



HAL
open science

Confinement d'un ion unique de Ca^+ pour la métrologie des fréquences optiques

Martina Knoop

► **To cite this version:**

Martina Knoop. Confinement d'un ion unique de Ca^+ pour la métrologie des fréquences optiques. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université de Provence - Aix-Marseille I, 2005. tel-00009442

HAL Id: tel-00009442

<https://theses.hal.science/tel-00009442>

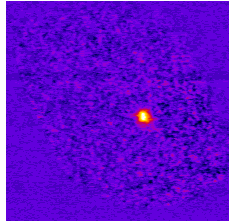
Submitted on 10 Jun 2005

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

Marseille



Confinement d'un ion unique de Ca^+ pour la métrologie des fréquences optiques

Martina Knoop

Dossier de synthèse présenté en vue d'obtenir

L'HABILITATION À DIRIGER DES RECHERCHES

soutenue le 31 mars 2005 devant la commission d'examen

M. Ekkehard Peik	Rapporteur
M. Christophe Salomon	Rapporteur
M. Roland Stamm	Rapporteur
M. Bruno Torrèsani	Président
Mme Fernande Vedel	
M. Christoph Westbrook	

Table des matières

I. Travaux scientifiques	1
1. Introduction	5
1.1 Les horloges optiques	6
1.2 Les étalons de fréquence optique à ion unique	8
2. Expériences préliminaires dans un piège de taille moyenne	15
2.1 Les durées de vie du doublet métastable et les collisions inélastiques	16
2.2 Le refroidissement laser	31
3. Un piège pour la métrologie	33
3.1 Le piège miniature	33
3.2 Les sources laser	35
3.2.1 397 nm	36
3.2.2 866 nm	47
3.2.3 854nm	47
3.2.4 729nm	48
3.3 Le montage expérimental	55
3.3.1 Optimisation du signal optique	56
3.3.2 La détection des ions	57
3.3.3 Compensation du champ magnétique	59
3.4 Caractérisation du piège	60
3.5 Préparation d'un ion unique et froid	68
4. Spectroscopie des états 3D	71
4.1 Mesures d'"electron-shelving" sur un nuage	71
4.2 Observation des sauts quantiques d'un ion unique	73
4.3 La durée de vie de l'état $3D_{5/2}$	74
4.4 La durée de vie de l'état $3D_{3/2}$	86

5. La voie vers le régime de Lamb-Dicke	89
5.1 Pureté des tensions RF et DC	92
5.2 Position et température de l'ion	93
5.3 Corrélation RF	94
5.4 Minimisation des largeurs spectrales	95
5.5 Résonance noire	96
6. Perspectives	111
Annexe	129
A. Les schémas d'énergie	131
A.1 L'ion $^{40}\text{Ca}^+$	131
A.2 L'ion $^{43}\text{Ca}^+$	132
II. Notice individuelle	133
A. Curriculum vitae	135
B. Liste des publications	139

Remerciements

Dans ces remerciements la première place revient bien évidemment à Fernande Vedel. Il est facile de décrire son rôle dans le projet calcium : il n'existerait pas sans elle. La spectroscopie laser dans l'équipe CIML s'est développée grâce à son action et sa volonté. Depuis qu'elle m'a accueillie dans son équipe de recherche en janvier 1991, elle a garanti les conditions matérielles, intellectuelles et humaines favorables à mon travail de recherche. Le présent mémoire n'aurait pas pu voir le jour sans ses conseils et ses impulsions. Merci pour tout, Fernande.

Pendant toutes ces années j'ai eu la chance de travailler avec Michel Vedel. J'ai très largement profité de son énorme savoir-faire en d'expérimentateur et de ses connaissances sans limites en électronique. Dans la recherche, mon voisin de bureau était aussi un "coach" formidable. Depuis quelques années la manip calcium s'est étoffée de façon permanente avec l'arrivée des "nouvelles recrues" : La stabilisation des lasers a fait un saut (en avant) depuis que Marie Houssin s'en occupe. Caroline Champenois, après ses débuts spectaculaires sur la manip, assure les fondements théoriques solides en optique quantique et physique atomique pour que les expériences avancent. Je salue l'investissement de Gaëtan Hagel dans l'appriovissement des lasers trop rebelles, bien que j'ai horreur de sa théorie sur les manips qui ne marchent pas. Par ailleurs, "Mr. Labview" Didier Guyomarc'h a commencé à prendre le contrôle de l'expérience. Je voudrais exprimer ma gratitude à mes collègues pour leur amitié et leur soutien, c'est un plaisir quotidien de travailler avec l'équipe actuelle.

Au cours de la phase préliminaire de spectroscopie dans le piège moyen Dave Lunnay, Richard Thompson, Naceur Khelifa et Guilong Huang m'ont aidée à réaliser une expérience produisant de véritables données. Je les en remercie chaleureusement. C'est avec le concours de Jürgen Rink que j'ai abordé les problèmes de refroidissement laser et la conception du piège miniature. Je n'aurais pas pu imaginer meilleur collaborateur pour cette phase créatrice et nouvelle.

Parmi les collaborateurs sur des plus longues périodes, je voudrais citer plus particu-

lièrement Isabelle Rebatel, Achim Abel, Joëlle Rocher, Nikolas Papageorgiou, Thomas Schweizer, Thomas Pawletko, Bernhard Schmidt, To Kaing, et Philippe Courteille. Les thésards Mustapha Herbane et Caroline Lisowski ont subi directement mon influence, je les remercie de la patience qu'ils ont montrée. Un grand nombre de stagiaires de DEA, élèves-normaliens, élèves-ingénieurs, stagiaires de magistère, et mémoires de maîtrise ont travaillé sur la manip Ca^+ au cours de ces dernières années, chacun apportant une petite pierre à sa construction et à sa perfection.

Depuis le tout début du "projet calcium", je connais Ekkehard Peik, qui s'est battu pour les premiers sauts quantiques d'un ion indium au MPQ. Pendant longtemps sa thèse très concise était mon livre de chevet. Je me réjouis de sa présence dans mon jury d'habilitation. Christophe Salomon a toujours manifesté beaucoup d'intérêt pour les ions confinés, je suis heureuse qu'il ait accepté d'être rapporteur de mon travail et de faire partie du jury. Je peux compter sur le soutien de mon directeur de laboratoire, Roland Stamm, je l'en remercie ainsi que d'avoir accepté de rapporter sur mon travail. Les conseils de Bruno Torrèsani nous ont éclairés dans les périodes sombres du dépouillement des sauts quantiques. Je suis ravie qu'il soit membre du jury. Les discussions avec Chris Westbrook sont toujours stimulantes, c'est avec plaisir que je le retrouve dans mon jury.

Thomas Spindler connaît bien ce sujet de recherche pour avoir lui même mis la main à la pâte et pour en subir des innombrables récits à la maison. Son soutien technique et ses conseils, mais aussi sa patience et son encouragement me sont très précieux. Leon et Louis ont bien compris qu'une expérience peut parfois ne pas marcher, je leur souhaite de garder leur curiosité et leur approche franche des problèmes expérimentaux. Merci à tous les trois !

I. Travaux scientifiques

Avant-propos

Le présent rapport résume mon travail de recherche sur l'ion Ca^+ effectué au cours de la dernière décennie. Ce travail s'inscrit dans la suite de ma thèse soutenue en décembre 1994 à l'Université de Provence. En effet, pendant la période 1991-1994 j'ai construit au laboratoire le premier piège de Paul destiné à la spectroscopie laser. J'y ai effectué des mesures de durées de vie dans un nuage d'ions chauds ainsi qu'une étude des effets collisionnels pouvant réduire la durée de vie du doublet métastable 3D. Ces travaux ont été poursuivis après 1994 pour aboutir à une étude complète des différents gaz susceptibles d'avoir une influence sur la durée de vie mesurée. Les valeurs expérimentales de désexcitation collisionnelle de cette étude ont servies à la récente mesure de la durée de vie par sauts quantiques.

Dès 1995 que nous avons commencé à réfléchir à un piège miniature. Il y a d'abord eu une phase de simulations et de choix de la géométrie, de conception et de commandes et j'ai construit le premier piège miniature en 1998. Plusieurs années ont ensuite été nécessaires pour bien maîtriser le piégeage dans cet anneau, de connaître ses paramètres de confinement, de contrôler les fréquences et surtout les positions des laser avec précision, de mettre au point un système optique capable de détecter une particule unique avec suffisamment de résolution.

Aujourd'hui, nous sommes sur le point de mettre en évidence la présence d'un ion unique dans le régime de localisation forte. L'environnement de l'ion est contrôlé à un niveau avancé, nous maîtrisons avec une bonne précision les champs magnétiques et électriques, les collisions avec le vide résiduel, ainsi que l'influence du micromouvement excessif. Les lasers sont stabilisés sur des cavités de références adaptées soit par des méthodes de détection synchrone sur des cavités Invar pour les lasers de refroidissement, soit par la méthode de Pound-Drever-Hall sur une cavité ULE pour le laser d'horloge. L'observation du spectre des bandes latérales du mouvement d'un ion unique pour l'asservissement du laser d'horloge nécessite désormais des précisions de niveau métrologique.

Dans ce rapport, je présente mon travail scientifique en suivant mes publications majeures. J'ai inclus ces publications directement dans les chapitres concernés en don-

nant des informations complémentaires et parfois techniques dans le texte.

Ce manuscrit débute par une introduction générale du sujet de recherche, elle donne à la fois les bases théoriques du travail, ainsi que l'état de l'art des expériences de métrologie des fréquences optiques travaillant avec un ion piégé. Je présente ensuite un bref aperçu des premiers travaux de spectroscopie du doublet métastable 3D de l'ion calcium, travaux qui ont été menés dans un piège classique de Paul. La partie principale de ce rapport relate les expériences qui ont été effectuées dans le piège miniature. Ce piège a d'abord été caractérisé, avant d'entrer dans une phase d'optimisation du refroidissement laser et de la réduction du nombre des particules jusqu'à l'obtention d'un ion unique. L'observation des sauts quantiques de l'ion a servi à la mesure des durées de vie du niveau métastable, préparation pour l'interrogation de la transition d'horloge dans des conditions bien contrôlées. La description de la maîtrise de toutes les conditions d'environnement qui est un point primordial pour la métrologie clora le résumé des activités expérimentales. Ce sujet de recherche est loin d'être épuisé, dans le dernier chapitre, je présenterai les objectifs scientifiques que nous envisageons dans les années à venir.

Liste des publications incluses

- 1 - *Lifetime, collisional quenching and j-mixing measurements of the metastable 3D-levels of Ca⁺,*
M. KNOOP, M. VEDEL, F. VEDEL,
Phys. Rev. **A 52**, 3763-3769 (1995) page 18
- 2 - *Collisional quenching and j-mixing rate constants for the 3D-levels of Ca⁺,*
M. KNOOP, M. VEDEL, F. VEDEL,
Phys. Rev. **A 58**, 264-269 (1998) page 25
- 3 - *High Power Broad-Area Diode Laser at 794nm Injected by an External Cavity Laser,*
T. PAWLETKO, M. HOUSSIN, M. KNOOP, M. VEDEL, F. VEDEL,
Opt. Comm. **174**, 223-229 (2000) page 40
- 4 - *Linewidth reduction by 6 orders of magnitude of a broad-area 729-nm diode laser,*
M. HOUSSIN, P. COURTEILLE, C. CHAMPENOIS, M. HERBANE, M. KNOOP,
M. VEDEL, F. VEDEL,
Applied Optics, **42**, 4871-4876 (2003) page 49
- 5 - *Characterization of a miniature Paul-Straubel trap,*
C. CHAMPENOIS, M. KNOOP, M. HERBANE, M. HOUSSIN, T. KAING, M.
VEDEL, F. VEDEL,
Eur. Phys. Journal **D 15**, 105-111 (2001) page 61
- 6 - *Metastable level lifetimes from electron-shelving measurements in ion clouds and single ions,*
M. KNOOP, C. CHAMPENOIS, G. HAGEL, M. HOUSSIN, C. LISOWSKI,
M. VEDEL, F. VEDEL,
Eur. Phys. J. **D 29**, 163-171 (2004) page 77
- 7 - *Dark resonances as a probe for the motional state of a single ion,*
C. LISOWSKI, M. KNOOP, C. CHAMPENOIS, G. HAGEL, M. VEDEL, F.
VEDEL,
Appl.Phys.B.,2005 et arxiv :physics/0407135 page 102

1. Introduction

Un ion unique quasi au repos constitue un système idéal en physique atomique et quantique. Inventé initialement comme filtre de masse, le piège de Paul [1] est devenu un outil formidable pour la manipulation des particules chargées uniques. Le confinement de l'atome pendant des durées très longues et le fait qu'il soit piégé pratiquement sans interactions permettent des expériences mettant en jeu les lois de la physique quantique. Le refroidissement par laser [2, 3] a permis d'immobiliser un ion dans le piège afin de pouvoir l'interroger de façon continue. Utilisant des lasers de largeur spectrale égale ou inférieure à la largeur des transitions atomiques, l'ion peut être préparé dans un état atomique complètement connu. L'interrogation par la méthode de l'"amplificateur quantique" ou "electron-shelving" [4] donne accès à des transitions très fines et des niveaux atomiques métastables. Grâce à la méthode des "sauts quantiques", des effets tels que le moment du quadrupole électrique d'un ion unique [5] peuvent aujourd'hui être déterminés à un niveau de précision de 10^{-14} .

Depuis la réalisation du premier ion unique piégé [6] un petit nombre d'expériences a vu le jour. Une étape importante était l'observation des sauts quantiques permettant la visualisation d'une transition interdite à travers la modulation de fluorescence d'une transition forte [7, 8, 9]. Au cours des années suivantes les ions ont été piégés un par un jusqu'à formation d'un cristal de plusieurs atomes [10, 11]. Des expériences pour la réalisation des étalons de fréquence étaient mises en place. L'apparition des pièges linéaires a permis de confiner un plus grand nombre d'ions dans le minimum de potentiel du piège, formant ainsi des chaînes d'ions quasi au repos [12, 13].

U. Eichmann et ses collaborateurs au NIST [14] ont observé les interférences de la lumière de deux ions confinés. Utilisant une méthode de détection sensible à la polarisation de la lumière, ils ont même pu déterminer avec exactitude sur quel chemin les photons enregistrés avaient voyagé.

L'intrication des états atomiques d'un ion pour la réalisation d'une porte quantique [15] était la première étape dans la construction d'un ordinateur quantique. Aujourd'hui, les expériences sur des ions piégés démontrent la faisabilité d'un ordinateur quantique à plusieurs qubits [16, 17].

Récemment, des cavités de très haute finesse ont été rajouté autour de l'ion pour

étudier les phénomènes de l'électro-dynamique quantique du résonateur (CQED). Un ion unique a été utilisé pour explorer l'onde stationnaire dans la cavité avec une résolution spatiale de 60 nm [18]. Des ions uniques peuvent également être utilisés dans la préparation des sources pour la cryptographie quantique, où ils permettent de générer des photons uniques à la demande [19, 20].

Le présent travail porte sur l'application des ions uniques pour les horloges atomiques. La métrologie des fréquences a pour objectif l'interrogation d'une transition atomique ultra-fine afin d'y asservir un laser. Cet oscillateur local peut ainsi acquérir la stabilité de la transition sondée et constitue alors un étalon de fréquence. Actuellement, la seconde est définie comme "la durée de 9 192 631 770 périodes de la radiation correspondant à la transition entre les deux niveaux hyperfins de l'état fondamental de l'atome de césium 133" [21]. La précision de la définition de l'unité de temps peut être accrue en travaillant avec des fréquences plus élevées. Ceci explique l'effort qui est fait pour la réalisation d'un étalon de fréquence dans le domaine optique. L'augmentation de la précision et de la stabilité des horloges atomiques trouve des applications dans des domaines variés. La résolution spatiale des systèmes de localisation par satellites (GPS) est directement liée à la précision des horloges embarquées. La croissance des cadences en télécommunications nécessite des horloges ultra-stables pour une parfaite synchronisation. Ceci s'applique aussi pour l'utilisation d'interféromètre de très grande envergure, telle l'interféromètre spatial LISA. Enfin, la vérification des variations des constantes fondamentales peut être faite seulement avec des horloges ultra-stables. Les variations de la constante de structure fine α ont été évaluées par des expériences récentes [22, 23] à une valeur inférieure à $|\dot{\alpha}/\alpha| \leq 2.0 \times 10^{-15} yr^{-1}$.

1.1 Les horloges optiques

Parmi les unités de base du "Système international d'unité" (SI) la seconde est celle qui est définie le plus exactement : sa valeur est fixée par la fréquence de transition entre deux niveaux atomiques. La mise en œuvre de cette définition, demande la réalisation d'un étalon de fréquence, qui est appelé horloge, s'il fonctionne de façon continue.

La qualité d'un étalon de fréquence est définie par sa précision, son exactitude, sa stabilité ainsi que sa reproductibilité. La précision est la résolution de la mesure qui dans les cas considérés est la largeur d'une transition atomique observée divisée par la fréquence de cette transition. Sa limite est donnée par la largeur naturelle de la transition d'horloge. Actuellement, les meilleurs étalons de fréquence utilisent des transitions atomiques dans le domaine des microondes pour atteindre des précisions de l'ordre de 10^{-15} après quelques heures [24]. Des expériences récentes ont démontré

que des étalons utilisant une fréquence dans le domaine optique pourraient atteindre les mêmes précisions après des temps de mesure beaucoup plus courts [25, 26].

Les propositions existantes incluent des transitions d'horloge dans le domaine optique aussi fines que le nanohertz, et poussent donc la limite de la précision au-delà de 10^{-20} [27]. Aujourd'hui, la précision ultime atteinte par les candidats d'étalon dans le domaine optique est limitée par la largeur des lasers d'interrogation ainsi que par les effets systématiques tels que le couplage du moment du quadrupole avec les gradients de champ électrique ou la stabilité de champ magnétique. Les effets systématiques influencent également l'exactitude d'un étalon de fréquence, qui est le degré de conformité de la fréquence mesurée à sa définition.

La stabilité - qui exprime la déviation temporelle des fréquences d'étalon - est mesurée en terme de variance d'Allan $\sigma_y(\tau)$ [28]. Celle-ci se compose du facteur de qualité $Q = \nu_0/\Delta\nu$ - la précision instantanée donc, du temps d'interrogation T_c , ainsi que le rapport signal à bruit S/N .

$$\sigma_y(\tau) = \frac{1}{QS/N} \sqrt{\frac{T_c}{\tau}} \quad (1.1)$$

La stabilité actuelle des horloges atomiques au césium qui travaillent dans le domaine des micro-ondes et de $\sigma_y(\tau) = 3.5 \times 10^{-13} \tau^{-1/2}$ [29] dans un jet de césium et de $\sigma_y(\tau) = 1.6 \times 10^{-14} \tau^{-1/2}$ dans une fontaine atomique [30].

La reproductibilité dans la mesure d'une fréquence, qui peut être exprimée par la différence de valeur d'une série de mesures à une autre, par exemple sur deux montages expérimentaux différents, est importante dans la généralisation de l'utilisation d'une fréquence étalon. Très peu d'évaluations existent dans ce domaine, puisque les équipes travaillant sur la même transition atomique sont rares.

Deux approches existent pour préparer un étalon de fréquence dans le domaine optique. Si un ensemble d'atomes froids a l'avantage d'un grand nombre de particules permettant ainsi d'augmenter la stabilité de l'étalon à travers un rapport signal sur bruit élevé, il est néanmoins limité en exactitude par le mouvement atomique. Un ion unique piégé peut être localisé dans le régime de Lamb-Dicke où l'élargissement par effet Doppler du premier ordre est supprimé, cependant la stabilité expérimentale d'un tel étalon de fréquence est limitée par le nombre très réduit des particules (un seul ou quelques unités) et il demande la préparation d'un laser ultra-stable pendant des périodes de plusieurs dizaines de secondes. Très récemment, une expérience mettant à profit les avantages des deux approches a été proposée [31] : Le confinement d'un ensemble d'atomes dans un réseau optique de façon à ce que chaque atome se trouve dans le régime de Lamb-Dicke. La longueur d'onde du laser qui génère le réseau optique

est choisie loin de toute résonance atomique, profitant de l'existence des longueurs d'ondes "magiques" pour lesquelles le déplacement lumineux des niveaux atomiques impliqués est identique et donc négligeable.

Dans ce rapport je présenterai l'état de l'art de la métrologie des fréquences optiques en me concentrant sur les ions piégés. Pour bien situer le sujet je voudrais rappeler qu'il y a par ailleurs des expériences sur des étalons de fréquence optique avec des atomes neutres, notamment, le calcium au NIST, États-Unis et à la PTB, Allemagne, le strontium à l'ERI, Japon et au BNM-SYRTE en France, l'argent au BNM-INM en France, et finalement l'ytterbium (University of Washington, États-Unis).

1.2 Les étalons de fréquence optique à ion unique

Aujourd'hui, il existe des étalons de fréquences dans le domaine optique et qui utilisent un ion unique dans tous les grands laboratoires de métrologie dans le monde [32]. Certains de ces projets qui ont démarré il y a une vingtaine d'années sont maintenant sur le point de passer dans la phase ultime d'évaluation des effets systématiques. La variation de la fréquence est étudiée en fonction des champs résiduels mais également en fonction du temps pour évaluer la stabilité de l'horloge proposée. Dans tous les cas, la mesure de la fréquence absolue se fait désormais à l'aide d'un peigne de fréquence basé sur un laser femtoseconde en remplacement de très lourdes chaînes de fréquences utilisées encore il y a quelques années.

Fonctionnement du piège Le piège de Paul [1] est l'outil idéal pour la réalisation d'un étalon de fréquence, permettant de très grandes durées de confinement et donc d'interrogation du même échantillon. D'après le principe d'incertitude des précisions extrêmes sur la mesure de la fréquence peuvent ainsi être atteintes [33]. Le deuxième avantage du piège radiofréquence est son mode de fonctionnement, forçant les particules confinées à effectuer un mouvement oscillatoire à une fréquence ω_i bien connue [4]. En effet, dès que l'ion dans le piège est localisé à mieux qu'une fraction de longueur d'onde, le spectre de fluorescence observé devient discret, il ne se compose plus que d'une bande centrale ainsi que des bandes latérales espacées des multiples des fréquences de mouvement [34]. L'élargissement important par l'effet Doppler du premier ordre peut ainsi être supprimé ce qui ouvre la voie à l'accès à des largeurs de raies de l'ordre de quelques hertz. Pour des transitions micro-ondes le régime de Lamb-Dicke est atteint dans un piège radiofréquence de dimensions standards même avec un nuage d'ions [35]. Pour des transitions dans le domaine optique l'échantillon doit être immobilisé à une centaine de nm, d'où la nécessité de travailler avec un ion unique afin qu'il soit piégé

dans le centre du puits de pseudo-potential pour subir le moins possible l'influence du champ de confinement. Concrètement ceci est réalisé en refroidissant les atomes par laser et en rendant le centre du puits de pseudo-potential aussi parfait que possible à l'aide d'électrodes de compensation. L'utilisation des fréquences de confinement Ω élevées induisant des fréquences de mouvement ω_i de l'ordre du MHz facilite l'accès au régime de Lamb-Dicke. Pour des raisons techniques, un piège miniature s'impose alors. Le fonctionnement du piège est décrit en détail dans [1], et plus loin dans ce mémoire (section 3.4, notamment dans la publication à la page 61), quelques notions indispensables sont rappelés en section 5.

Choix de l'ion Pour la mise en oeuvre de l'étalon de fréquence, il s'agit en premier lieu de sélectionner l'ion qui va prêter ses transitions pour la réalisation d'un tel étalon de fréquence. Cet ion doit disposer d'une transition très fine - de préférence interdite au moins au premier ordre dans l'approximation dipolaire - à une fréquence élevée, si possible dans le visible, ainsi que d'une transition forte (électrique dipolaire), nécessaire pour le refroidissement laser de l'ion. La première étape de l'expérience sera d'autant plus facile que ces transitions peuvent être générées par des lasers commercialement disponibles. La plupart des ions proposées pour des étalons de fréquence font partie de la famille des ions des alcalino-terreux. Ces ions disposent d'un schéma des niveaux atomiques en Λ , avec un niveau métastable relié à l'état fondamental par une transition électrique quadrupolaire ou octupolaire, ainsi qu'une transition électrique dipolaire découplée (en général, la raie de résonance) permettant le refroidissement laser. Par ailleurs, ces ions demandent un laser supplémentaire, un repompeur, nécessaire pour fermer le cycle de refroidissement. Les deux ions non issus de la famille des alcalino-terreux (Hg^+ , In^+) servant à des étalons de fréquence ne nécessitent pas ce repompeur supplémentaire.

Au laboratoire, nous avons choisi l'ion calcium pour servir de référence dans le projet métrologique. Les avantages de cet ion sont multiples. En premier lieu, la transition d'horloge proposée est une transition électrique quadrupolaire qui couple l'état fondamental $4S_{1/2}$ au niveau $3D_{5/2}$ à une longueur d'onde de 729 nm, ce qui équivaut à une fréquence légèrement supérieure à 400 THz (cf. figure 1.1). La largeur de cette transition est de l'ordre de 160 mHz, puisque l'état d'énergie supérieur $3D_{5/2}$ a une durée de vie d'environ 1150 ms [36].

La raie de résonance du CaII est la transition $4S_{1/2}-4P_{1/2}$ à 397 nm. Cette transition a une largeur naturelle de $\Gamma \approx 22,7$ MHz, la limite de refroidissement Doppler donné

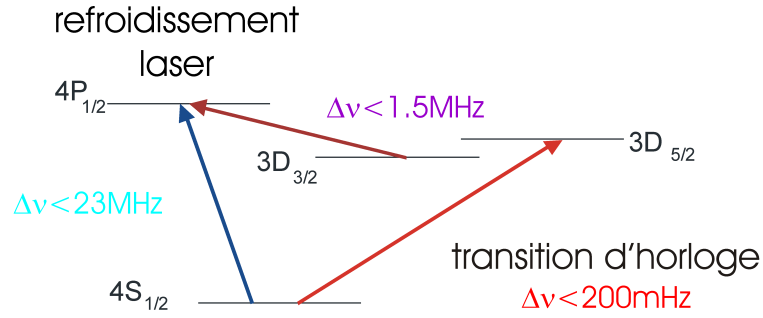


Fig. 1.1: Schéma des premiers niveaux d'énergie du Ca^+

par

$$T_D = \frac{\hbar\Gamma}{2k_B} \quad (1.2)$$

est donc de $T_D = 0.55$ mK. Le taux de branchement $\frac{A(4P-4S_{1/2})}{\sum_J A(4P-3D_J)}$ s'élève à 17.6 ± 2 [37], ce qui rend un laser repompeur sur la transition $3D_{3/2} - 4P_{1/2}$ à 866 nm indispensable, vu que le rapport des durées de vie $3D_{3/2}/4P_{1/2}$ est de 10^8 .

L'existence d'un isotope de spin nucléaire impair ($I = \frac{7}{2}$), le $^{43}\text{Ca}^+$, permet de proposer un étalon de fréquence utilisant une transition hyperfine $m_F=0 \rightarrow m_{F'}=0$, indépendant d'un champ magnétique résiduel en premier ordre. L'abondance naturelle de cet isotope n'étant pas très élevée ($< 0.135\%$), l'ion doit être créé à partir d'un échantillon enrichi, le plus efficacement par photo-ionisation (cf. chapitre 6). Le schéma des premiers niveaux d'énergie de cet isotope est donné dans la figure A.2.

Un dernier avantage d'un étalon de fréquence utilisant l'ion calcium est le domaine des longueurs d'onde nécessaire à l'interrogation : En principe, toutes ces longueurs d'onde peuvent être générées à partir de diodes laser ou des lasers à solide, ce qui permet de proposer un dispositif compact et stable.

État de l'art Dans les laboratoires métrologiques du monde, des ions différents ont été choisis pour des raisons de largeur ultime de la transition d'horloge, de génération de longueur d'onde laser ou de création d'ions. Aujourd'hui les étalons proposés couvrent un large domaine allant de l'ultraviolet (In^+ à 267 nm) au rouge (Ca^+ à 729 nm).

Le plus ancien des projets (et le plus avancé) est le projet Hg^+ du National Institute for Standards and Technology (NIST) à Boulder/CO. La transition électrique quadrupolaire $^2S_{1/2}(F=0, m_F=0) - ^2D_{5/2}(F=2, m_F=0)$ de l'isotope $^{199}\text{Hg}^+$ a une largeur naturelle d'environ 2 Hz. Les deux transitions impliquées dans le refroidissement et l'interrogation de l'ion sont situées dans l'ultraviolet à 194 et 282 nm. La fréquence de la transition d'horloge a pu être mesurée à $1\,064\,721\,609\,899\,145,9$ Hz

avec une erreur statistique de 1,6 Hz et une erreur systématique de 10 Hz [38]. Le seuil de stabilité attendu pour cet ion est inférieur à $1 \times 10^{-15} \tau^{-1/2}$ pouvant atteindre des incertitudes fractionnelles jusqu'à 1×10^{-18} .

L'ion ytterbium est très convoité en métrologie des temps-fréquences pour deux de ses transitions. La plus fine de toutes les transitions proposées est étudiée au National Physical Laboratory (NPL) à Teddington/GB. C'est une transition électrique octupolaire à 467 nm avec une largeur naturelle de l'ordre du nHz. Elle relie l'état fondamental $^2S_{1/2}(F=0)$ au niveau métastable $^2F_{7/2}(F=3, m_F=0)$ qui a une durée de vie d'environ 6 ans [39]. Sa fréquence absolue a été mesurée à $(642\,121\,496\,771\,260 \pm 230)$ Hz [40], l'évaluation des effets systématiques a commencé [27].

L'ytterbium dispose également d'une transition électrique quadrupolaire intéressante pour proposer un standard de fréquence. Cette raie a une largeur théorique de 3.1 Hz et elle est située à 436 nm. Récemment, la fréquence de cette transition $^2S_{1/2}(F=0) - ^2D_{3/2}(F=2)$ était déterminée à $688\,358\,979\,309\,312$ Hz avec une incertitude de 6 Hz [41]. Ces études sont en cours à la PTB en Allemagne.

La transition électrique quadrupolaire à 467 nm du $^{88}\text{Sr}^+$ est étudié au NPL et au National Research Council (NRC) au Canada. L'étalon proposé est situé entre les niveaux $5s^2S_{1/2}$ et $4d^2D_{5/2}$ limité par sa durée de vie naturelle à 0,4 Hz. Les deux études sont en parfait accord, puisqu'au NPL cette raie a été mesurée à une fréquence de $444\,779\,044\,095,52$ kHz avec une largeur de 0,1 kHz [42], tandis que l'équipe canadienne a annoncé une valeur de $444\,779\,044\,095,510$ kHz avec une largeur de 0,05 kHz [43].

Parmi les ions proposés pour servir d'étalon de fréquence, l' In^+ dispose d'un schéma des niveaux d'énergie complètement différent. La transition d'horloge est une transition hyperfine (électrique dipolaire) entre les niveaux $5s^2\ ^1S_0$ et $5s5p^3\ P_0$ situé à 237 nm avec une largeur naturelle de 0,8 Hz. Des récentes mesures ont évalué sa fréquence à $(1\,267\,402\,452\,899,92 \pm 0,23)$ kHz [44]. Notons que la raie de refroidissement et de détection n'a qu'une largeur de 360 kHz, ce qui permet de faire du refroidissement par bandes latérales directement sur cette transition et de s'en servir pour la compensation du micromouvement. Par ailleurs, c'est le seul ion à ne pas subir le déplacement quadrupolaire. Cet ion fait l'objet de recherches au Max-Planck-Institut für Quantenoptik à Garching en Allemagne.

Une première mesure de la fréquence de la transition électrique quadrupolaire $4S_{1/2} - 3D_{5/2}$ de l'ion $^{40}\text{Ca}^+$ a été effectuée à Innsbruck [45]. La valeur préliminaire est de $(411\,042\,129\,776\,230 \pm 250)$ Hz limitée par la stabilité du quartz de référence.

Par ailleurs, d'autres propositions pour des étalons optiques avec des ions existent. Le travail a commencé sur le refroidissement sympathique de l'ion $^{27}\text{Al}^+$ [46] dont les caractéristiques sont voisines de l' In^+ . La transition d'horloge proposée correspond à

ion étudié	$\nu_{horloge}$ [Hz]	$Q = \frac{\delta\nu_{nat}}{\nu_h}$	$\frac{\delta\nu_{mes}}{\nu_h}$	[ref]
$^{199}\text{Hg}^+$	1 064 721 609 899 146	1.9×10^{-15}	1.1×10^{-14}	[38]
$^{171}\text{Yb}^+$	642 121 496 771 260	1.6×10^{-24}	3.6×10^{-13}	[40]
$^{171}\text{Yb}^+$	688 358 979 309 312	4.5×10^{-15}	8.7×10^{-15}	[41]
$^{88}\text{Sr}^+$	444 779 044 095 520	9×10^{-16}	2.2×10^{-13}	[42]
$^{88}\text{Sr}^+$	444 779 044 095 510	9×10^{-16}	1.1×10^{-13}	[43]
$^{115}\text{In}^+$	1 267 402 452 899 920	6.3×10^{-16}	1.8×10^{-13}	[44]
$^{40}\text{Ca}^+$	411 042 129 776 230	3.9×10^{-16}	6.1×10^{-13}	[45]

Tab. 1.1: Les ions candidats pour un étalon de fréquence dans le domaine optique. Ce tableau récapitule les fréquences d'étalon $\nu_{horloge}$ proposées, ainsi que leurs facteurs de qualité Q théoriques. La quatrième colonne contient les valeurs mesurées les plus récentes, décrites dans cette section.

la quatrième harmonique d'un laser Nd :YAG (266 nm).

Plus exotique, la spectroscopie du $^{229}\text{Th}^{3+}$ [47] a démarré à la PTB. La proposition porte sur une transition vers un état d'isomère, une de très rares transitions nucléaires à être accessible par laser. Sa largeur naturelle est estimée à environ 10 μHz . Dans un premier temps, il s'agit de détecter par spectroscopie classique la transition d'horloge vers 350 nm qui n'est connue qu'avec une incertitude de +100 nm/-75 nm. Dans une étape avancée, l'interrogation de la transition d'horloge pourrait se faire par un protocole similaire aux sauts quantiques. L'avantage majeure de cette proposition est l'insensibilité de la transition aux effets systématiques.

De plus, H. Dehmelt et N. Yu ont proposé deux ions pour la métrologie, le $^{204}\text{Tl}^+$ [48] et le $^{26}\text{Al}^+$ [49] avec des largeurs spectrales théoriques de 10 mHz et de 300 μHz respectivement. Leurs effets systématiques ont été estimés à des ordres de grandeur plus petits que ceux pour le mercure. Les difficultés prévisibles pour ces candidats sont leurs longueurs d'onde situées profondément dans le domaine de l'ultraviolet ainsi que leur radioactivité.

Une synthèse de tous les ions aujourd'hui en lice pour un étalon de fréquence est donnée dans le tableau 1.1. Actuellement, les incertitudes atteintes s'approchent des résultats des meilleures fontaines atomiques [30]. Les projets les plus avancés abordent l'étape de mesure du moment quadrupolaire [5] qui est parmi les effets systématiques les plus gênants.

La figure 1.2 montre le développement des horloges depuis la définition de la seconde en 1967. Les horloges à césium ont gagné une ordre de grandeur en précision avec l'apparition des fontaines atomiques, aujourd'hui elles approchent une valeur limite. Par

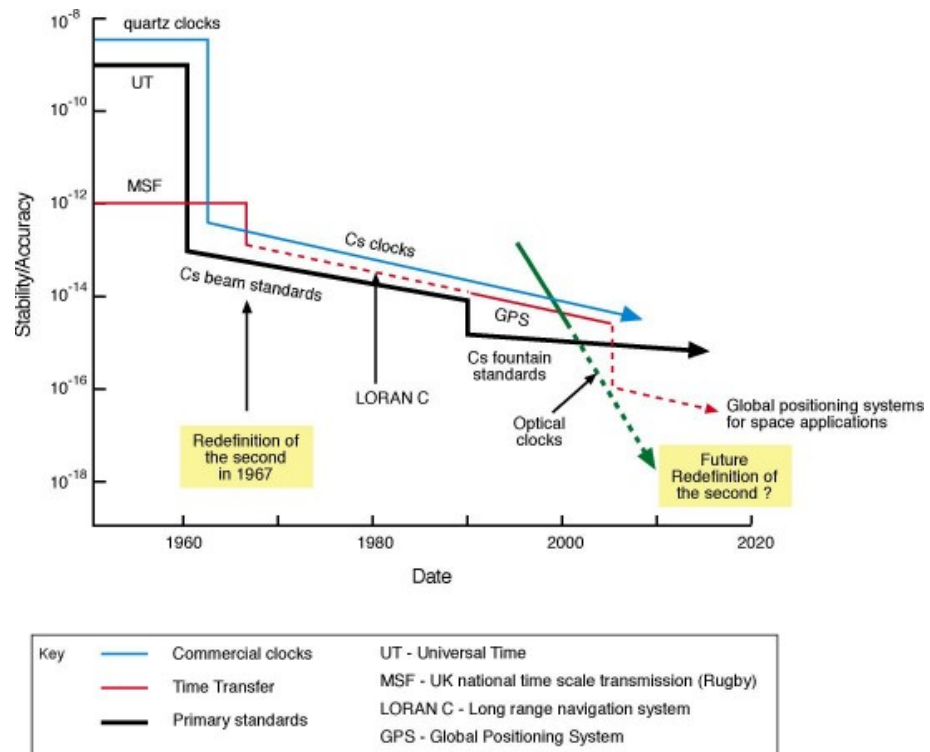


Fig. 1.2: Comparaison des horloges existantes (NPL) [51]

ailleurs, les étalons de fréquences optiques sont en pleine phase de développement et promettent des précisions largement supérieures à toutes les horloges existantes. L'existence des peignes de fréquence couvrant une octave dans le domaine des fréquences optiques permet une mesure simple et fiable des fréquences absolues. Ils rendent également possible le lien direct entre le domaine des micro-ondes et les fréquences optiques de plusieurs centaines de THz [50].

2. Expériences préliminaires dans un piège de taille moyenne

Le travail sur l'ion calcium a commencé à Marseille avec le début de ma thèse en janvier 1991. C'était la première expérience de spectroscopie laser de l'équipe. J'ai d'abord monté un piège de Paul de taille moyenne ($r_0 = 7,1\text{mm}$) afin de pouvoir effectuer des expériences préliminaires de spectroscopie laser [52].

Au cœur d'une enceinte ultravide d'un volume d'environ 3 litres, un piège de Paul de forme classique est maintenu. L'anneau du piège est fabriqué en molybdène, les deux chapeaux hyperboloïdiques sont faites en grille de molybdène d'une transmission de 86% permettant la détection de la fluorescence des ions le long de l'axe z de la cage. La création des ions se fait par bombardement électronique d'un jet d'atomes de calcium issu d'un petit four. Le jet électronique est créé en chauffant un filament de tungstène polarisé à -40 V. Pour permettre le passage des jets atomiques et électroniques l'anneau du piège dispose de deux trous circulaires au centre, les faisceaux laser passent en biais dans le piège. Ce dispositif est équipé d'un multiplicateur d'électrons en face d'un des chapeaux pour la détection directe des particules chargées, tandis que l'autre chapeau est muni d'une grande lentille condenseur pour collimater la fluorescence. La lentille a été choisie pour son très grand angle d'ouverture, qui ne va malheureusement pas de pair avec sa qualité d'imagerie. L'enceinte ultravide est équipée d'une jauge ultravide ainsi que d'un spectromètre de masse pour pouvoir contrôler au mieux les pressions partielles des gaz en interaction avec les ions confinés.

Pour l'excitation des raies du CaII nous disposons de trois laser. Un laser titane-saphir commercial^(a) qui permet de générer des longueurs d'onde entre 710 et 840 nm, et qui par ailleurs est équipé d'un cristal doubleur pour atteindre une sortie comprise entre 390 et 410 nm. Les autres sources utilisées sont des diodes laser à 866 nm et à 854 nm montées en cavités étendues. Une description très détaillée du dispositif est donnée dans ma thèse [52].

L'approche spectroscopique du laboratoire était originale du fait que nous avons choisi d'exciter directement la transition électrique quadrupolaire $4S - 3D$. L'excitation se fait en double-résonance ($4S - 3D$ et $3D - 4P$), tandis que la détection de la

^(a) Coherent 899-21

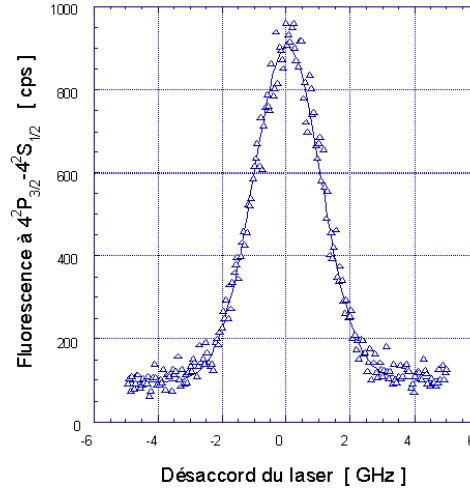


Fig. 2.1: Excitation de la transition interdite $4S_{1/2}-3D_{5/2}$ à 729 nm et de $3D_{5/2}-4P_{3/2}$ à 854 nm, détection par la fluorescence à 393 nm. Le laser à 854 nm est maintenu à fréquence fixe pendant que le laser à 729 nm est balayé sur la résonance.

fluorescence présente l'avantage de se faire sur fond noir ($4P - 4S$) (figure 2.1). La transition $4S - 3D$ étant interdite dans l'approximation dipolaire, le signal recueilli est détecté en comptage de photons (publication [P-3]).

2.1 Les durées de vie du doublet métastable et les collisions inélastiques

Nous avons ensuite utilisé l'expérience acquise dans l'excitation directe de la transition interdite pour la mesure de la durée de vie du doublet métastable $3D$ dans un nuage d'ions chauds (publication à la page 18). L'excitation directe de la transition interdite permet de peupler le niveau étudié très proprement, les conditions initiales de la mesure sont bien définies. Prenons l'exemple de l'étude du niveau $3D_{3/2}$. Dans la pratique, le niveau $3D_{3/2}$ est peuplé par l'application du laser à 732 nm pendant plusieurs centaines de millisecondes. Après un temps d'attente variable, le niveau $3D_{3/2}$ est sondé par la diode laser à 866 nm correspondant à la transition ($3D_{3/2} - 4P_{1/2}$). La fluorescence $4P_{1/2} - 4S_{1/2}$ observée est alors proportionnelle à la population résiduelle du niveau $3D_{3/2}$. Le taux de population du niveau en fonction du délai d'attente donne la décroissance exponentielle du niveau métastable. La constante de temps de la courbe décroissante correspond à la durée de vie du niveau atomique aux conditions expérimentales données. Pour accéder à la durée de vie naturelle de niveau, il convient de mesurer la durée de vie en variant les conditions expérimentales, notamment les pressions partielles des gaz, et d'extrapoler la valeur non-perturbée. Dans notre expérience,

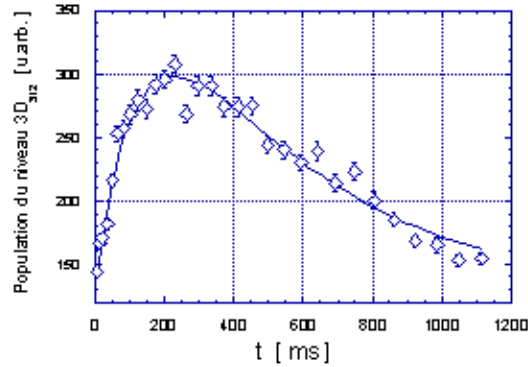


Fig. 2.2: Population du niveau $3D_{3/2}$ observé après pompage du niveau $3D_{5/2}$.

ce sont les collisions inélastiques qui ont la plus grande influence sur la réduction de la durée de vie des niveaux métastables.

Nous avons donc entrepris une étude de l'influence des gaz neutres sur la durée de vie. Les transitions non-radiatives peuvent être causées par des collisions soit vers le niveau fondamental (quenching), soit vers l'autre niveau du doublet métastable (j -mixing). Les effets de quenching peuvent être étudiés en mesurant la durée de vie comme décrit dans le paragraphe précédent pour des pressions de gaz tampon différentes. Pour le j -mixing, les ions sont pompés dans le niveau $3D_{3/2}$ ($3D_{5/2}$), l'autre niveau de structure fine $3D_{5/2}$ ($3D_{3/2}$) est alors sondé. La constante de temps du transfert de population dû aux collisions peut ainsi être mesurée (figure 2.2). Dans cette figure l'équilibre entre le peuplement du niveau par laser et la désexcitation par émission spontanée est atteint vers environ 300 ms.

L'étude a porté sur des gaz tampon très variés, commençant par l'hélium. Il s'est avéré que les collisions inélastiques réduisant la durée de vie se produisent davantage avec des gaz moléculaires (H_2 , N_2 , CO), tandis que les gaz rares (ou atomiques, tel que He, Ne, Ar) provoquent plutôt des collisions élastiques ayant tendance à transférer de l'énergie cinétique à l'échantillon (publication jointe, page 25). C'est ainsi que l'utilisation d'hélium en tant que gaz tampon permet un refroidissement des ions. Les gaz plus lourds, tels que le néon ou l'argon vont à leur tour tendre à éjecter les ions du piège à cause de leurs masses plus importantes. Les dispositifs expérimentaux et les résultats de toutes les mesures sont décrits dans les deux publications ci-jointes.

L'étude théorique du mélange de structure fine des niveaux métastables des ions calcium avec des gaz rares était le sujet d'une collaboration avec Eugeniusz Czuchaj de l'université de Gdańsk. Malheureusement, le calcul des sections efficaces ne peut pas tenir compte de toutes les voies de sortie de la collision ce qui pourrait expliquer la différence entre les valeurs mesurées et calculées [53].

Lifetime, collisional-quenching, and j -mixing measurements of the metastable $3D$ levels of Ca^+

M. Knoop, M. Vedel, and F. Vedel*

Physique des Interactions Ioniques et Moléculaires (URA CNRS 773), Université de Provence, Case C21, F13397 Marseille Cedex 20, France

(Received 28 November 1994)

The metastable $3^2D_{3/2,5/2}$ doublet of Ca^+ ions stored in a Paul trap was investigated in the presence of different neutral gases, in the pressure range 10^{-9} – 10^{-6} mbar. The natural lifetimes were determined to be $\tau(D_{3/2})=1111\pm 46$ ms and $\tau(D_{5/2})=994\pm 38$ ms, which agree very well with previous experiments. The estimation of the quenching rates of Ca^+ -He [$\Gamma_{\text{He}}=(1.05\pm 0.42)\times 10^{-12}$ $\text{cm}^3 \text{s}^{-1}$], Ca^+ -Ne [$\Gamma_{\text{Ne}}=(0.9\pm 0.7)\times 10^{-12}$ $\text{cm}^3 \text{s}^{-1}$], and Ca^+ - N_2 [$\Gamma_{\text{N}_2}=(1.7\pm 0.2)\times 10^{-10}$ $\text{cm}^3 \text{s}^{-1}$] was carried out for collisions in the energy range 0.3–1.3 eV. In addition, rate constants for the mixing of the fine-structure states were measured in the presence of helium and nitrogen for the $j=3/2\rightarrow j=5/2$ case [$\gamma_{35}(\text{He})=(2.24\pm 0.10)\times 10^{-10}$ $\text{cm}^3 \text{s}^{-1}$ and $\gamma_{35}(\text{N}_2)=(2.8\pm 0.3)\times 10^{-9}$ $\text{cm}^3 \text{s}^{-1}$] and for the $j=5/2\rightarrow j=3/2$ case [$\gamma_{53}(\text{He})=(1.2\pm 0.7)\times 10^{-10}$ $\text{cm}^3 \text{s}^{-1}$ and $\gamma_{53}(\text{N}_2)=(1.26\pm 0.10)\times 10^{-9}$ $\text{cm}^3 \text{s}^{-1}$]. The measurements were carried out populating the metastable levels by direct laser excitation of the forbidden S - D transitions.

