial motion couplings in an rf stored ion cloud*, Appl. Phys. B **66**, 191 (1998).
- (21) D. EADES, J. JOHNSON ET R. YOST, J. Am. Soc. Mass Spectrom. **4**, 917 (1993).
- (22) R. ALHEIT, C. HENNIG, MORGENSTERN, F. VEDEL ET G. WERTH, *Observation of instabilities in a Paul trap with higher-order anharmonicities*, Appl. Phys. B **61**, 277 (1995).
- (23) M.-N. BENILAN ET C. AUDOIN, *Confinement d'ions par un champ électrique de radiofréquence dans une cage cylindrique*, Int.J. Mass Spectrom. Ion Processes **11**, 421 (1973).
- (24) F. VEDEL ET J. ANDRÉ, *Influence of space charge on the computed statistical properties of stored ions cooled by a buffer gas in a quadrupole rf trap*, Phys. Rev. A **29**(4), 2098 (1984).
- (25) D. J. WINELAND ET W. M. ITANO, *Laser cooling of atoms*, Phys. Rev. A **20**(4), 1521 (1979).
- (26) W. M. ITANO ET D. J. WINELAND, *Laser cooling of ions stored in harmonic and Penning traps*, Phys. Rev. A **25**(1), 35 (1982).
- (27) S. STENHOLM, *The semiclassical theory of laser cooling*, Rev. Mod. Phys. **58**(3), 699 (1986).
- (28) D. LEIBFRIED, R. BLATT, C. MONROE ET D. WINELAND, *Quantum dynamics of single trapped ions*, Rev. Mod. Phys. **75**(1), 281 (2003).
- (29) C. A. BLOCKLEY, D. F. WALLS ET H. RISKEN, *Quantum Collapses and Revivals in a Quantized Trap*, EPL (Europhysics Letters) **17**(6), 509 (1992).
- (30) J. I. CIRAC, R. BLATT, A. S. PARKINS ET P. ZOLLER, *Quantum collapse and revival in the motion of a single trapped ion*, Phys. Rev. A **49**(2), 1202 (1994).
- (31) D. M. MEEKHOF, C. MONROE, B. E. KING, W. M. ITANO ET D. J. WINELAND, *Generation of Nonclassical Motional States of a Trapped Atom*, Phys. Rev. Lett. **76**, 1796 (1996).

- (32) C. COHEN-TANNOUDJI, *Frontiers in laser spectroscopy, Les Houches 1975*, p. 58 (North-Holland, 1977).
- (33) C. RAAB, *Interference experiments with the fluorescence light of Ba⁺ ions*, Thèse de doctorat, Université d'Innsbrück (2001).
- (34) J. ESCHNER, *Sub-wavelength resolution of optical fields probed by single trapped ions: Interference, phase modulation, and which-way information*, Eur. Phys. J. D **22**, 341 (2003).
- (35) K. E. CAHILL ET R. J. GLAUBER, *Ordered Expansions in Boson Amplitude Operators*, Phys. Rev. **177**(5), 1857 (1969).
- (36) H. DEHMELT, *Proposed $10^{-14}\Delta v < v$ Laser Fluorescence Spectroscopy on Tl⁺ Mono-Ion Oscillator II (spontaneous quantum jumps)*, Bull. Am. Phys. Soc. **20**, 60 (1975).
- (37) W. NAGOURNEY, J. SANDBERG ET H. DEHMELT, *Shelved optical electron amplifier: Observation of quantum jumps*, Phys. Rev. Lett. **56**(26), 2797 (1986).
- (38) T. SAUTER, W. NEUHAUSER, R. BLATT ET P. E. TOSCHEK, *Observation of Quantum Jumps*, Phys. Rev. Lett. **57**(14), 1696 (1986).
- (39) J. C. BERGQUIST, R. G. HULET, W. M. ITANO ET D. J. WINELAND, *Observation of Quantum Jumps in a Single Atom*, Phys. Rev. Lett. **57**(14), 1699 (1986).
- (40) W. ITANO, J. BERGQUIST, J. BOLLINGER, J. GILLIGAN, D. HEINZEN, F. MOORE, M. RAIZEN ET D. WINELAND, *Quantum projection noise: population fluctuations in two level systems*, Phys. Rev. A **47**(5), 3554 (1993).
- (41) C. CHAMPENOIS, M. HOUSSIN, C. LISOWSKI, M. KNOOP, M. VEDEL ET F. VEDEL, *Evaluation of the ultimate performances of a Ca⁺ single-ion frequency standard*, Phys. Lett. A **331**, 298 (2004).
- (42) H. S. MARGOLIS, G. P. BARWOOD, G. HUANG, H. A. KLEIN, S. N. LEA, K. SZYMANIEC ET P. GILL, *Hertz-level measurement of the optical clock frequency in a single ⁸⁸Sr⁺ ion.*, Science **306**, 1355 (2004).
- (43) P. DUBÉ, A. A. MADEJ, J. E. BERNARD, L. MARMET, J.-S. BOULANGER ET S. CUNDY, *Electric Quadrupole Shift Cancellation in Single-Ion Optical Frequency Standards*, Phys. Rev. Lett. **95**(3), 033001 (2005).
- (44) W. ITANO, *External-field shifts of the ¹⁹⁹Hg⁺ optical frequency standard*, J. Res. Natl. Inst. Stand. Technol. **105**, 829 (2000).
- (45) W. H. OSKAY, S. A. DIDDAMS, E. A. DONLEY, T. M. FORTIER, T. P. HEAVNER, L. HOLLBERG, W. M. ITANO, S. R. JEFFERTS, M. J. DELANEY, K. KIM, F. LEVI, T. E. PARKER ET J. C. BERGQUIST, *Single-Atom Optical Clock with High Accuracy*, Phys. Rev. Lett. **97**(2), 020801 (2006).
- (46) C. ROOS, M. CHWALLA, K. KIM, M. RIEBE ET R. BLATT, *'Designer atom' for quantum metrology*, Nature **443**, 316 (2006).
- (47) D. JIANG, B. ARORA ET M. S. SAFRONOVA, *Electric quadrupole moments of metastable states of Ca⁺, Sr⁺, and Ba⁺*, Phys. Rev. A **78**(2), 022514 (2008).

