HAL
open science

Horloge micro-onde à ions : analyse et transport d'un nuage d'ions dans un piège à plusieurs zones

Marius Romuald Kamsap

To cite this version:

Marius Romuald Kamsap. Horloge micro-onde à ions : analyse et transport d'un nuage d'ions dans un piège à plusieurs zones. Physique Quantique [quant-ph]. Aix-Marseille Université (AMU), 2015. Français. NNT : 2015AIXM4781 . tel-01490428

HAL Id: tel-01490428

https://theses.hal.science/tel-01490428v1

Submitted on 15 Mar 2017

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.

THÈSE DE DOCTORAT
de l'Université d'Aix-Marseille

École Doctorale : Physique et Sciences de la Matière (ED 352)

Laboratoire : Physique des Interactions Ioniques et Moléculaires (UMR 7345)

Thèse présentée par

Marius Romuald KAMSAP

Pour obtenir le grade de

Docteur de l'Université d'Aix-Marseille

Sujet de thèse

Horloge micro-onde à ions : analyse et transport d'un nuage d'ions dans un piège à plusieurs zones

---

Soutenue le 17 décembre 2015 devant le jury composé de :

Mme Caroline CHAMPENOIS	PIIM, Marseille	Co-Directrice de thèse
M. Daniel COMPARAT	LAC, Orsay	Rapporteur
M. Jérôme DELPORTE	CNES, Toulouse	Membre invité
M. Luca GUIDONI	MPQ, Paris	Examinateur
M. Laurent HILICO	LKB, Paris	Président du jury
Mme Martina KNOOP	PIIM, Marseille	Co-Directrice de thèse
M. Guillaume LABEYRIE	INLN, Valbonne	Rapporteur

Remerciements

Ce travail s'est déroulé dans l'équipe Confinement d'Ions et Manipulation Laser (CIML) du laboratoire de Physique des Interactions Ioniques et Moléculaires (PIIM) à Marseille, en France. Durant ces trois ans, j'ai travaillé sur une expérience passionnante et mis en pratique mes connaissances dans les domaines de l'optique, de la physique quantique et atomique. Durant ma thèse, j'ai été amené à collaborer avec de nombreuses personnes que je souhaite remercier ici.

J'ai apprécié énormément les qualités humaines de toute l'équipe dans laquelle règne équilibre et bonne humeur.

Tout d'abord, je remercie Mme Martina Knoop et Mme Caroline Champenois de m'avoir accueilli au sein de l'équipe et de m'avoir accompagné dans ce travail de recherche scientifique. Elles ont suivi de près ces travaux et m'ont guidé vers la bibliographie nécessaire à sa réalisation. Je les remercie également pour leur disponibilité pour mes questions et leur bonne humeur même pendant les moments difficiles. Leurs remarques et suggestions pendant la rédaction m'ont permis d'améliorer ce manuscrit. J'ai pu profiter de la grande expérience de Mme Champenois dans la physique expérimentale. Tout cela m'a permis une prise en main rapide des expériences et de devenir autonome. Je la remercie aussi pour sa pédagogie lors des explications des phénomènes physiques.

Je tiens à remercier M. Didier Guyomarc'h pour son aide très précieuse. Il était toujours disponible pour répondre à mes questions et pour m'aider dans les montages électriques, les problèmes informatiques et de programmation.

M. Jofre Pedregosa m'a beaucoup aidé sur le plan technique et scientifique. Il a réalisé les simulations numériques nécessaires à la compréhension des phénomènes physiques liés à mes expériences. Je le remercie aussi pour son aide incessante pour résoudre mes problèmes d'informatique et de programmation. J'ai été très heureux de travailler avec lui. Au delà du plan scientifique, j'ai beaucoup collaboré avec M. Pedregosa et je le remercie pour ses précieux conseils.

Mme Marie Houssin et Mme Emeline Bizri m'ont énormément aidé dans les calculs et le montage optique de l'expérience. Je remercie Mme Marie Houssin de m'avoir toujours accueillir avec bonne humeur même quand elle est débordée. Ses explications et ses astuces expérimentales m'ont permis une certaine autonomie dans les réalisations expérimentales. Elle a lu ce rapport et ses corrections m'ont permis d'améliorer la qualité de rédaction.

Je remercie M. Olivier Morizot et M. Gaëtan Hagel pour leurs explications dans le domaine de l'optique. M. Hagel a partagé son bureau avec moi depuis mon arrivé à Marseille il y a quatre ans dans le cadre de mon stage de Master 2. Je le remercie aussi pour son acceuil chaleureux.

Mme Fernande Vedel m'a donné l'occasion, durant ma thèse, de participer à deux éditions de la Fête de la science dans la ville de Carpentras où j'ai échangé sur les sujets

scientifiques avec un public varié. Cela m'a permis de partager l'expérience du laboratoire avec les enfants et les adultes et aussi d'accroître mon expérience en matière de vulgarisation scientifique. Elle a lu ce rapport et je la remercie aussi pour ses remarques et suggestions. Je remercie également M. Michel Vedel pour son sens de l'humour qui m'a toujours donné le sourire même pendant les moments les moins drôle de ma thèse. Je le remercie aussi pour son aide en électronique.

Je tiens à exprimer ma profonde gratitude à Noémie Brémare pour ses encouragements. Sa bonne humeur m'a toujours permis de garder le sourire. Elle a lu ce mémoire et je la remercie pour ses remarques et conseils de rédaction. Je ne peux finir sans dire merci à Loic Lechevallier, Mathieu Collombon et Ramin Khayatzadeh pour leurs encouragements.

Mes remerciements vont à l'ensemble des membres du laboratoire et en particulier à l'administration pour leur aide dans l'accomplissement des formalités administratives.

Je tiens à remercier les membres du jury de ma thèse pour avoir accepté de juger mes travaux de recherche malgré leurs agendas saturés. Leurs remarques et suggestions m'ont permis d'améliorer la qualité de ma rédaction. Je remercie M. Daniel Comparat et M. Guillaume Labeyrie d'avoir rapporté sur cette thèse. Je remercie, une fois de plus, M. Laurent Hilico et M. Luca Guidoni d'avoir examiné ce travail.

J'exprime mes profonds remerciements au Centre National d'Études Spatiale (CNES) et la région Provence-Alpes-Côte d'Azur (PACA) pour leurs financements durant ma thèse. M. Jérôme Delporte, mon responsable CNES, a suivi l'avancement de ce travail point par point durant les trois années et je le remercie d'avoir été disponible et d'avoir fait parti du Jury malgré ses nombreuses occupations.

Mes remerciements vont aussi au département de Physique de l'Université des Sciences et Technique de Masuku à Franceville-Gabon pour la formation de qualité que j'ai reçue. J'ai eu l'honneur de faire partie de la première promotion de Master. Durant ces années, j'ai bénéficié des enseignements de qualité par des enseignants de grande réputation. Je remercie particulièrement M. Thierry Blanchard Ekogo et M. Alain Brice Moubissi pour leurs encouragements depuis le début. Ils ont toujours été là pour nous prodiguer de précieux conseils. Je les remercie également pour leurs conseils de rédaction et de présentation.

Ces remerciements ne sauraient oublier ma famille pour l'encouragement et le soutien quotidien donc j'ai bénéficié au fil des années. Je dédie une pensée particulière à mon défunt papa M. Charles Kamdoum qui a fait de moi ce que je suis devenu. Ma maman Mme Lucie Djoumegheu et mon oncle M. Herve Landry Kengne n'ont pas pu effectuer le déplacement jusqu'à Marseille malgré leur bonne volonté de venir me soutenir pour la dernière épreuve de cette thèse. Un grand merci à ma maman Jaqueline Djoukam et à maman Colette Kengne d'avoir veillez sur moi et de m'avoir encouragé vers la réussite.

Je remercie M. Lucien Avaro Pouokam, M. Vincent Ngomsie et M. Alexis Nicodeme Fessi pour leur soutien, leurs conseils et leurs encouragements durant mes études.

Pour finir je dis un grand merci à mes collègues de promotion avec qui j'ai une grande collaboration. Je remercie particulièrement Rostan Tchendjou qui a effectué le déplacement de Darmstadt en Allemagne pour assister à ma soutenance.

Mes dernières pensées iront vers mes amis à travers de monde entier et en particulier ceux de Marseille pour leur soutien régulier et leur présence le jour de ma soutenance.

Résumé

Cette thèse a été effectuée dans le cadre d'un projet qui vise à explorer les facteurs limitants des performances d'une horloge à ions dans le domaine des fréquences micro-onde. Ce travail repose sur l'observation et la manipulation d'un grand nuage d'ions dans des potentiels de géométries différentes. Le but est l'analyse et le transport d'un grand nuage pouvant dépasser 10^6 ions dans un piège radio-fréquence linéaire à plusieurs zones. Dans notre groupe, nous disposons d'un piège à trois zones destiné au piégeage d'ions calcium : deux parties quadrupolaires et une partie octupolaire montées en ligne. Les ions sont créés dans la première partie quadrupolaire par photo-ionisation et refroidis par laser le long de l'axe de symétrie du piège. Nous avons d'abord étudié comment créer dans la première partie du piège un grand nuage. La limite actuelle des paramètres de confinement et de refroidissement laser permet de confiner et de détecter des nuages de taille maximale de $1,2.10^5$ ions. Ensuite grâce à un protocole de transport optimisé, ces ions sont transportés dans la deuxième partie du piège puis dans l'octupole avec une efficacité pouvant atteindre 100% pour des tailles de nuage dépassant les 10^5 ions. Tous les protocoles de transport sont au moins un facteur 10^3 plus rapide que le transport adiabatique. Une analyse du nombre d'ions quittant le piège d'origine en fonction de la durée du transport montre une alternance entre une grande probabilité de départ et une probabilité nulle. De plus, ce comportement révèle une différence entre les deux sens du transport. Nous exploitons cette asymétrie pour ajouter des ions dans le deuxième ou troisième piège sans perte du nuage initialement présent. Cette technique d'accumulation a permis d'augmenter le nombre d'ions piégés mesuré à $2,5.10^5$ ions dans le deuxième et troisième piège. Des paramètres du système tels que la puissance laser disponible pour le refroidissement et l'extension des dimensions du nuage semblent être les facteurs limitant ce nombre. Enfin, dans le piège octupolaire, l'observation de la fluorescence induite des ions montre que, soumis au refroidissement laser, les ions s'organisent dans trois puits de potentiel distincts. Ceci est en contradiction avec la structure creuse prévue par le modèle fluide analytique et les simulations de dynamique moléculaire. La cause de cette différence est un minuscule défaut d'environ 1% dans la symétrie octupolaire des barreaux qui conduit à des minima locaux harmoniques dans le puits de potentiel multipolaire. Ce travail participe à l'amélioration de la stabilité des horloges micro-onde à ions en fournissant des pistes pour augmenter la taille des nuages froids piégés, pour transporter rapidement de grands nuages en phase gazeuse et en mettant en évidence la sensibilité de l'organisation des ions refroidis par laser aux défauts de symétrie dans les multipoles.

Abstract

This thesis is part of a project aiming to explore the performance limiting factors of a microwave ion clock. This work is based on the observation and manipulation of a large ion cloud in potentials with different geometries. The purpose is to analyze and transport a large cloud of more than 10^6 ions in a linear radio-frequency trap with several zones. In our group, we have a three-zone trap for calcium ion trapping : two quadrupole parts and an octupole part mounted inline. Ions are created in the first quadrupole part by photo-ionization and cooled by lasers along the trap z axis. We study the creation of a large ion cloud in the first part of the trap. The current trapping and cooling parameters limit the maximum size of the cloud to $1,2.10^5$ ions. with an optimized transport protocol, these ions are transfered in the second part of the trap and then in the octupole trap with an efficiency of up to 100 % for cloud sizes exceeding 10^5 ions. All transport protocoles are at least a factor of 10^3 faster than adiabatic transport. The study of the fraction of the ions leaving the initial trap as function of the transport duration shows an oscillation between a high probability of departure and a zero probability. In addition, the results show a different behavior for the two transport directions. We exploit this asymmetric transport to add ions in the second or third trap without loss of the already trapped ions. This accumulation technique has improved the number of trapped ions to $2.5.10^5$ in the second and third trap. The system parameters, such as the laser power available for cooling and the size of the cloud seems to be the major limiting factor of this number. Finally the observation of the fluorescence of the ions in the octupole shows that the laser cooled ions are localised in three different potential wells. This is in contradiction with the hollow structure predicted by the analytical fluid model and molecular dynamics simulations. The cause of this difference is a tiny defect of about 1% in the octupole symmetry of the RF-electrodes which leads to harmonic local minima in the multipole potential. These results will improve the frequency stability of ion based micro-wave clocks by providing some solutions to increase the number of cold trapped ion, to transport large ion clouds in the gas phase faster than adiabatic and to exploire the sensitivity of the laser-cooled ion structure to symmetry breaking in multipole trap.

Table des matières

Remerciements **i**

Résumé **iii**

Abstract **v**

Introduction **1**

1 Piégeage et refroidissement d'ions en piège linéaire radio-fréquence **7**
1.1 Piégeage d'un ion unique en piège quadrupolaire 8
1.1.1 Géométrie et potentiel de piégeage 8
1.1.2 Dynamique d'un ion unique dans un piège quadrupolaire linéaire . . 11
1.1.3 Chauffage radio-fréquence 14
1.2 Piégeage d'un nuage d'ions en piège multipolaire 15
1.2.1 Pseudo-potentiel de piégeage 15
1.2.2 Piégeage d'un grand nuage d'ions en piège octupolaire 17
1.3 Thermodynamique des ions en piège linéaire 22
1.3.1 Les différents états thermodynamiques 22
1.3.2 Description collective du nuage d'ions en piège linéaire 23
1.4 Refroidissement laser Doppler 26
1.4.1 Refroidissement laser dans un système atomique à deux niveaux . . 26
1.4.2 Refroidissement laser dans un système à trois niveaux 30
1.4.3 Refroidissement laser sans résonance noire impliquant 5 niveaux . . 33

2 Dispositif expérimental **39**
2.1 Montage 39
2.1.1 Configuration du piège 40
2.1.2 Enceinte à vide 42
2.1.3 Tensions de confinement 43
2.2 Sources lasers 44
2.2.1 Lasers de refroidissement 45
2.2.2 Lasers de photo-ionisation 46
2.2.3 Mise en forme des faisceaux lasers 47
2.3 Détection du signal de fluorescence 47
2.3.1 Détection des ions piégés 49
2.3.2 Mise au point de la photo-ionisation 50
2.4 Création des ions dans un piège radio-fréquence 50

2.4.1 Méthode de photo-ionisation 51
2.4.2 Protocole d'ionisation du calcium 56
2.4.3 Caractérisation de la création des ions calcium $^{40}Ca^{+}$ 56

3 Analyse du signal de fluorescence d'ions en piège quadrupolaire 61
3.1 Refroidissement laser en piège quadrupolaire 61
3.1.1 Spectre d'excitation 62
3.1.2 Étude des transitions de phase gaz-liquide 65
3.1.3 Transitions de phase en plusieurs sauts 68
3.2 Excitation paramétrique du nuage en piège quadrupolaire 70
3.2.1 Mesure de fréquences d'oscillation ω_z en piège quadrupolaire PI . . 71
3.2.2 Mesure de fréquences d'oscillations en PII 73
3.2.3 Interprétation des résonances paramétriques 74
3.3 Méthode numérique d'analyse du signal de fluorescence des ions froids . . . 78
3.3.1 Description de la technique 78
3.3.2 Comparaison avec les résultats attendus du rapport d'aspect 82
3.3.3 Estimation du nombre absolu d'ions piégés 88

4 Transport d'ions entre les différentes parties du piège 91
4.1 Protocole de transport entre les zones PI et PII du piège 92
4.1.1 Protocole 1 : $V_2(t)$, $V_3(t)$ et V_1 constante 95
4.1.2 Protocole 2 : $V_2(t)$, V_1 et V_3 constantes 95
4.2 Mesures préliminaires aller-retour entre PI et PII 96
4.2.1 Mesure de l'efficacité du transport 98
4.2.2 Choix du protocole de transport 99
4.2.3 Influence des paramètres de piégeage 100
4.2.4 Influence du nombre d'ions piégés sur le transport 101
4.3 Dépendance du transport entre PI et PII avec la durée 102
4.3.1 Départ d'ions du piège initial 102
4.3.2 Calcul de la trajectoire des ions au cours du transport 106
4.3.3 Influence de la durée sur le transport PI-PII et PII-PI 107
4.4 Origine des pertes au cours du transport 109
4.4.1 Bilan des pertes au cours du transport PII-PI 110
4.4.2 Déformation du puit de potentiel sans transport des ions 110
4.4.3 Influence de la température du nuage et du refroidissement laser pendant le transport 112
4.4.4 Chauffage au cours du transport 113
4.5 Rôle du potentiel de contact 115
4.5.1 Mesure du potentiel de contact 115
4.5.2 Influence du potentiel de contact sur le transport 117
4.6 Étude du transport entre un piège quadrupolaire et un piège octupolaire . 119
4.6.1 Protocole de transport PII-PIII 120
4.6.2 Analyse transport PII-PIII 122
4.6.3 Optimisation du protocole de transport PII-PIII 124
4.6.4 Influence des paramètres expérimentaux sur le transport PII-PIII . 125
4.6.5 Tentative de transport PIII-PII. 127

5 Piégeage et accumulation d'un grand nuage d'ions **129**
5.1 Création et piégeage d'un grand nuage d'ions dans PI 130
5.1.1 Technique de création d'un grand nuage d'ions 130
5.1.2 Interprétation et discussion 131
5.2 Méthode d'accumulation d'ions dans PII 132
5.2.1 Principe de la méthode 132
5.2.2 Influence des tensions de piégeage 133
5.2.3 Influence du nombre d'ions initial dans PI 134
5.2.4 Effet de la température des ions 135
5.2.5 Influence des puissances lasers 136
5.3 Accumulation des ions dans le piège octupolaire 136
5.4 Accumulation sans refroidissement laser 138

6 Organisation d'un nuage d'ions froids dans le piège octupolaire **141**
6.1 Étude des défauts dans le piège multipolaire 142
6.1.1 Analyse expérimentale des minima locaux en piège octupolaire . . . 142
6.1.2 Simulations des défauts en piège multipolaire 144
6.2 Refroidissement laser du nuage dans les minima locaux de potentiel 146
6.2.1 Spectre d'excitation 146
6.2.2 Analyse du chauffage radio-fréquence et migration des ions dans les minima de potentiel 148
6.2.3 Transition de phase gaz-liquide 150
6.3 Dynamique des ions piégés dans les minima locaux en piège octupolaire . . 153
6.3.1 Mesures de fréquences d'oscillation 153
6.3.2 Vérification des lois physiques dans les minima locaux 155
6.3.3 Estimation du nombre d'ions dans les puits locaux 156
6.3.4 Répartition des ions dans les minima locaux 158
6.4 Étude des structures en chaîne et zigzag d'ions 159
6.4.1 Structure en chaîne d'ions 160
6.4.2 Transition de phase vers les zigzags 165

Conclusion et perspectives **169**

Annexes **173**

A Niveaux d'énergies de l'ion calcium **175**

Références **177**

Introduction

De nos jours, les ions piégés sont au cœur des applications dans les domaines de la physique atomique ou moléculaire ainsi que de l'optique. Ils couvrent une vaste gamme d'études qui va de la métrologie des fréquences [1] et de l'information quantique [2] jusqu'aux études en physique fondamentale comme par exemple des tests d'électrodynamique quantique [3]. S'ajoute aussi la recherche en chimie froide comme la formation des molécules ioniques froides [4, 5] ou l'étude de réactions ions-molécules à basse température [6]. Bon nombre de ces domaines ont en effet vu le jour grâce au développement des techniques de confinement d'ions.

Le premier piège à ions a été inventé en 1953. Wolfgang Paul développa un piège à trois dimensions en utilisant le principe des filtres de masse quadrupolaires qui confinent dans deux dimensions [7, 8]. Dans ce type de piège, le confinement des ions est assuré uniquement par des champs électriques oscillants : ce piège porte son nom. Quelques années plus tard, le piège de Penning est développé dans deux groupes : celui de H. Dehmelt [9] aux États-Unis et celui de G. Gräff [10] en Allemagne. Ce type de piège confine les particules dans deux directions grâce à un champ magnétostatique et dans la troisième direction grâce à un champ électrostatique.

Les versions idéales de ces types de pièges utilisent des électrodes hyperboliques et sont capables de confiner d'un ion unique jusqu'à quelques dizaines de milliers d'ions. Des travaux mettant en œuvre ces pièges ont été récompensés par la remise du prix Nobel en 1989 à W. Paul et à H. Dehmelt pour leurs apports fondamentaux dans la spectroscopie haute résolution.

En 1989, une équipe américaine propose le confinement des ions avec un piège à géométrie linéaire (piège quadrupolaire linéaire) pour des applications métrologiques [11], s'inspirant de l'idée originale de W. Paul [7]. Ce piège est constitué de quatre barreaux cylindriques disposés au sommet d'un carré, auxquels on applique des champs électriques oscillants radio-fréquence de signe opposé pour deux barreaux voisins qui confinent les ions dans le plan transverse. Le confinement suivant l'axe du piège est assuré par l'application d'un potentiel statique. Le piège quadrupolaire linéaire permet le confinement d'une chaîne d'ions alignée suivant l'axe de symétrie du piège jusqu'à de grands nuages pouvant atteindre quelques millions d'ions.

Par la suite, des pièges multipolaires sont utilisés dans le cadre de recherche en chimie froide [6]. Les pièges multipolaires sont constitués de $2k > 4$ barreaux cylindriques. Dans ce type de piège, le champ électrique de piégeage est plus faible par rapport au piège quadrupolaire. Le potentiel multipolaire induit un faible couplage entre le champ piégeant et les ions piégés, un atout majeur pour la spectroscopie haute résolution [12] et pour la métrologie des fréquences sans refroidissement laser [13].

Les pièges à ions sont robustes et permettent de garder les ions pendant plusieurs heures voire des jours ou des semaines. Cette caractéristique est fondamentale pour la spectroscopie de très haute résolution et pour la métrologie des fréquences. Cependant, dans les pièges radio-fréquence, le couplage entre le champ piégeant et les ions induit un chauffage qui augmente l'amplitude du mouvement des ions et donc l'effet Doppler, facteur limitant la stabilité de fréquence des horloges. Une stratégie pour éliminer cet effet Doppler au premier ordre est de travailler dans le régime de Lamb Dicke [14]. Ce régime est atteint lorsque l'amplitude des oscillations des ions dans le piège est faible par rapport à la longueur d'onde d'excitation. Cette condition est facilement remplie dans les pièges de taille centimétrique pour les transitions micro-onde. Ceci permet d'améliorer la stabilité de fréquence des horloges atomiques dans le domaine micro-onde, thématique sur laquelle notre équipe collabore avec le Centre National d'Études Spatiales (CNES).

Le régime de Lamb Dicke est plus difficile à obtenir dans le domaine optique à cause des longueurs d'onde de l'ordre de centaines de nanomètres. Dans ce cas, pour atteindre ce régime, l'amplitude des oscillations des ions doit être réduite en utilisant le refroidissement laser. Une combinaison de piégeage et de refroidissement est indispensable pour atteindre de basses températures ouvrant la voie à la spectroscopie très haute résolution sur des transitions optiques pour des applications en métrologie et en information quantique.

La première technique de refroidissement d'ions piégés fut l'échange d'énergie par les collisions avec des gaz inertes. Cette technique a été proposée en 1965 dans des pièges de Paul avec des collisions entre les ions mercure Hg^+ et un gaz d'hélium [15]. Elle permet de refroidir les ions jusqu'à la température du gaz [6].

Le refroidissement des ions a connu une avancée significative grâce à l'invention du laser. Dès lors, plusieurs techniques de refroidissement laser ont été développées. Ces techniques exploitent le transfert de la quantité de mouvement du photon à l'atome lors de son absorption. La méthode de refroidissement laser que nous utilisons est le refroidissement laser "Doppler". Elle fut proposée en 1975 par Hänsch et Schawlow pour les atomes neutres [16] et par Wineland et Dehmelt pour les atomes chargés [17]. Le refroidissement d'ions par laser a été expérimenté pour la première fois sur les ions Mg^+ par Wineland *et al* en piège de Penning [18] et sur les ions Ba^+ en piège de Paul par Neuhauser *et al* [19]. Le refroidissement laser a permis deux ans plus tard la détection d'un ion unique [20].

Le refroidissement laser permet de réduire l'agitation thermique des ions dans les pièges radio-fréquence jusqu'à des températures de l'ordre du millikelvin. Les ions à ces températures peuvent s'organiser dans une structure ordonnée appelée cristal de Coulomb [21, 22]. La formation de cristaux coulombiens résulte de l'équilibre entre la répulsion coulombienne et la force de confinement. Dans un piège quadrupolaire la morphologie du nuage d'ions froids dépend de la géométrie et de la raideur du potentiel de piégeage [23]. Par exemple, dans un piège linéaire quadrupolaire, un grand nuage s'organise en une structure ellipsoïdale [24] et un petit nuage dans une structure en ligne ou zigzag le long de l'axe de symétrie du piège [25]. Dans un cristal, les ions peuvent être spatialement localisés individuellement et la distance entre les ions est de l'ordre de la dizaine de micromètres. Cette propriété est intéressante entre autres pour l'information quantique. Une autre organisation se manifeste dans les pièges multipolaires à cause de la géométrie différente de leurs potentiels, les cristaux d'ions forment une structure en anneaux lorsqu'un nuage de quelques dizaines d'ions est piégé, puis une structure creuse pour un grand nuage d'ions

[26, 27]. Ces structures en pièges octupolaires peuvent être exploitées pour la métrologie des fréquences optiques [28].

La stabilité de fréquence d'une horloge se quantifie au moyen de la variance d'Allan [29] donnée par la relation :

$$\sigma(\tau_0) = \frac{\Delta\nu}{\nu_0 \mathrm{SNR}} \sqrt{\frac{T_0}{\tau_0}} \qquad \text{avec} \qquad \tau_0 \geq T_0 \tag{1}$$

où ν_0 est la fréquence de résonance de la transition atomique, $\Delta\nu$ la largeur spectrale de la transition, SNR le rapport signal sur bruit, T_0 le temps de cycle de mesure et τ_0 l'intervalle de temps de la mesure. Plus $\sigma(\tau_0)$ est faible, plus l'horloge est stable. La relation (1) montre que l'horloge est plus stable avec des largeurs spectrales faibles et des fréquences atomiques élevées. Un ion unique froid piégé est une solution intéressante pour la métrologie des fréquences utilisant des transitions optiques interdites dans l'approximation dipolaire électrique. Cette approche a été introduite par H. Dehmelt dans les années 1980 [30]. De nombreuses horloges optiques ont été développées ces dernières années. Leur précision dépasse de loin celle de l'horloge micro-onde de cesium [1] qui a une incertitude relative d'environ 10^{-16}. Les plus récentes de ces horloges optiques sont l'horloge à $^{27}Al^+$ avec une incertitude relative de 8,6.10^{-18} [31] et l'horloge à ion $^{171}Yb^+$ avec une précision de 5.10^{-18} [32].

Cependant, pour des applications spatiales, comme par exemple l'exploration de l'espace lointain, il est nécessaire d'avoir des horloges stables et autonomes pour de très longues durées. De plus, l'existence des rayons cosmiques et les phases de propulsion ne sont pas favorables à l'utilisation des diodes lasers dans le milieu spatial. La durée de vie des lasers devient un facteur limitant. Une alternative intéressante est l'utilisation de lampe pour l'excitation optique des ions. Dans le cadre d'une étude d'horloge compacte micro-onde initiée par le CNES, avec pour objectif une horloge atomique n'employant pas de laser, les études [33, 34] ont identifié l'ion mercure $^{199}Hg^+$ comme candidat idéal avec sa fréquence d'horloge micro-onde à 40,5GHz. Cette transition implique le couplage entre les deux niveaux hyperfins $F = 0, m_F = 0$ et $F = 1, m_F = 0$ de l'état fondamental $^2S_{1/2}$. Elle est choisie pour s'affranchir de l'effet Zeeman de premier ordre, ce qui est réalisé avec une structure hyperfine à nombre quantique entier. La préparation des atomes dans un niveau hyperfin et la détection de leur état sont réalisées avec une lampe à décharge, ce qui constitue un avantage incontournable pour les applications spatiales. Avec cette transition micro-onde, le régime de Lamb Dicke [14] est atteint pour des nuages de taille inférieure à la longueur d'onde (7,4mm) dans la direction de propagation du champ d'excitation. Dans ce type d'horloge, l'effet systématique dominant reste l'effet Doppler du second ordre induit par le mouvement des ions piégés dont l'amplitude augmente quand on s'éloigne du centre du piège à cause du champ radio-fréquence [35]. Le refroidissement par gaz tampon permet alors de réduire considérablement cet effet Doppler du second ordre.

Pour son projet "Deep Space Navigation", le Jet Propulsion Laboratory (JPL-NASA) à Pasadena-USA a construit une horloge micro-onde à ions de mercure d'une stabilité de 2-3.10^{-13} sur une seconde et de 10^{-15} sur un jour [36]. Un des paramètres permettant d'améliorer la stabilité de ces horloges est le rapport signal sur bruit SNR. Pour améliorer la stabilité en fréquence d'une telle horloge, le confinement d'un très grand nuage d'ions

1. L'atome de cesium (^{133}Cs) définit le temps international depuis 1967.

est nécessaire. Les horloges micro-onde utilisent des pièges linéaires capables de confiner un grand nuage d'ions de quelques centaines de milliers voir des millions d'ions et de les garder sans perte [37]. Le JPL a démontré que les pièges multipolaires sont les meilleurs candidats pour héberger de grands nuages d'ions pendant leur interrogation, avec un chauffage réduit par rapport au piège quadrupolaire [13]. En effet, la forme du potentiel de confinement multipolaire confère une amplitude de mouvement plus faible, induisant une température ionique plus basse et donc un effet Doppler du second ordre plus petit que dans un piège de Paul. Pour un piège multipolaire avec $2k$ barreaux, l'effet Doppler du second ordre induit par le mouvement radio-fréquence diminue en $1/(k-1)$. Le choix de multipoles d'ordre très élevé permet de réduire considérablement l'influence de l'effet Doppler du second ordre. Cependant, un nombre de pôles élevé a pour conséquence une faible profondeur du puits de potentiel. En effet la profondeur du potentiel décroît très rapidement en $1/k^2$. À cause de la températures d'ions très élévées pendant la création, il est nécessaire que le puits de potentiel soit suffisamment profond pour contenir les ions. Face à cette difficulté liée d'une part à l'amplitude du mouvement pendant l'excitation micro-onde et d'autre part à la profondeur du puits de potentiel lors de la création des ions, le JPL propose l'utilisation d'un double piège. Une partie du piège est quadrupolaire, plus profonde pour la création des ions et l'autre partie multipolaire pour l'excitation micro-onde [13, 38]. Le prototype d'horloge atomique du JPL utilise un piège quadrupolaire où un nuage d'environ 10^7 ions est créé par bombardement électronique et refroidi par gaz tampon, puis transporté dans un piège multipolaire pour l'excitation micro-onde. Le CNES poursuit plusieurs voies d'étude concernant les horloges atomiques micro-onde et en particulier l'horloge à ions dans un piège double.

Mon travail de thèse est effectué dans le cadre plus large d'une étude qui vise à explorer les facteurs limitants la stabilité en fréquence d'une horloge à ions mercure dans le domaine micro-onde, basée sur l'interrogation d'un très grand nuage d'ions pouvant atteindre 10^7 dans un piège double avec des géométries différentes. L'objectif de ce projet est de résoudre les points critiques pour réaliser une horloge à ions d'une stabilité de fréquence à court terme de $10^{-13}\tau^{-1/2}$ et 10^{-15} sur une journée avec une incertitude relative de 10^{-11}. Pour ce faire, en partenariat avec le CNES, l'équipe a construit un piège double s'inspirant des travaux réalisés au JPL pour la NASA. Une partie de ce piège est quadrupolaire et l'autre partie octupolaire (avec huit barreaux) montée en ligne et destinée au piégeage et l'interrogation d'un grand nuage d'environ 10^7 ions. Afin de garder une zone propre pour limiter les imperfections dues aux dépôts d'atomes neutres pendant la création des ions, la partie quadrupolaire est séparée en deux zones. Une zone destinée à la création et une zone de piégeage et de départ pour la partie octupolaire. Pour des raisons de simplicité de la mise en œuvre et de contrôle des paramètres, l'équipe travaille avec l'ion calcium ($^{40}Ca^+$) au lieu de l'ion $^{199}Hg^+$. Des sources lasers sont utilisées pour la création ainsi que pour le refroidissement. Le choix du calcium pour la mise en oeuvre du projet vient du fait de l'expérience de l'équipe sur cet ion. De plus, les niveaux d'énergie de cet atome offrent une accessibilité aux sources laser d'ionisation, de refroidissement et d'interrogation. Une étude des lois d'échelle pour l'effet Doppler a montré que les paramètres obtenus avec les ions calcium sont facilement transposables au mercure [39].

Plus spécifiquement, le travail présenté dans cette thèse concerne l'étude de plusieurs

effets importants capables d'affecter la stabilité de fréquence de l'horloge. Les fluctuations de fréquence de l'horloge micro-onde sont majoritairement dues aux fluctuations du nombre d'ions piégés. L'objectif est d'étudier le confinement d'un grand nuage pouvant atteindre 10^7 ions dans des potentiels de confinement de profils différents et avec des pertes inférieures à 0,1%. Cela permet de garder un rapport signal sur bruit élevé et une fréquence centrale constante pour éviter les fluctuations de fréquence de l'horloge. Comme les ions sont préparés dans le piège quadrupolaire et interrogés dans le piège octupolaire, il est important d'étudier le transport du nuage d'ions entre les zones du piège. Nous cherchons un protocole de transport rapide entre les trois zones du piège et qui ne s'accompagne ni de perte d'ions ni de chauffage. Un transport rapide permet de limiter les temps morts pendant les mesures qui sont des causes supplémentaires d'instabilités de fréquence de l'horloge. Dans ce type d'horloge, le transport sans perte et sans chauffage permet de garder constant l'effet systématique principal qui est l'effet Doppler de second ordre.

Ce travail est aussi l'occasion d'analyser les phénomènes collectifs sur de larges échantillons d'ions à savoir le rôle des interactions coulombiennes. Jusqu'à présent le refroidissement laser dans les pièges multipolaires n'a été réalisé que par un seul groupe [40] sur des nuages de taille inférieure à 10^4 particules. Dans ce travail, nous mettons en œuvre le refroidissement laser pour étudier la dynamique d'un grand nuage d'ions froids en piège octupolaire.

Ce manuscrit est composé de six chapitres. Dans le premier chapitre, nous posons les bases du piégeage d'ions dans les quadrupoles et les multipoles linéaires. Les processus d'interaction atome-laser à un photon conduisant au refroidissement laser y sont aussi exposés. L'étude est étendue à deux et à trois photons pour analyser les spectres d'excitation observés expérimentalement.

Le second chapitre présente le dispositif expérimental de confinement, à savoir le piège en lui même et les choix techniques faits lors de la conception. Les sources laser de photo-ionisation du calcium neutre et de refroidissement des ions piégés ainsi que le protocole de création des ions dans le piège y sont présentés.

Nous analysons expérimentalement le refroidissement laser dans la partie quadrupolaire du piège dans le troisième chapitre. Cette analyse passe par l'étude des transitions de phase vers des structures ordonnées. Une caractérisation des fréquences d'oscillation des ions dans chaque partie du quadrupole est faite à l'aide d'une technique d'excitation paramétrique du nuage. Connaître ces fréquences d'oscillation est utile pour comprendre la morphologie du nuage. Nous terminons par la présentation d'une technique d'analyse automatique de la forme des nuages d'ions à basse température dans les pièges quadrupolaires. Cette analyse est indispensable pour quantifier le nombre d'ions et donc l'efficacité du transport.

Dans le chapitre quatre, nous présentons le protocole et les résultats originaux des transports d'ions entre les deux zones quadrupolaires du piège. Ce transport est réalisé pour différentes tailles du nuage dans le but de détecter un éventuel effet dépendant du nombre d'ions. Nous analysons également le chauffage induit par le transport et l'influence sur le transport des imperfections du potentiel liées aux dépôts de calcium neutre. Ce protocole de transport est exploité pour le transport vers la partie octupolaire.

Les résultats de transport ont démontré une asymétrie (d'efficacité) entre les deux sens de transport que nous exploitons pour accumuler les ions dans un nuage existant dans

le second piège. Dans le chapitre cinq, nous analysons cette technique d'accumulation pour la création et le piégeage d'un nuage le plus grand possible. Cette technique fonctionne aussi sans refroidissement laser et offre une nouvelle perspective au piégeage d'ions de différents espèces. Cette technique d'accumulation d'ions est étendue à l'octupole pour créer un grand nuage.

Le refroidissement laser des ions en octupole est étudié dans le dernier chapitre. Une structure particulière est observée dans l'auto-organisation des ions dans les cristaux. Nous caractérisons la morphologie des nuages d'ions refroidis par laser et déduisons des propriétés du potentiel de confinement.

Ce mémoire s'achève par une conclusion et des perspectives sur la suite des travaux.

Chapitre 1

Piégeage et refroidissement d'ions en piège linéaire radio-fréquence

La technique de piégeage d'ions a été démontrée pour la première fois dans les années 1950 par Wolfgang Paul [8]. Dans ce type de piège, le confinement des ions est assuré uniquement par des champs électriques oscillants. Dix ans plus tard, les pièges de Penning sont développés dans deux groupes, celui de H. Dehmelt [9] et celui de G. Gräff [10]. Ce type de piège utilise une combinaison d'un champ magnétostatique et d'un champ électrostatique. Plus tard, en 1989, J. D. Prestage *et al* [11] développent pour des applications métrologiques, un piège quadrupolaire linéaire beaucoup plus ouvert pouvant contenir un nombre d'ions plus grand que dans les pièges traditionnels.

De façon générale, les pièges sont employés dans des expériences comme l'étude des réactions ion-molécule à température ambiante ou à basse température [4], les mesures de précision de certaines grandeurs fondamentales [41], le piégeage d'antimatière (positrons, antiprotons) [42] et l'information quantique [43]. Plusieurs des applications citées ci-dessus sont possibles grâce à l'invention du refroidissement laser qui a permis d'atteindre des températures très basses.

La technique de refroidissement laser Doppler a été proposée en 1975 indépendemment par T. W. Hänsch et A. L. Schawlow [16] pour des atomes neutres et par D. J. Wineland et H. Dehmelt [17] pour des ions piégés. Par la suite, le piégeage d'atomes neutres a vu le jour grâce à l'introduction de plusieurs lasers afin de confiner tous les degrés de liberté [44, 45]. Le piégeage des atomes neutres présente aussi de l'intérêt pour l'information quantique [46] et la métrologie des fréquences dans le cadre des horloges atomiques [47]. Cependant, l'avantage de piéger les ions est surtout dans la possibilité de confiner un ion unique et aussi dans la réalisation d'expériences sur des temps longs. En effet, un ion unique ou un nuage d'ions peuvent rester piégés pendant des jours en restant dans le régime de Lamb Dicke par rapport à quelques secondes pour les atomes neutres.

Dans ce chapitre, nous étudions la dynamique des ions en piège linéaire. Nous abordons le cas d'un piège quadrupolaire linéaire avant de généraliser cette étude sur des pièges multipolaires. Enfin, la technique de refroidissement laser des ions est exposée.

1.1 Piégeage d'un ion unique en piège quadrupolaire

Le principe de fonctionnement des pièges quadrupolaires consiste en l'application de champs électriques pour générer une force de rappel sur l'ion. Dans ce type de piège, les ions sont soumis à un potentiel quadratique de la forme :

$$V(x,y,z) = \frac{V_0}{r_0^2}(\alpha x^2 + \beta y^2 + \gamma z^2) \tag{1.1}$$

où r_0 est le rayon interne du piège. Ce potentiel est piégeant si les coefficients α, β et γ sont positifs. Cependant, la loi de Laplace ne permet pas que les trois coefficients soient tous positifs. En effet, d'après cette loi, en absence de charge dans un milieu, le potentiel obéit à la relation :

$$\Delta V(x,y,z) = 0 \tag{1.2}$$

Il est impossible de piéger les ions simultanément dans les trois directions de l'espace.

1.1.1 Géométrie et potentiel de piégeage

Parmi les géométries possibles, les pièges traditionnels 3D correspondent au cas où $\alpha = \beta = 1$ et $\gamma = -2$. Dans le cas des pièges 3D, le potentiel est confinant suivant les directions x et y et déconfinant suivant z. Les électrodes qui génèrent ce type de potentiel sont de type hyperbolique comme indiqué sur la figure 1.1. W. Paul propose d'alterner le signe du champ électrique suffisamment vite dans le plan radial et le long de l'axe du piège, en appliquant des tensions sinusoïdales dans le domaine radio-fréquence. Ce type de piège est appelé piège de Paul 3D [8, 48]. Le potentiel de piégeage dans un piège de Paul 3D est alors donné par les relations (1.3) et (1.4).

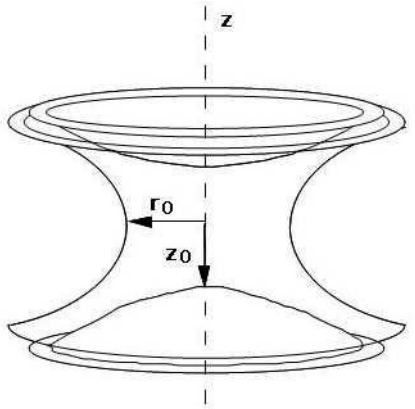

FIGURE 1.1 – Géométrie des pièges de Paul 3D. Dessin issu de [49].

$$V(x,y,z,t) = \frac{V_0(t)}{r_0^2}(x^2 + y^2 - 2z^2) \tag{1.3}$$

$$V_0(t) = \frac{V_{st} - V_{RF}\cos(\Omega_{RF}t)}{2} \tag{1.4}$$

où V_{st} est une tension statique, V_{RF} et $\Omega_{RF}/2\pi$ sont l'amplitude et la fréquence de la tension de piégeage.

Dans les pièges radio-fréquences, la contribution oscillante du champ piégeant est une source de chauffage (lorsqu'un nuage d'ions est piégé) que l'on appelle chauffage radio-fréquence (RF) et qui croit avec la distance au centre du piège. Ce chauffage est dû à un transfert d'énergie du champ piégeant au nuage d'ions par des collisions entre ions ou entre atomes neutres et ions et croit avec l'amplitude du champ électrique. Dans les pièges de Paul 3D, le chauffage radio-fréquence est présent dans les trois directions de l'espace et limite fortement le nombre d'ions pouvant être piégés. Comme il est nécessaire de piéger un très grand nombre d'ions en métrologie des fréquences micro-onde, J. D. Prestage et ses collaborateurs [11] ont imaginé et conçu une nouvelle géométrie de piége. Il s'agit des pièges linéaires qui permettent de confiner un plus grand nombre d'ions dans un volume comparable aux pièges 3D, tout en éliminant la contribution du chauffage RF suivant l'axe z du piège. Ce type de piège est composé de deux paires de barreaux cylindriques assurant le confinement suivant le plan transverse (plan x, y) et d'une paire d'électrodes DC pour assurer le confinement axial suivant z. La figure 1.2 présente à gauche une vue des barreaux du piège linéaire le long de l'axe du piège et à droite une vue suivant le plan radial.

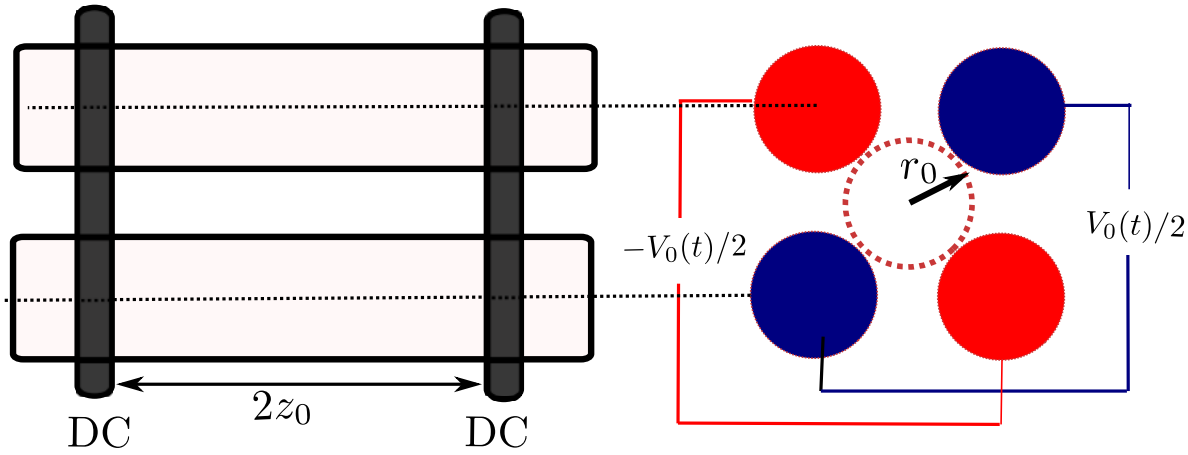

FIGURE 1.2 – Piège quadrupolaire linéaire : à gauche une vue de long de l'axe z et à droite une vue suivant le plan radial (x, y). La couleur noire indique les électrodes DC.

Pour confiner les ions dans le plan radial, on applique sur les paires de barreaux de façon alternée la somme des tensions (statiques et oscillantes) à savoir $+V_0(t)$ et $-V_0(t)$ où $V_0(t)$ est donnée par la relation (1.4). Le potentiel généré obéit à la loi de Laplace et s'écrit :

$$\Phi_r(x, y, t) = \frac{V_{st} - V_{RF}\cos(\Omega_{RF}t)}{2r_0^2}\left(x^2 - y^2\right) \tag{1.5}$$

Ce potentiel est représenté sur la figure 1.3 pour $\Omega_{RF}t = \pi$ (a) et $\Omega_{RF}t = 2\pi$ (b). Le confinement axial est assuré par application d'un potentiel statique V_{DC} sur la paire d'électrodes DC. Ce potentiel satisfait également à la loi de Laplace et il est donné à l'ordre le plus bas par la relation (1.6) où κ est un paramètre d'écrantage qui dépend de la géométrie du piège et z_0 la demi-longueur du piège.