PACS number(s): 32.80.Pj, 32.50+d, 32.70.Cs

I. INTRODUCTION

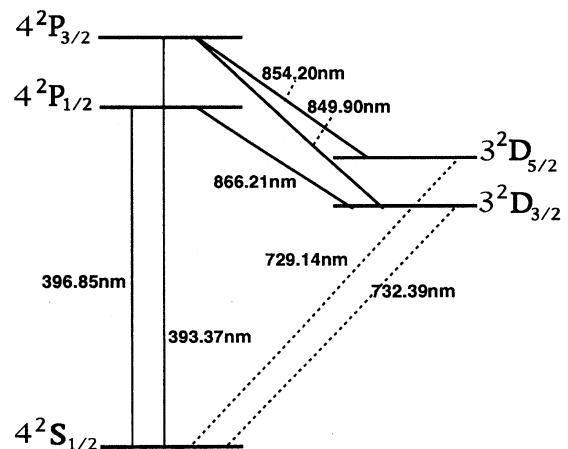
The electrical quadrupole transition $4^2S_{1/2}-3^2D_{5/2}$ of Ca^+ at 729 nm offers an interesting possibility for a frequency standard in the optical domain, which could be achieved with the ion storage technique. The Q factor ($\nu/\Delta\nu$) of the proposed clock transition is higher than 10^{15} [1,2]. Under extreme conditions, the effect of the collisions with the particles of the background pressure is one of the main sources of the broadening of the clock transition and is difficult to eliminate [3]. On the other hand, the forbidden transitions of Ca II serve as calibration lines in astrophysics, where they are used to monitor densities and temperatures in stellar atmospheres [4,5]. For these applications, precise knowledge of lifetimes, quenching, and mixing rate constants is necessary. Theoretical computations of the metastable lifetimes with *ab initio* models using different approaches exist [6–8] and their comparison with experimental results is fundamental for improvement of the description needed for the numerical models.

The relevant energy levels of Ca II are shown in Fig. 1. The resonance lines H and K ($4^2S_{1/2}-4^2P_{1/2}$ and $4^2S_{1/2}-4^2P_{3/2}$) at 397 and 393 nm are very strong, $\tau(P_{1/2}, P_{3/2})\approx 7$ ns. The probabilities $A(4^2P-3^2D_j)$ of P -level relaxation toward the D states are high and the corresponding branching ratio $A(4^2P-4^2S_{1/2})/\sum_j A(4^2P-3^2D_j)$ has been measured to be 17.6 ± 1.0 [9].

The very few natural lifetime measurements of the $3^2D_{3/2}$ and $3^2D_{5/2}$ metastable states of Ca^+ that exist were all done with the ion storage technique. Two of these experiments were performed on an ion cloud at temperatures of 2000 K [10] and 8000 K [11]. The latest improvement of the method [11] leads to the following values $\tau(D_{3/2})=1113\pm 45$ ms and $\tau(D_{5/2})=1054\pm 61$ ms. Other experi-

ments were performed with very few particles (2–4) [12] or a single laser-cooled ion [13]. The detection scheme for the latter experiment only allowed the determination of the $D_{5/2}$ -level lifetime, found to be $\tau(D_{5/2})=1080\pm 220$ ms, at an ionic temperature of 130 mK. The experiments discussed above concerned either a macroscopic [11] or a microscopic signal (quantum jumps) [13]. The population of the D levels was achieved by excitation of the S - P transitions followed by relaxation to the metastable states (“indirect population”). Observations were made on the S - P fluorescence either by probing the corresponding P - D transitions or by detecting quantum jumps in the case of a single ion.

The experiments presented here use another technique to investigate the 3^2D_j level by populating it by direct laser excitation of the corresponding $4^2S_{1/2}-3^2D_j$ transition. Compared to the indirect population mechanism, this method presents the advantage of avoiding parasitic population of the $3^2D_{3/2}$ level, which perturbs the measurements because of strong fine-structure mixing during the $3^2D_{5/2}$ study. In-

FIG. 1. Lower energy levels of Ca II .

* Author to whom correspondence should be addressed. FAX: +33 91 28 87 45. Electronic address: FERN@FRMRS11.U-3MRS.FR

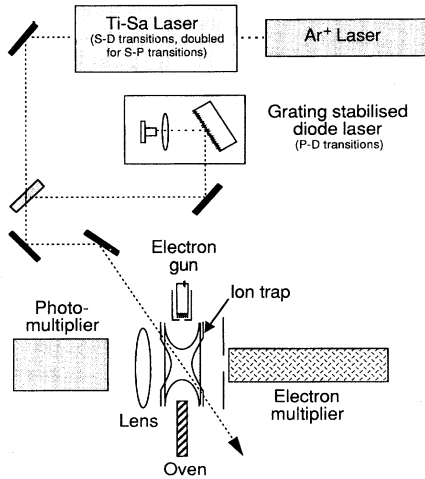


FIG. 2. Experimental setup.

deed, since collisions are almost always present, they prevent well-defined initial conditions. The latter could be obtained with an additional laser emptying the $3^2D_{3/2}$ level, but this would make the experiment even more complex.

This paper is organized as follows. In Sec. II we first describe the principle of the experiments. Then, in Sec. III A we present our results for the lifetime and the quenching rates measurements in the presence of neutral gases along with a discussion. Finally, in Sec. III B the fine-structure mixing is treated.

II. EXPERIMENTAL METHOD

The experimental setup is presented in Fig. 2. Further details can be found in Ref. [2]. Ca^+ ions are stored in a medium size, hyperbolic rf trap ($r_0 = \sqrt{2}z_0 = 7.2$ mm). The ring of the trap is made from stainless steel and the end caps are formed from molybdenum mesh of high transmission (83%). The confinement radio frequency Ω is equal to $2\pi \times 2$ MHz, the dc voltage V_{dc} varies between 0 and 10 V, and the ac voltage V_{ac} is around 420 V rms. Ultrahigh vacuum conditions are obtained with a turbomolecular pump (Balzers TPU060) and an ion pump (Méca2000 APID100) giving residual pressures lower than 10^{-9} mbar after 48 h of bakeout at 200°C . Different neutral gases can be introduced into the vessel without contamination by impurities using a needle valve. Partial pressures are measured with a linear quadrupole mass spectrometer (Balzers QMG064), complemented by a Bayard-Alpert gauge. Calcium atoms are created by evaporation of metallic calcium from a small oven. They are ionized inside the trap with a pulsed electron gun and stored for times exceeding 1 h in a total pseudopotential well of 78 eV. The ion cloud has a temperature between 3000 and 15 000 K, depending on the pressure and the mass of the buffer gas [2].

The resonance radiation required for uv transitions is generated by a cw frequency-doubled titanium sapphire ring laser (Coherent 899-21), with a power up to 19 mW at 397 nm and a spectral width of 1 MHz. A laser diode, mounted in an external cavity, can be tuned in order to deliver the three

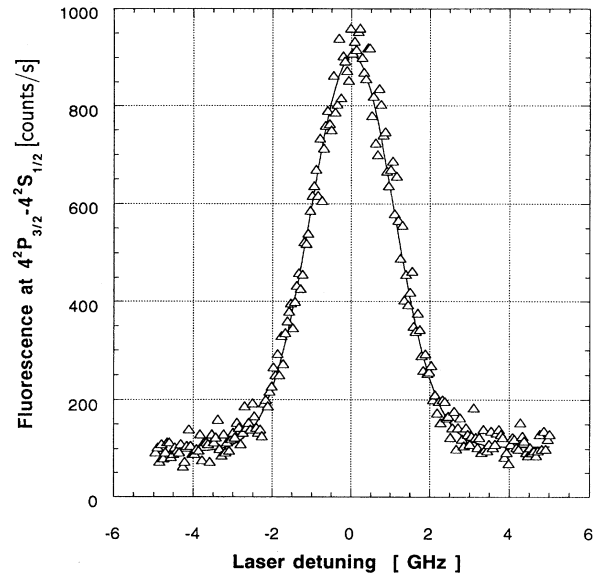


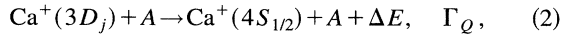
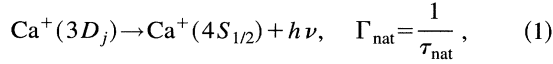
FIG. 3. Fluorescence of the $4P_{3/2} - 4S_{1/2}$ transition during excitation of the $4S_{1/2} - 3D_{5/2}$ transition and of the $3D_{5/2} - 4P_{3/2}$ transition ($P_{\text{laser}} = 700$ mW at 729 nm). The resonance profile is obtained by tuning the Ti-Sa laser, while the diode laser is kept at a fixed frequency.

D - P components (200 μW at 866 nm, spectral width less than 30 MHz). Finally, the S - D lines (729 and 732 nm) are available from the fundamental mode of the Ti-sapphire laser with power up to 1 W. The emitted photons are detected by a blue-peaked photomultiplier (Hamamatsu H4730), run in the photon-counting mode.

In the following, a discussion of the lifetime measurements will be presented. As mentioned above, we directly pump the investigated D level [2] instead of populating it by excitation of the S - P and relaxation of the P level, as in the previous Ca^+ experiments [10–13]. Figure 3 shows a typical fluorescence of the S - D transition that occurs during double-resonance excitation of the $4S_{1/2} - 3D_{3/2}$ and $3D_{3/2} - 4P_{1/2}$ transitions. The fluorescence of the $4S_{1/2} - 4P_{1/2}$ transition is then detected, allowing the discrimination of the small ion signal from the large red background of scattered laser light by means of an interference filter. Experiments on the $4S_{1/2} - 3D_{5/2}$ transition are carried out in a symmetric manner. The $D_{3/2}$ level ($D_{5/2}$, respectively) is populated by applying the titanium sapphire laser for approximately 1 s. After a variable time delay t_d , the D level is probed by the diode laser and the corresponding ultraviolet fluorescence is detected. We ascertained that the diode laser power, applied for 10 ms, was sufficiently high to empty the level completely. Between two successive times t_d and $t_d + \Delta t_d$ (where Δt_d varies between 5 and 200 ms, depending on the time constant of the temporal evolution investigated), the fluorescence signal diminishes proportionally to the D -state population. A sufficient precision can only be attained with the accumulation of data, where the number of accumulations is limited by the fact that the experimental conditions must be kept stable. In our experiments, the measurement of the full decay cycle was usually repeated 40 times. For each elementary decay

cycle, the relative ion loss is negligible.

Experiments have predicted the j mixing to be very fast in comparison to the quenching rate [14]. The temporal variation of the level populations is then governed by two deexcitation mechanisms: the depopulation process due to the finite lifetime of the atomic level and the quenching process. These are described by



where A is the neutral buffer gas (atom or molecule) present with density n_B . The quantities Γ_{nat} and Γ_Q are the corresponding rate constants. The excess energy ΔE appears as relative translational energy and also as change in rotational and vibrational degrees of freedom when A is a molecule. At a given buffer gas density n_B , we measure an effective lifetime τ_{meas} , given by

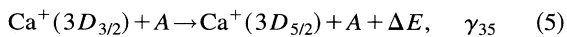
$$\frac{1}{\tau_{\text{meas}}} = n_B \Gamma_Q + \frac{1}{\tau_{\text{nat}}}. \quad (3)$$

The neutral gas must generally be considered as a mixture of the neutral atoms or molecules present, He, Ne, and N_2 (identified with an upper index i in the following). The rate constants differ for each species. Then

$$\frac{1}{\tau_{\text{meas}}} = \sum_i n_B^i \Gamma_Q^i + \frac{1}{\tau_{\text{nat}}}. \quad (4)$$

In order to determine the metastable lifetime in the absence of collisional deexcitation, we measured the effective lifetimes τ_{meas} for a wide range of different pressure values and compositions. The natural lifetime of the atomic level is then obtained by extrapolation to zero pressure. A multilinear fit allows the simultaneous determination of the unperturbed lifetime and the quenching rate for the neutral components.

The measurements of the collisional fine-structure mixing rates were obtained with a different method. Consider the case of the determination of the rate constant of the $5/2 \rightarrow 3/2$ mixing (j_{53}), where initially both fine-structure levels are empty. We populate the $D_{5/2}$ level by excitation of the $4S_{1/2} \rightarrow 3D_{5/2}$ transition. The neighboring $D_{3/2}$ state is filled exclusively by collisional population transfer from the $D_{5/2}$ level. A laser diode, tuned to the $3D_{3/2} \rightarrow 4P_{1/2}$ transition probes the population of the $3D_{3/2}$ level, which, as above, is monitored by the intensity of the fluorescence at 397 nm ($4P_{1/2} \rightarrow 4S_{1/2}$). The temporal evolution of the $D_{3/2}$ population is obtained by varying the delay t_{prob} between the end of the $D_{5/2}$ filling process and the beginning of $D_{3/2}$ -level probing. For modeling the time dependence of $N_{3/2}(t)$, the following reactions have to be considered in addition to those Eqs. (1) and (2):



and

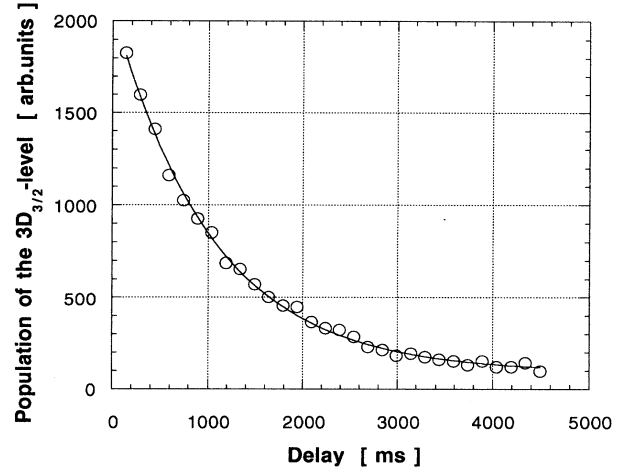
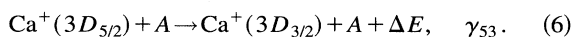


FIG. 4. Decrease of the $3D_{3/2}$ -level population at a helium pressure of 1×10^{-7} mbar.

Assuming that the quenching rate constant Γ_Q is the same for both fine-structure levels and taking $N_{3/2}(t=0)=0$ and $N_{5/2}(t=0)=N_0$ as initial conditions, the analytical expression for the temporal evolution of the fine-structure levels is given by

$$N_{3/2}(t) = N_0 \frac{\gamma_{53}}{\gamma_{53} + \gamma_{35}} [\exp(-\frac{1}{2}D_1 t) - \exp(-\frac{1}{2}D_2 t)], \quad (7)$$

$$N_{5/2}(t) = N_0 \frac{1}{\gamma_{53} + \gamma_{35}} [\gamma_{35} \exp(-\frac{1}{2}D_1 t) + \gamma_{53} \exp(-\frac{1}{2}D_2 t)], \quad (8)$$

with $D_1 = \Gamma_{\text{nat}} + n_B \Gamma_Q$ and $D_2 = \Gamma_{\text{nat}} + n_B(\Gamma_Q + 2\gamma_{35} + 2\gamma_{53})$.

The measured effective mixing time constants τ_{53}, τ_{35} are a function of pressure and are related to the rate constants by

$$\frac{1}{\tau_{35}} = \sum_i n_B^i \gamma_{35}^i \quad \text{or} \quad \frac{1}{\tau_{53}} = \sum_i n_B^i \gamma_{53}^i. \quad (9)$$

In practice, in order to keep the $D_{3/2}$ level empty during population of the $D_{5/2}$ level [$N_{3/2}(t=0)=0$], a laser diode at 866 nm is applied simultaneously before starting the experiment.

III. RESULTS AND DISCUSSION

A. Quenching rates and the natural lifetime measurements

Both $3D$ levels were investigated in the presence of helium, neon, and molecular nitrogen. A typical ion population decrease is given in Fig. 4, which illustrates the $D_{3/2}$ -level decay with helium at 1×10^{-7} mbar. The efficiency of the direct population method for the $D_{5/2}$ -lifetime measurement can be seen in Fig. 5. Indeed, the effective lifetimes that we observed using the indirect population method are dispersed and far from the straight-line fitted with the data obtained with the direct method. The natural lifetimes, measured with

3766

M. KNOOP, M. VEDEL, AND F. VEDEL

52

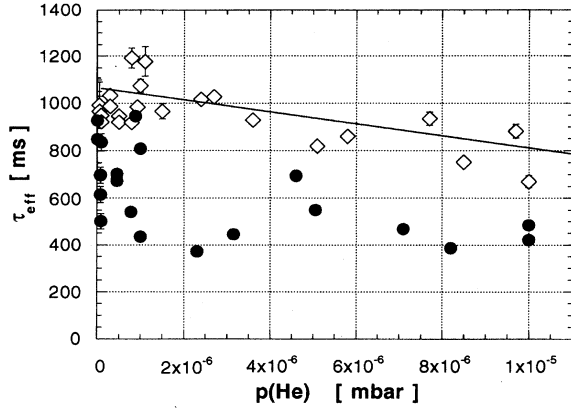


FIG. 5. Evidence of the influence of the initial conditions for the population of the $3D_{5/2}$ level. Measurements were made using indirect (\bullet) and direct (Δ) population method.

the direct population method, were extrapolated by a multi-linear fitting procedure with 80 points from a Stern-Vollmer plot as shown in Fig. 6. They were found to be $\tau(3D_{3/2}) = 1111 \pm 46$ ms and $\tau(3D_{5/2}) = 994 \pm 38$ ms. The uncertainty quoted is statistical only and at the 90% confidence level. As shown in Fig. 7, our values are in very good accord with $\tau(D_{3/2}) = 1113 \pm 45$ ms and $\tau(D_{5/2}) = 1054 \pm 61$ ms, which were measured recently at a residual pressure smaller than 7×10^{-10} mbar [11]. They can also be compared with the result obtained with a single laser-cooled ion [$\tau(D_{5/2}) = 1080 \pm 220$ ms] in Ref. [13], where the measurements were performed in the presence of hydrogen in the 10^{-10} – 10^{-9} mbar range. Apparently, all experimental values measured so far are slightly inferior to the theoretical results [$\tau(D_{3/2}) = 1160, 1271,$ and 1200 ms and $\tau(D_{5/2}) = 1140, 1236,$ and 1160 ms [6–8]].

The quenching rates for the buffer gases used are deduced from the data represented in Fig. 6 and are

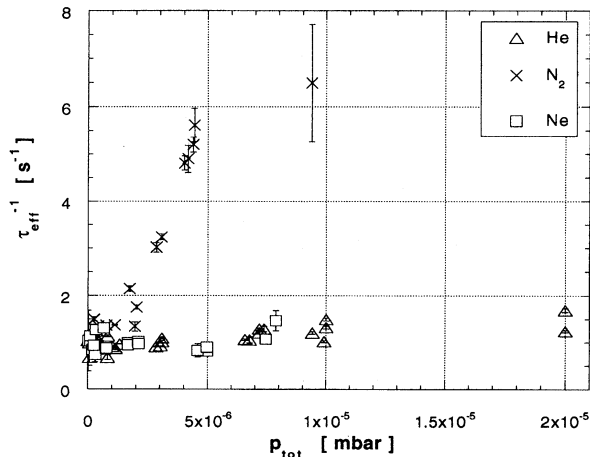


FIG. 6. Stern-Vollmer plot for quenching of the $3^2D_{3/2}$ level.

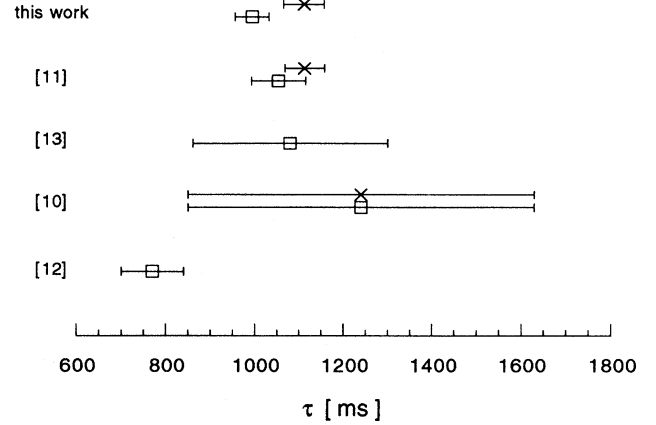


FIG. 7. Presentation of the experimentally determined metastable lifetimes (\square , $D_{5/2}$; \times , $D_{3/2}$).

$$\Gamma_Q(\text{He}) = (1.05 \pm 0.42) \times 10^{-12} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1},$$

$$\Gamma_Q(\text{Ne}) = (0.9 \pm 0.7) \times 10^{-12} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1},$$

$$\Gamma_Q(\text{N}_2) = (1.7 \pm 0.2) \times 10^{-10} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}.$$

The ion energy varies in our experiment from 0.3 to 1.3 eV. We assume that the quenching rate constants do not depend strongly on the energy of the collision, which varies with the pressure conditions because of the collisional cooling effect. The uncertainties in our data originate mostly in the error in the absolute pressure measurements (almost 30%). The contribution of the residual components is always less than 0.5%.

We can roughly estimate the corresponding cross sections from the approximation $\Gamma_Q = \langle \sigma v \rangle = \langle \sigma \rangle \langle v \rangle$, where $\langle v \rangle$ is the average velocity in the center of mass, given by $\langle v \rangle = (8k_B T / \pi \mu)^{1/2}$, μ is the reduced mass of the Ca^+ –buffer-gas system, and T is the temperature in the center-of-mass system. In fact, for the determination of T , the assumption is made that the temperature of the buffer gas (~ 300 K) is negligible compared to the ion temperature, which is usually defined for trapped ion clouds. This leads to the quenching cross sections σ_Q at 10 000 K presented in Table I.

The measured rate constants can be compared with the Langevin capture rate constant k_L given by

$$k_L = \frac{q}{2\epsilon_0} \left(\frac{\alpha}{\mu} \right)^{1/2}, \quad (10)$$

where q is the electric charge of the ion and α its polarizability [15]. The ratios between the rate constants of quenching and the corresponding k_L are very small and of the same order of magnitude for rare-gas– Ca^+ systems. This ratio is 100 times larger for Ca^+ – N_2 , which shows the major role played by the deexcitation to the ground state in the collision process, when a molecular gas is involved.

Comparable values for $\Gamma_Q(\text{He})$ and $\Gamma_Q(\text{N}_2)$ have been measured by Gudjons [$\Gamma_Q(\text{He}) = (8 \pm 1.85) \times 10^{-13} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$ and $\Gamma_Q(\text{N}_2) = (1.1 \pm 1.78) \times 10^{-10} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$] [16]. On the

TABLE I. Quenching rate constants and cross sections of $\text{Ca}^+(3D)$ due to collisions with different buffer gases.

Gas	$\Gamma_Q[\text{cm}^3 \text{s}^{-1}]$	$\sigma_Q[\text{\AA}^2]$ at 10^4 K	$k_L[\text{cm}^3 \text{s}^{-1}]$	$\frac{\Gamma_Q}{k_L}$
He	$(1.05 \pm 0.40) \times 10^{-12}$	0.020 ± 0.009	5.6×10^{-10}	0.0019
Ne	$(0.9 \pm 0.7) \times 10^{-12}$	0.034 ± 0.026	4×10^{-10}	0.0022
N_2	$(1.7 \pm 0.2) \times 10^{-10}$	7.10 ± 0.85	7.5×10^{-10}	0.23

other hand, the rate constants for collisions with N_2 do not seem to depend strongly on the ion species since for Ba^+-N_2 they were found to be $(4.3 \pm 0.3) \times 10^{-11} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$ [17] and $(2.2 \pm 0.3) \times 10^{-10} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$ [18] and for Yb^+-N_2 , $(1.78 \pm 0.19) \times 10^{-10} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$ [19]. To our knowledge, the quenching rate constant for the metastable $3D$ levels of Ca^+ during collisions with neon has never been measured before.

B. j -mixing rates

The mixing rate constants were measured for the case of helium and nitrogen. A typical curve of the temporal evolution of the population of the level investigated is shown in Fig. 8 ($D_{3/2}$ level at a helium pressure of 3×10^{-7} mbar). The j -mixing rates are determined by application of χ^2 minimization using Eq. (7). From the corresponding Stern-Vollmer plot (shown in Fig. 9), we deduce the mixing rates for He:

$$\gamma_{35}(\text{He}) = (2.24 \pm 0.1) \times 10^{-10} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1},$$

$$\gamma_{53}(\text{He}) = (1.20 \pm 0.7) \times 10^{-10} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}.$$

In the presence of molecular nitrogen, we find

$$\gamma_{35}(\text{N}_2) = (2.8 \pm 0.3) \times 10^{-9} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1},$$

$$\gamma_{53}(\text{N}_2) = (1.26 \pm 0.1) \times 10^{-9} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}.$$

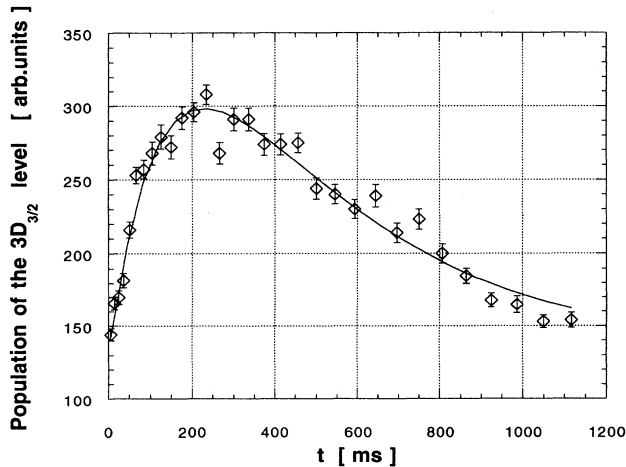


FIG. 8. Temporal evolution of the population of the $3D_{3/2}$ level during fine-structure mixing at $p(\text{He}) = 3 \times 10^{-7}$ mbar.

Because of the small energy difference between the fine-structure levels (7.4 meV), negligible in comparison to the translation energy, we can use the principle of detailed balancing to determine the relation between γ_{35} and γ_{53} :

$$\frac{\gamma_{35}}{\gamma_{53}} = \frac{3}{2} \exp\left(-\frac{\Delta E_{3/2-5/2}}{k_B T}\right). \quad (11)$$

This relation gives the estimation

$$\gamma_{35} \cong 1.5 \gamma_{53}, \quad (12)$$

which is almost that of the experimental results (within the given error limits)

$$\frac{\gamma_{35}(\text{He})}{\gamma_{53}(\text{He})} = 1.8 \pm 0.9, \quad \frac{\gamma_{35}(\text{N}_2)}{\gamma_{53}(\text{N}_2)} = 2.2 \pm 0.4.$$

Measurements at equilibrium allow the confirmation of the j -mixing rate constants values. At different pressure values we compare the fluorescence signals in the ultraviolet ($S_{1/2-P_{1/2}}$ and $S_{1/2-P_{3/2}}$) if the $D_{3/2}$ level is directly laser excited (then probed at the $D_{3/2}-P_{1/2}$ transition) while the other D level is exclusively populated by collisional mixing and probed at the $D_{5/2}-P_{3/2}$ transition (sensitized fluorescence technique [20,21]). This study was carried out using helium as a buffer gas.

At around 10^{-6} mbar, the difference of these fluorescence signals ($I_{3/L}-I_{5/2}$) is close to zero because the $3D$ levels are almost completely mixed. At lower pressures, mixing collisions become less important and the fluorescence signals of

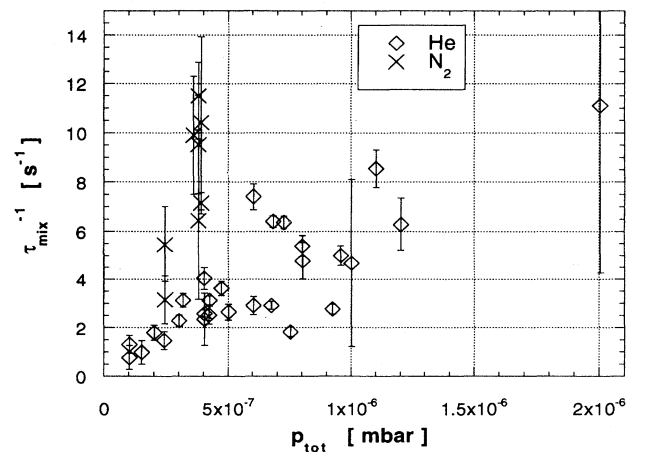


FIG. 9. Stern-Vollmer plot for $3D_{3/2} \rightarrow 3D_{5/2}$ mixing.

3768

M. KNOOP, M. VEDEL, AND F. VEDEL

52

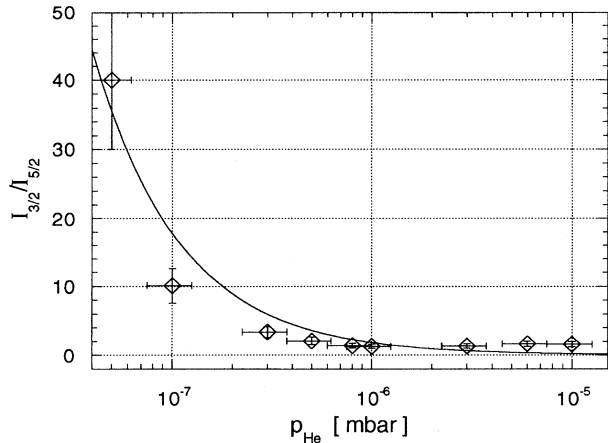


FIG. 10. Intensity ratio of the two signals resulting from the measurements of sensitized fluorescence versus buffer gas pressure.

the collisionally populated level vanish. For higher pressures, the small effective lifetimes due to quenching collisions prevent the system from attaining the equilibrium state [2].

Taking into account Eq. (12), the ratio of the fluorescence intensities $I_{3/2}/I_{5/2}$ is, at small optical densities, given by

$$\frac{I_{3/2}}{I_{5/2}} = \frac{\Gamma_{\text{nat}} + \Gamma_{Q^{n_B}}}{2\gamma_{35}n_B} + \text{const.} \quad (13)$$

From our measurements (Fig. 10) and Eq. (13) we obtain a rate constant for the mixing from $D_{3/2}$ to $D_{5/2}$:

$$\gamma_{35}(\text{He}) = (2.6 \pm 0.9) \times 10^{-10} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}.$$

In spite of the errors (the main uncertainty arises from the small number of points), this estimate agrees very well with the results presented above.

Our measurements exhibit a quantitative difference between the velocities of the quenching and the mixing processes. Quenching of the metastable states takes place much slower than mixing of fine-structure levels. In fact, nonadiabatic transitions have a small probability if the splitting between the adiabatic states is important. Due to the comparatively weak spin-orbit coupling, intermultiplet transitions are therefore favored during collision processes. As for quenching, a molecular buffer gas gives rise to mixing rate constants that are much higher than for the rare-gas case. In fact, during collisions between an atom and a diatomic molecule, the presence of a greater number of possible configurations increases the probability for nonadiabatic crossing between terms of the same symmetry. We can also estimate the strength of the interaction by comparing our data with the Langevin rate constant. Here the ratio k_L/γ_{ij} is equal to 0.1 for helium and is of the order of 10 for N_2 , which indicates the long-range interaction efficiency in the $\text{Ca}^+ \text{-} N_2$ system.

The measurements we made with Ca^+ and helium as a buffer gas can be compared with other j -mixing rate constants (Fig. 11) that have been obtained for collisions between helium and different alkaline atoms [21–26]. We recall that the energy-level structures of alkaline atoms and of alkaline-earth ions are very similar; therefore, in a first ap-

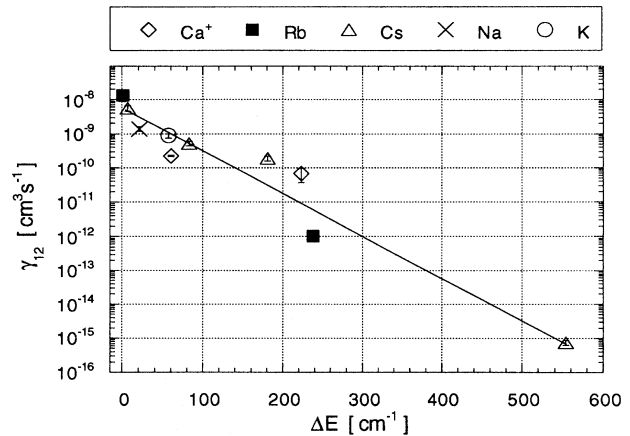


FIG. 11. j -mixing rate constants for different alkaline atoms and alkaline-earth ions in the presence of helium, as a function of the energy difference of the two levels involved, from Refs. [21–26]; the considered atomic species are given in the reference list.

proximation these species can be compared quite well. We observe that the j -mixing rates can be roughly described by the semiclassical approach of the theory of Landau-Zener [27,28], which establishes that the transition probability between two atomic levels during a collision is inversely proportional to an exponential function of the energy of the transition. We can also show that the strength of the transition has no apparent influence on the mixing rate. Here optical selection rules seem not to be valid for collisional de-excitation processes. Compared to the measurements that have been made with alkaline atoms ($p_{\text{buffer gas}} = 10^{-1} \text{--} 10^2$ mbar), our experiments have been performed in a considerably lower pressure regime. The time constants for the mixing of two metastable fine-structure levels are then quite slow, which allows the resolution of the j -mixing dynamics. This method gives higher precision results than those attainable by the method of sensitized fluorescence.

IV. CONCLUSION

In this paper we have presented measurements concerning the dynamics of the metastable levels of Ca^+ in the presence of buffer-gas collisions. We have determined values for the natural lifetimes, which are in very good agreement (magnitude and precision) with other experiments. They confirm the more recent data of the natural lifetimes of the $3D$ levels of Ca II . We have also measured rate constants for quenching and mixing in the presence of helium, neon, and nitrogen. Quenching and j mixing are common phenomena, particularly in astrophysics, and there exists only partial experimental data, which are rarely consolidated by different measurements. The data given in this work complete previous experiments by increasing the precision or by giving alternative collision partners such as, for example, $\Gamma(\text{Ca}^+ \text{-Ne})$ for quenching and $\gamma(\text{Ca}^+ \text{-He})$ and $\gamma(\text{Ca}^+ \text{-} N_2)$ for mixing. Mixing and quenching rate constants for different ion–neutral-atom pairs can be estimated by application of the Landau-Zener model. However, a realistic application of this model

requires more detailed descriptions that take into account the relative importance of the molecular and the spin-orbit interactions. Knowledge of the adiabatic potentials (the relative positions of the involved states, the repulsivity, and the strength of attraction) is essential. Due to the presence of the additional Coulomb interaction and the relative complexity of the D state leading to Δ molecular states, approximate potentials are not precise enough. Multireference

configuration-interaction methods are now planned for the determination of Ca^+ -rare-gas intermolecular potentials.

ACKNOWLEDGMENTS

This work was supported by Direction Générale des Recherches et des Etudes Techniques. M.K. is grateful to the EC (Human Capital and Mobility Program) for financial support.

-
- [1] G. Werth, in *Applied Laser Spectroscopy*, Proceedings of the Summer School, San Miniato, 1989, edited by W. Demtröder, and M. Inguscio (Springer, Berlin, 1989).
- [2] M. Knoop, M. Vedel, and F. Vedel, *J. Phys. (France) II* **4**, 1639 (1994).
- [3] D. J. Wineland, J. C. Bergquist, J. J. Bollinger, W. M. Itano, F. L. Moore, J. M. Gilligan, M. G. Raizen, D. J. Heinzen, C. S. Weimer, and C. H. Manney, in *Laser Manipulation of Atoms and Ions*, Proceedings of the International School of Physics "Enrico Fermi," Course CXVIII, Varenna, 1992, edited by E. Arimondo, W. D. Phillips, and F. Strumia (North-Holland, Amsterdam, 1992).
- [4] L. M. Hobbs, A. M. Lagrange-Henri, R. Ferlet, A. Vidal-Majar, and D. E. Welty, *Astrophys. J* **334**, L41 (1988).
- [5] C. Zeippen, *Astron. Astrophys.* **229**, 248 (1990).
- [6] C. Guet and W. R. Johnson, *Phys. Rev. A* **44**, 1531 (1991).
- [7] N. Vaeck, M. Godefroid, and C. Froese Fischer, *Phys. Rev. A* **46**, 3704 (1992).
- [8] T. Brage, C. Froese Fischer, N. Vaeck, M. Godefroid, and A. Hibbert, *Phys. Scr.* **48**, 533 (1993).
- [9] A. Gallagher, *Phys. Rev.* **157**, 24 (1967).
- [10] F. Arbes, T. Gudjons, F. Kurth, G. Werth, F. Marin, and M. Inguscio, *Z. Phys. D* **25**, 295 (1993).
- [11] F. Arbes, M. Benzing, T. Gudjons, F. Kurth, and G. Werth, *Z. Phys. D* **29**, 159 (1994).
- [12] S. Urabe, M. Watanabe, H. Imajo, and K. Hayasaka, *Opt. Lett.* **17**, 1140 (1992).
- [13] S. Urabe, K. Hayasaka, M. Watanabe, H. Imajo, R. Ohmukai, and R. Hayashi, *Appl. Phys. B* **57**, 367 (1993).
- [14] D. A. Miller, L. You, J. Cooper, and A. Gallagher, *Phys. Rev. A* **46**, 1303 (1992).
- [15] E. W. McDaniel, *Collision Phenomena in Ionized Gases* (Wiley, New York, 1964).
- [16] T. Gudjons, Diplomarbeit, University of Mainz, 1993 (unpublished).
- [17] A. Madej and D. J. Sankey, *Phys. Rev. A* **41**, 2621 (1990).
- [18] A. Hermanni and G. Werth, *Z. Phys. D* **11**, 301 (1989).
- [19] C. Gerz, J. Roths, F. Vedel, and G. Werth, *Z. Phys. D* **8**, 235 (1988).
- [20] A. C. G. Mitchell and M. W. Zemansky, *Resonance Radiation and Excited Atoms* (Cambridge University Press, Cambridge, 1961).
- [21] M. Pimbert, *J. Phys. (Paris)* **33**, 331 (1972); j -mixing rate constants for $\text{Cs}(8P)\text{-He}$.
- [22] J. Brust, M. Movre, and K. Niemax, *Z. Phys. D* **27**, 243 (1993); j -mixing rate constants for $\text{Ca}^+(4P)\text{-He}$.
- [23] T. R. Mallory, W. Kedzierski, J. B. Atkinson, and L. Krause, *Phys. Rev. A* **38**, 5917 (1988); j -mixing rate constants for $\text{Rb}(9D)\text{-He}$.
- [24] M. Lukaszewski and I. Jackowska, *J. Phys. B* **21**, L659 (1988); j -mixing rate constants for $\text{Cs}(9D)\text{-He}$.
- [25] L. Krause, *Appl. Opt.* **5**, 1375 (1966); j -mixing rate constants for $\text{Na}(3P)\text{-He}$, $\text{K}(4P)\text{-He}$, $\text{Rb}(5P)\text{-He}$, and $\text{Cs}(6P)\text{-He}$.
- [26] J. Cuveillier, P. R. Fournier, F. Gounand, and J. Berlande, *C. R. Acad. Sci. Paris B* **276**, 855 (1973); j -mixing rate constants for $\text{Cs}(7P)\text{-He}$.
- [27] N. F. Mott and H. S. W. Massey, *The Theory of Atomic Collisions* (Clarendon, Oxford, 1965).
- [28] E. E. Nikitin, *Theory of Elementary Atomic and Molecular Processes in Gases* (Clarendon, Oxford, 1974).

Collisional quenching and j -mixing rate constants for the $3D$ levels of Ca^+

Martina Knoop, Michel Vedel, and Fernande Vedel*

Physique des Interactions Ioniques et Moléculaires, UMR 6633 CNRS-UAMI, Centre de St. Jérôme, Case C21, F-13397, Marseille Cedex 20, France

(Received 22 October 1997; revised manuscript received 12 December 1997)

Collisional relaxation and fine-structure mixing rate constants have been measured for the metastable D doublet ($3D_{3/2}$, $3D_{5/2}$) of Ca^+ ions in the presence of different neutral gases completing a previous work. Experimental results are given for He, Ne, Ar, H_2 , N_2 , and CH_4 . These data have been obtained with a cloud of approximately 10^5 Ca^+ ions stored in a Paul trap at kinetic energies of around 1 eV. The investigated levels were populated by direct excitation of the corresponding $4S$ - $3D$ transitions. The involved time constants were determined from the temporal evolution of the fluorescence of one of the resonance transitions, following the optical pumping of the P level from the D component. Comparison of our data with other similar experimental and theoretical work is finally presented. [S1050-2947(98)03807-4]

PACS number(s): 32.80.Pj, 32.50.+d, 07.75.+h

I. INTRODUCTION

The technique of ion storage is unique to prepare and observe ions for long times under very well-controlled pressure conditions and without interactions with the walls [1]. These properties allow one to imagine frequency standards, the performances of which are comparable to or better by some orders of magnitude than the existing standards [2]. Demonstration of this fact has already been made in the microwave region [3], and various propositions exist in the optical domain. Additionally, ion storage offers the possibility to observe the temporal evolution of ion species (prepared eventually in selected internal states) under various effects. This property can be used to study the influence of neutral gases on the lifetime of atomic levels, especially metastable states. Thus collisional reaction rates are accessible even for very long-lived levels. Such types of data are indeed required to evaluate the influence of the unavoidable collisions on the limits of accuracy for frequency standards based on stored ions. Actually, the quantum jump statistics involved in the long term stabilization is modified by the collisions still occurring at ultrahigh-vacuum conditions ($p < 10^{-9}$ – 10^{-10} mbar). On the other hand, quantitative values of pressure line broadening are needed for the interpretation of astrophysics observations and to model the dynamics of interstellar clouds.

The Ca^+ ion is a very attractive candidate for an optical frequency standard at 410 THz. The weak electric quadrupole transition ($4S_{1/2}$ – $3D_{5/2}$) at 729 nm (Fig. 1) leads to a high quality factor of 2×10^{15} . The existence of an odd nuclear spin ($I = \frac{7}{2}$ for $^{43}\text{Ca}^+$) gives rise to transitions independent of weak magnetic field ($m_F = 0 \rightarrow m_F' = 0$), minimizing residual effects. One of the pertinent advantages of this ion is the fact that the transitions needed for the laser cooling and the probing of the clock transition can be generated by diode lasers, either directly or by frequency doubling. Due to their small natural linewidths, the Ca^+ forbidden lines are also used as calibration lines in astrophysics.

The metastable $3D$ doublet has been studied before, theoretically as well as experimentally [4]. The related lifetimes have been measured either with a large cloud at quasithermal energies [5–7], with a small laser-cooled ion cloud [8], or with the technique of quantum jumps [9,10]. We have carried out a systematic investigation of the influence of collisions on the $3D$ levels of Ca^+ . In this paper, we present results which complete our previous measurements. Quenching and j -mixing rates will be given for the noble gases helium, neon, argon, and for the molecular gases hydrogen, nitrogen, and methane. All the data were obtained by direct population of the investigated levels, a method which avoids parasitic population in the neighboring states [7].

II. EXPERIMENT

The experiments reported here were carried out in a device previously described [7] (Fig. 2). A cloud of approximately 10^5 Ca^+ ions is stored in a medium-sized traditional Paul trap ($r_0 = 7.2$ mm). Its endcaps are made from molybdenum mesh with high transmission (85%) in order to be able to observe a maximum of fluorescence emitted by the stored ion cloud. The trap is working under UHV conditions (residual pressure below 7×10^{-10} mbar) which are maintained by a 100l ion pump, a turbomolecular pump being used for the initial evacuation. Trapping parameters are V_{ac}

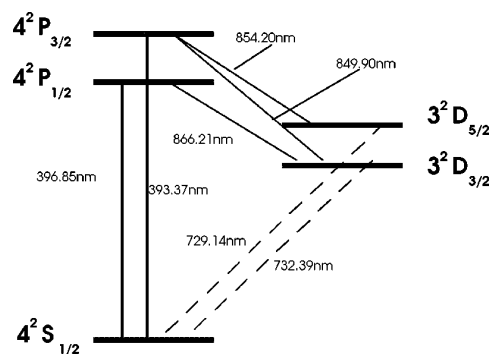


FIG. 1. First energy levels of $^{40}\text{Ca}^+$.

*Electronic address: FERN@FRMRS12.U-3MRS.FR

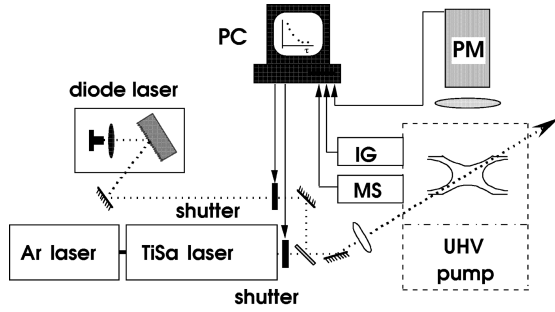


FIG. 2. Experimental setup. IG: ion gauge; PM: photomultiplier; MS: mass spectrometer λ ; TiSa: titane-saphire..

$= 530V_{\text{eff}}$, $\Omega/2\pi = 2.18$ MHz, $V_{\text{dc}} = 0V$, corresponding to $q_z = 0.74$, and $a_z = 0$. These values have been carefully chosen to optimize the size and the temperature of the ion cloud and to avoid ion loss or ion heating due to nonlinear resonances [11]. The applied voltage creates a total pseudopotential well of approximately 100 eV ($D_r = 34.5$ eV, $D_z = 66.5$ eV). This relatively deep potential assures an efficient confinement of the ion cloud even in the presence of a heavy buffer gas like argon.

Neutral gases are introduced through a leak valve. This permits impurity-free introduction of the buffer gas in a range of 10^{-9} – 10^{-5} mbar. The gas composition is measured by a quadrupole mass spectrometer (Balzers QMG 064) with a resolution better than 1×10^{-9} mbar. The total pressure is monitored by a Bayard-Alpert ion gauge (Granville-Phillips 330 IG). Both devices have to be turned off during measurement because of the fluorescence of their cathodes, and due to their strong electron emission which causes residual ion creation. The pressure values can be read and stored automatically with the personal computer unit controlling the experiment. The upper limit of the partial pressure range is determined by the performance of the ion pump ($p \leq 10^{-5}$ mbar). The lower pressure is limited by the shortness of the ion confinement duration and by the delicate stability of the gas composition during the experiment. The smallest partial pressures used are around 4×10^{-9} mbar.

The 729- and 732-nm radiations, needed to excite the $4S_{1/2}$ – $3D_{5/2}$ and $4S_{1/2}$ – $3D_{3/2}$ transitions, are given by the fundamental wave of a cw Ti-Sa laser (Coherent 899-21), pumped with a 10-W argon-ion laser with a maximum power of 1 W. The 854- and 866-nm transitions are generated by single-mode diode lasers (Institut Poljus, SDL) placed into external cavities which allows fine tuning of the wavelength. The output powers of the diode lasers are lower than 1 mW, that is largely sufficient for the optical pumping of the ions out of the metastable state. All the laser beams cross the trap diagonally. They are precisely overlapped and focused into the center of the ion cloud.

To access the quenching rate, we operate as following (Fig. 3). After introducing one neutral gas species at a given pressure, one of the electric quadrupole transitions ($4S_{1/2}$ – $3D_{3/2}$, $4S_{1/2}$ – $3D_{5/2}$) is excited during 1000 ms, a duration long enough to transfer the complete ionic population to the metastable state. Then, after a variable delay, the populated level $3D_{3/2}$ ($3D_{5/2}$) is probed with the corresponding laser $3D_{3/2}$ – $4P_{1/2}$ ($3D_{5/2}$ – $4P_{3/2}$). Saturation of the

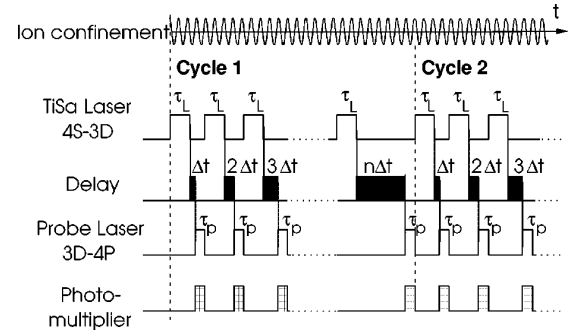


FIG. 3. Time sequence of the laser application during the quenching experiment.

$3D$ - $4P$ transition allows one to consider that all the ions are pumped to the P state. The intensity of the fluorescence on the resonance line ($4P$ - $4S$) is then directly proportional to the ion number in the $3D$ level. The fluorescence signal is measured by a photomultiplier running in the photon-counting mode. Varying the delay will visualize the exponential decay of the considered $3D$ level for a given set of partial pressures. For the mixing rate measurements, a similar experimental protocol is applied, with the difference that probing of the $3D_{3/2}$ level corresponds to initial populating of the $3D_{5/2}$ state, and vice versa. Additionally, the $3D$ - $4P$ probe laser is switched on during the population time τ_L , to assure that the investigated level is initially unoccupied. For a good signal-to-noise ratio of the decay curve, measurement cycles are repeated 20–40 times in both cases (Fig. 4). Pressure measurements are carried out before and after each accumulation cycle. The experiment is interrupted every ten accumulation cycles to proceed to an automatic partial pressure measurement.