- (48) B. ARORA, M. S. SAFRONOVA ET C. W. CLARK, *Blackbody-radiation shift in a $^{43}\text{Ca}^+$ ion optical frequency standard*, Phys. Rev. A **76**, 064501 (2007).
- (49) P. LETT, W. PHILLIPS, S. ROLSTON, C. TANNER, R. WATTS ET C.I. WESTBROOK, *Optical molasses*, J. Opt. Soc. Am. B **6**(11), 2084 (1989).
- (50) D. J. WINELAND, W. M. ITANO, J. C. BERGQUIST ET R. G. HULET, *Laser-cooling limits and single-ion spectroscopy*, Phys. Rev. A **36**(5), 2220 (1987).
- (51) F. DIEDRICH, J. C. BERGQUIST, W. M. ITANO ET D. J. WINELAND, *Laser Cooling to the Zero-Point Energy of Motion*, Phys. Rev. Lett. **62**(4), 403 (1989).
- (52) C. CHAMPENOIS, G. HAGEL, M. KNOOP, M. HOUSSIN, C. ZUMSTEG, F. VEDEL ET M. DREWSSEN, *Two-step Doppler cooling of a three-level ladder system with an intermediate metastable level*, Phys. Rev. A **77**(3), 033411 (2008).
- (53) R. J. HENDRICKS, J. L. SØRENSEN, C. CHAMPENOIS, M. KNOOP ET M. DREWSSEN, *Doppler cooling of calcium ions using a dipole-forbidden transition*, Physical Review A **77**, 021401 (2008).
- (54) N. REHBEIN, T. E. MEHLSTÄUBLER, J. KEUPP, K. MOLDENHAUER, E. M. RASEL, W. ERTMER, A. DOUILLET, V. MICHELS, S. G. PORSEV, A. DEREVIANKO, C. FROESE FISCHER, G. I. TACHIEV ET V. G. PALCHIKOV, *Optical quenching of metastable magnesium*, Phys. Rev. A **76**(4), 043406 (2007).
- (55) T. E. MEHLSTÄUBLER, K. MOLDENHAUER, M. RIEDMANN, N. REHBEIN, J. FRIEBE, E. M. RASEL ET W. ERTMER, *Observation of sub-Doppler temperatures in bosonic magnesium*, Phys. Rev. A **77**(2), 021402 (2008).
- (56) T. IDO ET H. KATORI, *Recoil-Free Spectroscopy of Neutral Sr Atoms in the Lamb-Dicke Regime*, Phys. Rev. Lett. **91**(5), 053001 (2003).
- (57) A. D. LUDLOW, T. ZELEVINSKY, G. K. CAMPBELL, S. BLATT, M. M. BOYD, M. H. G. DE MIRANDA, M. J. MARTIN, J. W. THOMSEN, S. M. FOREMAN, J. YE, T. M. FORTIER, J. E. STALNAKER, S. A. DIDDAMS, Y. LE COQ, Z. W. BARBER, N. POLI, N. D. LEMKE, K. M. BECK ET C. W. OATES, *Sr Lattice Clock at 1×10^{-16} Fractional Uncertainty by Remote Optical Evaluation with a Ca Clock*, Science **319**(5871), 1805 (2008).
- (58) C. SCHNEIDER, M. ENDERLEIN, T. HUBER ET T. SCHAETZ, *Optical Trapping of an Ion*, arXiv-quant-ph **1001.2953** (2010).
- (59) C. COHEN-TANNOUJDI, J. DUPONT-ROC ET G. GRYNBERG, *Processus d'interaction entre photons et atomes* (EDP sciences, CNRS éditions, 1996).
- (60) E. ARIMONDO, *Coherent population trapping in laser spectroscopy*, dans *Progress in Optics*, édité par E. Wolf, tm. XXXV, chap. V, p. 258 (Elsevier Science, 1996).
- (61) T. ZANON-WILLETTE, *Développement d'une horloge à piégeage cohérent de population, étude théorique et expérimental du régime impulsif et continu*, Thèse de doctorat, Université Paris VI (2005).
- (62) J. VANIER, *Atomic clock based on coherent population trapping: a review*, Appl. Phys. B **81**, 421 (2005).

- (63) H. NÄGERL, C. ROOS, D. LIEBFRIED, H. ROHDE, G. THALHAMMER, J. ESCHNER, F. SCHMIDT-KALER ET R. BLATT, *Investigating a qubit candidate: spectroscopy on the $S_{1/2}$ to $D_{5/2}$ transition of a trapped calcium ion in a linear Paul trap*, Phys. Rev. A **61**, 023405 (2000).
- (64) F. SCHMIDT-KALER, H. HÄFFNER, M. RIEBE, S. GULDE, G. P. T. LANCASTER, T. DEUTSCHLE, C. BECHER, C. ROOS, J. ESCHNER ET R. BLATT, *Realization of the Cirac-Zoller controlled-NOT quantum gate*, Nature **422**, 408 (2003).
- (65) S. HAZE, R. YAMAZAKI, K. TOYODA ET S. URABE, *Measurement and compensation of optical Stark shifts for manipulating the terahertz-separated qubit in $^{40}\text{Ca}^+$* , Phys. Rev. A **80**(5), 053408 (2009).
- (66) K. TOYODA, S. HAZE, R. YAMAZAKI ET S. URABE, *Quantum gate using qubit states separated by terahertz*, Phys. Rev. A **81**(3), 032322 (2010).
- (67) Q. A. TURCHETTE, C. S. WOOD, B. E. KING, C. J. MYATT, D. LEIBFRIED, W. M. ITANO, C. MONROE ET D. J. WINELAND, *Deterministic Entanglement of Two Trapped Ions*, Phys. Rev. Lett. **81**(17), 3631 (1998).
- (68) J. R. KUKLINSKI, U. GAUBATZ, F. T. HIOE ET K. BERGMANN, *Adiabatic population transfer in a three-level system driven by delayed laser pulses*, Phys. Rev. A **40**(11), 6741 (1989).
- (69) S. SEIDELIN, J. CHIAVERINI, R. REICHLER, J. J. BOLLINGER, D. LEIBFRIED, J. BRITTON, J. H. WESENBERG, R. B. BLAKESTAD, R. J. EPSTEIN, D. B. HUME, W. M. ITANO, J. D. JOST, C. LANGER, R. OZERI, N. SHIGA ET D. J. WINELAND, *Microfabricated Surface-Electrode Ion Trap for Scalable Quantum Information Processing*, Phys. Rev. Lett. **96**, 253003 (2006).
- (70) D. GERLICH, *Inhomogeneous rf fields: a versatile tool for the study of processes with slow ions*, dans *State-selected and state-to-state ion-molecule reaction dynamics, Part I*, édité par C.-Y. Ng et M. Baer, tm. 82 de *Advances in Chemical Physics Series* (John Wiley and Sons, 1992).
- (71) R. OTTO, J. MIKOSCH, S. TRIPPEL, M. WEIDEMÜLLER ET R. WESTER, *Nonstandard Behavior of a Negative Ion Reaction at Very Low Temperatures*, Phys. Rev. Lett. **101**(6), 063201 (2008).
- (72) J. PRESTAGE, R. TJOELKER ET L. MALEKI, *Frequency measurement and control: Advanced techniques and future trends*, chap. Recent developments in microwave ion clocks (Springer, Berlin, 2001).
- (73) —, *Higher Pole Linear Traps for Atomic Clock Applications*, Proceedings of the 1999 Joint EFTF-IFCS, Besancon, France pp. 121–124 (1999).
- (74) J. PRESTAGE ET G. WEAVER, *Atomic clocks and oscillators for deep-space navigation and radio science*, Proceeding of the IEEE **95**(11), 2235 (2007).
- (75) J. PRESTAGE, G. DICK ET L. MALEKI, *New ion trap for frequency standard applications*, J. Appl. Phys **66**(3), 1013 (1989).