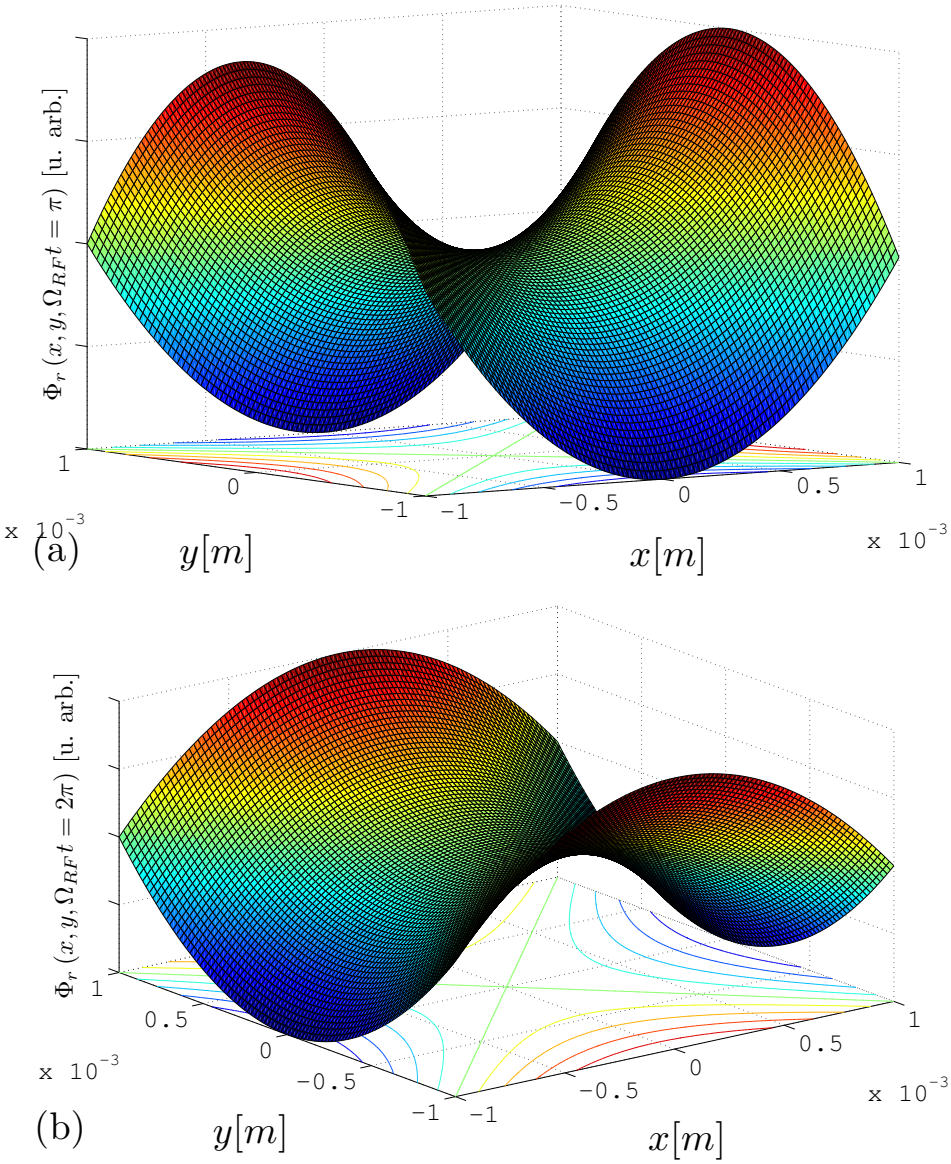

FIGURE 1.3 – Distribution radiale du potentiel dans un piège quadrupolaire linéaire pour $\Omega_{RF}t = \pi$ (a) et $\Omega_{RF}t = 2\pi$ (b).

$$\Phi_{DC}\left(x,y,z\right)=\frac{\kappa V_{DC}}{2z_0^2}\left(2z^2-x^2-y^2\right) \tag{1.6}$$

Les contributions d'ordres supérieurs sont négligées. Ce potentiel possède des composantes déconfinantes dans le plan (x,y). Pour qu'il y ait piégeage, il faut toujours que cet effet déconfinant reste inférieur à l'effet confinant. Les potentiels Φ_r et Φ_{DC} générés séparément permettent non seulement de piéger les ions indépendamment dans le plan radial et suivant l'axe du piège (axe z) mais aussi de jouer sur la morphologie du nuage lorsque plusieurs ions sont piégés.

Dans la section suivante, nous étudions le mouvement d'un ion unique à l'aide des équations de Mathieu.

1.1.2 Dynamique d'un ion unique dans un piège quadrupolaire linéaire

Un ion unique de masse m et de charge q dans un piège de Paul linéaire est soumis à une force de piégeage. D'après la deuxième loi de Newton (principe fondamental de la dynamique), l'équation du mouvement dans un champ électrique $\mathbf{E}(\mathbf{r},t)$ est donnée par la relation (1.7), en négligeant la gravité.

$$m\ddot{\mathbf{r}}=q\mathbf{E}(\mathbf{r},t) \tag{1.7}$$

Dans un premier temps, nous résolvons le problème en tenant compte uniquement du potentiel de confinement radial $\Phi_r\left(x,y,t\right)$ avant de prendre en compte la contribution statique $\Phi_{DC}(x,y,z)$ dans un second temps. En considérant le potentiel (1.5), et l'équation (1.7), le mouvement de la particule est donné par les équations du second ordre dites équations de Mathieu [50].

$$\ddot{u}+\left(a_u-2q_u\cos 2\tau\right)u=0 \tag{1.8}$$

$$q_x \;=\; -q_y=\frac{2qV_{RF}}{mr_0^2\Omega_{RF}^2} \tag{1.9}$$

$$a_x \;=\; -a_y=\frac{4qV_{st}}{mr_0^2\Omega_{RF}^2} \tag{1.10}$$

où $u=(x,y)$ et $\tau=\Omega_{RF}t/2$. Les paramètres de Mathieu a_u et q_u définissent la stabilité de la trajectoire des ions dans le piège. Ils dépendent de la géométrie du piège (r_0), des paramètres de piégeage (V_{RF},Ω_{RF}) et aussi du rapport charge/masse (q/m) de la particule piégée. Les pièges sont aussi utilisés pour la spectrométrie de masse pour séparer par exemple les isotopes d'une espèce atomique. En effet, si tous les autres paramètres sont identiques, les trajectoires des particules diffèrent entre elles seulement par leur rapport

q/m. La solution générale de l'équation de Mathieu est une somme de termes oscillants [51, 52, 53] :

$$u(t) = Me^{i\omega_u t} \sum_{k\in\mathbb{Z}} C_{2k} e^{2ik\Omega_{RF} t} + Me^{-i\omega_u t} \sum_{k\in\mathbb{Z}} C_{2k} e^{-2ik\Omega_{RF} t} \tag{1.11}$$

avec $\omega_u = \beta_u \Omega_{RF}/2$ et β_u dépendant des paramètres de Mathieu. Les solutions stables sont celles où $u(t)$ est fini quand $\tau \longrightarrow \infty$. Cette condition adiabatique définit des zones dans le plan (a_u, q_u) qui représentent les zones de stabilité. La première zone de stabilité définie sur la figure 1.4 est habituellement choisie comme zone de fonctionnement. Dans cette zone, où $0 < a_u \ll q_u < 1$ le piégeage est techniquement réalisable par des sources de tensions accessibles. Dans cette région, le mouvement de la particule se décrit par la

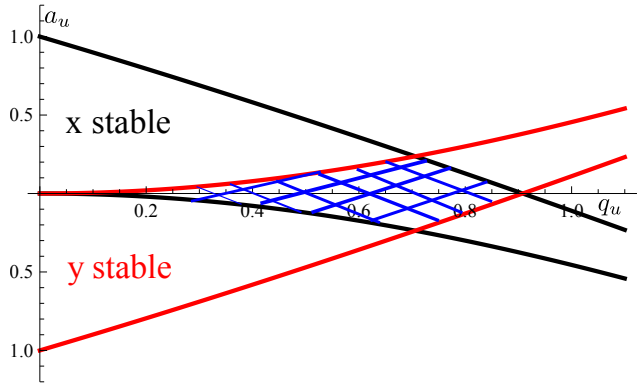

FIGURE 1.4 – Première zone de stabilité des équations de Mathieu (partie hachurée).

superposition de deux mouvements : un mouvement rapide à la fréquence $\Omega_{RF}/2\pi$ (ou micromouvement) d'amplitude ϵ_u et un mouvement lent et de grande amplitude (macro-mouvement ou mouvement séculaire) d'amplitude X. La dynamique globale sur l'axe u s'écrit :

$$u = X + \epsilon_u \tag{1.12}$$

En admettant que le macro-mouvement oscille très lentement par rapport au micro-mouvement, on peut écrire $\left|\frac{\partial^2 \epsilon_u}{d\tau^2}\right| \gg \left|\frac{\partial^2 X}{d\tau^2}\right|$ et l'équation de Mathieu (1.8) s'écrit :

$$\frac{\partial^2 \epsilon_u}{d\tau^2} + (a_u - 2q_u \cos 2\tau)\, X = 0 \tag{1.13}$$

Supposons que ϵ_u oscille suffisamment rapidement tel que $|a_u X| \ll \left|\frac{\partial^2 \epsilon_u}{d\tau^2}\right|$ l'équation (1.13) s'écrit :

$$\frac{\partial^2 \epsilon_u}{d\tau^2} - 2q_u \cos 2\tau X = 0 \tag{1.14}$$

Dans l'approche quasi-statique où X est considéré comme constante, l'équation (1.14) s'intègre et on déduit l'équation du micro-mouvement.

$$\epsilon_u(\tau) = -\frac{q_u}{2} \cos 2\tau X \tag{1.15}$$

Le micro-mouvement est proportionnel au paramètre de Mathieu q_u donc à l'amplitude du potentiel radio-fréquence et aussi à la distance au centre du piège. En remplaçant ϵ_u dans l'équation de Mathieu (1.14) et en faisant une moyenne sur une période radio-fréquence, nous obtenons :

$$\frac{\partial^2 X}{d\tau^2} + \left(a_x + \frac{q_x^2}{2}\right) X = 0 \tag{1.16}$$

En substituant $\tau = \Omega_{RF} t/2$ dans la relation (1.16) et en posant $\beta^2 = a_u + q_u^2/2$ on montre que dans l'approximation adiabatique ($q_{x,y} \ll 0,4$ et $\beta^2 \ll 1$) [9], le macromouvement est un oscillateur harmonique à la fréquence $\omega_u = \beta_u \Omega_{rf}/2$ dont l'amplitude des oscillations est donnée par : $X(t) = A\cos(\omega_u t + \varphi_u)$. Finalement, le mouvement global de la particule s'écrit :

$$u(t) = A\cos(\omega_u t + \varphi_u)\left(1 - \frac{q_u}{2}\cos\Omega_{RF} t\right) \tag{1.17}$$

où $u = (x, y)$, A et φ_u représentent l'amplitude et la phase initiale.

En prenant en compte le confinement axial du piège, on montre grâce aux équations du mouvement que le mouvement longitudinal (suivant l'axe z) est un mouvement d'oscillation harmonique à la fréquence ω_z (1.18).

$$\omega_z^2 = \frac{2q\kappa V_{DC}}{m z_0^2} \tag{1.18}$$

où κ est le paramètre d'écrantage dû à la géométrie des barreaux et à la distance qui sépare les électrodes. Ce paramètre prend en compte la perte d'efficacité entre les potentiels appliqués et ceux générant effectivement un puits de potentiel. La composante radiale déconfinante entraîne une modification des paramètres $a_{x,y}$ tel que $\tilde{a}_{x,y} = a_{x,y} - a_z$ avec $a_z = 2\omega_z^2/\Omega_{RF}^2$. Typiquement, dans les pièges linéaires, ω_z est de l'ordre de quelques centaines de kilohertz alors que Ω_{RF} est de l'ordre de quelques mégahertz. Le terme a_z reste très petit et donc les conditions de stabilité sont peu modifiées. Pour tenir compte du confinement suivant l'axe du piège, il faut corriger la fréquence d'oscillation du mouvement radial par :

$$\omega_{x,y}^2 = \frac{\Omega_{RF}^2}{4}\left(\frac{q_{x,y}^2}{2} + a_{x,y} - a_z\right) \tag{1.19}$$

Sur la figure 1.5, sont représentés les mouvements d'un ion suivant l'axe x (bleu) et l'axe y dans le cas $q_{x,y} = 0,15$ et $\tilde{a}_{x,y} = 0$. Les oscillations de petite amplitude correspondent au micro-mouvement et les oscillations de grande amplitude au macro-mouvement.

Dans ce paragraphe, nous avons traité le cas d'un ion unique en piège de Paul linéaire. Le micro-mouvement de l'ion croit avec l'amplitude du champ radio-fréquence, ainsi qu'avec la distance au centre du piège. Cet effet peut être éliminé si l'ion est confiné au centre du piège. Cependant, dans des expériences nécessitant le piégeage d'un grand nuage d'ions, le micro-mouvement augmente nécessairement car les ions ne peuvent pas tous être au centre du piège et il devient une source de chauffage radio-fréquence (RF).

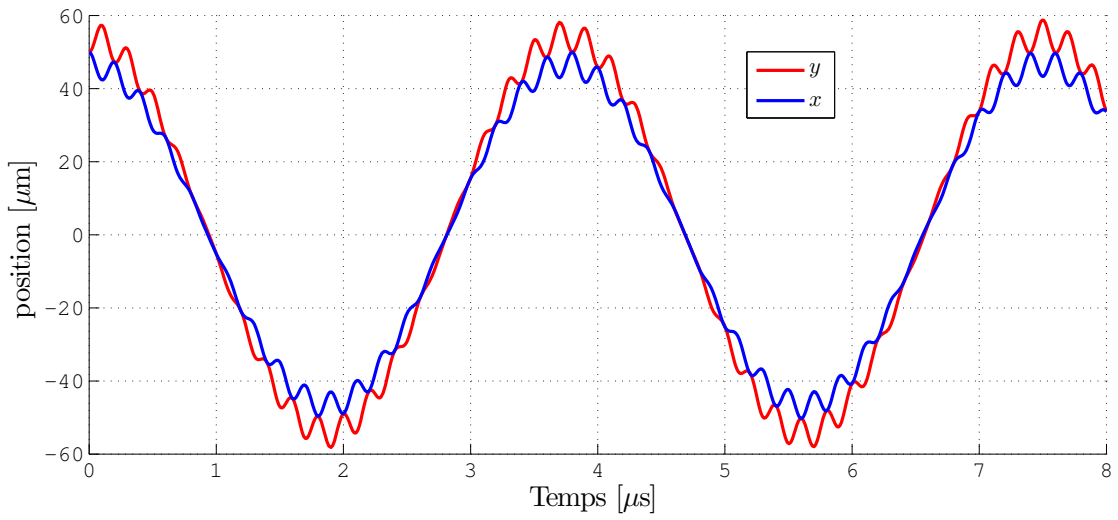

FIGURE 1.5 – Composante x (en bleue) et y (en rouge) du mouvement d'un ion dans un piège quadrupolaire dans le cas $q_x = -q_y = 0,15$ et $\tilde{a}_{x,y} = 0$.

1.1.3 Chauffage radio-fréquence

L'amplitude du micro-mouvement (donc l'énergie cinétique des ions) augmente avec la distance des ions au centre du piège et l'amplitude du champ piégeant (1.15). Ce phénomène appelé chauffage RF résulte d'échanges d'énergie par collisions entre particules qui les conduisent à avoir un mouvement aléatoire à l'intérieur du piège [54, 55]. Dans la référence [55], il est montré par des simulations avec cinq ions que le phénomène de chauffage RF croit avec la température des ions, à partir des faibles températures où les collisions entre particules sont faibles (cristaux d'ions), admet un maximum dans le régime de fortes collisions (régime liquide) et décroît lorsqu'on tend vers des régimes très dilués à de grandes températures (régime gazeux). Ces résultats sont compatibles avec ceux observés sur un nuage d'une centaine d'ions [56]. Plus récemment des simulations sur un nuage d'ions plus important dans un piège de Paul linéaire [57] pour des températures entre 0,1mK et 15K montrent un maximum de chauffage RF à 2K. Dans cette même référence, l'influence de l'amplitude du champ RF est étudiée. Le résultat montre une croissance du chauffage RF en fonction de l'amplitude de la tension RF. Enfin, une étude en fonction du nombre d'ions montre que le chauffage RF augmente avec le nombre d'ions [57]. Cela provient de l'extension du nuage dans le plan radial. Ceci limite alors le nombre d'ions pouvant être piégés.

L'énergie cinétique associée au micro-mouvement peut être de plusieurs ordres de grandeurs supérieure à l'énergie thermique [58]. Cela rend alors le refroidissement laser difficile à réaliser. Cet excès d'énergie cinétique est également une cause de l'augmentation de l'effet Doppler du second ordre qui peut être perturbateur pour certaines expériences comme la spectroscopie et la métrologie des fréquences. Pour améliorer la performance des horloges micro-onde en réduisant le chauffage RF, il est important de réduire le micro-mouvement des ions dans le piège. Pour cela, des pièges multipolaires d'ordres supérieurs ont été développés. Nous présentons ces types de pièges dans la partie suivante.

1.2 Piégeage d'un nuage d'ions en piège multipolaire

Les pièges multipolaires permettent de confiner un grand nuage d'ions tout en limitant le chauffage RF. Dans ce type de piège, le champ radio-fréquence est très faible au centre et croit rapidement près des électrodes. Ces pièges sont constitués de $2k$ barreaux cylindriques disposés selon une symétrie radiale. Le micro-mouvement et donc le chauffage RF y sont très faibles par rapport aux pièges quadrupolaires pour des tailles de nuage et des paramètres de confinement identiques. Les pièges multipolaires sont utilisés pour diverses applications comme les horloges atomiques micro-ondes avec le dodécapole ($2k = 12$) [13] et avec l'hexadécapole ($2k = 16$) [38] ou l'étude de collisions à basse température dans le 22-poles [6]. Tout comme en piège quadrupolaire, le confinement des ions dans les pièges multipolaires est assuré par application simultanée de tensions radio-fréquence et statiques. Dans les pièges d'ordre $2k > 4$, une résolution analytique des équations du mouvement n'est pas possible à cause des couplages non linéaires entre les degrés de liberté. Généralement, l'étude de la dynamique se fait au moyen d'une approximation dite du pseudo-potentiel. Dans cette section, nous faisons d'abord une étude plus générale sur le pseudo-potentiel généré par un potentiel inhomogène dans un piège radio-fréquence. Ensuite nous étudions la dynamique des ions en piége octupolaire.

1.2.1 Pseudo-potentiel de piégeage

Dans cette partie, nous décrivons de façon générale la dynamique des ions dans un piège radio-fréquence au moyen du pseudo-potentiel. Cette démarche a été introduite dans les pièges quadrupolaires par H. G. Dehmelt [9] et traitée de façon plus générale par D. Gerlich [6] dont nous nous inspirons fortement dans cette partie. Nous considérons une particule de masse m et de charge q dans un champ électrique extérieur $\mathbf{E}(\mathbf{r},t)$. Admettons également que le champ électrique a une contribution statique $\mathbf{E_s}(\mathbf{r})$ et une contribution oscillante $\mathbf{E_0}(\mathbf{r})\cos(\Omega_{RF}t + \varphi)$ où $\mathbf{E_0}(\mathbf{r})$ est l'amplitude du champ, $\Omega_{RF}/2\pi$ la fréquence d'oscillation et φ la phase à t=0. Pour résoudre alors l'équation (1.7), nous supposons dans un premier temps que $\mathbf{E_s}(\mathbf{r}) = 0$, $\mathbf{E_0}$ ne dépend pas de la position et la phase choisie est nulle. En appliquant la relation (1.7), l'équation du mouvement dans le cadre général est celle d'un oscillateur forcé dont la solution est donnée par la relation suivante :

$$\mathbf{r}(t) = \mathbf{r}(0) - \mathbf{a}\cos\Omega_{RF}t \tag{1.20}$$

où $\mathbf{a} = q\mathbf{E_0}/m\Omega_{RF}^2$. Nous supposons que l'amplitude du champ $\mathbf{E}_0$ n'est plus uniforme et varie lentement avec $\mathbf{r}$ et que la fréquence d'oscillation $\Omega_{RF}/2\pi$ est suffisamment grande pour que l'amplitude du mouvement $\mathbf{a}$ reste la plus petite possible. Le mouvement de la particule peut être interprété comme étant la superposition de deux mouvements : un mouvement $\mathbf{R_1}(t)$ forcé à la fréquence $\Omega_{RF}/2\pi$ appelé micro-mouvement et un mouvement lent induit par la variation de l'enveloppe du champ électrique $\mathbf{R_0}(t)$ appelé macro-mouvement et dont l'amplitude varie dans le temps. La dynamique globale est décrit par l'équation suivante :

$$\mathbf{r}(t) = \mathbf{R_0}(t) + \mathbf{R_1}(t) \tag{1.21}$$

avec $\mathbf{R_1}(t) = -\mathbf{a}(t)\cos\Omega_{RF}t$. Pour de petites variations de $\mathbf{E_0}$, on peut développer l'amplitude du champ électrique autour du macro-mouvement $\mathbf{R_0}$:

$$\mathbf{E_0}\left(\mathbf{R_0} - \mathbf{a}\cos\Omega_{RF}t\right) = \mathbf{E_0}\left(\mathbf{R_0}\right) - \left(\mathbf{a}\nabla\right)\mathbf{E_0}\left(\mathbf{R_0}\right)\cos\Omega_{RF}t + ... \tag{1.22}$$

On se place dans l'approximation adiabatique où $\mathbf{a}$ et $\mathbf{R_0}$ varient lentement ; soit : $\dot{a} \ll a\Omega_{RF}$, $\ddot{R}_0 \ll \Omega_{RF}\dot{R}_0$ et $a \ll R_0$. En substituant les équations (1.21) et (1.22) dans (1.7) et en tenant compte des approximations ci-dessus, l'équation du mouvement s'écrit :

$$m\ddot{\mathbf{R}}_0 + m\Omega_{RF}^2\mathbf{a}(t)\cos\Omega_{RF}t = q\mathbf{E_0}(\mathbf{R_0})\cos\Omega_{RF}t - q[\mathbf{a}(t).\nabla]\mathbf{E_0}(\mathbf{R_0})\cos^2\Omega_{RF}t \tag{1.23}$$

Les variations temporelles de $\mathbf{a}$ dépendent du macro-mouvement en $\mathbf{R_0}$, nous pouvons alors écrire $\mathbf{a(t)} = \mathbf{a}(\mathbf{R_0}(t))$. Dans ce cas, les termes en $\cos\Omega_{RF}t$ dans l'équation (1.23) se compensent. En faisant la moyenne sur une période radio-fréquence du micro-mouvement, on montre que :

$$m\ddot{\mathbf{R}}_0 = -\nabla\left(\frac{q^2E_0^2}{4m\Omega_{RF}^2}\right) \tag{1.24}$$

Le terme de droite est une force conservative qui dérive d'un potentiel statique. Au cours du piégeage, tout se passe comme si la particule était piégée dans un puits de potentiel statique de profondeur Ψ. D'après l'équation (1.24) ce potentiel effectif de piégeage s'écrit :

$$\Psi(r) = \frac{q^2E_0^2(r)}{4m\Omega_{RF}^2} \tag{1.25}$$

D'après le principe de superposition, le potentiel effectif de confinement est la somme des potentiels engendrés par le potentiel radio-fréquence et par la contribution des potentiels statiques [6].

$$\Psi(r,z) = \frac{q^2E_0(r)^2}{4m\Omega_{RF}^2} + q\Phi_{st}(r,z) \tag{1.26}$$

L'approximation de pseudo-potentiel est d'autant plus justifiée que les conditions d'adiabaticités sont respectées. Pour quantifier l'approximation adiabatique, Teloy et Gerlich [59, 6] ont introduit un paramètre d'adiabaticité η_{ad} (donné par la relation (1.27)) qui définit la stabilité de la trajectoire des particules.

$$\eta_{ad} = \frac{\mid 2\left(\mathbf{a}.\nabla\right)\mathbf{E_0}\mid}{\mathbf{E_0}} = \frac{2q\mid\nabla\mathbf{E_0}\mid}{m\Omega_{RF}^2} \tag{1.27}$$

Ce paramètre d'adiabaticité η_{ad} dans le cadre des pièges quadrupolaires est équivalent au paramètre de Mathieu q_x (1.9). Dans les pièges multipolaires, les simulations et les observations expérimentales de Gerlich [6] montrent une limite empirique $\eta_{ad} < 0.3$ qui garantie l'adiabaticité du régime. Dans cette approximation, l'amplitude du micro-mouvement s'écrit alors :

$$\mathbf{R_1}(t) = -\frac{q\mathbf{E_0}(\mathbf{R_0})}{m\Omega_{RF}^2}\cos\Omega_{RF}t \tag{1.28}$$

D'après la relation (1.28), l'amplitude du micro-mouvement augmente avec la distance au centre et l'amplitude du champ piégeant. Le choix des paramètres de piégeage résulte donc d'un compromis entre la profondeur du puits et le chauffage radio-fréquence.

1.2.2 Piégeage d'un grand nuage d'ions en piège octupolaire

Nous étudions le piégeage de façon générale dans les pièges multipolaires d'ordre $2k$ avant de considérer le cas particulier des pièges octupolaires. Les pièges octupolaires sont formés par $2k = 8$ barreaux cylindriques sur lesquels sont appliqués des potentiels oscillants pour assurer le piégeage des particules chargées suivant le plan radial (figure 1.6) et aussi des tensions statiques pour le confinement axial (comme en piège quadrupolaire). Dans

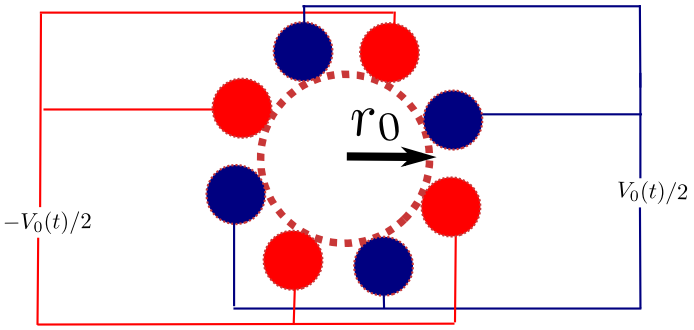

FIGURE 1.6 – Barreaux du piège octupolaire.

un piège multipolaire, le potentiel radial généré par les barreaux (dans le cas $V_{st} = 0$) est donné en coordonnées cylindriques par [6] :

$$\Phi_{2k}(r, \phi, t) = -\frac{V_{RF} \cos(\Omega_{RF} t)}{2} \left(\frac{r}{r_0}\right)^k \cos(k\phi) \tag{1.29}$$

Ce potentiel suppose un piège multipolaire parfait avec toutes les conditions de symétrie respectées. La figure 1.7 représente ce potentiel Φ_{2k} dans un piège octupolaire pour deux valeurs de t ($\Omega_{RF} t = \pi$ (a) et $\Omega_{RF} t = 2\pi$ (b)). Le mouvement d'un ion est décrit d'après (1.7) par les équations suivantes :

$$\ddot{x}/r_0 + F_k(t)(r/r_0)^{k-1} \cos(k-1)\phi = 0 \tag{1.30}$$
$$\ddot{y}/r_0 - F_k(t)(r/r_0)^{k-1} \sin(k-1)\phi = 0 \tag{1.31}$$

avec $F_k(t) = -kqV_{RF} \cos(\Omega_{RF} t)/2mr_0^2$. Dans l'exemple de la géométrie octupolaire ($2k = 8$), ces équations du mouvement dans le référentiel cartésien deviennent :

$$\ddot{x} + F_4(t)\left(x^3 - 3xy^2\right)/r_0^2 = 0 \tag{1.32}$$
$$\ddot{y} + F_4(t)\left(y^3 - 3yx^2\right)/r_0^2 = 0 \tag{1.33}$$

Les équations sont non linéaires et couplent les deux directions dans le plan radial, il est impossible de résoudre cette équation analytiquement. Nous faisons une étude dans l'approximation du pseudo potentiel. La stabilité des trajectoires dépend des conditions initiales $(\mathbf{r}, \mathbf{v})_0$. Il n'est pas possible de définir les conditions de stabilité absolue en se basant uniquement sur les paramètres du piège comme dans le cas du piège quadrupolaire. Néanmoins, la stabilité locale peut être estimée à partir du critère d'adiabaticité donné par

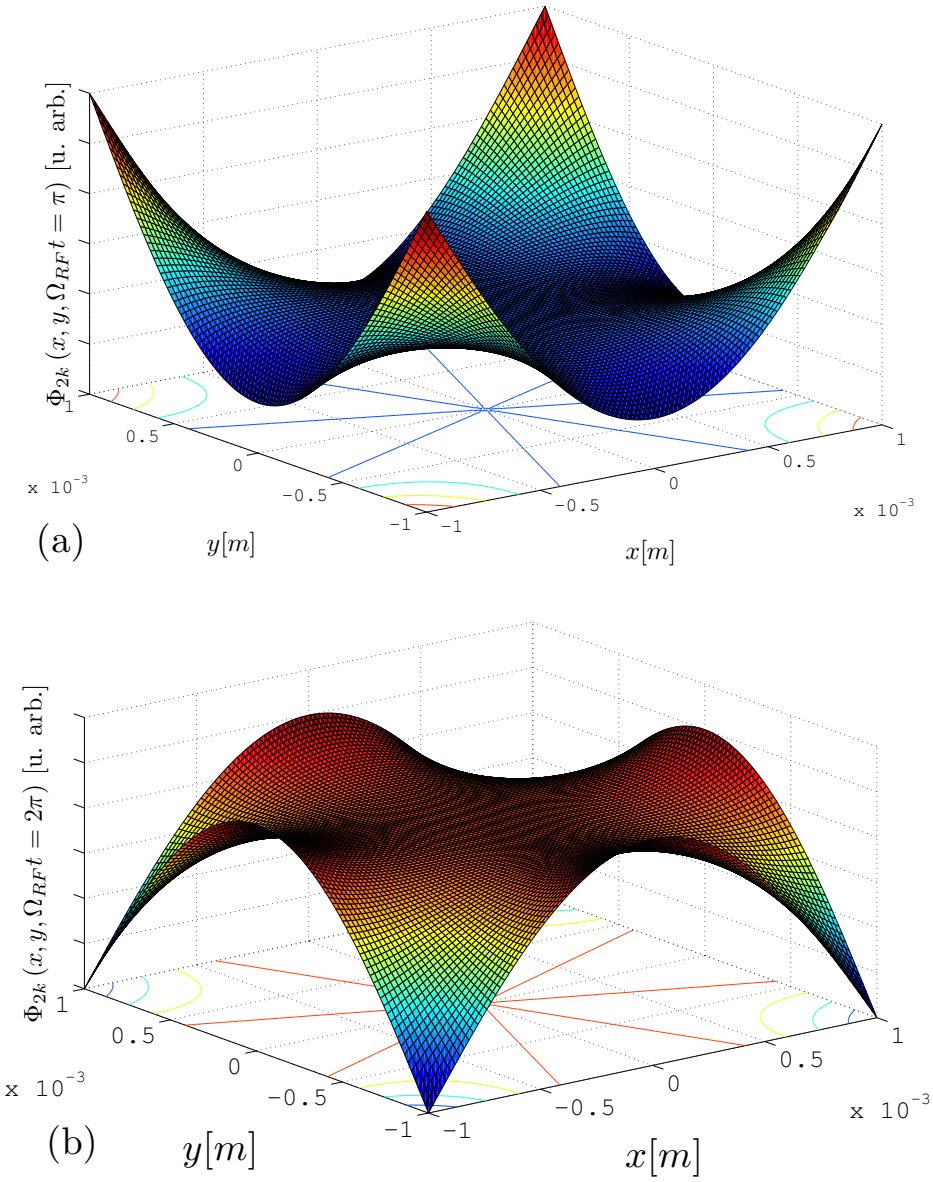

FIGURE 1.7 – Distribution de potentiel dans un piège octupolaire dans le plan radial pour $\Omega_{RF}t = \pi$ (a) et $\Omega_{RF}t = 2\pi$ (b). Le potentiel est représenté en unités arbitraires.

la relation (1.27). Pour un piège $2k$-pôles, ce critère d'adiabaticité est donné par la relation suivante :

$$\eta_{ad} = k(k-1)\frac{qV_{RF}}{mr_0^2\Omega_{RF}^2}\left(\frac{r}{r_0}\right)^{k-2} \tag{1.34}$$

Une valeur suffisamment faible de η_{ad} assure la stabilité de la trajectoire. Dans la référence [6], il est montré théoriquement que la valeur maximale de η qui assure la stabilité des trajectoires des ions dans les pièges radio-fréquences est donnée par :

$$\eta_{ad} \leq \eta_{max} = 0,3 \tag{1.35}$$

Ce critère d'adiabaticité a été validé expérimentalement dans un piège 22-pôles [60] et dans un piège octupolaire [61]. À partir de l'équation (1.34), il est possible de définir un rayon maximal d'adiabaticité r_{max} au delà duquel la dynamique des ions devient instable dans le piège. Ce rayon est défini par la relation suivante :

$$r_{max} = r_0\left[\frac{\eta_{max}}{k\,(k-1)}\frac{m\Omega_{RF}^2 r_0^2}{qV_{RF}}\right]^{\frac{1}{k-2}} \tag{1.36}$$

Le rayon de la zone d'adiabaticité (1.36) croit avec la fréquence Ω_{RF} et décroit avec l'amplitude V_{RF}. Dans le piège octupolaire, pour l'ion $^{40}Ca^+$ ce rayon maximal est de l'ordre de 2,4mm pour r_0=3,93mm, $\Omega_{RF}/2\pi = 5,5$MHz et $V_{RF} = 1000V_{PP}$ (valeurs typiques pour nos expériences). Une fois le critère d'adiabaticité satisfait, la dynamique des ions peut être décrite au moyen du pseudo-potentiel. En injectant le potentiel (1.29) dans la relation (1.26) et en tenant compte de la contribution statique (1.6), le pseudo-potentiel de piégeage en piège multipolaire est donné par :

$$\Psi_{2k}\,(r,z) = \frac{k^2}{16}\frac{q^2V_{RF}^2}{m\Omega_{RF}^2 r_0^2}\left(\frac{r}{r_0}\right)^{2(k-1)} - \frac{1}{4}m\omega_z^2 r^2 + \frac{1}{2}m\omega_z^2 z^2 \tag{1.37}$$

Le premier terme représente la contribution radio-fréquence du potentiel, le deuxième terme négatif représente la composante déconfinante du potentiel statique DC et enfin le troisième terme le piégeage harmonique suivant l'axe z du piège. Le pseudo-potentiel ne dépend pas de l'angle ϕ, il se comporte donc de la même façon quel que soit l'orientation de l'axe r dans le plan (x, y). Si nous considérons $2k = 4$, on retrouve l'énergie potentielle de piégeage harmonique du piège quadrupolaire (relation (1.38)).

$$\Psi_4(r,z) = \frac{1}{2}m\omega_r^2 r^2 + \frac{1}{2}m\omega_z^2 z^2 \tag{1.38}$$

$$\omega_r^2 = \omega_x^2 - \omega_z^2/2 \tag{1.39}$$

$$\omega_x^2 = \frac{q^2V_{RF}^2}{2m^2\Omega_{RF}^2 r_0^4} \tag{1.40}$$

D'après la relation (1.36), le rayon adiabatique augmente avec le nombre de pôles du piège. La figure 1.8-(a), présente quelques profils de potentiels à savoir : 4-pôles, 8-pôles, 12-pôles, 16-pôles et 20-pôles. Plus le nombre de pôles augmente, plus le potentiel est plat et le champ électrique de la zone centrale est faible. Cette propriété est intéressante pour des expériences nécessitant un très faible chauffage RF.

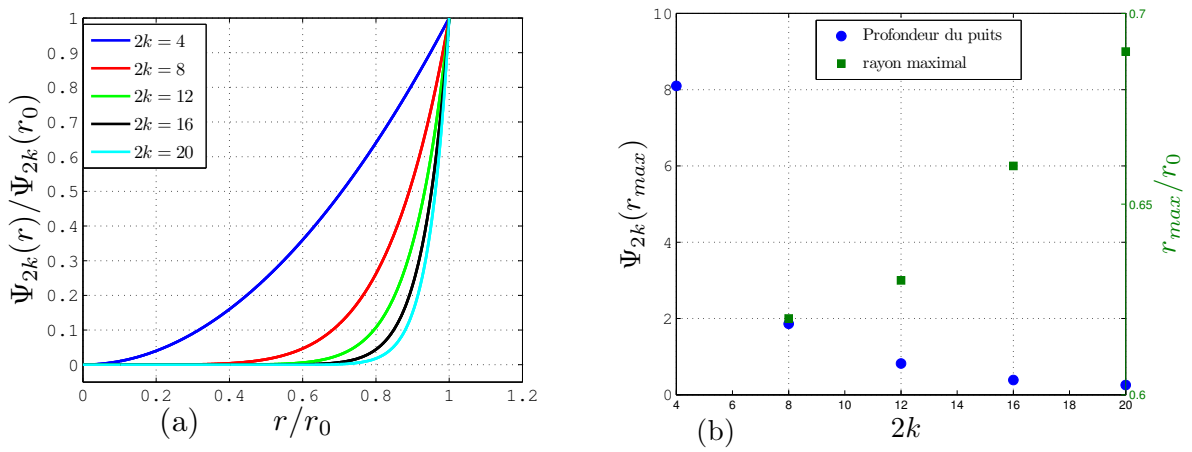

FIGURE 1.8 – Quelques géométries (a) et profondeurs (b) de potentiel en fonction du nombre de pôles (points bleus avec l'axe des ordonnées à gauche) pour r_0=3,93mm $\Omega_{RF}/2\pi = 5,5$MHz et $V_{RF} = 1000V_{PP}$. Les points verts (axe des ordonnées à droite) représentent les valeurs r_{max}/r_0 de chaque piège multipolaire.

Le rayon maximal d'adiabaticité est en général plus petit que le rayon du piège. Nous définissons la profondeur du puits de potentiel multipolaire à partir de ce rayon maximal comme dans la référence [62]. En ignorant dans un premier temps la contribution déconfinante la profondeur du puits dans le cas ($2k > 4$) est donnée par :

$$D_{2k} = \Psi_{2k}(r_{max}) = \frac{m\Omega_{RF}^2 r_0^2}{16}\left[\frac{\eta_{max}}{k-1}\right]^{2\frac{k-1}{k-2}}\left[\frac{1}{k}\frac{m\Omega_{RF}^2 r_0^2}{qV_{RF}}\right]^{\frac{2}{k-2}} \tag{1.41}$$

La profondeur du puits de potentiel est de l'ordre de $2eV$ dans notre piège octupolaire pour des paramètres suivants : $r_0 = 3,93$mm, $\Omega_{RF}/2\pi = 5,5$MHz et $V_{RF} = 1000V_{PP}$. Contrairement au piège quadrupolaire, dans les critères d'adiabaticité, la profondeur du puits de potentiel augmente avec la fréquence Ω_{RF}, le rayon du piège, la masse de la particule et elle diminue quand l'amplitude V_{RF} du potentiel augmente. La profondeur du puits de potentiel diminue également lorsque le nombre de pôles augmente. À l'ordre élevé tel que $k \gg 1$, la profondeur du puits diminue en $1/k^2$ (1.42).

$$D_{2k\gg 2} = \frac{m\Omega_{RF}^2 r_0^2}{16}\frac{\eta_{max}^2}{k^2} \tag{1.42}$$

En effet, sur la figure 1.8-(b) nous avons représenté les profondeurs en fonction du nombre de pôles. La profondeur du puits décroît très rapidement avec le nombre de pôles. En fonction des expériences, le choix de l'ordre des multipoles résulte alors d'un compromis entre la profondeur du puits de potentiel et l'influence du chauffage RF.

La composante déconfinante du potentiel est responsable de l'existence d'un minimum de potentiel localisé sur un cercle de rayon r_{min} donné par l'équation (1.43). La région autour de l'axe du piège est alors instable.

$$r_{min} = r_0\left[\frac{4\omega_z^2}{k^2(k-1)}\frac{m^2\Omega_{RF}^2 r_0^4}{q^2 V_{RF}^2}\right]^{\frac{1}{2(k-2)}} \tag{1.43}$$

Nous représentons sur la figure 1.9 la résultante du pseudo-potentiel de piégeage dans le cas du piège octupolaire. Avec des valeurs typiques de notre piège octupolaire à savoir

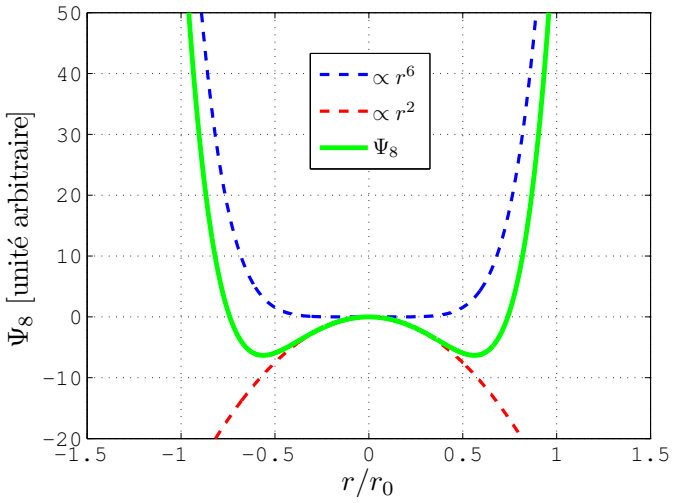

FIGURE 1.9 – Pseudo-potentiel dans un piège octupolaire. Les tirets rouges représentent la composante harmonique déconfinante du potentiel statique ($\propto \omega_z^2$), les tirets bleus la composante piégeante du potentiel oscillant ($\propto r^6$) et la courbe verte, la résultante du pseudo-potentiel en piège octupolaire.

$\Omega_{RF}/2\pi = 3,5$MHz, $V_{RF} = 1000V_{PP}$, et ω_z=3kHz, ce rayon est de 150μm. Cette géométrie spéciale du potentiel multipolaire peut permettre de prévoir une structure en anneau d'ions lorsqu'un petit nuage d'ions froids est piégé.

Piégeage d'un petit nuage d'ions en piège octupolaire

La position des ions dans le piège multipolaire résulte d'un équilibre entre la répulsion coulombienne et le potentiel de piégeage. Les simulations de dynamique moléculaire montrent qu'un petit échantillon de quelques dizaines d'ions refroidis s'organise dans une structure en anneaux ou en tubes concentriques en fonction du nombre d'ions [26, 27, 63]. La stabilité de ces anneaux dépend des paramètres de piégeage et du nombre d'ions [64]. Une analyse des forces dans la direction radiale montre que deux régimes d'organisation peuvent être définis, basés sur la comparaison entre la répulsion coulombienne et l'énergie potentielle déconfinante $-m\omega_z^2 r^2/4$. Dans le régime où la répulsion coulombienne est plus importante que l'énergie potentielle déconfinante, le rayon de l'anneau formé dépend du nombre d'ions et est plus important que r_{min}. Dans le régime où la répulsion coulombienne est négligeable, le rayon de l'anneau ne dépend pas du nombre d'ions et vaut r_{min}. Cette propriété est intéressante pour des applications de la métrologie des fréquences [28]. Dans cette référence, on montre que le changement de rayon δr occasionné par la répulsion coulombienne est donné par la relation suivante :

$$\delta r = \frac{q^2}{4\pi\epsilon_0} \frac{S_1(N)}{4(k-2)r_{min}^2 m\omega_z^2} \tag{1.44}$$

où N est le nombre d'ions et $S_1(N) = \sum_{n=1}^{N} 1/\sin(n\pi/N)$. D'après la relation (1.44), avec des paramètres typiques de notre piège octupolaire la variation du rayon de l'anneau est du

même ordre de grandeur que r_{min}. Il est donc impossible de négliger l'effet de la répulsion coulombienne dans un anneau d'ions car r_{min} est bien trop faible, de l'ordre d'une centaine de micromètres.

Dans cette partie, nous avons étudié un nuage d'ions dans un piège multipolaire. On a vu que le potentiel plat de confinement multipolaire associé à la répulsion coulombienne permet de prévoir des structures creuses des ions refroidis par laser dans les pièges multipolaires.

1.3 Thermodynamique des ions en piège linéaire

Lorsqu'un ensemble d'ions est piégé, les simples équations du mouvement utilisées jusqu'ici sont toujours valables tant que l'agitation thermique du nuage est importante et que la répulsion coulombienne reste négligeable par rapport aux potentiels de piégeage. Cependant, dans le cas où l'interaction coulombienne n'est plus négligeable, il faut tenir compte de la répulsion coulombienne dans la dynamique qui couple les différents degrés de liberté entre eux. Dans ce cas, il s'agit d'un problème à N corps qui ne peut pas être résolu analytiquement. Plusieurs méthodes existent pour la résolution de ce type de problème. Parmi ces techniques, on a par exemple les méthodes de simulation par dynamique moléculaire appliquées sur un petit échantillon ionique permettant de suivre l'évolution individuelle des ions dans le temps. On peut aussi dans le cas d'un grand nuage d'ions étudier le comportement collectif en terme d'énergie à l'équilibre thermodynamique dans un modèle de plasma non neutre.

1.3.1 Les différents états thermodynamiques

Pour un système infini, on peut montrer que l'état thermodynamique est complètement décrit par le paramètre plasma Γ_{Pl} qui représente le rapport de l'énergie d'interaction coulombienne entre plus proches voisins et l'énergie thermique des ions [65] :

$$\Gamma_{Pl} = \frac{q^2}{4\pi\epsilon_0 a_{ws} k_B T} \tag{1.45}$$

où T est la température ionique et a_{ws} le rayon de Wigner-Seitz donné par $a_{ws} = (4\pi n_0/3)^{-1/3}$ avec n_0 la densité du nuage d'ions.

Lorsque Γ_{Pl} est inférieur ou de l'ordre de 2 [66], l'énergie thermique est plus importante que la répulsion coulombienne : c'est le régime gazeux. Dans ce régime, les ions sont quasiment sans interactions et les trajectoires peuvent être décrites au moyen des équations du mouvement d'un ion unique.