Varying the pressure in the trap will also change the kinetic energy of the ion cloud. As the ratio of elastic to inelastic collisions is different for each gas species, their respective influences on the ion temperature are not identical. The temperature of the ion cloud is checked from the reso-

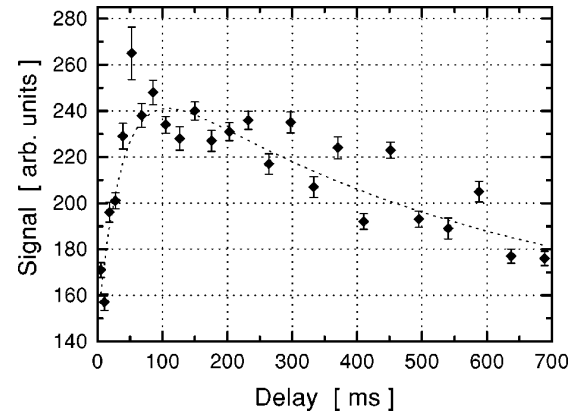


FIG. 4. Temporal evolution of the fine structure mixing process from the $3D_{5/2}$ to $3D_{3/2}$ level at a neon partial pressure of $p_{\text{Ne}} = 9 \times 10^{-7}$ mbar. Here the $3D_{3/2}$ level is initially empty; it fills rapidly because of mixing with the $3D_{5/2}$ state. For longer delay times, deexcitation to the ground state due to the finite lifetime and to quenching collisions becomes predominant.

nance Doppler profile recorded for every partial pressure set. Overall minima (0.6 eV) and maxima (1.6 eV) values are close enough together that here we may consider the rate constant to be roughly independent of temperature. Before each run we also look at the ion loss, which generally has a time constant of a couple of hours, but can be quite important for heavy gases. Care is taken to carry out measurements only at pressures for which the ion-loss time constant is greater than 2 min. Simulation of the quenching (or j -mixing) decay including this ion loss then shows that the maximum error due to the superimposition of two time constants is 20%. In our experiment, this phenomenon is without importance for all gases but argon. Argon has the same atomic mass as calcium, and it tends to kick the ions out of the trap. Accumulation cycles for this gas were reduced to ~ 10 , leading to a rather high statistical error.

III. RESULTS AND DISCUSSION

Quenching measurements were carried out 134 times for the $3D_{3/2}$ level, and 149 times for $3D_{5/2}$. As the energy difference between the metastable states is negligible (7.4 meV) compared to the energy difference between the metastable doublet and the ground state (1.7 eV), we may suppose that the quenching rates Γ_Q for both states of the doublet are identical. Every single measurement yields a measured time constant τ_Q , the value of which depends on a set of partial pressures:

$$\frac{1}{\tau_Q} = \frac{1}{\tau_{\text{nat}}} + \sum_i n_B^i \Gamma_Q^i, \quad (1)$$

where i stands for each gas present in the UHV vessel: H_2 , He, CH_4 , Ne, N_2 , O_2 , Ar, and CO_2 . Water vapor pressure was also monitored during each run; these partial pressures were, however, negligible. Even though H_2 , O_2 , and CO_2 were not actively introduced, their pressure contribution could be measured, as small quantities were either desorbed from the pump or from the vessel or created by dissociation. The latter is true especially for the introduction of methane, which gave rise to a nonnegligible pressure of hydrogen. Nevertheless, overall O_2 and CO_2 partial pressures were not sufficient to allow a correct quantitative evaluation of their influence on the quenching.

In Fig. 5, the measured inverse lifetimes have been represented as a function of the total buffer gas density. The points have been labeled according to the gas which has been introduced into the UHV vessel. This gas then has the highest partial pressure. Nevertheless, due to the above-mentioned dissociation and desorption processes, other gases can reach rather important partial pressures. The ratio between the different partial pressures depends on the absolute value of the buffer gas density, and cannot be regarded as being constant. As a consequence, the alignment of points in Fig. 5 does not necessarily follow a simple straight-line fit.

To take into account the varying composition of the total buffer gas and the respective influences of the different components, the determined quenching and j -mixing time constants were fitted by a multilinear fit using a least-squares method [12]. Details of the fitting method as well as the analytical expression of the ion dynamics necessary for the

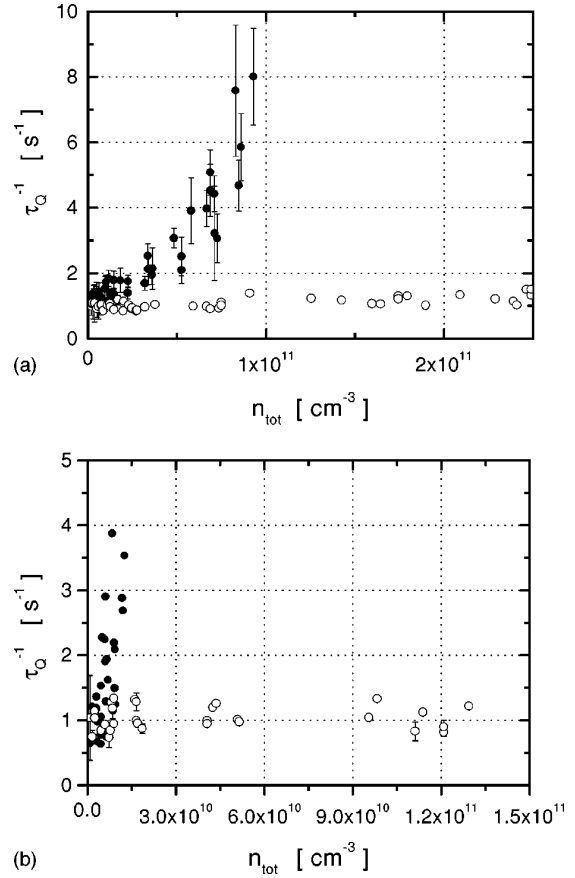


FIG. 5. Stern-Volmer plot for the quenching values. The inverse lifetimes are represented as a function of the total pressure (sum of the partial pressures). This representation does not exhibit the different influences of the various gas compositions. All ordinate error bars are purely statistical. For reasons of readability, the error bars for the Ar values have not been plotted in this graph. The average error bar values are given in parentheses. (a) \bullet : He (6%); \circ : CH_4 (19%); (b) \bullet : Ne (7%); \circ : Ar (75%).

determination of the respective quenching and j -mixing time constants were given in Ref. [7]. From the experimental data, it was possible to extract the collisional quenching, and j -mixing, rate values for H_2 , He, CH_4 , Ne, N_2 , and Ar. The error of each absolute pressure measurement was estimated to be of the order of 30%. Various gases are measured with different precisions, and each set of partial pressures is composed in a different way. Nevertheless, the mass spectrometer is assumed to be linear in the considered pressure range. The large number of data sets can improve the precision on the final results.

Table I, where the quenching rates for He, Ne, and N_2 presented in Ref. [7] are also indicated, clearly shows the strong quenching influence of molecular buffer gases compared to helium and neon. Among the atomic buffer gases, argon seems to play a different role, which is most probably due to its higher mass. The molecular buffer gases show growing quenching rates as a function of their atomic mass, since the proportion of inelastic collisions becomes more important. The evolution of the quenching rate coefficients as a function of polarizability α shows increasing values indepen-

TABLE I. Quenching rate constants for the $3D$ levels of Ca^+ .

Gas	m (amu)	α (10^{-24} cm^3)	Γ_Q ($10^{-12} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$)	k_L ($10^{-10} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$)	k_L/Γ_Q
H_2	2	0.804	37 ± 14	15.2	41 ± 15.5
He	4	0.205	1.05 ± 0.40	5.56	529 ± 201
CH_4	16	2.593	54_{-17}^{+91}	11.15	$21_{-6.5}^{+35}$
Ne	20	0.396	0.9 ± 0.7	4.03	448 ± 348
N_2	28	1.74	170 ± 20	7.61	4.5 ± 0.5
Ar	40	1.64	29.5 ± 17.0	6.70	23 ± 13

dent of the type of the collision partner.

There are few works about quenching rate constants of ions with neutral gases. Measurements involving metastable levels of trapped ions are given in Table II. In this table, values for Pb^+ , N^+ , and Ar^{2+} have been included for comparison, as they have been measured using the same buffer gases and working at similar collision energies, even though their electronic level scheme is quite different from those of the alkaline-earth ions Ca^+ , Ba^+ , and Yb^+ . For a more complete review of quenching experiments, in particular for different collision energies, see Ref. [20].

With the exception of the work of Madej and Sankey [14], which has been made by observing the quantum jump statistics of a single, laser-cooled Ba^+ ion, the presented experiments have been carried out on hot ion clouds at temperatures of several thousand K. All measurements confirm the greater efficiency of molecular gases for inelastic quenching collisions. This fact is due to the existence of a large number of rotational and vibrational degrees of freedom in the quenching gas. As a consequence, internal energy can easily be transferred in a wide range. The experiment on a single Ba^+ -ion results in values superior to all other measurements with alkaline-earth ions. This is most probably due to the experimental conditions, since higher quenching rates are expected at lower temperatures [21,22].

Measurements of the fine-structure mixing have been made for the $3D_{3/2}$ to $3D_{5/2}$ (149 values) as well as for the inverse process ($3D_{5/2}$ to $3D_{3/2}$, 166 values). Curves obtained as in Fig. 4 allow one to determine the time-constants for the mixing process at a given pressure. The fine-structure mixing rates γ_{53} (for the j -mixing of $3D_{5/2}$ toward $3D_{3/2}$) and γ_{35} (for the j -mixing of $3D_{3/2}$ toward $3D_{5/2}$) are defined by

$$\frac{1}{\tau_{\text{meas}}} = \sum_i n_B^i \gamma_{jj}^i. \quad (2)$$

The values as given by the multilinear fit are listed in Table III.

j -mixing measurements have been carried out in a smaller pressure range (approximately 1.5 decades per gas) as the signal is difficult to detect. In fact, if the pressure is too high, the j -mixing process is very fast, and the temporal evolution of the ion population can no longer be resolved. For very low pressures, mixing becomes weaker, and the fluorescence signal becomes very small. Since all the gases have different cross sections, this pressure range varies for each gas. The considered intervals lie between 1×10^{-8} and 5×10^{-6} mbar.

Here again, a rate constant for hydrogen could be determined. Unfortunately, it was only possible to extract the γ_{53} for H_2 with a reasonable precision. The ratio of γ_{35} to γ_{53} can be evaluated from the principle of detailed balancing, and should be equal to $\frac{3}{5}$, for our physical conditions. Given the large error bars due to the pressure measurements, the obtained ratios are in fairly good agreement with the theory.

Other measurements of fine-structure mixing of metastable states of Ca^+ [9,23,24] exist. All these experiments concern mixing from the $3D_{3/2}$ to the $3D_{5/2}$ level under the influence of hydrogen. The values are given to be 5×10^{-10} , 7×10^{-10} , and $(1.97 \pm 0.16) \times 10^{-9} \text{ cm}^3/\text{s}$, respectively. Although they have been obtained for different collision energies, their values are nevertheless quite close to our experimental results.

One can compare the measured values to the classical Langevin reaction rate constants k_L . From Fig. 6, it is evi-

TABLE II. Quenching rate constants for the metastable states of different stored ions. ΔE stands for the energy difference which separates the studied level from the ground state. All measured rate constant values are given in $10^{-12} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$.

Ion	State	ΔE	H_2	He	CH_4	Ne	N_2	Ar	Ref.
Ba^+	$5D_{3/2,5/2}$	0.7 eV	37 ± 3	0.3 ± 0.02		0.51 ± 0.04	44 ± 3		[13]
Ba^+	$5D_{5/2}$	0.7 eV	350 ± 50	10 ± 3	600 ± 80		230 ± 30	7 ± 5	[14]
Ca^+	$3D_{3/2,5/2}$	1.7 eV	37 ± 14	1.05 ± 0.40	54_{-17}^{+91}	0.9 ± 0.7	170 ± 20	29.5 ± 17.0	this work
Yb^+	$5D_{3/2}$	2.85 eV	10.2 ± 1				178 ± 19		[15]
Yb^+	$5D_{3/2}$	2.85 eV					155 ± 41		[16]
Pb^+	$6P_{3/2}$	1.75 eV	$\leq 25 \pm 12.5$	$\leq 1.2 \pm 0.6$			$\leq 8.2 \pm 4.1$		[17]
Ar^{2+}	3^1S_0	3.95 eV						550 ± 80	[18]
N^+	2^5S_2	5.8 eV					2500_{-1250}^{+2500}		[19]

TABLE III. Fine-structure mixing rates for the metastable $3D$ levels of Ca^+ .

Gas	γ_{35} ($10^{-10} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$)	γ_{53} ($10^{-10} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$)	γ_{35}/γ_{53}
H_2		3 ± 2.2	
He	2.24 ± 0.10	1.2 ± 0.5	1.9 ± 0.9
CH_4	34 ± 14	41 ± 12	0.85 ± 0.6
Ne	5.5 ± 2.2	1.3 ± 0.6	4.2 ± 3.7
N_2	28 ± 3	12.6 ± 1.0	2.2 ± 0.45
Ar	7.7 ± 3.4	2.7 ± 1.1	2.85 ± 2.4

dent that quenching and j -mixing rates present a similar behavior as a function of k_L . Species with a lower Langevin rate constant show small quenching and j -mixing values. The ratio of measured reaction rate constants to k_L passes by a maximum around $k_L \approx 1 \times 10^{-9} \text{ cm}^3/\text{s}$ before it slightly falls off towards higher Langevin rates. j -mixing rates are always found to be significantly higher than quenching rates, in some cases up to two orders of magnitude [Fig. 6(a)]. This can be roughly explained by the Landau-Zener model taking into account the energy of the studied transition [7]. For comparison, we introduced the values of another ion trap experiment [14] into this graph [Fig. 6(b)]. Even though the data are quite different due to a much lower temperature and a different collision partner (Ba^+ , $m = 138 \text{ amu}$), the shape of the plotted curve fits well our results.

There have been two theoretical approaches to the fine-structure mixing rate of Ca^+ with helium. Both are fully quantal close-coupling calculations. In Ref. [25], the variation of γ_{53} with temperature was determined to be $\gamma_{53} = 0.456(T/1000 \text{ K})^{0.23} \times 10^{-9} \text{ cm}^3/\text{s}$ with an uncertainty of 5%. At a temperature of 10 000 K, this is equivalent to $\gamma_{53} = (7.7 \pm 0.4) \times 10^{-10} \text{ cm}^3/\text{s}$. In a more recent paper [22], the j -mixing process was studied and the relative collisional cross sections were determined for kinetic energies up to 2.5 eV. The rate constants at 10 000 K are found to be γ_{35}

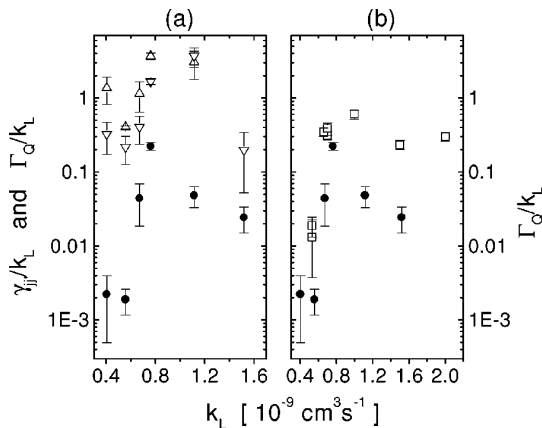


FIG. 6. (a) Ratios of the quenching (\bullet) and j -mixing (\triangle) rates to the Langevin reaction rates k_L , as a function of k_L for various collision partners. (b) Ratios of the quenching rates to the Langevin reaction rates k_L , as a function of k_L , from this work (\bullet) and from Ref. [14] (\square).

$= 12.33 \times 10^{-10} \text{ cm}^3/\text{s}$ and $\gamma_{53} = 8.29 \times 10^{-10} \text{ cm}^3/\text{s}$. Both calculations are in quite good agreement, even though the values put forward are more than a factor of 5 higher than our experimental results. A comparable high ratio between calculated and measured data has been found for the mixing of the Ca^+ $4P$ states [26]. At temperatures below 5000 K, theoretical values were calculated to be 3–5 times higher than experimental values.

These disagreements between calculations and experiments reflect the difficulties in the theoretical approach of the collisional relaxation process. The dominant mechanism for the mixing of the fine-structure levels appears to be the breakdown of spin-orbit and, at larger distances, Coriolis coupling due to the electrostatic and magnetic interactions [27,26]. Insight into the mechanism of the quenching process, where the separation of the involved energy levels is superior to 1 eV, can only be gained by careful examination of the interaction potentials of the pseudomolecule which is formed by the colliding partners during the collision process. Nonadiabatic coupling mechanisms determine the importance of the deexcitation process due to inelastic collisions. In general, atomic selection rules cannot be applied systematically in the evaluation of the strength of interaction [28,7]; they are not valid in the case of collisions with molecular gases [27].

IV. CONCLUSION

We have presented a systematic experimental investigation of the influence of different neutral buffer gas species on the metastable $3D$ levels of Ca^+ . Quenching and fine-structure mixing rate constants for three atomic and three molecular buffer gases have been measured. Comparison with other experiments shows a good general agreement. The values obtained by close-coupling calculations are significantly higher than the measured rate constants. This is not only true for the Ca^+ $3D$ levels but has also been found for the mixing of the $4P$ levels [26] as well as for the pressure broadening of the $4P$ - $3D$ triplet [25].

Very few experimental works exist for this type of data, in spite of a strong request for astrophysical as well as metrological applications. More experimental results would be helpful for a better understanding of the collisional processes and for the further improvement of the theoretical models. Further data are still necessary at lower energies in order to be able to totally control the collisional influence of residual gases on a single, laser-cooled ion. We plan now to measure the collisional processes at low temperatures with a single ion in a miniature trap by observation of the quantum jumps statistics. As the kinetic energy of the center-of-mass changes only by a factor of 3 for an ion with a temperature around 100 mK, the anticipated values are supposed to lie slightly higher than the values we measured throughout this work.

ACKNOWLEDGMENTS

Our experiment was supported by the Bureau National de Métrologie, Direction des Recherches et Études Techniques, and Conseil Général des Bouches du Rhône.

- [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, Singapore, 1996), and references therein.
- [3] R. L. Tjoelker, J. D. Prestage, and L. Maleki, in *Proceedings of the Fifth Symposium on Frequency Standards and Metrology* (Ref. [2]), p. 33–38.
- [4] E. Biemont and C. J. Zeippen, *Comments At. Mol. Phys.* **33**, 29 (1996).
- [5] F. Arbes, T. Gudjons, F. Kurth, G. Werth, F. Marin, and M. Inguscio, *Z. Phys. D* **25**, 295 (1993).
- [6] F. Arbes, M. Benzing, T. Gudjons, F. Kurth, and G. Werth, *Z. Phys. D* **29**, 159 (1994).
- [7] M. Knoop, M. Vedel, and F. Vedel, *Phys. Rev. A* **52**, 3763 (1995). Note that the D_i variables in Eqs. (7) and (8) should read $D_1 = 2[\Gamma_{\text{nat}} + n_B \Gamma_Q]$ and $D_2 = 2[\Gamma_{\text{nat}} + n_B(\Gamma_Q + \gamma_{35} + \gamma_{53})]$. This correction does not modify the given results.
- [8] T. Gudjons, B. Hilbert, P. Seibert, and G. Werth, *Europhys. Lett.* **33**, 595 (1996).
- [9] S. Urabe, K. Hayasaka, M. Watanabe, H. Imajo, and R. Ohmukai, *Jpn. J. Appl. Phys.* **33**, 1590 (1994).
- [10] G. Ritter and U. Eichmann, *J. Phys. B* **30**, L141 (1997).
- [11] R. Alheit, S. Kleineidam, F. Vedel, M. Vedel, and G. Werth, *Int. J. Mass Spectrom. Ion Processes* **154**, 155 (1996).
- [12] MINUIT, CERN Program Library Entry D506, CERN, Genève 1992.
- [13] A. Hermanni and G. Werth, *Z. Phys. D* **11**, 301 (1989).
- [14] A. A. Madej and J. D. Sankey, *Phys. Rev. A* **41**, 2621 (1990).
- [15] C. Gerz, J. Roths, F. Vedel, and G. Werth, *Z. Phys. D* **8**, 235 (1988).
- [16] D. J. Seidel and L. Maleki, *Phys. Rev. A* **51**, R2699 (1995).
- [17] A. Roth, Ch. Gerz, D. Wilsdorf, and G. Werth, *Z. Phys. D* **11**, 283 (1989).
- [18] M. H. Prior, *Phys. Rev. A* **30**, 3051 (1984).
- [19] R. D. Knight, *Phys. Rev. Lett.* **48**, 792 (1982).
- [20] D. A. Church, *Phys. Rep.* **228**, 253 (1993).
- [21] R. Zhang and D. R. Crosley, *J. Chem. Phys.* **102**, 7418 (1995).
- [22] E. Paul-Kwiek and E. Czuchaj, *Z. Phys. D* **41**, 87 (1997).
- [23] S. Urabe, K. Hayasaka, M. Watanabe, H. Imajo, R. Ohmukai, and R. Hayayashi, *Appl. Phys. B* **57**, 367 (1993).
- [24] M. Benzing, Diplomarbeit, Johannes-Gutenberg-University, Mainz/FRG, 1994 (unpublished).
- [25] T. S. Monteiro, I. L. Cooper, A. S. Dickinson, and E. L. Lewis, *J. Phys. B* **20**, 741 (1987).
- [26] J. Brust, M. Movre, and K. Niemax, *Z. Phys. D* **27**, 243 (1993).
- [27] E. E. Nikitin, *Theory of Elementary Atomic and Molecular Processes in Gases* (Clarendon, Oxford, 1974).
- [28] E. W. McDaniel, J. B. A. Mitchell, and M. E. Rudd, *Atomic Collisions—Heavy Particle Projectiles* (Wiley, New York, 1993).

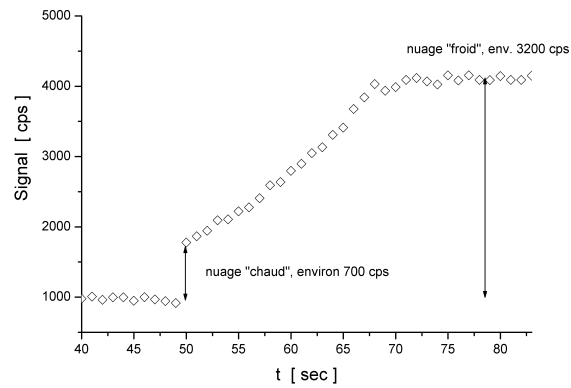


Fig. 2.3: Premier signal de refroidissement d'un nuage de Ca^+ , 4.05.1995

2.2 Le refroidissement laser

Au cours des années 1995-96 nous avons fait des expériences pour refroidir les ions dans le piège moyen. Dans cette phase (comme dans toutes les étapes ultérieures) l'optimisation du rapport signal sur bruit a été primordial. Nous avons mis en place un filtrage spatial très étroit du laser bleu, ainsi que l'écrémage spatial du signal de fluorescence par différents diaphragmes. La première observation du refroidissement laser a été effectuée sur un nuage d'ions. Sur un temps relativement long, nous avons pu constater une nette augmentation du signal à fréquence de laser fixe (figure 2.3), comme dans [54].

Assez rapidement, nous avons également pu réduire le nombre d'ions et ainsi créer des cristaux coulombiens, caractérisés par leur profil Doppler très asymétrique et la chute typique du signal de fluorescence au moment de la cristallisation (voir fig 2.4).

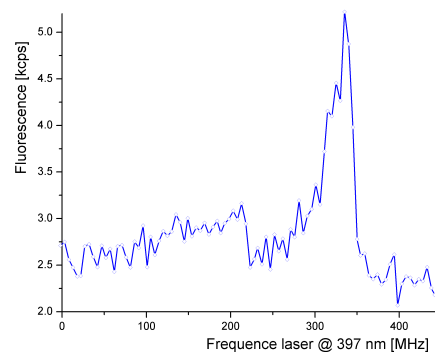


Fig. 2.4: Cristallisation de quelques ions de Ca^+ , juillet 1995

Pour des tout petits nuages contenant deux à trois ions nous avons atteint des températures d'une centaine de mK, valeur estimée à partir du profil Doppler. Nous avons pu créer des ions uniques dans ce piège, et c'est ainsi que nous nous sommes rendus compte du plus grand inconvénient de ce type de piège : il est trop harmonique !! En fait, pour avoir des intensités laser suffisamment élevées ainsi qu'un fond de lumière parasite raisonnable, les faisceaux laser sont focalisés à des waists de l'ordre de $70 \mu\text{m}$. Le puits de potentiel créé dans un piège de Paul permet le confinement d'un nuage d'une extension d'environ 10% de la taille de la cage à ions [55]. Dans notre expérience, les trajectoires des ions peuvent donc atteindre plusieurs centaines de micromètres, et les ions ne sont en interaction avec les faisceaux laser que pendant des durées très courtes. A chaque processus de création, nous confinons inévitablement plusieurs ions de Ca^+ . Dans un premier temps nous ne détectons peut-être qu'un seul, mais après quelques minutes d'autres ions vont apparaître, des ions que nous ne voyons pas tant qu'ils sont chauds, mais qui peuvent se refroidir avec une certaine probabilité et donc apparaître au centre du piège. Dans la figure 2.5 le niveau de lumière parasite se situe autour de 5000 cps, on distingue l'apparition de trois (peut-être 4) ions, chacun avec un signal d'environ 1500 cps. On peut également observer plusieurs sauts quantiques, très probablement dus à des collisions avec les atomes issus du four qui n'est pas complètement refroidi. Une des solutions pour éviter l'apparition en continue des ions chauds, est le passage à un piège miniature. Il sera choisi harmonique seulement dans un petit pourcentage du volume autour du centre, et suffisamment ouvert pour que les faisceaux laser remplissent une fraction de l'espace beaucoup plus importante que dans un piège classique.

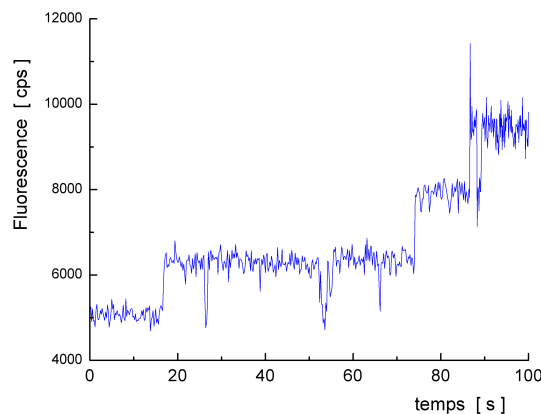


Fig. 2.5: Apparition des ions de Ca^+ un par un dans le piège moyen, juillet 1995

3. Un piège pour la métrologie

Au cœur de l'application métrologique, la transition ultra-fine d'un ion très froid et surtout très bien localisé sert de référence au laser ultra-stabilisé. Pour réaliser cet exploit, plusieurs conditions expérimentales doivent être réunies. Dans le présent chapitre je décrirai les ingrédients expérimentaux, nécessaires à la réalisation de l'expérience proposée.

3.1 Le piège miniature

Un des outils indispensables à la préparation d'un ion unique quasi au repos est le piège utilisé pour le confinement. L'accès envisagé au régime de Lamb-Dicke exige une localisation de l'ion à mieux que la longueur d'onde émise divisée par le facteur 2π . Dans notre expérience ceci correspond à $729 \text{ nm}/2\pi$ soit une amplitude du micromouvement d'environ 116 nm. Dans cette section je me sers des définitions des fréquences du mouvement et des paramètres expérimentaux du piège comme décrit dans [P-11], page 63.

Afin de pouvoir résoudre facilement le spectre des bandes latérales du mouvement, il est important que les fréquences de macromouvement $\omega_i/2\pi$ de l'ion soient aussi élevées que possible. Le refroidissement par bandes latérales [56] qui permet un contrôle exact de l'état vibrationnel de l'ion peut alors être mis en œuvre. Les fréquences séculaires $\omega_i/2\pi$ sont définies par la fréquence de confinement $\Omega_i/2\pi$ par la relation $\omega_i = \frac{1}{2}\beta_i\Omega_i$. Pour éviter un chauffage radiofréquence trop important, les β_z sont typiquement de l'ordre de 0,1 à 0,2. Des fréquences de confinement $\Omega_i/2\pi$ d'au moins 10 MHz sont donc nécessaires pour atteindre des fréquences de mouvement de l'ordre du MHz. A cause de la grande capacité électrique du dispositif, une telle fréquence ne peut être appliquée qu'à une structure de petites dimensions (de l'ordre du mm), sachant que des amplitudes de plusieurs centaines de volts sont nécessaires pour le confinement stable des ions.

Au chapitre précédent nous avons déjà vu que le piège doit être choisi avec une géométrie ouverte de façon à pouvoir focaliser les faisceaux laser avec des waists voulus sur les ions. Comme il est difficile de réaliser un véritable piège "de Paul" avec des dimensions du millimètre, des géométries simplifiées doivent être considérées pour la

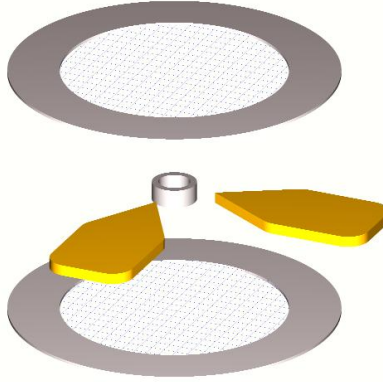


Fig. 3.1: *Vue d'artiste du piège miniature et des électrodes de compensation, le diamètre intérieur de l'anneau est de 1,43 mm.*

réalisation d'un piège miniature. Plusieurs propositions ont été faites au cours des dernières années, proposant des formes plus ou moins proches de la cage quadrupolaire. Les choix sont vastes entre les pièges plutôt "idéaux" avec anneau central et deux chapeaux [57, 58, 59, 60], des pièges de forme cylindrique, des pièges formés uniquement par des anneaux ou par des chapeaux [61, 62] ainsi que des pièges linéaires [12, 63, 64, 65]. Pour motiver notre choix nous avons effectué des simulations numériques du potentiel de confinement. En fait, pour accéder au régime de Lamb-Dicke, le potentiel doit être aussi harmonique que possible dans le centre du piège et présenter un facteur de perte \mathcal{L} petit. Ce facteur \mathcal{L} est défini par le rapport de la tension de confinement V_{AC} appliquée au piège miniature à la tension de confinement d'un piège de Paul idéal pour une même profondeur de pseudo-potential résultante. Pour des raisons techniques ce facteur \mathcal{L} doit être inférieur à environ 10.

Les simulations numériques ont été effectuées avec un programme calculant les équipotentiels, l'étendue du potentiel harmonique autour du centre ainsi que le facteur de perte \mathcal{L} [66]. Tenant compte de ces résultats, ainsi que des contraintes d'alignement et de fabrication, nous avons choisi un piège en forme d'anneau cylindrique avec un rayon de $r_0=0,715$ mm, une hauteur totale de $2z_0=0,85$ mm et une épaisseur de paroi de 0,3 mm (voir figure 3.1). Cet anneau a été fabriqué en molybdène pour éviter des effets magnétiques résiduels gênants. L'anneau est tenu par quatre paires de fils en molybdène tendus sur des tiges en Macor (fig. 3.2). De part et d'autre du piège à une distance de 5,8 mm du centre du piège deux électrodes de compensation sont montées. Ces électrodes sont des anneaux plats de molybdène d'un diamètre extérieur de 15 mm et d'un diamètre intérieur de 10,3 mm, recouverts d'une grille de molybdène d'une transmission de 86% ^(a). Deux électrodes en pointe fabriquées en cuivre sont montées

^(a) Fa. Eyring, Karlsruhe

dans le plan du piège dans les directions x et y pour pouvoir, elles servent à corriger les imperfections du potentiel dans ces directions.

Ce piège ne dispose que d'un seul axe laser qui traverse le dispositif en diagonale. En effet, l'angle de l'axe laser avec l'axe z du piège est de l'ordre de 55° , garantissant une projection des lasers sur r et sur z . Sur la photo 3.2, le faisceau laser à 397 nm passe devant le canon à électrons (E), traverse le piège et ressort derrière la grille (B) de droite.

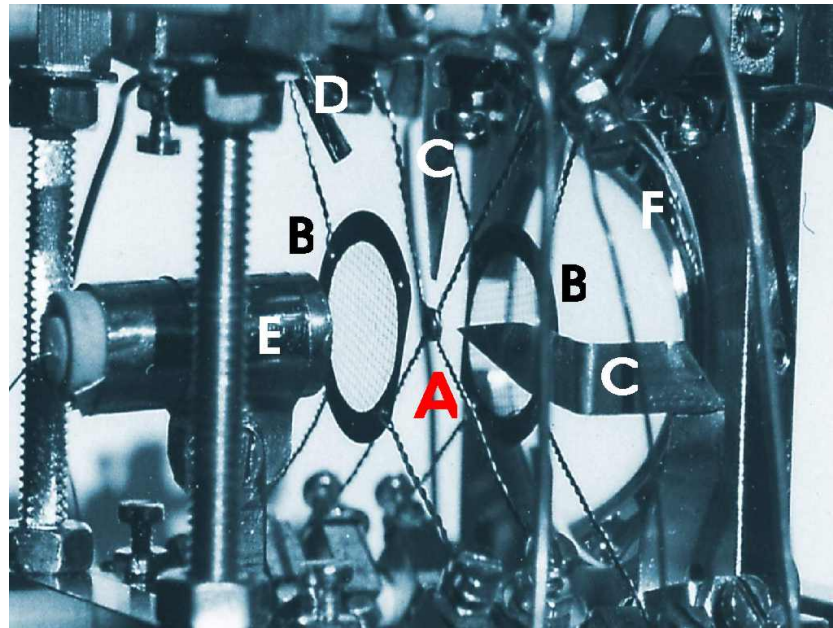


Fig. 3.2: Photo des éléments centraux. A : piège cylindrique, B : électrodes de compensation en z , C : électrodes de compensation en x et y , D : four, E : canon à électrons, F : lentille de collimation.

L'alimentation de confinement est composée d'un synthétiseur de fréquence, d'un amplificateur de puissance de 5W, ainsi que d'un circuit résonnant, permettant de générer une tension jusqu'à $1500 V_{cc}$ à une fréquence de 11.70 MHz.

3.2 Les sources laser

Différentes sources laser sont impliquées dans le refroidissement et l'interrogation des ions Ca^+ . Un des avantages majeurs de l'utilisation de l'ion Ca^+ est l'accessibilité de ses longueurs d'onde par des lasers dans la gamme du visible. La plupart de ses longueurs d'onde sont "commerciallement disponibles", mais l'interrogation d'un ion unique requiert des performances de largeur spectrale et de stabilité qui nécessitent dans tous les cas une solution sur mesure.

Un de nos buts est de disposer d'une expérience "tout diode" ou au moins "tout solide", ce qui permettra de proposer une horloge atomique compacte et de moindre coût. Dans cette section je présenterai nos différentes approches, d'abord pour la génération des diverses longueurs d'ondes, puis dans la stabilisation en fréquence des lasers.

La caractérisation des lasers se fait à l'aide d'outils différents. La longueur d'onde est mesurée par un lambdamètre construit au laboratoire d'une résolution d'environ 40 MHz à 800 nm [67] équipé d'un laser hélium-néon à 632,8 nm stabilisé en température [68]. La forme de faisceau et la taille des waists peuvent être mesurées avec un analyseur de faisceau^(b) jusqu'à une limite inférieure au μm . La largeur spectrale sur des temps d'intégration supérieurs à quelques dizaines de millisecondes est visualisée sur des oscilloscopes numériques, et nous pouvons mesurer la largeur spectrale "instantanée" par auto-corrélation. Pour ceci, le battement d'un faisceau laser (décalé en fréquence) avec une autre partie du faisceau issue du même laser mais ayant parcourue une fibre optique d'une longueur de 10 km, est enregistré.

3.2.1 397 nm

Laser titane-saphir doublé en fréquence Depuis 1993 nous disposons d'un laser commercial titane-saphir^(c) et pompé par un laser Argon^(d) de 10 W. Le laser titane-saphir est doublé en fréquence dans un cristal de LiIO_3 placé intra-cavité. Des puissances de l'ordre de 10 mW à 397 nm peuvent ainsi être obtenues. Le faisceau bleu de sortie obtenu par le doublage de fréquence présente une forme elliptique avec un rapport des axes d'environ 3 :1.

Un des défis majeurs de l'expérience est la détection d'un petit signal de fluorescence (max 10^5 ions) sur un fond de lumière parasite à la même longueur d'onde. Le faisceau bleu doit ainsi - plus que les autres lasers - avoir une forme parfaite et éviter au maximum les parois et les ouvertures. Pour une estimation correcte de l'intensité laser, il est également important de disposer d'un faisceau très symétrique. Pour les expériences réalisées dans le piège moyen nous avons mis en place un système optique de filtrage spatial afin de rendre le faisceau bleu plus rond et de lui imposer une divergence connue. Les variations de pointage du faisceau restait néanmoins un problème. Comme le cristal doubleur (LiO_3) est hygroscopique, il est indispensable de le retirer du laser pendant la nuit et des périodes d'inactivité et de le garder dans un dessiccateur. La mise en route du laser ne se fait pas toujours dans des conditions identiques, et une très légère déviation du faisceau peut produire une variation importante de la position du waist

^(b) Melles Griot Beamalyzer

^(c) Coherent 899-21

^(d) Coherent Innova 310

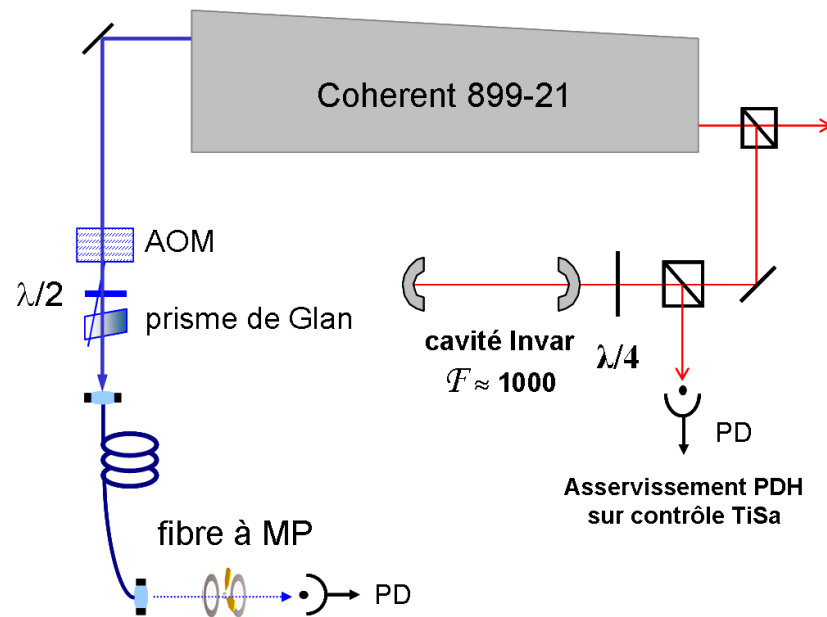


Fig. 3.3: Stabilisation en intensité et en fréquence du laser TiSa Coherent

laser dans le piège (taille du nuage $100 \mu\text{m}$, trajectoire d'un ion dans le piège miniature $< 50 \mu\text{m}$) sachant que le trajet entre le laser et le piège est de plusieurs mètres.

Dès que nous en avons eu la possibilité, ce système de filtrage spatial a été remplacé par une fibre optique à maintien de polarisation^(e). La fibre monomode effectue le filtrage spatial dû à un cœur très petit ($2,4 \mu\text{m}$), et elle a surtout l'avantage de présenter une stabilité de pointage bien supérieure au faisceau transporté uniquement par des miroirs. Pendant une courte période nous avons monté la sortie de fibre sur une table de translation xy motorisée avec une résolution du mouvement inférieure au μm dans l'espoir de donner une bonne reproductibilité au positionnement de la sortie de fibre ce qui est surtout nécessaire pour le travail en piège miniature. Il s'est malheureusement avéré que l'hystérésis de cette table de translation ne permettait pas d'atteindre la reproductibilité visée. Aujourd'hui la sortie de fibre est montée sur une table de translation xyz ultra-stable^(f) identique à celle qui sert pour l'injection de la fibre, la stabilité et la reproductibilité de ce dispositif sont suffisantes pour retrouver l'ion au cours des semaines.

Pour détecter un ion unique et dans le but d'obtenir un rapport signal sur bruit aussi élevé que possible avec un maximum de reproductibilité, nous avons stabilisé la puissance lumineuse de la sortie en fréquence doublée du laser TiSa, pour nous affranchir des fluctuations de puissance qui peuvent atteindre environ 10 %. Cette

^(e) Schaefer&Kirchhoff

^(f) Elliott Scientific

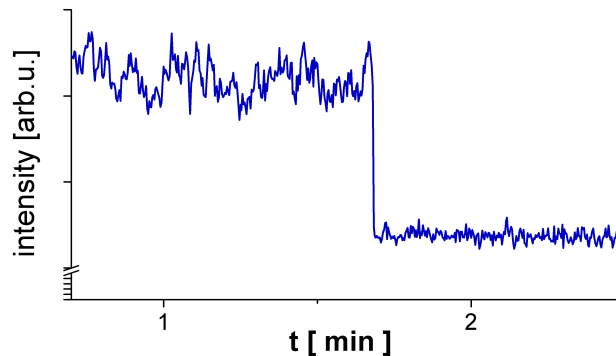


Fig. 3.4: Stabilisation en intensité du laser TiSa Coherent

stabilisation se fait à l'aide d'un modulateur acousto-optique placé dans le faisceau bleu à la sortie du laser. Ce modulateur fixe la puissance optique de l'ordre 0 et utilise l'ordre 1 comme "réservoir de puissance". Le signal de correction est généré à partir d'une photodiode qui récupère le faisceau bleu en sortie de montage expérimental. Il est indispensable de placer la photodiode derrière la fibre optique puisque celle-ci introduit du bruit de puissance supplémentaire. La figure 3.4 représente la puissance du laser bleu en unités arbitraires, au début elle n'est pas asservie, au bout d'environ 1,5 min, l'asservissement est mis en route, une amélioration des fluctuations d'au moins un facteur 3 peut être distinguée.

Dans la version originale du laser commercial, la stabilisation en fréquence du laser Coherent se fait sur une cavité très large bande, dont la finesse est environ 10. Bien que stabilisé en température, le laser présente une dérive en fréquence d'environ 300 MHz par heure et une largeur spectrale de quelques MHz dans le bleu. Pour améliorer ces performances, nous avons rajouté une cavité Invar haute finesse ($\mathcal{F}=1000$) à la sortie du mode fondamental (figure 3.3), et mis en place une stabilisation du type Pound-Drever-Hall [69]. Le signal de correction de cette stabilisation est envoyé sur l'électronique d'asservissement commercial avec un interrupteur qui permet de sélectionner le mode de stabilisation [70].

Doublage en fréquence d'une diode BAL injectée Il y a quelques années, nous avons abordé la génération de radiation cohérente à 397 nm par le doublage de fréquence d'un laser à 794 nm. Une première étape a porté sur la réalisation d'une cavité de doublage avec un cristal LBO (voir figure 3.5). Cette cavité était composée de deux miroirs sphériques et de deux miroirs plans, disposés en géométrie "bow-tie". Elle était stabilisée par la méthode de Hänsch-Couillaud [71]. Le pompage avec le laser titane-

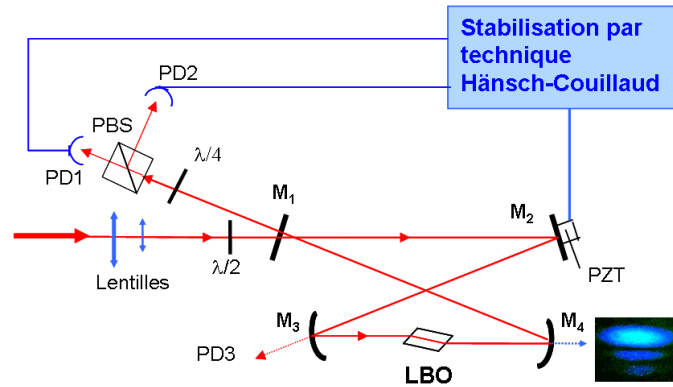


Fig. 3.5: Doublage de fréquence dans une cavité bow-tie

saphir a permis de caractériser la cavité de doublage [72]. En effet, sa finesse était de $\mathcal{F} = 100 \pm 5$ causant une largeur de mode de 11 MHz (FWHM). Le facteur de qualité de la cavité atteignait $\mathcal{Q}_c = 33 \pm 3$ et la somme des pertes de la cavité s'élevait à $\mathcal{V}_{tot} = (2,4 \pm 0,3) \%$. Finalement $(17 \pm 3) \%$ de la puissance du laser de pompage ont pu être injectée dans la cavité.

À l'époque, les diodes monomodes à 794 nm de puissance supérieure à 50 mW n'existaient déjà plus. Un laser à 794 nm avec une puissance d'une centaine de mW a été réalisé par un système maître-esclave : Une diode laser à ruban large^(g) de puissance nominale de 500 mW a été injectée par quelques mW d'une diode laser maître. Ce dernier laser était une diode laser monomode^(h) montée en cavité étendue en configuration Littrow. Sa largeur spectrale était de l'ordre de quelques MHz, l'injection a permis d'atteindre la même largeur sur la diode de puissance [73, 74] avec une puissance monomode assez élevée. Ce montage d'injection est une expérience délicate, elle demande un réglage très précis et l'adaptation d'un certain nombre de paramètres (forme des faisceaux, angle d'injection, waist d'injection, etc.). Les résultats très prometteurs ont été publiés dans *Optics Communications* en 2000 (publication jointe, page 40).

^(g) Coherent S-81-500C-100-Q

^(h) Mitsubishi ML 64110N



ELSEVIER

15 January 2000

OPTICS
COMMUNICATIONS

Optics Communications 174 (2000) 223–229

www.elsevier.com/locate/optcom

High power broad-area diode laser at 794 nm injected by an external cavity laser

Thomas Pawletko, Marie Houssin, Martina Knoop^{*}, Michel Vedel, Fernande Vedel

Université de Provence, Physique des Interactions Ioniques et Moléculaires, Unité Mixte de Recherche n° 6633 CNRS-UAMI, Centre de St. Jérôme, Case C21, 13397 Marseille Cedex 20, France

Received 23 July 1999; received in revised form 9 November 1999; accepted 16 November 1999

Abstract

The output of a single-mode laser diode mounted in an external cavity has been injected in a 500 mW broad-area diode laser. A maximum of 120 mW single-mode emission at 794 nm has been obtained for an injected power of 2.6 mW. Almost 90% of the total output could be produced in a diffraction limited single spatial Gaussian lobe. The spectral properties of the master laser have been transferred to the slave to within 1.5 kHz. We present a study of the injection efficiency under variation of various physical and geometrical parameters while the master laser is held at a fixed frequency to within 10 MHz. In particular, in the course of variation of slave temperature and injection angle we observe strong resonance behaviour. © 2000 Published by Elsevier Science B.V. All rights reserved.

PACS: 42.55.Px; 42.60.Fc; 42.60.Jf

Keywords: Injection-locked lasers; Coherent optical effects; Modes

1. Introduction

For a large number of applications such as communications, high-resolution laser spectroscopy, atom interferometry and optical frequency standards, tunable lasers of narrow linewidth and high spatial quality with sufficient power are needed. Because they are compact and cheap, laser diodes are often an excellent choice. An optical frequency standard based on the electric quadrupole transition of Ca^+ ions at 794 nm is being investigated in our laboratory [1]. To cool and control the internal state of Ca^+ ions

confined in a Paul trap a 397 nm laser source is necessary.

One possibility to generate enough cw power at 397 nm is frequency doubling of a laser diode in an external build-up cavity. This solution requires a powerful single-mode laser source at the fundamental wavelength (794 nm). Actually, the only commercialized laser diodes at 794 nm offering sufficient power are broad-area lasers (BAL). These devices have a very asymmetric active laser junction, typically dimensions are 1 μm times a few tens of μm . The free-running output of these lasers shows multiple spatial modes and their spectral linewidths are of the order of a few nm. Improvement of the poor spectral and spatial characteristics can be achieved by injection with a single-mode master laser [2–4].

^{*} Corresponding author. E-mail: mknoop@up.univ-mrs.fr

Contrarily to the well-known technique of injecting single-mode laser diodes [5], the utilisation of a multimode BAL as slave oscillator cannot be described in terms of a pure injection process, as there exists a large number of independent eigenmodes for the injected device.

In this work, we first present our experimental set-up for injection locking in the case where the master laser is an external cavity semiconductor laser. We then discuss some of the parameters (temperature and power of the slave laser, injection angle and waist size of the master laser beam) that have to be optimized to achieve an efficient injection. Optimization of the locking is only carried out by acting on the slave parameters. Results on the quality of the spectral and spatial output of the system are finally presented.