- (76) L. HORNEKÆR ET M. DREWSSEN, *Formation process of large ion Coulomb crystals in linear Paul traps*, Phys. Rev. A **66**(1), 013412 (Jul 2002).
- (77) R. BLÜMEL, J. CHEN, E. PEIK, W. QUINT, W. SCHLEICH, Y. SHEN ET H. WALTHER, *Phase transition of stored laser-cooled ions*, Nature **334**, 309 (1988).
- (78) M. DREWSSEN, C. BRODERSEN, L. HORNEKÆR, J. S. HANGST ET J. P. SCHIFFER, *Large Ion Crystals in a Linear Paul Trap*, Phys. Rev. Lett. **81**(14), 2878 (1998).
- (79) N. KJÆRGAARD ET M. DREWSSEN, *Observation of a Structural Transition for Coulomb Crystals in a Linear Paul Trap*, Phys. Rev. Lett. **91**(9), 095002 (2003).
- (80) P. BOWE, L. HORNEKÆR, C. BRODERSEN, M. DREWSSEN, J. S. HANGST ET J. P. SCHIFFER, *Sympathetic Crystallization of Trapped Ions*, Phys. Rev. Lett. **82**(10), 2071 (1999).
- (81) B. ROTH, A. OSTENDORF, H. WENZ ET S. SCHILLER, *Production of large molecular ion crystals via sympathetic cooling by laser-cooled Ba⁺*, J. Phys. B **38**, 3673 (2005).
- (82) W. ITANO, J. BOLLINGER, J. TAN, B. JELENKOVIC, X.-P. HUANG ET D. WINELAND, *Bragg diffraction from crystallized ion plasmas*, Science **279**, 686 (1998).
- (83) T. MITCHELL, J. BOLLINGER, D. DUBIN, X.-P. HUANG, W. ITANO ET R. H. BAUGHMAN, *Direct observations of structural phase transitions in planar crystallized ion plasmas*, Science **282**, 1290 (1998).
- (84) D. H. E. DUBIN ET T. M. O'NEIL, *Trapped nonneutral plasmas, liquids, and crystals (the thermal equilibrium states)*, Rev. Mod. Phys. **71**(1), 87 (Jan 1999).
- (85) L. CUTLER, C. FLORY, R. GIFFARD ET M. MCGUIRE, *Doppler effects due to thermal macromotion of ions in an rf quadrupole trap*, Appl. Phys. B **39**, 251 (1986).
- (86) F. CALVO, C. CHAMPENOIS ET E. YURTSEVER, *Crystallization of ion clouds in octupole traps: Structural transitions, core melting, and scaling laws*, Phys. Rev. A **80**(6), 063401 (2009).
- (87) J. PRESTAGE, S. CHUNG, T. LE, L. LIM ET L. MALEKI, *Progress toward a 10⁻¹⁵ stable ion clock for deep space applications*, dans *Proceedings of IEEE Int. Freq. Contr. Symp. Miami, jun. 5-7, 2006* (IEEE, New York, 2006).
- (88) A. OSTENDORF, C. B. ZHANG, M. A. WILSON, D. OFFENBERG, B. ROTH ET S. SCHILLER, *Sympathetic Cooling of Complex Molecular Ions to Millikelvin Temperatures*, Phys. Rev. Lett. **97**(24), 243005 (2006).
- (89) C. B. ZHANG, D. OFFENBERG, B. ROTH, M. A. WILSON ET S. SCHILLER, *Molecular-dynamics simulations of cold single-species and multispecies ion ensembles in a linear Paul trap*, Phys. Rev. A **76**(1), 012719 (2007).
- (90) T. O'NEIL ET C. DRISCOLL, *Transport to thermal equilibrium of a pure electron plasma*, Physics of fluid **22**, 266 (1979).
- (91) S. PRASAD ET T. O'NEIL, *Finite length thermal equilibria of a pure electron plasma column*, Phys. Fluids **22**(2), 278 (1979).

- (92) D. DUBIN, *Equilibrium and dynamics of uniform density ellipsoidal non-neutral plasmas*, Physics of fluid B **5**, 295 (1993).
- (93) L. TURNER, *Collective effects on equilibria of trapped charged plasmas*, Phys. Fluids **30**, 3196 (1987).
- (94) L. HORNEKAER, N. KJAERGAARD, A. THOMMESEN ET M. DREWSSEN, *Structural properties of two-component coulomb crystals in linear Paul traps*, Phys. Rev. Lett. **86**(10), 1994 (2001).
- (95) U. FRÖLICH, B. ROTH ET S. SCHILLER, *Ellipsoidal Coulomb crystals in a linear radio-frequency trap*, Physics of plasma **12**, 073506 (2005).
- (96) H. TOTSUJI, T. KISHIMOTO, C. TOTSUJI ET K. TSURUTA, *Competition between Two Forms of Ordering in Finite Coulomb Clusters*, Phys. Rev. Lett. **88**(12), 125002 (2002).
- (97) J. P. SCHIFFER, *Melting of Crystalline Confined Plasmas*, Phys. Rev. Lett. **88**(20), 205003 (2002).
- (98) A. MORTENSEN, E. NIELSEN, T. MATTHEY ET M. DREWSSEN, *Observation of Three-Dimensional Long-Range Order in Small Ion Coulomb Crystals in an rf Trap*, Phys. Rev. Lett. **96**(10), 103001 (2006).
- (99) Y. WANG, J. FRANZEN ET K. WANCZEK, *Int. J. of Mass Spectrom. and Ion Physics* **124**, 125 (1993).
- (100) C. CHAMPENOIS, M. KNOOP, M. HERBANE, M. HOUSSIN, T. KAING, M. VEDEL ET F. VEDEL, *Characterization of a miniature Paul-Straubel trap*, Eur. Phys. J. D **15**, 105 (2001).
- (101) J. PEDREGOSA, C. CHAMPENOIS, M. HOUSSIN ET M. KNOOP, *Anharmonic contributions in real RF linear quadrupole traps*, Int. J. Mass Spec. **290**, 100 (2010).
- (102) R. BLÜMEL, C. KAPPLER, W. QUINT ET H. WALTER, *Chaos and order of laser-cooled ions in a Paul trap*, Phys. Rev. A **40**(2), 808 (1989).
- (103) V. L. RYJKOV, X. ZHAO ET H. A. SCHUESSLER, *Simulations of the rf heating rates in a linear quadrupole ion trap*, Phys. Rev. A **71**(3), 033414 (2005).
- (104) E. L. POLLOCK ET J. P. HANSEN, *Statistical Mechanics of Dense Ionized Matter. II. Equilibrium Properties and Melting Transition of the Crystallized One-Component Plasma*, Phys. Rev. A **8**(6), 3110 (1973).
- (105) D. H. E. DUBIN ET T. M. O'NEIL, *Computer simulation of ion clouds in a Penning trap*, Phys. Rev. Lett. **60**(6), 511 (Feb 1988).
- (106) C. CHAMPENOIS, M. MARCIANTE, J. PEDREGOSA-GUTIERREZ, M. HOUSSIN, M. KNOOP ET M. KAJITA, *Ion ring in a linear multipole trap for optical frequency metrology*, Phys. Rev. A **81**(4), 043410 (2010).
- (107) J. DALIBARD, S. REYNAUD ET C. COHEN-TANNOUDJI, *Potentialities of a new σ_+ - σ_- laser configuration for radiative cooling and trapping*, J. Phys. B **17**, 4577 (1984).
- (108) S. CHU, L. HOLLBERG, J. BJORKHOLM, A. CABLE ET A. ASHKIN, *Three dimensional Viscous Confinement and Cooling of Atoms by Resonance Radiation Pressure*, Phys. Rev. Lett. **55**(1), 48 (1985).