Grâce au refroidissement laser, l'agitation thermique peut être suffisamment réduite pour que Γ_{Pl} puisse atteindre des valeurs de quelques centaines. Dans le cas où $\Gamma_{Pl} > 175$ [67, 68, 69] l'interaction coulombienne devient suffisamment importante par rapport à l'énergie thermique : C'est le régime d'interaction forte ou phase cristalline. Chaque ion est localisé dans un site et oscille autour d'une position moyenne. Dans ce régime, le nuage d'ions s'organise dans une structure ordonnée appellée cristal de Coulomb et dont la morphologie dépend de la géométrie du potentiel de piégeage. Ces cristaux d'ions ont

été observés pour la première fois par refroidissement laser en 1988 dans les pièges de Paul [54]. Dans les pièges de Paul, la densité de particules est de l'ordre de $10^{14}\mathrm{m}^{-3}$, et les températures typiques des ions dans un cristal sont de l'ordre de quelques dizaines de millikelvins.

Entre les deux régimes cités ci-dessus se trouve la phase intermédiaire où les ions interagissent mais restent libres de se déplacer dans le piège : c'est la phase liquide. Cette phase est largement étudiée par des simulations numériques et pour un nuage suffisamment allongé, on a : $2 \leq \Gamma_{Pl} < 175$. Dans cette phase, la densité atteint sa valeur maximale. Compte tenu du potentiel purement répulsif entre les ions, on s'attend à une transition continue entre la phase gazeuse et la phase liquide. Cette analyse est faite à la section (3.1.3).

1.3.2 Description collective du nuage d'ions en piège linéaire

Dans cette partie, nous analysons le comportement collectif des ions dans le modèle de plasma non neutre. Cette méthode utilise l'approximation du champ moyen. Cette approximation consiste à dire que le champ subi par une particule au sein d'un système de N particules en interaction coulombienne est approximativement la moyenne des champs créés par les autres particules. Ainsi le problème à N corps est réduit au problème à un corps. Dans ce modèle, le système est supposé à l'équilibre thermodynamique et est traité comme un fluide froid. La description du système fait intervenir un paramètre $\lambda_D = \sqrt{k_B T \epsilon_0 / q^2 n}$ (où n est la densité de l'échantillon) appelé longueur de Debye. Ce modèle est d'autant plus justifié que le nombre de particules piégées est important et que la taille du système est grande par rapport à la longueur de Debye. Ce modèle a été utilisé initialement en piège de Penning pour étudier le comportement des électrons et des ions [70, 71], puis en piège de Paul 3D [35] et linéaire [72]. Dans cette partie, nous nous inspirons fortement de cette dernière référence et de D. H. E. Dubin et T. M. O'Neil [23] sur l'équilibre thermodynamique du plasma non neutre. Notre description se limite au comportement d'un nuage froid en piège multipolaire. Dans les références [23, 73, 74], les auteurs montrent qu'à l'équilibre thermodynamique d'un plasma non neutre piégé contenant au moins quelques centaines de particules, la densité est donnée par la distribution de Maxwell-Boltzmann (1.46).

$$n(r,z) = n_0 \exp\left(-\frac{(\xi(r,z) - \xi(0,0))}{k_B T}\right) \tag{1.46}$$

où n_0 est la densité au centre du piège et $\xi(r,z)$ l'énergie de la particule à la position (r,z). Dans notre cas $\xi(r,z) = q\phi_{2k}(r,z) + q\phi_p(r,z)$ représente la somme de l'énergie potentielle de piégeage $\Psi_{2k}(r,z) = q\phi_{2k}(r,z)$ et la contribution de l'énergie potentielle $q\phi_p$ générée par l'effet de charge d'espace due à l'interaction entre ions. L'effet de charge d'espace est donné par l'équation de Poisson (avec la densité de charge $\rho(r,z) = qn(r,z)$) :

$$\Delta\phi_p(r,z) = -\frac{qn(r,z)}{\epsilon_0} \tag{1.47}$$

La valeur absolue du potentiel augmente avec la densité. Pour qu'il y ait un effet confinant, il faut que la condition en énergie potentielle $q\phi_{2k} + q\phi_p \geq 0$. Ceci implique alors une limite maximale de la densité n_c correspondante à la limite $T \to 0$. Posons $\psi =$

$-\left(\xi(r,z)-\xi(0,0)\right)/k_BT$; en exprimant $\Delta\psi$ en fonction de $\Delta\phi_{2k}$ et $\Delta\phi_p$ et en substituant les équations (1.47) et (1.46), $\Delta\psi$ se met sous la forme suivante :

$$\Delta\psi(r,z)=\frac{1}{\lambda_D^2}\left[\exp\left(\psi(r,z)\right)-\frac{\epsilon_0}{qn_0}\Delta\phi_{2k}(r,z)\right] \tag{1.48}$$

Lorsque le nuage est refroidi jusqu'à des températures très basses ($T\longrightarrow 0$), l'équation (1.48) tend à diverger à moins que la condition $\exp(\psi)\rightarrow\epsilon_0\Delta\phi_{2k}/qn_0$ soit satisfaite. En introduisant cette condition dans l'équation (1.46), la limite n_c de la densité est donnée par la relation suivante :

$$n_c(r,z)=\lim_{T\rightarrow 0}n(r,z)=\frac{\epsilon_0}{q}\Delta\phi_{2k}(r,z) \tag{1.49}$$

Pour un piège multipolaire d'ordre $2k$, en remplacant $\phi_{2k}=\Psi_{2k}/q$ par son expression donnée par la relation (1.37), n_c s'écrit :

$$n_c(r,z)=\frac{2m\epsilon_0}{q}\frac{k^2(k-1)}{4}\frac{q^2V_{RF}^2}{2m^2\Omega_{RF}^2r_0^4}\left(\frac{r}{r_0}\right)^{2(k-2)} \tag{1.50}$$

La contribution du confinement en z n'intervient pas dans l'expression de la densité maximale atteint par le nuage. Elle ne dépend que du pseudo-potentiel radial car c'est la seule contribution qui n'obéit pas à la loi de Laplace ($\Delta V(r)=0$).

Cas du piège quadrupolaire linéaire

Dans le cas du piège quadrupolaire linéaire où $2k=4$, la densité maximale atteinte dans un nuage froid ne dépend que de la raideur du potentiel induit par la RF, $m\omega_x^2$ (ω_x donnéé par la relation (1.40)).

$$n_c=\frac{2m\epsilon_0}{q}\omega_x^2 \tag{1.51}$$

Dans la suite, nous vérifions la dépendance de la densité à la distance au centre à l'intérieur du nuage par la résolution numérique de l'équation (1.48).

Pour simplifier, nous posons $\gamma=n_c/n_0-1$ où γ est le paramètre qui conditionne la phase fluide froide ; plus la condition de faible température est satisfaite, plus $n_c\rightarrow n_0$ et plus γ est petit. L'équation (1.48) s'écrit [72] :

$$\Delta\psi(r)=\frac{1}{\lambda_D^2}(\exp(\psi(r)-\gamma-1) \tag{1.52}$$

Une résolution numérique de l'équation 1.52 permet de montrer l'évolution de la densité au sein du nuage. La figure 1.10 présente la distribution de densité au sein du nuage par unité de la longueur de Debye pour $T=5$K, $\omega_x=265$kHz, $\gamma=10^{-10}$. Dans la limite fluide froid, la densité est uniforme à $n_0\simeq n_c$ dans le nuage [73] soit $\lambda_D=15\mu$m. Cette densité décroît rapidement sur quelques unités de la longueur de Debye au bord du nuage. L. Turner [24] montre grâce aux calculs théoriques qu'à l'équilibre thermodynamique, dans un potentiel harmonique à symétrie cylindrique, un nuage d'ions froids s'organise dans une structure ellipsoïdale dont le rapport d'aspect dépend de la raideur du potentiel appliqué. Nous exploitons ces propriétés dans le chapitre 3 pour analyser le signal du nuage et ainsi caractériser notre piège.

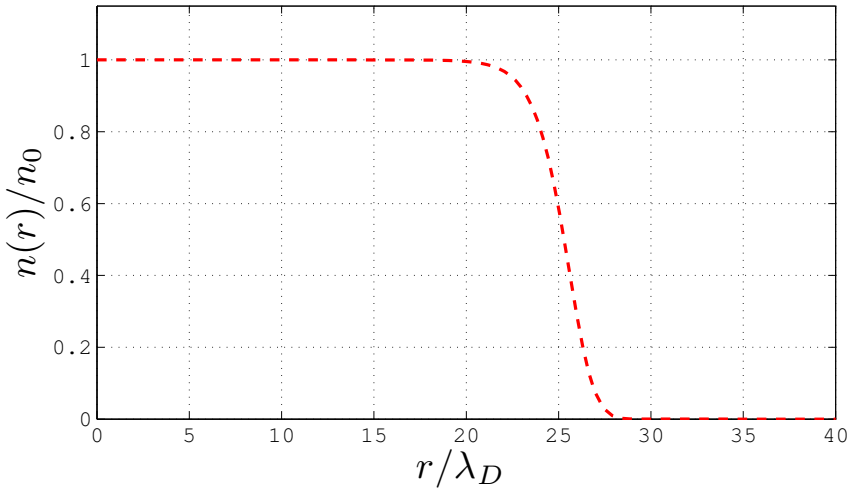

FIGURE 1.10 – Distribution de la densité dans un nuage en piège quadrupolaire par unité de la longueur de Debye. $T = 5$K, $\omega_x = 265$kHz, $\gamma = 10^{-10}$.

Cas du piège multipolaire linéaire

Pour des multipoles d'ordre $2k > 4$, la relation (1.50) montre que la densité dans la limite froide n'est pas uniforme mais croit avec la distance au centre. En effet, l'équation (1.48) peut se transformer en (1.53) avec $\zeta = qV_{RF}^2\epsilon_0 k^2(k-1)/(4m\Omega_{RF}^2 r_0^{2k})$. L'analyse numérique [72] montre qu'une petite valeur de ζ assure la condition de fluide froid.

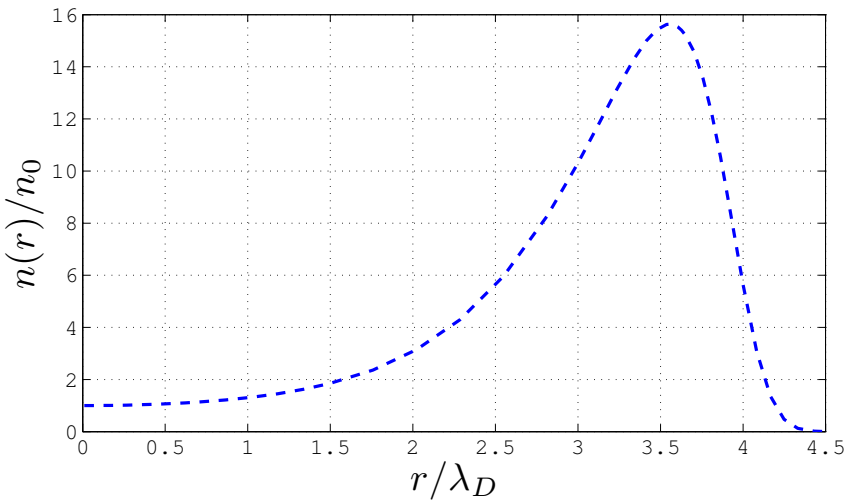

FIGURE 1.11 – Distribution de la densité dans un nuage en piège octupolaire par unité de la longueur de Debye. $T = 5$K, $V_{RF} = 2000V_{PP}$, $\Omega_{RF} = 3,325$MHz et $\zeta = 0,13$.

$$\Delta\psi(r) = \frac{1}{\lambda_D^2}(\exp(\psi(r) - \zeta r^{2(k-2)}) \tag{1.53}$$

La résolution numérique de cette équation permet de dresser le profil de densité dans les pièges multipolaires. Dans le cas particulier du piège octupolaire, la figure 1.11 présente

une croissance progressive de la densité jusqu'à une valeur maximale, puis une décroissance rapide au bord du nuage. Cette propriété prévoit alors que les ions froids en piège multipolaire s'organisent dans une structure creuse grâce à la symétrie cylindrique des barreaux. Les simulations de dynamique moléculaire ont été faites en piège octupolaire [26, 27, 63]. À notre connaissance, l'observation expérimentale n'a été faite jusqu'à présent que par un seul groupe grâce au refroidissement laser [40]. Notre piège octupolaire a été conçu dans le but d'étudier expérimentalement la thermodynamique des ions refroidis par laser en piège multipolaire. Ceci est développé au chapitre 6. Les ions piégés sont refroidis par la technique de refroidissement laser Doppler.

1.4 Refroidissement laser Doppler

Le refroidissement d'atomes permet de réduire la dispersion de la distribution de vitesses de l'ensemble des atomes. La première technique de refroidissement des ions fut le refroidissement par collisions avec un gaz tampon qui ralentit le mouvement des atomes par les collisions. Les températures minimales atteintes par cette technique sont de l'ordre de la température du gaz utilisé qui est en générale la température ambiante [6, 75]. L'alternative pour atteindre des températures plus basses est l'utilisation du refroidissement par laser. Le refroidissement Doppler est un processus physique basé sur le contrôle de la vitesse des atomes par interaction avec des lasers. Cette méthode a été utilisée pour le ralentissement des jets d'atomes neutres. Ce procédé nécessite l'utilisation d'au moins trois paires de faisceaux lasers pour le refroidissement des atomes neutres dans les trois directions de l'espace. Dans ce cas, l'interaction atome laser peut être utilisée pour le piégeage d'atomes neutres dans une mélasse optique (pièges optiques) [45]. Contrairement aux atomes neutres, les ions piégés oscillent dans le puits de potentiel. Le refroidissement laser des ions piégés par des champs électromagnétiques se fait généralement suivant une seule direction choisie de sorte que le vecteur d'onde admet des composantes non nulles dans les autres directions. Dans notre cas, l'axe de refroidissement est l'axe du piège. Les ions sont refroidis dans la direction radiale grâce à l'interaction coulombienne qui couple les degrés de liberté et redistribue la température au sein du nuage [76]. Le lecteur qui souhaite avoir plus de connaissances sur le refroidissement laser des ions en piège radio-fréquence pourra consulter les références suivantes : [21, 55, 77, 78, 79, 80, 81]. Nous commençons par le principe général du refroidissement laser dans un système à deux niveaux avant d'aborder le cas des ions alcalino-terreux.

1.4.1 Refroidissement laser dans un système atomique à deux niveaux

L'atome est modélisé par un système à deux niveaux d'énergie (voir schéma du refroidissement laser Doppler figure 1.12). Le niveau fondamental $|f\rangle$ caractérisé par son énergie E_f est couplé par une transition dipolaire électrique au niveau excité $|e\rangle$ d'énergie E_e et de durée de vie τ. Considérons un atome animé d'une vitesse $\mathbf{v_i}$ dans un faisceau laser incident de module du vecteur d'onde $k_L = 2\pi/\lambda$ (avec λ la longueur d'onde du laser). L'atome absorbe un photon laser lorsque l'énergie laser $\hbar\omega_L$ correspond à la différence d'énergie entre les deux niveaux : $\Delta E = E_e - E_f = \hbar\omega_0$. Après excitation, deux processus de désexcitation peuvent avoir lieu : l'émission stimulée et l'émission spontanée. L'émission

stimulée (introduite par A. Einstein en 1917) résulte d'un couplage avec le champ laser. Le photon émis se propage dans la même direction que le photon incident. La différence d'impulsion entre le rayonnement incident et final dans un cycle d'absorption/émission est nulle. Ce type d'émission ne participe pas au refroidissement. L'émission spontanée résulte du couplage avec le champ électromagnétique du vide et le photon est émis dans une direction aléatoire. En moyenne sur plusieurs émissions successives, le transfert de la quantité de mouvement du à l'émission spontanée est nul. On note $\mathbf{v_f}$ la vitesse de l'atome après absorption de photon. Les lois de conservation de la quantité de mouvement et de l'énergie sont appliquées.

$$\mathbf{v_f} = \mathbf{v_i} + \frac{\hbar \mathbf{k_L}}{m} \tag{1.54}$$

$$E_f + \hbar\omega_L + \frac{1}{2}m\mathbf{v_i^2} = E_e + \frac{1}{2}m\mathbf{v_f}^2 \tag{1.55}$$

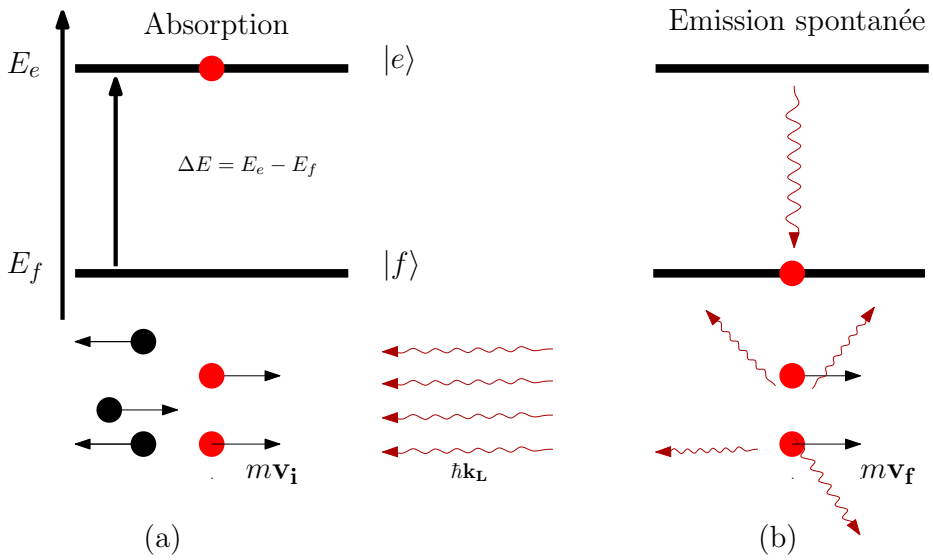

FIGURE 1.12 – Schéma du refroidissement laser Doppler. (a) absorption des photons laser, (b) émission spontanée de photons.

Les deux lois de conservations (1.54) et (1.55) se traduisent par : $\omega_L^{at} = \omega_0 + \hbar\mathbf{k_L}^2/2m$ où $\omega_L^{at} = \omega_L - \mathbf{v_i}.\mathbf{k_L}$ est la fréquence vue par l'atome. Cette fréquence est celle du laser ω_L décalé d'une quantité $-\mathbf{v_i}.\mathbf{k_L}$ par l'effet Doppler. Le terme $\hbar\mathbf{k_L}^2/2m$ est de l'ordre de 10kHz, négligeable par rapport à la fréquence ω_0 de l'ordre de quelques centaines de térahertz pour l'ion calcium. Si $\omega_L < \omega_0$, la fréquence de résonance de la transition ne peut être atteinte que si le terme $-\mathbf{v_i}.\mathbf{k_L} > 0$. L'atome absorbe alors préférentiellement les photons contra-propageants. Dans ce cas la conservation de la quantité de mouvement (1.54) indique que $\| \mathbf{v_f} \| < \| \mathbf{v_i} \|$ et la différence $\hbar\mathbf{k_L}/m$ constitue la vitesse de recul qui est de l'ordre de 2,5cm/s pour l'atome de calcium sur la raie de résonance à 397nm. Après chaque cycle absorption/émission, la vitesse d'agitation thermique de l'atome diminue et donc sa température aussi. Ce processus de refroidissement est d'autant plus efficace que le taux de photons absorbés est important. Les études menées ici supposent que la dynamique des ions est lente devant le taux de diffusion de photons. Cela se traduit par $\Gamma > \omega_x$ où

Γ est la largeur naturelle de la transition. Généralement cette condition est satisfaite dans les pièges centimétriques car ω_x est de l'ordre de quelques centaines de kilohertz et Γ d'une vingtaine de mégahertz pour les transitions considérées.

Les études faites jusqu'ici supposent que l'atome se propage dans un sens. Dans le paragraphe suivant, nous analysons le cas d'un mouvement oscillant.

Cas d'un ion oscillant dans un puits de potentiel

Lorsque l'atome oscille dans un puits de potentiel harmonique suivant le même axe que le laser, une moitié du temps, l'ion a une vitesse dans le sens de propagation du faisceau laser et l'autre moitié dans le sens contraire. Dans ce paragraphe nous analysons le refroidissement dans ce cas.

La résolution des équations de Bloch optiques [82] pour un système à deux niveaux permet de montrer que la population de l'état excité est donnée par :

$$P_e = \frac{1}{2}\frac{\Omega_{Rabi}^2/2}{\Omega_{Rabi}^2/2 + (\Delta_L - \mathbf{v_i k_L})^2 + \Gamma^2/4} \tag{1.56}$$

avec Ω_{Rabi} la fréquence de Rabi de l'interaction dipolaire, $\Delta_L = \omega_L - \omega_0$ le désaccord laser et $\Gamma = 1/\tau$ la largeur naturelle de la transition. La fréquence de Rabi dépend de la puissance, du rayon du faisceau laser et du dipole de transition, son expression est donnée par :

$$\Omega_{Rabi}^2 = \frac{3\lambda_L^3\Gamma}{4\pi^2\hbar c}\left(\frac{P_L}{\pi w^2}\right) \tag{1.57}$$

où w est le rayon du waist du faisceau laser, c la célérité de la lumière et P_L la puissance du laser. La figure 1.13 présente la probabilité d'absorption des photons, obtenue pour une température donnée. Le refroidissement se fait à $\Delta_L < 0$. La figure 1.13 montre que pour une fréquence laser donnée, les atomes se déplaçant dans le même sens que celui du laser ont une probabilité d'absorption plus faible que ceux dans le sens opposé. Globalement, les atomes ont une probabilité d'absorption du faisceau contra-propageant plus élevée. Le processus d'absorption de photons peut être optimisé en appliquant des faisceaux laser de refroidissement dans les deux sens opposés pour permettre aux atomes d'absorber plus de photons dans les sens de leur mouvement.

Influence de l'élargissement Doppler

Un spectre d'excitation de l'atome est décrit par la fonction lorentzienne (1.56). Il subit l'élargissement dû à l'effet Doppler. Si la fréquence de Rabi n'est pas très élevée, le refroidissement laser permet de réduire cette largeur jusqu'à la largeur naturelle de la transition. La température limite obtenue par le refroidissement laser est donc fixée par la largeur naturelle et elle est obtenue pour un désaccord laser $\Delta_L = \Gamma/2$. Cette température est donnée par [21] :

$$T_{min} = \frac{\hbar\Gamma}{2\ k_B} \tag{1.58}$$

où k_B est la constante de Boltzmann. Pour l'ion calcium, où la largeur naturelle vaut $\Gamma = 23$MHz [83], cette température limite est de $0,55$mK et correspond à une vitesse minimale de 33cm/s.

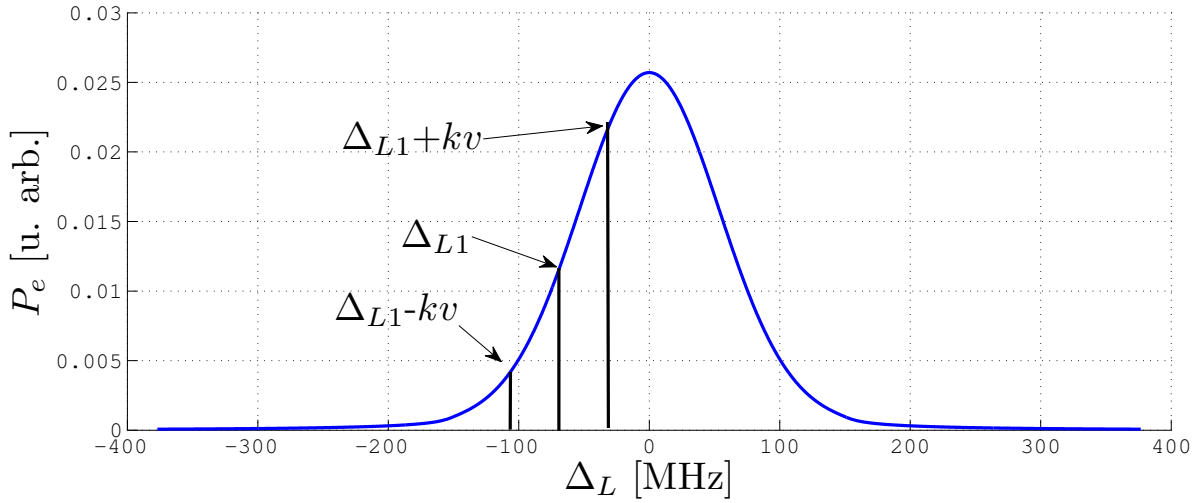

FIGURE 1.13 – Probabilité d'absorption P_e en fonction du désaccord laser. Les ions dans le sens de propagation du faisceau laser ont un désaccord $\Delta_{L1} - kv$ et ceux dans le sens opposé ont un désaccord de $\Delta_{L1} + kv$.

Dans le cas d'une grande fréquence de Rabi, un élargissement supplémentaire est observé : c'est l'élargissement par saturation.

Influence de l'élargissement par saturation sur le refroidissement

Dans l'expression de la fréquence de Rabi (1.57), on remarque que pour une transition donnée, seule la puissance et le waist sont variables. Dans un faisceau laser donné, le carré de la fréquence de Rabi est proportionnelle à l'intensité lumineuse. Pour caractériser la transition, un paramètre de saturation s est introduit. Ce paramètre est donné par la relation (1.59).

$$s = \frac{\Omega_{Rabi}^2/2}{\Delta^2 + \Gamma^2/4} \tag{1.59}$$

Le régime de faible saturation correspond à $s \ll 1$ (s'exprime aussi par $\Omega_{Rabi} \ll \Gamma\sqrt{2}$ à la résonance). Dans ce régime l'atome est éclairé par une faible puissance, ce qui correspond à une faible probabilité de trouver des atomes dans le niveau excité et la largeur de la raie est la largeur naturelle. On parle de saturation de la transition lorsque $s \gg 1$: c'est le régime de forte puissance. Dans ce cas, à résonance ($\Delta = 0$), $\Omega_{Rabi} \gg \Gamma/\sqrt{2}$ et on peut exciter jusqu'à la moitié de la population atomique dans l'état excité. La raie s'élargit par saturation et la largeur devient $\Gamma_{eff} = \sqrt{\Gamma^2 + \Omega_{Rabi}^2/2}$: on parle d'élargissement par saturation. Dans ce régime, il n'est pas possible d'atteindre la température minimale T_{min}. L'effet d'élargissement augmente la température minimale atteinte. A plus haute puissance laser, des effets plus complexes interviennent au point que l'effet du refroidissement sur les atomes peut se transformer en échauffement : c'est un désaccord positif qui assure alors le refroidissement [84].

Le schéma d'énergie de certains atomes offre la possibilité d'utiliser uniquement deux de ses niveaux d'énergie pour le refroidissement. Cependant, dans le cas des ions alcalino-terreux comme le Ca^+, Sr^+, Ba^+, le système à deux niveaux ne suffit plus à cause des relaxations dans des niveaux métastables.

1.4.2 Refroidissement laser dans un système à trois niveaux

Les ions alcalino-terreux ont des niveaux D dont les durées de vie sont de l'ordre de la seconde et sont donc métastables (voir annexe A pour des détails sur le schéma des niveaux d'énergie). Ces niveaux d'énergie D sont plus bas que les niveaux excités P. Les ions excités dans P peuvent donc relaxer dans ces états D. La figure (1.14) présente les niveaux d'énergie impliqués dans le refroidissement laser de l'ion $^{40}Ca^+$. Un laser bleu de

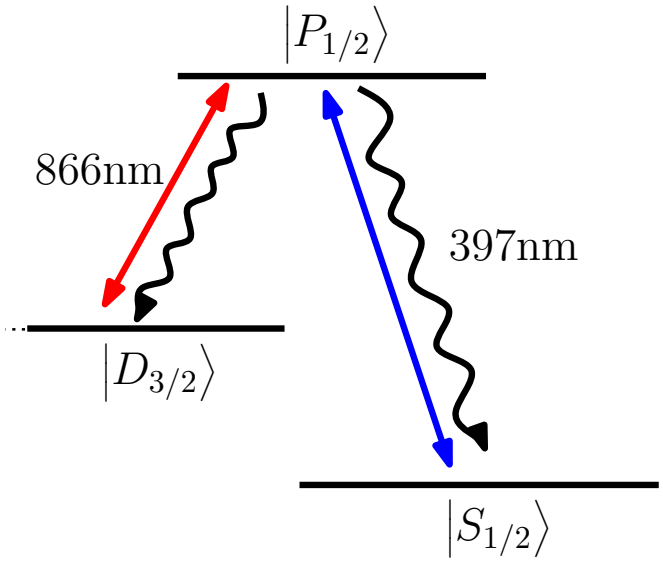

FIGURE 1.14 – Schéma des transitions impliquées dans le refroidissement laser : la transition rouge est celle qui couple $D_{3/2}$ au niveau $P_{1/2}$ et la transition bleue couple le niveaux $S_{1/2}$ au niveau $P_{1/2}$. Les ondulations présentent les branchements de l'émission spontanée.

longueur d'onde $\lambda_B = 397$nm couple le niveau $S_{1/2}$ au niveau $P_{1/2}$ et forme la transition de refroidissement. Un laser infrarouge de longueur d'onde $\lambda_R = 866$nm couple le $D_{3/2}$ au niveau $P_{1/2}$. Cette transition permet de repomper la population atomique qui relaxe dans le niveaux $D_{3/2}$. Les deux transitions impliquées dans le refroidissement forment alors un schéma en Λ et sont des transitions dipolaires électriques.

Le principe du refroidissement laser décrit dans la section précédente reste toujours valable même dans un système à trois niveaux. Cependant, dans les systèmes à trois niveaux en Λ, le profil de la raie (voir figure 1.13) est modifié et l'effet le plus drastique est la résonance noire. En effet, dans les systèmes en Λ, lorsque les deux lasers sont en résonance Raman avec le niveaux excité, il existe une chute brutale de la population de l'état excité vers zéro. Ce phénomène est appelé "résonance noire" et est dû à un piégeage cohérent de population (CPT) (*Coherent Population Trapping*) [85]. Il résulte d'une interférence destructive entre les excitations par les deux lasers quand le désaccord du laser bleu Δ_B est identique au désaccord du laser rouge Δ_R. Il fut découvert par Alzetta et ses collaborateurs

[85] dans les années 1970 sur les niveaux hyperfins de l'atome de sodium. Nous faisons une simulation numérique pour étudier l'impact de ce phénomène sur le profil de la raie de la transition de refroidissement. Cette simulation numérique consiste en la résolution de l'équation de Liouville (1.60) de la matrice densité.

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} = -\frac{i}{\hbar}\left[H, \rho\right] + \chi\left(\rho\right) \tag{1.60}$$

où ρ est la matrice densité des états atomiques, H l'hamiltonien du système couplé atome-laser et $\chi\left(\rho\right)$ contient les termes de relaxation. L'explication du concept de piégeage cohérent de population est naturelle dans la base des états habillés par des photons [86, 87]. Nous définissons cette base par des multiplicités séparées en énergie (par l'énergie d'un photon) et au sein desquelles les niveaux sont séparés par les désaccords des lasers. Au sein d'une multiplicité, les états propres du système non couplé {atome, photons bleus, photons rouges} seront notés :

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

où N_B est le nombre de photons bleus (397 nm) et N_R est le nombre de photons rouge (866 nm). Dans la base des états habillés $\{|P\rangle\,;|S\rangle\,;|D\rangle\}$ (figure 1.15), l'hamiltonien du

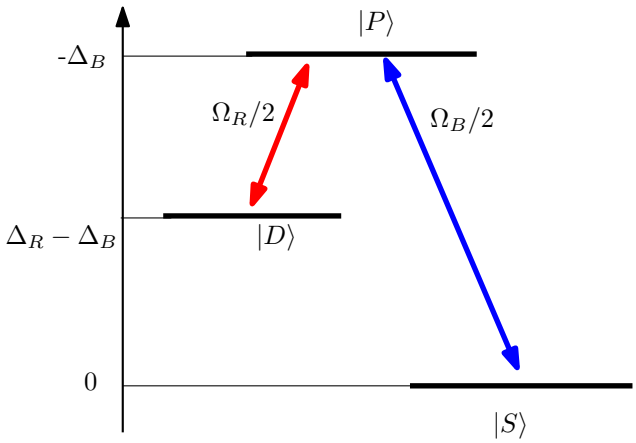

FIGURE 1.15 – Système en Λ formé par les états habillés $\{|P\rangle\,;|S\rangle\,;|D\rangle\}$ et les couplages laser sur les transitions dipolaires bleue ($\left|S_{1/2}\right\rangle \longleftrightarrow \left|P_{1/2}\right\rangle$ à 397 nm) et rouge ($\left|D_{3/2}\right\rangle \longleftrightarrow \left|P_{1/2}\right\rangle$ à 866nm).

système s'écrit[88] :

$$H = \hbar \begin{pmatrix} -\Delta_B & \frac{\Omega_B}{2} & \frac{\Omega_R}{2} \\ \frac{\Omega_B}{2} & 0 & 0 \\ \frac{\Omega_R}{2} & 0 & \Delta_R - \Delta_B \end{pmatrix} \tag{1.61}$$

où Δ_i représente le désaccord du laser "i" (i=R,B), Ω_i est la fréquence de Rabi du laser "i". La matrice des termes de relaxation s'écrit :

$$\chi(\rho) = \begin{pmatrix} -\Gamma\rho_{PP} & -\frac{\Gamma}{2}\rho_{PS} & -\frac{\Gamma}{2}\rho_{PD} \\ -\frac{\Gamma}{2}\rho_{SP} & \beta_{PS}\Gamma\rho_{PP} & 0 \\ -\frac{\Gamma}{2}\rho_{DP} & 0 & \beta_{PD}\Gamma\rho_{PP} \end{pmatrix} \tag{1.62}$$

où ρ_{IJ} représente l'élément de matrice densité de transition de l'état I à l'état J, β_{PS} etβ_{PD} sont des rapports de branchement de $|P\rangle$ vers les niveaux $|S\rangle$ et $|D\rangle$, valent $\beta_{PS} = 0,93565(7)$ et $\beta_{PD} = 0,06435(7)$ [89].

Sur la figure 1.16, la population de l'état excité $|P\rangle$ est représentée en fonction du désaccord du laser bleu pour les paramètres suivants : $\Omega_R = \Omega_B = 10$MHz. Ces fréquences de Rabi sont plus petites que la largeur naturelle de la transition Γ=23MHz. Donc la transition ne subit pas d'élargissement par saturation. La courbe rouge correspond à $\Delta_R = 20$MHz et la courbe bleue à $\Delta_R = -20$MHz. À résonance ($\Delta_B = \Delta_R$), la population

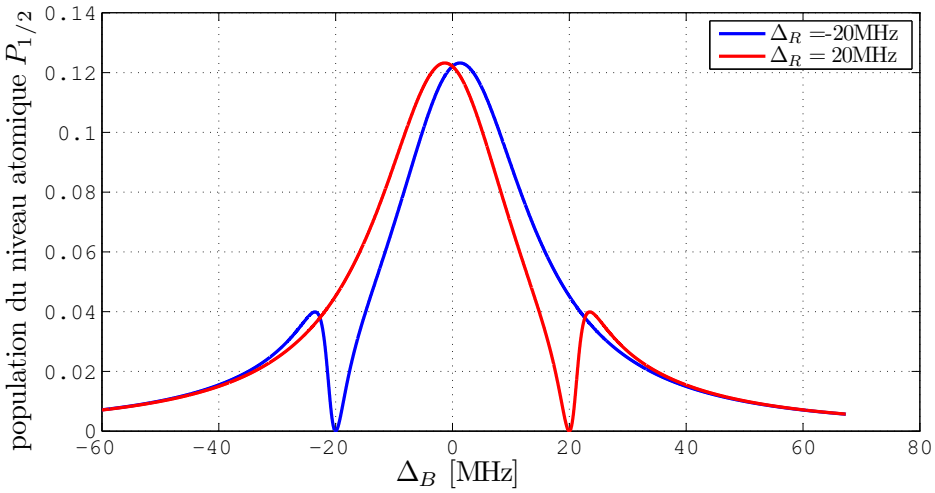

FIGURE 1.16 – Résonance noire dans un système à trois niveaux pour $\Omega_R = \Omega_B = 10$MHz. La courbe rouge correspond à $\Delta_R = 20$MHz et la courbe bleue à $\Delta_R = -20$MHz

du niveaux $P_{1/2}$ se vide pour peupler de façon cohérente les niveaux $S_{1/2}$ et $D_{3/2}$. Ce phénomène est très intéressant pour des horloges à CPT [90] et pour le transfert cohérent de population entre les niveaux stables ou métastables par STIRAP(Stimulated Raman Adiabatic Passage)[91, 92].

Cependant, le phénomène de résonance noire peut être néfaste pour d'autres applications comme l'analyse du taux de chauffage des ions dans le piège [93]. En effet, lorsque les désaccords des deux lasers sont proches, le profil de fluorescence n'est plus une lorentzienne mais présente deux pics. De plus, la population pouvant être dans $P_{1/2}$ ne dépasse pas 30% quels que soient les paramètres choisis.

Pour s'affranchir de la résonance noire lors des processus d'interactions atome laser, un schéma à 5 niveaux (figure 1.17) d'énergie peut être introduit. Cela permet d'améliorer la probabilité d'absorption du photon à 397nm.

1.4.3 Refroidissement laser sans résonance noire impliquant 5 niveaux

Nous avons vu, dans la partie précédente, que la résonance noire peut limiter la probabilité de présence dans le niveau $P_{1/2}$ et modifie la forme du spectre. Dans cette partie, nous cherchons a rendre le profil sous une forme lorentzienne en nous affranchissant de la résonance noire. Cela pourrait être important pour la mesure des taux de chauffage dans le piège grâce à un ajustement des spectres par des courbes théoriques. Pour cela, un schéma à cinq niveaux a été proposé (figure 1.17) [93]. Le système est pompé de $D_{3/2}$ dans l'état $P_{3/2}$ à l'aide d'un laser à 850nm. La relaxation de $P_{3/2}$ peut peupler le niveau $D_{5/2}$ et nécessite un troisième laser à 854nm pour repomper vers le niveau $P_{3/2}$ (voir annexe A pour des détails sur le schéma des niveaux d'énergie). L'état $P_{3/2}$ a une durée de vie de 6,87$\pm 0,06$ns [83] et relaxe dans les niveaux $D_{3/2}$, $D_{5/2}$ et $S_{1/2}$. Le schéma à cinq niveaux atomiques couplés aux trois lasers (397nm, 850nm et 854nm) est présenté sur la figure 1.17-(a). Dans la base des états habillés, les états propres du système non couplé {atome+N_B photons bleus+N_1 photons 1 (laser à 850nm) et N_2 photons 2 (laser à 854nm)} seront notés :

$$\begin{aligned}
|S\rangle &= |S_{1/2}, N_B, N_1, N_2\rangle \\
|P\rangle &= |P_{1/2}, N_B - 1, N_1, N_2\rangle \\
|D\rangle &= |D_{3/2}, N_B - 1, N_1, N_2\rangle \\
|T\rangle &= |P_{3/2}, N_B - 1, N_1 - 1, N_2\rangle \\
|Q\rangle &= |D_{5/2}, N_B - 1, N_1 - 1, N_2 - 1\rangle
\end{aligned}$$

Ce système est résumé sur la figure 1.17-(b) où le zéro de l'énergie propre est choisi pour $|S\rangle$. Dans la base des états habillés $\{|S\rangle, |P\rangle, |D\rangle, |T\rangle, |Q\rangle\}$, l'hamiltonien s'écrit :

$$H = \begin{pmatrix} 0 & \Omega_B/2 & 0 & 0 & 0 \\ \Omega_B/2 & -\Delta_B & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -\Delta_B & \Omega_1/2 & 0 \\ 0 & 0 & \Omega_1/2 & -\Delta_B - \Delta_1 & \Omega_2/2 \\ 0 & 0 & 0 & \Omega_2/2 & -\Delta_B - \Delta_1 + \Delta_2 \end{pmatrix} \tag{1.63}$$

L'opérateur de relaxation s'écrit :

$$\chi(\rho) = \begin{pmatrix} \beta_{PS}\Gamma_P\rho_{PP} + \beta_{Ts}\Gamma_T\rho_{TT} & -\frac{\Gamma_P}{2}\rho_{SP} & 0 & -\frac{\Gamma_T}{2}\rho_{ST} & 0 \\ -\frac{\Gamma_P}{2}\rho_{PS} & -\Gamma_P\rho_{PP} & -\frac{\Gamma_P}{2}\rho_{PD} & 0 & 0 \\ 0 & -\frac{\Gamma_P}{2}\rho_{DP} & \beta_{PD}\Gamma_P\rho_{PP} + \beta_{TD}\Gamma_T\rho_{TT} & -\frac{\Gamma_T}{2}\rho_{DT} & 0 \\ -\frac{\Gamma_T}{2}\rho_{TS} & 0 & -\frac{\Gamma_T}{2}\rho_{TD} & -\Gamma_T\rho_{TT} & -\frac{\Gamma_T}{2}\rho_{TQ} \\ 0 & 0 & 0 & -\frac{\Gamma_T}{2}\rho_{QT} & \beta_{TQ}\Gamma_T\rho_{TT} \end{pmatrix}$$

où $\Gamma_{P,T}$ est le taux d'emission spontanée depuis l'état $|P\rangle$ et $|T\rangle$ ($\Gamma_P \approx \Gamma_T \approx 23$MHz). $\beta_{TS} = 0,930$, $\beta_{TD} = 0,063$ et $\beta_{TQ} = 0,007$ sont les rapports de branchement vers les états $|S\rangle$, $|D\rangle$ et $|Q\rangle$ [94, 95]. Dans la partie suivante, nous analysons les résultats pour différents paramètres des lasers à savoir les désaccords et les fréquences de Rabi.

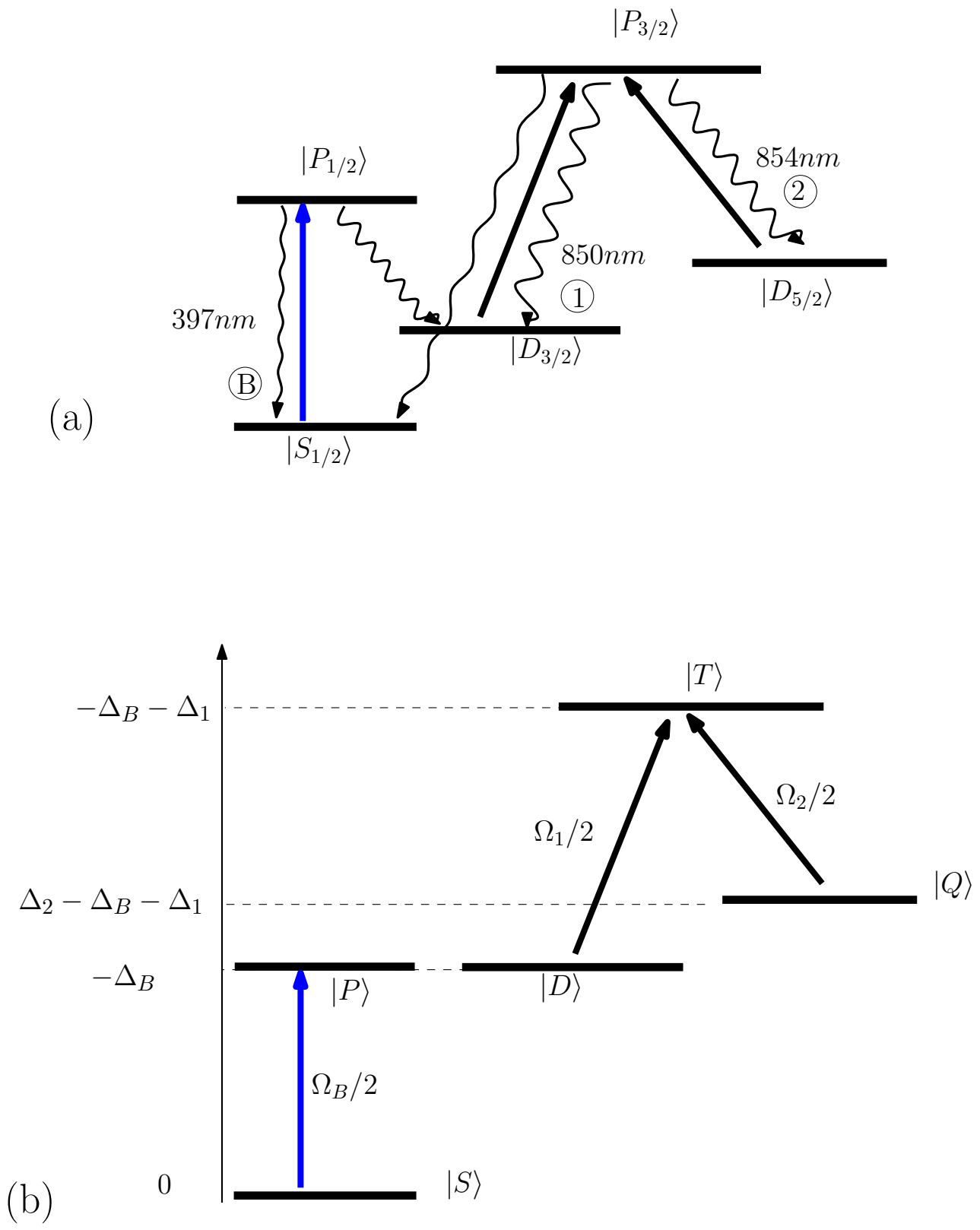

FIGURE 1.17 – Schéma des niveaux d'énergie impliqués dans le système à 5 niveaux dans la base propre de l'atome non couplé en incluant les branches de relaxation (a) et dans la base propre des états habillés (b). La transition bleue à 397nm est la transition de refroidissement.