2. Experimental set-up

The master laser is a Mitsubishi laser diode (ML64110) having a single transverse mode. Its emitting wavelength is 796 nm at 25°C with a nominal power of 35 mW. This diode is mounted in a 5 cm long external cavity to control its wavelength and reduce its frequency fluctuations. The cavity is formed by a grating (1200 grooves per mm) in Littrow configuration ($\theta \cong 28^\circ$). Since we need the generated power to excite a narrow atomic transition ($\Delta\nu_{\text{nat}} = 23$ MHz), we work at a fixed wavelength ($\lambda = 793.70$ nm) for the master laser, which has been maintained constant throughout the complete set of presented measurements. The laser junction with a size of $1 \times 3 \mu\text{m}^2$ has been mounted in an upright position parallel to the grating grooves (vertical direction). The elliptic output spot is then horizontal and the laser polarisation vertical. Just in front of the diode its output is collimated by an anti-reflection (AR) coated objective (numerical aperture 0.55, focal length 4.5 mm, diameter 4.96 mm). The diode as well as the baseplate of the external cavity are temperature stabilised, the accuracy given by each temperature sensor lies well below 0.01°C. The zero order diffraction output of the grating is 15%. To increase the output power of the extended cavity, a 50/50 beam splitter with one AR coated face is

placed into the cavity. There are then two outputs, one for control and the other one for injection. The maximum useful power for injection is 5 mW. With a scanning Fabry–Perot (FP) cavity (FSR = 2 GHz), a FWHM of 10.5 MHz is measured for the master laser that is of the order of the FP resolution.

The slave laser is a Coherent broad-area laser diode (S-81-500C-100-Q). Its dimensions are $1 \times 100 \mu\text{m}^2$. At 25°C its threshold current is 325 mA, emitting 500 mW at a 844 mA current. The nominal wavelength is 796 nm at room temperature and the free-running linewidth is about 2 nm. The spatial emission spectrum shows 2, 3 or more lobes, the lobe number increasing with laser power. The slave laser is temperature stabilised by a Peltier element with an 0.005°C accuracy. The junction has been placed parallel to the master laser junction (vertical direction). The optimisation of this parallelism is achieved by a rotating mount for the slave laser. Contrarily to usual diodes the polarisation is perpendicular to the junction. The laser is collimated with an objective identical to the one of the master laser which permits easy matching of master and slave waists in the horizontal direction.

The injection set-up is presented in Fig. 1. The external cavity (master) laser is very sensitive to feedback. Two isolators (60 dB and 46 dB) are necessary to eliminate optical feedback from the powerful slave laser that may destabilize the master laser. The master laser is injected into the slave via the output polarizer of the second optical isolator (Iso2). The direction of injection in the broad-area

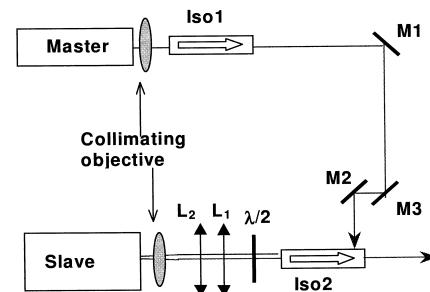


Fig. 1. Experimental set-up. Both diode lasers are mounted with the same collimating objective ($f = 4.5$ mm). The master beam shape is matched with a pair of cylindrical lenses ($L_1 = 80$ mm, $L_2 = 60$ mm). Two optical isolators eliminate optical feedback into the master laser.

laser is controlled by two mirrors, M2 and M3. A half-wave plate permits optimisation of the alignment of the (linear) polarisation of the slave laser with the isolator and thus with the polarisation of the master laser. The advantage of using the second isolator is that no loss of power occurs neither for the slave nor for the master as it is the case while working with a beam splitter.

Because the two collimating lenses for master and slave lasers are identical, the waist size of the injected beam at the input of the slave laser is about the size of the master laser junction ($1 \times 3 \mu\text{m}^2$). Adding the two cylindrical lenses increases the size of the waist in the long direction of the broad area laser, the lens positions are adjusted for the optimisation of the focus size. The cylindrical lenses are rigidly mounted on a common baseplate which can be moved in the vertical direction by a micrometer driven linear stage. Additionally, one of the lenses can be translated along the axis of beam propagation to vary the distance between the lenses to change the focus size of the master beam keeping it on the slave junction. This movement is also made by a micrometer driven linear stage.

3. Optimisation of injection

Injection locking of the slave laser depends critically on physical parameters such as the slave laser current and temperature or on geometrical parameters such as the injection angle and the dimensions of the injected beam. In this section we present studies of some of these parameters.

3.1. Influence of slave temperature

Observing the spatial behaviour of the injected slave emission, we remark that – for a given frequency of the master laser – injection is optimised for discontinuous values of the slave temperature. This optimisation can be achieved for almost equidistant values of temperature that are separated by $(1.20 \pm 0.16)^\circ\text{C}$ in a large area between 15°C and 35°C corresponding to the gain curve of the slave laser. An evolution of spatial profiles between two optimised positions is shown in Fig. 2. These pro-

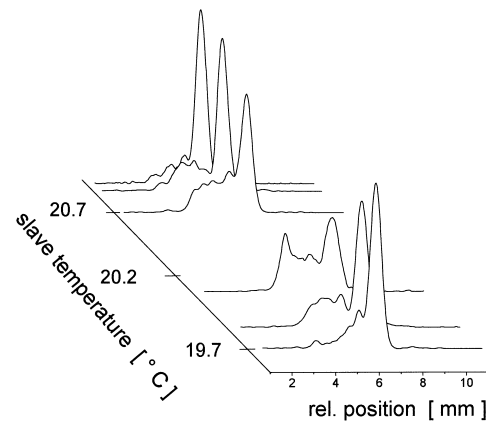


Fig. 2. Spatial far-field emission spectrum of the injected slave laser for different temperature values of the slave diode. In this graph, the separation between two resonance conditions is $\Delta T = 1.14^\circ\text{C}$.

files are images of the far field distribution of the slave output observed behind isolator 2. Spatial measurements have been carried out using a PC-based beamscan device (Melles Griot, Super BeamAlyser). The limit of spatial resolution is $0.1 \mu\text{m}$.

In a Fabry–Perot model [6,7], for a given injection angle, injection is optimised if the master laser frequency is in resonance with the slave laser cavity. While sweeping the temperature of the slave laser, its optical cavity length L changes and the resonance condition is not always satisfied. The dependence of the cavity resonance frequency with temperature is given in Ref. [8]

$$\frac{\Delta\nu}{\nu} = - \left[\frac{A_c}{n} \Delta N_c + (\alpha_T + \beta_T) \Delta T \right],$$

where n is the refractive index of the semiconductor, A_c is a proportional constant, and α_T is the thermal expansion coefficient. β_T gives the dependence of the refractive index versus temperature. Typical values are $n = 3.5$, $\alpha_T = 5 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$, $\beta_T = 10^{-4} \text{ K}^{-1}$ and $A_c = -4 \times 10^{-27} \text{ m}^{-3}$. ΔT is the temperature variation and ΔN_c is the charge carrier density variation which is induced by a change of the diode current in the case without external injection. During injection ΔN_c depends also strongly on the power of the master laser. As ΔN_c varies also with a change of the temperature it is difficult to evaluate $\Delta\nu/\nu$ versus ΔT in absolute terms. This is compatible with

the calculations of Lang et al. [9], showing that nonlinear mechanisms of amplification in BAL are responsible for nonuniform distribution of charge carrier density and temperature in the BAL volume giving rise to spontaneous filamentation.

3.2. Influence of injection angle

For an optimisation of the efficiency of injection, it is necessary to deviate the incident master beam from the slave emission axis and to inject it under a small angle in the vertical plane [6]. To vary the injection angle in the slave laser the system composed by the two cylindrical lenses has been moved vertically. The spatial single output lobe due to injection is then deviated off axis symmetrically to the entrance master beam direction with respect to the slave laser normal emission axis.

The observed profile of the beam is not symmetrical and the narrow single-lobe peak is on the side of the total emission. Symmetrical injection where in and out beams are interchanged is also a solution for optimised injection and the singlemode lobe has then been observed on the other side of the spatial profile. Fig. 3(a) shows slave laser far-field profiles for these

two symmetrical positions as well as for an intermediate position (approximately on optical axis) at a master power of 2.6 mW and a slave injection current of $I = 435$ mA ($I/I_{th} = 1.33$) corresponding to a total output power of $P_{tot} = 81$ mW at $T = 20.3^\circ$.

From the longitudinal positions of the lenses and the vertical displacement of the complete lens assembly, the injection angles for the two symmetrical positions have been evaluated to be about 4° off-axis. When the slave temperature increases, the injection angle must also be increased to obtain an optimised output profile as shown in Fig. 3(b). It is thus possible to fulfill the FP resonance condition for a given slave temperature by changing the injection angle, the dependence of angle variation versus temperature is roughly linear. The slight asymmetry which can be observed in this figure may be due to an imperfect parallelism of the two cylindrical lenses.

3.3. Influence of the master focus size on the slave junction

By varying the distance between the two cylindrical lenses and their position, the size of the master focus on the slave junction is changed. It is difficult

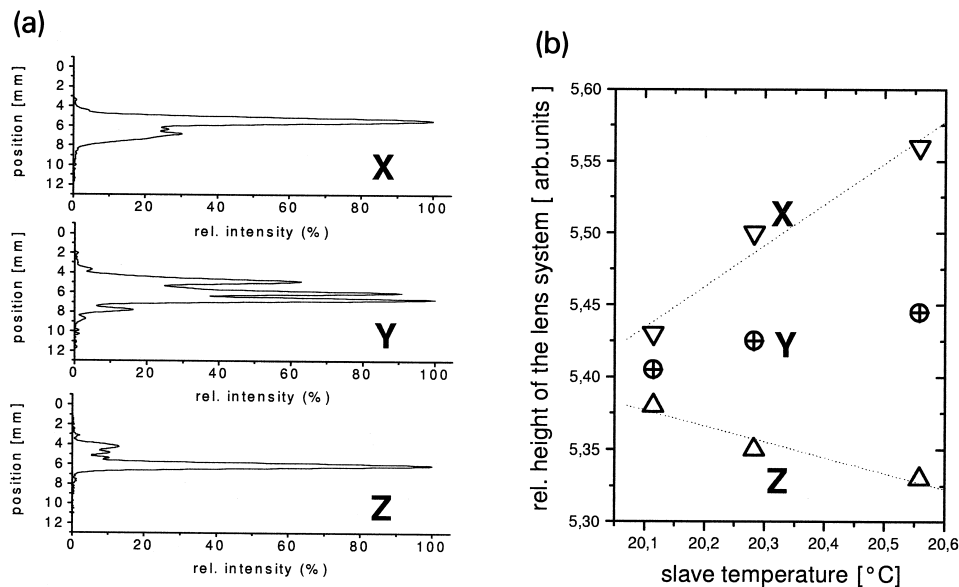


Fig. 3. (a) Spatial emission spectrum of the slave laser for three different heights of the cylindrical lens system, corresponding to three different injection angles. Injection parallel to the emission axis results in a complex structure (point Y). Symmetrically to Y there exist two points of optimal injection (X and Z), where the resonance condition of the incident beam in the slave is fulfilled. (b) Variation of the positions of optimal injection versus slave temperature.

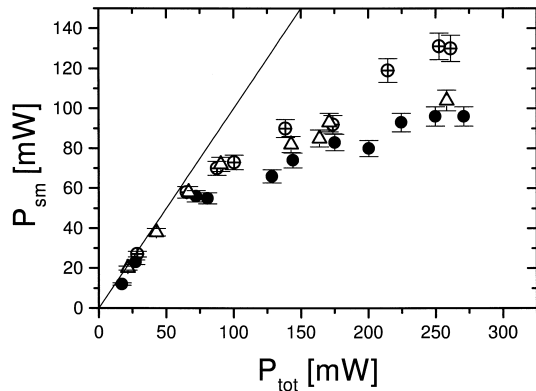


Fig. 4. Single-lobe power output as a function of the total slave power for different sizes of the master laser waist on the slave junction: 100% (●), 50% (⊕), and 33% (△) of slave junction. The uncertainty in the determination of the focus size is approximately 20%. The master laser power is 2.6 mW. The straight line in this graph represents the asymptotic value for the case that the total output power is singlemode.

to determine the absolute size of the focus since the influence of the collimating objective cannot be mea-

sured. From our comparison of calculations with measurements in similar systems the uncertainty has been estimated to be as large as 20%.

To determine the power in the single spatial mode (P_{sm}) we fit the narrow spatial lobe with a Gaussian profile, and calculate the ratio between the integral of the fitted curve and the total integral of the output profile. In Fig. 4, we have plotted the power contained in the far-field single lobe versus the total power of the slave for different sizes of the master focus. We can observe an optimum focus size for injection at about half the junction size which is in good agreement with the Fabry–Perot model [6]. At higher and at lower waist sizes of the master beam the quality of the injection locking decreases notably. In any case, it can be observed that for small values of P_{tot} almost the complete slave output power is contained in a single mode (the straight line in Fig. 4 corresponds to $P_{tot} = P_{sm}$) and that P_{sm} approaches an asymptotic value for higher values of the total slave power. This saturation behaviour can be explained by a diminution of the gain for higher laser

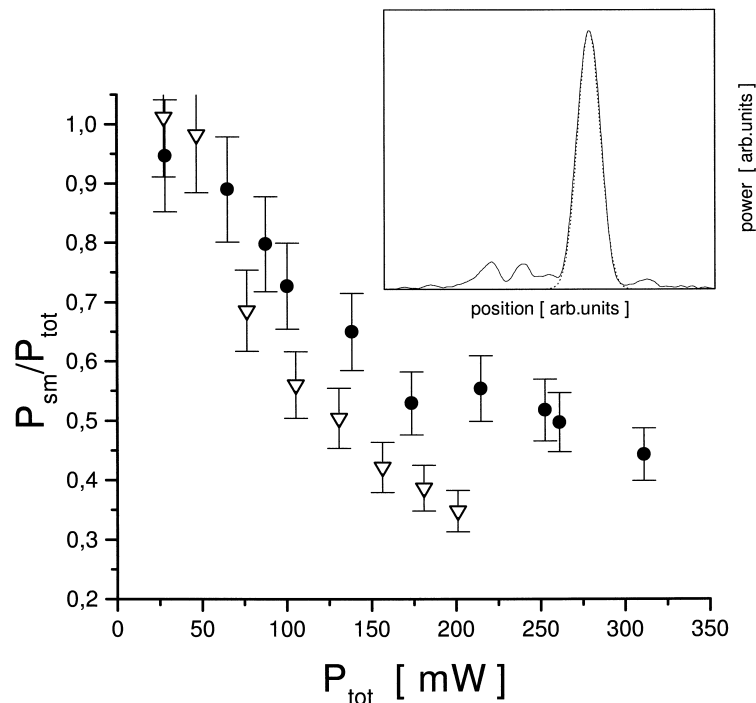


Fig. 5. Injection efficiency P_{sm}/P_{tot} as a function of the total slave output power P_{tot} for two different master oscillator power values (2.6 mW (●), 1.4 mW (△)). The inset shows a typical spatial output pattern where the dotted line is a Gaussian fitting the singlemode portion of the output ($P_{tot} = 90.5$ mW, $P_{sm} = 72$ mW, $P_{inj} = 2.6$ mW).

power due to a growing fraction of stimulated emission.

3.4. Influence of the slave power

The observed narrow spatial lobe contains up to 89% of the slave power at an injected power of 2.6 mW and a slave power of 90 mW corresponding to a 15 dB gain in terms of ideal amplification. Fig. 5 represents the fraction of the power in the single Gaussian lobe as compared to the total output power for two different master powers.

While increasing the slave power, the single-mode part of the emission increases but its fraction in the whole power decreases. Free-running modes of the broad area laser that are completely suppressed at low power reappear as a pedestal. The decrease of the single-mode fraction is getting smaller for higher slave laser power, showing saturation behaviour similar to what has been found in Fig. 4. We observe also that increasing the master laser power leads to a higher fraction of the far field emission spectrum contained in the narrow peak. The injected field and the slave field share the gain in the active laser region above threshold, and the enhancement of a single slave mode is limited by the finite power of the master laser.

4. Spectral properties of injection locking

The aim of the described injection set-up is a high-power output having a single spectral as well as a single spatial mode in order to be used for frequency-doubling in an external build-up cavity. We have verified that the observed single spatial modes are well single frequency modes by monitoring the power of the single spatial mode as a function of the peak height observed in the scanning Fabry–Perot cavity. In the course of the measurement, the observed linewidth in the spectral analyzer is constant. We therefore consider the relation between the peak height and the peak integral to be linear. Within the limits of the error bars the measured points follow well a fitted line, which is a good indication for the linear correlation in the growth of the single spatial

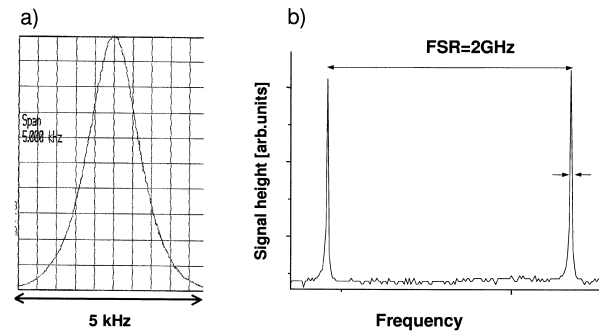


Fig. 6. (a) Beatnote signal at 70 MHz of the master and the injected slave laser frequency. The measured FWHM is 1.5 kHz. (b) The measured linewidth of the injected slave laser is 10.5 MHz.

and the single frequency mode. We deduce from this that the single frequency part of the slave laser output coincides with the observed single spatial mode.

To check the quality of the injection locking, we have made a beat measurement between the master and the injected slave laser. The output of the master laser has been shifted by 70 MHz using an acousto-optic modulator. The beat note signal of the slave and master laser at 70 MHz is represented in Fig. 6(a). It has a FWHM of 1.5 kHz, which is the resolution limit of the spectrum analyzer (HP ESA-L1500A). The frequency of the slave laser tracks the master laser frequency to within 1.5 kHz. The spectral linewidth of the slave of 10.5 MHz (Fig. 6(b)) – observed with the above described scanning Fabry–Perot cavity – which is identical to the one of the master laser presented in Section 2 is consistent with this result. We deduce that the spectral characteristics of the master laser have almost completely been transferred to the slave laser.

5. Conclusion

We have presented an injection locking set-up of a high-power broad-area diode laser by an external cavity master laser. Careful alignment of the beams and exact matching of the relative size of the diode junctions using cylindrical lenses has allowed to obtain singlemode output of 120 mW (17 dB gain) in a single lobe. A systematic evaluation of the influ-

ence of different slave laser parameters has been performed. We have shown that variations of the slave laser temperature have a critical influence on the injection efficiency.

The fact that resonance conditions as a function of slave temperature or injection angle occur shows that the injection mechanism is no pure amplification process. The free-running slave laser oscillates on several independent frequencies corresponding to different resonator eigenmodes, therefore the presented experiment cannot be described by a pure injection mechanism either. In fact, our observations are in agreement with the idea that broad-area lasers operate under injection as saturable multi-pass amplifiers [6,9].

The generated slave output follows very closely the spectral properties of the master laser which has been held at a fixed frequency during the whole experiment. This is essential for the projected use of frequency-doubling in an external build-up cavity using an LBO-crystal to obtain the 397 nm required for the Ca^+ metrological application.

Acknowledgements

The authors gratefully acknowledge financial support from Bureau National de Métrologie, Paris, France.

References

- [1] M. Knoop, M. Vedel, F. Vedel, *Phys. Rev. A* 58 (1998) 264, and references therein.
- [2] J. Martin-Regalado, G.H.M. van Tartwijk, S. Balle, M. San Miguel, *Phys. Rev. A* 54 (1996) 5386.
- [3] A.C. Fey-den Boer, H.C.W. Beijerinck, K.A.H. van Leeuwen, *Appl. Phys. B* 64 (1997) 417.
- [4] V. Vassiliev, V. Velichansky, P. Kersten, F. Riehle, *Electr. Lett.* 33 (1997) 1222.
- [5] C.J. Buczek, R.J. Freiberg, M.L. Skolnick, *Proc. IEEE* 61 (1973) 1411.
- [6] G.L. Abbas, S. Yang, V.W.S. Chan, J.G. Fujimoto, *IEEE J. Quantum Electron.* 24 (1988) 609.
- [7] L. Goldberg, M.K. Chun, *Appl. Phys. Lett.* 53 (1988) 1902.
- [8] M. Ohtsu, *Highly Coherent Semiconductor Lasers*, Artech House, Boston 1992.
- [9] R.J. Lang, D. Mehuys, D.F. Welch, L. Goldberg, *IEEE J. Quantum Electron.* 30 (1994) 685.

Diode laser à 397 nm Depuis très peu de temps des diodes laser émettant autour de 400 nm ont été commercialisées. Nous avons fait l'acquisition de deux diodes de longueur d'onde 397 nm d'une puissance nominale de 30 mW directement auprès de l'entreprise japonaise Nichia. Pour obtenir une bonne accordabilité et pureté spectrale, une diode de longueur d'onde nominale 398 nm a été montée en cavité étendue (configuration Littrow). La diode est ensuite asservie par une méthode de détection synchrone sur le sommet d'une frange d'une cavité de référence de basse finesse ($\mathcal{F} = 100$). Des largeurs de laser de l'ordre du MHz ont été estimées à partir d'un battement que nous avons mis en place avec le laser TiSa. L'accordabilité sans saut de mode atteint 2 GHz. Des nuages d'ions ont été observés dans le piège miniature avec cette diode laser, qui atteint les performances requises pour remplacer le laser titane-saphir. Seul son interface utilisateur doit encore subir des améliorations pour passer d'un dispositif expérimental à un dispositif "presse-bouton".

3.2.2 866 nm

La radiation laser nécessaire pour vider le niveau $3D_{3/2}$ en permanence et assurer ainsi un refroidissement laser efficace, est générée par une diode laser monomode⁽ⁱ⁾ placée en cavité étendue en utilisant la configuration Littrow. Au cours de sa thèse, Mustapha Herbane a rajouté une étage de stabilisation en température ainsi qu'une boîte d'isolation acoustique au montage de cette diode [75]. La diode a été stabilisée en fréquence sur une cavité de référence ($\mathcal{F}=300$) d'abord en flanc de frange, puis au cours de l'année dernière par une méthode de détection synchrone sur le sommet de la frange [76]. Pour donner une stabilité en fréquence accrue à cette diode, la cavité qui sert de fréquence de référence est stabilisée sur une raie du césium à l'aide d'une diode supplémentaire à 852 nm [75]. Ceci est réalisé par une méthode d'absorption saturée. Les dérives en fréquence de la diode deviennent alors inférieures à 40 MHz au cours d'une journée entière, ce qui correspond à la résolution de mesure du lambda-mètre utilisé [67, 68].

3.2.3 854nm

L'observation de la statistique des sauts quantiques est la méthode la plus efficace pour l'interrogation de la transition d'horloge. Or, un saut quantique a une durée moyenne d'une seconde. L'utilisation d'une diode laser supplémentaire à 854 nm permet de vider le niveau métastable $3D_{5/2}$, dès qu'un saut quantique a été détecté. Le processus d'interrogation de l'ion peut ainsi être accéléré. Nous sommes en train de

⁽ⁱ⁾ SDL 5402

mettre en cavité (Littrow) une diode monomode à 854 nm, l'utilisation de ce laser permettra d'augmenter la cadence des expériences.

3.2.4 729nm

La transition $4S_{1/2}-3D_{5/2}$ est proposée comme transition d'horloge dans le projet actuel. Le laser destiné à exciter cette transition électrique quadrupolaire nécessite une attention particulière. Non seulement, sa largeur en fréquence doit être compatible avec la largeur de raie excitée - dans l'étape ultime moins qu'une dizaine de hertz - mais sa sortie en puissance doit aussi être supérieure à quelques mW pour permettre la stabilisation extrême de ce laser, éventuellement en plusieurs stages, ainsi qu'une fréquence de Rabi d'excitation d'au moins 1000 s^{-1} .

Actuellement, nous travaillons avec une diode BAL^(j) telle que décrite dans la publication jointe (page 49). Cette diode est montée en cavité étendue en configuration Littrow afin de la rendre monomode. Une fente supplémentaire a été ajoutée dans la cavité pour influencer le comportement du mode spatiale du laser. Le faisceau de sortie de la cavité est mis en forme par un système optique composé de deux lentilles cylindriques et d'une lentille sphérique. Ceci permet non seulement de rendre le faisceau plus rond mais également d'en corriger un peu l'astigmatisme. Finalement la diode a été pré-stabilisée sur une cavité Perot-Fabry de basse finesse ($\mathcal{F} = 300$). Le montage et ses caractéristiques sont décrits en détail dans la publication qui suit (page 49).

Ce laser a ensuite été stabilisé sur la cavité ULE de finesse $\mathcal{F}=15000$, ce qui a permis d'atteindre des largeurs spectrales de l'ordre de 50 kHz. Cette valeur a été mesurée par le système d'auto-corrélation, elle ne contient pas les fluctuations de fréquences de la cavité à plus grande échelle de temps.

^(j) Applied Optonics Corporation AOC 730-100-TO3 BAL

Linewidth reduction by 6 orders of magnitude of a broad-area 729-nm diode laser

Marie Houssin, Philippe Courteille, Caroline Champenois, Mustapha Herbane, Martina Knoop, Michel Vedel, and Fernande Vedel

Diode lasers with a power output superior to 100 mW are in widespread use in medical as well as research applications. However, for such diodes lasing oscillation generally occurs simultaneously in several longitudinal and transverse modes that are unsuitable for high-resolution spectroscopy. We spectrally narrow a 100-mW broad-area diode laser by first using an extended cavity and then an electrical feedback produced by a Pound–Drever–Hall stabilization on a low-finesse reference cavity. Reduction of the linewidth by more than 6 orders of magnitude is achieved (the output linewidth is narrowed from 1 THz to less than 500 kHz), making possible its use for high-resolution spectroscopy. The power and the spectral qualities of this diode laser allow us to induce quantum jumps toward the $D_{5/2}$ metastable level of single Ca^+ ions. © 2003 Optical Society of America

OCIS codes: 140.0140, 140.2020, 140.5960, 300.3700.

1. Introduction

Stable and spectrally narrow lasers are essential for high-resolution spectroscopy, optical frequency standards, and many fundamental experiments in physics.¹ In the past, dye lasers have been extensively used for spectroscopy because of their wide tuning range, spectral purity, and high power. Today the use of diode lasers is attractive because they are compact, inexpensive, and require low power. The major drawback is the limited availability of diode lasers for specific wavelengths that are imposed by the energy levels of the atom under investigation. The given wavelength domains generally correspond to different manufacturing technologies.

Our current project consists of building an optical frequency standard that involves a single cold Ca^+ ion confined in a miniature radio-frequency trap. The 411-THz frequency of the clock transition (between the fundamental $4S_{1/2}$ state and the metastable $3D_{5/2}$ state) corresponds to a 729-nm wavelength.^{2,3}

The natural linewidth of this electric quadrupole transition is less than 1 Hz. The possible subkilohertz linewidth of the atomic spectral profile can be reached by Doppler laser cooling into the Lamb–Dicke regime. For this purpose, three wavelengths are required: 729 nm for the clock transition, 397 nm for the strong cooling transition, and 866 nm for repumping the atoms that decay from the upper level ($4P_{1/2}$) of the cooling transition into the metastable $3D_{3/2}$ state. All these wavelengths can be generated by diode lasers. For the clock transition, the only powerful diode laser available at this time is a broad-area laser (BAL), which is normally used in near-infrared reflectance spectroscopy for medical applications.⁴ This diode laser is available with a nominal output power of as much as 250 mW. The free running emitted light is multimode, spatially as well as spectrally, with a nominal linewidth of 2 nm (1.1 THz).

Here we report on the improvement of the spectral and spatial properties of the above diode laser. Indeed, frequency and mode qualities of diode lasers are different for various types of laser and wavelength, the manner and the strategy to achieve the best performance must be found for each new diode setup.

First we show how to obtain a spectrally single-mode emission by placing the BAL in an extended cavity. We then describe the shaping of the spatial profile and the optical setup to correct the laser beam astigmatism to within a level that allows good injection into a single-mode optical fiber. Next we de-

All the authors are with Physique des Interactions Ioniques et Moléculaires, Unite Mixte de Recherche 6633, Centre National de la Recherche Scientifique, Université d'Aix-Marseille 1, Centre de St. Jérôme, Case C21, F-13397 Marseille Cedex 20, France. The e-mail address for M. Houssin is mhousin@up.univ-mrs.fr.

Received 6 January 2003; revised manuscript received 9 May 2003.

0003-6935/03/240001-06\$15.00/0

© 2003 Optical Society of America

scribe the first stage of frequency stabilization of the diode by means of an electronic feedback loop, for which the frequency reference is a stable optical cavity with a finesse of 300 and mounted on an Invar rod. Finally, to test the performance of this BAL laser setup, we used it to induce quantum jumps with Ca^+ ions.

2. Extended Cavity Setup

The diode investigated in this study is an AOC 730-100-TO3 BAL from Applied Optronics Corporation⁵ that emit 100 mW for a current of 780 mA and a temperature of 25 °C at 728 nm. This BAL consists of a single quantum well structure made by metal-organic chemical-vapor deposition. Its typical junction size is $100 \mu\text{m} \times 1 \mu\text{m}$. The measured divergence of the emitted spatially multimode light is approximately 8° in the plane parallel to the height of the junction and 38° in the perpendicular direction. When the free-running laser functioned at a power of 100 mW, the spectral width was approximately 2 nm.

To obtain single-mode emission at 729 nm and to tune the wavelength to the resonance of the atomic transition we set the diode into an external cavity.^{6,7} The diode was temperature stabilized at 17 °C with an uncertainty of less than 0.02 °C/day. At this temperature the threshold current of the free-running diode was 580 mA. Collimation of the light emitted from the diode was obtained with an aspherical lens of 6.3-mm focal length, the clear aperture was 5 mm, and the numerical aperture was 0.4. The extended cavity had a 2400-grooves/mm grating mounted in a Littrow configuration. The 44-nm cavity length corresponded to a 3.4-GHz free-spectral range. The temperature of the base plate of the laser was controlled to a 0.02 °C resolution that minimizes thermal drifts of the cavity length. The grating was mounted so its grooves were vertical, that is, parallel to the larger dimension of the junction. The number of illuminated grooves was then maximum and yielded an optimized resolution. The measured grating efficiency was equal to 22% in the first diffraction order. The spectral width of the light, which was diffracted by the grating and fed back into the 1- μm large junction, was estimated from geometric parameters to be approximately 40 GHz. The output beam of this laser corresponds to a zero order with 50% measured efficiency. The grating was mounted on a piezoelectric transducer (PZT) whose displacement is 6 nm/V. It permits a longitudinal adjustment of the cavity length corresponding to a continuous frequency tuning of 56 MHz/V. The output beam linewidth measured with a 10-cm-long Fabry-Perot analyzer (with a measured finesse of 300) was found to be 8 MHz.

Since setting a laser diode in an extended cavity lowers its threshold current, we adjusted the grating feedback by minimizing the threshold. With optimal adjustment, we could obtain a 28% reduction of the threshold current from 580 to 420 mA. In a previous experiment, when Pawletko *et al.* studied the injection of a 796-nm BAL diode with a single-

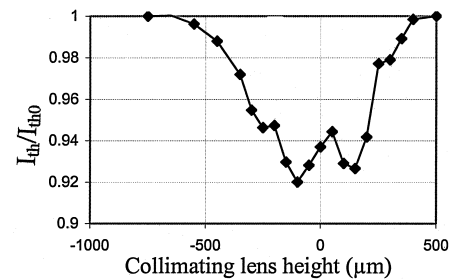


Fig. 1. Measured current threshold (I_{th}) normalized to the free-running diode threshold (I_{th0}) when the diode is placed in an extended cavity versus the vertical position of the collimating lens. A 100- μm displacement of the lens corresponds to a variation of 0.9° of the injection angle of the feedback beam. (These operating conditions did not allow us to reach optimal threshold current reductions.)

mode laser, they observed a critical dependence of the optimized adjustment on physical and geometric parameters,⁸ one of which is the value of the injection angle. Because of the degradation of the near-field output that is due to filamentation in large optical cavities,^{9,10} the injected beam must present a small angle with the plane that contains the large dimension of the strip to ensure full saturation of the whole region of the chip. In a similar way, in the present research we observed two minima for the threshold current while moving the collimating lens along the vertical direction (Fig. 1). We can explain this effect by considering that grating feedback can be understood as a self-injection process. These two optimized positions correspond to two symmetric angles of injection versus the emission axis. These angles were measured to be $\pm 2.2^\circ$. The slight asymmetry of the curve in Fig. 1 comes from a small misalignment of the whole assembly (diode, collimating lens, grating) and a spatial inhomogeneity of the laser junction.

In a pure extended cavity in which the output facet of the diode is antireflection coated, the laser cavity is the total cavity formed by the end facet of the diode and the grating. In our setup, the nominal reflectivity of the output facet of the diode is approximately 3%. The field inside the laser diode chip is the superposition of the field reflected by the output facet of the diode with the field reflected by the grating. The resulting interferences influence the emitted power and the frequency behavior.¹¹ The setup behaves as a two-coupled-cavity device.¹² When we tuned the emitted frequency by sweeping the injection current or the voltage that is applied to the PZT of the grating mount, variation of the output power of the extended cavity versus the current intensity caused modulation as shown in Fig. 2. This modulation results from the phase difference in the two internal fields induced by the current variation. In Fig. 2 upper levels of the output power correspond to intervals in which the diode laser is single mode. Between two single-mode regimes, mode hops appear. When increasing the laser current above the threshold ($I =$

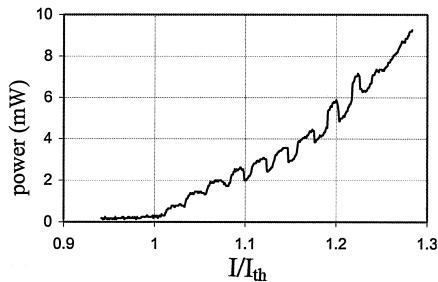


Fig. 2. Output laser power versus the laser injection current (normalized to the threshold current I_{th}) when the diode was placed into an extended cavity.

420 mA) from a single-mode regime, the laser first oscillates on two modes with a mode difference of 3.4 GHz, which corresponds to the free spectral range of the extended cavity. Then the diode laser operates in a multimode regime. With an increase in current, the single-mode tuning range is narrowed. For a current I with a value of $480 \text{ mA} < I < 570 \text{ mA}$, the laser works in a quasi-single-mode regime of the extended cavity, in spite of the presence of a small peak at the nearest mode of this cavity. Indeed, the selectivity of the grating is not sufficient. For higher values ($I > 570 \text{ mA}$, which is the free-running diode threshold), the laser operates definitively in a multimode way, as a consequence of competition between the diode cavity emission and the extended cavity emission. In the single-mode operation, the usual value of the continuous tuning range, when either the PZT voltage or the current varies is 1.6 GHz (50% of the free spectral range). The value increases to 3.5 GHz when a suitable combination of PZT voltage and diode current variations is chosen. At $I = 480 \text{ mA}$, the single-mode power at the output of the laser is approximately 7.7 mW at $\lambda \approx 729.4 \text{ nm}$. Less than 10% of the nominative power of the free-running diode is obtained in a single-mode regime. Also taking into account the necessary use of power for frequency stabilization of the laser, our setup requires the use of high-power semiconductor components.

Using an extended cavity will also improve the spatial properties of the laser. A comparison of the laser beam intensity profiles in the direction of the long dimension of the laser junction in the near field without and with feedback causes a width reduction of the emitting area. This reduction makes the emission single mode as confirmed by the Gaussian far-field profile. Along the small direction of the junction, the far-field profile is almost nearly Gaussian but its divergence before collimation is large because of the small size of the junction and therefore the ellipticity of the emission is approximately 7. To increase the power of the laser in the center of the beam, we put a slit inside the cavity. The slit of various widths, vertical and parallel to the large size of the junction, was placed close to the collimating lens between this lens and the grating, in a place in which the beam is nearly collimated. The slit acts as a diaphragm that reduces the horizontal dimension of

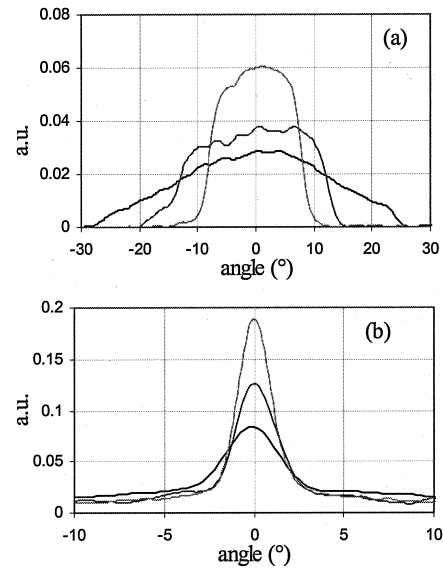


Fig. 3. Far-field profiles of the extended-cavity emission for different slit sizes placed vertically, parallel to the junction inside the cavity. Intensity distribution (a) normal to the junction plane and (b) in the junction plane. Black curve, without a slit; gray curve, with a 3-mm-wide slit; light gray curve, with a 2-mm-wide slit.

the transverse profile [Fig. 3(a)] and therefore modifies the frequency selectivity of the feedback. This allows an increase of the maximum current at which single-mode operation is still possible. Vertically, the power in the profile pedestal is much more important than for classical diodes (60% of the total power). With the slit, a part of the optical power contained in the pedestal is concentrated in the Gaussian lobe [Fig. 3(b)]. However, with a 2-mm slit that gave the best results, 40% of the total power was still in the pedestal. With a 2-mm slit, the threshold current increased to $I = 460 \text{ mA}$ and the last regime of single-mode operation was reached for $I = 560 \text{ mA}$ corresponding to a 6.2-mW power at $\lambda \approx 729.1 \text{ nm}$. The spatial filtering in the horizontal direction reduces the ellipticity of the emission by a factor of approximately 2.

3. Reduction of the Astigmatism

To characterize the astigmatism of the free-running diode, the position of the junction images corresponding to both transverse directions must be known. Moving the collimating lens along the optical axis while seeking the two images in a given plane, allows us to estimate 1.1-mm astigmatism of the diode. As a consequence, when the diode is mounted in an extended cavity and in the case of an optimized feedback coupling, the output of the laser is observed to be collimated in the horizontal direction (perpendicular to the junction and the grating grooves) and divergent in the vertical direction.

To inject the laser beam into a Fabry–Perot cavity or into an optical fiber, we must correct this astigmatism and make the spatial profile circular. We prepared and then set up two different afocal systems for

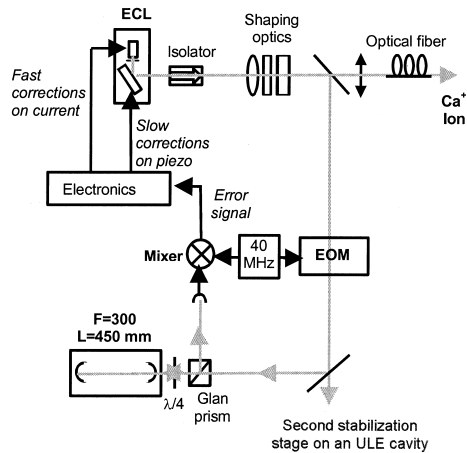


Fig. 4. Optical setup for frequency stabilization: ECL, extended-cavity laser; EOM, electro-optic modulator.

the two main axes. Each system was composed of a common spherical lens (of 100-mm focal length) and a proper cylindrical lens. The focal length of the cylindrical lens in the horizontal direction is 30 mm to reduce the waist size by a factor of 3. The focal length of the cylindrical lens in the vertical direction was 100 mm to conserve the waist size. We adjusted the lens distance to compensate for the beam divergence. The output of the setup is a nearly Gaussian circular beam with an 0.8-mrad divergence.

After this beam preparation, we injected the light into a single-mode optical fiber. The coupling efficiency is representative of the purity of the beam profile. We injected approximately 46% of the light power into the fiber. Under typical conditions, when an important part of the power is lost in the isolator and by reflection on the faces of the various beam-shaping and focusing lenses, we focused 450 μW of emergent optical power into a 50- μm waist.

4. Stabilization to a Reference Cavity

The linewidth of the extended-cavity laser is approximately 8 MHz depending on the laser power. Locking the laser frequency to the eigenfrequency of an optical reference cavity allows us to reduce further the laser spectral linewidth. For this goal, we used a Pound–Drever–Hall technique.¹³ The length of the reference cavity is 45 cm. The mirrors have a radius of curvature of 228 mm that ensures all low-order transversal modes to be further than 40 MHz away from any longitudinal mode. The finesse of the cavity is 300. One of the mirrors sits on a PZT mounting, allowing the cavity resonance frequencies to be scanned. For a perfectly working stabilization, the cavity on which the laser frequency is locked defines the stability of the laser. It is therefore essential to guarantee good stability for the cavity modes, i.e., to protect them from mechanical, acoustic, and thermal noise. The cavity rod was made of Invar and was sustained inside a vacuum chamber.

As shown in Fig. 4, a part of the laser light was

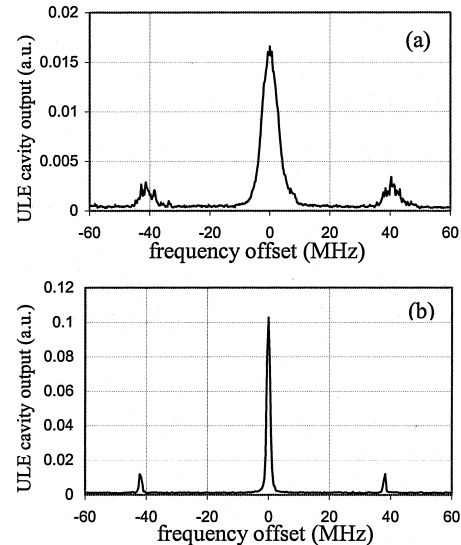


Fig. 5. Transmitted intensity through the supercavity versus the frequency offset between a resonant frequency of the supercavity and the laser frequency when (a) the laser frequency is unlocked and (b) the laser frequency is locked to a resonant frequency of an $F = 300$ cavity.

focused through an electro-optic modulator driven by a 40-MHz radio frequency that phase modulates the transmitted light. We observed the typical dispersion line shape given after demodulation by the signal reflected by the cavity.¹³ We adjusted the necessary quadrature of the demodulated signal by simply varying the length of the signal-carrying wires. This typical line shape has a steep central slope, which ensures a fast response to laser frequency fluctuations and is quite suitable as a frequency discriminator. The adjacent slopes are 40 MHz apart, so that the locking range is quite large. The error signal was fed back to the elements that control the laser frequency. A frequency switch separates the fast fluctuations (>100 Hz), which are fed directly to the laser current control from the slow fluctuations (<100 Hz), which are fed to the PZT that controls the translation of the grating in the extended cavity setup. The bandwidth of our feedback loop is currently limited by the bandwidth of the commercial laser diode current drive, which is approximately 100 kHz. To increase the bandwidth, one would have to bypass this current drive and to supply the diode directly.

We can evaluate the upper limit for the bandwidth of our laser by simply measuring its frequency resolution on a transmission curve of an independent supercavity with a finesse superior to 15,000 and a fixed length of 10 cm. This technique provides a somewhat absolute measure of the laser linewidth. Figure 5 shows the transmission spectrum of the output of the supercavity by scanning the diode laser longitudinal mode. In Fig. 5(a) we scanned the extended cavity setup by translating the grating, whereas in Fig. 5(b) we locked the diode laser to the

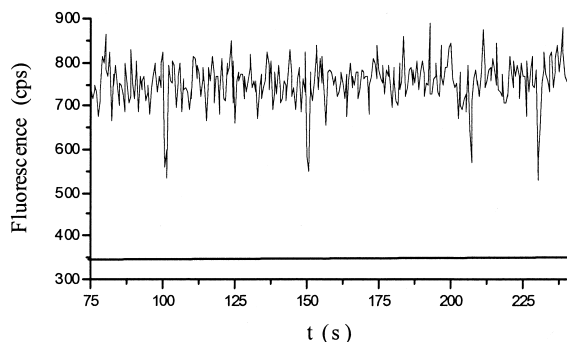


Fig. 6. Quantum jumps driven by the diode laser observed on two ions stored in a Paul–Straubel trap. The upper level corresponds to the fluorescence of two ions at 397 nm, the lower level is the fluorescence of only one of the two ions. The line at approximately 350 counts/s corresponds to stray light.

reference cavity and the length of the reference cavity was swept. The tiny sidebands at ± 40 MHz resulted from the electro-optic phase modulation and serve to calibrate the frequency axis. These curves were averaged over 64 scans and the duration of each was 140 ms with a 0.5-ms resolution. From these curves, the measured linewidth for the unlocked laser is 6.2 MHz. For the locked laser, the linewidth is inferior to 500 kHz. This remaining linewidth is principally due to mechanical and thermal noise of both the reference and the supercavities.

5. Resonance Excitation in Ions

The laser was used to drive the $4S_{1/2}-3D_{5/2}$ electric quadrupole transition of Ca^+ ions stored in a radio-frequency trap. This forbidden transition has a relaxation rate of approximately 1 photon/s and therefore does not allow direct observation of fluorescence scattering. However, by use of Dehmelt's quantum amplifier scheme,¹⁴ it was possible to monitor each single excitation process with a single ion by means of the sudden breakdown of the fluorescence from the simultaneously driven strong dipole transition. This random switching is the signature of quantum jumps. The quantum jump rate, depending on the excitation parameters such as laser intensity and detuning, forms the reference signal for locking the clock laser.

Ions have been confined and laser cooled in a miniature Paul–Straubel trap.¹⁵ Some hundreds of microwatts of the 729-nm diode laser have been focused onto the trapped particles, which was enough to induce quantum jumps. In this case, the fluorescence count rate for a single ion is approximately 200 counts/s with an overall scattered background of approximately 350 counts/s. The latter is due mainly to the scattering of the cooling laser at 397 nm. Figure 6 shows some of the quantum jumps of one ion observed on an ensemble of two ions.

6. Conclusion

To improve its spectral and spatial behavior, we set up a broad-area diode laser in an external cavity.

Single-mode output has a width of approximately 8 MHz and its transverse profile is nearly Gaussian and circular. This laser was stabilized with a low-finesse reference cavity within the range of a few hundred kilohertz. This linewidth reduction was obtained at the cost of a reduction in the useful optical power left for experimentation, which justifies the use of high-power semiconductor components. The diode laser we have presented constitutes a compact system that can be used to drive the clock transition of a proposed Ca^+ atomic clock in the optical range.

For future experiments, when ion cooling is sufficient to reach the Lamb–Dicke regime, the first-order Doppler effect would be discrete and the linewidth of the quadrupole resonance would drop to a value inferior to 1 kHz. To adjust the laser linewidth to the potential of the clock transition, it must be narrowed further. We intend to reduce the laser frequency fluctuations by increasing the feedback servo bandwidth and then by stabilizing the laser to a high-finesse cavity ($F > 15,000$). The mirrors of this second cavity are optically contacted on the spacer that is made of ultralow expansion (ULE) material. This cavity must be well isolated from mechanical, acoustic, and thermal fluctuations. Dye or solid-state lasers have already been stabilized in this way under the 1-Hz level.¹⁶ Single-mode diode lasers have been stabilized under the 10-Hz level,¹⁷ which limit we aim to reach with broad-area diode lasers.

References and Note

1. A. Bauch and H. R. Telle, "Frequency standards and frequency measurement," *Rep. Prog. Phys.* **65**, 789–843 (2002).
2. M. Knoop, M. Vedel, and F. Vedel, "Lifetime, collisional-quenching, and j -mixing measurements of the metastable $3D$ levels of Ca^+ ," *Phys. Rev. A* **52**, 3763–3769 (1995).
3. P. A. Barton, C. J. S. Donald, D. M. Lucas, D. A. Stevens, A. M. Steane, and D. N. Stacey, "Measurement of the lifetime of the $3d\ ^2D_{5/2}$ state in $^{40}\text{Ca}^+$," *Phys. Rev. A* **62**, 032503 (2000).
4. F. Neudel, S. Takatani, H. Reul, and G. Rau, "Effect of hemolysis on oxygen and hematocrit measurements by near infrared reflectance spectroscopy," *Med. Eng. Phys.* **24**, 301–307 (2002).
5. For more information see <http://www.appliedoptronicscorp.com>.
6. M. W. Fleming and A. Mooradian, "Spectral characteristics of external-cavity controlled semiconductor lasers," *IEEE J. Quantum Electron.* **QE-17**, 44–59 (1981).
7. A. Mooradian, "Cavity controlled semiconductor lasers," *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.* **6**, 1318–1324 (2000).
8. T. Pawletko, M. Houssin, M. Knoop, M. Vedel, and F. Vedel, "High power broad-area diode laser at 794 nm injected by an external cavity laser," *Opt. Commun.* **174**, 223–229 (2000).
9. G. L. Abbas, S. Yang, V. W. S. Chan, and J. G. Fujimoto, "Injection behavior and modeling of 100 mW broad area diode lasers," *IEEE J. Quantum Electron.* **24**, 609–617 (1988).
10. R. J. Lang, D. Mehuys, D. F. Welch, and L. Goldberg, "Spontaneous filamentation in broad-area diode laser amplifiers," *IEEE J. Quantum Electron.* **30**, 685–694 (1994).
11. M. Houssin, B. Fermigier, and M. Desaintfuscien, "Simulation of the frequency behavior of external-cavity semiconductor lasers," *IEEE J. Quantum Electron.* **39**, ●●●–●●● (2003), to be published.