- (109) S. SCHILLER ET C. LÄMMERZAHN, *Molecular dynamics simulation of sympathetic crystallization of molecular ions*, Phys. Rev. A **68**(5), 053406 (2003).
- (110) H. WALTHER, *Phase transition of stored laser-cooled ions*, dans *Advances in atomic, molecular, and optical physics*, tm. 31, p. 137 (Academic Press, 1993).
- (111) B. OLMOS, R. GONZÁLEZ-FÉREZ ET I. LESANOVSKY, *Fermionic Collective Excitations in a Lattice Gas of Rydberg Atoms*, Phys. Rev. Lett. **103**(18), 185302 (2009).
- (112) —, *Creating collective many-body states with highly excited atoms*, Phys. Rev. A **81**(2), 023604 (2010).
- (113) N. KJÆRGAARD, L. HORNEKÆR, A. M. THOMMESEN, Z. VIDESSEN ET M. DREWSSEN, *Isotope selective loading of an ion trap using resonance-enhanced two-photon ionization*, Appl. Phys. B **71**, 207 (2000).
- (114) S. GULDE, D. ROTTER, P. BARTON, F. SCHMIDT-KALER, R. BLATT ET W. HOGERVORST, *Simple and efficient photoionization loading of ions for precision ion-trapping experiments*, Appl. Phys. B **73**, 861 (2001).
- (115) D. M. LUCAS, A. RAMOS, J. P. HOME, M. J. MCDONNELL, S. NAKAYAMA, J.-P. STACEY, S. C. WEBSTER, D. N. STACEY ET A. M. STEANE, *Isotope-selective photoionization for calcium ion trapping*, Phys. Rev. A **69**, 012711 (2004).
- (116) U. TANAKA, H. MATSUNISHI, I. MORITA ET S. URABE, *Isotope-selective trapping of rare calcium ions using high-power incoherent light sources for the second step of photoionization*, Appl. Phys. B **81**, 795 (2005).
- (117) F. TORABI-GOUDARI ET E. RIIS, *Efficient cw high-power frequency doubling in periodically poled KTP*, Opt. Comm. **227**, 389 (2003).
- (118) R. L. TARGAT, J.-J. ZONDY ET P. LEMONDE, *75%-efficiency blue generation from an intracavity ppKTP frequency doubler*, Opt. Comm. **247**, 471 (2005).
- (119) H. BETHE ET E. SALPETER, *Quantum mechanics of one- and two-electron systems* (Springer-Verlag, Berlin, 1957).
- (120) J. GARREAU, M. ALLEGRINI, L. JULIEN ET F. BIRABEN, *High resolution spectroscopy of the hydrogen atom. Part I : Method and experiment*, J.Physique **51**, 2263 (1990).
- (121) N. RAMSEY, *Molecular beams* (Oxford, 1956).
- (122) E. RUDBERG, *The Vapor Pressure of Calcium between 500 and 625°C*, Phys. Rev. **46**(9), 763 (1934).
- (123) D. DOUGLAS, Proc. Phys. Soc. section B **67**, 783 (1954).
- (124) M. MURPHY, L. JIANG, N. KHANEJA ET T. CALARCO, *High-fidelity fast quantum transport with imperfect controls*, Phys. Rev. A **79**(2), 020301 (2009).
- (125) G. DE CHIARA, T. CALARCO, M. ANDERLINI, S. MONTANGERO, P. J. LEE, B. L. BROWN, W. D. PHILLIPS ET J. V. PORTO, *Optimal control of atom transport for quantum gates in optical lattices*, Phys. Rev. A **77**(5), 052333 (2008).
- (126) A. COUVERT, T. KAWALEC, G. REINAUDI ET D. GUÉRY-ODELIN, *Optimal transport of ultracold atoms in the non-adiabatic regime*, Europhysics Letters **83**(1), 13001 (2008).

- (127) R. B. BLAKESTAD, C. OSPELKAUS, A. P. VANDEVENDER, J. M. AMINI, J. BRITTON, D. LEIBFRIED ET D. J. WINELAND, *High-Fidelity Transport of Trapped-Ion Qubits through an X-Junction Trap Array*, Phys. Rev. Lett. **102**(15), 153002 (2009).
- (128) M. MÜLLER, L. LIANG, I. LESANOVSKY ET P. ZOLLER, *Trapped Rydberg ions: from spin chains to fast quantum gates*, New Journal of Physics **10**(9), 093009 (2008).
- (129) M. MARCIANTE, C. CHAMPENOIS, A. CALISTI, J. PEDREGOSA-GUTTIEREZ ET M. KNOOP, *Ion dynamics in a linear radio-frequency trap with a single cooling laser*, Phys. Rev. A **submitted** (2010).

Curriculum Vitæ

NOM : Caroline CHAMPENOIS
 GRADE : chargée de recherche 1e classe, CNRS
 DATE DE NAISSANCE : 15 octobre 1971
 SITUATION FAMILIALE : mariée, deux enfants (8 et 11 ans)
 E-MAIL : caroline.champenois@univ-provence.fr
 ADRESSE PROFESSIONNELLE : Laboratoire PIIM, équipe CIML
 Centre de saint Jérôme, case C21
 Avenue Normandie Niemen
 13397 MARSEILLE cedex 20
 FRANCE
 TÉLÉPHONE PROFESSIONNEL : 04.91.28.89.21
 FAX : 04.91.28.87.45

2001- Chargée de recherche (CNRS) dans l'équipe confinement d'ions et manipulation laser (resp F. Vedel puis M. Knoop) du laboratoire PIIM.

2000-2001 ATER de l'université de Provence, Marseille (mi-temps), dans l'équipe confinement d'ions et manipulation laser (resp F. Vedel) du laboratoire PIIM.