Résultat d'analyse

Les trois états $|D\rangle$, $|Q\rangle$ et $|T\rangle$ forment un système en Λ et peuvent entrer en résonance noire lorsque $\Delta_1 = \Delta_2$. Pour s'affranchir de cette résonance noire, il faut que les deux désaccords soient suffisamment éloignés l'un de l'autre. Sur la figure 1.18 sont représentées les populations des différents états propres atomiques en fonction du désaccord Δ_1 de la transition $|D\rangle \longrightarrow |T\rangle$. Ces courbes sont représentées avec les paramètres suivants : Ω_B=100MHz, Ω_1=50MHz, Ω_2=50MHz Δ_2=100MHz et la transition $|S\rangle \longrightarrow |P\rangle$ en résonance (Δ_B=0MHz). Une résonance noire est observée lorsque lorsque $\Delta_1 = \Delta_2$ =100MHz ;

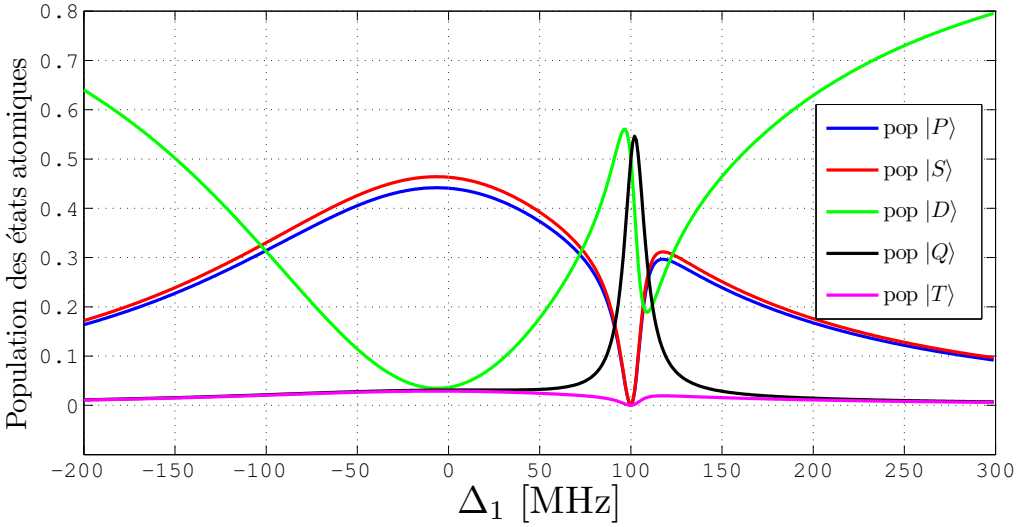

FIGURE 1.18 – Evolution des populations des différents états pour : Ω_B=100MHz, Ω_1=50MHz, Ω_2=50MHz Δ_2=100MHz et Δ_B=0MHz

les états $|S\rangle$, $|P\rangle$ et $|T\rangle$ se vident alors pour peupler les deux états $|D\rangle$, $|Q\rangle$. La population dans $|P\rangle$ est maximale lorsque Δ_1=0MHz (résonance de la transition $|D\rangle \longrightarrow |T\rangle$). Lorsque les transitions 1 et 2 sont saturées, la transition $|S\rangle \longrightarrow |P\rangle$ se comporte comme un sous-système à deux niveaux isolé du fait de la force du repompage qui est plus grande que l'émission spontanée depuis $|T\rangle$ dans les états $|D\rangle$ et $|Q\rangle$. De plus, l'état $|P\rangle$ n'est couplé à aucun autre état.

Sur la figure 1.19, l'évolution de la population de l'état $|P\rangle$ est représentée en fonction du désaccord Δ_B du laser bleu. Nous distinguons deux cas : transition bleue saturée Ω_B=100MHz $\gg \Omega_B^{sat}$ (a) et transition non saturée Ω_B=5MHz$< \Omega_B^{sat}$ (b) où $\Omega_B^{sat} = \Gamma_P/\sqrt{2} = 16,3$MHz. La courbe bleue représente le système à cinq niveaux et la courbe rouge l'évolution de la population de l'état $|P\rangle$ pour un système à deux niveaux constitué uniquement de la transition $|S\rangle \longrightarrow |P\rangle$ (avec les mêmes paramètres Ω_B et Δ_B) selon l'équation (1.56). Ces courbes ont été représentées avec les paramètres suivants : Ω_1=50MHz, Ω_2=50MHz, Δ_2=100MHz et $\Delta_1 = \Delta_B$=0MHz. Les courbes à deux et à cinq niveaux sont superposées lorsque la transition bleue n'est pas saturée. Lorsque la transition bleue est saturée, la population maximale dans $|P\rangle$ est de 44% pour le système à cinq niveaux et 49% pour le système à deux niveaux. En multipliant la population de $|P\rangle$ dans le système à cinq niveaux par 49/44, les deux courbe deviennent superposées sur tout le spectre. On conclut à une fraction constante de la population dans les états $|D\rangle$ et $|Q\rangle$.

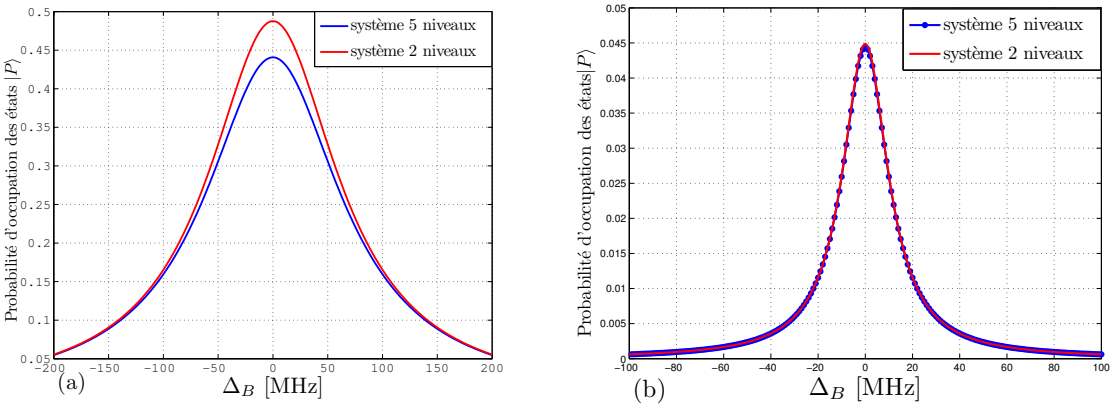

FIGURE 1.19 – Comparaison des populations des états $|P\rangle$ entre le système à cinq niveaux (courbe bleue) et à deux niveaux (courbe rouge) : Ω_1=50MHz, Ω_2=50MHz Δ_2=100MHz et Δ_1=0MHz. (a) : transition saturée Ω_B=100MHz, (b) : transition bleue non saturée Ω_B=5MHz,

Pour de faibles puissances de laser bleu ($\Omega_B \ll \Omega_B^{sat}$), l'évolution de la population dans l'état $|P\rangle$ du système à cinq niveaux peut être décrite par l'équation classique (1.56) d'un système à deux niveaux. Lorsque la puissance du laser bleu devient grande ($\Omega_B \gg \Omega_B^{sat}$), l'équation (1.56) décrit toujours l'évolution de la probabilité d'occupation de l'état $|P\rangle$ mais il faut appliquer un coefficient qui représente la proportion des ions dans les autres états atomiques. Dans la suite les fréquences de Rabi de différentes transitions sont optimisées dans le but d'augmenter la population de l'état $|P\rangle$.

Influence des fréquences de Rabi des deux lasers Ω_1 et Ω_2

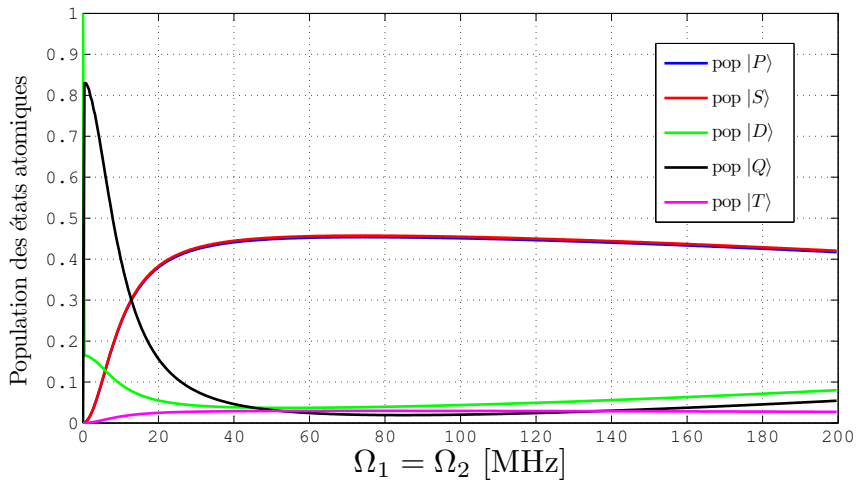

FIGURE 1.20 – Évolution de la population des états dans le système à cinq niveaux pour Δ_2=100MHz et $\Delta_B = \Delta_1$=0MHz en fonction de $\Omega_1 = \Omega_2$ avec Ω_B=250MHz. Les courbes bleue et rouge sont superposées.

Dans cette partie, nous considérons le cas de la fréquence de Rabi Ω_B=250MHz (transition saturée). L'évolution des populations en fonction de $\Omega_1 = \Omega_2$ est représentée sur la figure 1.20. On remarque que les populations de $|P\rangle$ et $|S\rangle$ sont superposées comme dans un système à deux niveaux. La population de l'état $|P\rangle$ dépend fortement des Ω_1 et Ω_2 pour $\Omega_1 = \Omega_2 \leq \Gamma_T$ et dépend faiblement au delà. La plus grande probabilité de présence qu'on puisse avoir dans l'état $|P\rangle$ est de 45,50% lorsque Ω_1 et Ω_2 sont comprises entre 50 et 100MHz.

Influence de la fréquence de Rabi Ω_B du laser bleu

Dans cette partie, nous nous plaçons en résonance des deux transitions $|D\rangle \longrightarrow |T\rangle$ et $|S\rangle \longrightarrow |P\rangle$ ($\Delta_B = \Delta_1$=0MHz). La fréquence de Rabi Ω_B est modifiée dans le but de peupler le plus possible l'état $|P\rangle$. Sur la figure 1.21, l'évolution de la population en fonction de Ω_B est représentée.

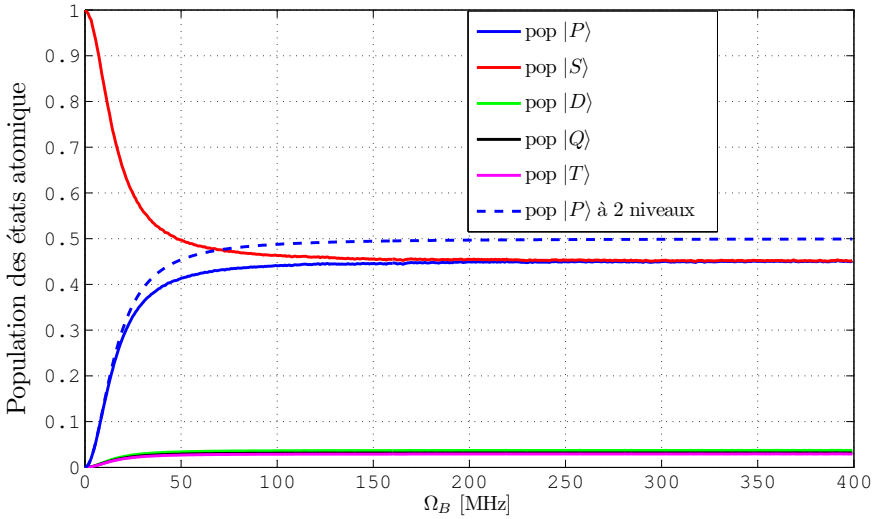

FIGURE 1.21 – Évolution de la population des états pour Δ_2=100MHz et $\Delta_B = \Delta_1$=0MHz en fonction de Ω_B avec $\Omega_1 = \Omega_2$=50MHz. La courbe en tirets bleu représente la population de l'état $|P\rangle$ dans un système à deux niveaux $\{|S\rangle, |P\rangle\}$.

La population de l'état $|P\rangle$ dans le système à cinq niveaux croit avec la fréquence de Rabi Ω_B. Elle atteint sa valeur maximale autour de $\Omega_B = 6\Gamma$ et devient constante comme dans le système à deux niveaux. Cependant, la valeur maximale atteinte par la population de l'état $|P\rangle$ dans le système à cinq niveaux est 45,7% (inférieur au 50% observée dans un système à deux niveaux) et est identique à l'état $|S\rangle$. Le reste des 8,6% est reparti entre les trois autres états atomiques. Ceci confirme l'analyse faite sur la figure 1.19.

Conclusion

Dans ce chapitre, le piégeage des ions en piège multipolaire (2k-pôles) à été présenté. Les pièges multipolaires permettent de confiner un nuage d'ions de taille comparable à ceux piégés dans un piège quadrupolaire en réduisant l'influence du chauffage radio-fréquence. A

des températures très basses, les ions piégés s'auto-organisent dans des structures complexes qui sont des cristaux de Coulomb. La morphologie de ces structures dépend fortement de la géométrie du potentiel. Dans un nuage en piège quadrupolaire, les ions froids s'organisent dans une structure ellipsoïdale et en piège multipolaire d'ordre $2k > 4$, les ions s'organisent dans une structure creuse. Des températures de plus en plus basses pour les ions sont obtenues grâce aux techniques de refroidissement laser. Le principe de base du refroidissement laser a été présenté pour un système à deux niveaux, puis à trois niveaux en Λ dans le cas des ions alcalino-terreux. Dans ces systèmes en Λ, lorsque les deux transitions sont en résonance Raman avec le niveau excité, un phénomène de résonance noire est observé et a pour signature dans le spectre, une chute brutale de la population de l'état excité. Ce phénomène physique est avantageux pour certaines expériences comme le transfert de population par STIRAP entre deux états stables ou métastables. Pour d'autres cas comme celui de la mesure du taux de chauffage dans les pièges [93], la résonance noire peut être néfaste. Une technique permettant de refroidir les ions en s'affranchissant de ce phénomène de piégeage cohérent de population a été présentée. Cette méthode fait intervenir cinq niveaux d'énergie en interaction avec trois lasers et d'observer des spectres Doppler de type lorentzien. Dans ce système, la transition $|S\rangle \longrightarrow |P\rangle$ se comporte comme un système à deux niveaux isolés. Pour une transition bleue non saturée et des transitions 1 et 2 saturées, on peut alors décrire l'évolution des populations de $|P\rangle$ et $|S\rangle)$ par une lorentzienne (1.56) comme dans un système à deux niveaux. Dans le cas d'une transition bleue saturée, l'équation (1.56) doit être modifiée en incluant les effets des probabilités d'occupation des autres états.

Cette étude permet de refroidir le mouvement des atomes en s'affranchissant de la résonance noire et d'augmenter la population de l'état excité jusqu'à 45,7% et ainsi améliorer le rapport signal sur bruit lors de la collecte de la fluorescence.

Chapitre 2

Dispositif expérimental

L'utilisation des pièges linéaires pour la métrologie des fréquences se justifie par leur structure ouverte pour permettre l'injection des ions et leur interrogation par des lasers. Le choix de l'ordre des pôles du piège résulte d'un compromis entre la profondeur du puits de potentiel et le micro-mouvement. En effet, plus l'ordre des pôles est élevé, plus la profondeur du puits est faible et plus l'amplitude du micro-mouvement sur l'étendue du nuage diminue (chapitre 1). Le choix idéal consiste à séparer la zone de création des ions de leur zone d'interrogation. En effet, la zone de création doit avoir un puits de potentiel plus profond pour optimiser le nombre d'ions créés et la zone d'interrogation doit avoir un très faible chauffage radio-fréquence pour une meilleure précision des mesures. Parmi les pièges linéaires, le piège quadrupolaire [11] a la plus grande profondeur du puits à paramètres identiques et semble être le candidat idéal pour la création. La zone d'interrogation implique l'utilisation de multipole d'ordre supérieur ($2k > 4$). Cette solution a été mise au point par le Jet Propulsion Laboratory (JPL) à Pasadena aux USA. Pour la seconde partie du piège, un octupole ($2k = 8$), un dodécapole ($2k = 12$) [13] puis un hexadecapole ($2k = 16$) [38] sont utilisés et destinés à l'interrogation des ions Hg^+. Dans ces expériences, les ions sont créés dans la partie quadrupolaire par bombardement électronique puis refroidis par gaz tampon avant leur transport dans le multipole pour l'excitation micro-onde. Dans notre groupe, un double piège à été construit pour piéger des ions calcium. La première partie du piège est quadrupolaire et destinée à la création des ions. Pour la deuxième partie du piège, le choix de l'ordre du multipole s'est porté sur le piège octupolaire ($2k = 8$) pour avoir une plus grande ouverture pour la détection de fluorescence perpendiculairement à l'axe du piège et une profondeur de potentiel plus grande par rapport aux ordres supérieurs. De plus, les potentiels DC du piège quadrupolaire sont moins écrantés par les barreaux RF par rapport aux multipoles d'ordres supérieurs. Les deux pièges sont montés sur un axe commun et alignés au mieux pour permettre le transport des ions entre les deux pièges. Les ions sont créés par photo-ionisation puis refroidis par la technique de refroidissement laser Doppler avant d'être transportés entre les différentes parties du piège. Dans ce chapitre, le dispositif de piégeage, est présenté ainsi que la technique de création des ions.

2.1 Montage

Au début de mon travail de thèse, le piège était déjà conçu et monté. Dans ce chapitre, Je ne présente pas les détails techniques de construction mais j'exposerai les arguments qui

ont guidé les membres de l'équipe dans leurs choix techniques. Le détail se trouve dans les références [96, 39].

2.1.1 Configuration du piège

La géométrie constitue un point essentiel dans la conception du piège. Notre piège linéaire est constitué d'une partie quadrupolaire et d'une partie octupolaire montées en ligne (voir photo de la figure 2.1). Ce piège a été conçu dans le but de confiner jusqu'à 10^7 ions refroidis dans chaque zone de confinement.

Les barreaux du piège sont fabriqués en inox, avec une précision au 1/10 mm. Ces barreaux s'insèrent dans des pièces en céramique afin d'avoir une isolation électrique (partie blanche sur la figure 2.1). Le piège dispose des électrodes DC d'épaisseur de 2mm disposées perpendiculairement aux barreaux du piège et qui permettent la séparation et la fermeture des différentes zones de piégeage. La géométrie particulière de ces électrodes résulte d'un compromis entre la réduction des contributions non harmoniques dans le potentiel et l'écrantage induit par les barreaux du piège [97]. Chaque électrode DC a sa propre connexion électrique. Toutes les connexions sont mises en place avec du fil de cuivre nu pour éviter le dégazage.

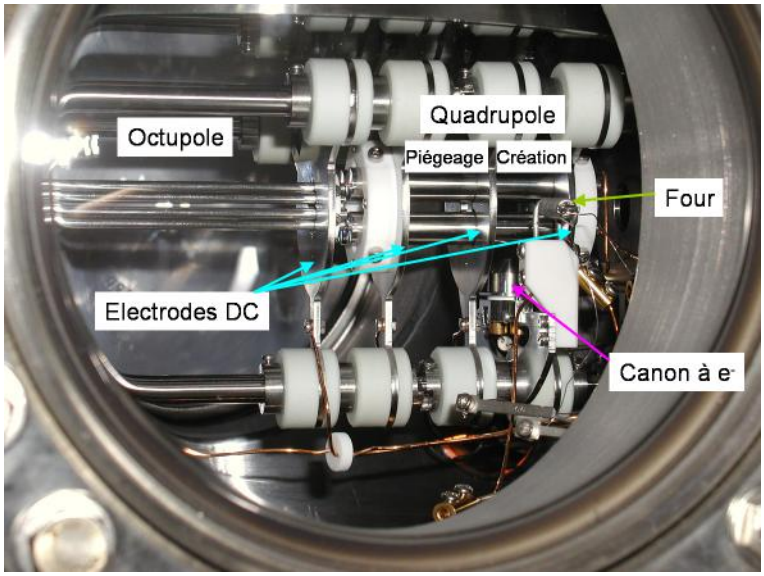

FIGURE 2.1 – Photo du piège complet. Les pièces blanches (en céramique) sont utilisées pour l'isolation électrique.

Du coté de la partie quadrupolaire, (voir figure 2.1), le piège dispose d'un four contenant du calcium neutre et un canon à électrons. Le four est constitué d'un récipient chauffé avec un orifice permettant la sortie des atomes sous forme de jet effusif. La section de sortie a un profil de tube pour collimater le jet atomique et ainsi limiter les dépôts d'atomes sur les barreaux du piège. Trois tiges traversent l'enceinte et supportent le piège double aussi bien que le four et le canon à électron.

Une représentation simplifiée du piège est montrée sur la figure 2.2-(a). Les lasers de refroidissement et de création d'ions sont orientés suivant l'axe z du piège comme l'indique la figure 2.3.

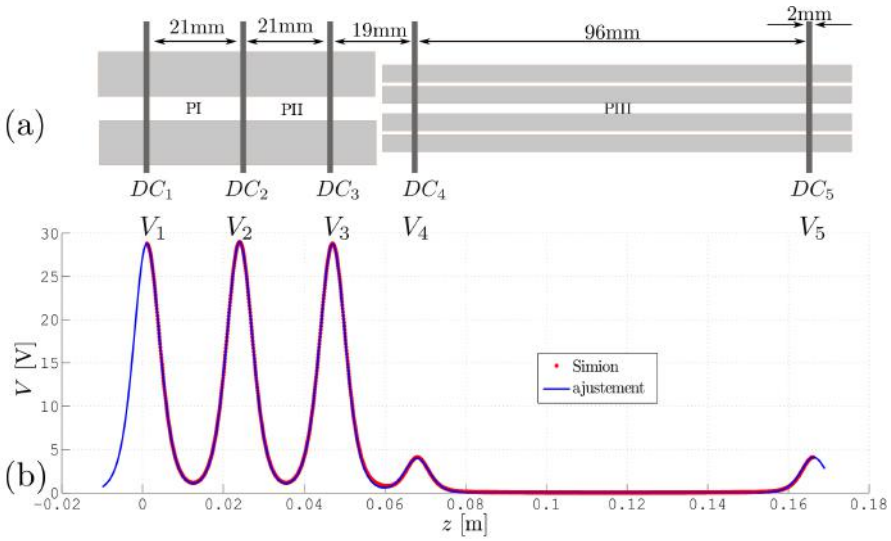

FIGURE 2.2 – (a) : Représentation schématique du piège complet ; chaque électrode DC_i à une épaisseur de 2mm et la zone située entre les électrodes DC_3 et DC_4 fait 19mm. (b) : potentiel le long de l'axe du piège. Les points rouges représentent le potentiel calculé par le logiciel Simion et la courbe bleue, l'ajustement par l'équation (2.1).

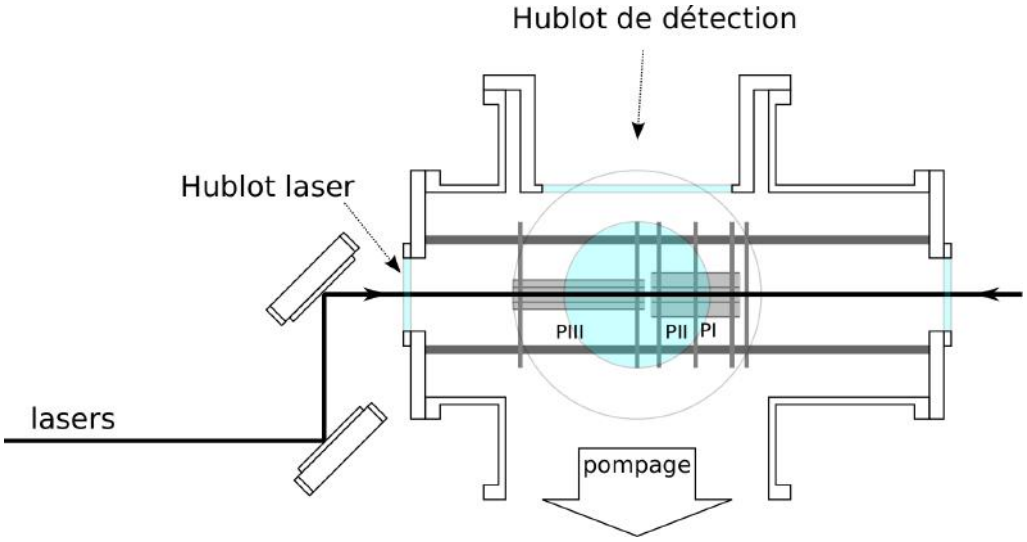

FIGURE 2.3 – Dessin de l'enceinte à vide où on distingue les hublots de passage des lasers et le hublot de détection. Deux hublots perpendiculaires au plan du dessin permettent d'observer l'intérieur du piège.

Partie quadrupolaire

La partie quadrupolaire est formée de quatre barreaux parallèles d'une longueur de 58mm, à symétrie radiale et reliés entre eux électriquement par paires opposées à l'intérieur de l'enceinte. Le rayon de la section des barreaux est choisi pour obéir à la relation $r_e = 1,1451 r_0$ [98] où r_0 est le rayon interne du piège. Cette condition permet de générer le moins d'anharmonicité possible dans le potentiel. Le choix du rayon interne du piège résulte d'un compromis entre l'étendue radiale du nuage et la densité élevée des ions à basse

température. En effet, plus le rayon du piège est grand plus la fréquence d'oscillation est faible et donc plus faible est la densité aussi. Si le rayon est faible, cela limite fortement le nombre d'ions pouvant être piégés, le but étant d'en piéger jusqu'à 10^7. Ce rayon est de 3,93mm, ce qui implique un rayon des barreaux de 4,5mm.

La partie quadrupolaire est séparée par une électrode DC en deux zones : une zone de création PI et une zone de piégeage PII (voir figure 2.1). Cette configuration permet de garder une zone propre (PII). En effet, les ions sont créés par photo-ionisation à partir d'atomes neutres provenant du four. Pendant la création, des atomes se déposent sur les barreaux ce qui perturbe de façon asymétrique le potentiel à l'intérieur du piège. De plus, la configuration du piège quadrupolaire en double zone permet d'étudier le transport des ions dans le même potentiel radio-fréquence. Pour atteindre les performances en nombre d'ions recherchées, chaque zone du piège quadrupolaire a une longueur de $2z_0 = 21$mm.

Partie octupolaire

Le piège octupolaire PIII est formé de huit barreaux cylindriques de 112mm de longueur. Le rayon de la section des barreaux obéit à [99] $r_e = r_0/(k-1)$ où $2k = 8$, soit $r_e = 1,31$mm. Les barreaux sont disposés de façon à ce que le piège octupolaire ait le même rayon interne que le piège quadrupolaire. Un alignement au mieux des deux pièges permet de transporter efficacement le nuage d'ions entre les deux parties. La densité moyenne des ions dans le piège octupolaire est de l'ordre de quatre à cinq fois plus faible par rapport au piège quadrupolaire pour les mêmes paramètres de piégeage. Pour contenir le même nombre maximal d'ions dans le piège octupolaire, la longueur du piège octupolaire est choisie pour être cinq fois celle du piège quadrupolaire, soit environ $2z_0 = 96$mm.

Les dimensions intérieures du piège sont résumées dans le tableau 2.1. La zone située entre les électrodes DC_3 et DC_4 fait 19mm. L'ensemble du piège est monté dans une enceinte ultravide afin d'éviter les perturbations liées aux collisions des ions avec des particules dans l'air.

	quadrupole PI	quadrupole PII	octupole
r_0 (mm)	3,93	3,93	3,93
$2z_0$ (mm)	21	21	96

Table 2.1 – Dimensions intérieures des différentes zones du piège complet.

2.1.2 Enceinte à vide

Le piège est installé dans une enceinte à vide équipée d'une pompe ionique. Cette pompe assure un vide très poussé autour de $1,3.10^{-9}$mbar de pression sans introduire de vibrations mécaniques. Le pompage est permanent et permet de limiter les collisions des particules du gaz résiduel avec les ions piégés. L'enceinte à vide est équipée de plusieurs hublots. Deux hublots de 40mm le long de l'axe du piège permettent le passage des différentes sources lasers. On distingue deux hublots de 150mm de diamètre perpendiculaires à l'axe du piège. Ces hublots permettent d'observer l'intérieur du piège mais peuvent aussi servir de passage pour les faisceaux lasers d'interrogation des ions pour des expériences futures.

Au dessus de l'enceinte à vide, un hublot rentrant de diamètre 200mm permet d'approcher l'optique de détection au plus près des ions de 66,8mm pour collecter la fluorescence avec un angle solide important (figure 2.3). Sur différentes brides, de nombreux passages électriques permettent d'amener les tensions aux barreaux et aux électrodes DC pour le confinement ainsi que l'alimentation du four. L'ensemble est posé sur une table optique isolée mécaniquement des vibrations par des pieds pneumatiques.

2.1.3 Tensions de confinement

Sur le plan radial, le piégeage est assuré par application de tensions oscillantes sur les barreaux de sorte que la différence de potentiel entre deux barreaux voisins soit de $V_r = V_{RF}\cos(\Omega_{RF}t)$. Pour générer ce potentiel, le mode différentiel est utilisé pour s'assurer de la symétrie radiale des potentiels dans les pièges et pour que les axes du piège quadrupolaire et octupolaire soient alignés. Dans ce mode, un barreau est au potentiel $V_{r1} = V_{RF}\cos(\Omega_{RF}t)/2$ et le barreau voisin au potentiel $V_{r2} = -V_{RF}\cos(\Omega_{RF}t)/2$. Cette technique nécessite une opposition de phase parfaite entre V_{r1} et V_{r2} car le moindre déphasage pourrait décaler le fond du puits de potentiel de l'axe du piège. Un déplacement du fond de ce puits de potentiel peut créer une marche de potentiel entre les pièges quadrupolaire et octupolaire et donc compliquer le transport. Les amplitudes et fréquences RF sont choisies sur des critères d'adiabaticité des trajectoires des ions et de tailles du nuage. Deux générateurs radio-fréquence haute tension ont été fabriqués sur mesure par Stahl-electronics en Allemagne. Ces générateurs délivrent des tensions V_{r1} et V_{r2} avec une différence de phase nulle. Chaque générateur radio-fréquence délivre jusqu'à $2500V_{PP}$ d'amplitude. La partie quadrupolaire fonctionne avec une fréquence de $\Omega_{RF}/2\pi = 5,235$MHz et la partie octupolaire une fréquence de $\Omega_{RF}/2\pi = 3,325$MHz. Pour une tension de $1000V_{PP}$ appliquée sur les barreaux, la partie quadrupolaire a un paramètre de Mathieu $q_x = 0,143$, soit un pseudo-potentiel harmonique de fréquence $\omega_x = q_x\Omega_{RF}/(2\sqrt{2}) = 265$kHz et de profondeur de $\Psi_4(r_0)$=$9eV$. Pour la même amplitude radio-fréquence dans la partie octupolaire, la profondeur du pseudo-potentiel est de $\Psi_8(r_{max}) = 0,153$eV. La différence des profondeurs des puits de potentiel est considérable entre les deux parties du piège ce qui justifie le choix du piège quadrupolaire comme zone de création des ions.

Le confinement suivant l'axe du piège se fait par application de potentiels statiques sur les électrodes DC. Nous disposons de cinq générateurs de tensions [1] qui génèrent entre 0 et $2000 \pm 1V$ et permettent d'alimenter les cinq électrodes. Une solution de l'équation de Laplace par le logiciel Simion 8.0 [100] permet de dresser le profil des tensions générées par chaque électrode. Ce logiciel utilise la méthode des différences finis ("Finite Difference Methods") et le principe de superposition pour calculer la distribution du potentiel généré par chaque électrode lorsque une tension de 1V est appliquée à celle-ci. La forme caractéristique du puits de potentiel le long de l'axe du piège est représentée sur la figure 2.2-(b). Un ajustement de ce potentiel a été fait avec plusieurs fonctions. Les résultats ont montré qu'avec cette géométrie des électrodes, le potentiel ce long de l'axe généré par chaque électrode peut être très bien ajusté avec une fonction Lorentzienne à la puissance quatre donnée par l'équation (2.1) pour l'électrode i.

$$f(z) = a_i\left(1 + \frac{(z - z_i)^2}{w_i^2}\right)^{-4} \tag{2.1}$$

1. Trek model 2220

où $w_{1,2,3} = 8,9$mm et $w_{4,5} = 7,8$mm sont les largeurs effectives du potentiel créé par chaque électrode, a_i le potentiel maximal généré et z_i la position de l'électrode i. La profondeur du puits de potentiel effectif dans chaque zone du piège peut être estimée en faisant la différence entre le maximum et le minimum de la contribution totale. Cette différence de potentiel estimée est beaucoup plus petite que le potentiel appliqué sur les électrodes DC. Cela s'explique par le phénomène d'écrantage par les barreaux radio-fréquence et aussi par le chevauchement des potentiels au centre du piège. Une marche de potentiel entre deux zones de piégeage peut être un désavantage sur le transport des ions. Une grande distance entre les électrodes produit un faible chevauchement des potentiels. Pour 1000V appliqué à chaque électrode, les potentiels générés au centre des électrodes sont : $a_{1,3} = 28,8V$, $a_2 = 29V$, $a_4 = 4V$ et $a_5 = 4,11V$. L'écrantage dû au barreaux du piège augmente plus vite avec le nombre de barreaux. L'énergie potentielle créée dans chaque partie du piège est, en première approximation harmonique, de profondeur $m\omega_z^2(z_0 - z_i)^2/2$ où $m\omega_z^2$ est la raideur du potentiel dans la zone concernée (voir chapitre 1 pour la dynamique des ions en piège linéaire). Les valeurs de ω_z déduites de l'ajustement du potentiel au centre des pièges donnent $2\pi \times 107,5$kHz dans les parties quadrupolaires et $2\pi \times 2,3$kHz dans la partie octupolaire pour $V_{DC} = 1000V$. Une valeur très faible de ω_z dans le piège octupolaire n'est pas surprenante compte tenu de la distance entre les électrodes DC_4 et DC_5 de 96mm contre 21mm pour les parties quadrupolaires.

2.2 Sources lasers

L'expérience compte quatre diodes lasers commerciales. Parmi ces diodes lasers, deux (397nm et 866nm) sont impliquées dans le processus de refroidissement laser et deux (423nm et 375nm) sont dédiées à la photo-ionisation du calcium. Le laser à 375nm est utilisé pour exciter une transition vers le continuum, il n'est pas en résonance avec une transition. La mesure des longueurs d'onde des trois autres lasers se fait à l'aide d'un lambdamètre (fait maison) monté sur une table optique différente de celle de l'expérience. Ce lambdamètre est basé sur l'interférométre de Michelson et compare la longueur d'onde du laser inconnue avec la longueur d'onde d'un laser He-Ne à 632nm [2] stabilisé en température. Il permet de mesurer la longueur d'onde laser avec une précision de l'ordre de 10^{-5}nm soit une précision en fréquence d'environ $\pm$5MHz [101].

Les diodes lasers sont montées en cavité étendue avec un réseau de diffraction qui est équipé d'une cale piézoélectrique. Une différence de potentiel appliquée sur la cale piézoélectrique permet de changer l'orientation du réseau de diffraction et de modifier la longueur de la cavité. La longueur d'onde du mode de la cavité dépend de la longueur de la cavité et de la plage de longueur d'onde renvoyée vers la diode par le réseau. Ainsi, la longueur d'onde du laser peut être sélectionnée. Nous ne donnons pas plus de détails concernant la mise en cavité étendue d'un laser mais les références suivantes en présentent plus d'informations [102, 103, 104].

La dérive lente de la fréquence des lasers dépend de la variation de la température ambiante. La salle d'expérience est une pièce thermostatée à $\pm 0,5^o$C. La dérive occasionnée sur la fréquence émise peut varier de 10 à 50MHz sur une heure selon les périodes. Cette dérive est négligeable sur la durée typique des spectres enregistrés qui est de 5s. Une

2. HRS015 de Thorlabs

tentative de stabilisation de la fréquence des lasers par un verrouillage actif (Digilock de Toptica) sur une cavité Fabry-Perot isolée n'a pas montré d'amélioration sur la dérive à long terme. Cela est certainement dû à une isolation thermique et mécanique de la cavité de référence insuffisante par rapport à la performance recherchée qui est de l'ordre de 1MHz sur dix minutes Pour avoir le temps de réaliser plusieurs spectres.

Les lasers ont des plages d'accord continu monomode de l'ordre de quelques GHz. Cette plage est suffisamment grande par rapport à la largeur du spectre d'un grand nuage chaud qui peut atteindre 300MHz et permet de balayer la fréquence du laser sans saut de mode. Chaque laser est polarisé linéairement et la puissance sur chaque faisceau peut être choisie à l'aide d'une lame demi-onde couplée à un cube polariseur.

2.2.1 Lasers de refroidissement

Le refroidissement laser est assuré par deux sources lasers : une à 397nm (faisceau bleu) [3] qui excite la transition de refroidissement et une à 866nm (faisceau rouge) [4] qui assure le repompage des ions de l'état métastable $D_{3/2}$ vers l'état excité $P_{1/2}$ (voir section 1.4.2). La source bleue à 397nm est obtenue par le processus de doublage de fréquence après amplification d'un laser infrarouge à 794nm et ce processus est directement intégré dans le boitier laser. Le faisceau bleu obtenu est séparé en deux bras avant son injection dans l'enceinte dans deux directions opposées. Le laser à 794nm est conçu pour produire jusqu'à 60mW du 397nm initialement sur chaque bras avec une largeur de raie inférieure à 300kHz. Cependant, avec le vieillissement de l'amplificateur du 794nm, les puissances disponibles actuellement sont de 4mW sur chaque bras à l'entrée de l'enceinte et ne cessent de baisser. Le faisceau rouge à 866nm quant-à lui a une puissance disponible pouvant atteindre 30mW à l'entrée du piège avec une largeur de raie inférieure à 2MHz. Pour réaliser les spectres, la fréquence des lasers est contrôlée par une tension. Pour caractériser les variations de la fréquence des deux lasers, un étalonnage est obtenu en appliquant la tension sur la cale piézoélectrique de la cavité laser.

Étalonnage en fréquence des lasers à 794nm et à 866nm

Dans ce paragraphe, deux techniques d'étalonnage sont comparées. La première méthode consiste à injecter le laser dans une cavité extérieure et de faire une rampe en tension. Connaissant la valeur de l'intervalle spectral libre, la tension est convertie en fréquence. La seconde méthode est d'utiliser le lambdamètre pour déterminer les longueurs d'onde en fonction des tensions appliquées.

Première méthode : On peut faire varier la fréquence du laser à 794nm à l'aide d'une rampe de tension calibrée par le logiciel Labview. Dans ce but, le laser est injecté dans une cavité Fabry-Perot en invar d'intervalle spectral libre de 500MHz. La rampe en tension est commandée par Labview sur l'entrée DCB du laser. Un balayage de -4,9 à 4,9V est réalisé et au cours du scan, le signal de la cavité est enregistré en même temps que la tension appliquée. Nous observons les pics des modes de la cavité. À partir du nombre de pics transverses dans un intervalle spectral libre, on montrent que l'écart moyen en fréquence entre deux modes transverses voisins est de $72,7 \pm 1,0$MHz. On en déduit la

3. TA-SHG-pro de Toptica
4. DL100 de Toptica

relation entre les variations de la fréquence et la tension appliquée sur le laser à 794nm :

$$\Delta V = 1V \rightarrow \Delta f = 42,3 \pm 1,0 \text{ MHz} \tag{2.2}$$

Deuxième méthode : La longueur d'onde du laser est mesurée par un lambdamètre en fonction de la tension appliquée au laser. Les variations de fréquence en fonction de la tension sur un intervalle de -5 à 5V sont représentées sur la figure 2.4-(a). La courbe $f(V)$ est linéaire et la pente permet de déduire l'étalonnage en fréquence :

$$\Delta V = 1V \rightarrow \Delta f = 43 \pm 1 \text{ MHz} \tag{2.3}$$

En comparaison avec la première expérience, les deux méthodes donnent un résultat

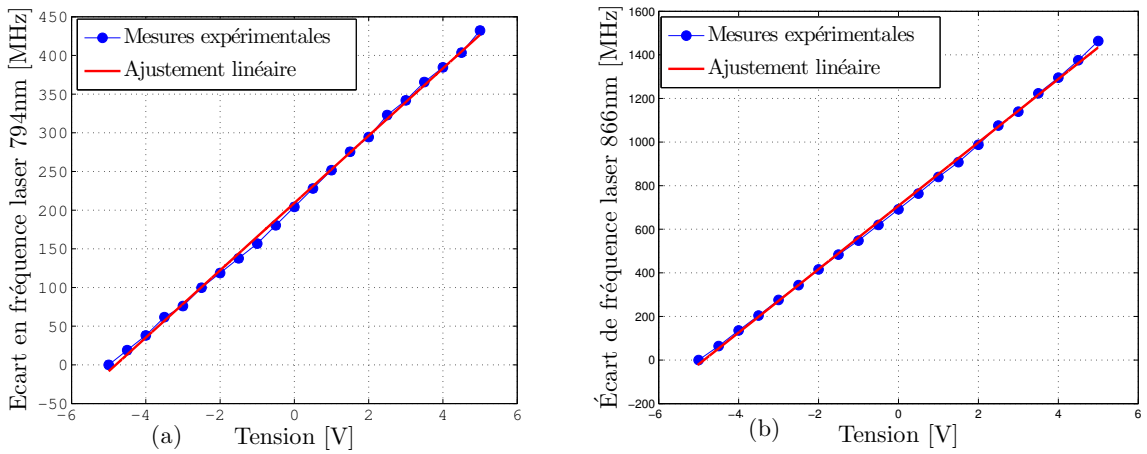

FIGURE 2.4 – Variations de la fréquence du laser 794nm (a) et 866nm (b) en fonction des tensions appliquées sur la cale piezoélectrique. Les points bleus sont les mesures expérimentales et la courbe rouge, l'ajustement linéaire. Les barres d'erreurs ont la taille du point

comparable et permettent de valider la précision de mesure de notre lambdamètre. Comme le faisceau utile est issu du doublage en fréquence à 794nm, on a $\Delta f_B = 84,6 \pm 2$MHz sur le bleu pour 1V appliqué au laser. Dans la suite de nos mesures, la valeur considérée est celle donnée par la relation (2.2).

Pour étalonner la fréquence du laser rouge à 866nm, nous utilisons la deuxième méthode. Sur la figure 2.4-(b), on représente les variations de fréquence données par le lambdamètre en fonction de la tension appliquée sur la cale piézoélectrique du laser sur un intervalle de -5 à 5V. La pente de la courbe permet de déduire l'étalonnage suivante :

$$\Delta V = 1V \rightarrow \Delta f_R = 145 \pm 1 \text{ MHz} \tag{2.4}$$

Ce sont ces deux étalonnages qui seront utilisés pour calibrer en fréquence les spectres montrés plus loin.

2.2.2 Lasers de photo-ionisation

Le schéma d'ionisation du calcium choisi par l'équipe implique deux transitions dont une transition résonante à 423nm qui excite les atomes sur une raie de résonance (figure

2.7-b). La source à 423nm est obtenue par doublage de fréquence à partir d'une source commerciale à 846nm [5]. Le processus de doublage de fréquence est réalisé hors de la cavité en simple passage dans un cristal doubleur "ppKTP" fait sur mesure. Un filtre passe bande à 423nm permet d'arrêter la partie du faisceau infrarouge qui passe dans le cristal sans être convertie. La puissance du bleu à 423nm atteint 100μW pour la température d'accord de phase. Cette puissance est suffisante pour avoir une bonne efficacité d'excitation des atomes.

La deuxième transition d'ionisation consiste en l'excitation des atomes de l'état excité vers le continium d'énergie. Dans cette transition la condition de résonance devient la condition de seuil et nécessite l'utilisation d'un laser de longueur d'onde est inférieure à 389nm (figure 2.7-b). Une diode laser simple de 375nm [6] non stabilisée est utilisée et elle délivre jusqu'à 16mW.

2.2.3 Mise en forme des faisceaux lasers

L'ensemble des faisceaux lasers sont mis en forme avant leur injection dans l'enceinte de l'expérience. La longueur totale du piège est de 167mm et nécessite des faisceaux collimatés. La collimation est faite par deux lentilles convergentes placées sur chaque faisceau laser. Le tableau 2.2 présente les diamètres des faisceaux collimatés.

λ (nm)	375	397	423	866
diamètre (mm)	3	2,5	2	4

Table 2.2 – Diamètre des faisceaux lasers collimatés

Des miroirs dichroïques placés à 45° permettent de superposer les faisceaux lasers par transmission et par réflexion. Un miroir dichroïque à 409nm MD1 (figure 2.5) permet de mélanger les faisceaux à 375nm et 397nm au faisceau à 423nm. Ces trois faisceaux sont à leur tour superposés au faisceau à 866nm par un deuxième miroir dichroïque à 510nm MD2 (voir figure 2.5). Comme il n'existe pas de miroir dichroïque de longueur d'onde comprise entre 375nm et 397nm, le faisceau à 375nm est polarisé perpendiculairement au faisceau à 397 et un cube polariseur CP1 permet de superposer les deux faisceaux.

Les lasers sont injectés suivant l'axe du piège à travers les hublots de l'enceinte à vide. La figure 2.5 présente le schéma du montage expérimental sur la table optique. Le trajet de chaque laser y est représenté, y compris les éléments optiques permettant de mettre en forme les faisceaux.