12. P. Zorabedian, W. R. Trutna, and L. S. Cutler, "Bistability in grating-tuned external-cavity semiconductor lasers," *IEEE J. Quantum Electron.* **QE-23**, 1855–1987 (1987).
13. R. W. P. Drever, J. L. Hall, F. V. Kowalski, J. Hough, G. M. Ford, A. J. Munley, and H. W. Ward, "Laser phase and frequency stabilisation using an optical resonator," *Appl. Phys. B* **31**, 97–105 (1983).
14. H. G. Dehmelt, "Proposed visual detection laser spectroscopy on single Ba^+ ion," *Bull. Am. Phys. Soc.* **20**, 60–62 (1975).
15. 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**, 105–111 (2001).
16. B. C. Young, F. C. Cruz, W. M. Itano, and J. C. Bergquist, "Visible lasers with subhertz linewidths," *Phys. Rev. Lett.* **82**, 3799–3802 (1999).
17. C. H. Shin and M. Ohtsu, "Stable semiconductor laser with a 7-Hz linewidth by an optical–electrical double-feedback technique," *Opt. Lett.* **15**, 1455–1457 (1990).



3.3 Le montage expérimental

L'ensemble du montage expérimental est représenté sur la figure 3.6. Au centre se trouve le piège miniature dans son enceinte ultravide équipé de plusieurs hublots. La pression résiduelle est inférieure à 2×10^{-10} mbar, les pressions partielles des principaux composants de l'ultravide (notamment H_2), sont toutes inférieures à 1×10^{-9} mbar correspondant à la résolution du spectromètre de masse^(k) utilisé. La création des ions se fait par bombardement électronique d'un jet d'atomes de calcium issu d'un petit four. Le four est un tube de tantale de longueur 20 mm et d'un diamètre de 3 mm, rempli de grains de calcium. Ce tube est soudé à point sur fil de tungstène, un courant de 3 A pendant 35 secondes permet la création d'un nuage d'environ 50 ions. Le faisceau d'électrons est créé par un filament miniature de tungstène chauffé à un courant de 400 mA et polarisé à -10V. Tous ces éléments sont visibles sur la photo

^(k) Balzers QMG064

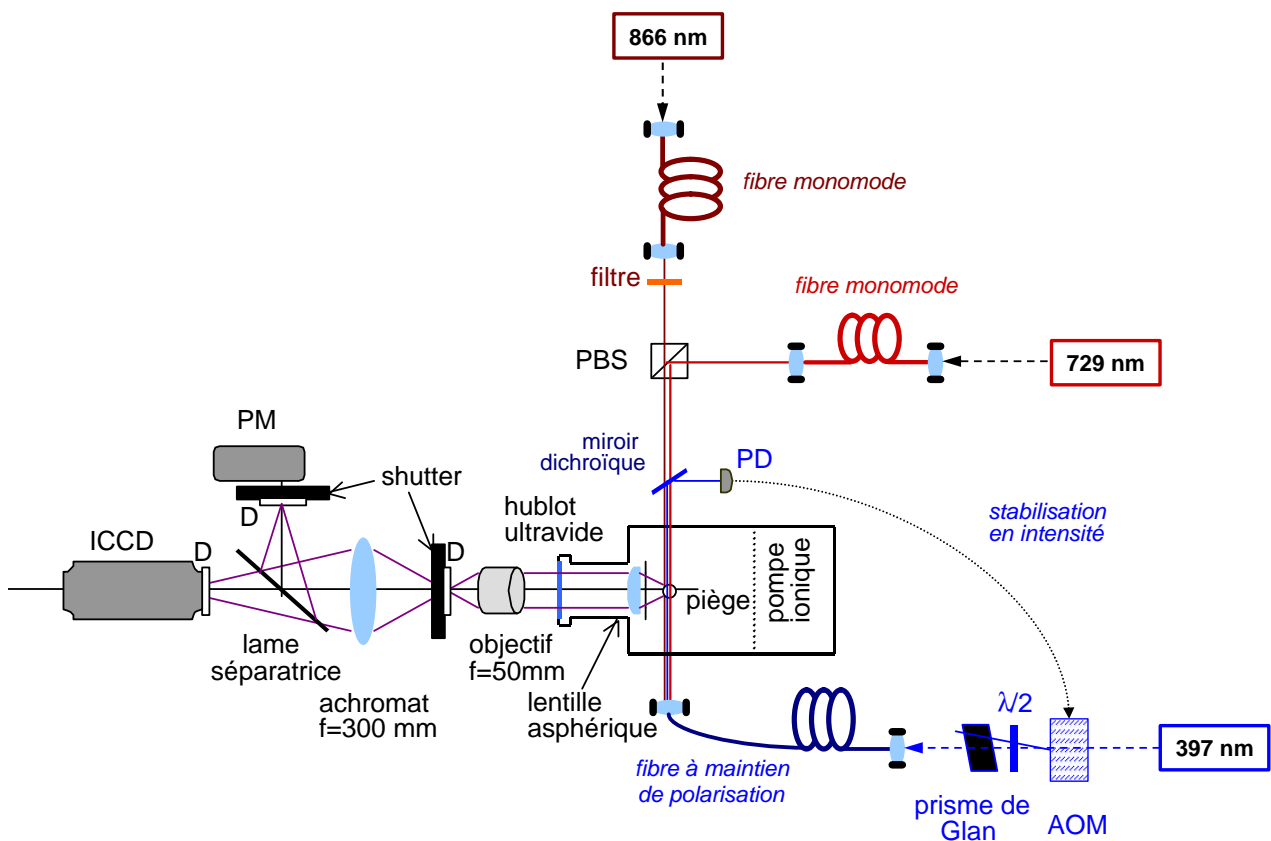


Fig. 3.6: Vue d'ensemble du montage expérimental

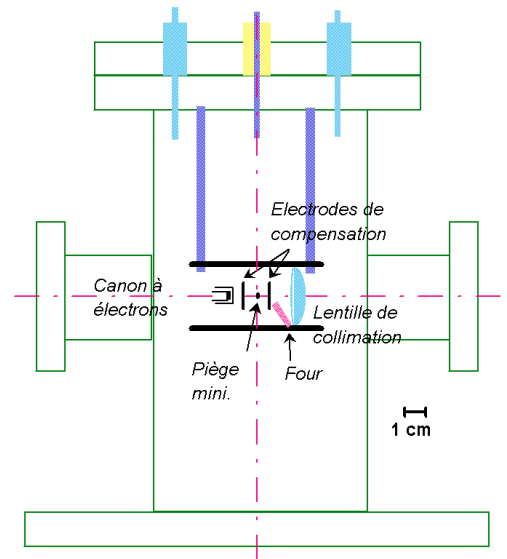


Fig. 3.7: Vue d'ensemble du montage expérimental

de la figure 3.2 et sur l'image 3.7. Les faisceaux lasers sont introduits par des fibres monomodes (866 nm, 729 nm) ou à maintien de polarisation (397 nm), ils sont focalisés dans l'enceinte à travers des fenêtres de Brewster. La configuration habituelle est la superposition des faisceaux laser à 866 nm et 729 nm à l'entrée de l'enceinte à l'aide d'un cube polariseur.

3.3.1 Optimisation du signal optique

La qualité du signal de fluorescence recueilli à l'extérieur de l'enceinte ultraviolette est en grande partie déterminée par la lentille de collimation⁽¹⁾ qui se trouve près du piège miniature dans l'enceinte à vide. Cette lentille asphérique a un très grand angle d'ouverture (presque 90°) afin de collecter un maximum de fluorescence, elle a l'inconvénient d'être de qualité optique médiocre ce qui limite la résolution de la détection spatiale par la caméra intensifiée. La voie de détection optique extérieure à l'enceinte ultraviolette a été modifiée plusieurs fois au cours de l'expérience pour trouver les meilleures conditions d'experimentation et optimiser le rapport signal sur bruit recueilli par le photomultiplicateur.

Une image du nuage est formée à l'extérieur de l'enceinte ultraviolette, un diaphragme de taille variable dans le plan image permet de sélectionner l'image du centre de l'anneau et de supprimer l'image de la structure métallique du piège sur laquelle le faisceau

⁽¹⁾ Melles Griot 01LAG117

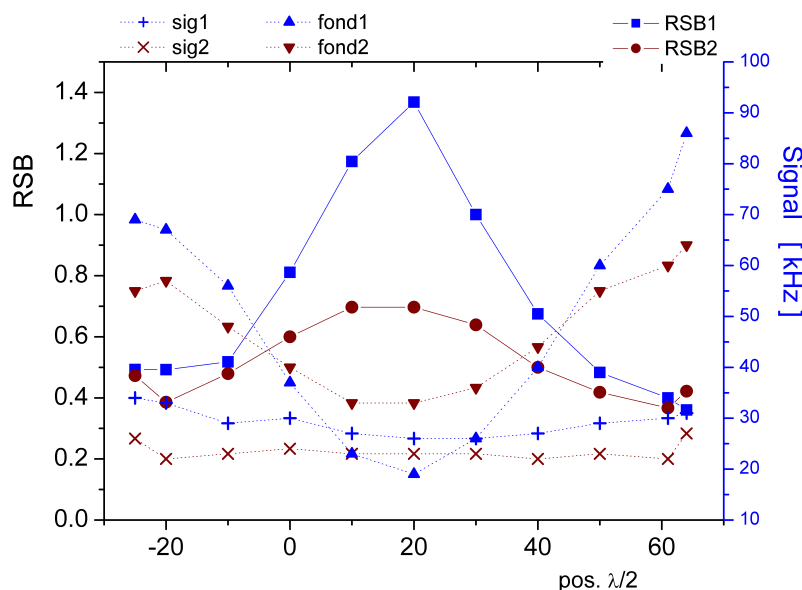


Fig. 3.8: Influence de l'orientation de la polarisation du laser bleu, 1 et 2 désignent deux polarisations orthogonales. Les variations du signal proviennent des variations de puissance du laser, ces courbes ayant été enregistrées sans la stabilisation en puissance du laser.

bleu est diffusé. Une lame séparatrice envoie une partie du faisceau sur le photomultiplicateur tandis que l'autre partie de la fluorescence est recueillie sur la caméra intensifiée.

Nous avons constaté expérimentalement que le rapport signal à bruit recueilli par le photomultiplicateur dépend de la polarisation du laser bleu d'excitation (voir figure 3.8). En effet, bien que le signal de fluorescence des ions ne change pas avec la polarisation du laser, le bruit de fond peut varier du simple au double. Ceci montre que la lumière parasite, réfléchiée sur les bords du piège ou sur d'autres surfaces n'est pas complètement dépolarisée.

3.3.2 La détection des ions

La détection d'un premier signal de fluorescence dans le piège miniature n'a pas été une chose facile. En fait, aucun paramètre expérimental n'était connu avec exactitude. Il s'agissait alors de trouver la bonne combinaison entre les positions des faisceaux lasers, leurs fréquences et intensités, l'estimation sur le point de fonctionnement du piège, les courants du four et du canon à électrons ainsi que leurs durées de chauffage. L'optique de détection devait être réglée de façon à supprimer le maximum de lumière parasite et d'avoir une certaine profondeur d'image afin de pouvoir recueillir le plus grand nombre de photons émis par le nuage, dont la position n'était pas connu à l'avance.

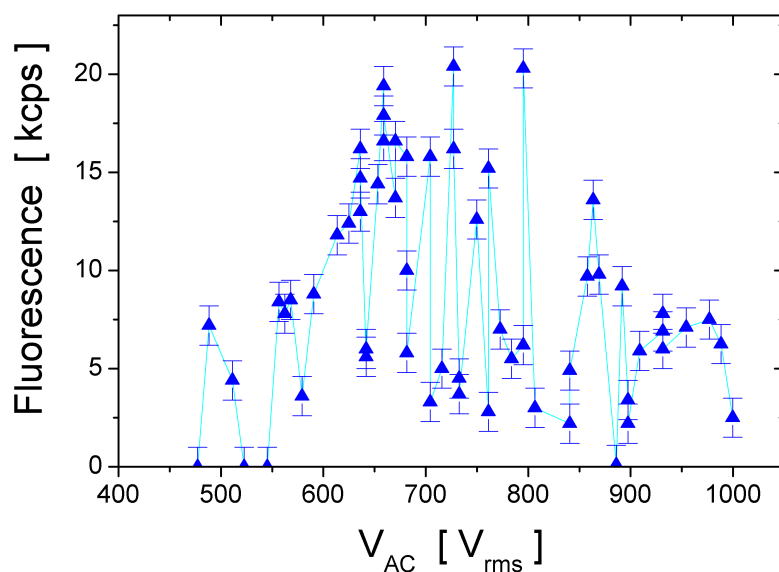


Fig. 3.9: Variation du signal de fluorescence d'un nuage en fonction du point de fonctionnement

Le premier signal de fluorescence dans le piège miniature a été détecté début juillet 1998 en utilisant une légère pression d'hélium ($p_{He} \approx 1 \times 10^{-7}$ mbar) pour refroidir les ions et prolonger leur durée de vie dans le piège. Nous avons rapidement pu optimiser un certain nombre de paramètres. L'optimisation du point de fonctionnement a été une des premières expériences. En effet, dans les autres pièges du laboratoire, nous avons pu observer des variations du signal dues à des couplages non-linéaires des fréquences de mouvement des particules confinées [77, 78]. Ce phénomène est également discuté dans la publication correspondante (page 61). La figure 3.9 montre le signal de fluorescence en fonction du point de fonctionnement de création. Tous les paramètres expérimentaux, notamment ceux concernant la création des ions ont été maintenus constants. Les très grandes variations du signal correspondent aux très grandes variations de l'efficacité de piégeage. Le choix précis d'un point de fonctionnement "à haute efficacité de confinement" s'imposait alors.

Par ailleurs, nous avons optimisé les paramètres des lasers pour la création et la détection du nuage d'ions comme représenté sur la figure 3.10. Le graphe de gauche montre différentes tailles de nuage en fonction du courant du four I_f , dans le graphe de droite le même nuage a été suivi à des points de fonctionnement q_z variés. Ce graphe montre également la variation dans l'efficacité du confinement puisque le signal de fluorescence enregistré à $q_z = 0.44$ est beaucoup plus bas que les points voisins.

3.3.3 Compensation du champ magnétique

Dans la phase ultime d'interrogation d'un ion $^{43}\text{Ca}^+$, un champ magnétique de quelques microteslas sera nécessaire pour lever la dégénérescence des états hyperfins et isoler la transition d'horloge choisie ($4S_{1/2}, F = 4, m_F = 0 \rightarrow 3D_{5/2}, F = 6, m_F = 0$) des transitions voisines ($4S_{1/2}, F = 4, m_F = \pm 1 \rightarrow 3D_{5/2}, F = 6, m_F = \pm 1$). La direction du champ magnétique par rapport à la polarisation et à la direction de propagation du laser d'horloge conditionne, elle, l'efficacité d'excitation par l'intermédiaire des règles de sélection des transitions quadrupolaires. Par conséquent, le champ magnétique local doit être contrôlé en amplitude et en direction. Dans l'expérience, un champ magnétique peut être appliqué par trois paires de bobines de Helmholtz.

Nous avons testé sur l'isotope $^{40}\text{Ca}^+$ un protocole de contrôle de la direction du champ magnétique local. Il repose sur le pompage optique du système atomique dans un état noir (non couplé aux lasers) quand le champ magnétique local est parallèle à la polarisation du laser repompeur à 866 nm. Quand la compensation du champ magnétique perpendiculaire à cette direction est obtenue, le signal de fluorescence recueilli devient nul (voir figure 3.11).

Même si un champ magnétique provoque un déplacement de la transition par effet Zeeman du deuxième ordre, quelques microteslas seront nécessaires pour isoler les transitions hyperfines qui serviront dans un étalon optique de fréquence basé sur l'ion $^{43}\text{Ca}^+$. L'amplitude du champ sera mesurée avec grande précision par le décalage en fréquence avec les transitions voisines, décalage qui est linéaire en champ magnétique.

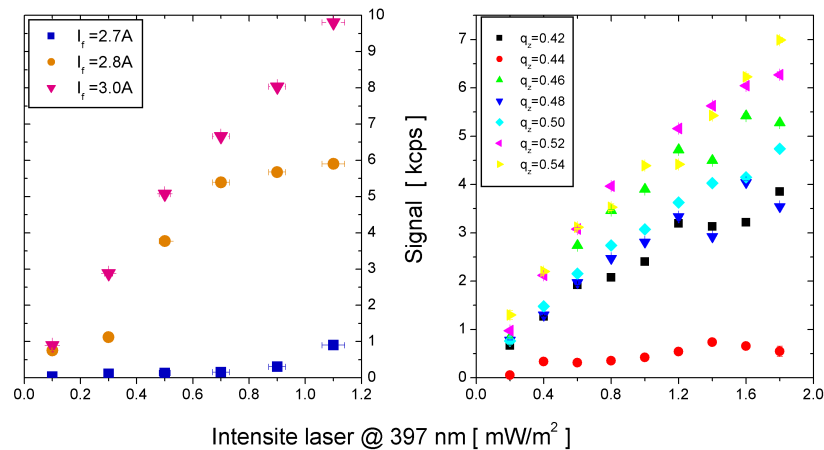


Fig. 3.10: Saturation du signal de fluorescence en fonction de la puissance laser bleue. I_f : courant du four, q_z point de fonctionnement du piège, plus de détails dans le texte.

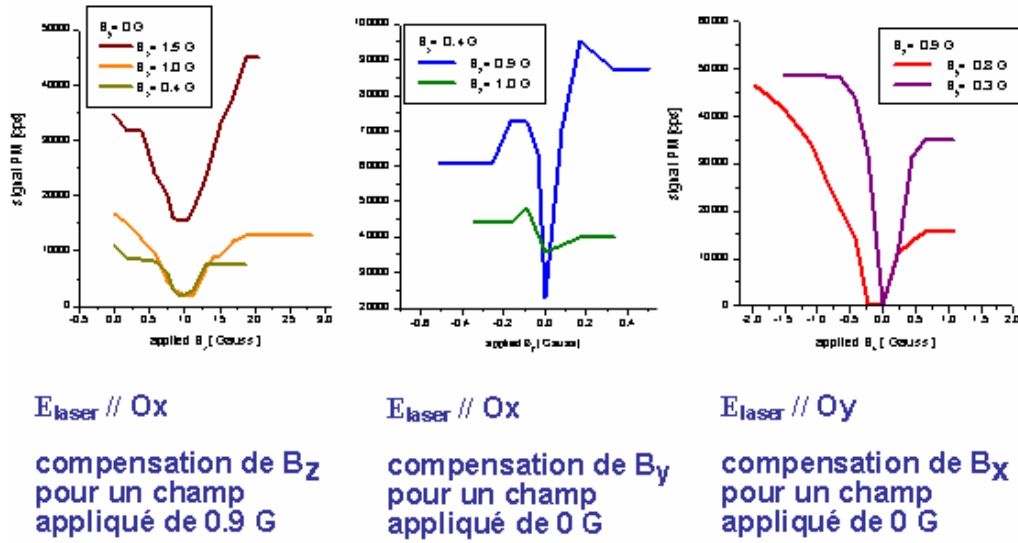


Fig. 3.11: Compensation du champ magnétique avec une expérience de type Hanle

3.4 Caractérisation du piège

Un piège miniature - bien que très similaire au piège de Paul idéal- ne peut pas être décrit exactement par les équations de Mathieu. Pendant la phase de conception du piège miniature actuel, j'ai effectué des simulations du potentiel créé pour assurer un piégeage harmonique au centre de la cage ainsi qu'un comportement techniquement réalisable. En effet, un piège cylindrique peut être décrit de façon approximative par des équations de Mathieu modifiées, telles que

$$a_z = \frac{8eU_{DC}}{mr_1^2\Omega^2\mathcal{L}} \quad \text{and} \quad q_z = -\frac{4eV_{AC}}{mr_1^2\Omega^2\mathcal{L}} \quad (3.1)$$

où r_1 est le rayon du piège cylindrique. \mathcal{L} est le facteur de perte qui prend en compte les déviations de géométrie du piège.

En mesurant les fréquences de mouvement des ions piégés nous avons pu déterminer \mathcal{L} dans notre piège. Ceci est une étape importante pour la bonne maîtrise de la cage à ions. Nous avons entrepris un travail de caractérisation précise du piège afin de contrôler ses paramètres au mieux. Ces travaux sont décrits en détail dans la publication suivante (page 61).

Eur. Phys. J. D **15**, 105–111 (2001)

**THE EUROPEAN
PHYSICAL JOURNAL D**

EDP Sciences
© Società Italiana di Fisica
Springer-Verlag 2001

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: mknoop@up.univ-mrs.fr

^b UMR 6633 CNRS-UAM1

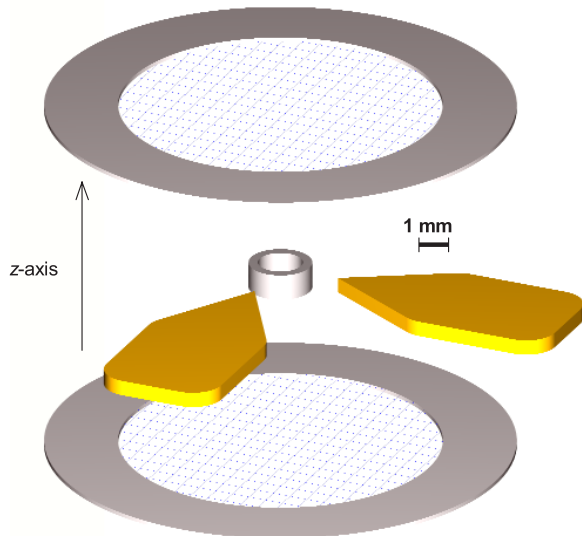


Fig. 1. Artist's view of the cylindrical miniature trap showing the different electrodes for correction of the trap potential.

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.

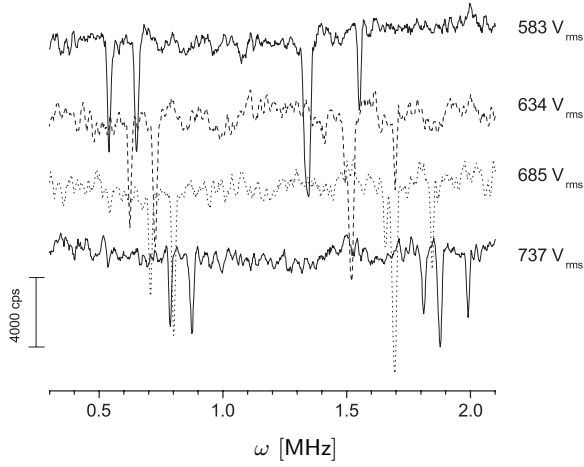


Fig. 2. Fluorescence at 397 nm as function of the applied tickle frequency. The graph shows part of the frequency spectrum of a small Ca^+ -ion cloud for different values of V_{AC} and $U_{\text{DC}} = 0$. Once the ions are in resonance with the excitation frequency, the energy absorption leads to a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

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

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

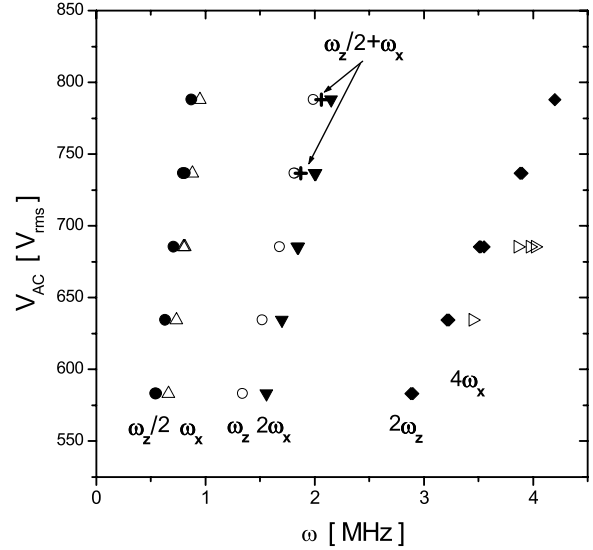


Fig. 3. The various observed frequencies of motion of the ion cloud obtained from frequency spectra as shown in Figure 2. Multiples, submultiples and couplings of the fundamental frequencies are obtained with a precision higher than 99%.

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 $U_{\text{DC}} = 0$, 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

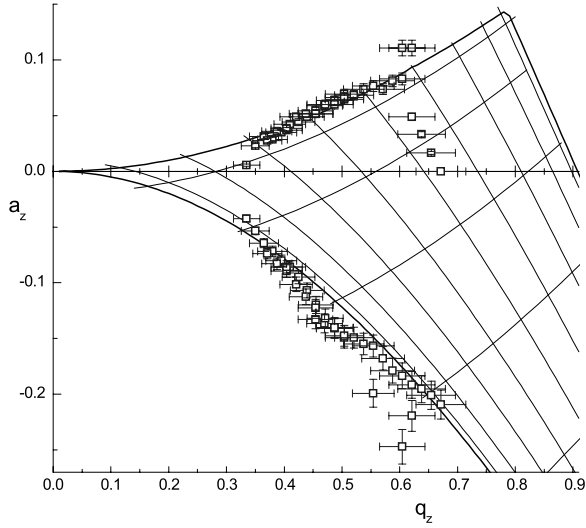


Fig. 4. Limits of the stability diagram as observed from the fluorescence of a small Ca^+ -ion cloud as compared to the stability diagram of an ideal Paul trap (solid lines). The observed right-hand-side limit corresponds to a $\beta_z = 1/2$ canyon, no ion could be confined beyond this boundary.

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

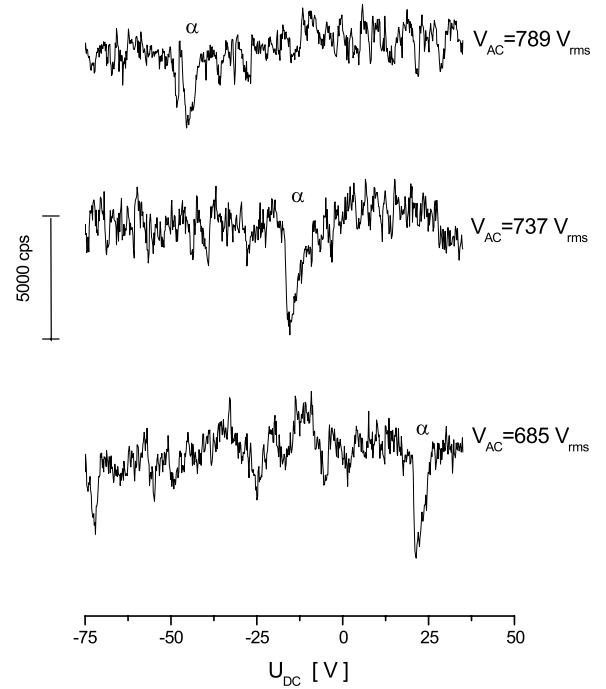


Fig. 5. Cross-section of the stability diagram for different values of V_{AC} . The canyon α – which corresponds to $\beta_z = 1/3$ – can be tracked for various working points.

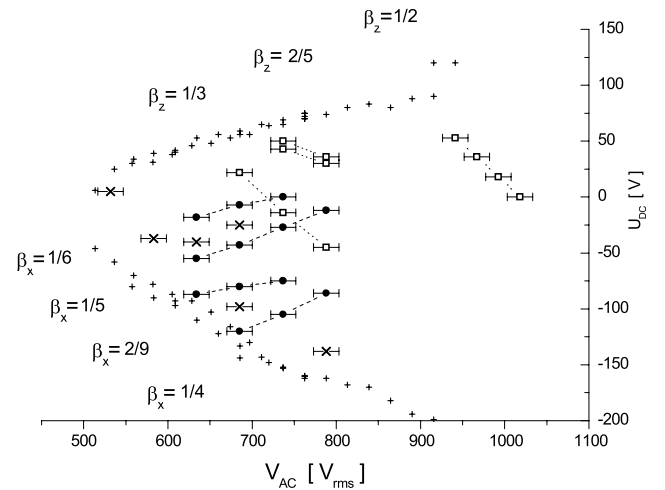


Fig. 6. “Black canyons” in a part of the stability diagram. Points of low confinement coincide with lines of constant rational β_x or β_z indicating a coupling of the macro- and the micromotion. The lines are a guide to the eye, and indicate points of identical β -value. (\square) and (\bullet) stand 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

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

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).

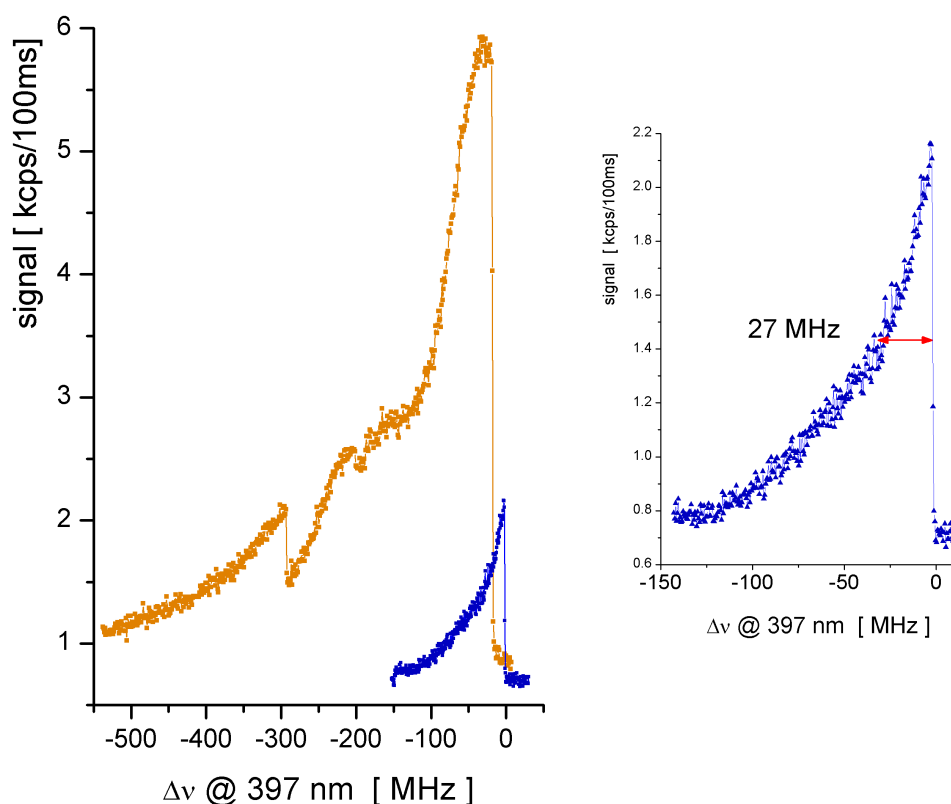


Fig. 3.12: Fluorescence d'un cristal de plusieurs ions (à gauche) et d'un ion unique de Ca^+ en fonction du balayage du laser bleu autour de la transition $4S_{1/2} - 4P_{1/2}$. La figure de droite montre un agrandissement du graphe d'un ion unique avec une largeur spectrale d'environ 27 MHz.

3.5 Préparation d'un ion unique et froid

C'est donc avec une très bonne connaissance des paramètres et performances du piège miniature que nous avons commencé à réduire le nombre d'ions confinés pour aboutir à un seul. Typiquement, au cours d'un processus de création nous obtenons un petit nuage de moins de cinquante ions. Il s'est avéré que expérimentalement le processus le plus efficace pour réduire le nombre d'ions était le chauffage des ions par laser.

Nous avons également fait des tests de création en réduisant les courants du canon à électrons et/ou du four pour ne créer qu'un seul ion. Ces expériences n'ont jamais été aussi rapides et régulières que la création d'un ion unique à partir d'un nuage. La meilleure stratégie dans notre expérience est de créer un petit nuage vers $q_z = 0.45 - 0.5$ avec beaucoup de puissance laser (plusieurs dizaines de μW pour les deux lasers), puis de l'amener vers $q_z \approx 0.31$ et de le réduire en taille. En général, un nuage d'environ

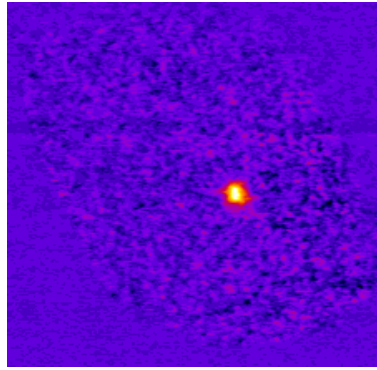


Fig. 3.13: Fluorescence d'un ion unique de Ca^+ dans le piège miniature vue par la caméra intensifiée (image en fausses couleurs).

dix ions cristallise alors quand on réduit l'intensité des lasers pour ne plus trop saturer les transitions. Les ions sont alors éjectés un par un en appliquant le laser bleu décalé vers des fréquences plus élevées (chauffage par laser), jusqu'au moment où il ne reste que deux ions dans le piège. Si le micromouvement est déjà bien compensé, il devient très difficile de jeter des ions, et surtout la probabilité que les deux ions soient éjectés est au moins aussi élevée que la probabilité de n'en éjecter qu'un seul. La figure 3.12 montre dans la courbe de gauche un cristal de plusieurs ions (5 - 6), la courbe de droite est la résonance d'un ion unique.

Quand un seul ion (figure 3.13) est confiné, les puissances laser sont réduites à moins de $10 \mu\text{W}$ pour à peine saturer les transitions atomiques. Le profil spectral de la transition $4S_{1/2} - 4P_{1/2}$ de refroidissement (figure 3.12) montre l'asymétrie typique, pour des fréquences plus élevées que la résonance : l'ion est chauffé, son signal de fluorescence chute alors abruptement. Dans un système à trois niveaux les largeurs spectrales observées dépendent en outre des intensités lasers, le spectre de fluorescence obtenu ne peut donc fournir qu'une estimation de l'énergie cinétique résiduel de l'ion. En approchant la largeur mesurée par la largeur d'un profil de Voigt résultant de la convolution de la largeur Doppler résiduelle avec la largeur naturelle de la raie, il est possible d'estimer, pour une largeur mesurée de 27 MHz, une température inférieure à 5 mK.

4. Spectroscopie des états 3D

Une étape importante de la préparation d'un ion unique pour la métrologie est la mesure de la durée de vie naturelle du niveau métastable $3D_{5/2}$, niveau d'énergie supérieur de la transition d'horloge $4S - 3D$. L'intérêt de cette mesure réside dans les informations qu'elle délivre sur l'état de l'environnement de l'ion piégé. En fait, il est important que le maximum d'effets pouvant réduire la durée de vie naturelle de l'état atomique et donc élargir la raie d'horloge, soit connu pour être éliminé. Nous avons commencé ces mesures par des expériences sur un nuage afin de préparer l'observation des sauts quantiques et d'évaluer la diode à 729 nm.

Toutes les mesures de durée de vie ont été effectuées en utilisant la méthode d'"electron-shelving" proposé par Dehmelt [79]. Le principe de cette méthode est de détecter la transition interdite, très faible, par l'intermédiaire d'une transition beaucoup plus forte, dans la plupart des cas la raie de résonance de l'espèce. Dans le cas du Ca^+ , les lasers de refroidissement sur les transitions $4S_{1/2}-4P_{1/2}$ à 397 nm et $3D_{3/2}-4P_{1/2}$ à 866 nm sont appliqués en permanence, la fluorescence est observée à 397 nm. L'application du laser d'horloge à 729 nm permet de pomper une partie de la population dans le niveau métastable $3D_{5/2}$ et va ainsi donner lieu à une diminution du signal de fluorescence observé.

4.1 Mesures d'"electron-shelving" sur un nuage

Dans le cas d'un petit nuage d'ions refroidi, l'application du laser sur la transition électrique quadrupolaire $4S_{1/2}-3D_{5/2}$ permet de pomper une partie de la population dans le niveau $3D_{5/2}$. Sur la figure 4.1 b), le laser est appliqué vers $t = 3, 5$ s, le niveau de lumière parasite dans le cas présenté se situe vers un signal d'environ 500 u.arb., la moitié des ions est donc pompée dans le niveau métastable. Selon la puissance, la focalisation et le réglage du laser, le système tend vers un état d'équilibre au bout de plusieurs secondes. Le laser à 729 nm est alors coupé et les ions vont relaxer dans le niveau fondamental reprenant le cycle de fluorescence induit par les lasers de refroidissement. La constante de temps de la remontée du signal correspond à la durée de vie de l'état métastable étudié. La partie a) de la figure 4.1 montre les résultats d'une étude numérique simulant l'évolution du système atomique à travers la population dans l'état

atomique $4P_{1/2}$ pour une bonne maîtrise des paramètres expérimentaux.

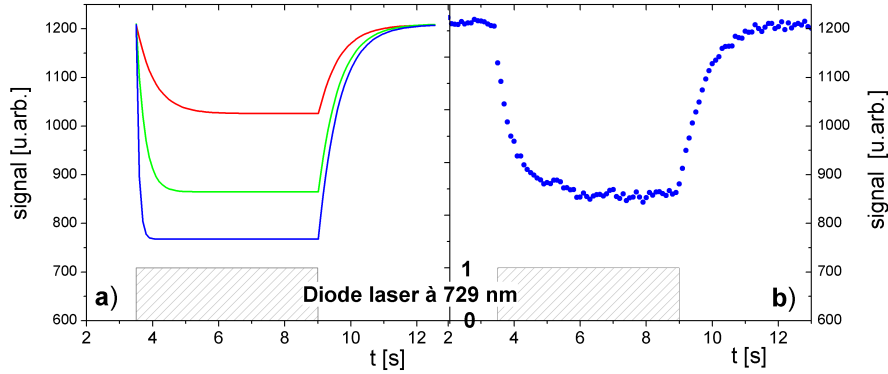


Fig. 4.1: *Electron-shelving dans un nuage. a) Simulations à l'aide du formalisme de la matrice-densité. b) Fluorescence observée sur un nuage de moins de 50 ions. le niveau de lumière parasite est situé vers environ 500 u.arb.*

Le signal de remontée de la fluorescence est ajusté par la fonction

$$S(t) = I_0 + I_1 [1 - \exp(-\gamma t)] \quad (4.1)$$

où I_0 (I_1) représente le niveau bas (haut) du signal, et γ est l'inverse de la constante de temps régissant l'exponentielle. En effet, γ est définie uniquement pour le jeu des paramètres expérimentaux auquel la mesure a été effectuée. Divers effets peuvent réduire la durée observée, pour atteindre la valeur exacte il est indispensable de tenir compte de tous ces effets. Pour contrôler les paramètres de l'expérience, nous avons fait des mesures en fonction de l'intensité laser à 397 nm, de l'intensité laser à 866 nm, de la fréquence du laser à 729 nm, et de la profondeur du puits de potentiel. Dans la limite des barres d'erreurs statistiques, aucune influence de ces paramètres n'a pu être déterminée. Au total, nous avons exploité une quarantaine de fichiers comprenant entre 25 et 94 valeurs chacun. La durée de vie naturelle que nous avons ainsi déterminée pour le niveau métastable $3D_{5/2}$ est de $\tau_{nat} = 1095 \pm 27$ ms, où la barre d'erreur correspond à 1σ . Cette valeur est déduite de 1764 ajustements de courbe pondérés.

Les fluctuations de valeurs dues à la méthode d'exploitation des données présentent la plus grande contribution à la barre d'erreur. Plusieurs sources d'incertitude existent, comme par exemple le point exact de coupure de la diode laser à 729 nm, la méthode de l'ajustement et surtout la méthode de détermination de la valeur moyenne. En effet, nous avons simulé des données avec le même niveau de bruit que nos données expérimentales et dont les constantes de temps étaient bien définies. Le traitement de ces données a montré une différence de résultats entre les moyennes arithmétiques,

géométriques et harmoniques. Par ailleurs, des différences peuvent exister si on moyenne les valeurs données par un ajustement, ou si on ajuste des courbes moyennées. Ceci n'est pas provoqué par la stabilité des paramètres expérimentaux, mais pourrait traduire un léger défaut de synchronisation au cours de l'acquisition des données. L'incertitude totale due à la méthode d'analyse de données est d'environ 1,6 %.

Nous estimons la contribution des défauts expérimentaux, comme par exemple la synchronisation au cours de la procédure d'acquisition de données à environ $4 \times 10^{-3} s^{-1}$. Les effets physiques réduisant la durée de vie mesurée seront discutés en section 4.3, leur contribution totale dans la mesure sur un nuage est inférieure à $16 \times 10^{-3} s^{-1}$.

4.2 Observation des sauts quantiques d'un ion unique

Si on applique la technique de l'électron-shelving à un ion unique, le signal de fluorescence devient binaire : Soit l'ion se trouve dans le cycle de refroidissement (niveaux $4S_{1/2} - 4P_{1/2} - 3D_{3/2}$) et émet des photons à 397 nm, le signal est "haut". Soit l'ion a été excité dans le niveau métastable $3D_{5/2}$ et le signal de fluorescence est "bas". Dans ce dernier cas, au cours de la mesure de la durée de vie, le laser à 729 nm doit impérativement être coupé pour éviter tout couplage du niveau métastable avec d'autres niveaux atomiques. La résolution temporelle minimale est déterminée par le rapport signal sur bruit qui peut être atteint dans l'expérience, les deux niveaux de signal doivent être séparés suffisamment pour que l'on puisse fixer un seuil net entre les deux. Dans notre expérience la résolution temporelle minimale pour l'observation des sauts quantiques était de 13 ms (figure 4.2). L'histogramme des durées de signal "bas" équivaut

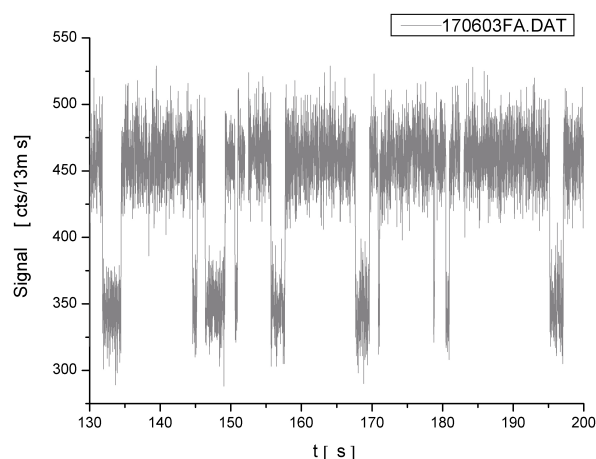


Fig. 4.2: Sauts quantiques dans la fluorescence d'un ion unique, observés sur une échelle de temps de 13 ms par point.

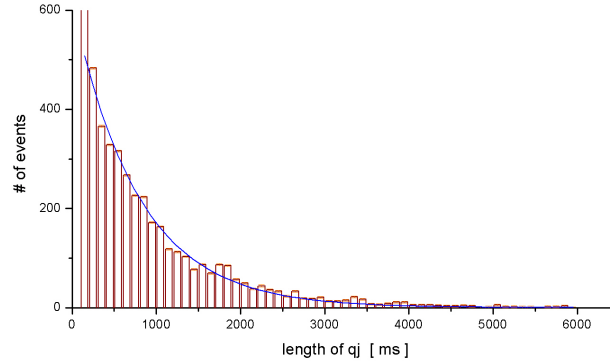


Fig. 4.3: *Histogramme des sauts quantiques, représentant la décroissance exponentielle du niveau $3D_{5/2}$.*

à la décroissance exponentielle du niveau $3D_{5/2}$ (figure 4.3), toujours pour un jeu de paramètres expérimentaux donné.

Puisque nous avons constaté l'influence de la méthode d'analyse des données dans le cas des mesures sur un nuage, nous étions également plus avertis en considérant les sauts quantiques d'un ion unique. Jusqu'ici, dans la plupart des cas, les décroissances exponentielles des histogrammes des sauts quantiques étaient ajustés par des fonctions exponentielles [80, 81, 82]. Or, le nombre de sauts dans les canaux correspondants aux très longues durées ne justifie pas l'utilisation d'une telle méthode. Vu les très petits nombres de sauts dans certains canaux, le résultat doit être calculé en utilisant un estimateur du maximum de vraisemblance. Par des simulations numériques nous avons notamment pu démontrer que la différence de résultat entre les deux méthodes peut atteindre 15% (pour plus de détails voir la publication jointe).

4.3 La durée de vie de l'état $3D_{5/2}$

Chaque valeur de durée de vie mesurée dans un nuage ou avec un ion unique est définie par le jeu de paramètres expérimentaux auquel elle est effectuée. Il convient alors de tenir compte de l'environnement et de l'état de préparation de l'ion afin de contrôler la réduction de la durée de vie naturelle du niveau atomique. La probabilité de désexcitation mesurée est liée à la durée de vie naturelle par

$$\gamma_{mes} = \tau_{nat}^{-1} + n_B (\Gamma_{quench} + \Gamma_{mix}) + \gamma_{chauff} + \gamma_{perte} + \gamma_{coup} \quad (4.2)$$

Dans le tableau 4.1, les principaux effets et leurs influences relatives sont expliqués.

Pour déterminer l'influence des gaz résiduels sur la désexcitation collisionnelle de l'état métastable, nous avons utilisé les taux de réaction mesurés sur un nuage d'ions

	<i>nuage d'ions</i> [$10^{-3}s^{-1}$]	<i>ion unique</i> [$10^{-3}s^{-1}$]
collisions avec le gaz résiduel $p_{tot} \leq 5 \times 10^{-10}$ mbar $p_{H_2} = 2 \times 10^{-9}$ mbar	$n_B \Gamma_{quench} \leq (1.8 \pm 0.7)$ $n_B \Gamma_{mix} \leq (14 \pm 10)$	$n_B \Gamma_{coll} \leq 3$
chauffage des ions	$\gamma_{chauff} \leq 1$	-
perte des ions	$\gamma_{perte} \leq 7$	-
couplage par laser à 866 nm à 729 nm	$\ll \sigma$ coupure du laser	extrapolation à $P_{866}=0$ coupure du laser

Tab. 4.1: Les différents effets de désexcitation

[83, 84]. Dans le cas d'un ion unique ce taux a pu être estimé en observant l'ion pendant environ une heure avec seulement les lasers de refroidissement appliqués. Pendant cette période des sauts quantiques induits par des collisions avec les gaz résiduels ont été comptés. Il s'agit d'environ 1 saut vers le niveau $D_{5/2}$ toutes les 5 minutes, tous niveaux d'origine confondus.

Le chauffage des ions au cours de l'intervalle pendant lequel il n'est pas en interaction avec les lasers de refroidissement peut être estimé dans le cas d'un nuage à partir des variations de signal. Il est néanmoins très faible, puisqu'une fraction des ions est refroidie continuellement par des interactions coulombiennes, un équilibre thermique est ainsi maintenu dans le nuage [85]. De plus, l'ion est refroidi pendant au moins 10 à 30 points d'observation à son retour dans le cycle de refroidissement. Le niveau du signal de fluorescence est vérifié en permanence afin d'éviter une dérive en fréquence des lasers et donc une chute de l'efficacité du refroidissement.

La perte des ions au cours des cycles de mesures peut avoir une influence sur le niveau du signal d'un nuage. La perte maximale entre le début et la fin de la mesure (environ une à deux heures) est inférieure à un pour cent. Dans le cas d'un ion unique, la perte d'ion arrive très rarement, un nouvel ion doit alors être créé. Par mesure de précaution nous ajoutons un temps d'attente après la création d'environ 20 minutes afin que toutes les pressions partielles (notamment H_2 et H_2O) soient redescendues aux valeurs antérieures.