1999-2000 ATER de l'université P. Sabatier de Toulouse (mi-temps), dans le groupe de J. Vigué, au laboratoire CAR. Activité de recherche dans le groupe CIML, à Marseille, à partir du 1er février 2000.

1996-1999 Thèse sous la direction de J. Vigué sur l'interférométrie atomique et l'indice de réfraction des gaz pour les ondes atomiques.

titre de la thèse : "Interférométrie atomique avec l'atome de lithium : analyse théorique et construction d'un interféromètre, applications".

soutenance : le 17 décembre 1999, à l'université Paul Sabatier, Toulouse III, devant F. Vedel (présidente), A. Aspect (rapporteur), J. Dalibard (rapporteur), M. Büchner (examinateur), P. Labastie (examinateur), J. Vigué (directeur de thèse). Mention très honorable avec les félicitations du jury.

monitorat en physique dans l'UFR PCA de l'université P. Sabatier (3 ans).

juillet 1998 séjour d'un mois dans l'équipe d'A. Dalgarno, (Harvard, USA). Collaboration sur le calcul de l'indice de réfraction d'un gaz pour une onde atomique.

1995-1996 DEA Physique de la matière de l'Université Paul Sabatier de Toulouse. Stage de DEA dans le groupe de J. Vigué sur l'indice de réfraction des gaz pour les ondes atomiques.

1992-1995 élève de l'École normale supérieure de Lyon, agrégée de physique.

Travaux de recherche

Mes travaux de recherche de ces dix dernières années au laboratoire PIIM peuvent être résumés sous l'appellation générale "interaction laser-ion(s) piégé(s) en piège radiofréquence, analyse théorique et expériences". Même si l'axe de recherche majeur de l'équipe CIML est la métrologie des fréquences optiques et le piégeage des ions calcium, mes travaux concernent aussi les processus à plusieurs photons (cohérents ou non) dans l'ion calcium ou tout autre atome de même structure. Grâce à des modèles et à leur résolution numérique, j'ai pu pousser l'interprétation des expériences réalisées au laboratoire et en proposer de nouvelles. Certaines d'entre elles ont été réalisées au laboratoire ou en collaboration avec d'autres groupes. Mes travaux publiés peuvent être regroupés sous trois thématiques,

1. L'effet du mouvement d'un ion en piège de Paul sur son interaction avec des lasers et le refroidissement laser d'un tel ion.
2. Processus cohérents à 2 et 3 photons dans les ions piégés.
3. Piégeage et refroidissement de larges échantillons et étude de phénomènes collectifs, tels que des transitions de phase.

Cette dernière activité est financée par l'ANR dans le cadre d'un programme jeune-chercheur dont je suis porteuse. Elle fait aussi l'objet d'une collaboration avec le CNES.

Enseignement et formation

Au fil des années, j'ai participé à l'encadrement des doctorants de l'équipe, en particulier de C. Lisowski pour ses calculs d'effets systématiques et ses études des résonances noires. Depuis novembre 2007, je co-encadre de façon non officielle la thèse de Mathieu Marciantie qui a pour sujet d'étude la dynamique et l'équilibre thermodynamique d'ions en piège radiofréquence, refroidis par laser, étudiés par la méthode de la dynamique moléculaire. Je suis aussi codirectrice de la thèse de Ramzi Hammami, commencée en octobre 2009 et qui porte sur la mise au point d'une expérience d'ions piégés pour en étudier les transitions de phase et autres phénomènes collectifs. De plus, chaque année, j'encadre le travail d'un ou deux stagiaires (L3 ou M1) sur des sujets expérimentaux ou théoriques.

Depuis 2004, je participe à l'enseignement de l'UFR SM dans le cadre d'échange de service avec mes collègues enseignants-chercheurs et j'ai enseigné :

- 2004-2005 : mécanique quantique et physique atomique en M1, filière sciences physiques.
- 2006-2007 et 2007-2008 : 20 heures de cours-TD en M1, introduction à l'optique quantique et application à l'information quantique.
- 2008-2009 et 2009-2010 : 12 heures de cours-TD en M2 sur l'interaction laser-atome et son application pour la spectroscopie de haute résolution et le refroidissement d'atomes par laser.

J'ai aussi assuré la session "Trapping and cooling of ions" (5 cours) de l'école prédoctorale de physique des Houches sur le refroidissement laser et la condensation de Bose-Einstein, qui a eu lieu en octobre 2008, sous la houlette de P. Verkerk et de W. Walraven. Cette école, financée en partie par le réseau européen Intercan, a accueilli plus de 60 étudiants venus de toute l'Europe. Par ailleurs, je suis aussi responsable d'un des modules du master Erasmus Mundus "Photonics" qui ouvrira en septembre 2010 à Marseille.

Je suis co-fondatrice et co-animatrice du séminaire "Optique et ses applications : de l'atome à la cellule vivante", qui a lieu sur la campus de Saint-Jérôme, en moyenne une fois par mois, en partenariat en l'Institut Fresnel et mon laboratoire.

Encadrement, animation et management de la recherche

Je suis co-fondatrice et co-animatrice du séminaire "Optique et ses applications : de l'atome à la cellule vivante", qui a lieu sur la campus de Saint-Jérôme, en moyenne une fois par mois, en partenariat en l'Institut Fresnel et mon laboratoire. Dans un autre registre, je participe à la vie de ma communauté scientifique en étant

- membre élu du conseil de l'UFR Sciences de la matière à laquelle est rattachée notre UMR. J'ai mis au point avec le bureau de l'UFR un protocole d'échange de service entre chercheurs et enseignants-chercheurs.
- membre du conseil scientifique de COLOQ *colloque sur les lasers et l'optique quantique* depuis janvier 2005.
- membre de la commission de spécialistes, puis de sélection, 28-29-30 de l'Université de Nice depuis mars 2005.
- rapporteur pour Phys. Rev. A, Phys. Rev. Lett, Optics Comm, Optics Express, JOSA B.

Transfert technologique

Les contrats qui nous ont liés et nous lient aujourd'hui au CNES constituent un transfert de nos connaissances vers un organisme qui a pour vocation à les valoriser. Nous n'en sommes qu'aux premières phases exploratoires mais cette collaboration stimule des voies de recherche intéressantes concernant le confinement d'un grand nombre d'ions en piège multipolaire linéaire.

Rapport de R&T

1. Cahier des charges fonctionnel préliminaire pour le CNES, contrat 60180/00, *Horloge atomique radiofréquence à ions piégés pour l'espace*, novembre 2007.
2. Dossier de définition et de justification d'un piège double pour le CNES, contrat 81915/00, *Horloge atomique radiofréquence à ions piégés pour l'espace*, octobre 2008.