2.3 Détection du signal de fluorescence

Les ions ou les atomes neutres sont détectés en collectant leur fluorescence entre les barreaux. Les atomes de calcium neutres sont détectés par la collecte des photons dû à l'émission spontanée à 423nm et les ions piégés par la fluorescence de la transition de refroidissement à 397nm. Dans la configuration du piège, l'ouverture entre les barreaux

5. DL100 de Toptica
6. marque Oxxius

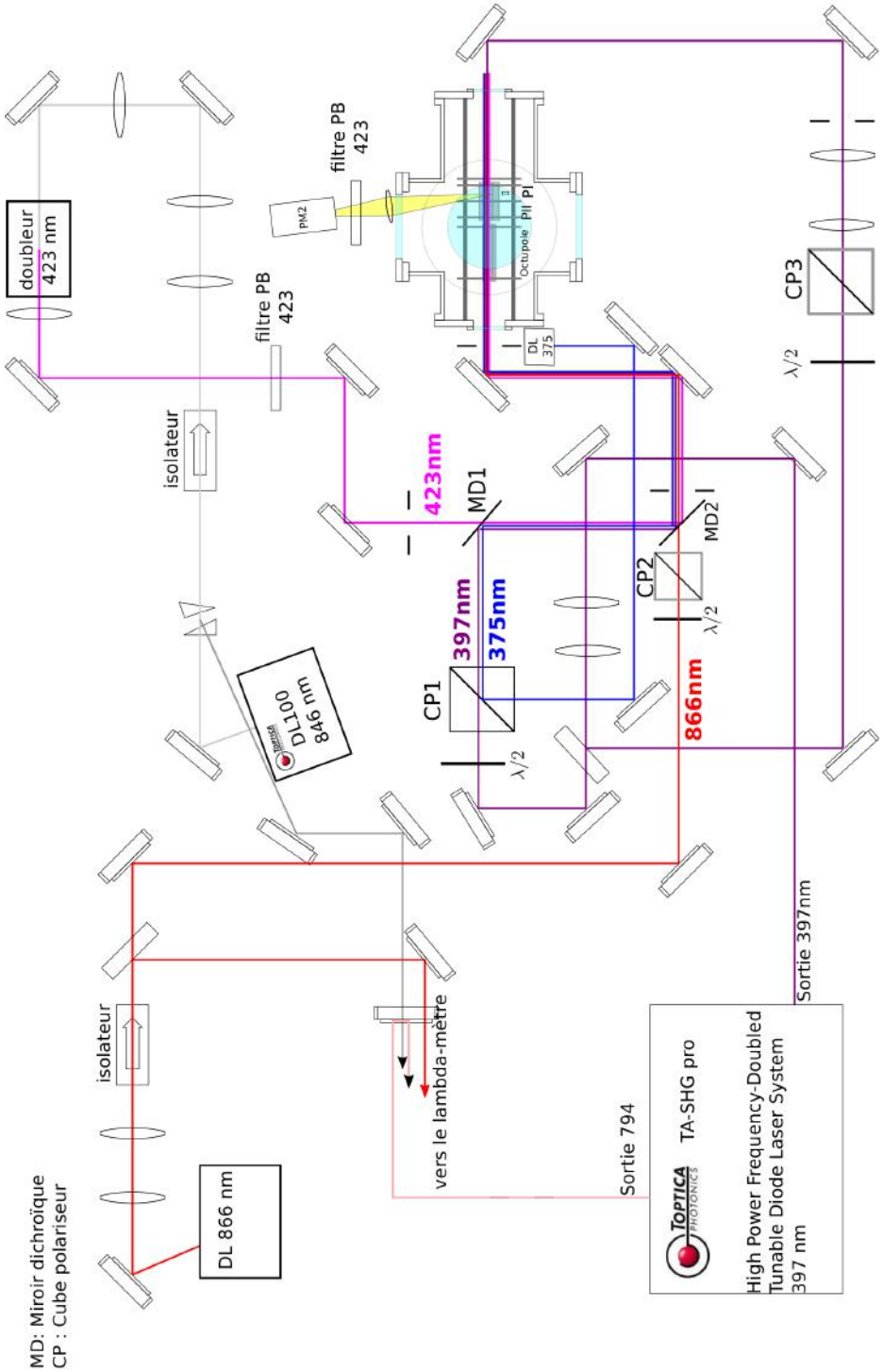

FIGURE 2.5 – Schéma du montage expérimental en vue de dessus sur la table optique. On y trouve le trajet de chaque laser y compris les éléments optiques permettant la mise en forme du faisceau et la détection par le photomultiplicateur PM2.

offre un angle de collection dans le piège quadrupolaire de 25,5^o. Sous cet angle, avec une optique de détection à symétrie cylindrique d'ouverture numérique supérieure à 0,22, 1,2% des photons émis sont collectés de manière isotrope. Pour le piège octupolaire, les barreaux sont plus proches et l'angle de collection est de 10°, la collecte est de 0,5% des photons émis.

2.3.1 Détection des ions piégés

Un objectif de détection, Sill Optics, avec une ouverture numérique de 0,28, de distance focale 66,8mm et traité anti-reflet pour 397, 729 et 866nm est utilisé pour la collecte de la fluorescence des ions. Cet objectif est placé verticalement au dessus de l'enceinte à vide et est monté sur un rail permettant de le déplacer librement dans le plan horizontal pour observer les trois zones du piège (voir la figure 2.6-(a)). Un réglage fin horizontal permet de se centrer sur le nuage d'ions et un réglage fin vertical permet d'ajuster la mise au point de l'objectif. Un miroir à 45° solidaire de la translation de l'objectif permet de renvoyer les photons vers les détecteurs dans un plan horizontal indépendemment des réglages de l'objectif.

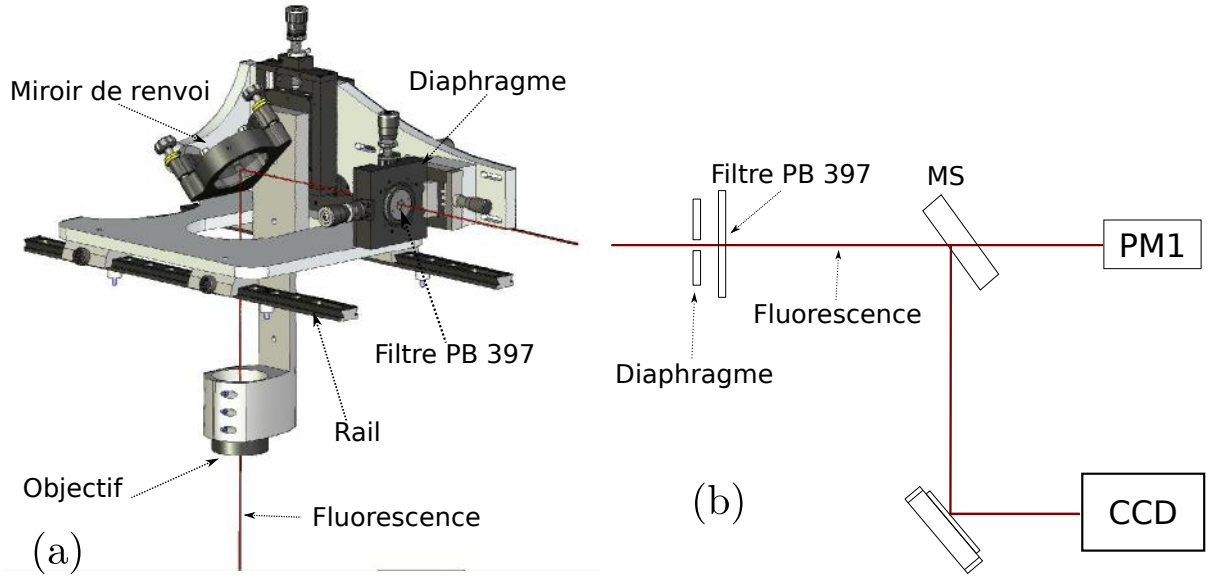

FIGURE 2.6 – (a) : objectif de détection du signal de fluorescence (en vue de face). (b) : détection de la fluorescence par une caméra CCD et le photomultiplicateur PM1 situés sur la tablette du dessus de la table optique (en vue de dessus).

Sur une tablette optique surélevée de 40cm au dessus de la table optique, un photomultiplicateur PM1 [7] et une camera intensifiée CCD permettent de détecter le signal. Un miroir semi-réfléchissant (MS) placé sur la tablette permet d'envoyer 50% des photons vers le photomultiplicateur et 50% des photons vers la caméra (voir la figure 2.6-(b)). La caméra intensifiée utilisée est de marque Andor Solis (1024 × 1024 pixels) et permet d'observer et de résoudre le nuage spatialement. Cette caméra est refroidie pour minimiser son bruit d'obscurité. Le photomultiplicateur est en mode comptage de photon. Le grandissement de

7. Electron Tubes Limited type P30CWAD5-07

l'optique de détection est de l'ordre de 12 pour la partie quadrupolaire et 11 pour la partie octupolaire. Selon le grandissement recherché, une lentille 2 pouces traitée anti-reflet peut être placée entre le miroir semi-réfléchissant et le dernier miroir vers la caméra. Pendant la détection du signal des ions, les détecteurs enregistrent également la lumière provenant du milieu ambiant ou diffusée par les lasers. Cette lumière parasite nuit et rend les mesures moins précises. Pour optimiser le signal d'ions en réduisant la lumière parasite, un filtre passe bande à 397nm est placé entre le miroir de renvoi et le miroir semi-réfléchissant. Ce filtre laisse passer les longueurs d'ondes autours de 397nm et réfléchit le reste. Du fait de ce filtre et de la mobilité de cet objectif de détection, nous avons jugé nécessaire d'avoir un deuxième photomultiplicateur qui regarde en permanence le piège PI uniquement pour la phase création.

2.3.2 Mise au point de la photo-ionisation

Lorsque l'objectif de détection est au dessus du piège PI et sans filtrage en longueur d'onde, il permet de collecter les photons émis par le calcium neutre. Cela permet de mieux ajuster la longueur d'onde du laser à 423nm à la résonance de la transition. Pendant plusieurs mois, lorsque l'objectif était fixe, la mesure de la longueur d'onde du laser à 423 au lambdamètre était suffisante pour mettre le laser en résonance. Dès que les campagnes de transports ont commencé, nous étions amenés à déplacer l'objectif de détection constamment. Nous avons alors remarqué des variations de la longueur d'onde de résonance mesurée au lambdamètre. Cette variation est liée à l'injection des faisceaux lasers au lambdamètre. En effet, le déplacement de l'objectif de détection change la répartition du poids sur la table optique. De plus, comme le lamdbamètre est sur une table différente et les faisceaux sont transportés à l'air libre, l'angle d'injection du faisceau est modifié et donc la mesure de la longueur d'onde aussi. Nous observons des variations de mesure pouvant atteindre 800MHz, ce qui est très grand par rapport à la largeur à mi-hauteur de la transition à 423nm qui est de 35,4MHz. Pour s'affranchir de ce problème, un deuxième photomultiplicateur PM2 [8] est installé sur le côté de l'enceinte à vide (voir figure 2.5) dans le but de vérifier l'excitation du calcium neutre à 423nm. Ce photomultiplicateur vise directement la zone de création PI avec un filtre à 423nm placé devant pour réduire la lumière diffusée.

Pour caractériser la photo-ionisation des atomes, l'ojectif de détection est placé au dessus de PI et le filtre passe bande à 397nm a été enlevé. Nous nous servons alors simultanément des deux photomultiplicateurs pour ces mesures. Dans cette analyse, nous caractérisons également les signaux de PM1 et PM2 en comparant le signal fourni par chacun d'eux.

2.4 Création des ions dans un piège radio-fréquence

La création d'ions dans un piège radio-fréquence repose sur l'ionisation d'un jet ou d'une vapeur d'atomes neutres, selon la pression de vapeur saturante de l'espèce choisie. Dans le cas du calcium un jet atomique s'impose (faible pression de vapeur à température ambiante). La méthode traditionnelle d'ionisation des atomes est le bombardement électronique. Cette méthode consiste à accélérer des électrons à quelques eV pour les faire

8. Electron Tubes Limited type P30CWAD5-07

entrer en collision avec un jet d'atomes. L'énergie de collision permet d'éjecter un électron de la couche extérieure de l'atome. Cette méthode est robuste, facile à implémenter et permet de créer un nuage de taille moyenne. Néanmoins, elle présente quelques inconvénients. Les électrons se déposent sur les matériaux diélectriques et créent des charges parasites. Aussi la présence d'une quantité abondante d'électrons génère une différence de potentiel qui dérive dans le temps. De plus, dans la référence [105], on montre que les électrodes contaminées par les dépôts de particules augmentent le chauffage des ions piégés. Cela est donc nuisible au piégeage d'ions.

Une technique alternative est l'utilisation de lasers pour ioniser l'atome. L'énergie nécessaire pour arracher un électron de l'atome est fournie par absorption d'un ou de plusieurs photons. Cette technique permet de créer des nuages jusqu'à cinq ordres de grandeurs supérieurs à la méthode du bombardement électronique [106]. Elle a aussi permis de sélectionner les isotopes des atomes [107, 108]. L'énergie minimale pour ioniser l'atome de calcium correspond à celle d'un photon ultraviolet à 203nm (figure 2.7-(a)). Les sources lasers à cette longueur d'onde sont très rares et ont un coût élevé. L'alternative utilisée pour la photo-ionisation est un processus à deux photons [106, 108]. Plusieurs combinaisons de longueurs d'ondes permettent d'atteindre l'énergie du seuil d'ionisation. Parmi les combinaisons possibles, celle qui permet d'avoir un taux d'ions le plus élevé est celle qui exploite la transition résonante du calcium à 423nm couplée à une transition de $\lambda < 389$nm vers le continuum. Cette configuration est la plus utilisée dans la communauté des piégeurs d'ions. Au cours de nos expériences, nous utilisons cette technique de photo-ionisation pour créer les ions.

2.4.1 Méthode de photo-ionisation

Le schéma d'ionisation utilisé fait intervenir un système en deux étapes, dont la transition résonante du calcium $4s^2 \rightarrow 4s4p$ à 423nm. Cette transition est couplée à la transition vers le continuum $4s4p \rightarrow 4s + \varepsilon$ où la longueur d'onde est $\lambda < 389$nm. La figure 2.7-(b) montre le schéma de photo-ionisation à deux étapes considéré ici. La première transition étant résonante, le taux d'excitation des atomes est maximal si la largeur spectrale de la source laser à 423nm est inférieure à la largeur naturelle de la transition qui est de 35,4MHz [109].

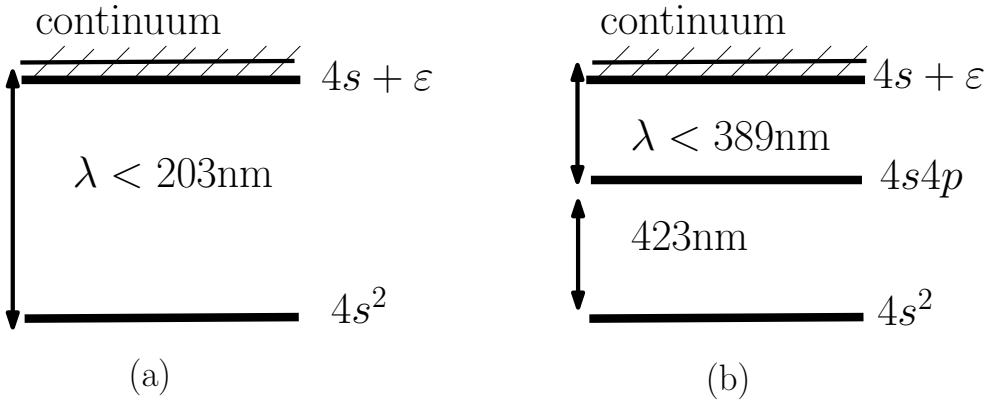

FIGURE 2.7 – Schéma de photo-ionisation du calcium. (a) schéma à une transition et (b) schéma à deux transitions utilisé dans l'expérience.

Analyse du signal du calcium neutre

Dans ce paragraphe, le but de la manipulation est de caractériser la transition $4s^2 \Longleftrightarrow 4s4p$. Pour cela, seul le laser à 423nm est allumé avec une puissance de 80μW. L'enceinte est équipée d'un four contenant des pépites de calcium. Lorsque le four est chauffé jusqu'à une température proche de 280°C, les atomes de calcium à l'état solide se subliment et se propagent dans un jet effusif [110] (figure 2.8). Ce jet horizontal passe entre les barreaux du piège en traversant le champ laser. Le jet est placé perpendiculairement à l'axe des faisceaux laser dans le but de réduire l'effet Doppler lié à la vitesse du jet et de minimiser la largeur de la transition. Cette configuration est d'autant plus importante si l'on souhaite

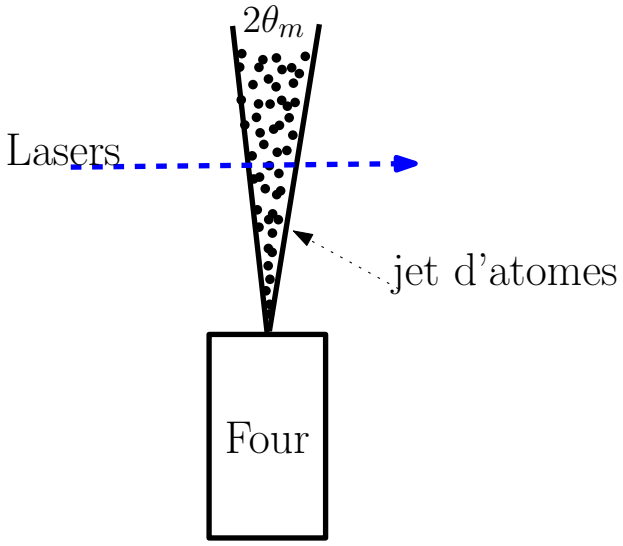

FIGURE 2.8 – Schéma du jet d'atomes issu du four.

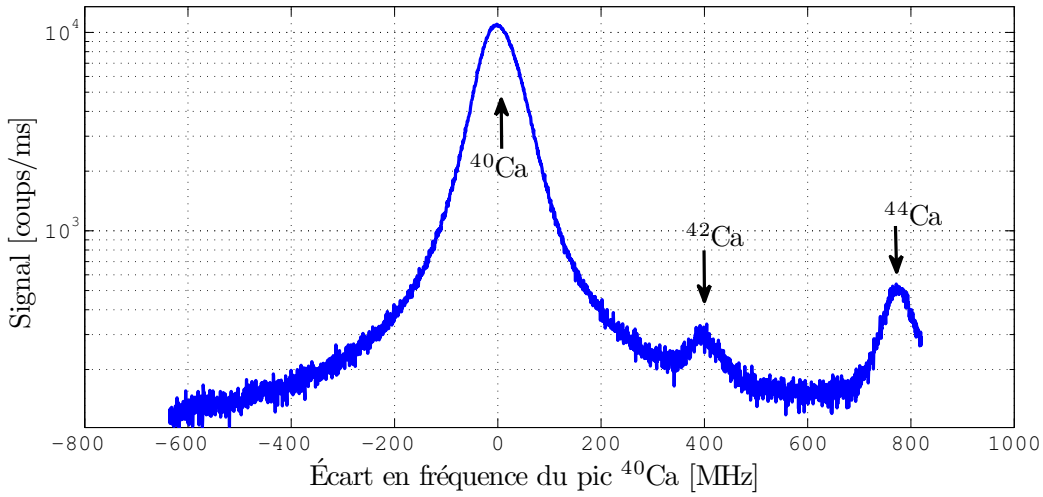

FIGURE 2.9 – Spectre expérimental du calcium neutre enregistré par le photomultiplicateur PM1. Notons la présence de trois isotopes du calcium : ^{40}Ca, ^{42}Ca et ^{44}Ca.

exciter sélectivement les isotopes du calcium. En effet, comme l'écart entre les isotopes ^{40}Ca

et ^{42}Ca est d'environ 400MHz, la réduction de l'effet Doppler permet d'avoir des raies plus fines et donc de résoudre individuellement chaque raie.

En premier lieu, le four est chauffé jusqu'à une température de 322°C. On balaye la fréquence laser par une rampe linéaire en tension sur la cale piezoélectrique. Les variations du signal de fluorescence sont enregistrées par le photomultiplicateur PM1. Le spectre obtenu est représenté sur la figure 2.9. Sur cette courbe, plusieurs pics de signal sont observés. Ces pics caractérisent la présence des isotopes du calcium.

Pour identifier chaque pic, nous nous référons à l'abondance de chaque isotope du calcium (tableau 2.3) [111, 108]. D'après ce tableau, de la gauche vers la droite sur la courbe, on a ^{40}Ca avec 96,9%, ^{42}Ca avec 0,6% et enfin ^{44}Ca avec 2,1%. La calibration

Masse (u. atomique)	Abondance naturelle (%) [111]	shift en fréquence (MHz)[112]
40	96,941	0
42	0,647	394
43	0,135	612
44	2,086	774
46	0,004	1160
46	0,187	1513

Table 2.3 – Abondance naturelle et shift en fréquence des isotopes du calcium par rapport au ^{40}Ca.

de l'échelle de fréquence de ce spectre (troisième colonne tableau 2.3) est faite à l'aide des décalages connus par rapport à l'isotope ^{40}Ca, des isotopes ^{42}Ca (394MHz) et ^{44}Ca (773MHz) [112]. Le ^{40}Ca est l'isotope le plus abondant et sans structure hyperfine. On s'intéresse particulièrement au ^{40}Ca, l'isotope utilisé dans notre expérience. Pour analyser le signal, nous nous focalisons sur le pic de résonance du ^{40}Ca. Un ajustement du signal du pic d'absorption montre que, la largeur à mi-hauteur de la raie est de 90±1MHz pour une largeur naturelle de 35,4MHz. Deux causes peuvent expliquer cet élargissement :

1. l'élargissement par saturation. Nous avons vu dans la section (1.4.1) qu'il y a saturation lorsque la fréquence de Rabi est largement supérieure à la largeur naturelle de la transition ($\Omega_{Rabi}^2 >> \Gamma^2/2$). La puissance du laser à 423nm est de 80μW et $\Omega_{Rabi} = 5$MHz (d'après la relation (1.57)). Cela donne un paramètre de saturation $s = 0,04$. L'effet de saturation de puissance ne permet pas d'expliquer l'élargissement observé sur les spectres.

2. l'élargissement par effet Doppler. L'observation expérimentale montre une augmentation de la largeur de la raie avec la température du four. Bien que le four soit orienté perpendiculairement à la direction des lasers, la divergence du jet fait que certains atomes se propagent avec un angle θ_m par rapport à l'axe du jet (voir figure 2.8). Cet angle permet aux atomes d'avoir une composante du mouvement dans la direction du laser et donc d'induit un effet Doppler. Cette observation montre que l'élargissement de la raie est essentiellement dû à l'effet Doppler.

Pour comparer les signaux des deux photomultiplicateurs PM1 et PM2, la même raie vue par PM1 (courbe bleue) et PM2 (courbe rouge) est représentée sur la figure 2.10. En comparant les deux courbes, la largeur de la raie donnée par PM2 est de 180±6MHz et est donc plus large que celle donnée par PM1 (90±1MHz). Un décalage de 75MHz entre les

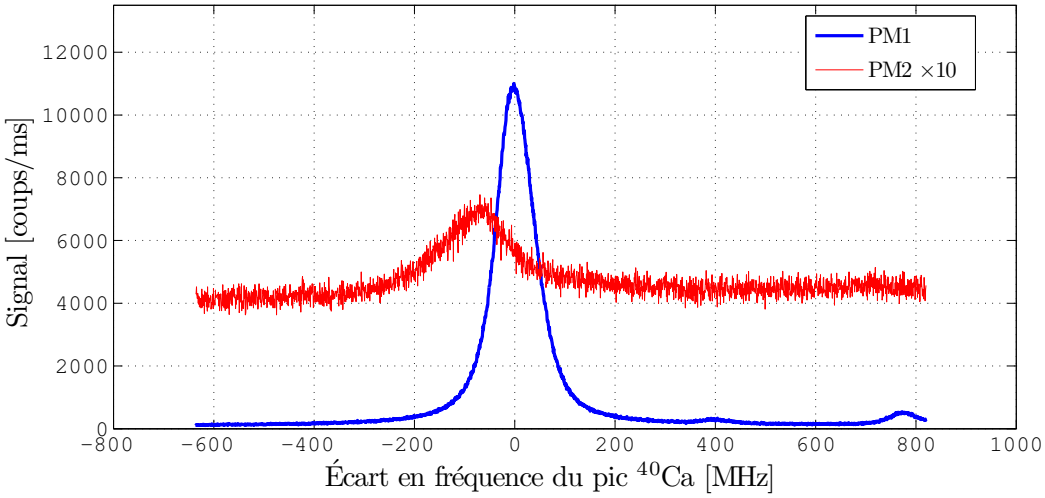

FIGURE 2.10 – Spectre expérimental du calcium neutre vu par les photomultiplicateurs PM1 (courbe bleue) et PM2 (courbe rouge).

deux signaux est observé. Le sommet du pic bleu correspond à la mi-hauteur du pic rouge. Ce shift en fréquence est dû à la différence d'effet Doppler observée par PM1 et PM2. Cela s'explique par le fait que les deux photomultiplicateurs observent deux zones distinctes du piège avec un angle de visée différent : PM1 est bien centré au-dessus du piège alors que PM2 est placé de côté et de biais. En effet, selon l'axe de visée et l'angle d'ouverture, le maximum de la contribution de l'effet Doppler provient des atomes qui sortent avec un angle important (par rapport à la direction du jet plus). Nous remarquons également que PM1 et PM2 n'enregistrent pas le même taux de photons, cela est lié à l'efficatité de collection et à la position des optiques.

Au cours des expériences, le décalage observé est pris en compte lorsque PM2 est utilisé pour la création des ions. Cela permet d'être sûr de la résonance avec la transition à 423nm.

Dans la suite de ce chapitre, uniquement PM1 (qui récolte plus de signal par rapport à PM2) et la caméra ICCD sont utilisés pour caractériser le signal et compter le nombre d'ions créés. La technique de comptage du nombre d'ions est détaillée dans le chapitre 3.

Seuil de température de création des ions

Pour limiter le chauffage du four et donc le taux d'atomes neutres générés, nous déterminons un seuil de température à partir de laquelle la quantité d'atomes neutre émis est suffisante.

Le four est chauffé par un fil thermocoaxial (résistance chauffante) auquel est appliqué un courant à l'aide d'un générateur [9]. La température du four est mesurée à l'aide d'un thermocouple de type "E" où une jonction est fixée sur le four et l'autre exposée à température ambiante. La différence de température entre les deux jonctions permet d'évaluer la température du four. Sur la figure 2.11 on représente la température stationnaire atteinte

9. BK precision model 9130

en fonction du courant du four. Nous réglons le laser à 423nm en résonance avec la transi-

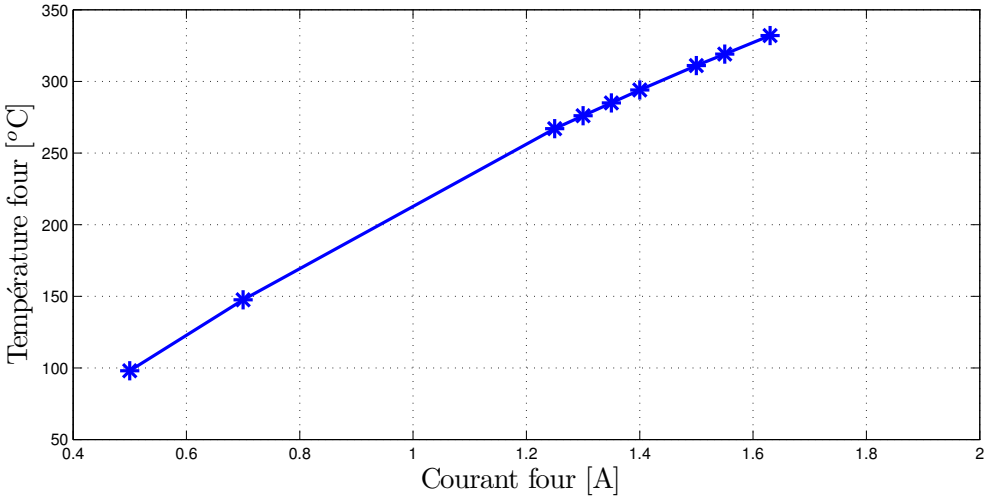

FIGURE 2.11 – Évolution de la température en fonction du courant appliqué.

tion $4s^2 \rightarrow 4s4p$ et mesurons le niveau maximal de signal sur le photomultiplicateur PM1 (figure 2.12). Cette démarche permet de définir une température seuil de création pour li-

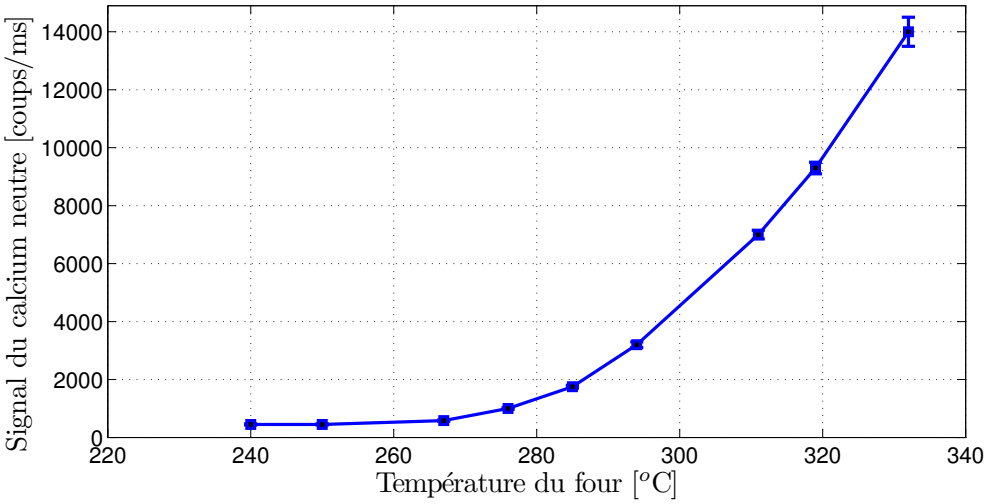

FIGURE 2.12 – Evolution du signal des atomes neutres en résonance de la première transition à 423nm en fonction de la température du four.

miter la quantité d'atomes qui se déposent sur les barreaux du piège. La figure 2.12 montre qu'à partir de 270 ^oC, le signal de fluorescence du calcium neutre augmente exponentiellement. Cette température est atteinte pour un courant de 1,3A. À cette température, un jet de calcium commence à être produit. Les deux courbes (figure 2.11 et 2.12) permettent de définir un protocole de création des ions.

2.4.2 Protocole d'ionisation du calcium

Pour créer les ions dans des conditions identiques (même lorsque l'objectif de détection ne vise pas le piège PI), un protocole de création automatique est mis en place. Ce protocole d'ionisation permet de contrôler le nombre d'ions créés lorsque tous les lasers sont parfaitement alignés et que les paramètres sont ajustés.

La création contrôlée des ions est basée sur la maîtrise des paramètres laser à savoir : l'alignement, la puissance, la stabilité en fréquence et l'exactitude de la longueur d'onde. Au cours de l'ionisation, le laser à 423nm reste allumé et est en résonance avec sa transition. Pour ioniser les atomes, nous utilisons un programme Labview qui commande la gestion du courant du four et la commande d'allumage et d'extinction du laser du deuxième étage d'ionisation à 375nm à puissance fixe. La durée de création T_{ON} est définie comme étant le temps au cours duquel le laser à 375nm reste allumé. Pour créer les ions, le courant du four est réglé à une valeur $I_C = 1,6$A. La figure 2.13 montre l'évolution de la température du four en fonction du temps t. Lorsque le four atteint la température de consigne T_C

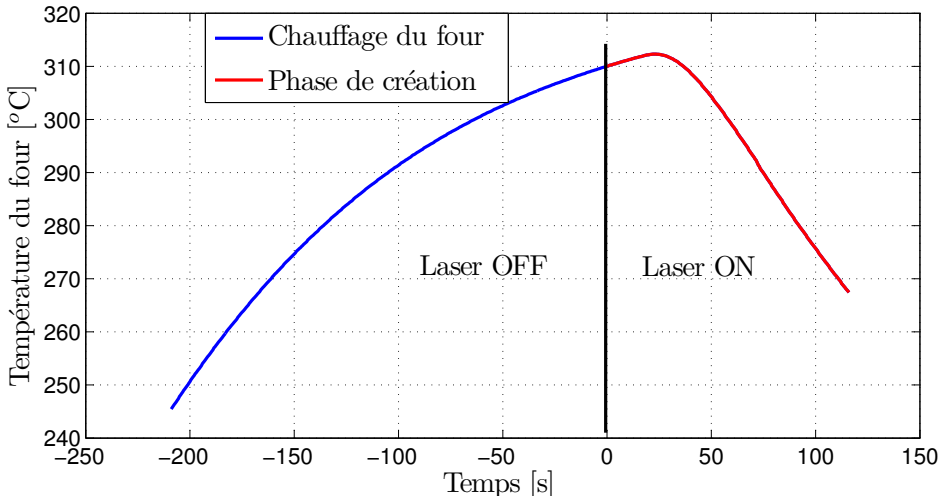

FIGURE 2.13 – Profil de la température au cours de la photo-ionisation pour $I_C = 1,6A$. La création a lieu à partir de la courbe rouge à 0s. La partie bleue représente le chauffage du four.

(notre choix est $T_C = 310^oC$) à l'instant t_0 ($t_0 = 0s$ sur la figure 2.13), le laser à 375nm est automatiquement mis en marche. Il reste allumé pendant la durée T_{ON} choisie pour la création puis s'éteint. Cette zone de création est représentée en rouge sur la figure 2.13. Au même moment à $t = t_0$, le courant est égal à I_C pendant 15 secondes et passe à une valeur plus basse de 700mA. Ceci permet de limiter la quantité d'atomes qui traversent le nuage en formation. Le tableau 2.4 résume le protocole de création d'ions décrit ci-dessus.

Dans la suite, nous caractérisons la création en comptant le nombre d'ions créés en fonction de la durée de photo-ionisation et d'autres paramètres du système.

2.4.3 Caractérisation de la création des ions calcium $^{40}Ca^+$

L'analyse faite dans cette partie concerne la création d'un nuage de quelques dizaines de milliers d'ions. Nous étudions le piégeage d'un grand nuage de quelques centaines de

temps (s)	$t \leq t_0$	$t_0 \leq t \leq t_0 + 15$	$t \geq t_0 + 15$
I (A)	$I_C = 1,6$		0,7
T (^{o}C)	$\nearrow$ 310	310 $\nearrow$ 312	$\searrow$
Laser à 375nm	OFF	ON	

TABLE 2.4 – Protocole de création d'ions.

milliers d'ions dans le chapitre 5. La technique d'énumération précise du nombre d'ions dans le piège quadrupolaire est présentée dans la section 3.3 et ici dans cette partie nous utilisons le résultat. Au cours de la photo-ionisation, l'énergie atteinte par certains ions est très élevée. Il est donc important que les lasers de refroidissement soient allumés. Les deux lasers de refroidissement sont décalés (d'environ 400MHz) par rapport à la fréquence de résonance de la transition atomique pour assurer le refroidissement des ions de grandes vitesses. Ici, nous analysons le nombre d'ions créés en fonction de différents paramètres tels que la durée de création, la puissance des lasers et les paramètres de piégeage (tensions et fréquences laser).

Influence de la durée de création

Le protocole de création décrit ci-dessus est utilisé et le nombre d'ions créés est déterminé en fonction de la durée de création pendant laquelle le laser à 375nm reste allumé. Au cours de ces mesures, le laser à 423nm a une puissance de 80μW et le laser à 375nm de puissance 3,5mW. L'amplitude de la tension radio-fréquence est de $V_{RF} = 1045 V_{PP}$ et la tension $V_{DC} = 1200V$. Sur la figure 2.14 est représentée l'évolution du nombre d'atomes photo-ionisés en fonction de la durée de création. Le nombre d'ions créés augmente avec la durée de création. Un ajustement linéaire des points entre 5s et 25s montre que le taux moyen d'ionisation est de 1700 ions par seconde pour ces puissances lasers.

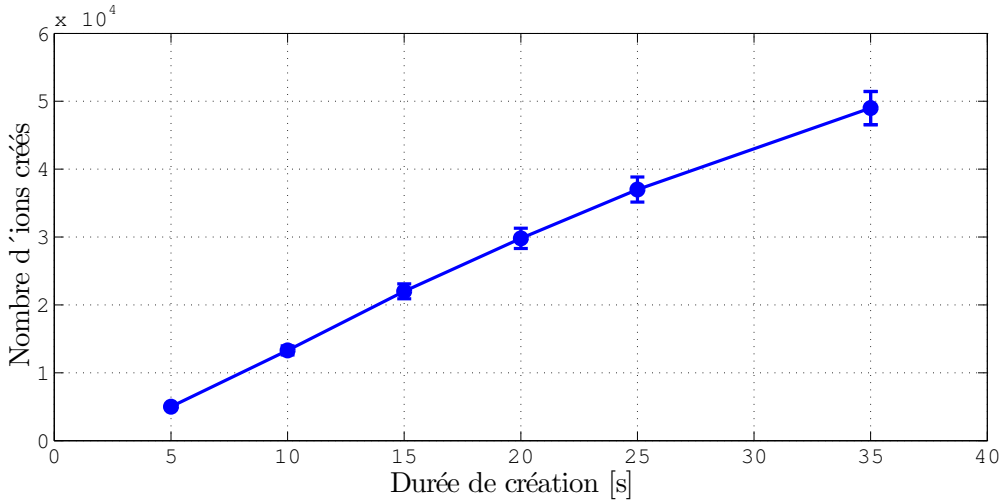

FIGURE 2.14 – Nombre d'ions créés en fonction de la durée de création pour une puissance à 375 de 3,5mW.

Influence des puissances lasers

Dans ce paragraphe, les paramètres laser et de piégeage restent inchangés. Nous réalisons quelques mesures avec deux puissances du laser à 375nm et pour deux valeurs de la durée d'ionisation. Les résultats sont indiqués dans le tableau 2.5. La comparaison

durée de création	$t_C = 10s$		$t_C = 15s$	
P_{375} (mW)	3,5	6	2	3,5
N	13300±600	23300 ±1200	10200±500	22000±1100

TABLE 2.5 – Nombre d'ions créés en fonction de la puissance du laser à 375nm et la durée de création.

montre que pour des paramètres de piégeage et de création identiques, le nombre d'ions créés augmente avec la puissance du laser à 375nm. Il en est de même pour le laser à 423nm. En effet, deux mesures sont faites avec une puissance P_{423} de 35μW et 80μW pour $P_{375} = 3,5$mW (les autres paramètres restant identiques). Les résultats montrent que pour P_{423}=35μW 10500 ions sont créés alors que pour P_{423}=80μW nous en créons 22000. Pour ces deux mesures, le nombre d'ions créés double avec la puissance du laser. Le taux de création des ions peut être optimisée en améliorant la puissance du faisceau bleu à 423nm.

Influence de la fréquence du laser 423nm

Les paramètres de piégeage sont maintenus à $V_{RF} = 1045V_{PP}$, $V_{DC} = 1200V$, $P_{375} = 3,5$mW et $P_{423} = 80\mu$W. Le but ici est d'étudier l'influence de la fréquence de la transition à 423nm sur le nombre d'ions créés. Trois mesures sont faites : une mesure lorsque la fréquence du laser à 423nm est identique à la fréquence de résonance f_0, et 2 mesures lorsque les fréquences correspondent aux deux mi-hauteurs $f_0 - \Delta f/2$ et $f_0 + \Delta f/2$ de la résonance à 423nm. Les trois mesures sont très proches et l'écart reste dans l'incertitude de mesure (tableau 2.6). Vu ce résultat, on pourrait penser à la saturation de la transition à

durée de création	$t_C = 15s$		
fréquence	$f_0 - \Delta f/2$	f_0	$f_0 + \Delta f/2$
N	10300 ±500	9900 ±500	10200±500

TABLE 2.6 – Nombre d'ions créés en fonction de la fréquence du laser 423nm.

423nm. Cependant, avec la puissance de 80μW utilisée, le paramètre de saturation s est de 0,04. Au cours de la photo-ionisation, une résonance avec une marge de ±45MHz permet d'avoir le même taux d'ionisation. Bien que la transition à 423nm ne soit pas saturée, on observe une faible sensibilité du nombre d'ions produit avec la fréquence du laser, si celle-ci reste dans la raie de fluorescence.

Influence des paramètres de piégeage et de refroidissement

En ce qui concerne les paramètres de piégeage, les observations montrent que pour des nuages de taille moyenne de quelques dizaines de milliers d'ions, le nombre d'ions

créés dépend très peu de l'amplitude du champ radio-fréquence. Cependant, pour de très grands nuages de quelques centaines de milliers d'ions, nous verrons au chapitre 5 que le nombre d'ions piégés dépend fortement des tensions de piégeage. Cela s'explique aisément par le fait que pour un petit nuage créé en phase gazeuse, l'interaction entre ions (et donc le chauffage radio-fréquence) est faible par rapport au cas du grand nuage. De plus, le refroidissement laser n'est pas critique pendant la photo-ionisation d'un nuage de quelques dizaines de milliers d'ions tant que le refroidissement des ions à grande vitesse est assuré en déplacant la fréquence de quelque centaines de mégahertz vers le rouge. En effet, nous avons mesuré le taux d'ions créés pour trois valeurs des désaccords des lasers bleu Δ_B et rouge Δ_R et pour une durée de création t_C =15s. Les résultats (tableau 2.7) montrent que le taux d'ionisation dépend faiblement des longueurs d'ondes des lasers de refroidissement.

durée de création	$t_C = 15s$		
Δ_B (MHz) Δ_R (MHz)	-700 -35	-270 -30	-60 -20
N	23700 ±1200	22600±1100	23000 ±1200

TABLE 2.7 – Nombre d'ions créés pour deux couples de longueurs d'onde des lasers de refroidissement.

Reproductibilité de la photo-ionisation

Une série d'expériences teste la reproductibilité de la photo-ionisation des ions. Elle a lieu dans la même journée pour s'assurer de l'alignement des lasers et des conditions expérimentales inchangées. Les mesures sont faites pour une durée de création $t_C = 15$s avec des puissances $P_{375} = 3,5$mW et $P_{423} = 80\mu$W. Les lasers de refroidissement sont

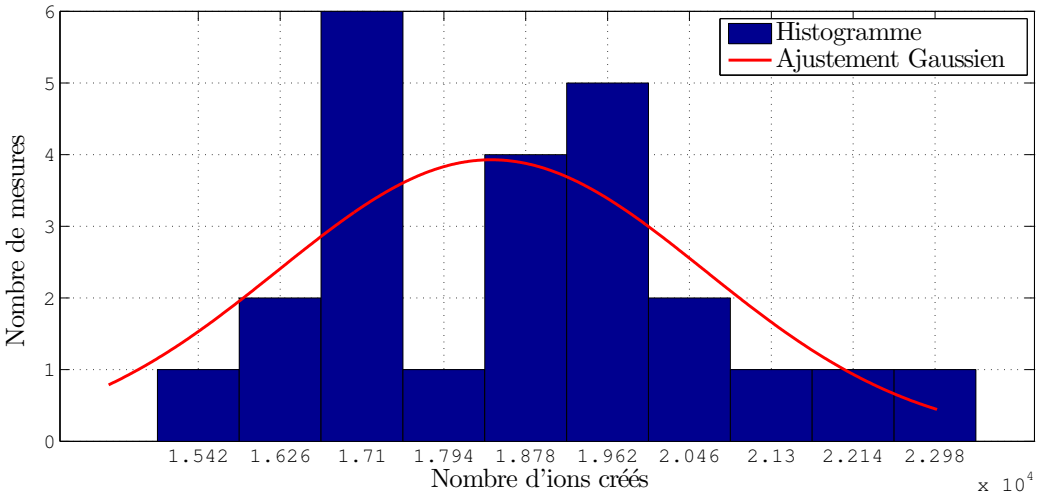

FIGURE 2.15 – Histogramme des mesures du nombre d'ions créés en 15s avec $P_{375} = 3,5$mW et $P_{423} = 80\mu$W. La courbe rouge représente l'ajustement Gaussien de l'histogramme.

réglés pour être loin de la résonance et assurer un refroidissement minimum. Sur une série de vingt-quatre mesures, un ajustement gaussien de l'histogramme (figure 2.15) permet d'obtenir un taux de 18700 ions créés en 15s, avec une dispersion de ±5%. Cette valeur est inférieure aux 22000 ions obtenus plusieurs jours avant pour 15s de création (figure 2.14) mais reste dans la barre d'erreur de 10% maximale.

Conclusion

Notre piège à ions comporte trois zones de piégeage. Les ions sont créés dans la première partie quadrupolaire du piège PI pour être transportés dans la partie quadrupolaire PII puis dans la partie octupolaire PIII. Dans ce chapitre, nous avons présenté un protocole de création des ions calcium par photo-ionisation. Il permet de créer un nuage d'ions dans PI sans avoir recours à une détection simultanée. La caractérisation de la création des ions est pertinente du fait qu'on doit être capable d'estimer le nombre d'ions connaissant les paramètres lasers, de piégeage et de temps de création. Les paramètres critiques identifiés sont l'alignement des lasers et la longueur d'onde du laser à 423nm qui doit être en résonance avec la transition (avec une tolérance de ±45MHz).

Au cours de la photo-ionisation, l'effet des tensions de confinement est négligeable sur le taux d'ions créés. Par ailleurs, les lasers de refroidissement ont un rôle important qui est d'assurer le refroidissement des ions pendant la création. Les puissances des lasers de photo-ionisation constituent aussi des paramètres importants. En effet, augmenter la puissance d'un des deux lasers permet d'augmenter le nombre d'ions créés. Notre objectif est de créer un grand nuage d'ions pouvant atteindre dix millions. Pour optimiser ce nombre en limitant en même temps les dépôts sur les barreaux du piège, il est donc judicieux d'augmenter la puissance sur le laser de deuxième étage d'ionisation à 375nm (pouvant atteindre 16mW) et de réduire le chauffage du four. Ce protocole est reproductible et permet de prévoir un nombre d'ions avec une erreur de ±5% qui est acceptable. Avec ce protocole de création et dans la limite de la puissance du laser à 375nm disponible de 16mW, nous pouvons créer environ 8000 ions par seconde. Si en première approximation nous supposons que cette évolution en fonction du temps est linéaire même pour des grands nuages, il faudra environ 21 minutes pour atteindre l'objectif de 10^7 ions. Ce temps est beaucoup trop long et constitue un temps mort pour des mesures. Il faut donc trouver des techniques permettant d'ajouter des ions sans perturber ceux existant initialement. Nous analysons cette possibilité dans le chapitre 5. Les ions créés sont exploités dans le chapitre suivant.