Pour éviter un couplage par le laser à 729 nm, ce laser est coupé par un shutter mécanique dès qu'un saut quantique est détecté. Pour ne pas tenir compte des points au cours desquels le laser est encore allumé ainsi que pour écarter toute influence des fluctuations éventuelles du signal, uniquement les sauts d'une longueur supérieure à 5 points de mesure sont pris en compte. Dans l'ajustement de l'exponentielle ceci correspond à une coupure de l'exponentielle au niveau des premiers points ce qui n'a

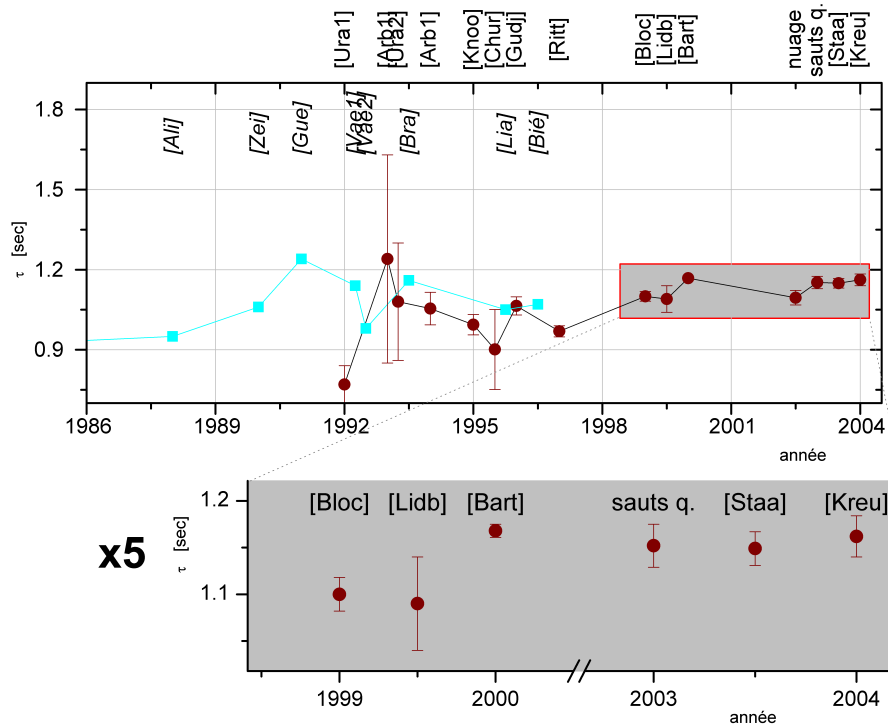


Fig. 4.4: Synthèse des valeurs mesurées et calculées pour la durée de vie du niveau $3D_{5/2}$.

pas d'influence sur la constante de temps de la décroissance.

Par ailleurs, le laser à 866 nm couple le niveau $3D_{5/2}$ aux niveaux $4P$. Cet effet a été mise en évidence par [82], il peut avoir une influence très importante. Il convient alors de mesurer la durée de vie pour différentes puissances optiques à 866 nm afin de pouvoir extrapoler à puissance zéro.

Ces expériences sont décrites en détail dans la publication jointe (page 77). La figure 4.4 montre une synthèse des valeurs pour la durée de vie du niveau $3D_{5/2}$ mesurées et calculées au cours des dernières années. La convergence des valeurs vers environ 1150 ms est très bien visible, les expérimentateurs semblent être désormais assez d'accord sur la durée de vie du niveau $3D_{5/2}$ de l'ion Ca^+ .

Eur. Phys. J. D (2004)
DOI: 10.1140/epjd/e2004-00022-6

**THE EUROPEAN
PHYSICAL JOURNAL D**

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

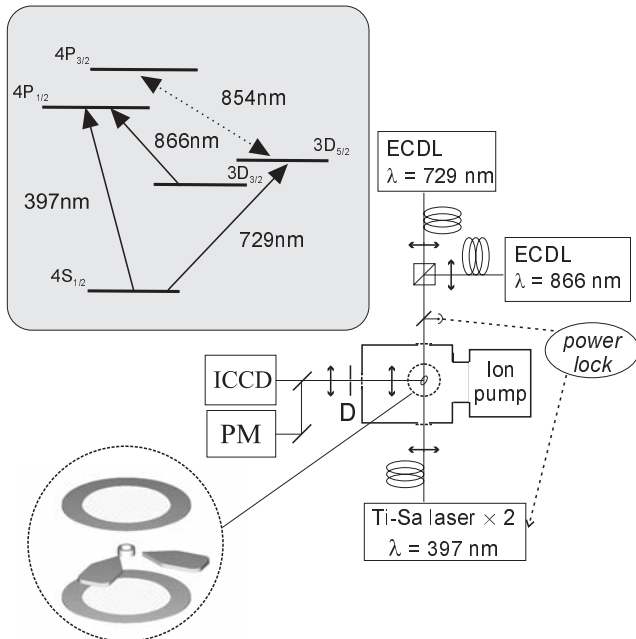


Fig. 1. Experimental set-up of the miniature ion trap. The insets show the Ca^+ lowest lying levels and the geometry of the miniature trap surrounded by the four compensation electrodes.

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 pseudo-potential 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 μW in the case of an ion cloud, and an order of magnitude lower for a single ion, focussed in a 20 μm -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 μW focussed into a 70 μm -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 μW per 60 μm -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 μm) 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 10 000 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 $\tau_{nat} = 1095$ ms with an 1σ -statistical uncertainty of 7.5 ms.

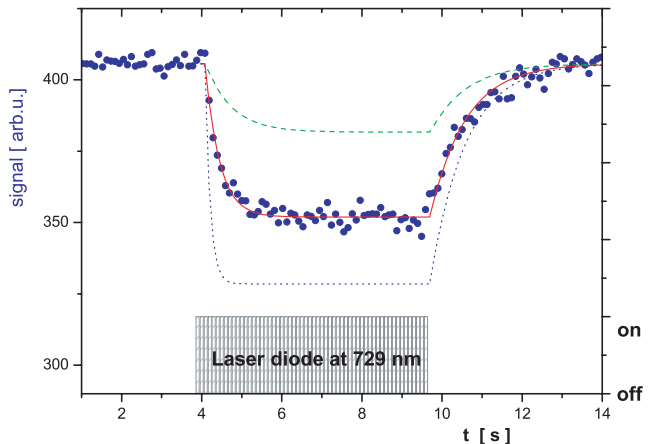


Fig. 2. Electron-shelving data in an ion cloud. The applied 729-nm laser power has been recorded simultaneously and is shown in the lower trace. The lines show simulation data by the density matrix formalism with various power levels for the probing laser at 729 nm ($0.25I_0$ (dashed), I_0 (solid), $4I_0$ (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 ($t = 4-9$ 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

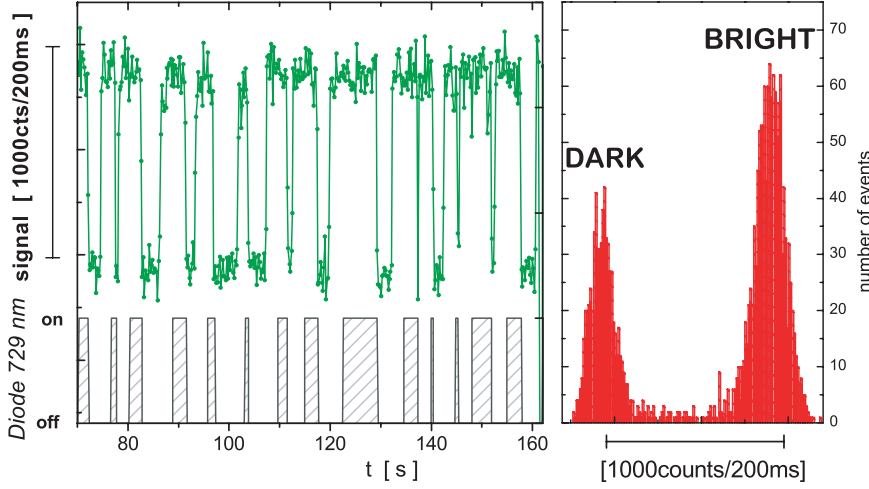


Fig. 3. *Left:* quantum jumps of a single Ca^+ ion in the temporal evolution of the fluorescence signal, the lower trace shows the switching of the exciting diode laser at 729 nm; *right:* histogram of the fluorescence signal visualizing the distinction between the upper and the lower trace.

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-

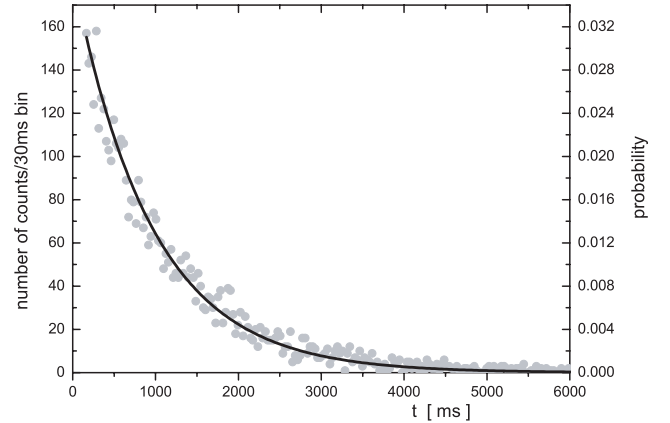


Fig. 4. Histogram of the duration of the measured dark intervals observed with a single ion. The left y -axis scale represents the absolute event counts, while the right scale indicates the probability of the event.

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.

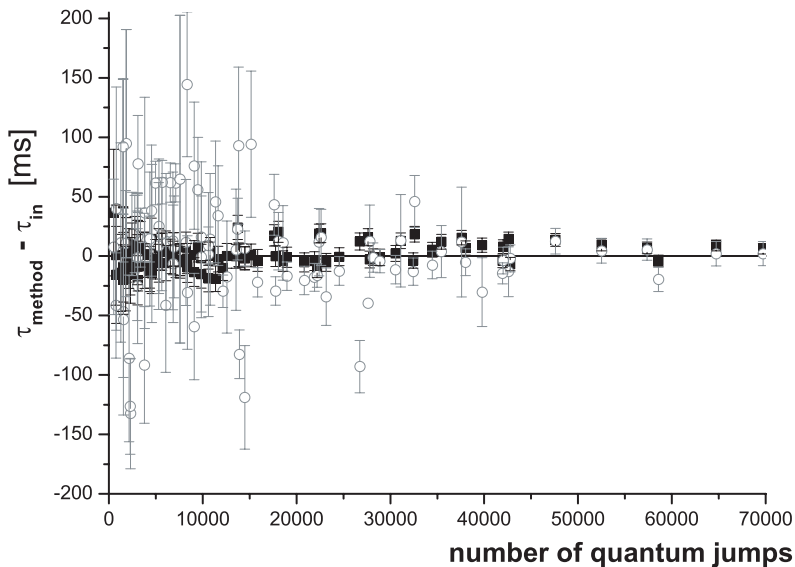


Fig. 5. Comparison of simulated lifetime data using MLE (■) and LSF (○) as a function of the number of quantum jumps. The graph shows the difference between the evaluated lifetimes and the lifetime injected into the simulation process (τ_{in}). Both methods tend to produce identical results on a 2%-level 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 $\tau = 1095$ ms	LSF $\tau = 1088$ ms	MLE $\tau = 1152$ 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

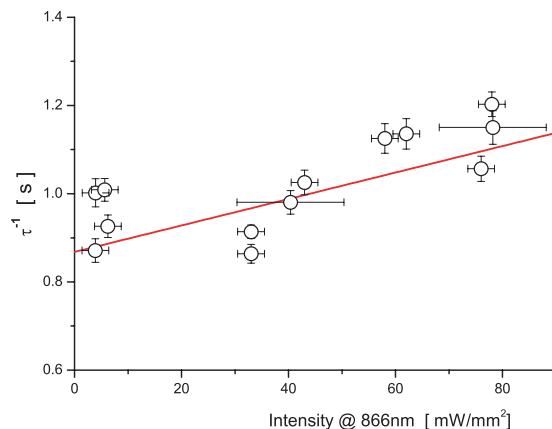


Fig. 6. De-shelving effect due to the intensity of the 866 nm radiation. The y -error bar represents the 1σ -statistical uncertainty for the MLE of each point, while the x -error bar stems from the uncertainty in the evaluation of the laser intensity seen by the ion. For the extrapolation of the data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

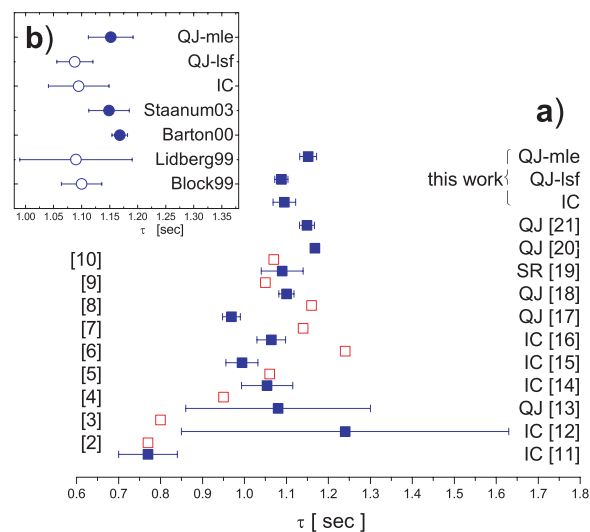


Fig. 7. (a) Comparison of theoretical (\square) and experimental (\blacksquare) lifetimes for the $3D_{5/2}$ -level of singly-ionized calcium, measurements have been made on ion clouds (IC), single ions (QJ), or in a storage ring (SR). (b) Zoom of the six most recently measured lifetimes, represented 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 Århus 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 Staunum, David Lucas and Bruno Torr sani. Our project has been financially supported by the Bureau National de M trologie.

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. Staunum, 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)

4.4 La durée de vie de l'état $3D_{3/2}$

Une expérience de mesure de la durée de vie du niveau $3D_{3/2}$ avec un ion unique est en cours pour compléter l'étude spectroscopique. Ce niveau est impliqué dans le cycle de refroidissement laser, des sauts quantiques ne peuvent donc pas être observés directement. Pour pallier à ce manque, un protocole de mesure initialement proposé pour l'ion Ba^+ [86] est appliqué à l'ion Ca^+ (voir figure 4.5). En effet, le niveau étudié $3D_{3/2}$ est peuplé en coupant les lasers de refroidissement, dans l'ordre 866 nm (t_1) puis 397 nm (t_2). Après un temps d'attente variable, le laser à 729 nm est appliqué à l'ion (t_3), puis le niveau de fluorescence est sondé en rallumant les lasers de refroidissement (t_4). Au cas où l'ion s'était désexcité dans le niveau fondamental pendant la durée d'attente, le niveau de fluorescence sera bas, puisqu'il y a eu pompage optique dans le niveau $3D_{5/2}$. Dans le cas contraire, où l'ion se trouve toujours dans le niveau $3D_{3/2}$, le niveau de fluorescence sondé est haut. Moyennant la probabilité d'excitation dans le niveau $3D_{5/2}$, la décroissance du niveau $3D_{3/2}$ peut ainsi être mesurée indirectement. La technique de mesure est donc une technique de statistique de sauts quantiques, le niveau est préparé, évolue, puis est sondé, le résultat de mesure est "haut" ou "bas" ou plutôt "1" ou "0". Ce principe s'appliquera dans l'avenir à toutes les expériences envisagées pour sonder la transition d'horloge. Bien que plus fastidieuse à mettre en oeuvre, cette méthode a le très grand avantage que l'interrogation de l'ion se fait avec les lasers de refroidissement éteints, et évite ainsi tout déplacement du à l'intensité des lasers (light shift).

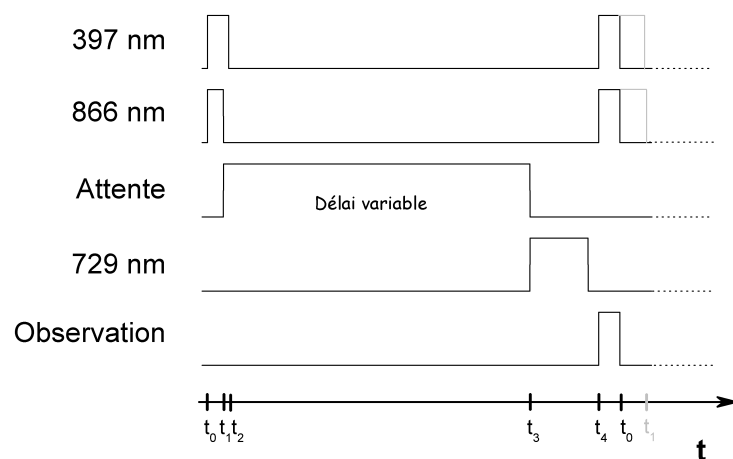


Fig. 4.5: Protocole de mesure de la durée de vie du niveau $3D_{3/2}$. Le résultat de la mesure est "1" ou "0" (voir texte).

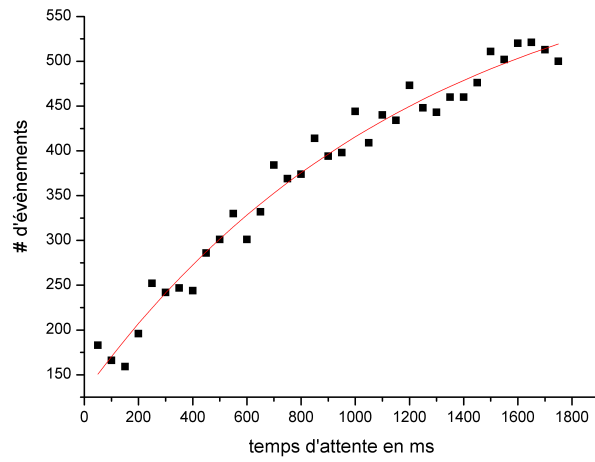


Fig. 4.6: Mesure de la durée de vie du niveau $3D_{3/2}$

Une courbe préliminaire de la désexcitation du niveau $3D_{3/2}$ se trouve dans la figure 4.6, la durée de vie estimée à partir de ces données est d'environ 1230 ± 200 ms, durée qui est en très bon accord avec les mesures antérieures des durées de vie.

5. La voie vers le régime de Lamb-Dicke

Le mouvement de l'ion unique dans le piège radiofréquence est décrit par les équations de Mathieu [1]

$$\frac{d^2u}{d\tau^2} + [a_u - 2q_u \cos(2\tau)] u = 0 \quad \text{avec} \quad \tau = \frac{\Omega}{2}t \quad (5.1)$$

dans les trois directions $u = x, y, z$. Les valeurs des coefficients a_u et q_u qui déterminent la zone de confinement stable d'une particule sont définies par la fréquence de confinement $\Omega/2\pi$ et son amplitude V_{AC} , la tension continue superposée U_{DC} , la taille du piège, notamment son rayon r_0 ainsi que le rapport e/m de l'espèce confinée, tel que :

$$-2a_x = -2a_y = a_z = \frac{8eU_{DC}}{mr_0^2\Omega^2} \quad (5.2)$$

et

$$-2q_x = -2q_y = q_z = -\frac{4eV_{AC}}{mr_0^2\Omega^2} \quad (5.3)$$

Au premier ordre la solution stable de l'équation de Mathieu (5.1) s'écrit

$$u(t) = (D_u + R_u \cos \omega_u t) \left(1 + \frac{q_u}{2} \cos \Omega t\right) \quad (5.4)$$

Le mouvement de l'ion peut être décomposé en deux contribution : une oscillation harmonique à la fréquence $\omega_u/2\pi$ et amplitude R_u dans le puits de pseudo-potentiel, appelée mouvement séculaire ou macro-mouvement, et qui peut être refroidie par laser ainsi qu'un mouvement à la fréquence de confinement $\Omega/2\pi$, non-refroidissable car forcé. Selon l'équation 5.4, une amplitude R_u plus petite réduit également la contribution du micro-mouvement. Un déplacement D_u de la position moyenne de l'ion du centre du piège, causé par des défauts dans le potentiel de confinement, induit une amplitude de micro-mouvement "excessive" qui peut empêcher l'immobilisation de l'ion. Une revue très détaillée des causes et conséquences du micro-mouvement est donnée dans [87].

Si l'excès de micro-mouvement est éliminé et l'ion refroidi par laser est localisé à mieux qu'une fraction de la longueur d'onde émise, son spectre de fluorescence devient discret, sous condition que la largeur spectrale de la transition observée soit inférieure à la fréquence séculaire de l'ion ($\gamma \ll \omega_u$). Cette localisation dans le régime de Lamb-Dicke [34] engendre la discretisation du spectre et supprime l'élargissement par effet

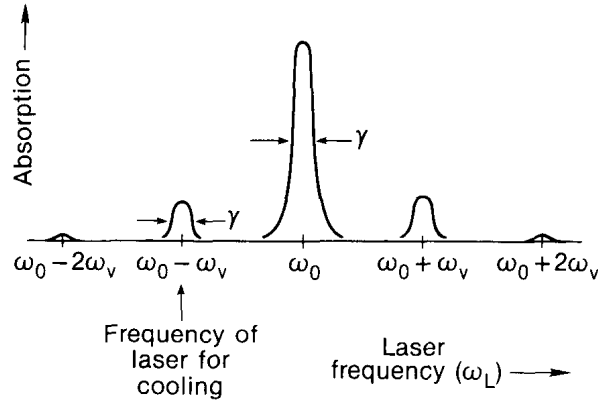


Fig. 5.1: Spectre d'un ion dans le régime de Lamb-Dicke [11]

Doppler du premier ordre. Le spectre d'absorption de l'ion dans le régime de Lamb-Dicke est composé d'une porteuse centrale à la fréquence de la transition atomique ν_0 ainsi que des bandes latérales distantes des multiples de la fréquence du mouvement ω_u . Idéalement, cet état est atteint pour un ion bien refroidi. Très peu de bandes latérales restent alors dans le spectre de l'ion qui se présente comme dans la figure 5.1. L'effet de modulation de fréquence est un atout des pièges radiofréquences, il permet d'accéder à des largeurs de raie très fines aux énergies cinétiques de l'ion correspondants à environ 1 mK, où l'élargissement Doppler est normalement de l'ordre de MHz pour une transition optique.

Dans l'expérience Ca^+ , ce régime ne peut être atteint qu'avec la très fine transition d'horloge. La localisation de l'ion pour une température donnée est conditionnée par sa fréquence séculaire (illustré dans la figure 5.2). Ainsi à la limite Doppler du refroidissement laser ($T_D = 0.55$ mK), l'amplitude du mouvement séculaire est de 93 nm pour $\omega_u/2\pi = 1$ MHz.

Avec l'obtention du spectre discretisé, une deuxième étape de refroidissement devient possible : le refroidissement par bandes latérales qui permet de restreindre la distribution énergétique de l'ion aux niveaux vibrationnels les plus bas du piège [56].

Une description plus adaptée du mouvement de l'ion se fait alors par sa distribution de phonons ou le taux d'occupation des niveaux quantiques de vibration n , caractérisé par la moyenne $\langle n \rangle$. Dans l'approche classique, l'amplitude d'oscillation de l'ion s'écrit $X = \lambda_u \sqrt{2\langle n \rangle + 1}$, où λ_u est l'extension de l'état fondamental de l'oscillateur harmonique $|n = 0\rangle$ défini comme $\lambda_u = \sqrt{\hbar/2m\omega_u}$. L'influence du potentiel de confinement devient bien lisible ici, à $\langle n \rangle$ égal, l'amplitude d'oscillation est réduite pour une fréquence séculaire plus élevée. A titre d'exemple λ_u vaut ainsi 11 nm pour

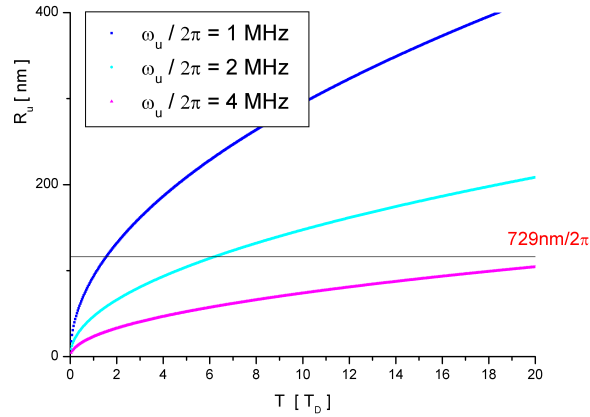


Fig. 5.2: Amplitude d'excursion R_u de l'ion dans le piège miniature avec différentes fréquences séculaires ($\omega_u/2\pi$). La température est donnée en multiples de la limite de refroidissement Doppler T_D .

$\omega_u = 1 \text{ MHz}/2\pi$, ce qui résulte en un $\langle n \rangle \approx 35$ pour la limite Doppler du refroidissement.

Considérons le système à deux niveaux ($4S_{1/2} - 3D_{5/2}$) couplé à un oscillateur harmonique. Sa distribution de niveaux vibrationnels peut alors être imagée comme dans figure 5.3, où les flèches indiquent les transitions correspondantes aux bandes latérales du mouvement, $|g, n\rangle \rightarrow |e, n\rangle$ étant la porteuse. Une excitation sur la première bande latérale négative (vers la gauche) provoque une transition de $|g, n\rangle$ vers $|e, n-1\rangle$, après desexcitation par émission spontanée, l'ion relaxe dans l'état $|g, n-1\rangle$. Une réduction de $\langle n \rangle$ peut être ainsi effectuée, jusqu'à obtention des situations où $\langle n \rangle = 0$ plus de 95% du temps [56].

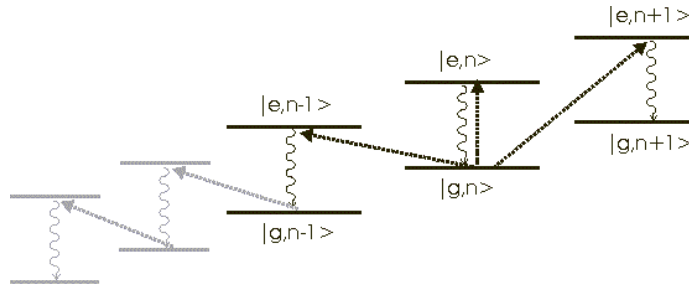


Fig. 5.3: Distribution des niveaux vibrationnels de l'ion dans le piège, mise en oeuvre du refroidissement par bandes latérales

Expérimentalement, dans un premier temps, la réduction de l'amplitude du mouvement de l'ion se fait par refroidissement Doppler sur la transition à 397 nm. Cette limite est le plus facilement atteint avec un ion unique, si possible bien centré dans le

piège électrodynamique.

Une excursion de l'ion hors du minimum du champ peut être provoquée par des champs parasites, dus en particulier à des asymétries de la géométrie du piège ou aux dépôts occasionnés par le processus de création des ions. En effet, des potentiels de contact durables sur l'anneau de confinement peuvent être créés par un dépôt de calcium pendant l'évaporation. Des éléments isolants du montage (p.ex. la lentille de détection) peuvent se charger temporairement pendant le temps d'allumage du canon à électrons, les temps de déchargement étant de l'ordre de l'heure. Le déplacement de l'ion par rapport au centre du piège peut être corrigé par application de tensions continues sur les quatre électrodes de compensation qui entourent le piège. Les tensions appliquées sont de l'ordre de la dizaine de volts, et des variations de micromouvement correspondant aux variations de tension inférieures au dixième de volt peuvent être détectées. Grossièrement, ceci équivaut à un déplacement d'environ $3 \mu\text{m}/\text{V}$. Les différentes techniques employées pour éliminer le micro-mouvement "excessif", vérifier l'état de l'ion et ainsi progresser dans l'optimisation des paramètres sont présentées dans ce chapitre.

5.1 Pureté des tensions RF et DC

Une contribution non négligeable à la composante micromouvement peut provenir de la présence de signaux parasites sur les tensions appliquées. La pureté spectrale de la tension de confinement à 11,6 MHz a d'abord été vérifiée. Des amplitudes non négligeables étaient perceptibles à certaines fréquences, surtout aux harmoniques de la tension de confinement. Ce comportement a été expliqué par des non-linéarités de l'amplificateur, qui a alors été remplacé par un amplificateur de puissance d'un autre modèle. Les harmoniques de la fréquence de confinement ont été supprimés à un niveau inférieur à 34dB ($3 \Omega/2\pi$), 35dB ($4 \Omega/2\pi$ et $5 \Omega/2\pi$) et 36dB ($2 \Omega/2\pi$). Il a été procédé également à la vérification du niveau de bruit sur les électrodes de compensation. En effet, les différentes alimentations et surtout des couplages entre elles et des retours à la terre ont créé un niveau de bruit allant jusqu'à 300 mV à 50 Hz. En redessinant les circuits reliant toutes les connexions, le niveau de bruit a été abaissé à moins de 5 mV à 50 Hz. La maîtrise de ces valeurs est d'autant plus cruciale, qu'une influence du micromouvement (changement de la largeur spectrale) a été observée pour des changements des tensions appliquées inférieures à 100 mV. Le contrôle de toutes les électrodes a permis l'enregistrement des spectres les plus étroits obtenus jusqu'à maintenant.

5.2 Position et température de l'ion

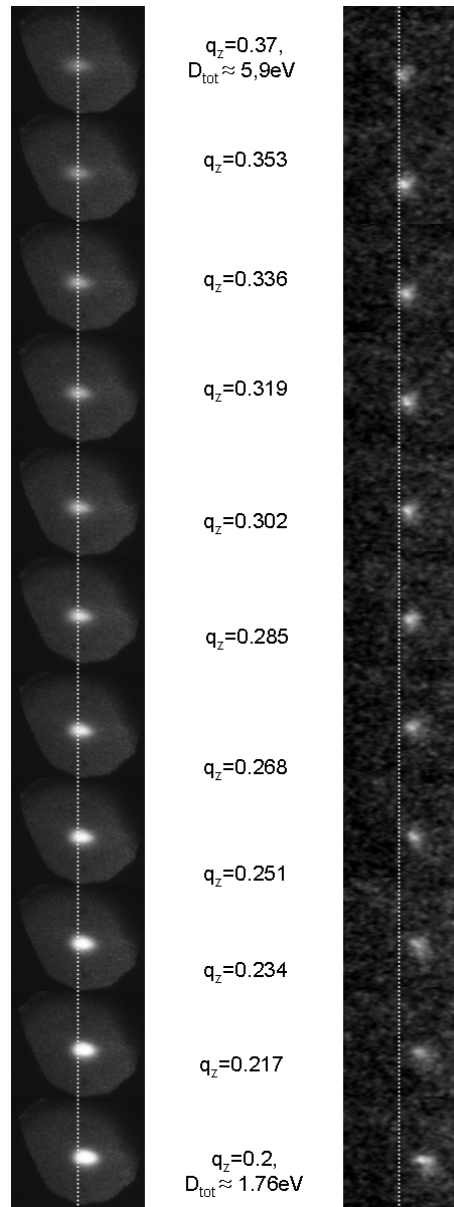


Fig. 5.4: Déplacement spatial d'un nuage (à gauche) et d'un ion (à droite) en fonction de la profondeur du puits de confinement. La ligne pointillée indique le centre du puits. Un déplacement du nuage dans le plan perpendiculaire à l'observation explique la variation d'intensité du signal.

Au cours de la réduction de la profondeur du puits de pseudo-potential du piège, l'ion confiné devient plus sensible aux éventuels champs parasites qui ont tendance à l'écartier du centre du piège. L'observation spatiale de la fluorescence de l'ion en fonction du puits de potentiel du piège permet une première estimation quantitative des

champs parasites. La mesure du déplacement de l'ion donne une information suffisante pour calculer les tensions de compensation nécessaires. Vu la résolution de l'optique de détection, un ajustement fin des paramètres n'est malheureusement pas envisageable. Par ailleurs, le plan d'observation de la caméra ICCD correspond au plan xy du piège et ne permet pas de compensation dans la direction z .

La figure 5.4 montre le déplacement d'un nuage (à gauche) ou d'un ion unique (à droite) quand le puits de potentiel de confinement est varié. En fait, au point de fonctionnement correspondant à 5.9 eV, les ions sont piégés pratiquement au centre du piège. Au fur et à mesure de l'abaissement du puits de potentiel, ils sont poussés hors du centre. Une compensation grossière du mouvement maintiendrait l'échantillon au milieu de la cage à ions.

5.3 Corrélation RF

La deuxième technique que nous avons utilisée pour nous affranchir de l'excès de micromouvement est la corrélation temporelle des photons détectés avec la radiofréquence de la tension de confinement (figure 5.5). Si l'ion bouge à la fréquence de confinement $\Omega/2\pi$, dû à l'effet Doppler, il perçoit le faisceau laser modulé à cette fréquence. Le nombre de photons émis pour une fréquence laser donnée est donc également modulé à $\Omega/2\pi$. La fonction de corrélation est d'autant plus contrastée que le micromouvement est de forte amplitude. La mise en œuvre de cette méthode se fait à l'aide d'un convertisseur temps-amplitude (TAC). La mesure de l'intervalle de temps est déclenchée par un photon de fluorescence, elle est arrêtée par le signal de synchronisation de la radiofréquence. L'histogramme des intervalles montre la modulation due au micromouvement

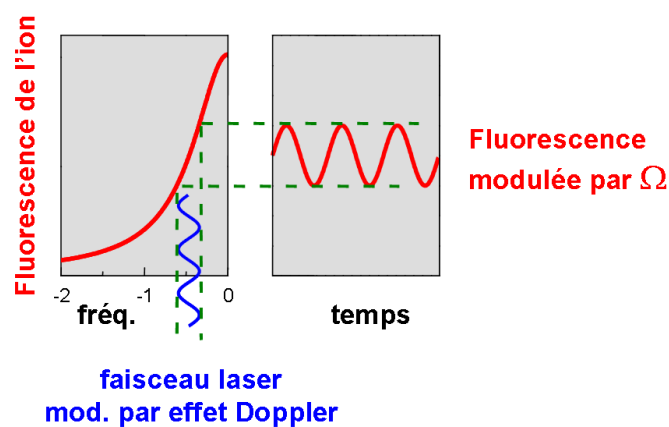


Fig. 5.5: Principe de la détection du micromouvement par la technique de corrélation des photons avec la fréquence de confinement $\Omega/2\pi$.

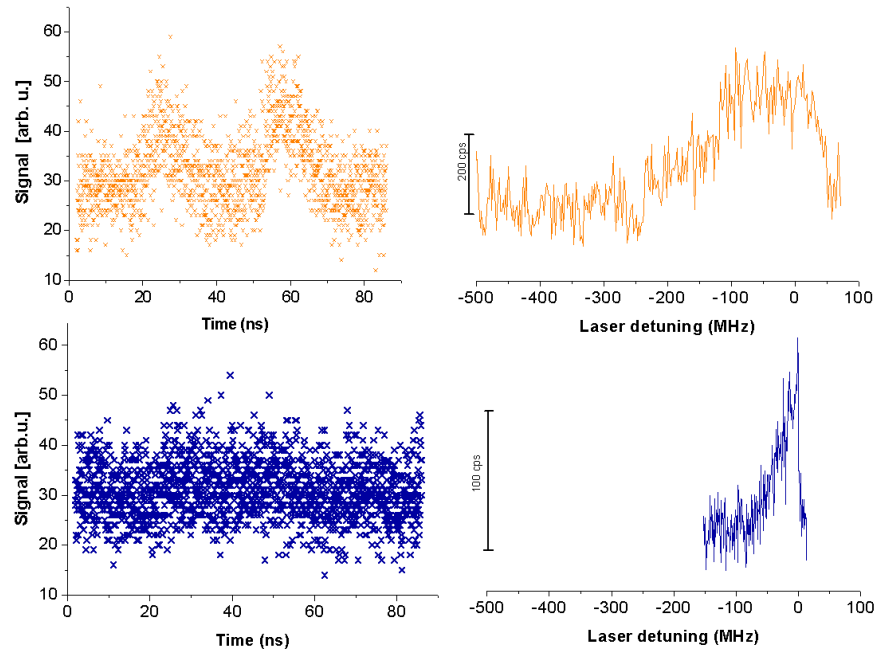


Fig. 5.6: Détection du micromouvement par la méthode de corrélation des photons avec la fréquence de confinement. A gauche l'histogramme des temps d'arrivée des photons est fortement modulé par la rf pour la courbe supérieure, à droite : les spectres correspondant montrent qu'une meilleure compensation dans les courbes du bas élimine un élargissement excessif.

subi par l'ion (voir figure 5.6). Malgré sa grande sensibilité à détecter et quantifier l'amplitude du micromouvement, cette technique a plusieurs inconvénients. Elle requiert un très bon rapport signal sur bruit, ce qui est parfois difficile à obtenir, surtout, quand l'ion est encore chaud. De plus, il est indispensable de contrôler simultanément l'ion par une autre méthode, car un changement des paramètres de compensation peut également rendre l'ion plus chaud, et donc réduire son signal de fluorescence, ce qui va entraîner une réduction non pertinente du contraste dans l'histogramme fourni par le TAC.

5.4 Minimisation des largeurs spectrales

Une méthode plus facile à mettre en œuvre et très sensible également s'appuie sur l'observation de la largeur spectrale de la fluorescence de l'ion qui dépend - via l'effet Doppler - de l'amplitude du micromouvement auquel l'ion est assujéti. Pour une puissance de laser donnée, et pour une fréquence d'excitation choisie à peu près à mi-largeur de la résonance, les tensions sur les électrodes de compensation sont changées. Si le micromouvement est réduit pour ces nouveaux paramètres, le signal de fluores-

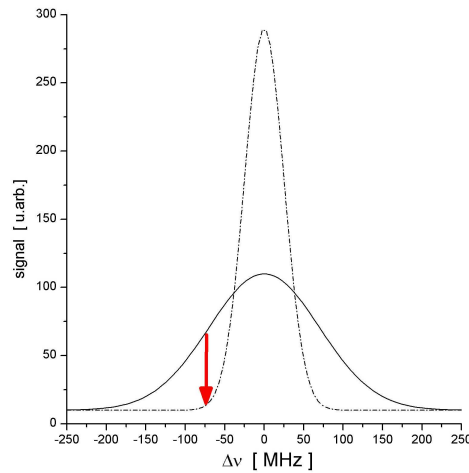


Fig. 5.7: Principe de réduction du micromouvement par observation de la largeur à mi-hauteur.

cence chute (figure 5.4). La raie peut ainsi être rendue de plus en plus étroite, ce qui correspond à une amplitude de micromouvement de plus en plus petite.

5.5 Résonance noire

L'interaction entre les simulations et l'expérience nous a permis de mettre au point une nouvelle méthode de réduction du micromouvement. L'observation de la résonance noire dans le système à trois niveaux dépend de l'état énergétique de l'ion ainsi que de la géométrie des faisceaux laser et peut être utilisée pour contrôler l'influence du micromouvement.

Au cours des expériences avec des nuages nous n'avons jamais observé des résonances noires bien que nos collègues dans d'autres laboratoires en voyaient facilement. En cherchant les bandes latérales du micromouvement sur la transition $3D_{3/2}-4P_{1/2}$ comme publié par Yu et Dehmelt [88], j'ai vu apparaître des "trous" dans le signal de fluorescence - des résonances noires. Deux raisons principales nous avaient jusqu'alors empêché d'observer de telles résonances noires : des puissances de laser (397 et 866 nm) trop élevées et des ions trop chauds pour la géométrie de nos faisceaux laser en contre-propagation.

En effet, la fréquence de Rabi Ω_B pour la transition $4S_{1/2}-4P_{1/2}$ étant grande devant la fréquence de Rabi Ω_R de la transition du repompeur, nous pouvons considérer l'ion Ca^+ habillé par des photons bleus comme dans la figure 5.8. Des résonances noires apparaissent dans le cas où le désaccord des deux lasers devient identique $\Delta_B = \Delta_R$.

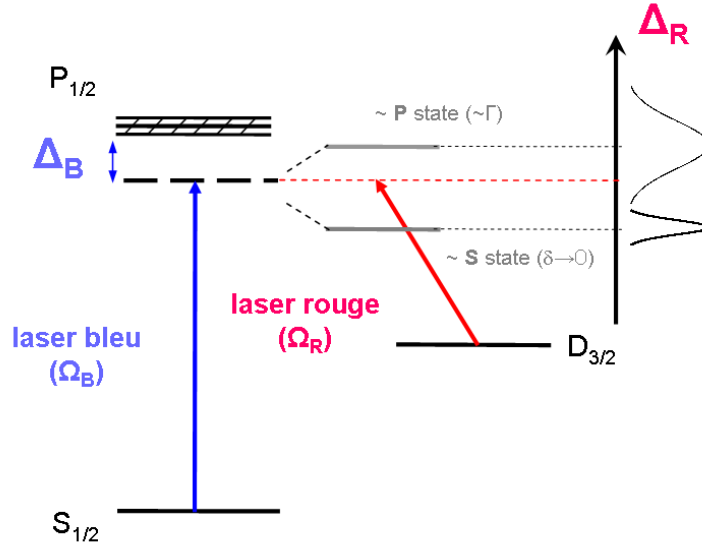


Fig. 5.8: Schéma des niveaux d'énergie du Ca^+ habillé par des photons bleus.

A cause de l'effet Doppler la condition de résonance ($\Delta_B - \vec{k}_B \cdot \vec{v} = \Delta_R - \vec{k}_R \cdot \vec{v}$) dépend de la direction des vecteurs d'onde \vec{k}_B, \vec{k}_R impliqués. Par la suite, nous ne considérons que le cas des faisceaux lasers alignés sur un seul axe. Ainsi, pour des faisceaux laser co-propageants, la classe de vitesse δv participant à la résonance noire est proportionnelle à

$$\delta v = \frac{\delta}{k_B - k_R} \quad (5.5)$$

où δ décrit la largeur de la résonance, essentiellement déterminée par les largeurs des lasers et leurs puissances. Pour le cas des lasers contra-propageants,

$$\delta v = \frac{\delta}{k_B + k_R} \quad (5.6)$$

En fonction des valeurs de k_B et k_R , la résonance noire peut être plus ou moins facile à observer. La figure 5.9 montre la sensibilité de la résonance noire aux vecteurs d'onde des lasers impliqués. Les courbes présentées ont été calculées pour un ion ayant le même degré de localisation dans tous les cas. De façon générale, les largeurs des lasers bleu ($\Delta_{LB} \approx 1$ MHz) et rouge ($\Delta_{LR} \approx 200$ kHz) sont négligeables et n'élargissent pas la résonance observée. Dans le cas des lasers parallèles la résonance est bien plus visible que dans les cas des lasers anti-parallèles. Dans ce dernier cas, seule une réduction de l'amplitude du micro-mouvement de l'ion peut conduire à un creusement de la résonance observée. Les graphes montrent également la dépendance à la différence des longueurs d'onde. En fait, si $k_R \ll k_B$, les spectres deviennent identiques. Par

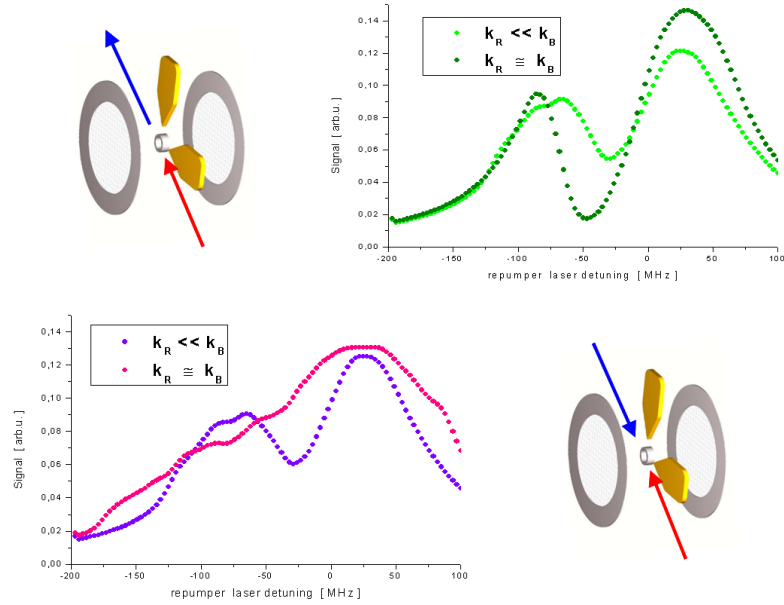


Fig. 5.9: Sensibilité de la résonance noire aux vecteurs d'onde des lasers telle que démontrée par simulations numériques. Image du haut : faisceaux lasers co-propageants, en bas : lasers contra-propageants.

contre, pour $k_R \cong k_B$ la différence dans l'observation de la résonance est maximale pour les deux géométries. Dans le cas du Ca^+ , $k_B \approx 2k_R$. Le formalisme détaillé et les expériences sont décrites dans la publication jointe (page 102).

Expérimentalement, nous utilisons le contraste \mathcal{C} dans l'observation de la résonance noire, représenté dans figure 5.10, comme outil de mesure du micromouvement. Nous

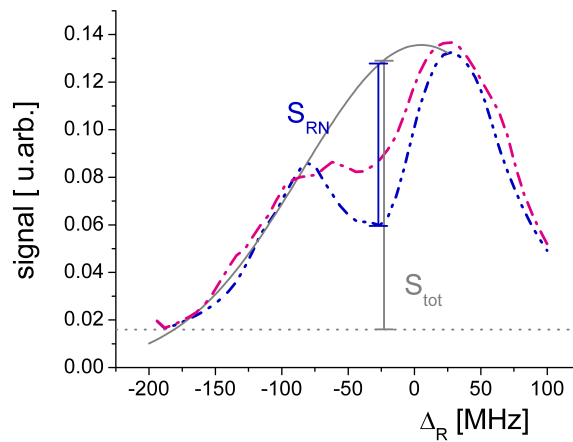


Fig. 5.10: Définition du contraste \mathcal{C} par le rapport du signal de résonance noire S_{RN} sur le signal total S_{tot} . Détails de la simulation dans le texte.

définissons le contraste \mathcal{C} comme le rapport du signal de résonance noire S_{RN} sur le signal total S_{tot} qui serait observé sans résonance noire. Si le contraste est maximal (il peut atteindre 1), l'ion est très bien immobilisé. Les deux courbes simulées dans la figure 5.10 montrent la sensibilité du contraste à la contribution de micro-mouvement de la particule. La courbe supérieure a été simulée pour un déplacement par rapport au centre de $D_u = 1,6\mu m$, celle du bas pour $D_u = 0,8\mu m$. Une plus grande amplitude du micromouvement tend visiblement à effacer le creusement observé. En effet, à puissances lasers égaux, la largeur du spectre à 397 nm, traduit l'influence du micromouvement. La courbe du haut a une largeur de spectre bleue d'environ 30 % plus grande que celle de la courbe du bas.

Nous avons étudié l'influence de plusieurs paramètres expérimentaux sur le contraste de la résonance noire. Ainsi, les puissances des lasers à 397 nm et à 866 nm ont été variées, ainsi que le champ magnétique, la direction des faisceaux lasers selon l'unique axe optique et surtout les tensions appliquées sur les électrodes de compensation x, y, z_1 et z_2 . La plupart de ces points est discutée dans la publication jointe (page 102). Dans ce mémoire je voudrais seulement évoquer quelques détails supplémentaires.

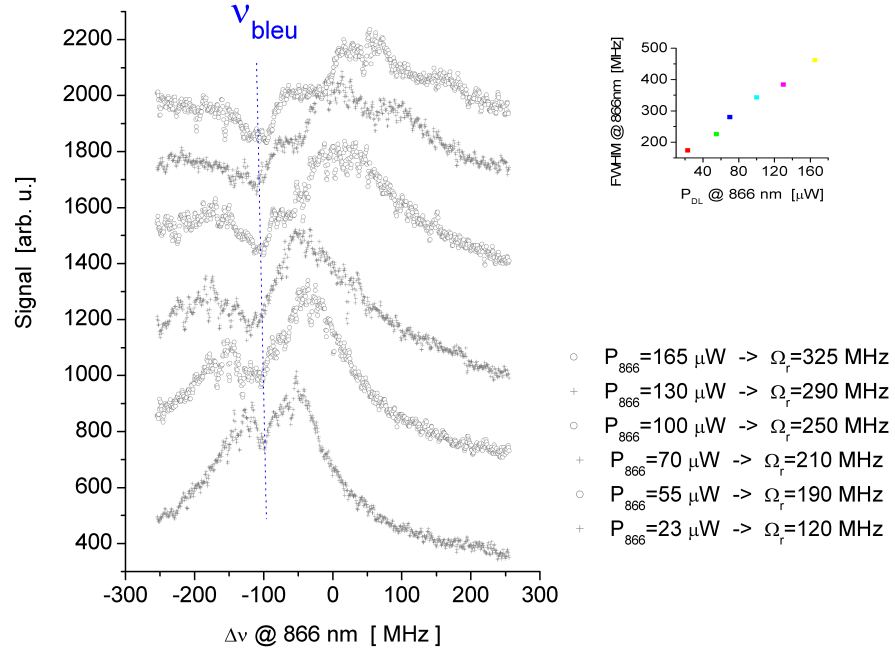


Fig. 5.11: Résonance noire observée en variant l'intensité du laser à 866 nm. La puissance augmente vers le haut. Contrairement à l'intensité laser dans le bleu, une variation de l'intensité à 866 nm ne fait qu'élargir la réponse spectrale de l'ion. L'inset montre l'augmentation linéaire de la largeur spectrale avec la puissance à 866 nm.