Production scientifique

Publications dans des revues à comité de lecture

1. C. Champenois, E. Audouard, P. Duplâa and J. Vigué, *Refractive index for atomic waves: theory and detailed calculations* J. Phys II France **7**(1997),523.
2. C. Champenois, M. Büchner and J. Vigué, *Fringe contrast in three grating Mach-Zehnder atomic interferometers* Eur. Phys. J. D **5**(1999),363.
3. G. Bazalgette, M. Büchner, C. Champenois, G. Trenec and J. Vigué, *Saturation spectroscopy of the A-X transition of the ICl molecule*, Eur. Phys. J. D. **6**(1999),193.
4. C. Champenois, M. Büchner, R. Delhuille, R. Mathevet, C. Robillard, C. Rizzo and J. Vigué, *Atomic diffraction by a laser standing wave: analysis using Bloch states*, Eur. Phys. J. D. **13**(2001),271.
5. C. Champenois, M. Büchner, R. Delhuille, R. Mathevet, C. Robillard, C. Rizzo and J. Vigué, *Matter neutrality test using a Mach-Zehnder interferometer*, The Hydrogen atom: Precision physics of simple atomic systems, edited by S.G. Karshenboim *et. al*, Lectures Notes in Physics, **570** (2001),554.
6. C. Champenois, M. Knoop, M. Herbane, M. Houssin, T. Kaing, M. Vedel and F. Vedel, *Characterization of a miniature Paul-Straubel trap*, Eur. Phys. J. D. **15**(2001),105.
7. R. Delhuille, C. Champenois, M. Büchner, L. Jozefowski, C. Rizzo, G. Tréneç and J. Vigué, *High-contrast Mach-zehnder lithium-atom interferometer in the Bragg regime*, Appl. Phys. B **74**,(2002)489.
8. M. Büchner, R. Delhuille, A. Miffre, C. Robilliard and J. Vigué, C. Champenois *Diffraction phases in atom interferometers*, Phys. Rev. A **68**,(2003) 013607.
9. M. Houssin, P. Courteille, C. Champenois, M. Herbane, M. Knoop, M. Vedel, F. Vedel *Linewidth reduction by 6 orders of magnitude of a broad-area 729 nm diode laser*, Applied Optics-LP, **42**, (2003) 4871.
10. M. Knoop, C. Champenois, G. Hagel, M. Houssin, C. Lisowski, M. Vedel, F. Vedel *Metastable level lifetimes from electron-shelving measurements in ion clouds and single ions*, Eur. Phys. J. D, **29**(2004)163.
11. C. Champenois, M. Houssin, C. Lisowski, G. Hagel, M. Knoop, M. Vedel, F. Vedel *Evaluation of the ultimate performances of a Ca+ single-ion frequency standard*, Phys.Lett. A, **331**(2004)298.
12. C. Lisowski, M. Knoop, C. Champenois, G. Hagel, M. Vedel, F. Vedel, *Dark resonances as a probe for the motional state of a single ion*, Appl. Phys. B, **81** (2005) 5-12.
13. G. Hagel, M. Houssin, M. Knoop, C. Champenois, M. Vedel, F. Vedel, *Long-term stabilization of the length of an optical reference cavity*, Review of Scientific Instruments, **76** (2006) 120.

14. C. Champenois, G. Morigi, J. Eschner, *Quantum coherence and population trapping in three-photon processes*, Phys. Rev. A **74** (2006) 053404.
15. C. Champenois, G. Hagel, M. Houssin, M. Knoop, C. Zumsteg, and F. Vedel, *Terahertz Frequency Standard Based on Three-Photon Coherent Population Trapping*, Phys. Rev. Lett. **99** (2007) 013001.
16. Richard J. Hendricks, Jens L. Sørensen, Caroline Champenois, Martina Knoop, and Michael Drewsen, *Doppler cooling of calcium ions using a dipole-forbidden transition*, Phys. Rev. A **77** (2008) 021401.
17. C. Champenois, G. Hagel, M. Knoop, M. Houssin, C. Zumsteg, F. Vedel and M. Drewsen, *Two-step Doppler cooling of a three-level ladder system with an intermediate metastable level*, Phys. Rev. A. **77** (2008) 033411.
18. C. Champenois, M. Jacquy, S. Lepoutre, M. Büchner, G. Tréneç and J. Vigué, *Index of refraction of gases for matter waves: Effect of the motion of the gas particles on the calculation of the index*, Phys. Rev. A. **77** (2008) 013621.
19. C. Champenois, *Tutorial: About the dynamics and thermodynamics of trapped ions*, J. Phys. B **42** (2009) 154002.
20. F. Calvo, C. Champenois and E. Yurtsever, *Crystallization and thermodynamics of ion clouds in octupolar traps: structural transitions, core melting, and scaling laws*, Phys. Rev. A. **80** (2009) 063401.
21. J. Pedregosa, C. Champenois, M. Houssina and M. Knoop, *Anharmonic contributions in real RF linear quadrupole traps*, Int. J. Mass Spectr. **290** (2010) 100.
22. C. Champenois, M. Marciante, M. Kajita, J. Pedregosa-Gutteriez, M. Houssin and M. Knoop, *Ion ring in a linear multipole trap for optical frequency metrology*, Phys. Rev. A. **81** (2010)043410.
23. M. Marciante, C. Champenois, A. Calisti, J. Pedregosa-Guttierrez and M. Knoop, *Ion dynamics in a linear radio-frequency trap with a single cooling laser*, soumis pour publication dans PRA.

Conférences invitées (depuis 2000)

- C. Champenois, G. Hagel, M. Houssin, M. Knoop, M. Vedel, C. Zumsteg, F. Vedel, *From optical to terahertz, frequency metrology with a single ion*, COLOQ10, Grenoble 2-5 juillet 2007
- C. Champenois, *Dynamics of ions in radiofrequency traps*, tutorial in the Workshop MAPPI Modern Applications of Trapped Ions, Les Houches, 18-23 mai 2008.
- M. Knoop, C. Champenois, G. Hagel, M. Houssin, C. Zumsteg, F. Vedel, *1,2,3 photon spectroscopy of single calcium ions*, EGAS, 40ème Conférence, Graz/Autriche, 2 - 5 juillet 2008

- C. Champenois, *Charged particles in radiofrequency traps: about their dynamics and their interactions with laser fields* ILLUMINYATING, Marseille, 01 octobre 2008.
- M. Knoop, C. Champenois, G. Hagel, M. Houssin, C. Zumsteg, F. Vedel, *Precision spectroscopy with trapped ions - from a single particle to a large cloud*, 4th Sino-French Workshop on Molecular Spectroscopy, Dynamics and Quantum Control (SFW08), Hefei/Chine, 22 - 26 octobre 2008

Actes de conférences, avec comité de lecture (depuis 2000)