Chapitre 3

Analyse du signal de fluorescence d'ions en piège quadrupolaire

Les ions piégés sont détectés par leur fluorescence induite par laser sur la transition de refroidissement à 397nm. Un photomultiplicateur (PM1) et une caméra ICCD située au dessus de l'enceinte permettent de collecter le signal de fluorescence des ions. Les détails du montage sont décrits à la section (2.3). Dans ce chapitre, nous utilisons le signal détecté pour caractériser le mouvement des ions dans le piège et étudier le comportement d'un nuage d'ions refroidi dans la partie quadrupolaire. Après avoir analysé le refroidissement laser, nous présentons une technique d'excitation paramétrique qui permet de déterminer les fréquences d'oscillation des ions dans le piège. Ces fréquences d'oscillation permettent de décrire la raideur du puits de potentiel qui contraint les ions dans les trois directions de l'espace et qui contrôle la morphologie des nuages d'ions piégés froids. Dans la dernière partie, nous décrivons une technique automatique d'analyse des images des nuages que nous avons mis au point pour quantifier le nombre d'ions piégés avec précision.

3.1 Refroidissement laser en piège quadrupolaire

Dans notre expérience, nous appliquons le refroidissement laser au système à trois niveaux d'énergie décrit dans le paragraphe (1.4.2). La figure 3.1 présente les transitions atomiques impliquées dans le refroidissement laser (plus de détail sur l'ion Ca^+ en annexe A). Dans ce système, le laser à 866nm (laser rouge) couple le niveau métastable $D_{3/2}$ au niveau $P_{1/2}$ (transition de repompage). Le laser à 397nm (laser bleu) couple le niveaux fondamental $S_{1/2}$ au niveau excité $P_{1/2}$ (transition de refroidissement). Les deux transitions impliquées dans le refroidissement forment alors un système en Λ avec une largeur naturelle de chaque raie de 23MHz [83]. Le laser bleu est séparé en deux bras et entre dans l'enceinte par deux hublots opposés. Le bras superposé au laser rouge est appelé bras direct et l'autre bras, le contra-propageant. Le refroidissement laser permet de réduire l'agitation thermique du nuage d'ions et ainsi diminuer sa température. Les différentes phases du nuage sont caractérisées par leurs températures : quelques dizaines de kelvins pour la phase gazeuse et des températures plus basses pouvant atteindre quelques millikelvins pour la phase cristalline. Pour identifier les facteurs limitant le refroidissement laser, nous varions les paramètres des lasers à savoir les fréquences et les puissances. Nous commençons par décrire le spectre d'excitation du nuage d'ions avant d'étudier la transition de phase vers des phases

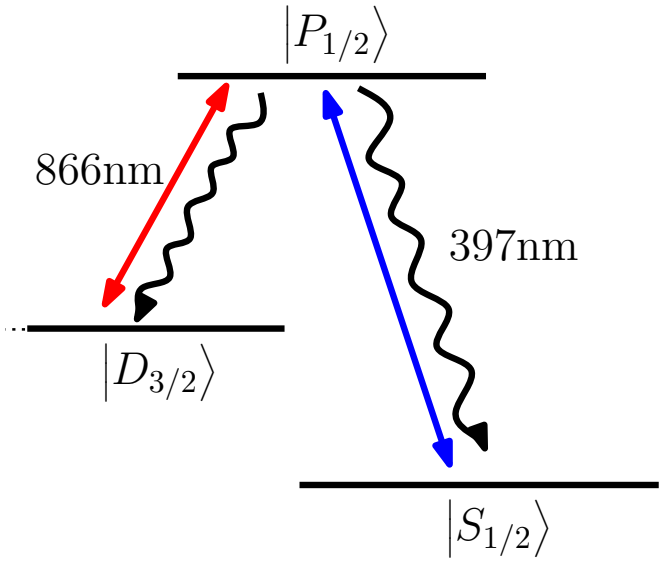

FIGURE 3.1 – Schéma des transitions impliquées dans le refroidissement laser : la transition rouge couple le niveaux $D_{3/2}$ au niveau $P_{1/2}$ et la transition bleue couple le niveau $S_{1/2}$ au niveau $P_{1/2}$. Les ondulations présentent les branchements de l'émission spontanée.

liquides et des cristaux de Coulomb où les ions s'organisent dans une structure ordonnée. Pour tous les spectres, la variation de fréquences se fait toujours des fréquences les plus petites vers les fréquences les plus grandes.

3.1.1 Spectre d'excitation

Dans le système à trois niveaux, le rapport de branchement de l'émission spontanée vers le niveau $D_{3/2}$ de 0,06435(7) est faible par rapport à celui vers le niveau $S_{1/2}$ qui est de 0,93565(7) [89]. Ceci nous permet d'admettre que la modification de la température des ions due à la variation de la fréquence du laser de repompage à 866nm (laser rouge) est faible par rapport à celle du laser de refroidissement à 397nm (laser bleu).

Dans cette partie, nous supposons la température du nuage d'ions constante au cours d'un balayage de la fréquence du laser rouge à fréquence du laser bleu fixe. Nous faisons une comparaison des spectres en fonction de la fréquence et de la puissance du laser bleu. Dans cette partie, les tensions de piégeages sont choisies telles que le paramètre de Mathieu est $q_x = 0,12$, et le rapport des fréquences d'oscillation axiale et radiale $\omega_z/\omega_r = 0,71$.

Élargissement de la raie par effet Doppler

Sur un échantillon de taille moyenne (4000 ions) en phase liquide, les spectres sont réalisés par balayage du laser rouge pour quatre valeurs de désaccords du laser bleu notée Δ_B. Les désaccords sont choisis négatifs pour éviter l'échauffement voir l'éjection des ions. Pour ces spectres, les paramètres des lasers sont présentés dans le tableau 3.1 et le bras contra-propageant du laser bleu est coupé pour réduire l'élargissement par saturation. Les résultats sont représentés sur la figure 3.2-(a).

Sur la figure 3.2-(a), la présence de la résonance noire est visible par une chute dans le spectre de fluorescence. La raie noire peut conduire à une extinction totale de la fluorescence

paramètres	P (mW)	diamètre (mm)	Ω_{Rabi} (MHz)	intensité (mW/mm^2)	saturation s
laser bleu	0,675	2,5	9	0,14	0,3
laser rouge	3	4	37	0,24	5

TABLE 3.1 – Paramètres des lasers pour les spectres de la figure 3.2

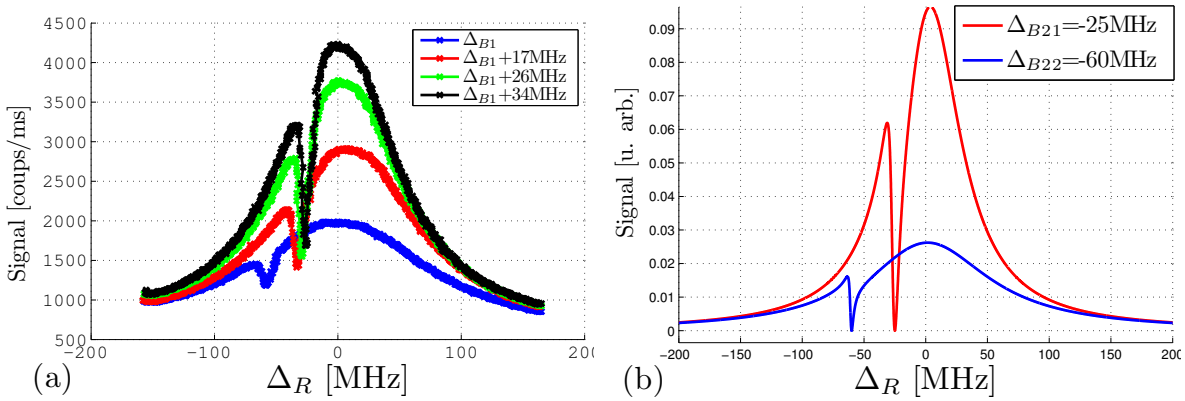

FIGURE 3.2 – (a) : spectre de fluorescence en fonction du désaccord du laser rouge pour différents désaccords du laser bleu. Le nuage est en phse liquide et sa taille est de l'ordre de 4000 ions et les puissances du laser sont celles du tableau 3.1. Le bras laser à 397nm contra-propageant est coupé. Le sommet de la courbe bleue est considéré comme le point de résonance et le désaccord des autres spectres est calibré à partir du désaccord Δ_{B1} de la courbe bleue. L'épaisseur des courbes est liée à la résolution des mesures. (b) : simulation numérique de la population de l'état excité en fonction du désaccord du laser rouge pour deux valeurs du désaccords du laser bleu à savoir Δ_{B21}=-25MHz et Δ_{B22}=-60MHz

lorsque les ions sont immobiles. En tenant compte du mouvement de l'ion dans le champ laser, la condition de résonance noire s'écrit [113] :

$$\Delta_R - \Delta_B = -\frac{\hbar}{2m}(k_R^2 - k_B^2) + \frac{p}{m}(k_R - k_B) \tag{3.1}$$

Le premier terme après l'égalité est négligeage car il est de l'ordre de 10kHz pour le $^{40}Ca^+$, le deuxième terme montre que le vecteur d'onde effectif est la différence des vecteurs d'ondes des deux lasers. Donc l'effet Doppler observé sur la raie noire est moins important lorsque les deux lasers sont co-propageant ce qui est le cas ici. À cause du mouvement oscillant dans le piège, la quantité de mouvement p varie dans le temps et la résonance noire n'est pas stable. La population de l'état excité n'est pas nulle et dans ce cas il n'y a pas extinction totale de fluorescence. Grâce à la dispersion de la quantité de mouvement p au sein du nuage, la raie noire peut s'élargir par effet Doppler. Sur la figure 3.2-(a), on n'observe pas de variation de l'élargissement de la résonance noire en fonction du désaccord bleu ; chaque raie noire a une largeur d'environ 8MHz. Si on considère une largeur total Doppler de 8MHz, cela se traduit par une température de 167mK [1]. D'après les densité typique (9.10^4 ions/mm^3) du nuage, on obtient un paramètre plasma $\Gamma_{PL} = 7$ (relation 1.45) qui

1. $(k_R - k_B)p/m = 8$MHz et $mv^2/2 = k_BT/2$

correspond à la phase liquide. Si la température varie entre les quatre spectres de la figure 3.2-(a), cette variation est trop faible pour être observée sur la raie noire.

L'élargissement Doppler intervient aussi dans largeur total de la raie. Mais à cause de la présence de la résonance noire, le profil du spectre ne suit pas une équation connue. Il est donc difficile d'exploiter la largeur à mi-hauteur du spectre (figure 3.2-(a)) pour évaluer une température du nuage [2]. Ces largeurs sont néanmoins résumées dans la tableau 3.2 pour différents désaccords du laser bleu. Nous observons la réduction de la largeur du

Δ_B (MHz)	Δ_{B1}	Δ_{B1}+17	Δ_{B1}+26	Δ_{B1}+34
Γ_{eff} (MHz)	133	126	109	100

TABLE 3.2 – Largeur Γ_{eff} du spectre en fonction du désaccord effectif du laser bleu

spectre lorsque le désaccord du laser bleu augmente et se rapproche de la résonance. Ce rétrécissement est observé sur les spectres calculés par résolution des équations de Bloch optiques sans effet Doppler. La figure 3.2-(b) présente la population de l'état excité calculée en fonction du désaccord du laser rouge pour deux désaccords du laser bleu à savoir Δ_{B21}=-25MHz et Δ_{B22}=-60MHz. Bien qu'ils n'incluent pas d'effet Doppler, ces calculs reproduisent les profils observés expérimentalement et leurs largeurs passent de 71MHz (pour Δ_{B21}) à 132MHz (pour Δ_{B22}). Cette comparaison, ainsi que les observations faites sur la raie noire, montrent qu'il n'est pas possible de déduire un effet Doppler de la largeur des spectres.

Une autre cause d'élargissement est l'élargissement par saturation dû à une puissance laser rouge très élevée. Ce dernier type d'élargissement est analysé dans la section suivante.

Élargissement par saturation

Dans ce paragraphe, le désaccord du laser bleu est choisi pour assurer un plus grand signal. Sur un nuage d'un millier d'ions, les spectres en fréquence rouge sont réalisés pour quatre puissances du laser rouge : P_R=21,8mW, 14,6mW, 5,7mW et 2,5mW avec une puissance du laser bleu de 1,5mW sur chaque bras. Les résultats de ces mesures sont représentés sur la figure 3.3. Nous observons des profils constitués de deux lobes et un déplacement du sommet du pic vers les hautes fréquences. Ce type profil et déplacement est connu des système à trois niveaux en forme de Λ et représente le déplacement par effet lumineux similaire à l'effet Autler-Townes dans les systèmes à deux niveaux. Ce déplacement lumineux a déjà été observé dans la référence [113]. Nous remarquons également un élargissement du spectre. Le tableau 3.3 résume les différentes largeurs à mi-hauteur du spectre de la figure 3.3 en fonction de la puissance du laser rouge. Dans la section (1.4.1), nous avons vu que

P_R (mW)	2,5	5,7	14,6	21,8
Γ_{eff} (MHz)	45	65	110	130

TABLE 3.3 – Largeur Γ_{eff} du spectre en fonction de la puissance du laser rouge.

l'élargissement de la raie par saturation suit la loi $\Gamma_{eff} = \sqrt{\Gamma^2 + \Omega_{Rabi}^2/2}$ dans un système

2. l'alternative à cette analyse est d'utiliser un système à cinq niveaux comme décrit dans la section 1.4.3

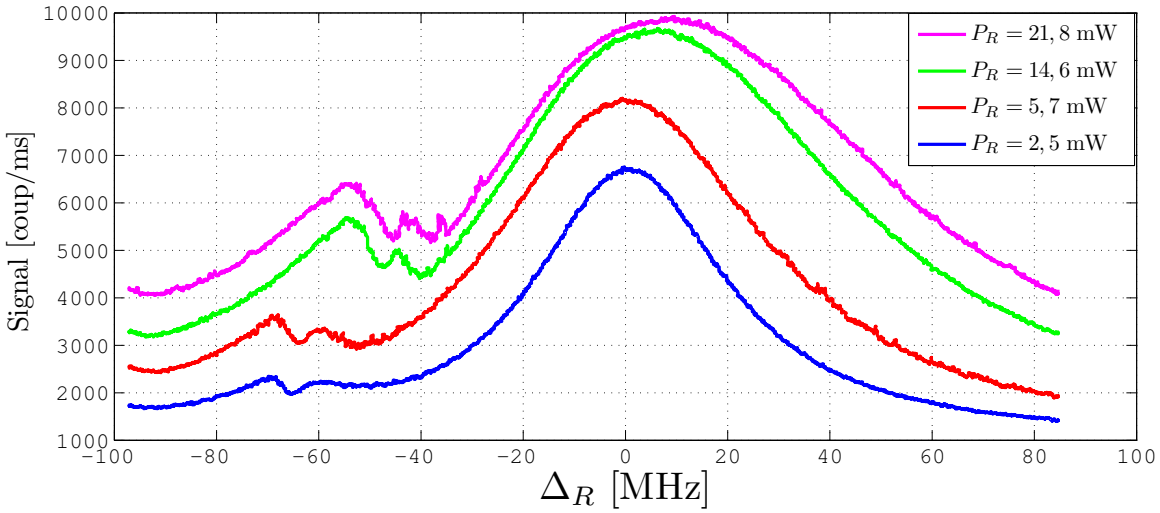

FIGURE 3.3 – Signal de fluorescence d'un nuage d'un millier d'ions en fonction du désaccord laser rouge pour quatre valeurs de la puissance : P_R=21,8mW, 14,6mW, 5,7mW et 2,5mW. La puissance de chaque bras du laser bleu est $P_B = 1,5$mW. Le signal de fond pour ces spectres est de 1000coups/ms. La fréquence centrale de la résonance de la transition rouge est considérée comme étant le sommet de la courbe bleue (avec un minimum de déplacement lumineux).

à deux niveaux. Donc à saturation de la transition($\Gamma^2 \ll \Omega^2_{Rabi}$), la largeur du spectre est proportionnelle à $\sqrt{P_L}$. Telle est le cas ici avec $P_L = P_R$ d'après le tableau 3.3. Nous déduisons de ce comportement que la cause majeur de l'élargissement est l'élargissement par saturation. Un élargissement de la raie par saturation est un facteur limitant pour le refroidissement laser. En effet, cela augmente la température minimale atteinte par les ions et peut aussi causer un chauffage des ions.

De ces études, nous pouvons conclure que pour un meilleur refroidissement des ions, une faible puissance des lasers suffit. Nous choisissons de travailler avec des puissances du rouge inférieure à 5mW (soit une intensité de 0,39mW/mm^2) et la puissance du laser bleu inférieure à 4mW (soit 0,31mW/mm^2). Dans la suite de cette partie, nous étudions la formation des cristaux d'ions dans les potentiels quadrupolaires.

3.1.2 Étude des transitions de phase gaz-liquide

Les transitions de phases gaz/liquide dans les pièges radio-fréquence se manifestent expérimentalement par des chutes abruptes du signal de fluorescence lors d'un balayage du laser de refroidissement alors qu'on attend une transition gaz-liquide continue, car le potentiel inter-atomique est purement répulsif [66, 114]. Dans cette partie, nous analysons le signal associé à ces transitions de phase. Pour cela, la fréquence du laser bleu est balayée pour une fréquence du laser rouge fixe. Au cours du balayage, le passage progressif du nuage d'une phase à une autre est observé sur le photomultiplicateur PM1 et la caméra intensifiée CCD. Sur la figure 3.4-(a) est représentée un spectre de la transition bleue avec le laser rouge optimisé pour avoir un signal maximal. Nous observons une chute abrupte du signal

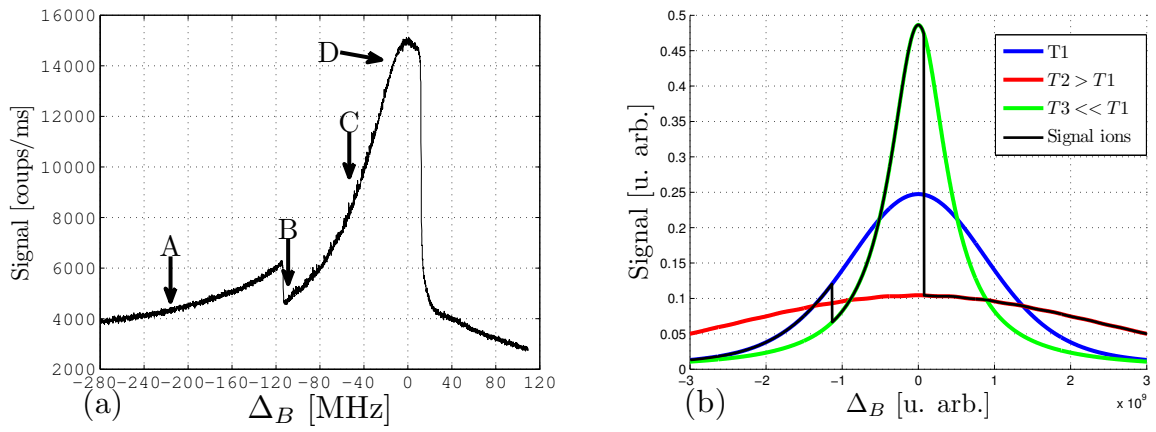

FIGURE 3.4 – Spectre de fluorescence en fonction du désaccord du laser bleu. (a) : mesure expérimentale pour $V_{RF} = 950V_{PP}$. (b) : Schéma de principe de la transition de phase modélisée dans un système à deux niveaux sans résonance noire. Les courbes bleue et rouge sont des spectres en phase gazeuse (avec des température T_1 et T_2 respectivement), la courbe verte, le spectre en phase liquide (à la température T_3) et la courbe noire le spectre suivi par les ions.

[55]. Pour comprendre cette chute de signal, des images sont prises par la caméra ICCD à différents points du spectre. La figure 3.5 présente les photos du nuage dans différents points A, B, C et D de la figure 3.4-(a). L'image (a) est prise à la position A, l'image (b) à la position B, l'image (c) à la position C et l'image (d) à la position D. À la transition de phase en B, le nuage passe dans un état où les bords sont résolus et la fluorescence est uniforme à l'intérieur : c'est la phase liquide. Ensuite en C, des lignes commencent à se former à l'intérieur et tendent alors vers des structures plus ordonnées en D où les ions sont résolus individuellement : c'est le cristal de Coulomb. La chute de fluorescence marquerait donc la transition entre la phase gazeuse et la phase liquide.

Pour expliquer ce profil, nous faisons un schéma de principe. La figure 3.4-(b) représente trois spectres pour différentes températures. Les courbes bleue et rouge sont des phases gazeuses avec pour température T_1 et T_2 telles que $T_1 < T_2$ et la courbe verte, le spectre d'un nuage à l'état liquide. Au cours du refroidissement laser, le signal suit la courbe bleue. Lorsque le refroidissement devient plus important que le chauffage RF, le signal passe subitement au spectre vert ce qui correspond au passage du nuage à l'état liquide. Après la résonance, le signal de fluorescence décroît très rapidement et se place sur la courbe rouge. Cela s'explique par le fait que pour qu'il y ait un refroidissement, les atomes doivent absorber des photons contra-propageant ce qui est réalisé par une fréquence laser inférieure à celle de résonance ($\omega_L < \omega_0$). Lorsque $\omega_L > \omega_0$, le laser induit du chauffage dans le nuage et la probabilité d'excitation diminue très rapidement à cause d'une brusque augmentation de l'effet du chauffage laser cumulé avec le chauffage RF. Cette dernière transition de phase est la sublimation car le nuage quitte la phase cristalline et entre dans un état gazeux beaucoup plus chaud. La transition gaz-liquide dépend fortement de l'amplitude V_{RF} [22] de la tension radio-fréquence liée au chauffage RF. En effet, lorsque V_{RF} augmente, la transition de phase est atteinte pour des fréquences laser de plus en plus élevées (figure 3.6). Il existe même une amplitude RF pour laquelle aucune transition de

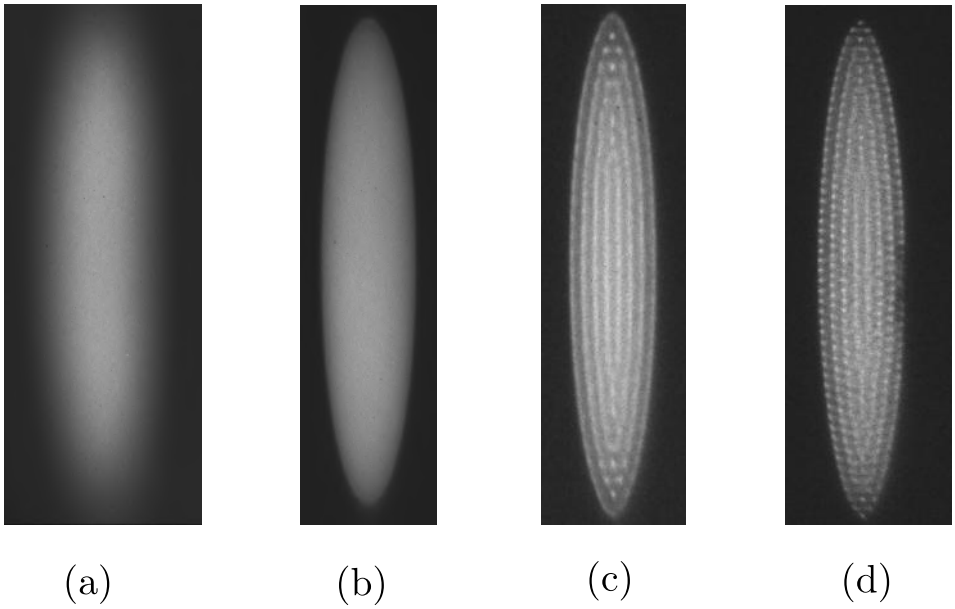

FIGURE 3.5 – Images du nuage à différentes phases du refroidissement suivant la figure 3.4-(a). Image prise aux points A (a) , B (b), C (c) et D (d). L'axe z du piège est orienté verticalement.

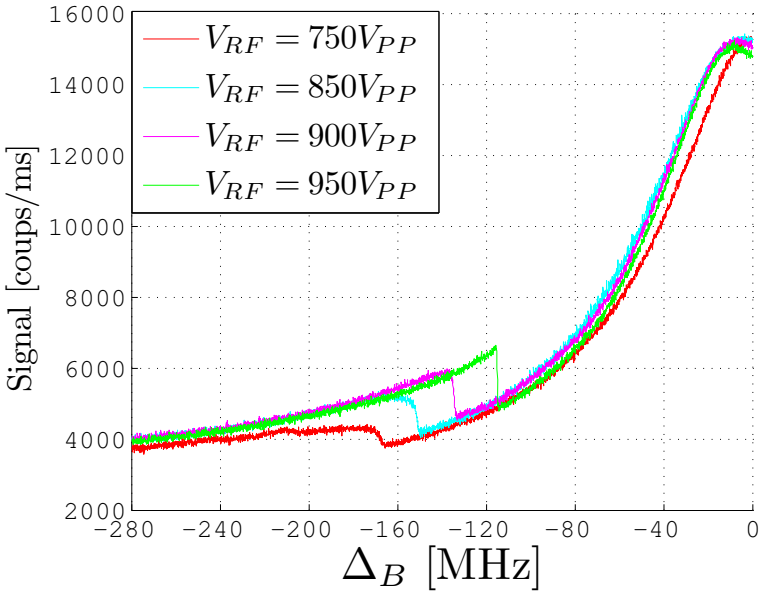

FIGURE 3.6 – Spectres de fluorescence pour différentes amplitudes V_{RF} allant de 750 à 950 V_{PP} et mettant en évidence les transition de phase.

phase n'est observable. Dans ce cas le chauffage RF reste dominant tout au long du spectre et le nuage d'ions reste en phase gazeuse. De plus, dans les pièges RF, le chauffage RF augmente avec l'étendue spatiale du nuage dans la direction radiale. La valeur limite de V_{RF} pour laquelle une transition est observée est d'autant plus faible que le nombre d'ions piégés est important. La transition abrupte de phase résulte donc d'une compétition entre l'effet de chauffage radio-fréquence et le refroidissement laser [22, 55]. Pour confirmer cette affirmation, il suffit de comparer les spectres obtenus ici avec ceux en pièges de Penning où il n'y a pas de chauffage RF. Les spectres ne montrent pas ces sauts abrupts [115]. Par ailleurs, dans le piège octupolaire où le chauffage RF est très faible, la transition de phase ne se manifeste presque jamais par un saut dans le spectre (cf chapitre 5)

Une baisse abrupte de signal n'est donc pas une condition nécessaire pour observer des phases cristallines mais suffisante pour identifier le passage d'une phase désordonnée vers une phase plus ordonnée. Cependant, la transition liquide-cristal est continue. Cela peut s'expliquer par le fait qu'entre la phase liquide et cristalline, la densité varie très peu et donc le chauffage RF aussi. En effet, les simulations de dynamique moléculaire [56, 116] montrent que le chauffage RF est faible dans la phase ordonnée.

La transition gaz-liquide se manifeste parfois pour certains paramètres expérimentaux (le nombre d'ions, les tensions de confinement et puissances lasers) par plusieurs chutes de signal (voir la figure 3.7). Nous analysons cela dans le paragraphe suivant.

3.1.3 Transitions de phase en plusieurs sauts

Au cours de nos expériences réalisées avec une puissance du laser bleu P_B réduite, dans certaines conditions de piégeage (V_{RF} et V_{DC}) et nombres d'ions piégés, nous observons plusieurs chutes dans le signal au cours d'un même spectre (voir figure 3.7). Ces observations sont originales car à l'heure actuelle ce comportement n'a jamais été mentionné dans la littérature. Dans cette partie, nous tentons d'expliquer ce phénomène.

Le profil de la transition en plusieurs sauts dépend du désaccord du laser rouge. La figure 3.7 présente quelques spectres à 397nm pour différents désaccords du laser rouge en gardant les autres paramètres constants. Pour ces spectres, Δ_B reste inférieur à -100MHz pour être loin de la résonance. Nous observons deux chutes de signal dans chaque cas. L'observation de la morphologie du nuage sur la caméra montre que la phase liquide apparaît après le deuxième saut de signal. Dans le cas de plusieurs sauts de signal, la phase liquide est observée après le dernier saut. Plusieurs observations sont faites sur la figure 3.7 en fonction du désaccord du laser rouge :

1. Loin de la résonance de la transition bleue, l'amplitude du signal est d'autant plus faible que le désaccord laser rouge tend vers zéro. Après le double saut, le contraire est observé ; la pente du signal devient de plus en plus important lorsqu'on approche de la résonance (Δ_R=0).
2. L'écart entre les deux sauts diminue quand la fréquence du laser rouge tend vers la résonance.
3. La première chute du signal a lieu lorsque le signal atteint un certain seuil quel que soit le désaccord laser rouge et la deuxième chute de signal semble avoir lieu pour la même fréquence du laser bleu.
4. Les courbes entre les deux chutes de signal du spectre sont superposées quel que soit la fréquence du laser rouge, la température initiale et finale du nuage. Tout se

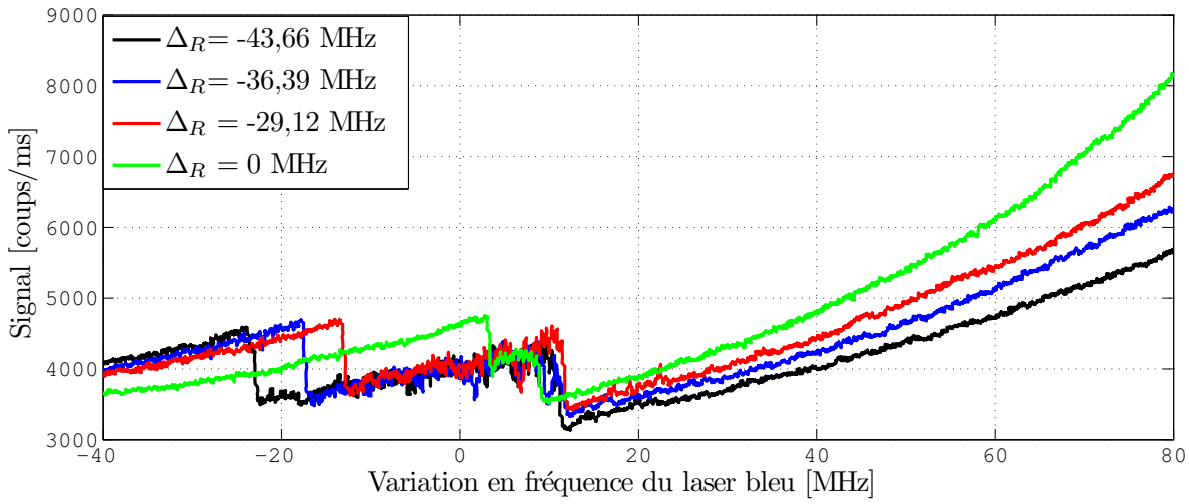

FIGURE 3.7 – Signal d'un nuage de quelques milliers d'ions en fonction de la fréquence du laser bleu pour plusieurs valeurs de Δ_R. Les tensions de piégeage sont telles que $q_x = 0,12$ et $\omega_z/\omega_r = 0,71$. La référence de la fréquence laser bleu est choisie arbitrairement. Le calibrage du désaccord du laser rouge de différents spectres est fait sur la courbe rouge (spectres réalisés pendant le stage de David Busto).

passe comme si ces portions de spectres appartiennent toutes à un même spectre Doppler.

Face à toutes ces observations, nous proposons un mécanisme permettant d'expliquer ces spectres. Dans la partie du spectre montré dans la figure 3.7, lorsque la fréquence du laser bleu est balayée vers la résonance, la diminution de l'agitation thermique réduit le nombre de collisions entre particules et donc le chauffage RF. Pour une valeur critique du signal qui correspond au même taux de refroidissement, le refroidissement l'emporte sur le chauffage RF et la température chute brusquement. Cette baisse brutale de la température mène à un effondrement du nuage sur lui même, la densité et le chauffage RF augmentent jusqu'à compenser le refroidissement. Le nuage atteint alors un second état d'équilibre à une température plus basse. Pour des situations de chauffage RF élevés (N et V_{RF} grand), ce mécanisme se reproduit plusieurs fois jusqu'à ce que la densité soit maximale, qui caractérise la phase liquide. Quand le refroidissement laser est suffisant, un seul saut de signal conduit à la phase liquide comme montré sur les spectres de la figure 3.6.

Comme le chauffage RF ne dépend pas de la fréquence du laser rouge, c'est le niveau de signal qui conditionne le passage dans un nouvel état d'équilibre. Cette explication est compatible avec la troisième observation. De plus, l'existence d'un seuil en fréquence pour la deuxième chute est compatible avec la quatrième observation.

La transition de phase en plusieurs sauts est donc due à un excès de chauffage RF ou une insuffisance de refroidissement laser. Ces types de transitions sont d'ailleurs très souvent observés pour des puissances laser faibles.

Les transitions en plusieurs sauts de signal se produisent généralement pour des nombres d'ions et des tensions RF élevés. La figure 3.8 présente jusqu'à trois chutes de signal pour une tension RF de $830V_{PP}$ sur un nuage de 1,2 10^4 ions. Nous avons même

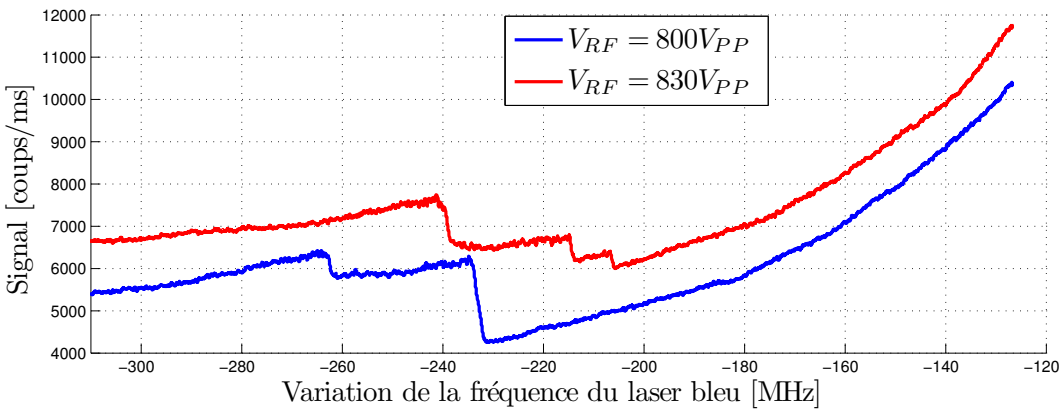

FIGURE 3.8 – Signal d'ions d'un même nuage contenant 1,2 10^4 ions en fonction de la fréquence du laser bleu pour deux valeurs de V_{RF} : $800V_{PP}$ et $830V_{PP}$. La tension DC est V_{DC}=1200V. La référence de la fréquence bleue est prise arbitrairement.

observé des transitions de phase se caractérisant par cinq chutes de signal sur des nuages d'une centaine de milliers d'ions.

Nous venons de voir que le signal de fluorescence peut comporter la signature d'une transition de phase gaz-liquide observée sur le photomultiplicateur aussi bien que sur la caméra. Nous utilisons maintenant une autre signature dans le spectre des ions pour caractériser les fréquences propres de leur mouvement.

3.2 Excitation paramétrique du nuage en piège quadrupolaire

Dans un piège de Paul, le mouvement des ions en phase gazeuse très diluée est décrite par les équations de Mathieu (chapitre 1). Dans les conditions d'adiabaticité et de faible densité, la dynamique des ions est décrite comme celle des oscillations harmoniques indépendantes dans les directions axiale et radiale. Pour caractériser le puits de potentiel effectivement créé, le moyen le plus précis reste la mesure des fréquences propres des ions dans le spectre du mouvement. Pour mesurer ces fréquences du mouvement, une méthode consiste à utiliser l'excitation paramétrique d'un nuage d'ions confiné. L'excitation paramétrique des ions consiste à les exciter à une fréquence variable. Lorsque la fréquence d'excitation prend certaines valeurs spécifiques en résonance avec la fréquence d'oscillation des ions, le système entre en résonance non linéaire. Il peut se produire alors une instabilité sur la trajectoire des ions qui conduit à l'échauffement et peut aller jusqu'à l'expulsion de ceux-ci à l'extérieur du piège [117, 118, 119]. Ce phénomène est généralement observé sur le signal de fluorescence par des chutes drastiques du signal. Pour caractériser le mouvement des ions, une petite tension oscillante ("tickle") de fréquence variable est additionnée aux tensions de confinement. Dans notre dispositif expérimental, nous ne disposons pas actuellement des moyens nécessaires pour ajouter une tension aux barreaux du piège. Nous nous contentons d'ajouter une perturbation sur la tension statique appliquée aux électrodes DC responsable du confinement le long de l'axe.

Dans cette partie, nous nous inspirons de l'analyse du mouvement faite dans la référence [120] pour la mise en équation. Si on néglige l'interaction coulombienne, le mouvement des ions sur l'axe du piège en absence de perturbation est donné par :

$$\frac{d^2z}{dt^2} + \omega_z^2 z = 0 \tag{3.2}$$

avec $\omega_z^2 = 2q\kappa V_{DC}/mz_0^2$. Une excitation d'amplitude $V_0 \cos\omega t$ est appliquée sur les électrodes DC et l'équation (3.2) devient celle d'un oscillateur paramétrique :

$$\frac{d^2z}{dt^2} + \omega_z^2 z = (F\cos\omega t)\, z \tag{3.3}$$

avec $F = 2q\kappa V_0/mz_0^2$. V_0 est choisie suffisamment faible par rapport aux tensions de confinement ($V_{DC} \gg V_0$) qu'elle peut être considérée comme une perturbation au potentiel. Cela permet d'éviter un excès d'échauffement, voire l'éjection des ions hors du piège. L' équation (3.3) peut être transformée en une équation de Mathieu en posant $t = \tau/\omega$.

$$\frac{d^2z}{d\tau^2} + (a_z' - 2q_z' \cos 2\tau)\, z = 0 \tag{3.4}$$

où a_z' et q_z' sont de nouveaux paramètres de Mathieu dépendant ici de la fréquence et de l'amplitude de l'excitation.

$$a_z' = \left(\frac{2\omega_z}{\omega}\right)^2 \tag{3.5}$$

$$q_z' = \frac{2F}{\omega^2} \tag{3.6}$$

Le but de notre étude est de déterminer les fréquences ω du tickle qui induisent des instabilités dans le piège. Une étude plus générale des équations de Mathieu [51] montre que les régions instables dans le diagramme de stabilité (voir la figure 3.9) rejoignent l'axe des $q_z' = 0$ en $a_z' = n^2$ où n est un entier. Ces instabilités qui peuvent donc être générées par une perturbation très faible, sont de type paramétrique et sont bien connues dans la littérature classique [121]. La condition de résonance paramétrique sur l'axe du piège est déduite de l'équation (3.5)

$$\omega_n = \frac{2\omega_z}{n}, \qquad n = 1, 2, 3... \tag{3.7}$$

Dans la suite, nous tentons expérimentalement d'identifier les différentes fréquences ω_n dans le spectre du mouvement en piège quadrupolaire afin de déterminer la fréquence du mouvement ω_z dans chaque zone quadrupolaire du piège.

3.2.1 Mesure de fréquences d'oscillation ω_z en piège quadrupolaire PI

Dans cette partie, afin de caractériser la fréquence d'oscillation des ions dans le piège, nous mettons en évidence la résonance paramétrique de l'équation (3.7). Pour cela, un petit nuage de quelques milliers d'ions est créé dans le piège quadrupolaire PI. La fréquence

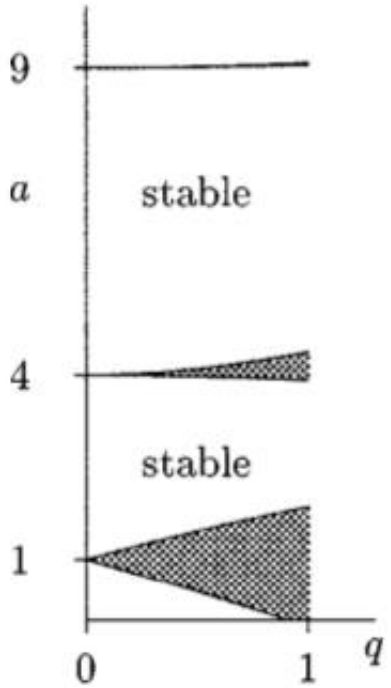

FIGURE 3.9 – Diagramme de stabilité des équations de Mathieu. Les zones hachurées correspondent aux solutions exponentiellement instables et les zones blanches aux solutions stables. Schéma issu de la référence [120].

du laser de refroidissement est décalée vers le rouge pour assurer une faible efficacité de refroidissement et garder les ions en phase gazeuse. En effet, réaliser l'excitation paramétrique sur des nuages en phase gazeuse permet de limiter l'effet de charge d'espace qui couple les degrés de liberté du mouvement et déplace la raie. Les tickles appliqués aux électrodes de confinement axial sont limités en fréquence par la bande passante des alimentations haute tension d'environ 80kHz. Ceci oblige à travailler à basse tension DC et RF de façon à avoir une fréquence ω_z compatible avec cette bande passante. L'amplitude de la tension radio-fréquence est fixée à $V_{RF} = 825V_{PP}$. Le choix des tensions V_{DC} est guidé par les estimations numériques de la raideur du puits de potentiel grâce au logiciel Simion [100]. Ce calcul prévoit qu'une fréquence ω_z de 80kHz est obtenue pour $V_{DC} = 550V$. Les expériences d'excitation paramétrique sont faites alors avec des tensions V_{DC} inférieures à 350V. Nous appliquons, en plus des potentiels V_{DC} sur les électrodes DC_1 et DC_2, un tickle d'amplitude $V_0 = 8V_{PP}$ avec une fréquence balayée de 10kHz à 70kHz. Un exemple de spectre obtenu pour $V_{DC} = 200V$ est représenté sur la figure 3.10-(a). Nous remarquons la présence de quelques pics positifs au lieu des pics négatifs attendus pour ces spectres. Nous les identifions par comparaison avec les calculs comme étant $\omega_2 = \omega_z$ et $\omega_4 = \omega_z/2$. Pour affiner nos mesures et les rendre aussi précises que possible, l'expérience d'excitation paramétrique est refaite en balayant la fréquence autour de la raie $\omega_z/2$ (raie plus fine que la raie ω_z). L'expérience est répétée pour plusieurs valeurs de V_{DC} comprise entre 70 et 350V. Les carrés des fréquences ω_z obtenues sont donnés sur la figure 3.10-(b) en fonction de V_{DC}. Nous avons pris la valeur maximale de l'incertitude sur la mesure de $\omega_z/2\pi$, soit $\pm 0,15$kHz pour tracer cette courbe. La relation entre ω_z^2 et V_{DC} est linéaire comme le

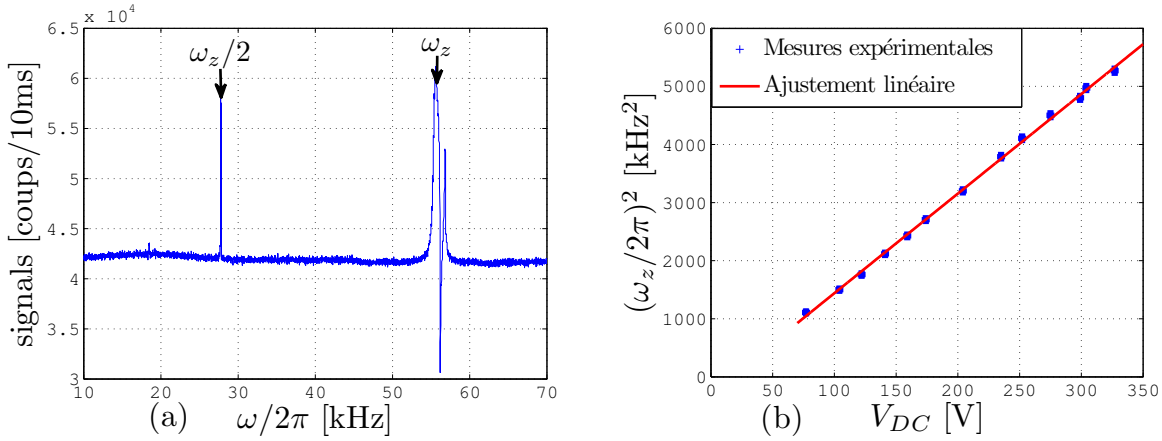

FIGURE 3.10 – Excitation paramétrique dans PI avec $V_0 = 8V_{PP}$. (a) : spectre du mouvement pour V_{DC}=200V. (b) : évolution de ω_z^2 en fonction de V_{DC}. Les points bleus représentent les mesures expérimentales et la droite rouge l'ajustement linéaire. Les barres d'erreur des mesures expérimentales sont plus petites que la taille des points.

montre l'équation théorique (1.18). Un ajustement de ces points expérimentaux permet de déduire la relation entre ω_z et V_{DC}.

$$(\omega_z/2\pi)^2 = (17,13 \pm 0,38)\, V_{DC} - (275 \pm 50) \quad (\text{ kHz})^2 \tag{3.8}$$

La relation (3.8) a une ordonnée à l'origine non nulle. Cela peut provenir d'un potentiel électrostatique généré par d'autres sources d'alimentation ou alors le plus probable, que le pseudo-potentiel ne serait pas parfaitement harmonique. Pour un choix de V_{DC} supérieur à 800V (ordre de grandeur du potentiel de travail), ce terme constant devient négligeable. Nous l'ajoutons dans la barre d'erreur de mesure. La relation entre ω_z et V_{DC} est donc donnée par.

$$\omega_z/2\pi = (130,8 \pm 1,0)\sqrt{\frac{V_{DC}}{1000}} \quad \text{kHz} \tag{3.9}$$

D'après la relation (1.18), le paramètre d'écrantage dans PI est évalué par : $\kappa = (15,6 \pm 0,3) \times 10^{-3}$.