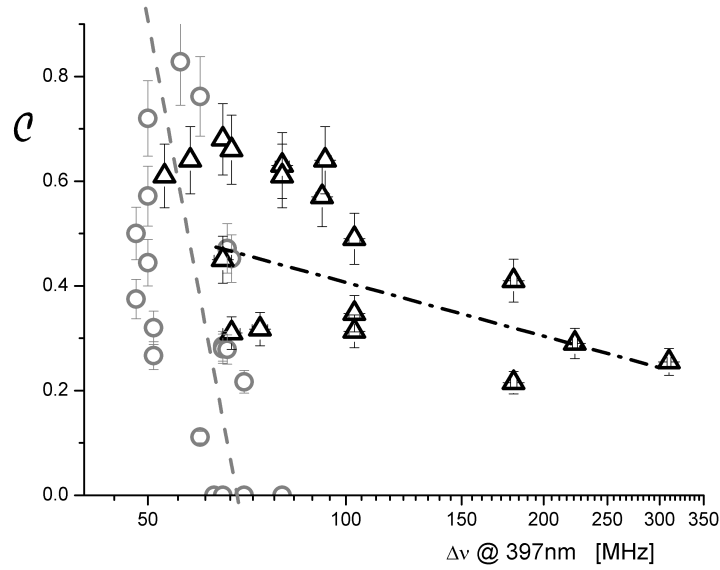


Fig. 5.12: *Contraste \mathcal{C} de la résonance noire en fonction de la largeur observée de la transition bleue. La figure montre la sensibilité différente pour les résonances noires enregistrées avec des faisceaux laser co-propageants (Δ) et contra-propageants (\bigcirc).*

La variation de l'intensité du laser bleu sur la transition $4S_{1/2}-4P_{1/2}$ montre son influence sur la séparation des niveaux, modérée par l'effet de saturation. L'effet de la variation de la puissance à 866 nm ($3D_{3/2}-4P_{1/2}$) est assez différent. Comme présenté dans la figure 5.11, l'intensité du laser rouge élargit la réponse en fluorescence de l'ion, sans pour autant modifier ni l'amplitude du signal ni celle de la résonance noire. Pour une meilleure lisibilité, les courbes dans cette figure ont été décalées d'une quantité fixe. La largeur de la transition augmente de façon très régulière (voir l'inset dans figure 5.11) pour devenir plus large que l'intervalle de balayage de la diode laser.

La figure 5.12 donne la synthèse de l'exploitation de la résonance noire. En effet, nous y avons représenté le contraste \mathcal{C} mesuré selon les deux géométries différentes en fonction de la largeur de raie de la transition bleue. Cette largeur est un outil limité pour le contrôle du micromouvement. A puissance laser fixe, une largeur spectrale plus petite signifie une contribution de micromouvement moindre, sans pour autant renseigner sur la valeur absolue de localisation. Seule la mesure du spectre des bandes latérales de la transition d'horloge permettra d'avoir ce renseignement. La comparaison de toutes les mesures de la figure 5.12 montre clairement la différence de sensibilité entre la géométrie des faisceaux lasers parallèles ou anti-parallèles. Tandis que des lasers co-propageants permettent d'observer des résonances noires pour des ions assez chauds, les résonances

en configuration anti-parallèle ne se manifestent qu'en dessous d'un seuil de largeur, c'est-à-dire en dessous d'une certaine amplitude de micro-mouvement.

La comparaison du protocole avec d'autres méthodes expérimentales n'est pas directe. La sensibilité de l'ajustement des tensions sur les électrodes de compensation est du même ordre de grandeur pour les résonances noires que pour la corrélation rf. Néanmoins, la méthode proposée de réduction du micromouvement par observation de la résonance noire avec des faisceaux laser contra-propageants a plusieurs avantages. Premièrement, l'observation de la résonance noire est une méthode mise en œuvre à l'aide des faisceaux lasers impliqués dans le refroidissement laser, une stabilisation très poussée des lasers n'est pas requise. Deuxièmement, l'observation des résonances noires se fait à l'aide d'un photomultiplicateur, un dispositif coûteux tel que le TAC devient dispensable.

Les détails de l'expérience et des simulations correspondantes sont décrits dans la publication suivante (page 102).

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: date • © 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 the best observation conditions requires an ion almost at rest of motion (Lamb–Dicke regime).

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 the trap, with one exception where two ions have been 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.

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 well. 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 position 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 [2] 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 $S_{1/2}$ 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

✉ E-mail: martina.knoop@up.univ-mrs.fr

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.

Section 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 given 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]

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

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

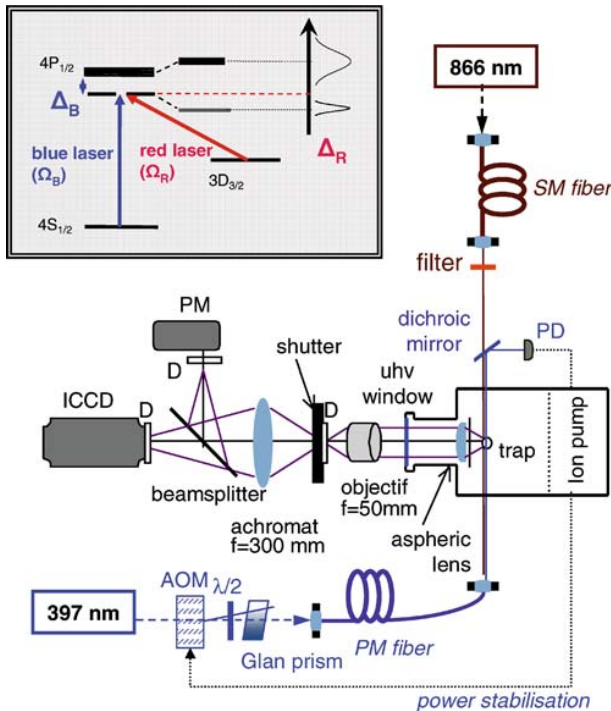


FIGURE 1 Experimental setup with counter-propagating laser beams. The inset shows the first energy levels of a Ca^+ ion dressed by the blue photons

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

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:

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

On 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 : Q2

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

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

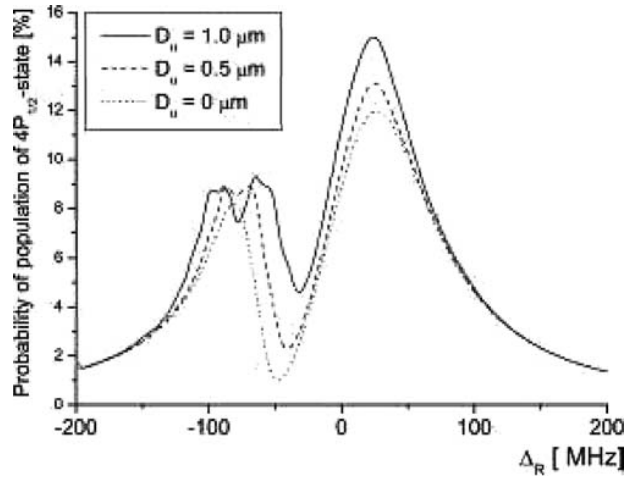


FIGURE 2 Numerical simulation of dark resonances in the counter-propagating laser-beam geometry, for a velocity amplitude $V_0 = 1$ m/s and different displacements D_u off the trap centre ($\Omega_B = 120$ MHz, $\Omega_R = 30$ MHz, $\Delta_B = -50$ MHz)

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 linewidths 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 linewidths 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 linewidth 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 $S_{1/2}$

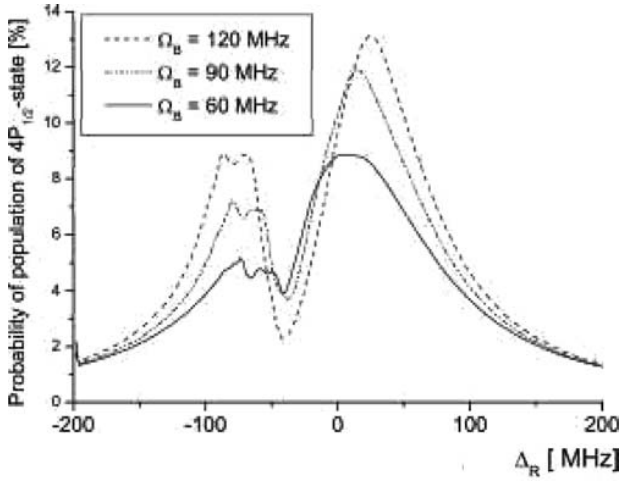


FIGURE 3 Numerical simulation of the observable fluorescence signal for different blue Rabi frequencies Ω_B . The two laser beams are counter-propagating and the motion of the ion is described by $V_0 = 1$ m/s and $D_u = 0.5$ μ m. Micromotion sidebands are visible in the spectrum at lower values of Ω_B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

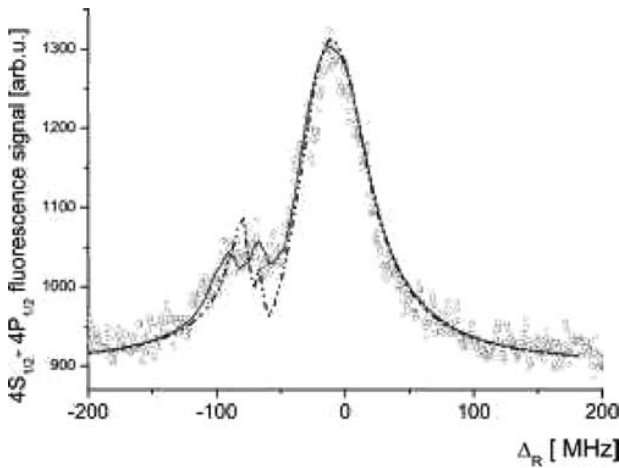


FIGURE 4 Experimental observation of a dark resonance (\circ), adjusted by the numerical simulation with counter-propagating laser beams (*solid line*). The *dashed line* is the numerical simulation with an identical parameter set and with co-propagating laser beams ($\Omega_B = 60$ MHz, $\Omega_R =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

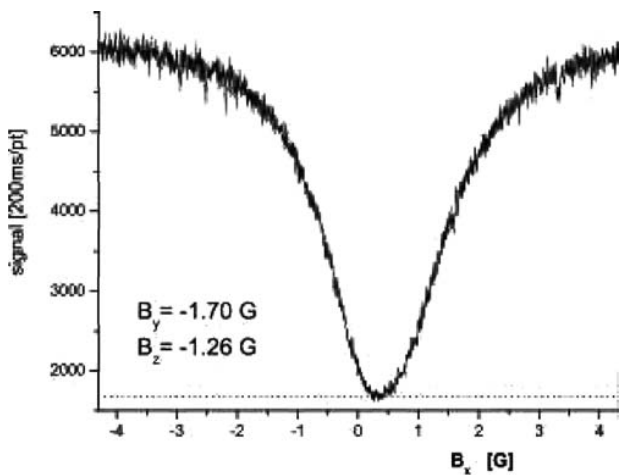


FIGURE 5 Fluorescence of a single ion versus the applied perpendicular magnetic field in a Hanle-type experiment for the determination of the magnetic field zero values. The red laser is linearly polarized along the x direction. The *dotted line* corresponds to the background light level

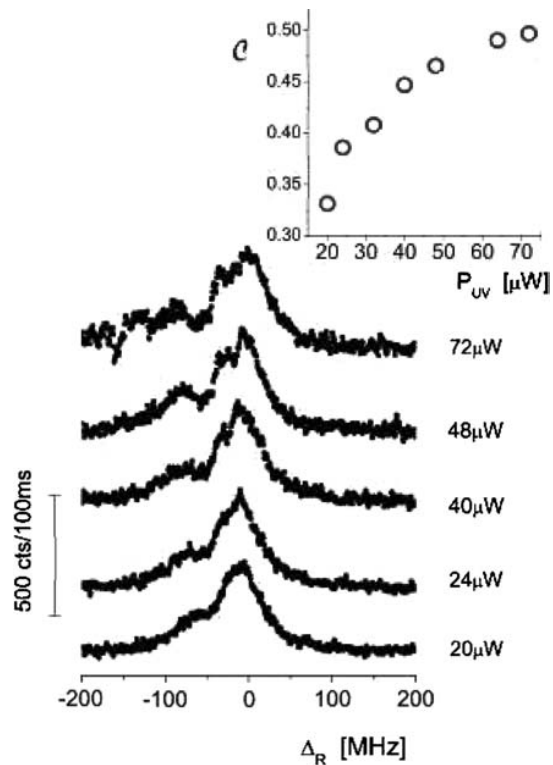


FIGURE 6 Fluorescence signal observed with counter-propagating laser beams. The graph shows the influence of the laser power on the level splitting; the offset of the curves is due to the varying laser power. The applied blue laser powers are marked on the *right-hand side* of the curves, where the lowest 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

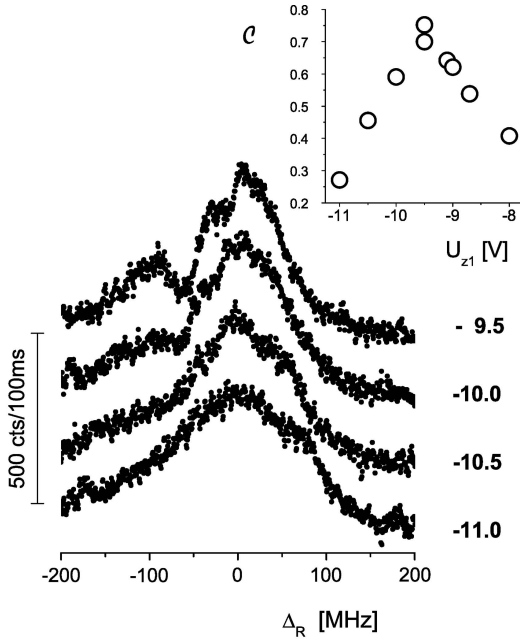


FIGURE 7 Influence of the micromotion on the observed dark-resonance contrast \mathcal{C} with counter-propagating laser beams, laser intensities: $\Omega_B \approx 4\Gamma_B$, $\Omega_R \approx 10\Gamma_R$. For better visibility, the graph only shows selected curves which have been offset by a fixed 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.

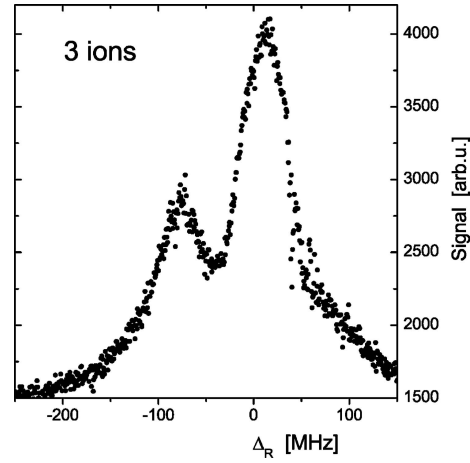


FIGURE 8 Dark resonance observed in the fluorescence of a three-ion cloud with co-propagating laser beams

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 $k_B - k_R$. In the case of a Ca^+ ion $|k_B| \approx |2k_R|$; 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 as a sensitive tool to reveal the degree of localization of the trapped ions with a high sensitivity.

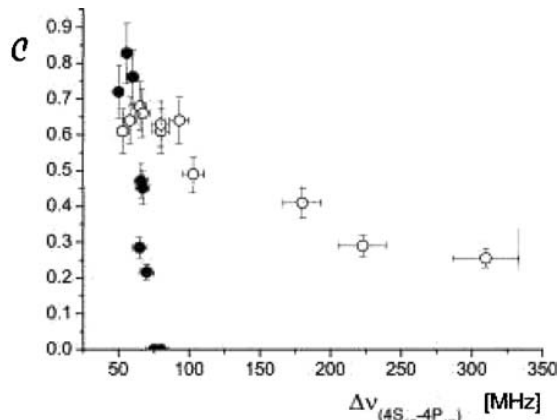


FIGURE 9 Comparison of the-dark resonance contrast for co- (○) and counter-propagating (●) laser-beam geometries. In the graph the highest measured contrast is plotted as a function of the observed transition line width on the $4S_{1/2}-4P_{1/2}$ transition. The data for the co-propagating geometry has 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 spatial resolution and can only be applied to reduce effects which appear in the plane of observation. The exploration of the line width on the $4S_{1/2}-4P_{1/2}$ transition is an easy method to roughly minimize excess micromotion, keeping in mind that the line width 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, , 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. Berkeland, 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)

6. Perspectives

L'expérience de métrologie mettant en jeu un ion unique de calcium est loin d'être terminée. Un certain nombre d'étapes restent à franchir avant d'atteindre un niveau d'horloge atomique comparable à d'autres étalons existants. Actuellement, nous préparons l'observation de la transition d'horloge dans le régime de localisation forte. Des modifications de l'expérience ainsi qu'une nouvelle étape de stabilisation du laser d'horloge conditionneront la bonne poursuite du travail. La mesure de la fréquence absolue est une étape importante qui ouvrira la voie à l'étude des effets systématiques et leur quantification avant de pouvoir évaluer la stabilité de l'étalon et le comparer à des projets voisins. Un ion unique est un formidable outil pour la physique quantique, je conclurai en proposant des ouvertures pour élargir le sujet de recherche.

Spectre des bandes latérales Pour mettre en évidence la présence de l'ion dans le régime de Lamb-Dicke illustrée par un spectre de raie de la transition d'horloge présentant des bandes latérales, le nombre de sauts quantiques durant un interval temporel bien défini doit être comptabilisé, et ceci en variant la fréquence du laser à 729 nm autour de la résonance $4S_{1/2}-3D_{5/2}$. Dans un premier temps, nous nous attendons à observer les bandes latérales du micromouvement à $\Omega/2\pi = 11,70$ MHz, si celui-ci n'est pas encore parfaitement éliminé. Superposées à ce spectre, mais de résolution plus fine, se trouvent les bandes latérales du macromouvement à des fréquences $\omega_i/2\pi$ entre 1 et 2 MHz. Le but est de réduire leur nombre au maximum afin d'être intégralement dans le régime de Lamb-Dicke. La préparation de l'expérience est en cours. Elle a nécessité un remodelage de l'acquisition des données, puisque désormais le signal utile n'est plus la fluorescence de l'ion directement observé mais la statistique des réponses positives (ou négatives) dans un intervalle temporel donné. Les bandes latérales peuvent uniquement être visualisées par des sauts quantiques induits par un laser hautement stabilisé, puisque l'acquisition d'un spectre complet se fait sur des durées de plusieurs dizaines de minutes.

L'accès au régime de localisation forte en s'appuyant uniquement sur un axe laser est un défi. Il faudra certainement concevoir une nouvelle enceinte ultravide avec un nombre d'accès optiques plus élevés afin d'être capable de compenser le micromouvement selon

différents axes.

Un piège deuxième génération Au cours des expériences décrites dans ce mémoire nous avons pu évaluer les points forts et les défauts de notre montage. Je pense qu'il serait utile de résumer ces expériences pour construire un piège de "deuxième génération", permettant une amélioration de différents aspects. Un point primordial est la modification de l'enceinte ultravide selon deux axes prioritaires : Le remplacement des fenêtres de Brewster actuelles par des hublots optiques traités anti-reflet permettra de choisir librement la polarisation des faisceaux laser utilisés. Par ailleurs, le rapprochement du piège d'un hublot optique de façon à pouvoir placer la totalité de l'optique de détection à l'extérieur de l'ultravide, facilitera et raccourcira les réglages optiques. Un gain dans le rapport signal sur bruit et sur le signal absolu d'au moins un facteur trois peut ainsi être envisagé.

La localisation de l'ion dans le piège et son refroidissement jusqu'à la limite Doppler pour accéder au régime de Lamb-Dicke et atteindre les niveaux vibrationnels les plus bas du piège, exigent une compensation parfaite de tous les champs parasites entourant le piège et ceci dans tous les plans de projection. En outre, l'étape d'évaluation et de minimisation des effets systématiques demande la mesure du moment quadrupolaire de l'ion. Cette mesure doit être effectuée selon trois axes perpendiculaires pour déterminer le facteur géométrique inconnu [5]. Des accès optiques selon différentes directions deviennent alors impératifs.

La modification de l'enceinte ultravide permettra également d'installer directement des bobines de Helmholtz nécessaires pour la compensation du champ magnétique résiduel. Ceci garantira une meilleure stabilité et reproductibilité du champ magnétique.

Nous envisageons le remplacement de l'alimentation de confinement par un dispositif permettant d'atteindre une fréquence de confinement $\Omega/2\pi$ supérieure à 20 MHz. Ceci permettra d'augmenter les fréquences du macromouvement à des valeurs supérieures à 1 MHz, et facilite ainsi l'accès au régime de Lamb-Dicke. Vu les tensions nécessaires ($V_{AC} > 2000$ V) pour un confinement stable et comparable au régime actuel, nous projetons de générer la tension de confinement à l'aide d'un résonateur hélicoïdal [89].

D'autres équipes travaillant avec des ions de calcium confinés ont mis au point la photo-ionisation du faisceau d'atomes évaporé par le four [90, 91]. Dans la pratique, la raie de résonance du calcium neutre à 423 nm ($4s^2 \ ^1S_0 - 4s4p \ ^1P_1$) est excitée ainsi qu'une transition vers le continuum nécessitant une longueur d'onde inférieure à 390 nm. Cette technique étant beaucoup plus efficace que le bombardement électronique, des températures de four moins élevées peuvent être utilisées. La perturbation

du champ de confinement par électrons et la détérioration des parois du piège dues à un dépôt de calcium sont alors réduites, ce qui permet une minimisation du micromouvement plus facile et plus constante dans le temps. Par ailleurs, cette technique permet l'ionisation sélective de tous les isotopes présents dans le mélange isotopique naturel du calcium, donc la création des ions $^{43}\text{Ca}^+$ à partir d'un échantillon non enrichi.

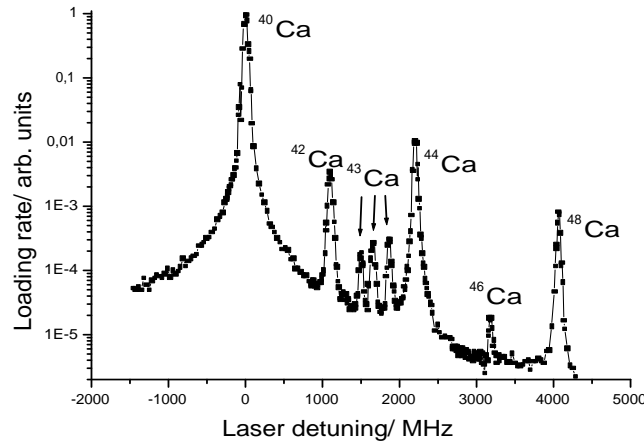


Fig. 6.1: Création des isotopes du calcium par photo-ionisation à partir d'un échantillon d'abondance naturelle [92].

Développement et affinement des lasers La poursuite de l'expérience de métrologie demande un effort majeur sur la stabilisation des lasers, surtout du laser d'horloge. Actuellement, nous disposons des lasers sur toutes les transitions exigées par les expériences d'excitation et d'interrogation d'un ion unique. Néanmoins l'interrogation d'une transition d'horloge doit se faire avec un laser dont la largeur spectrale est proche de la largeur naturelle de la transition. Nous pouvons supposer qu'un ion qui se trouve dans le régime de Lamb-Dicke, même avant que le refroidissement par bandes latérales soit appliqué, présente des largeurs de bandes inférieures au kHz. Cet élargissement résiduel est provoqué par les effets systématiques dus aux champs électriques et magnétiques, et qui seront discutés plus loin dans ce chapitre.

Pour une poursuite du travail métrologique le remplacement de la diode laser à 729 nm par un laser titane-saphir est envisagé, principalement pour deux raisons. Premièrement, la diode BAL - bien que stabilisée en fréquence sur une cavité de haute finesse - dispose d'un fond d'émission spontanée assez élevé. Il s'agit ici d'émission spontanée amplifiée (**a**mplified **s**pontaneous **e**mission - ASE) qui se propage dans la direction du faisceau. Ce fond a une largeur d'une vingtaine de nm (mesuré au monochromateur) et une telle puissance qu'il est visible dans la transmission de la cavité ULE de finesse

15000. Un tel fond en sortie de fibre est évidemment très gênant pour nos expériences métrologiques puisqu'il couple les deux niveaux $3D$ à l'état fondamental et donc entre eux. Pour des applications nécessitant un laser moins affiné, un fond similaire a été filtré par l'utilisation d'un réseau associé à un diaphragme [93] - solution qui n'est pas suffisante dans le cas de la diode à 729 nm.

Deuxièmement, la diode utilisée est limitée en puissance. Les différents asservissements (fréquence et intensité) ainsi que l'injection dans la fibre optique demandent une puissance utile de quelques mW. Or, la diode BAL est limitée en courant de travail, même en cavité étendue elle ne présente un comportement monomode que pour des puissances optiques de quelques mW.

Une solution de remplacement est réalisée avec la construction d'un laser titane-saphir selon le schéma d'autres lasers utilisés en métrologie [94]. Ce laser est pompé par un laser Nd :YAG doublé en fréquence d'une puissance de 5 W ^(a). La stabilisation ultime de ce laser sera faite selon le même schéma que la diode BAL, un premier asservissement par méthode de Pound-Drever-Hall est prévue sur une cavité en Invar d'une finesse d'environ 1000.

Une meilleure stabilisation du laser d'horloge nécessite en première ligne une stabilisation de sa cavité de référence. En effet, la cavité ULE sur laquelle le laser est asservi par la méthode de Pound-Drever-Hall, doit être mise sous vide pour éliminer l'influence des vibrations acoustiques et des changements de l'indice et de la température de l'air. Elle doit être stabilisée en température afin d'éviter des changements de longueur et surtout pour l'asservir au point de dilatation minimale. Plusieurs étages de stabilisations thermiques indépendantes sont prévues. Finalement, la cavité doit être montée de façon à être isolée au maximum de l'influence des vibrations. Il est prévu de poser la cavité sur des blocs en V dans l'enceinte à vide elle-même posée sur des blocs en V. Bien évidemment, ces blocs et leurs supports seront isolés par des points de type Viton. A moyen terme nous souhaitons installer l'ensemble de cavité sur une table d'isolation anti-vibratoire actif similaire à l'expérience sur l'Indium [44].

La mesure de la fréquence absolue À moyen terme la valeur de la fréquence absolue de la transition d'horloge doit être mesurée pour pouvoir évaluer les effets systématiques et quantifier la stabilité du laser asservi sur la transition d'horloge. Depuis quelques années, l'apparition des peignes de fréquence - associant un laser titane-saphire femto-seconde à une fibre à cristal photonique - a considérablement facilité la mesure absolue des fréquences optiques, passant des montages expérimentaux très complexes à des systèmes de laboratoire et même commerciaux [95, 50]. Les meilleures précisions pour

^(a) Coherent Verdi

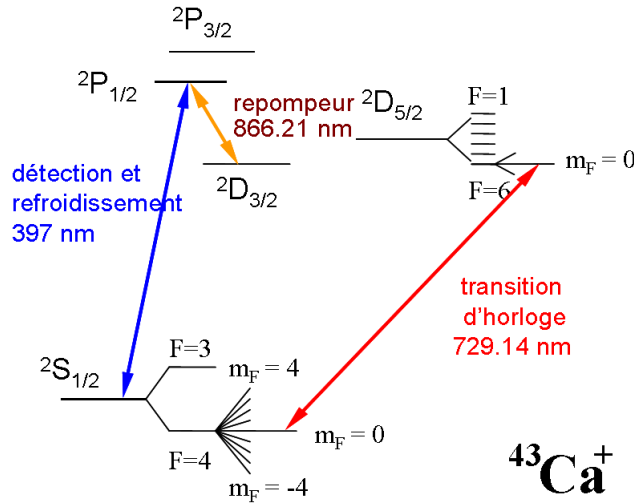


Fig. 6.2: Premiers niveaux d'énergie de l'isotope $^{43}\text{Ca}^+$.

des horloges atomiques optiques basées sur des ions uniques ont ainsi été obtenues [25, 26].

Evaluation des effets systématiques Dans une étape ultime de l'expérience de métrologie, il deviendra nécessaire d'affronter l'élimination des effets résiduels causés par l'environnement de l'ion confiné. En effet, des évaluations ont montré [96, 43] que certains effets peuvent être éliminés ou minimisés en choisissant l'isotope de l'espèce en considération de façon judicieuse. Le Ca^+ dispose d'un seul isotope à spin nucléaire impair, le $^{43}\text{Ca}^+$ avec $I = 7/2$ (cf. figure 6.2).

L'avantage majeure de travailler avec cet isotope est l'absence d'effet Zeeman en premier ordre si on choisit de travailler avec des transitions $m_F = 0 \rightarrow m_F = 0$. Nous avons fait une évaluation prévisionnelle des effets systématiques pouvant affecter la largeur de la transition d'horloge à 729 nm [97]. Une synthèse est donnée dans le tableau 6.1. La transition choisie est la transition $2S_{1/2}, F = 4, m_F = 0 \rightarrow 2D_{5/2}, F = 6, m_F = 0$ d'un ion de l'isotope $^{43}\text{Ca}^+$.

Seul l'effet Stark AC donne lieu à un élargissement de la raie, les autres effets causent un déplacement en fréquence de la transition d'horloge. L'influence de la radiation émise par les parois d'enceinte, considérée comme un corps noir à 300 K pourrait être réduite d'un facteur 30 en refroidissant l'enceinte à 77 K. La nécessité d'avoir un certain nombre de hublots de bonne qualité pour le passage des lasers et la détection de fluorescence rend cette possibilité techniquement très lourde.

Tous les ions utilisant une transition électrique quadrupolaire en tant que transition

<i>effet</i>	<i>proportionnel à</i>	<i>condition</i>	δf [Hz]	$\delta f/f$
DC Stark (corps noir)	$5.7+2.1 \times \frac{1}{2} (3\cos^2\theta - 1)$	1 V/mm sur 1mm T=300K	0.39 ± 0.27	9.5×10^{-16}
quadrupole shift	$-8.1 \times 10^{-7} \left(\frac{1}{2} \frac{\partial^2 V}{\partial x^2} \right) \Pi$	1V/mm sur 1mm (piège sphérique)	± 0.1	2.5×10^{-16}
AC Stark (dépl.lumineux)		$0.75 \mu\text{W}/\text{mm}^2$ @ 729nm et $0.1 \mu\text{T}$	± 0.006	1.5×10^{-17}
Doppler 2 ^e ordre	$-\frac{1}{2} v^2/c^2$	limite Doppler: <n> ≈ 10	2×10^{-4}	5×10^{-19}
Zeeman linéaire			0	0
Zeeman quadr.	$-9.05 \text{ Hz}/\mu\text{T}^2$	$(0.1 \pm 0.05 \mu\text{T})$ stabilité	-0.09 ± 0.09	2.2×10^{-16}
TOTAL			$+0.3 \pm 0.3$	$(+1 \pm 1) \times 10^{-15}$

Tab. 6.1: Prédiction des effets systématiques, calculés pour la transition $^2S_{1/2}, F = 4, m_F = 0 \rightarrow ^2D_{5/2}, F = 6, m_F = 0$ d'un ion $^{43}\text{Ca}^+$.

d'horloge (Hg^+ , Yb^+ , Sr^+ , Ca^+) vont subir le couplage du moment quadrupolaire avec le gradient du champ électrique. Si nous supposons un gradient équivalent à 1V/mm sur un mm, le déplacement résultant peut être aussi grand que 1 Hz. En mesurant ce déplacement quadrupolaire selon trois axes perpendiculaires, le facteur géométrique qui rentre dans la formule pourra être moyenné et l'incertitude sur la valeur du déplacement quadrupolaire réduite d'au moins un ordre de grandeur [96, 98].

Corrélation et interférences avec un et deux ions Des ions uniques confinés pendant des durées très longues constituent un laboratoire formidable pour la physique quantique. Des expériences autres que celles de métrologie peuvent être envisagées mettant en évidence les fondements de la physique.

Nous projetons d'effectuer une expérience de type Hanbury-Brown-Twiss. La corrélation des photons émis par un atome peut mettre en évidence des effets de la mécanique quantique tel que l'antibunching ou une distribution de photons sub-Poissonien [99].

Des effets de corrélation de plusieurs ions ont été étudiés à trois reprises avec des ions distants de plusieurs μm [100, 82, 101], seul l'équipe de Mayence a trouvé un nombre de sauts quantiques très élevé qui ne peut pas être expliqué par la statistique [82]. Par ailleurs, il a été démontré théoriquement qu'un comportement collectif ne peut pas être détecté dans la statistique des sauts quantiques [102], mais l'observation individuelle de la fluorescence de chacun de deux ions pourrait relever l'influence de l'interaction dipolaire de la transition à 866 nm [103]. Il serait peut-être intéressant de

vérifier ce problème dans notre piège, où la distance entre les particules est plus grande que la longueur d'onde de la transition considérée, mais beaucoup plus petite ($< 3\mu\text{m}$) que dans les expériences avec des chaînes d'ions Ca^+ ($10\mu\text{m}$ pour [82], et $15\mu\text{m}$ pour [101]).

L'intensité laser utilisée pour l'interrogation de la transition d'horloge conditionne la forme du spectre observé [104]. Dans un système en V très asymétrique comme il est formé par les niveaux $4S_{1/2} - 4P_{1/2} - 3D_{3/2}$ d'une part et la transition $4S_{1/2} - 3D_{5/2}$ d'autre part des résonances noires existent et peuvent servir pour estimer le déplacement Stark AC et le rapport des fréquences de Rabi dans les deux sous-systèmes.

Le confinement des deux ions de façon simultanée permet l'observation des effets rarement accessibles par des objets quantiques. Les interférences des photons diffusés peuvent être un moyen de connaître avec exactitude les déplacements des ions de la position centrale ainsi que de leurs températures [14].

Le refroidissement sympathique [85, 105] ouvre la voie à l'utilisation d'autres espèces qui ne peuvent pas être refroidies directement par laser, tel des ions dont les longueurs d'ondes sont situées assez loin dans l'ultraviolet ou des molécules ne présentant pas de cycle de pompage fermé pour un refroidissement efficace. Le confinement de tels ensembles de particules est un défi qui permettra d'agir sur des états quantiques d'une espèce sans perturbation par les lasers puisque le refroidissement laser sera appliqué à l'autre espèce confiné. Par ailleurs, la particule pourrait être maintenue pendant des périodes très longues dans les niveaux vibrationnels les plus bas du piège ce qui rendrait possible des applications aussi bien pour les horloges atomiques que pour l'information quantique [46].

Bibliographie

- [1] W. Paul. *Rev. Mod. Phys.* **62**, 531 (1990).
- [2] D. J. Wineland and 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).
- [3] T.W. Haensch and A.L. Schawlow. *Cooling of gases by laser radiation*. *Optics Comm.* **13**, 68 (1975).
- [4] H.G. Dehmelt. *Radiofrequency spectroscopy of stored ions I : storage*. *Advances in Atomic and Molecular Physics* **3**, 53–72 (1967).
- [5] G.P. Barwood, H.S. Margolis, G. Huang, P. Gill, and H.A. Klein. *Measurement of the Electric Quadrupole Moment of the $4d^2D_{5/2}$ Level in $^{88}Sr^+$* . *Phys. Rev. Lett.* **93**, 133001 (2004).
- [6] W. Neuhauser, M. Hohenstatt, P.E. Toschek, and H.H. Dehmelt. *Localized Visible Ba^+ Mono-Ion Oscillator*. *Phys. Rev. A* **22**, 1137 (1980).
- [7] W. Nagourney, J. Sandberg, and H.G. Dehmelt. *Shelved Optical Electron Amplifier : Observation of Quantum Jumps*. *Phys. Rev. Lett.* **56**, 2797–2799 (1986).
- [8] Th. Sauter, R. Blatt, W. Neuhauser, and P.E. Toschek. *Observation of Quantum Jumps*. *Phys. Rev. Lett.* **57**, 1696–1698 (1986).
- [9] J. Bergquist, R.G. Hulet, W.M. Itano, and D.J. Wineland. *Observation of Quantum Jumps in a Single Atom*. *Phys. Rev. Lett.* **57**, 1699–1702 (1986).
- [10] F. Diedrich, E. Peik, , J.M. Chen, W. Quint, and H. Walther. *Observation of a Phase Transition of Stored Laser-Cooled Ions*. *Phys. Rev. Lett.* **59**, 2931–2934 (1987).
- [11] D. J. Wineland, W. M. Itano, J. C. Bergquist, and R. G. Hulet. *Laser-cooling limits and single-ion spectroscopy*. *Phys. Rev. A* **36**, 2220–2232 (1985).
- [12] M.G. Raizen, J.M. Gilligan, J.C. Bergquist, W.M. Itano, and D.J. Wineland. *Ionic crystals in a linear Paul trap*. *Phys. Rev. A* **45**, 6493–6501 (1992).

- [13] I. Waki, S. Kassner, G. Birkel, and H. Walther. *Observation of Ordered Structures of Laser-Cooled Ions in a Quadrupole Storage Ring*. Phys. Rev. Lett. **68**, 2007 (1993).
- [14] U. Eichmann, J.C. Bergquist, J.J. Bollinger, J.M. Gilligan, W.M. Itano, D.J. Wineland, and M.G. Raizen. *Young's Interference Experiment with Light Scattered from Two Atoms*. Phys. Rev. Lett. **70**, 2359–2362 (1993).
- [15] C. Monroe, D. M. Meekhof, B. E. King, W. M. Itano, and D. J. Wineland. *Demonstration of a Fundamental Quantum Logic Gate*. Phys. Rev. Lett. **75**, 4091 (1995).
- [16] F. Schmidt-Kaler, H. Häffner, M. Riebe, S. Gulde, G. P.T. Lancaster, T. Deuschle, C. Becher, C.F. Roos, J. Eschner, and R. Blatt. *Realization of the Cirac-Zoller controlled-NOT quantum gate*. Nature **422**, 408–411 (2003).
- [17] D. Leibfried, B. DeMarco, V. Meyer, D. Lucas, M. Barrett, J. Britton, W. M. Itano, B. Jelenkovic, C. Langer, T. Rosenband, and D. J. Wineland. *Experimental demonstration of a robust, high-fidelity geometric two ion-qubit phase gate*. Nature **422**, 412–415 (2003).
- [18] G. R. Guthöhrlein, M. Keller, K. Hayasaka, W. Lange, and H. Walther. *A Single Ion as a Nanoscopic Probe of an Optical Field*. Nature **414**, 49 (2001).
- [19] M. Keller, B. Lange, K. Hayasaka, W. Lange, and H. Walther. *A calcium ion in a cavity as a controlled single-photon source*. New J. Phys. **6**, 95 (2004).
- [20] C. Maurer, C. Becher, C. Russo, J. Eschner, and R. Blatt. *A single-photon source based on a single Ca^+ ion*. New J. Phys. **6**, 94 (2004).
- [21] XIII^e Conférence Générale des Poids et Mesures (CGPM) (1967/68).
- [22] S. Bize, S.A. Diddams, U. Tanaka, C.E. Tanner, W.H. Oskay, R.E. Drullinger, T.E. Parker, T.P. Heavner, S.R. Jefferts, L. Hollberg, W.M. Itano, and J.C. Bergquist. *Testing the Stability of Fundamental Constants with the $^{199}Hg^+$ Single-Ion Optical Clock*. Phys. Rev. Lett. **90**, 150802 (2003).
- [23] E. Peik, B. Lipphardt, H. Schnatz, T. Schneider, Chr. Tamm, and S.G. Karshenboim. *Limit on the Present Temporal Variation of the Fine Structure Constant*. Phys. Rev. Lett. **93**, 170801 (2004).
- [24] A.A. Madej and J.E. Bernard. *Single Ion Optical Frequency Standards and Measurements of their Absolute Optical Frequency*. Topics in Applied Physics. Springer Verlag New York (2000).

- [25] S.A. Diddams, Th. Udem, J.C. Bergquist, E.A. Curtis, R.E. Drullinger, L. Hollberg, W.M. Itano, W.D. Lee, C.W. Oates, K.R. Vogel, and D.J. Wineland. *An Optical Clock Based on a Single Trapped $^{199}\text{Hg}^+$ Ion*. *Science* **293**, 825–828 (2001).
- [26] H. S. Margolis, G. P. Barwood, G. Huang, H. A. Klein, S. N. Lea, K. Szymaniec, and P. Gill. *Hertz-Level Measurement of the Optical Clock Frequency in a Single $^{88}\text{Sr}^+$ Ion*. *Science* **306**, 1355–1358 (2004).
- [27] P.J. Blythe, S.A. Webster, K. Hosaka, and P. Gill. *Systematic frequency shifts of the 467 nm electric octupole transition in $^{171}\text{Yb}^+$* . *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.* **36**, 981–989 (2003).
- [28] D. W. Allan. *Statistics of Atomic Frequency Standards*. *Proc. of the IEEE* **54**, 221–230 (1966).
- [29] A. Makdissi and E. de Clercq. *Evaluation of the accuracy of the optically pumped caesium beam primary frequency standard of the BNM-LPTF*. *Metrologia* **38**, 409–425 (2001).
- [30] C. Vian, P. Rosenbusch, H. Marion, S. Bize, L. Cacciapuoti, S. Zhang, M. Abgrall, D. Chambon, I. Maksimovic, P. Laurent, G. Santarelli, A. Clairon, A. Luiten, M. Tobar, and C. Salomon. *BNM-SYRTE Fountains : Recent Results*. *IEEE Transactions on Instrumentation and Measurement* **54**, 833–836 (2005).
- [31] H. Katori, M. Takamoto, V.G. Pal'chikov, and V.D. Ovsiannikov. *Ultrastable Optical Clock in an engineered Light Shift Trap*. *Phys. Rev. Lett.* **91**, 173005 (2003).
- [32] Patrick Gill. *Proceedings of the Sixth Symposium on Frequency Standards and Metrology*. World Scientific Ltd Singapore (2002).
- [33] W. Heisenberg. *Über den anschaulichen Inhalt der quantentheoretischen Kinematik und Mechanik*. *Zeitschrift für Physik* **43**, 172–198 (1927).
- [34] R. H. Dicke. *The Effect of Collisions upon the Doppler Width of Spectral Lines*. *Phys. Rev.* **89**, 472 (1953).
- [35] P.T.H. Fisk. *Trapped-ion and trapped-atom microwave frequency standards*. *Rep. Prog. Phys.* **60**, 761–817 (1997).
- [36] M. Knoop, C. Champenois, G. Hagel, M. Houssin, C. Lisowski, M. Vedel, and F. Vedel. *Metastable level lifetimes from electron-shelving measurements with ion clouds and single ions*. *Eur. Phys. J. D* **29**, 163–171 (2004).
- [37] C.E. Theodosiu. *Accurate calculation of the 4p lifetimes of Ca^+* . *Phys. Rev. A* **39**, 4880–4883 (1989).

- [38] U. Tanaka, S. Bize, C.E. Tanner, R.E. Drullinger, S.A. Diddams, L. Hollberg, W.M. Itano, D.J. Wineland, and J.C. Bergquist. *The $^{199}\text{Hg}^+$ single ion optical clock : recent progress*. J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys. **36**, 545–551 (2003).
- [39] M. Roberts, P. Taylor, G. P. Barwood, W. R. C. Rowley, and P. Gill. *Observation of the $^2S_{1/2} - ^2F_{7/2}$ Electric Octupole Transition in a Single ^{171}Yb Ion*. Phys. Rev. A **62**, 020501(R) (2000).
- [40] P.J. Blythe, S.A. Webster, H.S. Margolis, S.N. Lea, G. Huang, S.-K. Choi, W.R.C. Rowley, P. Gill, and R.S. Windeler. *Subkilohertz absolute-frequency measurement of the 467-nm electric octupole transition in $^{171}\text{Yb}^+$* . Phys. Rev. A **67**, 020501(R) (2003).
- [41] Chr. Tamm, T. Schneider, and E. Peik. *Comparison of two single-ion optical frequency standards at the sub-Hertz level*. In P. Hannaford, A. Sidorov, H. Bachor, and K. Baldwin (eds.), *Laser Spectroscopy* World Scientific Ltd Singapore (2004).
- [42] H.S. Margolis, G. Huang, G.P. Barwood, S.N. Lea, H.A. Klein, W.R.C. Rowley, P. Gill, and R.S. Windeler. *Absolute frequency measurement of the 674-nm $^{88}\text{Sr}^+$ clock transition using a femtosecond optical frequency comb*. Phys. Rev. A **67**, 032501 (2003).
- [43] A.A. Madej, J.E. Bernard, P. Dubé, L. Marmet, and R.S. Windeler. *Absolute frequency of the $^{88}\text{Sr}^+$ $5s^2S_{1/2} - 4d^2D_{5/2}$ reference transition at 445 THz and evaluation of systematic shifts*. Phys. Rev. A **70**, 012507 (2004).
- [44] M. Eichenseer, A. Yu. Nevsky, Ch. Schwedes, J. von Zanthier, and H. Walther. *Towards an indium single-ion optical frequency standard*. J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys. **36**, 553–559 (2003).
- [45] M. Chwalla, J. Benhelm, M. Riebe, H. Häffner, W. Hänsel, C. Roos, F. Schmidt-Kaler, and R. Blatt. *Optischer Frequenzstandard mit $^{40}\text{Ca}^+$ -Ionen*. In *Verhandl. DPG* volume (VI) 39 p. 147 (2004).
- [46] D.J. Wineland, J.C. Bergquist, J.J. Bollinger, R.E. Drullinger, and W.M. Itano. *Quantum computers and atomic clocks*. In Patrick Gill (ed.), *Proceedings of the Sixth Symposium on Frequency Standards and Metrology* World Scientific Ltd Singapore (2002).
- [47] E. Peik and Chr. Tamm. *Nuclear laser spectroscopy of the 3.5 eV transition in Th* – 229. Europhys. Lett. **61**, 181–186 (2003).
- [48] H. Dehmelt, N. Yu, and W. Nagourney. *The $6^1S_0 - 6^3P_0$ transition in thallium*

- isotope ion $^{204}\text{Tl}^+$: A superior atomic clock.* In *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* volume 86 p. 3938 (1989).
- [49] N. Yu, H. Dehmelt, and W. Nagourney. *The $3^1S_0 - 3^3P_0$ transition in the aluminum isotope ion $^{26}\text{Al}^+$: A potentially superior passive laser frequency standard and spectrum analyzer.* In *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* volume 89 p. 7289 (1992).
- [50] Th.Udem, R.Holzwarth, and T.W.Hänsch. *Optical Frequency Metrology.* *Nature* **416**, 233–237 (2002).
- [51] NPL. <http://www.npl.co.uk>. (2004).
- [52] Martina Knoop. *Etude spectroscopique du doublet métastable $3D$ de l'ion Ca^+ dans un piège de Paul en présence de collisions.* Thèse de doctorat Université de Provence Marseille (décembre 1994).
- [53] E. Paul-Kwiek and E. Czuchaj. *Quantal close-coupling calculation of the cross sections for the $j_1m_1 \rightarrow j_2m_2$ transitions in the $4p^2P$ and $3d^2D$ excited states of Ca^+ induced by collisions with helium.* *Z. Phys. D* **41**, 87–94 (1997).
- [54] D. J. Wineland, R. E. Drullinger, and F. L. Walls. *Radiation-Pressure Cooling of Bound-Resonant Absorbers.* *Phys. Rev. Lett.* **40**(25), 1639 (June 1978).
- [55] R.D. Knight and M.H. Prior. *Laser scanning measurements of the density distribution of confined $^6\text{Li}^+$ Ions.* *J. Appl. Phys.* **50**, 3044–3049 (1979).
- [56] F. Diedrich, J.C. Bergquist, W.I. Itano, and D.J. Wineland. *Laser Cooling to the Zero-Point Energy of Motion.* *Phys. Rev. Lett.* **62**, 403 (1989).
- [57] E.C. Beaty. *Simple electrodes for quadrupole ion traps.* *J. Appl. Phys.* **61**(6), 2118–2122 (1987).
- [58] A.A. Madej and J.D. Sankey. *Quantum jumps and the single trapped barium ion : Determination of collisional quenching rates for the $5d^2D_{5/2}$ level.* *Phys. Rev.A* **41**, 2621 (1990).
- [59] N. Yu, W. Nagourney, and H.G. Dehmelt. *Demonstration of new Paul-Straubel trap for trapping single ions.* *J.Appl.Phys.* **6**, 3779 (1991).
- [60] D. Engelke and Christian Tamm. *Dark times in the resonance fluorescence of trapped $^{171}\text{Yb}^+$ -ions caused by spontaneous quantum jumps to the $^2D_{3/2}(F = 2)$ state.* *Europhys. Lett.* **33**, 347–352 (1996).
- [61] C.A. Schrama, E. Peik, W.W. Smith, and H. Walther. *Novel miniature ion traps.* *Optics Communications* **101**, 32–36 (1993).
- [62] A.G. Sinclair, M.A. Wilson, and P. Gill. *Improved three-dimensional control of a single strontium ion in an endcap trap.* *Opt. Comm.* **190**, 193–203 (2001).