- G. Hagel, C. Champenois, C. Lisowski, D. Guyomarc'h, M. Houssin, M. Vedel, M. Knoop, F. Vedel, *Interrogation d'un ion unique pour la métrologie optique*, Actes de COLOQ9, Dijon, France, 7/9 septembre 2005.
- C. Zumsteg, G. Hagel, C. Champenois, D. Guyomarc'h, M. Houssin, M. Knoop, M. Vedel, F. Vedel, P. Dubé, *Jitter reduction of the 729 nm clock laser for a Ca^+ optical frequency standard*, Proceedings EFTF/IEEE Frequency Control 2007
- C. Champenois, G. Hagel, M. Houssin, M. Knoop, M. Vedel, C. Zumsteg, F. Vedel, *From optical to terahertz frequency metrology with a single ion*, Actes de COLOQ10, Ann. Phys. Fr. 32(2-3), 25-31 (2007)

Contributions orales à une conférence (depuis 2000)

- M. Knoop, C. Champenois, P. Courteille, M. Herbane, M. Houssin, M. Vedel, F. Vedel, *Lasers stabilisés et ion frois unique pour un étalon de fréquence optique*, OPTIX 2001, Marseille (France)
- M. Knoop, C. Champenois, M. Houssin, C. Lisowski, M. Herbane, B. Schmidt, M. Vedel and F. Vedel, "*electron-shelving*" pour la spectroscopie des ions Ca^+ confinés en piège miniature, PAMO, Bourges, France, 1/3 juillet 2002.
- M. Knoop, C. Champenois, G. Hagel, M. Houssin, C. Lisowski, M. Vedel, F. Vedel, *A miniature trap for (single) ion spectroscopy* NIPNET HITRAP IONCATCHER, 2nd Annual Joint Collaboration Meeting, La Londe-les-Maures, 21 - 25 mai 2003.
- M. Knoop, C. Champenois, T.B. Ekogo, G. Hagel, M. Houssin, C. Lisowski, M. Vedel, F. Vedel, *Lifetime measurements with single ions and ion clouds* European Group of Atomic Spectroscopy, 35eme Conférence, Bruxelles/Belgique, 15-18 juillet 2003.
- M. Knoop, C. Champenois, G. Hagel, M. Houssin, C. Lisowski, M. Vedel, F. Vedel, *Recent experiments with cold single trapped Ca^+ ions* CAUAC Network Meeting, Porquerolles, 24-27 avril 2004.
- A. Miffre, C. Zumsteg, C. Champenois, D. Guyomarc'h, G. Hagel, M. Houssin, M. Vedel, M. Knoop, F. Vedel, *Des ions uniques pour la métrologie optique*, PAMO, Dijon, 5/7 juillet 2006.
- C. Champenois, G. Hagel, M. Knoop, M. Houssin, C. Zumsteg, F. Vedel, R.J. Hendricks, J.L. Sørensen, M. Drewsen, *Two photon Doppler cooling of atoms with an intermediate metastable state*, EFTF - Toulouse Space Show '08, Toulouse, 22- 25 avril 2008

Affiches ou posters dans des congrès (depuis 2000)

- M. Knoop, M. Herbane, C. Champenois, M. Houssin, T. Kaing, M. Vedel and F. Vedel, *Towards an optical frequency standard based on a single Ca^+ ion in a miniature trap*, ICAP 2000, Firenze, Italie, 4/9 juin 2000.
- M. Knoop, M. Herbane, M. Houssin, C. Champenois, T. Kaing, M. Vedel and F. Vedel, *Towards an optical frequency standard based on a single Ca^+ ion in a miniature trap*, 32 EGAS, Vilnius, 4/7 juillet 2000.
- M. Knoop, C. Champenois, M. Herbane, M. Houssin, T. Kaing, M. Vedel and F. Vedel, *Développement d'un étalon de fréquence dans le domaine optique utilisant un ion Ca^+ confiné dans un piège miniature*, PAMO 2000, Lyon, France, 10/13 juillet 2000.
- M. Herbane, M. Knoop, C. Champenois, M. Houssin, M. Vedel and F. Vedel, *trapping of a single Ca^+ ion for its use as a frequency standard*, ECAMP 2001, Berlin, Allemagne, 2/6 avril 2001.

- M. Knoop, C. Champenois, P. Courteille, M. Herbane, M. Houssin, M. Vedel and F. Vedel, *A miniature trap for single, laser-cooled Ca^+ ions*, ICOLS XV, Snowbird, USA, 10/15 juin 2001.
- M. Knoop, C. Champenois, P. Courteille, M. Herbane, M. Houssin, M. Vedel and F. Vedel, *single Ca^+ ion in a Paul-Straubel trap*, SSFSM, St Andrews, Écosse, 9/14 septembre 2001, proceeding publié par World Scientific.
- M. Knoop, C. Champenois, P. Courteille, M. Herbane, M. Houssin, M. Vedel and F. Vedel, *Piégeage d'un ion calcium pour la réalisation d'un étalon de fréquence dans le visible*, COLOQ 7, Rennes, France, 5/7 septembre 2001.
- M. Knoop, C. Champenois, P. Courteille, M. Herbane, M. Houssin, M. Vedel and F. Vedel, *Trapping and cooling a single calcium ion for using as a frequency standard*, Quantum Optics 2001, San Feliu de Guixols, Espagne, 6/11 octobre 2001.
- M. Knoop, C. Champenois, M. Houssin, C. Lisowski, M. Herbane, B. Schmidt, M. Vedel and F. Vedel, *"e-shelving" for spectroscopy of Ca^+ ions in a miniature trap*, EGAS 34, Sophia, Bulgarie, 9/12 juillet 2002.
- M. Knoop, C. Champenois, M. Houssin, C. Lisowski, M. Herbane, B. Schmidt, M. Vedel and F. Vedel, *Spectroscopy of Ca^+ ions in a miniature trap*, TCPFI, Wildbad Kreuth, Allemagne, 25/30 aout 2002.
- M. Knoop, C. Champenois, M. Houssin, G. Hagel, C. Lisowski, M. Vedel, F. Vedel, *Diodenlaser für die Spektroskopie einzelner Ca^+ Ionen*, DPG-Frühjahrstagung, Hannover/RFA, 24/28 mars 2003, Verhandl. DPG (VI) 38, 179 (2003).
- M. Knoop, C. Champenois, G. Hagel, M. Houssin, C. Lisowski, M. Vedel, F. Vedel, *Reduction of micromotion for single Ca^+ ions in a miniature trap*, Astrophysics, Clocks and Fundamental Constants, Bad Honnef/RFA, 16/18 juin 2003.
- C. Champenois, T.B. Ekogo, G. Hagel, M. Houssin, M. Knoop, C. Lisowski, M. Vedel, F. Vedel, *Sources laser pour la métrologie de l'ion Ca^+* , Congrès de la SFP, Lyon, 7/10 juillet 2003.
- M. Knoop, C. Champenois, G. Hagel, M. Houssin, C. Lisowski, M. Vedel, F. Vedel, *Lebensdauer-messungen mit Ionenwolken und Einzelionen*, DPG Frühjahrstagung, Munich/Allemagne, 22/26 mars 2004, Verhandl. DPG (VI) 39, 147 (2004).
- M. Knoop, C. Champenois, C. Lisowski, G. Hagel, M. Houssin, M. Vedel and F. Vedel, *Dark resonances as a kinetic-energy probe for a single ion*, ECAMP8, Rennes, France, 6/10 juin 2004.
- C. Champenois, M. Houssin, C. Lisowski, M. Knoop, G. Hagel, M. Vedel and F. Vedel, *How good can a Ca^+ single-ion frequency standard be?*, ECAMP8, Rennes, France, 6/10 juin 2004.