3.2.2 Mesure de fréquences d'oscillations en PII

Pour réaliser l'expérience d'excitation paramétrique dans la deuxième partie quadrupolaire du piège (PII), l'objectif de détection est déplacé vers PII. Les ions sont créés dans PI puis transportés dans PII. Le protocole de transport est décrit dans le chapitre (4). Un tickle de fréquence variable est appliqué sur les électrodes DC_2 et DC_3. Pour une tension $V_{RF} = 878V_{PP}$ et $V_{DC} = 200V$, le résultat est représenté sur la figure 3.11-(a). Comme en PI, les pics sont positifs, $\omega_2 = \omega_z$ et $\omega_4 = \omega_z/2$ sont identifiés. L'expérience est reprise pour des valeurs de V_{DC} comprises entre 80 et 205V. Un ajustement linéaire de la relation entre ω_z^2 et V_{DC} (figure 3.11-(b)) permet de déduire une relation simple entre ω_z et V_{DC} (3.10).

$$\omega_z/2\pi = (102,8 \pm 1,0)\sqrt{\frac{V_{DC}}{1000}} \quad \text{kHz} \tag{3.10}$$

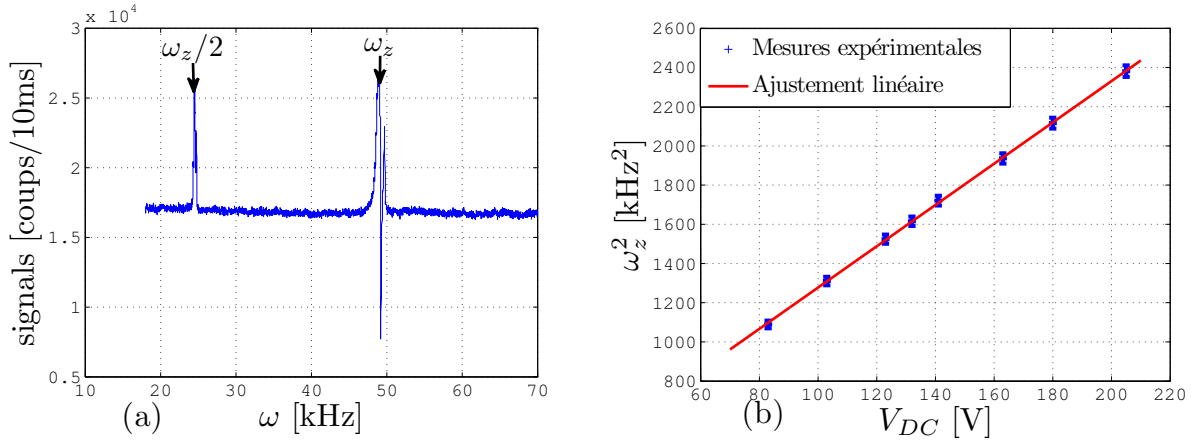

FIGURE 3.11 – Excitation paramétrique dans PII avec $V_0 = 10V$. (a) : spectre du mouvement pour V_{DC}=200V. (b) : évolution de ω_z^2 en fonction de V_{DC}. Les points bleus représentent les mesures expérimentales et la droite rouge, l'ajustement linéaire de ces points.

En appliquant la relation (1.18), la valeur du paramètre d'écrantage dans PII est estimé par $\kappa = (9,6 \pm 0,2) \times 10^{-4}$.

Les valeurs de ω_z déterminées expérimentalement dans PI et PII sont différentes entre elles alors que la géométrie et les paramètres de piégeage sont identiques dans les deux parties du piège. De plus, ces fréquences d'oscillation sont différentes de la valeur attendue par les calculs numériques (en ajustant le fond du potentiel par l'équation d'un oscillateur harmonique), qui est de 107,5kHz pour 1000V. La valeur obtenue en PII est plus proche de la valeur attendue alors que la valeur en PI est 30% plus grande. Ces différences peuvent être imputées aux imperfections existantes dans le piège PI qui seront présentées plus loin et qui affectent l'harmonicité du potentiel. Les fréquences d'oscillation ainsi déterminées seront utiles pour vérifier les lois théoriques concernant la morphologie du nuage dans les pièges et dénombrer le nombre d'ions piégés.

L'analyse des spectres de la figure 3.10-(a) et 3.11-(a) permet de constater que les résonances se manifestent également par des augmentations de signal et non seulement par des chutes comme énoncé en début de section. Pour comprendre ce comportement inattendu, une analyse numérique et expérimentale est menée.

3.2.3 Interprétation des résonances paramétriques

Généralement dans les pièges radio-fréquence, les résonances paramétriques se manifestent par des chutes dans le signal de fluorescence induites par un élargissement Doppler du spectre d'absorption. Cependant, lors des mesures dans le piège PI, PII et même dans l'octupole, des augmentations de signal sont observées tout comme dans la référence [122]. Dans cette référence, il y a une explication proposée : la présence des pics positifs serait due à une diminution du désaccord laser induite par effet Doppler. Dans ce paragraphe, nous tentons de valider cette hypothèse.

Analyse numérique

Nous résolvons l'équation (3.4) pour un ion unique (approximation valable en phase gazeuse) pour un cas d'équation instable n=2 (voir figure 3.9). Dans ce cas, $a_z = 4$ et $\omega_2 = \omega_z$; avec ω_z=60kHz. Nous intégrons l'équation du mouvement pour deux valeurs de q'_z (0,078 et 0,01). Les conditions initiales sont fixées telle que $z(t = 0)$=0,2mm et une vitesse initiale nulle. La figure 3.12 représente les positions occupées par l'ion en fonction du temps. Pour q'_z =0,078 (a), l'amplitude augmente jusqu'à diverger : il y a bien une

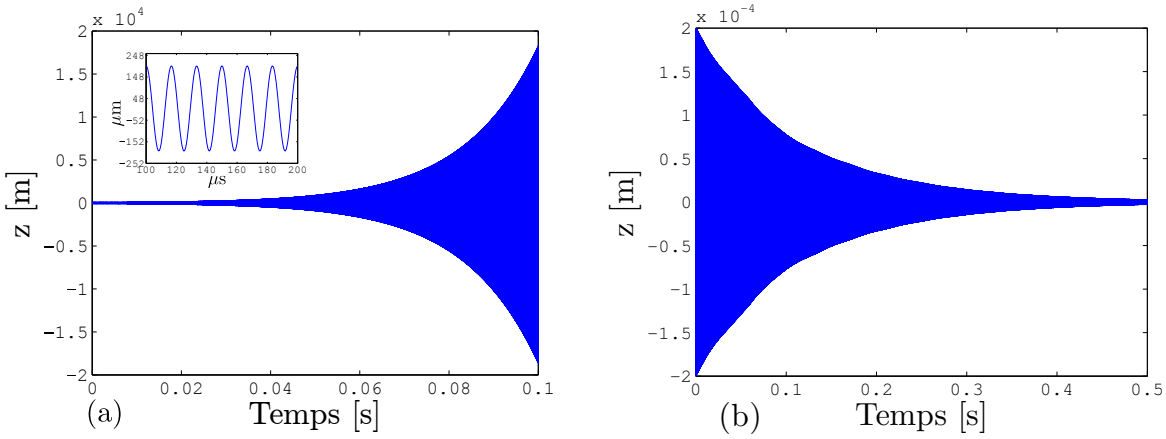

FIGURE 3.12 – Amplitude du mouvement en fonction du temps pour q=0,078 (a) et 0,01 (b). L'encart dans l'angle supérieur gauche représente un zoom entre 100 et 200μs.

instabilité dans la trajectoire de la particule, comme attendue. Cependant, pour q'_z=0,01 (a), l'amplitude des oscillations diminue au cours du temps. Dans ce cas tout se passe comme si, en résonance paramétrique, il y avait un refroidissement des ions au lieu d'un échauffement. Pour mieux comprendre ce comportement, nous étudions l'évolution de l'amplitude du mouvement d'un ion à un instant t_f en fonction de la fréquence d'excitation autour d'une résonance paramétrique. Dans la pratique, pour différentes valeurs de ω on résout l'équation du mouvement (3.4) pour ω_z et F fixés. Le paramètre a_z est donné par la relation (3.5) et q'_z par la relation (3.6). Nous comparons alors les spectres pour deux gammes de q'_z, petit et grand, en changeant l'amplitude d'excitation V_0. La figure 3.13 présente l'amplitude de la particule en fonction de ω autour de ω_z pour $V_0 = 8V_{PP}$ (a) et $V_0 = 3V_{PP}$ (b) au bout d'un temps donné. En résonance, dans le cas où $V_0 = 8V_{PP}$ (q'_z est grand), le mouvement de la particule croit très vite. Par contre dans le cas $V_0 = 3V_{PP}$ (q'_z petit) en résonance, l'amplitude du mouvement baisse par rapport au cas hors résonance. Ces observations numériques permettent de montrer que pour des faibles q'_z, l'excitation paramétrique entraîne un refroidissement supplémentaire des ions. Il existe un seuil q'_{zm} du paramètre q'_z pour lequel il y a passage de la réduction à l'augmentation de l'amplitude. Une étude plus approfondie pour différents paramètres a'_z et q'_z a identifié les seuils q'_{zm} pour les quatre premières résonances (tableau 3.4).

Ces calculs numériques peuvent expliquer l'augmentation du signal de fluorescence dans les mesures lors d'une excitation résonante. Cette augmentation du signal n'est finalement pas due au désaccord laser induit par effet Doppler. Cette étude numérique est confirmée par une analyse expérimentale de la résonance.

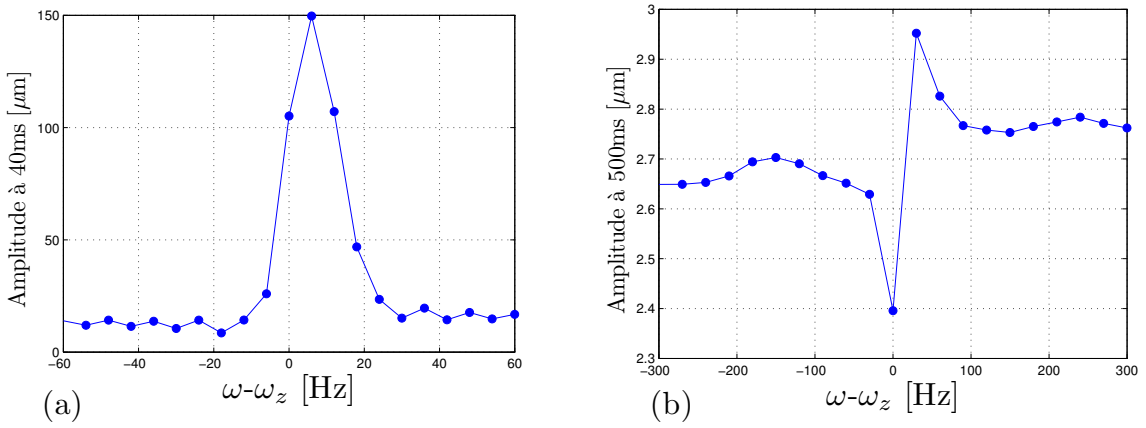

FIGURE 3.13 – Amplitude du mouvement pour $V_0 = 8V$ (q'_z grand) à t_f =40ms (a) et pour $V_0 = 3V$ (q'_z petit) à t_f=500ms (b).

résonance	n=1 ($2\omega_z$)	n=2 (ω_z)	n=3 ($2\omega_z/3$)	n=4 ($\omega_z/2$)
q'_{zm}	$3,8 \times 10^{-4}$	6×10^{-2}	2,5	5,8

TABLE 3.4 – Différentes valeurs de q'_{zm} pour les quatre premières résonances avec la condition initiale $x(t = 0)$=0,2mm et une vitesse initiale nulle.

Analyse expérimentale

L'excitation paramétrique en PI pour différentes valeurs V_0 de la tension du tickle conduit aux résultats de la figure 3.14. Cette figure montre que selon la valeur de V_0, l'excitation résonante se traduit par la croissance du signal de fluorescence (cas V_0 plus faibles) ou par sa diminution (cas V_0 plus élevés). Cette observation est compatible avec les simulations du paragraphe précédent. En effet, une baisse d'amplitude du mouvement peut se manifester expérimentalement par une hausse de signal de fluorescence et une augmentation de l'amplitude par une chute de signal.

Par ailleurs, si on reproduit ces expériences pour différentes conditions de piégeage RF (différentes V_{RF} : figure 3.15), on remarque que l'on passe d'un cas faible à forte excitation en gardant l'amplitude d'excitation V_0 constante et en augmentant V_{RF}. Ceci montre qu'il y a un effet d'amplification de l'excitation paramétrique le long de l'axe par le champ RF. Cet effet, non linéaire lui aussi, n'est pas pris en compte dans le modèle à une dimension utilisé ici.

Les confrontations des observations numériques et expérimentales ont permis de comprendre que l'excitation paramétrique peut se manifester par une hausse de signal pour une amplitude d'excitation suffisamment faible. Cela est due à un amortissement des oscillations des ions dans le piège. Cette étude nous permet de valider la méthode de l'excitation paramétrique pour identifier les fréquences de mouvement des ions quelque soit la réponse dans le signal de fluorescence. Dans la section suivante, nous poursuivons notre caractérisation en présentant une technique d'analyse du signal d'ions froids issu de la caméra

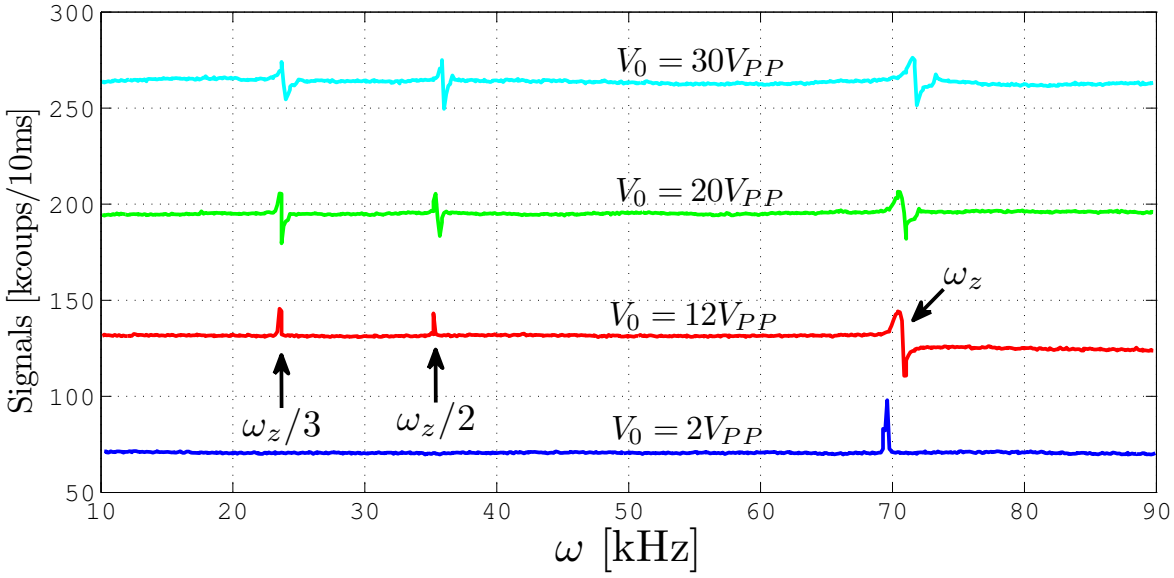

FIGURE 3.14 – Évolution du signal de fluorescence en fonction de la fréquence d'excitation pour différentes valeurs de V_0 à $V_{RF} = 1045V_{PP}$. Chaque courbe est décalée en amplitude pour mieux distinguer les spectres.

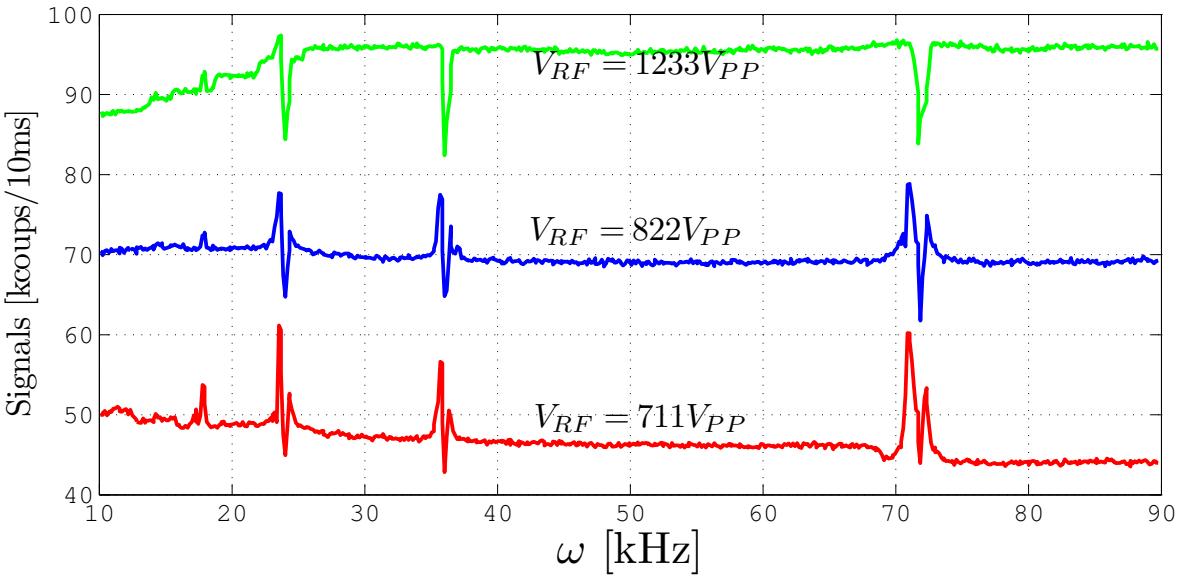

FIGURE 3.15 – Évolution du signal de fluorescence en fonction de la fréquence d'excitation pour pour différentes valeurs de V_{RF} à $V_0 = 60V_{PP}$. Chaque courbe est décalée en amplitude pour mieux distinguer les spectres.

CCD.

3.3 Méthode numérique d'analyse du signal de fluorescence des ions froids

Dans l'idée de quantifier l'efficacité du transport des ions d'une zone du piège à une autre, il est important de connaître avec une précision suffisante le nombre d'ions piégés. La fluorescence des ions est détectée par un photomultiplicateur et une caméra intensifiée CCD.

Pour des fréquences lasers et des paramètres de piégeage fixés, le signal de fluorescence collecté dépend non seulement du nombre d'ions piégés, mais aussi de leur température. À cause de la dépendance entre le chauffage RF, le nombre d'ions et le chauffage induit lors du transport [57, 123], il n'existe pas de relation simple entre le niveau de fluorescence pour une fréquence laser fixe et le nombre d'ions. En effet, il a souvent été observé une augmentation du signal lorsque le nombre d'ions diminue à cause d'un chauffage RF plus faible. Pour analyser quantitativement le nombre d'ions indépendamment de l'amplitude de signal de fluorescence, la caméra est l'outil essentiel pour observer l'extension spatiale du nuage. On exploite les caractéristiques de la phase liquide à l'équilibre thermodynamique dans un plasma non neutre.

Nous avons vu (section 1.3.2) que dans la limite du fluide froid, un échantillon d'ions de même charge, piégé dans un potentiel harmonique, a une densité uniforme [73]. Le nuage est délimité par une ellipsoïde de révolution [24] où la densité décroît sur une échelle de la longueur de Debye variant comme $\sqrt{T}/V_{RF}$. Dans la limite des basses températures, la densité ne dépend alors que de la fréquence du pseudo-potentiel radial [72] et elle est donnée par la relation (1.51) : $n_c = 2m\epsilon_0\omega_x^2/q^2$. La densité calculée pour la phase liquide dans nos conditions de piégeage usuelles ($\Omega_{RF} = 5,235$MHz et $V_{RF} = 1045V_{PP}$) est de $1,40 \times 10^5$ atomes/mm^3. Pour une température de 100mK (température typique que peut atteindre un tel nuage), la longueur de Debye est de 1,85μm. Cette longueur couvre 2 pixels sur la caméra pour un grandissement de 13 utilisé pour nos mesures. Les dimensions typiques d'un nuage de quelques milliers d'ions en phase liquide sont de l'ordre de 300μm pour la demi-largeur du nuage et 700μm pour la demi-longueur. Ces valeurs sont bien plus grandes que la longueur de Debye et c'est ce qui assure également la pertinence du modèle de fluide froid. La densité des ions étant uniforme et bien connue, il suffit de connaître le volume du nuage afin d'en déduire le nombre d'ions piégés. Pour faciliter l'analyse des dimensions du nuage, nous avons développé une méthode numérique. Cette méthode automatique permet d'ajuster le contour du nuage par une ellipse et d'en déduire les dimensions. Le rapport des dimensions radiale et axiale du nuage aussi appelé rapport d'aspect obéit à une loi théorique qui ne dépend que du rapport des fréquences d'oscillation axiale et radiale. Ceci permet également de valider notre technique d'analyse et de vérifier les lois physiques de notre piège.

3.3.1 Description de la technique

Pour déterminer les dimensions du nuage, on utilise une technique utilisant l'ajustement du contour du nuage par l'équation d'une ellipse. Pour faciliter la description de la

méthode, nous représentons l'image d'un nuage d'ions comme une matrice $X \times Y$ où X et Y sont les nombres de pixels respectivement suivant l'axe horizontal et vertical de l'image. Un contour du nuage est d'abord déterminé à partir d'un seuil de signal sur la matrice image. Ensuite, ce contour est ajusté numériquement par l'équation elliptique. Dans la suite nous analysons plus en détail cette technique.

Étape 1 : contour de l'ellipse

Il faut tout d'abord, trouver une méthode de détermination systématique du seuil du signal déterminant le contour de l'ellipse. Après plusieurs tentatives, la méthode la plus satisfaisante consiste en une étude du profil du signal (voir figure 3.16).

1. **Approximation des coordonnées C_X et C_Y du centre du signal.** C_X est estimé en prenant la position du maximum de la somme de toutes les lignes en Y de la matrice du signal. C_Y est obtenue par la position du maximum de la somme des X colonnes de la matrice image lissée sur quelques pixels.
2. **Détermination des deux sections centrales (suivant X et Y).** La section selon l'axe X du signal est donnée par la ligne C_Y de la matrice signal. La section suivant Y est donnée par la colonne C_X dans la matrice signal. La figure 3.16-(a) représente une section centrale suivant X. Sur cette figure le signal présente une

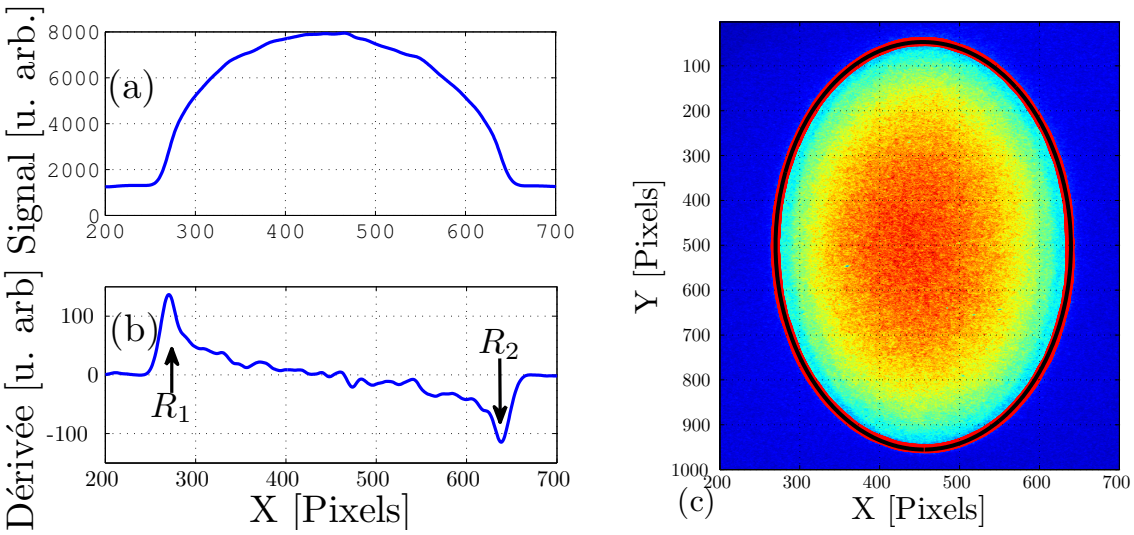

FIGURE 3.16 – (a) Section centrale du signal le long du rayon du nuage et (b) sa dérivée. Les positions des bords de l'image sont indiquées par R_1 et R_2 dans la direction X. (c) : l'image du nuage d'ions en phase liquide avec en rouge le contour du signal et en noir l'ajustement du contour par une équation de l'ellipse. L'axe z du piège et la direction des lasers sont verticaux

forme en "chapeau-melon". Sur les bords, la partie plate de la courbe représente le fond de lumière diffusée et la partie centrale en forme de lobe représente la fluorescence des ions. Notre objectif est de définir un critère numérique pour déterminer le seuil du nuage d'ions.

3. **Calcul de la dérivée du signal.** La forme en "chapeau-melon" caractéristique du signal le long d'une section du nuage donne lieu à deux extrema de la dérivée.

Ces extrema correspondent à la position où le signal sort du fond (figure 3.16-(b)). Quand on compare la position de ces extrema et le bord d'une ellipse ajustée manuellement (avec le logiciel ImageJ, par exemple), l'écart est inférieur à un pixel dans la direction radiale (X). Une incertitude de deux à quatre pixels est observée dans la direction axiale (Y) du fait de la forme très allongée du nuage.

Les positions des extrema des dérivées des deux sections centrales du signal sont notées R_1, R_2 pour l'axe X (figure 3.16-(b)) et L_1, L_2 pour l'axe Y. Il reste à décider comment choisir le seuil du signal à partir de ces quatre valeurs extrêmes. Comme certaines ellipses "débordent" du capteur le long de l'axe du piège, il ne faut pas prendre en compte le seuil axial mais différents choix du seuil sont possibles.

Étape 2 : fit du contour

L'algorithme d'ajustement du contour par une ellipse a été construit à partir des fonctions Matlab [124]. Ce programme recherche le contour du nuage à partir du seuil du signal et ajuste ce contour par l'équation des ellipses. Il produit alors le rayon de l'ellipse R_f, le demi-axe L_f, le centre C_f et l'angle de rotation entre l'axe du capteur ICCD et l'axe de symétrie de l'ellipse (qui est très faible : typiquement 10^{-4} radians). Un exemple d'image ajustée est présenté à la figure 3.16-(c). Ici, on compare les dimensions du nuage par les trois méthodes à savoir, les dimensions issues de la détermination de la section (L_s et R_s), les dimensions issues du contour (L_c et R_c) et les dimensions obtenues par ajustement elliptique (L_f et R_f pour dimension *fittée*).

Les rayons et longueurs de section sont définies par $R_s = (R_2 - R_1)/2$ et $L_s = (L_2 - L_1)/2$ données par la section du signal, R_f et L_f les dimensions issues du fit du contour de l'ellipse et enfin R_c et L_c les dimensions issues du contour de l'ellipse. Le contour est déduit de l'ensemble des pixels qui bordent la zone où le signal est plus grand que la valeur seuil choisie. Sur un échantillon de 32 images, nous comparons les trois dimensions entre elles en fonction du choix du seuil du signal.

— **seuil sur le rayon** $S_R = (S(R_1) + S(R_2))/2$ (moyenne du signal sur les deux bords suivant le rayon) : les rayons R_c et R_s diffèrent de 1 pixel en moyenne (de 0 à 2 selon l'ellipse) et la demi-longueur L_c de L_s de 5 pixels (figure 3.17-(a)). La figure 3.17-(b) montre que le rayon du fit R_f et celui du contour R_c ne diffèrent que de $\pm 0,2$ pixel alors que l'écart entre L_c et L_f est inférieur à 1 pixel.

— **seuil sur l'axe** $S_L = (S(L_1) + S(L_2))/2$ (moyenne du signal sur les deux bords suivant la longueur) : les rayons R_c et R_s diffèrent de 2 à 6 pixels alors que la demi-longueur du contour L_c diffère de L_s de moins de 0,1 pixel en moyenne (figure 3.17-(c)). Par contre la figure 3.17-(d) montre que L_f et L_c ont une différence de moins d'un pixel alors que $R_c - R_f \leq 0.4$ pixel total.

— **seuil moyen** $S_{LR} = (S_R + S_L)/2$ (moyenne du signal des deux seuils suivant la longueur et le rayon). L_f et L_c diffèrent de moins d'un pixel, R_f et R_c ne diffèrent que de $\pm 0,2$ pixel (figure 3.17-(f)). L'autre écart se répartit sur les deux directions : $R_f \simeq R_s$+2,5 pixels et $L_f \simeq L_s$−2 pixels (figure 3.17-(e)).

Cette technique de fit elliptique permet aussi d'analyser les ellipses dépassant la dimension du capteur de la caméra. Dans la pratique, on utilise le seuil sur le rayon pour que

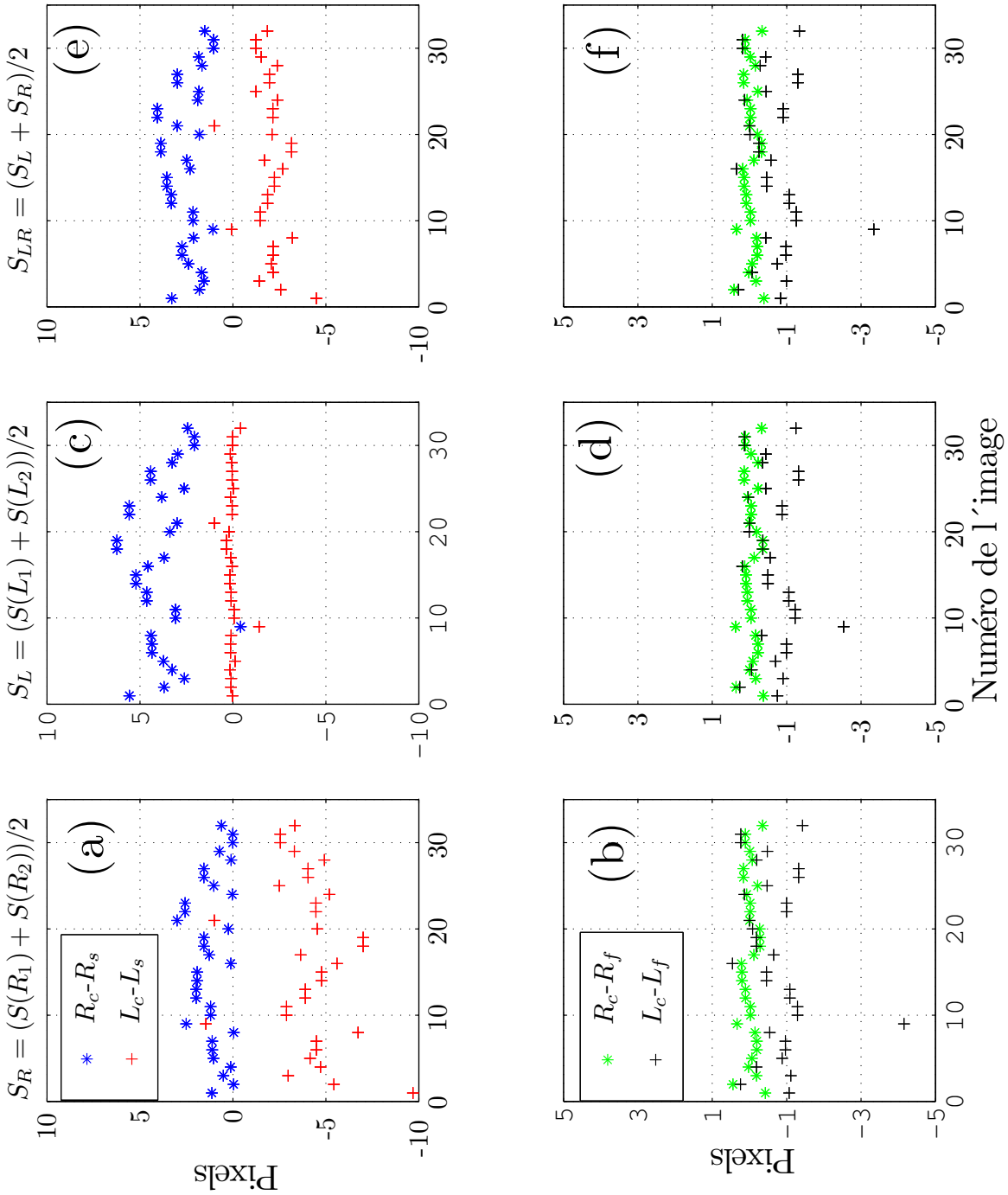

FIGURE 3.17 – Comparaison des dimensions issues du contour, de la section et du fit par une ellipse. En (a) ; (c) et (e), Les dimensions du contour et de la section. En (b), (d), (f), comparaison du contour et le fit. Le seuil est choisi sur le rayon S_R ((a) et (b)), sur l'axe du piège S_L ((c) et (d)) et la moyenne entre l'axe et le rayon S_{LR} ((e) et (f)).

cela soit utilisable même pour des ellipses qui débordent (figure 3.18). Au vue de l'analyse

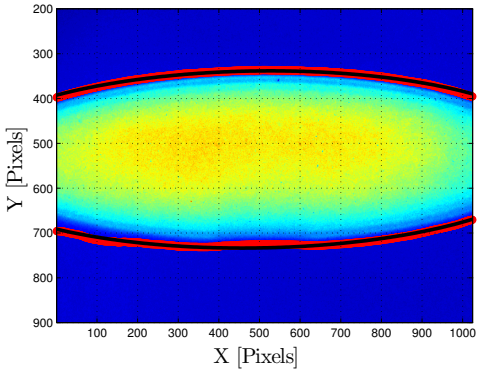

FIGURE 3.18 – Image ajustée d'un nuage dont la taille dépasse le capteur de la caméra CCD. Le rayon est orienté suivant Y et l'axe z du piège est orienté horizontalement.

entre la section, le contour et le fit sur la figure 3.17 (a) et (b), on observe un décalage de quelques pixels sur L et de moins d'un pixel sur R.

Pour conclure quant à la pertinence de la technique d'analyse, nous comparons le nombre d'ions mesurés ($N_f = n_c R_f^2 L_f$) par le fit et celui calculé par $N = n_c R_f^3/\alpha$ où α est le rapport d'aspect R/L théorique donné par la loi qui le lie à ω_z^2/ω_r^2. Cette comparaison permet aussi de vérifier les lois physiques dans notre piège.

3.3.2 Comparaison avec les résultats attendus du rapport d'aspect

Dans le modèle fluide froid à l'équilibre thermodynamique, le rapport d'aspect du nuage d'ions dans un potentiel harmonique dépend des raideurs de potentiel radial ω_r^2 et axiale ω_z^2. La relation qui lie le rapport d'aspect du nuage $\alpha = R/L$ au rapport d'aspect du potentiel ω_z^2/ω_r^2 est donnée par [24, 125] l'équation (3.11) dans le cas où $\alpha = R/L > 1$ et par l'équation (3.12) dans le cas $\alpha = R/L < 1$.

$$\frac{\omega_z^2}{\omega_r^2} = -2\frac{\sin^{-1}\left(1-\alpha^{-2}\right)^{1/2} - \alpha\left(1-\alpha^{-2}\right)^{1/2}}{\sin^{-1}\left(1-\alpha^{-2}\right)^{1/2} - \alpha^{-1}\left(1-\alpha^{-2}\right)^{1/2}} \tag{3.11}$$

$$\frac{\omega_z^2}{\omega_r^2} = -2\frac{\sinh^{-1}\left(\alpha^{-2}-1\right)^{1/2} - \alpha\left(\alpha^{-2}-1\right)^{1/2}}{\sinh^{-1}\left(\alpha^{-2}-1\right)^{1/2} - \alpha^{-1}\left(\alpha^{-2}-1\right)^{1/2}} \tag{3.12}$$

Dans notre piège, le nuage est allongé suivant l'axe z (axe de l'enceinte) et $R < L$. La relation utilisée pour notre étude est (3.12) et est représentée sur la figure 3.19. Cette relation a été confirmée expérimentalement par Hornekaer *et al* dans [125]. Dans cette partie, nous validons notre technique d'analyse en comparant des nombres d'ions calculés aux nombres d'ions issus de l'ajustement elliptique. Pour le nombre d'ions calculé, nous supposons le rayon du fit R_f juste, le nombre d'ions est donné par $N_c = n_c R_f^3/\alpha$ avec α connu issu de l'équation (3.12). Le nombre d'ions ajusté est donné par $N_f = n_c R_f^2 L_f$. On appelle δ_N l'écart relatif $(N_c - N_f)/N_c$. Pour des ellipses de même nombre d'ions et

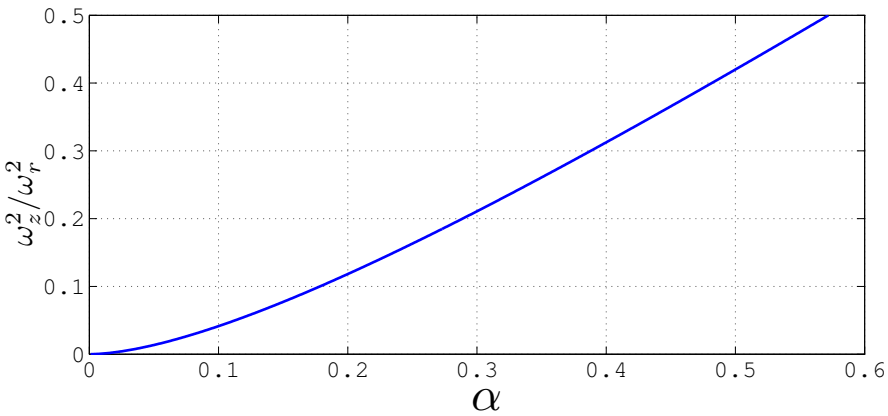

FIGURE 3.19 – Rapport d'aspect du potentiel ω_z^2/ω_r^2 en fonction du rapport d'aspect $\alpha = R/L$ du nuage dans le cas $R < L$.

même RF, comparer le nombre d'ions revient à comparer le volume de l'ellipse (R^2L) car la densité ne dépend que de V_{RF}.

Comme nous souhaitons atteindre le 1% d'incertitude, l'approximation au premier ordre des conditions d'adiabaticité de l'équation de Mathieu ne suffit plus. En effet, pour $V_{RF} = 1120V_{PP}$ et $\Omega_{RF} = 5,23$MHz (alimentation du piège quadrupolaire), on trouve $q_x^2/2 = 0,013$ et pour $V_{DC} = 2000V$ $a_x = -5.10^{-3}$. Si on considère un générateur différent où $\Omega_{RF} = 3,5$MHz par exemple (générateur utilisé pour le piège octupolaire), a_x passe à 10^{-2} et l'approximation $a_x, q_x^2/2 \ll 1$ n'est plus suffisante pour atteindre cet objectif. Il faut étendre le calcul des coefficients dans l'équation de Mathieu au second ordre en (q_x^2, a_x). Une extension au second ordre permet de corriger ω_x comme indiquée à l'équation (3.13).

$$\omega_x^2 = \omega_{x0}^2 \left(1 + \frac{q_x^2}{2} + a_x\right) \tag{3.13}$$

où ω_{x0} est la fréquence d'oscillation sans correction donnée par la relation (1.40) et $a_x = -2\omega_z^2/\Omega_{RF}^2$ est introduite par les potentiels statiques de confinement le long de l'axe du piège. Cette correction intervient dans l'estimation du rapport d'aspect mais aussi dans celui de la densité et permet de corriger les valeurs obtenues de 0,5%.

Nous choisissons de faire cette étude de validation de la technique d'analyse dans le piège PII qui est moins perturbé en potentiel que le piège PI. La fréquence d'oscillation ω_z utilisée pour calculer le rapport d'aspect α est celle déterminée expérimentalement par excitation paramétrique dans la section (3.2) et ω_x est donnée par la solution de l'équation de Mathieu (3.13).

Analyse en piège PII

Nous comparons les résultats du fit d'images d'ellipses différentes mais réalisées avec le même nuage, la même tension V_{RF}, mais des V_{DC} différentes. Dans ces conditions, comparer le nombre d'ions revient à comparer le volume du nuage étant donné que la densité est constante à V_{RF} fixée.

Sur des séries d'images à V_{RF} constante et différentes V_{DC} (1000 à 2000V), nous comparons le nombre d'ions calculé et le nombre d'ions ajusté. La figure 3.20-(a) montre un écart relatif δ_N compris entre 0,5% et -1%. De plus, on trouve un volume qui varie au

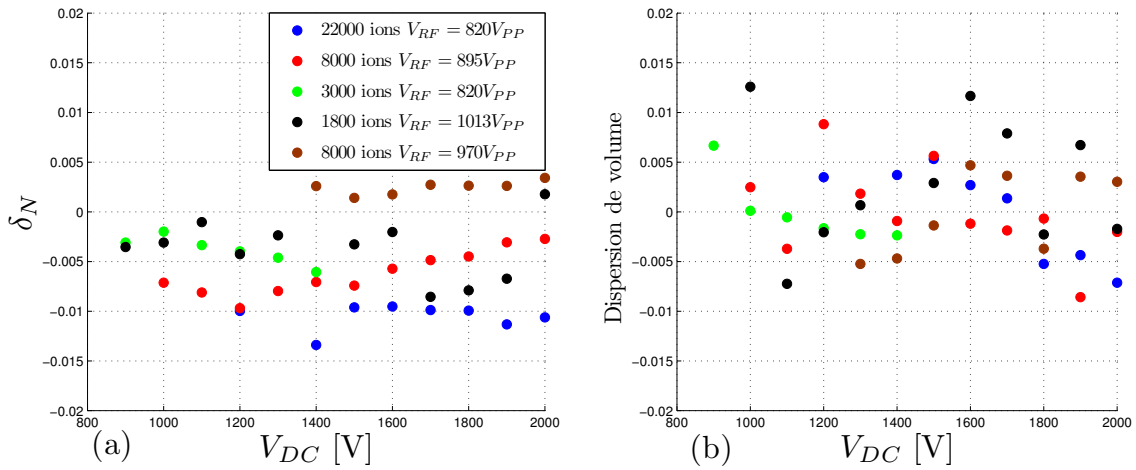

FIGURE 3.20 – (a) écart relatif δ_N entre le nombre d'ions calculé et le nombre d'ions ajusté. (b) dispersion du volume du nuage autour de la valeur moyenne à V_{RF} constante. Chaque couleur représente une série de mesures dans PII avec le nombre d'ions et une V_{RF} constant.

plus de $\pm 1\%$ par rapport à la valeur moyenne. On ne détecte aucune corrélation entre le nombre d'ions N et V_{DC} ou l'ordre chronologique des ellipses (voir figure 3.20-(b)). Nous pouvons estimer l'incertitude sur le volume (avec une marge totale de 6 σ) à :

$$\delta \upsilon = \pm 1 \ \% \tag{3.14}$$

Nous comparons maintenant les ellipses pour des nuages de différentes tailles et piégés avec des tensions V_{RF} et V_{DC} différentes. La loi de la densité (1.51) intervient maintenant dans la comparaison. La figure 3.21 présente l'écart relatif δ_N relevé sur plusieurs séries avec des nombres d'ions et des tensions différentes. On trouve un écart entre le calcul direct et l'estimation plus grande que dans le premier cas où le volume est conservé. Dans ce cas, l'erreur dans l'estimation du nombre d'ions est comprise entre 2 et 6%. Cette analyse en piège PII permet de valider la technique d'analyse. Dans la suite, cette méthode d'analyse est utilisée pour caractériser le piège PI qui a un potentiel perturbé par le potentiel de contact.