- [63] J.D. Prestage, G.J. Dick, and L. Maleki. *New Ion Trap for Frequency Standard Applications*. J. Appl. Phys. **66**, 1013 (1989).
- [64] J.D. Prestage, G.J. Dick, and L. Maleki. *Linear Ion Trap Based Atomic Frequency Standard*. IEEE Transactions on Instrumentation and Measurement **40**, 132–136 (1991).
- [65] R.K. Melbourne, J.D. Prestage, and L. Maleki. *Analytic potential in a linear radio-frequency quadrupole trap with cylindrical electrodes*. J. Appl. Phys. **69**, 2768–2775 (1991).
- [66] Ekkehard Peik. *communication privée*. (1995).
- [67] Joachim H. Abel. *Aufbau eines Wellenlängenmeßgeräts und eines Diodenlasers für die Spektroskopie an gespeicherten Ionen*. Diplomarbeit Universität de Provence / Johannes-Gutenberg-Universität Mainz (1993).
- [68] Nicolas Petrochilos. *Stabilisation en fréquence d'un laser hélium-néon*. Magistère de l'E.N.S. Lyon, Rapport de stage Université de Provence Marseille (1993).
- [69] R.W.P. Drever, J.L. Hall, F.V. Kowalski, J. Hough, G.M. Ford, A.J. Munley, and H.W. Ward. *Laser Phase and Frequency Stabilization Using an Optical Resonator*. Appl. Phys. B **31**, 97 (1983).
- [70] Ferdinand Schmidt-Kaler. *communication privée*. (2003).
- [71] T.W. Haensch and B. Couillaud. *Laser Frequency Stabilization by Polarization Spectroscopy*. Opt. Commun. **35**, 441 (1980).
- [72] Thomas Schweizer. *Aufbau eines frequenzstabilisierten Diodenlasers bei 852 nm mittels Sättigungsspektroskopie an Cäsium und eines Überhöhungsresonators zur Frequenzverdopplung mit einem LBO-Kristall bei 397 nm*. Diplomarbeit Universität zu Köln (1998).
- [73] Thomas Pawletko. *Injektionsstabilisierung einer Breitstreifendiode bei 794 nm*. Diplomarbeit Universität zu Köln (1999).
- [74] Th. Pawletko, M. Houssin, M. Knoop, M. Vedel, and F. Vedel. *High power broad-area diode laser at 794 nm injected by an external cavity laser*. Opt. Comm. **174**, 223 (2000).
- [75] Mustapha S. Herbane. *Piégeage et refroidissement laser d'ions calcium pour un étalon de fréquence optique*. Thèse de doctorat Université de Provence Marseille (mars 2002).
- [76] Caroline Lisowski. *Un ion unique de Ca^+ pour un étalon de fréquence optique*. Thèse de doctorat Université de Provence Marseille (soutenance prévue en juin 2005).

- [77] M. Vedel, J. Rocher, M. Knoop, and F. Vedel. *Experimental Study of the Efficiency of Storage in an RF Ion Trap*. Rapid Comm. Mass Spectrom. **9**, 1580–1583 (1995).
- [78] M. Vedel, J. Rocher, M. Knoop, and F. Vedel. *Evidence of radial-axial motion couplings for an r.f. stored ion cloud*. Appl. Phys. B **66**, 191–196 (1998).
- [79] H.G. Dehmelt. *Proposed $10^{14} \Delta\nu < \nu$ Laser Fluorescence Spectroscopy on Tl^+ Mono-Ion Oscillator II (spontaneous quantum jumps)*. Bull. Am. Phys. Soc. **20**, 60 (1975).
- [80] T. Gudjons, B. Hilbert, P. Seibert, and G. Werth. *Precise lifetime determination of the metastable $3D^2D_{5/2}$ level in Ca^+ by "electron-shelving"*. Europhys. Lett. **33**, 595 (1996).
- [81] G. Ritter and U. Eichmann. J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys. **30**, L141 (1997).
- [82] M. Block, O. Rehm, P. Seibert, and G. Werth. *$3d^2D_{5/2}$ lifetime in laser cooled Ca^+ : Influence of cooling laser power*. Eur. Phys. J. D **7**, 461–465 (1999).
- [83] M. Knoop, M. Vedel, and F. Vedel. *Lifetime, collisional-quenching, and j -mixing measurements of the metastable $3D$ levels of Ca^+* . Phys. Rev. A **52**, 3763 (1995).
- [84] M. Knoop, M. Vedel, and F. Vedel. *Collisional Quenching and j -Mixing Rate Constants for the $3D$ levels of Ca^+* . Phys. Rev. A **58**, 264 (1998).
- [85] D.J. Larson, J.C. Bergquist, J.J. Bollinger, W.M. Itano, and D.J. Wineland. *Sympathetic Cooling of Trapped Ions : A Laser-Cooled Two-Species Nonneutral Ion Plasma*. Phys. Rev. Lett. **57**, 70 (1986).
- [86] N. Yu, W. Nagourney, and H.G. Dehmelt. *Radiative Lifetime Measurement of the Ba^+ Metastable $D_{3/2}$ State*. Phys. Rev. Lett. **78**, 4898–4901 (1997).
- [87] D.J. Berkeland, J.D. Miller, J.C. Bergquist, W.M. Itano, and D.J. Wineland. *Minimization of ion micromotion in a Paul trap*. J. Appl. Phys. **83**, 5025 (1998).
- [88] N. Yu and H.G. Dehmelt. *Enhanced-Micromotion Reduction and Elimination*. In D.H.E. Dubin and D. Schneider (eds.), *Trapped Charged Particles and Fundamental Physics, Monterey* volume CP457 pp. 261–268 The American Institute of Physics Berlin, Heidelberg (1999).
- [89] W.W. Macalpine and R.O. Schildknecht. *Coaxial Resonators with Helical Inner Conductor*. Proceedings of the IRE **47**, 2099–2105 (1959).
- [90] N. Kjærgaard, L. Hornekær, A.M. Thommesen, Z. Videsen, and M. Drewsen. *Isotope selective loading of an ion trap using resonance-enhanced two-photon ionization*. Appl. Phys. B **71**, 207–210 (2000).

- [91] D.M. Lucas, A. Ramos, J.P. Home, M.J. McDonnell, S. Nakayama, J.-P. Stacey, S.C. Webster, D.N. Stacey, and A.M. Steane. *Isotope-selective photoionization for calcium ion trapping*. Phys.Rev. A **69**, 012711 (2004).
- [92] M. Drewsen, I.Jensen, J.Lindballe, N.Nissen, R.Martinussen, A.Mortensen, P.Staanum, and D.Voigt. *Ion Coulomb crystals : a tool for studying ion processes*. Int. J. of Mass Spec. **229**, 83–91 (2003).
- [93] P.A. Barton, C.J.S. Donald, D.M. Lucas, D.A. Stevens, A.M. Steane, and D.N. Stacey. *Measurement of the lifetime of the $3d^2D_{5/2}$ state in $^{40}\text{Ca}^+$* . Phys. Rev. A **62**, 032503 (2000).
- [94] S. Bourzeix, M. D. Plimmer, F. Nez, L. Julien, and F. Biraben. *Efficient frequency doubling of a continuous wave titanium : sapphire laser in an external enhancement cavity*. Optics Communications **99**, 89 (1993).
- [95] J.Reichert, M.Niering, R.Holzwarth, M.Weitz, Th.Udem, and T.W.Hänsch. *Phase Coherent Vacuum-Ultraviolet to Radio Frequency Comparison with a Mode-Locked Laser*. Phys. Rev. Lett. **84**, 3232–3235 (2000).
- [96] W. M. Itano. *External-Field Shifts of the $^{199}\text{Hg}^+$ Optical Frequency Standard*. J. Res. Natl. Stand. Technol. **105**, 829–837 (2000).
- [97] C. Champenois, M. Houssin, C. Lisowski, G. Hagel, M. Knoop, M. Vedel, and F. Vedel. *Evaluation of the ultimate performances of a Ca^+ single-ion frequency standard*. Phys. Lett. A **331**, 298–311 (2004).
- [98] P. Gill, G. Barwood, H. Klein, G. Huang, S. Webster, P. Blythe, K. Hosaka, S. Lea, and H. Margolis. *Trapped Ion Optical Frequency Standards*. Meas. Sci. Technol. **14**, 1174 (2003).
- [99] J.T. Hoeffges, L.S. Ma, W. Lange, and H. Walther. *Heterodyne measurement of the resonance fluorescence of a single ion*. Journal of Modern Optics **44**, 1999–2010 (1997).
- [100] W. M. Itano, J. C. Bergquist, and D. J. Wineland. *Photon antibunching and sub-Poissonian statistics from quantum jumps in one and two atoms*. Phys. Rev. A **38**, 559–562 (1988).
- [101] C.J.S. Donald, D.M. Lucas, P.A. Barton, M.J. McDonnell, J.P. Stacey, D.A. Stevens, D.N. Stacey, and A. M. Steane. *Search for correlation effects in linear chains of trapped Ca^+ ions*. Europhys. Lett. **51**(4), 388 (2000).
- [102] C. Skornia, J. von Zanthier, G.S. Agarwal, E. Werner, and H. Walther. *Inhibition of cooperative quantum jumps due to fast spontaneous decay*. Europhys. Lett. **56**, 665–671 (2001).

-
- [103] C. Skornia, J. von Zanthier, G.S. Agarwal, E. Werner, and H. Walther. *Monitoring the dipole-dipole interaction via quantum jumps of individual atoms*. Phys. Rev. A **64**, 053803 (2001).
- [104] J. von Zanthier, C. Skornia, G.S. Agarwal, and H. Walther. *Quantum coherence in a single ion due to strong excitation of a metastable transition*. Phys. Rev. A **63**, 013816 (2000).
- [105] M.D. Barrett, B. DeMarco, T. Schaetz, D. Leibfried, J. Britton, J. Chiaverini, W.M. Itano, B. Jelenković, J.D. Jost, C. Langer, T. Rosenband, and D.J. Wineland. *Sympathetic cooling of $^9\text{Be}^+$ and $^{24}\text{Mg}^+$ for quantum logic*. Physical Review A **68**, 042302 (2003).

Annexe

A. Les schémas d'énergie

A.1 L'ion $^{40}\text{Ca}^+$

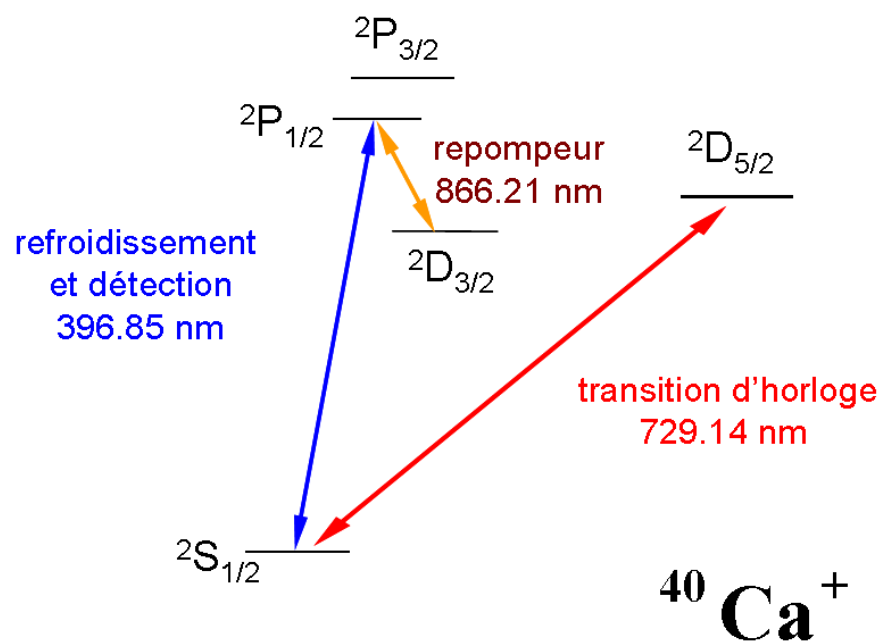


Fig. A.1: Schéma des premiers niveaux d'énergie du Ca^+

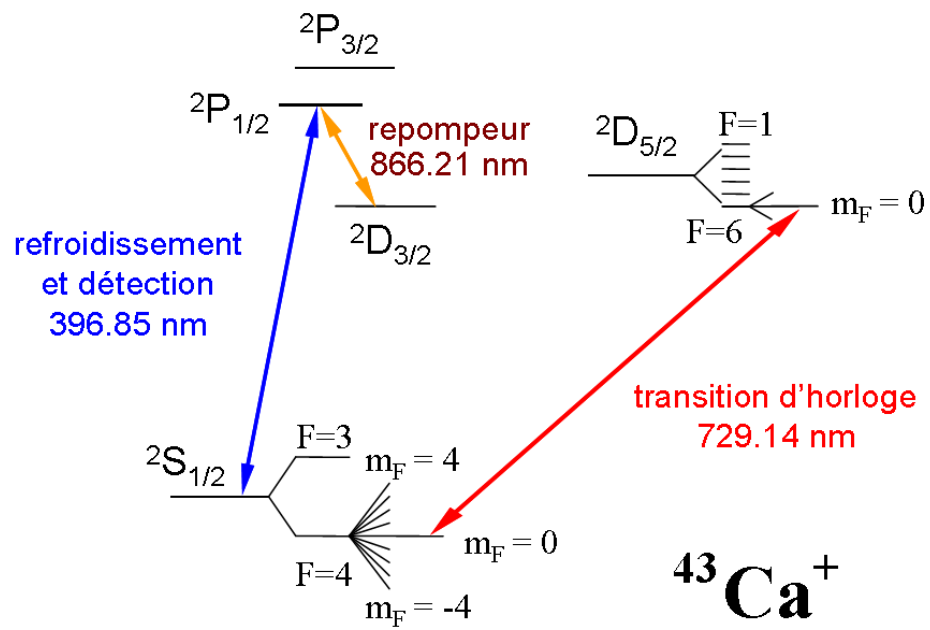
A.2 L'ion $^{43}\text{Ca}^+$ 

Fig. A.2: Premiers niveaux d'énergie de l'isotope $^{43}\text{Ca}^+$.

II. Notice individuelle

A. Curriculum vitae

MARTINA KNOOP

née le 27.09.1965 à Paris, France,
nationalité allemande,
mariée, deux enfants (8 et 5 ans),
Chargée de recherche (première classe) au CNRS

adresse professionnelle :
Université de Provence, Physique des Interactions Ioniques et Moléculaires (UMR 6633),
Centre de St.Jérôme, Case C21, F -13397 Marseille Cedex 20,
Tél. 04.91.28.80.26, Fax 04.91.28.87.45, e-mail : mknoop@up.univ-mrs.fr
adresse personnelle :
11, rue d'Isly, F - 13005 Marseille, Tél. 04.91.80.41.90

PARCOURS SCIENTIFIQUE

juin 1984 Abitur (baccalauréat), Leonhard-Wagner-Schule, Schwabmünchen, R.F.A.,

1984-1990 Études de physique, Eberhard-Karls-Universität, Tübingen, R.F.A.,
1987/88 Stage de 6 mois au Max-Planck-Institut für Festkörperforschung (Prof. E. Gmelin)
1990 Diplomarbeit (12 mois) à l'Inst. de physique exp. II (Prof. R. Hübener) sous la direction
de Dr. J. Parisi

1991-1994 Thèse à l'Université de Provence, Marseille, sous la direction de Prof. F. Vedel
1991-1992 Boursière CNRS-AGF
1993-1994 Boursière Marie-Curie (à l'époque HCM) de la Communauté Européenne
14 déc.94 soutenance (TRÈS HONORABLE AVEC FÉLICITATIONS)

1994-1995 ATER, Université de Provence

depuis oct.95 Chargée de Recherche au CNRS

SOCIÉTÉS SAVANTES

Membre de la Deutsche Physikalische Gesellschaft (depuis 1988), de la Société Française de Physique (depuis 1991), de la Société Française d'Optique (depuis 1993), et de l'Association Marie-Curie qui regroupe les anciens boursiers sur fonds européen.

ENCADREMENT

J'ai co-encadré deux thésards (M. Herbane, soutenance le 8 mars 2002, et Caroline Lisowski, soutenance prévu en juin 2005). J'ai formé ces étudiants sur l'expérience afin qu'ils puissent participer aux mesures effectuées dans le piège miniature. La thèse de M. Herbane s'occupait essentiellement de la stabilisation de la diode repompeur à 866 nm et son intégration dans l'expérience, tandis que la thèse de Caroline Lisowski porte surtout sur la mesure des durées de vie du doublet métastable, et les méthodes de réduction de micromouvement. Dans une moindre mesure, j'ai également participé à l'encadrement de la thèse de J. Rocher (soutenance le 6 avril 1998), qui travaillait sur la dynamique des ions confinés, ainsi que des trois diplômés (stages de 12 mois) que nous avons accueillis ces dernières années (Thomas Schweizer (1998), Thomas Pawletko (1999), et Bernhard Schmidt (2002)). Depuis une dizaine d'années, je propose des sujets de stages en relation avec l'expérience Ca^+ et je participe activement à l'encadrement des stagiaires de l'équipe (en moyenne 4 à 5 chaque année, niveau : maîtrise, magistère, DEA, école d'ingénieur, école normale, diplomand). Plus particulièrement, j'ai encadré les stagiaires suivants :

- Sylvia PERES *Mémoire de maîtrise de Physique, 1992-93*
Etude de la transition interdite à 730nm de CaII candidat pour l'asservissement d'une horloge atomique.
- Olivier FRANÇOIS *Mémoire de maîtrise de Physique, 1992-93*
Etude de la transition interdite à 730nm de CaII candidat pour l'asservissement d'une horloge atomique.
- Joëlle ROCHER *Stage de DEA Rayonnement et Plasmas, 1993-94*
Contribution à l'étude du niveau métastable 3D du CaII sous l'influence des collisions.
- Ghislain PICARD *Stage de l'ENS de Lyon, 1993-94*
Stabilisation électronique de la fréquence d'émission d'une diode laser.
- Nathalie FERRAN *Stage de DEA Rayonnement et Plasmas, 1995-96*
Etude en piège de Paul de la transition quadripolaire électrique de l'ion calcium en vue d'application métrologique.
- Jérôme POULEUR *Mémoire de maîtrise de Physique, 1995-96*
Miniaturisation d'un piège de Paul pour le refroidissement d'un ion calcium.
- Mustapha HERBANE *Stage de DEA Rayonnement et Plasmas, 1997-98*
Etude spectroscopique de l'ion calcium refroidi par laser. Stabilisation d'une diode laser à 866 nm.
- Pierre RAYBAUT *Mémoire de maîtrise de Physique, 1997-98*
Les ordinateurs quantiques. Étude spectroscopique d'ions calcium refroidis dans un piège miniature.
- Fabrice BEAUVILLE et Bruno GOUTORBE
Stage de 1^{re} année, Magistère de Physique, Orsay, 1999-2000
Confinement et refroidissement d'un nuage d'ions Ca^+ en vue de la fabrication d'une horloge atomique.
- Céline BARBATO *Mémoire de maîtrise de Physique, 2000-01*
Mesure de la durée de vie des niveaux métastables à l'aide du piégeage d'un ion unique de Ca^+ au repos.
- Caroline Lisowski *Stage de DEA Lasers et Matière, 2001-02*
Ions calcium uniques pour un étalon de fréquence optique.
- Sébastien PUECHAGUT *Stage de 2^e année, ENSI Caen, 2003-04*
Stabilisation d'une cavité optique.

ENSEIGNEMENT

année	intitulé	niveau	volume
1993/94	TD de physique (électricité et magnétisme)	DEUG (2 ^e a)	12 h
1994/95	TP Physique Atomique et Moléculaire	maîtrise	64 h
	TD Mesures Physiques, Statistique et Probabilités	DEUG (2 ^e a)	32 h
2004/05	Atelier de Physique Expérimentale	M2 SPM	6 h
	TP de laboratoire	L3 SPM	6 h
	Cours "Spectroscopie et horloges atomiques"	EGIM (2 ^e a)	4 h

DIFFUSION DU SAVOIR

J'ai assuré le secrétariat, la gestion des participants et la mise en place des pages Web pour l'organisation de l'EGAS, congrès annuel du groupe de spectroscopie atomique de l'EPS rassemblant 300 personnes, qui avait lieu à Marseille en juillet 1999.

J'ai été membre actif du comité d'organisation (section locale de la Société Française de Physique) de la journée "Physique13 en clips" qui s'est tenue le 23 janvier 2002 à Marseille. Cette manifestation a rassemblé environ 200 personnes de tous les laboratoires marseillais pour faire un panorama de la physique marseillaise en soixante-dix clips de 5 minutes. J'ai été responsable du site internet de cette journée et j'ai préparé, conçu et fait presser le CD des clips distribué en très grand nombre à l'issue de la manifestation.

Dans le cadre des "Rencontres entre des enseignants et des chercheurs" organisées par le rectorat, nous avons accueilli au laboratoire des groupes de plusieurs enseignants du secondaire pendant deux journées en 2004 et une journée en 2005. Nous avons fait découvrir notre sujet de recherche à travers des exposés, une expérience de démonstration, et des visites détaillées des expériences.

Pour la première fois cette année, j'ai participé à l'opération "Rencontres avec la Science" à l'Agora des Sciences de Marseille, j'ai exposé comment utiliser "Des lasers pour la mesure du temps" à deux classes de 3^e, suivi d'une discussion très animée.

EXPERTISES

En décembre 2003, j'étais l' "opposant" de la thèse d'Anna Ellmann à l'université de Stockholm sur invitation du prof. S. Mannervik.

Rapporteur pour Optics Communications.

ADMINISTRATION DE LA RECHERCHE

Au sein de l'équipe Confinement d'Ions et Manipulation Laser je m'occupe de l'installation et de l'entretien du parc informatique, j'ai programmé les pages Web de notre équipe pour le serveur du laboratoire. Je gère également le stock en matériel optique et diode lasers, et je choisis le matériel. Début 2004, l'université de Provence a acquis un nouveau logiciel de gestion et de comptabilité. Manque de personnel administratif, je me suis occupé de la saisie et du suivi des commandes et des missions pour l'équipe CIML jusqu'en mars 2005.

FONCTIONS D'INTÉRÊT GÉNÉRAL

Depuis début 1997 je suis membre élu du Conseil de Laboratoire de notre UMR, j'ai été membre de la commission de spécialistes de 1997-2001. Je suis membre élu de la commission recherche de l'UFR Sciences de la Matière depuis le printemps 2002.

SÉJOURS COURTS DANS DES LABORATOIRES

J'ai fait un séjour d'une semaine dans l'équipe de D. Wineland (Ion Storage Group, Time and Frequency Division) au NIST en juin 2001. Dans le cadre de notre collaboration PROCOPE, j'ai passé une semaine au Max-Planck-Institut für Quantenoptik, Garching/RFA, Laser physics division (resp. Prof. H. Walther) en octobre 2001.

B. Liste des publications

PUBLICATIONS DANS REVUES À COMITÉ DE LECTURE

- P-1 E. Gmelin, K.H. Greubel, M. Knoop, M. Thier,
Cryogenic Thermometry with Common Electronic Diodes, *Cryogenics* **30**, 442-446 (1990)
- P-2 M. Knoop, J. Parisi, W. Clauss, U. Rau, J. Peinke,
Self-Organized Critical Dynamics and Phase Transition Behavior During Avalanche Breakdown in p-Germanium, *Z. Naturforsch.* **46A**, 1009-1011 (1991)
- P-3 M. Knoop, M. Vedel, F. Vedel,
Investigation of a Ca^+ rf stored ion cloud and observation of the forbidden S-D transitions, *J. Phys. II (France)* **4**, 1639-1650 (1994)
- P-4 M. Vedel, M. Knoop, D. Lunney, I. Rebatel, F. Vedel,
Determination of stored ions kinetic energy by the time-of-flight method of free ejected ions, *Phys. Rev. A* **51**, 2294-2300 (1995)
- P-5 M. Knoop, M. Vedel, F. Vedel,
Lifetime, collisional quenching and j-mixing measurements of the metastable 3D-levels of Ca^+ , *Phys. Rev. A* **52**, 3763-3769 (1995), page 18
- P-6 M. Vedel, J. Rocher, M. Knoop, F. Vedel,
Experimental Study of the Efficiency of Storage in an RF Ion Trap, *Rapid Comm. Mass Spectrom.* **9**, 1580-1583 (1995)
- P-7 M. Vedel, J. Rocher, M. Knoop, F. Vedel,
Evidence of radial-axial motion couplings for an r.f. stored ion cloud, *Appl. Physics B* **66**, 191-196 (1998)
- P-8 M. Knoop, M. Vedel, F. Vedel,
Collisional quenching and j-mixing rate constants for the 3D-levels of Ca^+ , *Phys. Rev. A* **58**, 264-269 (1998), page 25
- P-9 M. Vedel, J. Rocher, M. Knoop, F. Vedel,
Kinetic energy of an N^+ ion cloud throughout the stability diagram, *Int. J. Mass Spectrom. Ion Processes* **190/191**, 37-45 (1999)
- P-10 T. Pawletko, M. Houssin, M. Knoop, M. Vedel, F. Vedel,
High Power Broad-Area Diode Laser at 794nm Injected by an External Cavity Laser, *Opt. Comm.* **174**, 223-229 (2000), page 40
- P-11 C. Champenois, M. Knoop, M. Herbane, M. Houssin, T. Kaing, M. Vedel, F. Vedel,
Characterization of a miniature Paul-Straubel trap, *Eur. Phys. Journal D* **15**, 105-111 (2001), page 61
- P-12 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, **42**, 4871-4876 (2003), page 49
- P-13 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**, 163-171 (2004), page 77
- P-14 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 **331/5**, 298-311 (2004),
- P-15 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,
accepté par Appl.Phys.B., arxiv :physics/0407135, page 102

ACTES DE COLLOQUE

- Pr-1 A. Kittel, W. Clauss, M. Knoop, U. Rau, J. Parisi, J. Peinke, R.P. Huebener,
Possible Experimental Verification of Self-Organized Critical Behavior in Extrinsic Germanium,
Proceedings 20th Intern. Conf. Phys. Semicond., eds. E.M. Anastassakis and J.D. Joannopoulos, World Scientific, Singapore 1990, p.2213
- Pr-2 M. Knoop, N. Khelifa, M. Vedel, F. Vedel,
Spectroscopie de $CaII$ en piège de Paul,
Actes de COLOQ3, Ann. Phys. Fr. 20 (suppl. n°2), C1.121-C1.126 (1995)
- Pr-3 M. Knoop, J. Rink, M. Vedel, F. Vedel,
Refroidissement laser d'un nuage d'ions Ca^+ en piège de Paul,
Actes de COLOQ4, Ann. Phys. Fr. 20, 645-646 (1995)
- Pr-4 M. Knoop, J. Rocher, M. Vedel, F. Vedel,
Spectroscopic study of the Ca^+ long-lived 3D-doublet in view of a frequency standard application,
Proceedings of the 9th EFTF 1995, p.390-393
- Pr-5 M. Knoop, J. Rink, M. Vedel, F. Vedel,
Rf stored Ca^+ - possible candidate for a frequency standard in the optical domain,
Proceedings of the 12th Intern. Conf. Laser Spectroscopy, eds. M. Inguscio, M. Allegrini, A. Sasso, World Scientific, Singapore 1996, p.185-186
- Pr-6 M. Knoop, J. Rink, M. Vedel, F. Vedel,
Laser-cooled Ca^+ - ions in a Paul trap : influence of collisions,
Proceedings of the 5th Symposium on Frequency Standards and Metrology, ed. J.C. Bergquist, World Scientific, Singapore 1996, p.430-431
- Pr-7 M. Knoop, J. Rink, G. Huang, M. Vedel, F. Vedel,
RF-stored Ca^+ : prospect for a frequency standard in the visible domain,
Proceedings of the 11th European Forum of Time and Frequency 1997, p.591-595
- Pr-8 M. Knoop, M. Vedel, M. Houssin, T. Schweizer, T. Pawletko, F. Vedel,
Probing Ca^+ ions in a miniature trap,
Proceedings of the Conference on Trapped Charged Particles and Fundamental

- Physics, CP 457, eds. Daniel H. Dubin and Dieter Schneider, The American Institute of Physics 1999, p. 365-368.
- Pr-9 M. Knoop, M. Vedel, M. Houssin, M. Herbane, T. Pawletko, F. Vedel,
Probing Ca^+ ions in a miniature trap,
Proceedings of the Joint Meeting of the 13th European Frequency and Time Forum and the 1999 IEEE International Frequency Control Symposium, Besançon, avril 1999, IEEE Catalog no.99CH36313, p.696-699
- Pr-10 M. Knoop, M. Herbane, M. Houssin, M. Vedel, F. Vedel,
Préparation d'une horloge à ions calcium dans le domaine optique,
Actes de COLOQ6, J. Phys. IV (France) 10, p 213-214 (2000)
- Pr-11 M. Knoop, C. Champenois, P. Courteille, M. Herbane, M. Houssin, M. Vedel, F. Vedel,
Single Ca^+ ions in a Paul-Straubel trap,
Proceedings of the 6th Symposium on Frequency Standards and Metrology, ed. P. Gill, World Scientific, Singapore 2002, p.492-494
- Pr-12 C. Champenois, T.B. Ekogo, G. Hagel, M. Houssin, M. Knoop, C. Lisowski, M. Vedel, F. Vedel,
Manipuler un système simple : un ion unique piégé,
Actes de COLOQ8, J. Phys. IV (France) 119, p.149-150 (2004)

CONFÉRENCES - COMMUNICATIONS ORALES

- CO-1 M. Knoop, U. Rau, W. Clauss, J. Peinke, J. Parisi, R.P. Huebener,
Bistabilität und Strukturbildung in Halbleitern, DPG-Frühjahrstagung, Regensburg/R.F.A., 27.3.-31.3.90, Verhandl. DPG (VI) 25, 1110 (1990)
- CO-2 M. Knoop, F. Vedel, M. Vedel,
Spectroscopie de l'ion Ca^+ en piège de Paul, Journée de la Physique, Marseille, 17.12.93
- CO-3 M. Knoop, F. Vedel, M. Vedel,
Messung der Lebensdauern der metastabilen D-Zustände des Ca^+ in einer Paul-falle, DPG-Frühjahrstagung, Hamburg/R.F.A., 14.3.-18.3.94 Verhandl. DPG (VI) 29, 430 (1994)
- CO-4 M. Knoop, D. Lunney, J. Rocher, M. Vedel, F. Vedel,
Spectroscopic investigation of the metastable 3D-doublet of $CaII$ in a Paul trap, European Group of Atomic Spectroscopy, 26th Conf., Barcelona/Espagne, 12.7.-15.7.94
- CO-5 M. Knoop, M. Vedel, F. Vedel, (invité)
Ions piégés - Application à la métrologie dans le visible, Congrès de la Société Française de Physique, Paris, 7.7.-10.7.1997
- CO-6 M. Knoop, M. Vedel, M. Houssin, T. Pawletko, F. Vedel,
Spektroskopie einzelner Ca^+ -Ionen in einer Miniaturfalle, DPG-Frühjahrstagung, Heidelberg/R.F.A., 15.3.-19.3.99, Verhandl. DPG (VI) 34, 384 (1999)
- CO-7 M. Knoop, M. Vedel, M. Houssin, T. Pawletko, F. Vedel,
Probing Ca^+ -ions in a miniature trap, Joint Meeting of the 13th European Forum of Time and Frequency and the 1999 IEEE International Frequency Control Symposium, Besançon 12.4.-16.4.99

- CO-8 M. Knoop, M. Herbane, M. Houssin, M. Vedel, F. Vedel,
Trapping Ca^+ -ions in a miniature device, European Group of Atomic Spectroscopy, 31st Conference, Marseille, 6.7 - 9.7.99
- CO-9 M. Houssin, M. Knoop, C. Champenois, P. Courteille, M. Herbane, M. Vedel, and F. Vedel
Lasers stabilises et ion froid unique pour un étalon de fréquence optique, Congrès général de la SFP, Strasbourg 9-13 juillet 2001
- CO-10 M. Knoop, C. Champenois, P. Courteille, M. Herbane, M. Houssin, M. Vedel, et. F. Vedel
Lasers stabilises et ion froid unique pour un étalon de fréquence optique, Optix2001, Marseille 26-28 novembre 2001
- CO-11 M. Knoop, C. Champenois, M. Houssin, C. Lisowski, M. Herbane, B. Schmidt, M. Vedel, F. Vedel,
"electron shelving" pour la spectroscopie des ions Ca^+ confinés en piège miniature, PAMO, Bourges, 1-3 juillet 2002
- CO-12 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
- CO-13 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
- CO-14 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

Conférences - Affiches

- A-1 M. Knoop, W. Clauss, U. Rau, J. Peinke, J. Parisi, *Self-Organized Critical Dynamics in the Context of Phase Transition Behavior During Semiconductor Breakdown*, Dynamics Days, Düsseldorf/R.F.A., 20.6.-23.6.90
- A-2 M. Knoop, W. Clauss, U. Rau, J. Peinke, J. Parisi, R.P. Huebener, *Kritische Dynamik des Phasenübergangs beim Stoßionisationsdurchbruch in p-Germanium*, DPG-Frühjahrstagung, Münster/R.F.A., 8.4.-12.4.91, Verhandl. DPG (VI) 26, 1110 (1991)
- A-3 M. Knoop, N. Khelifa, F. Vedel, M. Vedel, *Etude spectroscopique de l'ion $CaII$ en piège de Paul*, COLOQ 3, Limoges, 6.9.-8.9.93
- A-4 M. Knoop, D. Lunney, J. Rocher, M. Vedel, F. Vedel, *Lifetime measurements of the $CaII$ long-lived 3D-doublet by direct population via the forbidden transition*, 14th International Conference of Atomic Physics, Boulder, Colorado, 31.7-5.8.94
- A-5 M. Knoop, J. Rocher, M. Vedel, F. Vedel, *Spectroscopic study of the $CaII$ long-lived 3D-doublet in view of a frequency standard application*, 9th European Forum of Time and Frequency, Besançon, 8.3.-10.3.95

- A-6 M. Knoop, M. Vedel, F. Vedel, *Rf stored Ca^+ - possible candidate for a frequency standard in the optical domain*, 12th International Conference on Laser Spectroscopy, Capri/Italie, 11.6.-16.6.95
- A-7 M. Knoop, J. Rink, M. Vedel, F. Vedel, *Ca^+ : candidat pour un étalon de fréquence dans le domaine optique*, Congrès de la Société Française de Physique, Marseille, 4.9.- 8.9.95
- A-8 F. Vedel, M. Knoop, J. Rocher, M. Vedel, G. Werth, *Le piège de Paul, un observatoire pour la dynamique non-linéaire*, Congrès de la Société Française de Physique, Marseille, 4.9.- 8.9.95
- A-9 M. Vedel, J. Rocher, M. Knoop, J. Rink, F. Vedel, *Caractéristiques expérimentales du confinement en piège de Paul*, Congrès de la Société Française de Spectrométrie de Masse, Bordeaux, 12.9.-14.9.95
- A-10 M. Knoop, J. Rink, M. Vedel, F. Vedel, *Laser-cooled Ca^+ - ions in a Paul trap : influence of collisions*, Fifth Symposium of Frequency Standards and Metrology, Woods Hole, MA, 15.10.-19.10.95
- A-11 M. Knoop, J. Rink, M. Vedel, F. Vedel, *Refroidissement laser d'un nuage de Ca^+ en piège de Paul*, COLOQ 4, Palaiseau, 6.11.-8.11.95
- A-12 M. Knoop, J. Rink, M. Vedel, F. Vedel, *Spectroscopie de l'ion Ca^+ en piège de Paul en vue d'application métrologique*, Ecole des Houches, 3.6.-7.6.96
- A-13 M. Knoop, M. Vedel, F. Vedel, *Ca^+ confiné en piège de Paul - Influence de collisions sur le mélange des niveaux*, DIAM 4, Bourges, 16.7.-18.7.96
- A-14 M. Knoop, J. Rink, M. Vedel, N. Ferran, F. Vedel, *Determination of collisional de-excitation rates in stored Ca^+* , European Group of Atomic Spectroscopy, 28th Conf., Graz/Autriche, 16.7.-19.7.1996
- A-15 M. Knoop, J. Rink, M. Vedel, F. Vedel, *Ca^+ -ions in an RF trap : Determination of collisional de-excitation rates and influence of trapping parameters*, Zeeman International Conference of Atomic Physics, Amsterdam/Pays Bas, 5.8.-9.8.1996
- A-16 M. Knoop, G. Huang, M. Vedel, F. Vedel, *Ca^+ :- Kandidat für ein Frequenznormal bei 729 nm*, DPG-Frühjahrstagung, Mainz/RFA, 3.3.-6.3.1997 Verhandl. DPG (VI) 32, 325 (1997)
- A-17 M. Knoop, G. Huang, M. Vedel, F. Vedel, *RF-stored Ca^+ : prospect for a frequency standard in the visible domain*, 11th European Forum of Time and Frequency, Neuchâtel/Suisse, 4.3.-6.3.1997
- A-18 G. Huang, M. Knoop, M. Vedel, F. Vedel, *A Room-Temperature Operating Diode-Laser System at the Clock Transition of Trapped Ca^+ Ions*, 13th International Conference on Laser Spectroscopy, Hangzhou/Chine, 2.6.-7.6.1997
- A-19 M. Knoop, G. Huang, M. Vedel, F. Vedel, *Stored Ca^+ : New quenching and mixing rates for the 3D-levels* 29th EGAS, Berlin/RFA, 15.7.-18.7.1997
- A-20 J. Rocher, M. Vedel, M. Knoop, F. Vedel, *Motional properties of rf stored ions in the presence of field anharmonicities*, 29th EGAS, Berlin/RFA, 15.7.-18.7.1997
- A-21 J. Rocher, M. Vedel, M. Knoop, F. Vedel, *Motional properties of rf stored ions in the presence of field anharmonicities*, Workshop on Nonneutral Plasmas, Boulder/CO, 29.7.-1.8.1997
- A-22 M. Knoop, M. Vedel, M. Houssin, T. Schweizer, F. Vedel, *Probing single Ca^+ ions in a miniature trap*, ECAMP VI, Siena/Italie, 14.7.-18.7.1998

- A-23 M. Knoop, M. Vedel, M. Houssin, T. Schweizer, F. Vedel, *Probing single Ca^+ ions in a miniature trap*, Conf. on Trapped Charged Particles and Fundamental Physics, Monterey/CA, 31.8.-4.9.98
- A-24 M. Knoop, M. Herbane, M. Houssin, T. Pawletko, M. Vedel, F. Vedel, *Trapping Ca^+ ions in a miniature device*, 14th International Conference on Laser Spectroscopy, Innsbruck/Autriche, 7.6. -11.6.99
- A-25 M. Herbane, M. Houssin, M. Knoop, T. Pawletko, M. Vedel, F. Vedel, *All-diode coherent radiation sources for a Ca^+ frequency standard*, European Group of Atomic Spectroscopy, 31st Conference, Marseille, 6.7 - 9.7.99
- A-26 M. Knoop, M. Herbane, M. Houssin, T. Pawletko, M. Vedel, F. Vedel, *Préparation d'une horloge à calcium dans le domaine optique*, COLOQ6, Bordeaux, 6.9. - 8.9.99
- A-27 M. Knoop, M. Herbane, C. Champenois, M. Houssin, T. Kaing, M. Vedel, F. Vedel, *Towards an optical frequency standard based on a single Ca^+ ion in a miniature trap*, ICAP 2000, Florence/Italie, 5.6. - 9.6.00
- A-28 M. Knoop, M. Herbane, C. Champenois, M. Houssin, T. Kaing, M. Vedel, F. Vedel, *Towards an optical frequency standard based on a single Ca^+ ion in a miniature trap*, 32nd EGAS, Vilnius/Lithuanie, 4.7. - 7.7.00
- A-29 M. Knoop, M. Herbane, C. Champenois, M. Houssin, T. Kaing, M. Vedel, F. Vedel, *Développement d'un étalon de fréquence dans le domaine optique utilisant un ion Ca^+ confiné dans un piège miniature*, PAMO 2000, Lyon, 10.7.-13.7.00
- A-30 M. Knoop, M. Herbane, C. Champenois, M. Houssin, T. Kaing, M. Vedel, F. Vedel, *Towards an optical frequency standard based on a single Ca^+ ion in a miniature trap*, CLEO/EQEC, Nice, 10.9.-15.9.00
- A-31 M. Herbane, M. Knoop, C. Champenois, M. Houssin, M. Vedel, F. Vedel, *Trapping of a single Ca^+ ion for its use as a frequency standard*, ECAMP VII, Berlin, 2. 4.-6.4.01, Verhandl. DPG (VI) 36, 65 (2001)
- A-32 M. Knoop, C. Champenois, P. Courteille, M. Herbane, M. Houssin, M. Vedel, F. Vedel, *A miniature trap for single, laser-cooled Ca^+ ions*, ICOLS-XV, Snowbird/UT, 10.6.-15.6.01
- A-33 M. Knoop, C. Champenois, P. Courteille, M. Herbane, M. Houssin, M. Vedel, F. Vedel, *Piégeage d'un ion calcium pour la réalisation d'un étalon de fréquence dans le visible*, COLOQ-7, Rennes, 5.9.-7.9.01
- A-34 M. Knoop, C. Champenois, P. Courteille, M. Herbane, M. Houssin, M. Vedel, F. Vedel, *Single Ca^+ ions in a Paul-Straubel trap*, SSFSM, St.Andrews/Ecosse, 9-14 sept. 2001.
- A-35 M. Knoop, C. Champenois, P. Courteille, M. Herbane, M. Houssin, M. Vedel, F. Vedel, *Trapping and cooling a single calcium ion for use as a frequency standard*, Quantum Optics (EuroConference 2001), San Feliu de Guixols/Espagne, 6-11 oct. 2001.
- A-36 M. Knoop, C. Champenois, M. Houssin, C. Lisowski, M. Herbane, B. Schmidt, M. Vedel, F. Vedel, *"electron shelving" for spectroscopy of Ca^+ ions in a miniature trap*, EGAS34, Sofia/Bulgarie, 9-12 juillet 2002
- A-37 M. Knoop, C. Champenois, M. Houssin, C. Lisowski, M. Herbane, B. Schmidt, M. Vedel, F. Vedel, *Spectroscopy of Ca^+ ions in a miniature trap*, Int. Conf.

- on Trapped Charged Particles and Fundamental Interactions (TCPFI), Wildbad Kreuth/Allemagne, 25-30 aout, 2002
- A-38 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, 24.3.-28.3.2003, Verhandl. DPG (VI) 38, 179 (2003)
- A-39 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, 16.6.-18.6.2003
- A-40 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
- A-41 C. Champenois, T. Ekogo, G. Hagel, M. Houssin, M. Knoop, C. Lisowski, M. Vedel, F. Vedel, *Manipuler un système simple : un ion unique piégé*, COLOQ8, Toulouse, 3-5.9.2003
- A-42 M. Knoop, C. Champenois, G. Hagel, M. Houssin, C. Lisowski, M. Vedel, F. Vedel, *Lebensdauermessungen mit Ionenwolken und Einzelionen*, DPG Frühjahrstagung, Munich/Allemagne, 22.-26.03.2004, Verhandl. DPG (VI) 39, 147 (2004)
- A-43 M. Knoop, C. Champenois, G. Hagel, M. Houssin, C. Lisowski, M. Vedel, F. Vedel, *Dark resonances as a kinetic energy probe for a single ion*, ECAMP8, Rennes, 6.-10.7.2004
- A-44 C. Champenois, M. Houssin, C. Lisowski, M. Knoop, G. Hagel, M. Vedel, F. Vedel, *How good can a Ca^+ single-ion frequency standard be ?*, ECAMP8, Rennes, 6.-10.7.2004
- A-45 M. Knoop, C. Lisowski, C. Champenois, G. Hagel, M. Vedel, F. Vedel, *Dunkelresonanzen zur Lokalisierung von einzelnen Ionen*, DPG-Frühjahrstagung, Berlin/RFA, 3.3-9.3.2005, Verhandl. DPG (VI) 40, 151 (2005)
- A-46 G. Hagel, C. Champenois, D. Guyomarc'h, M. Houssin, C. Lisowski, M. Vedel, M. Knoop, F. Vedel, *Towards an optical frequency standard at 729 nm*, EFTF 19, Besançon, 21.3.-24.3.2005

Séminaires

- S-1 M. Knoop,
 Ca^+ : Kandidat für ein optisches Frequenznormal,
Kolloquium des Physikalischen Institutes, Eberhard-Karls-Universität Tübingen/RFA,
29.4.98
- S-2 M. Knoop,
Single, laser-cooled Ca^+ ,
NIST, Time and Frequency Division, Boulder/CO, 6 juin 2001
- S-3 M. Knoop, *Spectroscopy of single, laser-cooled Ca^+ ions in a miniature trap*,
Max-Planck-Institut für Quantenoptik, Garching/RFA, Equipe Prof. H. Walther,
2 novembre 2001
- S-4 M. Knoop,
Spectroscopie des ions uniques dans un piège miniature,
Ecole Nationale de Physique de Marseille, séminaire de DEA, 19 décembre 2001

- S-5 M. Knoop,
Interrogation laser d'un ion unique,
Journée de dynamique non-linéaire, CPT/Marseille, 18 mai 2004
- S-6 M. Knoop,
Un ion unique de Ca^+ pour un étalon de fréquence dans le domaine optique,
Journée des horloges optiques, BNM-SYRTE/Paris, 5 juillet 2004

Thèse et Rapports

- R-1 M. Knoop,
Wärmeleitungs-messung an gedehnten Edelstahlproben,
Rapport de stage, Max-Planck-Institut für Festkörperforschung, Stuttgart 1987
- R-2 M. Knoop,
Kritisches Verhalten beim Stoßionisationsdurchbruch in p-Germanium,
Diplomarbeit, Eberhard-Karls-Universität, Tübingen 1990
- R-3 M. Knoop,
Etude spectroscopique du doublet métastable 3D de l'ion Ca^+ dans un piège de Paul en présence de collisions,
Thèse, Université de Provence, Marseille 1994
- R-4 F. Vedel, M. Vedel, M. Knoop,
Étude spectroscopique de l'ion Ca^+ ,
Rapport de synthèse finale, DRET Contrat n° 92605, 1995
- R-5 F. Vedel, M. Vedel, M. Knoop,
Projet SPECTROSCOPIE D'IONS PIEGES - Application à la métrologie des fréquences à 729 nm,
Rapport final, BNM, Convention de Recherche 94-2-46-0010, 1996
- R-6 F. Vedel, M. Knoop, M. Vedel, G. Huang,
Étude spectroscopique de l'ion Ca^+ refroidi par laser,
Rapport de synthèse finale, DRET Contrat n° 95143, 1997
- R-7 F. Vedel, M. Vedel, M. Knoop, M. Houssin, M. Herbane,
Spectroscopie ultra-haute résolution d'ions piégés, application à la métrologie des fréquences à 729 nm,
Rapport final, BNM, Contrat 98-3-003, 1999
- R-8 M. Knoop,
Manuel - piège miniature,
Manuel de laboratoire, janvier 2000
- R-9 F. Vedel, M. Vedel, M. Knoop, M. Houssin, C. Champenois, M. Herbane,
Spectroscopie ultra-haute résolution d'ions piégés, application à la métrologie des fréquences à 729 nm,
Rapport final, BNM, Contrat 99-3-007, 2000
- R-10 F. Vedel, M. Vedel, M. Knoop, M. Houssin, C. Champenois, G. Hagel, C. Lisowski, T. Ekogo, D. Guyomarc'h
Ion calcium froid - Application à la métrologie des fréquences à 729 nm,
Rapport final, BNM, Contrat 02-3-007, 2002

Écoles et Formations

- 21.05.-25.05.90 *Semaine Astrophysique*,
Formation doctorale de l'Université de Provence, Marseille/St.Michel-l'Observatoire.
Organisé par V.P.Kaftandjian.
- 9.07.-19.07.91 *Laser Manipulation of Atoms and Ions*,
International School of Physics "Enrico Fermi", Course CXVIII, Varenna/Italie.
Organisé par E.Arimondo, W.D.Phillips et F.Strumia.
- 3.06.-7.06.96 *La métrologie et les constantes physiques fondamentales*,
Ecole de Physique des Houches.
Organisé par L.Érard, S.Guellati et M.Himbert.
- déc 2002 Initiation à Labview, Formation permanente du CNRS,
Marseille-Luminy 3 jours