- G. Hagel, C. Champenois, T.B. Ekogo, M. Houssin, M. Knoop, C. Lisowski, M. Vedel and F. Vedel, *Towards an optical frequency standard at 729 nm*, EFTF, Besancon, France, 21/24 mars 2005.
- C. Champenois, G. Hagel, C. Lisowski, M. Houssin, M. Vedel, M. Knoop and F. Vedel, *Recent progress towards an optical clock with a single calcium ion*, ICOLS, Cairngorms National Park, Scotland, 19/24 juin 2005.
- G. Hagel, C. Champenois, C. Lisowski, D. Guyomarc'h, M. Houssin, M. Vedel, M. Knoop, F. Vedel, *Interrogation d'un ion unique pour la métrologie optique*, COLOQ9, Dijon, France, 7/9 septembre 2005.
- C. Champenois, C. Zumsteg, G. Hagel, M. Houssin, D. Guyomarc'h, M. Vedel, M. Knoop, F. Vedel, *A single trapped Ca^+ ion for optical frequency metrology*, ICAP 2006 et son meeting satellite sur les ions piégés, Innsbruck, Autriche, 16/21 juillet 2006.
- C. Champenois, G. Morigi, J. Eschner, *three-photon resonance with trapped ions*, meeting satellite de ICAP 2006 sur les ions piégés, Innsbruck, Autriche, 23/24 juillet 2006.
- C. Zumsteg, C. Champenois, G. Hagel, M. Houssin, M. Knoop, M. Vedel, F. Vedel, *A Ca^+ single ion for frequency metrology in the optical range*, 9th ECAMP, Heraklion/Crete, 6-11 mai 2007
- C. Zumsteg, G. Hagel, C. Champenois, D. Guyomarc'h, M. Houssin, M. Knoop, M. Vedel, F. Vedel, P. Dubé, *Jitter reduction of the 729nm clock laser for a Ca^+ optical frequency standard*, 21st European Frequency and Time Forum - Joint Meeting with IEEE-FCS -, Geneve/Suisse, 29 mai - 1 juin 2007
- C. Zumsteg, C. Champenois, P. Dubé, G. Hagel, M. Houssin, M. Vedel, F. Vedel, M. Knoop, *Ca^+ ions for frequency metrology*, 18th ICOLS, Telluride/CO, USA, 24-29 juin 2007
- C. Zumsteg, P. Dubé, G. Hagel, M. Houssin, Didier Guyomarc'h, C. Champenois, M. Knoop, M. Vedel, F. Vedel, *Frequency stabilization of a 729nm Ti-Sa laser for a Ca^+ optical frequency standard*, 2nd ESA International Workshop on Optical Atomic Clocks, ESRIN Frascati/Italie, 10 - 12 octobre 2007
- C. Zumsteg, C. Champenois, D. Guyomarc'h, G. Hagel, M. Houssin, F. Vedel, and M. Knoop, *A single Ca^+ ion for frequency metrology*, Modern Applications of Trapped Ions, Les Houches/France, 18-23 mai 2008
- M. Marciantie, A. Calisti, C. Champenois, M. Knoop, F. Vedel, *Study of ion dynamics in a radiofrequency trap by molecular dynamics simulations*, Modern Applications of Trapped Ions, Les Houches/France, 18 - 23 mai 2008
- C. Zumsteg, C. Champenois, D. Guyomarc'h, G. Hagel, M. Houssin, F. Vedel, et M. Knoop, *Métrologie de fréquence optique et THz avec un ion unique*, PAMO-JSM, Lille-Villeneuve d'Ascq/France, 7 - 10 juillet 2008

- M. Marciante, A. Calisti, C. Champenois, M. Knoop, F. Vedel, *Étude de la dynamique d'ions en piège radio-fréquence par simulation de dynamique moléculaire*, PAMO-JSM, Lille-Villeneuve d'Ascq/France, 7 - 10 juillet 2008
- C. Zumsteg, D. Guyomarc'h, G. Hagel, C. Champenois, M. Houssin, et M. Knoop, *A high-finesse optical reference cavity at 729 nm*, EFTF. Besançon, avril 2009.
- C. Champenois, M. Marciante, C. Zumsteg, G. Hagel, M. Houssin, J. Pedregosa et M. Knoop, *Scaling of a large ion cloud in a multipole trap and its laser cooling*, ICOLS, Kussharo, Japon, 7-12 juin 2009.

Séminaires (depuis 2000)

- des élèves de l'ENSL, Lyon, *Construction d'un étalon de fréquence optique : les aventures des "trappeurs d'ions"*, le 28 novembre 2000.
- au laboratoire Aimé-Cotton, Orsay, *Développement d'un étalon de fréquence dans le domaine optique, reposant sur un ion Ca^+ piégé*, le 5 avril 2001.
- à l'Institut non-linéaire de Nice, Nice, *Un ion calcium unique et froid en piège radiofréquence : un système quantique aux multiples applications*, le 1er juin 2001.
- au Centre de Physique Théorique de Marseille-Luminy, *Optique quantique et dynamique non-linéaire avec des ions en piège radio-fréquence, quelques expériences*, le 3 mai 2006.
- au Laboratoire de Physique Théorique, IRSAMC, Toulouse, *Des nuages à la particule unique, quelques expériences avec des ions piégés* 11/06.
- à Thales Research Technology, *Un ion unique pour la métrologie des fréquences optiques : l'ion calcium en piège de Paul* 11/06.
- au Laboratoire de Physique de la Matière condensée, Nice, *Des nuages à la particule unique, quelques expériences avec des ions piégés...avec ou sans laser* 05/07.
- au Laboratoire Kastler Brossel, Paris, *Protocoles d'excitation d'ion(s) piégé(s) de calcium à un, deux et trois photons* 09/07.
- au LASIM, Lyon, *De l'ion unique en piège de Paul aux larges échantillons en multipole, quelles différences pour la dynamique, l'interaction laser et l'auto-organisation des ions?*, 03/09.
- au NICT, Tokyo, *From a single ion in a Paul trap to a large cloud in a multipole trap, what are the differences concerning dynamics, laser-atom interaction and self-organisation of cold ions?*, 06/09.
- à l'ICFO, Barcelone, *Cold ions in linear multipole traps, scaling laws and possible application to metrology*, 01/10.