Analyse en piège PI

Une analyse globale en piège PI des rapports d'aspect sur une série d'images à V_{DC} constante a montré un décalage systématique entre α et $\alpha_f = R_f/L_f$ (figure 3.22-(a)). Pour expliquer ce shift, à ce niveau, nous admettons que la technique d'analyse est valable (étude faite en PII) et nous supposons que les fréquences ω_x et/ou ω_z ne sont plus justes en PI. Nous supposons que la raideur du potentiel axial est plus modifiée que la raideur du potentiel radial. Pour tenter de corriger la valeur de ω_z, nous admettons $\alpha_f = R_f/L_f$ juste. Sur une série d'images faites à $V_{RF} = 840V_{PP}$ constante et V_{DC} variable, les α_f issus

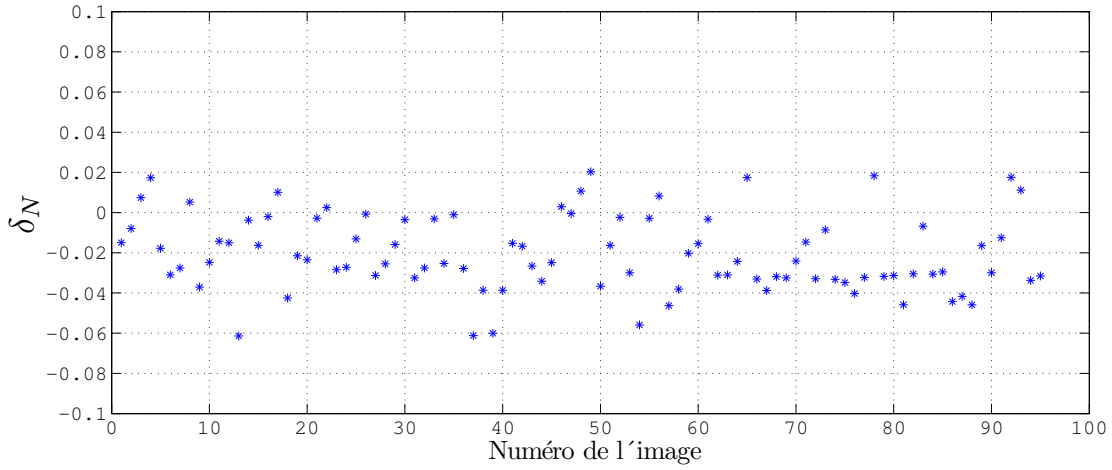

FIGURE 3.21 – Écart relatif δ_N pour des nuages de taille variée de quelques milliers d'ions et des tensions différentes dans le piège PII : V_{RF} (800 à 1100V_{PP}) et V_{DC} (1000V à 2000V).

de ces images sont remplacés dans la relation (3.12) pour déterminer la fréquence axiale ajustée par fit des ellipses ω_{zt}. Le résultat est représenté sur la figure 3.22-(b). La relation entre ω_{zt}^2 et V_{DC} est linéaire (comme attendu) La relation entre ω_{zt} et V_{DC} est donnée par (3.15).

$$\omega_{zt}/2\pi = (124,5 \pm 1,0)\sqrt{\frac{V_{DC}}{1000}} \quad \text{(kHz)} \tag{3.15}$$

La valeur de ω_{zt} obtenue est inférieure à la valeur déterminée par excitation paramétrique

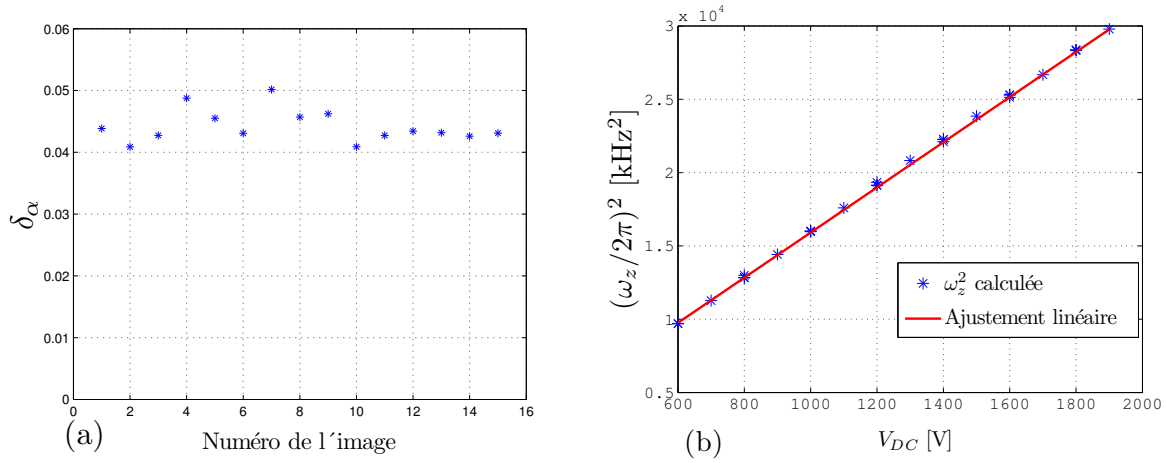

FIGURE 3.22 – (a) écart relatif $\delta_\alpha = (\alpha - \alpha_f)/\alpha$ entre les rapports d'aspects calculés et ajustés sur une série d'image à $V_{DC} = 1000V$. (b) ω_z^2 (calculé par la relation (3.12) avec $\alpha = \alpha_f$) en fonction de V_{DC} dans une série d'images à $V_{RF} = 840V_{PP}$.

qui est de 131kHz pour 1000V. Cette valeur correspond pourtant aux premières mesures par excitation paramétrique après la mise en fonctionnement du piège. Cette remarque

permet d'affirmer que la différence observée peut être imputée au potentiel de contact qui s'est formé par les dépôts d'atomes neutres au cours des expériences. De plus, à cause du potentiel de contact, le fond du puits est décalé dans le sens radial. Un ajustement harmonique du potentiel axial à différents points du plan radial (figure 3.23) montre que la fréquence ω_z dépend de la position de l'axe z dans ce plan. Comme l'excitation paramé-

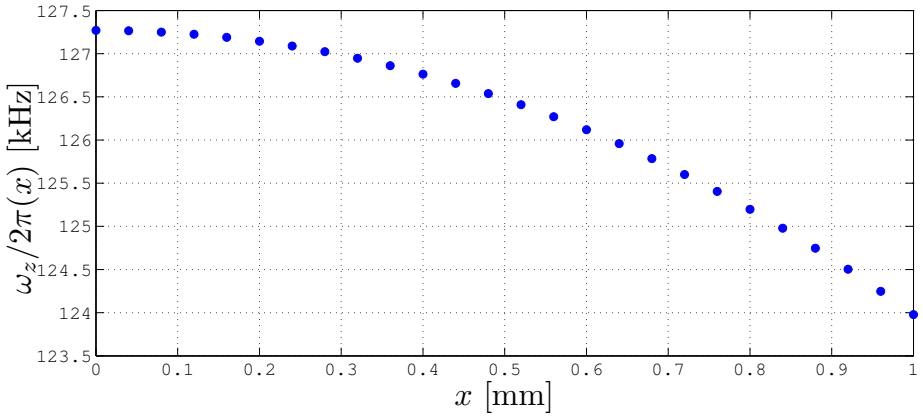

FIGURE 3.23 – Variation de $\omega_z(x)$ dans le plan radial. Ces fréquences ω_z sont obtenues en ajustant numériquement le potentiel axial par un harmonique à différentes positions de l'axe z dans le plan radial.

trique des ions se fait en phase gazeuse, nous pensons que les ions sont peu sensibles au décalage du puits. Il faut que les ions soient suffisamment froids pour se mettre au fond du puits et subir ce petit décalage en fréquence. Le potentiel ω_{zt} est choisi par la suite pour comparer les nombres d'ions à V_{RF} constante et variable.

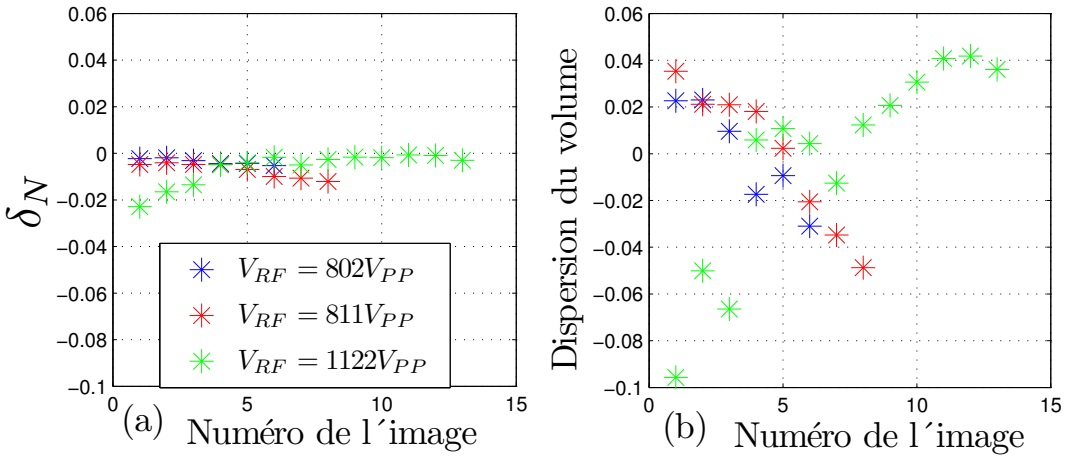

FIGURE 3.24 – (a) écart relatif entre le nombre d'ion calculé et celui ajusté dans PI à V_{RF} constante sur un nuage de 3000 ions. (b) dispersion de volume. Chaque couleur représente une valeur de V_{RF}.

Le comportement dans le piège PI est différent par rapport au piège PII. Tout se

passe comme si les paramètres de piégeage variaient dans le temps. Pour plusieurs séries d'ellipses d'un même nuage à V_{RF} constante, on observe un écart relatif entre les nombres d'ions compris entre 0 et -2% (figure 3.24-(a)). Les variations du volume mesurées sont de plus de 10% pour un même nuage (figure 3.24-(b)). On peut supposer qu'il y a une corrélation avec V_{DC} mais le sens de variation n'est pas toujours le même. En effet, nous avons remplacé l'alimentation quadrupolaire par l'alimentation octupolaire pour détecter un éventuel problème provenant du générateur. Sur une série de 32 ellipses du même nuage avec une succession de valeurs de V_{DC}, nous avons fait des mesures de l'écart relatif δ_α entre le rapport d'aspect calculé et celui ajusté (figure 3.25-(a)) et la dispersion de volume autour de la valeur moyenne (figure 3.25-(b)). Nous observons δ_α inférieure à 0,5% et une dispersion de volume inférieure à $\pm 1,5\%$. De plus, le même type de séries est réalisé

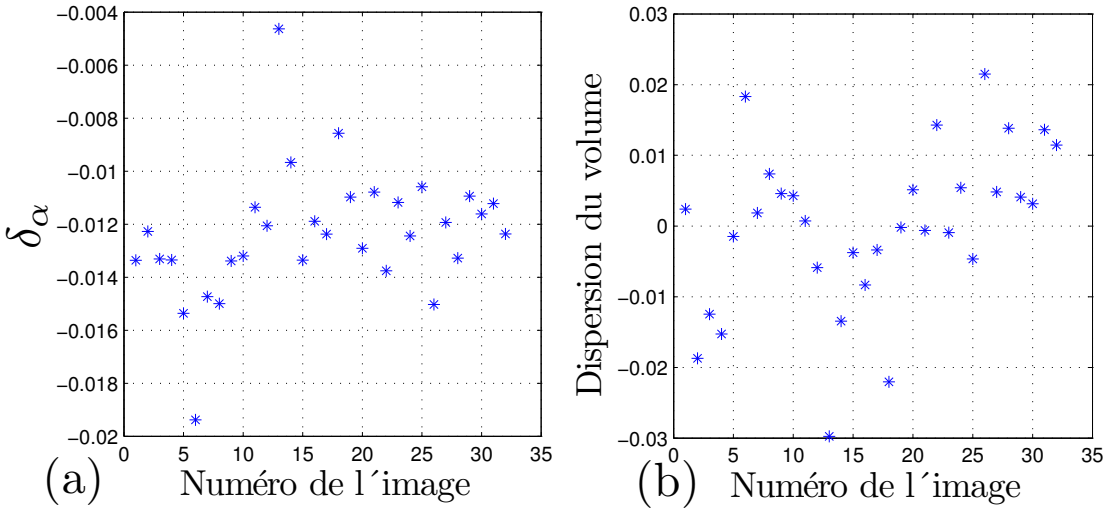

FIGURE 3.25 – (a) écart relatif entre le rapport d'aspect calculé et celui mesuré pour une série d'images à $V_{RF} = 671 V_{PP}$ et (b) dispersion du volume autour de la valeur moyenne.

après plusieurs jours avec l'alimentation quadrupolaire et les mêmes variations de volumes inférieurs à 1.5% sont obtenues.

Les dernières mesures avec des réglages affinés de mise au point de l'objectif de détection laissent penser que l'incertitude sur le volume du nuage (avec une marge totale à 6 σ) peut être estimée à :

$$\delta \upsilon = \pm 1.5 \ \% \tag{3.16}$$

C'est la dispersion de mesure quand tous les paramètres sont constants. Par contre, dès que V_{DC} ou V_{RF} varie, on observe des fluctuations inexpliquées qui peuvent atteindre 10%. Il est donc très important de comparer des ellipses de nuages piégés dans les mêmes potentiels.

Influence de la température sur la taille du nuage

L'indépendance de la taille du nuage avec la température de l'échantillon a été vérifiée en phase liquide. En effet, sur une série de mesures dans PII pour différents désaccords du laser de refroidissement, nous avons vérifié que la taille du nuage en phase liquide ne

change pas avec la température. La variation de température occasionnée n'a pas d'impact sur les dimensions de l'ellipse déduites par le protocole décrit ci-dessus.

Pour des nuages de plus en plus gros dépassant les 10^5 ions, la température est plus élevée que pour des nuages petits. Dans le cas des grands nuages, la longueur de Debye devient plus importante. De plus, il est nécessaire de réduire considérablement l'amplitude V_{RF} pour observer la phase liquide, l'extension des bords peut atteindre dix pixels, ce qui rend la détermination du bord du nuage moins précise. De plus, pour des nuages très petits (quelques centaines d'ions), l'incertitude liée à la taille d'une pixel devient plus importante. En conclusion, notre technique d'analyse reste pertinente pour des nombres d'ions typiques comprises entre quelques centaines et cent mille ions.

3.3.3 Estimation du nombre absolu d'ions piégés

Pour estimer le nombre absolu d'ions piégés, nous nous servons de la technique décrite en début de cette partie pour déterminer la demi-longueur et le rayon de l'ellipse du nuage. Pour avoir un nombre d'ions avec une petite incertitude, il est important de connaître avec précision le grandissement de l'optique de collection.

Mesure du grandissement

Pour mesurer expérimentalement le grandissement γ, on peut déplacer l'objectif de collection perpendiculairement à l'axe optique (et aussi à l'axe du piège) en mesurant le déplacement de l'image. L'incertitude de cette grandeur doit être connue afin de déterminer correctement le nombre d'ions. Le déplacement D_{image} de l'image dû à la variation de la position $D_{objectif}$ de l'objectif est donné par :

$$D_{image} = \gamma D_{objectif} \tag{3.17}$$

Comme c'est le déplacement du centre de l'image de l'ellipse qui est utilisé pour la mesure, il est nécessaire de connaître la dispersion des mesures de la position du centre. Sur une série d'images de même V_{RF} et V_{DC}, la dispersion de la position du centre calculée en P1 et P2 est donnée par :

$$\delta C_{axial} = \pm 1\ pxl \quad et \quad \delta C_{radial} = \pm 0.25\ pxl \tag{3.18}$$

Puisque que c'est la translation de l'objectif dans la direction radiale qui est importante pour la mesure du grandissement [3], la précision sur l'estimation du grandissement est bien meilleure que si on translate l'image suivant l'axe. Sur une série de mesures réalisées en PI et PII, en déplacant l'objectif suivant le plan radial par la vis micrométrique, on trouve :

$$\gamma_{PI} = 13,164 \pm 0,002 \quad et \quad \gamma_{PII} = 12,886 \pm 0,002 \tag{3.19}$$

3. Nous avons choisi de mesurer le grandissement γ par un déplacement de l'objectif dans la direction radiale, pour laquelle γ est constant. À cause de la configuration de notre optique de détection, un déplacement le long de l'axe du piège entraîne une variation de γ.

En plus de l'incertitude liée à la mesure, il existe une autre source d'erreur liée à la profondeur de champ. Dans les pièges PI et PII on a estimé l'incertitude sur la mise au point à $\pm 100\mu$m. Une erreur de mise au point de $\pm 100\mu$m, implique une erreur sur le grandissement de $\pm 0,0015$. On en déduit une incertitude globale $\delta\gamma$:

$$\delta\gamma = \pm 0,0035 \tag{3.20}$$

Ces estimations sont valables pour le montage optique avec l'objectif seul. En effet, lorsqu'il est nécessaire d'observer des nuages beaucoup plus grand que 2.10^5 ions, le grandissement donné ici est modifié par ajout d'une lentille dans le montage optique.

Incertitude sur le nombre d'ions

Trois contributions participent à l'erreur possible sur le nombre d'ions N : l'incertitude sur le volume déduit des dimensions mesurées sur l'image, l'incertitude sur la densité du nuage et l'incertitude sur le facteur de grandissement γ. Dans la configuration objectif seul, cette dernière contribution est négligeable.

L'analyse des ellipses du même nuage faite pour les conditions différentes (V_{DC} et/ou V_{RF}) nous donne accès à l'incertitude totale sur le nombre global d'ions piégés. Le nombre N varie de 6 % quand on fait varier V_{RF} en PII et atteint 10% en PI. Quand c'est V_{DC} qui est modifiée pour un même nuage, on ne voit pas d'effet sur N en PII contrairement à PI. Nous pensons que le potentiel de contact modifie localement le potentiel de piégeage. En attendant d'identifier les causes de ces variations et de pouvoir les prendre en compte, nous estimons à ± 5 % l'incertitude sur le nombre d'ions absolu. Le nombre total d'ions en piège quadrupolaire est alors donné par le relation suivant :

$$N = \frac{2m\epsilon_0}{q^2}\omega_x^2 \times \frac{4\pi}{3}R_f^2 L_f \pm 5\% \tag{3.21}$$

L'incertitude ainsi déterminée est pertinente jusqu'à 10^5 ions piégés. Pour des nuages dont le nombre d'ions dépasse cette valeur, cette incertitude doit être revue à la hausse.

Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons observé que les ions refroidis par laser dans les pièges radio-fréquence passent d'une phase gazeuse (où l'interaction entre ions est faible) vers des phases liquide ou cristalline (forte interaction entre ions). Contrairement à ce que prévoit la théorie sur une transition continue entre ces phases, les expériences ont montré une transition abrupte entre la phase gazeuse et la phase liquide. Ces passages abruptes résultent d'une compétition entre le refroidissement laser et le chauffage RF jusqu'à ce que le refroidissement l'emporte. Elles se manifestent par des chutes de signal dans le spectre Doppler et peuvent se faire en une ou plusieurs étapes en fonction des paramètres du puits de potentiel et de l'intensité laser disponible.

Pour caractériser le puits de potentiel effectivement vu par les ions, nous utilisons une technique d'excitation paramétrique. Nous avons aussi observé des pics de signal positifs dans le spectre du mouvement au lieu uniquement des pics négatifs comme attendu dans

ce type d'expériences. Nous avons effectué une étude numérique pour expliquer ces observations. Les résultats ont montré que les pics positifs apparaissent dans le signal lorsque l'amplitude d'excitation est inférieure à une valeur seuil. Ces pics positifs correspondent à une réduction de la vitesse des ions. Nous pensons que l'excitation paramétrique à faible amplitude conduit à un refroidissement. D'autres analyses seront nécessaires pour la validation de cette étude. Les mesures des fréquences d'oscillations sont exploitées pour étudier la morphologie du nuage et ainsi déterminer le nombre d'ions piégés.

Pour dénombrer les ions piégés, il faut connaître le volume du nuage, étant donné qu'en phase liquide la densité est uniforme et dépend de la raideur du potentiel de confinement radial. Nous avons mis au point une technique numérique permettant d'analyser les images d'un nuage d'ions en phase liquide. Cette technique automatique permet de déterminer le volume du nuage avec une incertitude maximale de 1,5% et offre la possibilité d'analyser les images dont la taille dépasse la taille du capteur. L'analyse faite dans les deux pièges a permis de mettre en évidence une grande différence au niveau des potentiels entre la zone PI et la zone PII. En effet, les mesures du nombre d'ions dans le piège PI révèlent une grande dispersion par rapport à PII. Ces observations permettent de supposer que le potentiel de contact dans le zone PI modifie localement le potentiel vu par les ions. L'effet de ce potentiel de contact sera analysé dans le chapitre suivant. Cette caractérisation du nombre d'ions piégés est très importante pour quantifier le nombre d'ions transportés entre deux zones du piège.

Chapitre 4

Transport d'ions entre les différentes parties du piège

Le transport de particules chargées entre deux pièges constitue un ingrédient important pour de nombreuses applications comme par exemple, la spectrométrie de masse [126], l'étude des ions exotiques [127] et des expériences physico-chimiques [12]. Plusieurs groupes ont déjà travaillé sur le transport d'un ion unique dans le cadre de l'information quantique pour transférer et manipuler de l'information par des bits quantiques [128, 129, 130]. De plus, transporter les ions est aussi important pour la métrologie des fréquences micro-onde [36]. En effet, dans les horloges micro-onde à piège double, le pompage optique et la mesure de population de l'état excité se passent dans la partie la plus ouverte et la plus confinante (un piège quadrupolaire) et l'excitation d'horloge dans la partie où le micro-mouvement est faible (multipolaire). Ceci nécessite un transport sans perte d'ions car une variation du nombre d'ions peut affecter la stabilité de la fréquence de l'horloge atomique.

L'une des principales problématiques est d'éviter le chauffage pendant le transport car il modifie la dynamique du nuage et peut induire des pertes d'ions. Dans la majorité des cas cités d'expériences d'ions uniques en micro-piège, un processus de refroidissement est intégré dans le protocole de transport et permet de transférer des ions froids. Afin de préserver la cohérence de l'échantillon, les transports sont effectués sur des temps plus courts que des durées adiabatiques. (durée pour laquelle l'état quantique des ions est préservé pendant le transport) [131, 132, 133].

Dans les micro-pièges, un ion unique est transporté dans le niveau fondamental vibrationnel [134] sur une distance d'environ 100μm. Au cours du transport, le puits de potentiel n'est pas déformé [135]. Cela permet de garder l'énergie cinétique de l'ion constante au cours du déplacement et nécessite l'implantation d'un grand nombre d'électrodes de contrôle [136]. Cependant, les expériences nécessitant le transport d'un grand nuage comme la nôtre ou la métrologie des fréquences micro-onde [36] requièrent des macro-pièges. Dans ce type de pièges, l'utilisation des électrodes de compensation est possible mais très compliquée à réaliser parce que la cartographie du potentiel n'est pas parfaitement connue.

Notre piège linéaire (figure 4.1-(a)) a un rayon de 3,93mm et la distance de transport est de 23mm entre les centres de PI et PII et de 81,5mm entre les centres de PII et et PIII. Le transport est controlé suivant l'axe z du piège par les électrodes DC. Le transport se fait par déplacement et déformation du puits de potentiel. Notre objectif est de transporter un grand échantillon ionique sans perte entre les zones du piège. Comme la déformation

du puits au cours du transport induit une variation de sa raideur sur plusieurs ordres de grandeur,s'impose une déformation du puits de potentiel adiabatique, conduirait à des temps de transfert de plusieurs dizaines de secondes. Ceci est de l'ordre de grandeur des temps d'interrogation dans les horloges micro-onde à ions et constitue un facteur limitant pour la stabilité en fréquence de l'horloge. Nous souhaitons donc rendre le transfert le plus court possible et ne pas nous limiter aux déformations adiabatique su potentiel.

Dans ce chapitre, nous proposons un protocole de transport rapide entre les zones quadrupolaires et octupolaire du piège. La première étape est la description du protocole de transfert au sein du piège quadrupolaire, entre PI et PII. Ensuite, les résultats expérimentaux sont exposés. Avant de présenter le transport entre PII et PIII, l'impact de la non symétrie entre les deux sens de transport PI-PII et PII-PI est analysé.

4.1 Protocole de transport entre les zones PI et PII du piège

Dans ce travail, nous extrapolons les analyses faites pour un ion unique [128, 129, 130] au nuage d'ions. Lorsque plusieurs ions sont transportés, le nombre d'ions devient un paramètre important. Pour nous guider dans nos expériences, des simulations de dynamique moléculaire [137] ont été menées afin de déterminer un protocole de transport sans perte et sans chauffage.

Considérons $\phi_i(x, y, z)$ la distribution de potentiel électrique créée à l'intérieur du piège par les électrodes DC_i lorsque 1V est appliquée à celles-ci. Pendant le transport entre PI et PII, seules les contributions de DC_1, DC_2 et DC_3 sont prises en compte et les autres contributions sont négligées du fait de leur distance par rapport aux centres de PI et PII. Comme l'étendue radiale du nuage est négligeable par rapport au rayon du piège et comme le transport se fait suivant l'axe du piège, nous supposons que la contribution radiale du potentiel DC $\phi_i(x, y, z)$ est uniforme, soit $\phi_i(x, y, z) = \phi_i(x = 0, y = 0, z)$ que nous notons $\phi_i(z)$. Le potentiel total DC dans le piège quadrupolaire pour une tension $V_i(t)$ s'écrit alors [138] :

$$\Phi\left(z, t\right) = \sum_{i=1}^{i=3} V_i\left(t\right) \phi_i\left(z\right) \tag{4.1}$$

Dans les deux zones du piège, le potentiel $\Phi\left(z, t\right)$ est généré par les trois électrodes numérotées 1, 2 et 3. Ce potentiel forme ainsi deux puits séparés par une barrière V_2. Le potentiel axial calculé est représenté sur la figure 4.1-(b) pour $V_i = 1000V$ appliquée à chaque électrode DC_i. En piège quadrupolaire linéaire et dans approximation adiabatique, le potentiel de piégeage est représenté par un potentiel harmonique. Le transport des ions d'un piège à l'autre est assuré par le déplacement des minima de potentiel dans les deux zones du piège. Il est réalisé par variation temporelle des potentiels V_i. Au cours du transport, les deux puits de potentiel fusionnent lorsque $V_2 = 0$. Nous devons alors développer un profil de potentiel qui permette de transférer les ions de la zone PI à la zone PII. Dans la suite, nous appelons $z_{min}(t)$ la position du minimum de potentiel calculé pendant le transport. D'après la condition d'équilibre, au fond du puits de potentiel, la relation (4.2)

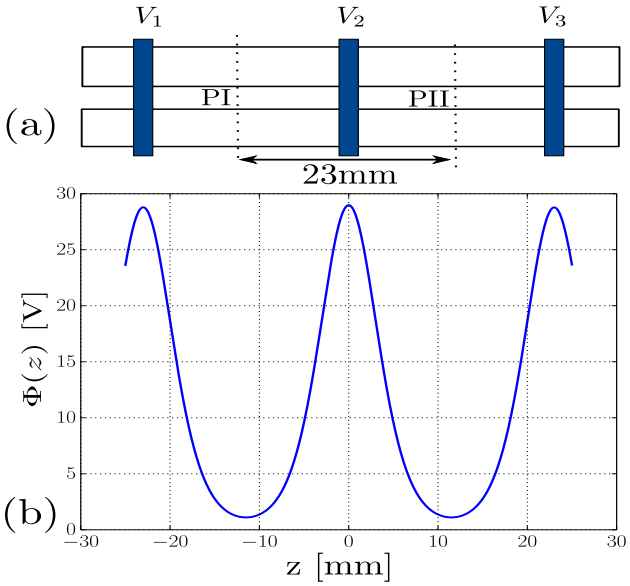

FIGURE 4.1 – (a) Représentation schématique du piège quadrupolaire et (b) : la distribution de potentiel calculée le long de l'axe pour $V_i = 1000V$.

reste satisfaite pendant le transport.

$$\left(\frac{\partial \Phi}{\partial z}\right)_{z_{min}(t)} = 0 \tag{4.2}$$

En faisant un développement limité au second ordre du potentiel $\Phi(z,t)$ autour de la position de $z_{min}(t)$, nous obtenons le profil de potentiel axial de piégeage pendant le transport.

$$U(z,t) = \Phi(z,t) - \Phi(z_{min},t) = \frac{1}{2} m\omega(t)^2 (z - z_{min})^2 \tag{4.3}$$

où la raideur instantanée du potentiel suivant l'axe du piège est donnée par (4.4).

$$m\omega_z^2(t) = \left(q\frac{\partial^2 \Phi(z,t)}{\partial z^2}\right)_{z_{min}(t)} \tag{4.4}$$

La fréquence correspondante ω_z dépend du temps et varie de plusieurs ordres de grandeurs pendant le transport. Le choix de l'évolution de z_{min} joue un rôle très important dans l'efficacité du transport et sur le gain d'énergie des ions au cours du transport. L'expression générale de $z_{min}(t)$ entre 0 et L est donnée par la relation (4.5).

$$z_{min}(t) = g(t)\left(H(t) - H(t - t_g)\right) + LH(t - t_g) - L/2 \tag{4.5}$$

où L est la distance de transport entre les centres des deux pièges PI et PII (L=23mm), $g(t)$ la fonction de transport, t_g la durée de transport et $H(t)$ la fonction Heaviside. Nous avons comparé numériquement quatre fonctions de transport à savoir : une fonction linéaire, sinusoïdale, polynomiale [139] et une fonction tangente hyperbolique [128]. Les résultats [137] montrent que la fonction tangente hyperbolique est la plus pertinente pour le transfert

(taux de chauffage faible et un taux de transport élevé). Dans la suite de notre étude expérimentale, cette fonction tangente hyperbolique est utilisée (4.6)

$$g(t) = \frac{L}{2}\left(\frac{\tanh\left(\frac{8t}{t_g} - 4\right)}{\tanh(4)} + 1\right) \tag{4.6}$$

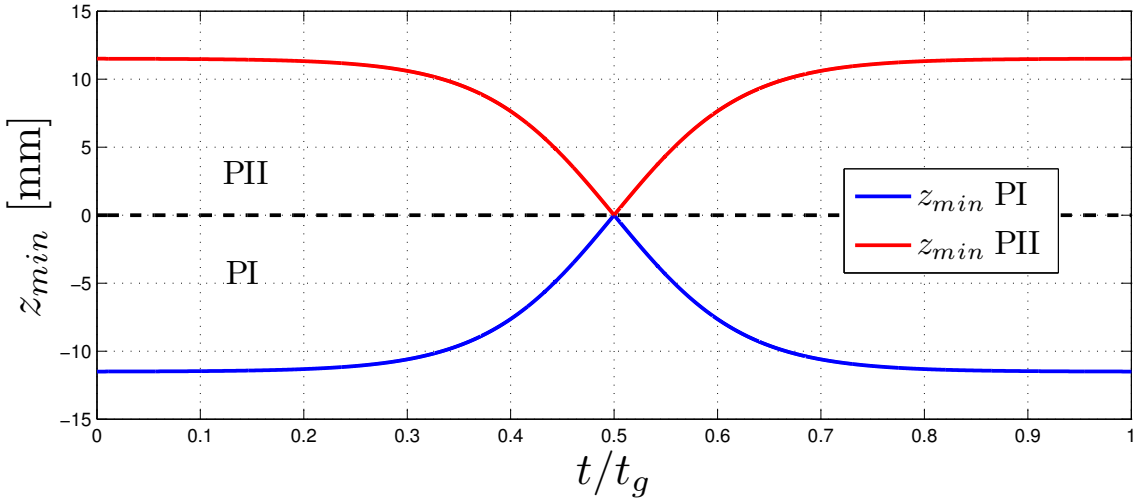

FIGURE 4.2 – Évolution des minima de potentiel dans chaque zone du piège. Les tirets noirs marquent la séparation entre le piège PI et PII.

La figure 4.2 présente l'évolution des minima de potentiel dans les deux zones du piège avec la fonction de transport tangente hyperbolique. La courbe bleue est le minimum dans la zone PI et la courbe rouge l'évolution du minimum dans la zone PII. Au cours du transport PI-PII, le but recherché est que le nuage puisse suivre le minimum $z_{min}(t)$ dans le temps de façon à suivre la courbe bleue puis la courbe rouge et finir dans PII (et vice-versa pour le transport PII-PI).

Les simulations montrent de plus que la déformation du puits de potentiel au cours du transport est responsable du chauffage dans le mouvement global du centre de masse des ions dans le nuage [137]. Dans notre montage expérimental, la distance entre les électrodes DC est plus longue que la largeur effective du potentiel créé. De plus, du fait de la limite à 2000V (valeur maximale délivrée par le générateur) des tensions V_i, et le nombre limité d'électrodes, il n'est pas possible de transférer le puits de potentiel sans le déformer. Pendant le transport, la condition d'équilibre (4.2) impose une relation entre V_1, V_2 et V_3 :

$$V_2(t) = -\left(\frac{V_1(t)\,\phi_1'(z) + V_3\phi_3'(z)}{\phi_2'(z)}\right)_{z_{min}(t)} \tag{4.7}$$

où $\phi' = \partial\phi/\partial z$ est la dérivée première de la fonction ϕ par rapport à z. Le calcul de $V_2(t)$ requiert de connaître le profil du potentiel créé par chaque électrode pour estimer la

dérivée au premier ordre. Nous avons montré dans la section (2.1.3) que la distribution de potentiel généré par chaque électrode DC peut être ajustée par une fonction d'équation $f_i(z) = a_i(1+(z-z_i)^2/w_i^2)^{-4}$ (relation (2.1)). Pour le piège quadrupolaire, $w_{1,2,3} = 8,9$mm, $a_{1,3} = 28,8$V et a_2=29V pour 1000V appliquée. Pour l'expérience, nous basons nos calculs explicites des V_i sur l'approximation $\phi_i(z) \sim f_i(z)$

Au niveau de l'électrode DC_2, ce potentiel V_2 admet une discontinuité lorsque $z_{min} = z_2$, correspondant au maximum du champ électrique créé par l'électrode DC_2 ($\phi_2' \mid_{z_2} = 0$). Nous proposons deux méthodes pour lever la discontinuité.

4.1.1 Protocole 1 : $V_2(t)$, $V_3(t)$ et V_1 constante

Pour éviter la discontinuité sur V_2, la relation (4.7) est écrite sous la forme :

$$V_3\left(t\right) = -\left(\frac{V_1\phi_1'(z) + V_2(t)\phi_2'(z)}{\phi_3'(z)}\right)_{z_{min}(t)} \tag{4.8}$$

Ensuite pour exprimer $V_2(t)$, une condition de transport symétrique est imposée. Cette condition s'écrit :

$$\Phi\left(z = q_1\left(t\right)\right) = \Phi\left(z = q_2\left(t\right)\right) \tag{4.9}$$

où $q_1\left(t\right)$ représente la position du minimum de potentiel lorsque le transport est réalisé du piège PI vers le piège PII $[q_1\left(t\right) = z_{min}\left(PI \rightarrow PII\right)]$ et $q_2(t)$ la position du minimum de potentiel lorsque le transport s'effectue du piège PII vers le piège PI $[q_2(t) = z_{min}\left(PII \rightarrow PI\right)]$. L'évolution de $V_2\left(t\right)$ est exprimée en fonction de $V_1\left(t\right)$ à partir des relations (4.1), (4.8) et (4.9) :

$$V_2\left(t\right) = -V_1\frac{\phi_3'\left(q_1\right)\left[\phi_1\left(q_1\right) - \phi_1\left(q_2\right)\right] - \phi_1'\left(q_1\right)\left[\phi_3\left(q_1\right) - \phi_3\left(q_2\right)\right]}{\phi_3'\left(q_1\right)\left[\phi_2\left(q_1\right) - \phi_2\left(q_2\right)\right] - \phi_2'\left(q_1\right)\left[\phi_3\left(q_1\right) - \phi_3\left(q_2\right)\right]} \tag{4.10}$$

Au cours du transport par ce protocole labelisé 1, V_1 est fixé. Ensuite $V_2\left(t\right)$ et $V_3\left(t\right)$ sont calculés à partir des relations (4.10) et (4.8).

4.1.2 Protocole 2 : $V_2(t)$, V_1 et V_3 constantes

Dans cette partie, les tensions V_1 et V_3 sont fixées pendant le transport. La solution est trouvée par le prolongement par continuité de V_2 en z_2 :

$$\lim_{h\rightarrow 0} V_2\left(z_2 - h\right) = \lim_{h\rightarrow 0} V_2\left(z_2 + h\right) \tag{4.11}$$

L'équation (4.11) permet d'exprimer la relation entre V_3 et V_1 qui est la suivante :

$$V_3 = V_1\left[\frac{\phi_2'\phi_1'' - \phi_1'\phi_2''}{\phi_3'\phi_2'' - \phi_2'\phi_3''}\right]_{z_2} \tag{4.12}$$

La relation (4.12) peut être simplifiée à $V_3 = -V_1\phi_1'(z_2)/\phi_3'(z_2)$ lorsque la condition $\phi'(z_2) = 0$ est satisfaite. Numériquement, cette condition n'est en général pas satisfaite car l'espace

est discrétisé et un point de la grille ne coïncide pas avec z_2 [137]. Dans ce protocole 2, les tensions V_2 et V_3 sont calculées à partir de la valeur de V_1. V_3 et V_1 sont constantes pendant le transport. Dans les conditions de symétrie parfaite entre les électrodes DC_1 et DC_3 par rapport à DC_2, $V_1 = V_3$. Cependant, des asymétries dans la géométrie du piège brisent cette égalité. Une petite différence de 400mV est introduite (pour $V_1 = 1000V$, $V_3 = 999,6V$). Nous pouvons pour le transport entre PI et PII négliger cette différence.

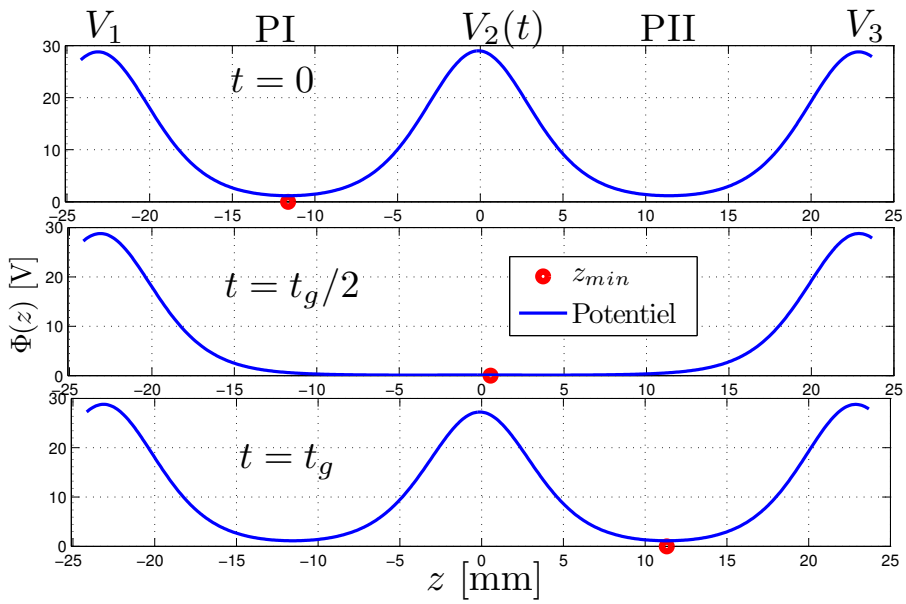

FIGURE 4.3 – Potentiel DC total pendant le transport PI-PII. Le point rouge représente la position du minimum de potentiel, la courbe bleue le potentiel total calculé.

La figure 4.3 présente les déformations du potentiel calculé et le déplacement de la position du minimum z_{min} au cours du transport. À mi parcours ($z = 0$), la dérivée seconde du potentiel s'annule et le potentiel devient très plat. Dans la suite, nous tentons de reproduire expérimentalement ces potentiels pour étudier l'efficacité du transport. Nous avons proposé deux protocoles de transport qui sont comparés d'un point de vue expérimental dans la section suivante. Le but est de choisir le protocole qui présente le taux maximal de transport.

4.2 Mesures préliminaires aller-retour entre PI et PII

Le transport des ions dans le piège est piloté par un programme Labview. Les paramètres du transport à savoir V_1 et t_g sont des entrées du protocole. Les variations des tensions $V_2(t)$ et V_3 sont calculées à partir de V_1 par un programme. Le logiciel Labview envoie ensuite les tensions calculées sur les générateurs DC. La figure 4.4 présente les étapes de générations des tensions de transport.

Les ions sont créés et transportés en phase gazeuse. L'analyse du transport peut se faire par observation du signal de fluorescence du photomultiplicateur dont un exemple est représenté sur la figure 4.5. Comme vu en section 3.3, le rapport des signaux de fluorescence ne permet pas de déterminer le taux de transfert avec précision. Néanmoins, l'analyse du signal d'ions est aussi intéressant pour faire un diagnostique du chauffage pendant

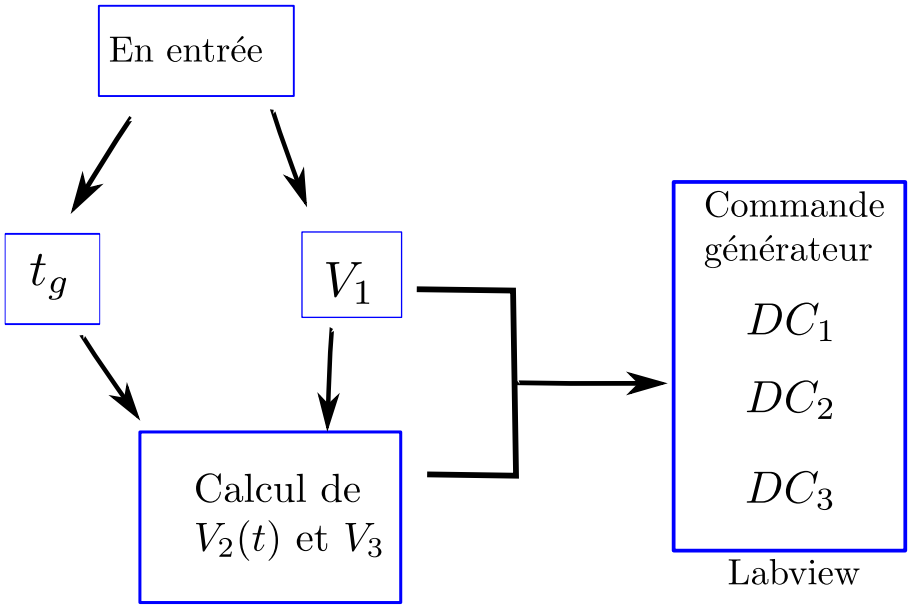

FIGURE 4.4 – Gestion des tensions pendant le transport.

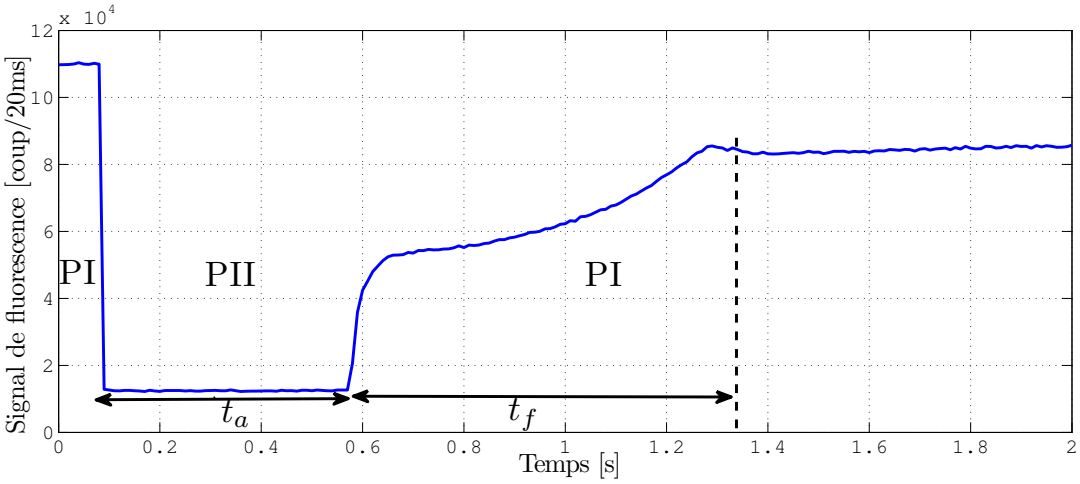

FIGURE 4.5 – Signal de fluorescence pendant le transport PI-PII-PI avec détection dans PI. La première chute de signal représente le départ des ions de PI, la durée t_a représente le temps d'attente dans PII, la croissance abrupte représente le transport PII-PI et t_f, la durée de refroidissement dans PI.

le transport à travers le temps que met le signal de fluorescence pour atteindre le niveau stationnaire. Cette méthode est exploitée dans la section 4.4.4. L'analyse des ellipses d'ions formées lorsque le nuage est froid est utilisée pour quantifier le taux de transport.

Avant le transport, les ions sont créés en phase gazeuse et refroidis jusqu'en phase liquide. À cet instant, une image est réalisée par la caméra intensifiée CCD pour une détermination du nombre d'ions, puis la fréquence du laser de refroidissement est réduite jusqu'à observation d'un saut de signal marquant la transition de phase liquide-gaz. Le transfert est réalisé en phase gazeuse. Après le transport, les ions sont à nouveau refroidis jusqu'à la phase liquide pour prendre une seconde image. La comparaison des deux images avant et après le transport permet de quantifier le taux de transport avec précision. Pour les transports aller-retour, le piège de départ est vidé [1] avant le retour des ions.

Pour des transports aller-retour, un temps d'attente suffisamment long (de l'ordre de $t_a = 5s$) est choisi après l'aller afin de permettre aux ions d'atteindre l'équilibre thermique avant le transport retour. En effet, le suivi dans le temps de la fluorescence du nuage après transport montre un temps typique de quelques secondes pour le retour à l'état stationnaire.

Dans cette partie, nous analysons les premiers résultats du transport. Nous commençons par la mise au point de la mesure d'efficacité du transport. Nous comparons ensuite l'efficacité du transport pour les deux protocoles et nous terminons par l'influence des tensions de piégeage.

4.2.1 Mesure de l'efficacité du transport

L'efficacité d'un transport est mesurée par comparaison du nombre d'ions avant et après le transport. Si les images du nuage sont prises dans les mêmes conditions (même piège, V_{RF} et V_{DC}), comparer le nombre d'ions revient à comparer le volume de l'ellipsoïde, la densité étant identique dans les deux cas. Pour quantifier le volume du nuage d'ions piégés, nous utilisons la méthode géométrique décrite dans le chapitre 3. Nous avons montré que le volume du nuage peut être mesuré avec une incertitude relative de 1% dans PII et $1,5\%$ dans PI. L'efficacité du transport est donnée par le rapport entre le nombre d'ions N_2 après le transport sur le nombre d'ions N_1 avant le transport. Pour estimer la précision de mesure, nous utilisons la règle de la somme des contributions non corrélées conseillée [140]. L'efficacité du transport aller-retour est alors donnée par :

$$P = \frac{N_2}{N_1} \pm \sqrt{(\delta_1)^2 + (\delta_2)^2} \tag{4.13}$$

où δ_i représente l'incertitude relative sur la mesure du nombre d'ions. Pour des mesures d'aller-retour dans les mêmes conditions de piégeage, les incertitudes considérées sont ceux du volume. L'incertitude de mesure de l'efficacité de transport vaut $\pm 1.5\%$ avec observation dans PII et $\pm 2\%$ dans PI.

Lorsque les mesures du nombre d'ions sont faites dans des conditions différentes ou dans des pièges différents, l'incertitude de mesure est plus grande que si la mesure du nombre d'ions était faite dans les mêmes conditions. Dans le chapitre 3, nous avons montré des incertitudes maximales de mesures du nombre absolu d'ions piégés dans les pièges PI et PII de 5%. D'après (4.13) l'erreur sur la mesure de l'efficacité du transport est alors de $\pm 7\%$ dans chaque piège.

1. en appliquant des tensions négatives sur DC_1 ou DC_3 selon que le piège de départ est PI ou PII

4.2.2 Choix du protocole de transport

Pour choisir un protocole de transport parmi les deux proposés, nous faisons les transports dans les mêmes conditions avec les deux protocoles. Comme les simulations numériques montrent une dépendance du nombre d'ions transportés avec la durée du transport (t_g), les transports sont réalisés en fonction des durées de transport. Pour certaines valeurs de t_g, le taux de chauffage est élevé. Cela peut être une cause de perte d'ions du piège. Notre but étant de faire des transports efficaces et sans chauffage, nous cherchons tout d'abord à identifier les durées pour lesquelles les taux de transport sont maximum. Du fait de la bande passante des alimentations DC, les durées de transport que nous pouvons tester sont supérieures à $80\mu s$. En dessous de cette valeur, le profil des tensions est déformé par rapport au profil désiré.

Pour vérifier si les approches de calcul de $V_2(t)$ (section 4.1.1 et 4.1.2) sont équivalentes, nous avons représenté sur la figure 4.6 l'efficacité du transport en fonction de t_g en fixant $V_1 = 1200V$ et la tension radio-fréquence à $V_{RF} = 1045V_{PP}$ soit $q_x = 0,15$. Pour ces expériences, le transport s'effectue en aller et retour et chaque sens de transport se fait avec la même durée de transport t_g. Les ronds bleus représentent les résultats du protocole 1 et les deux carrés noirs, le protocole 2. Les résultats issus des deux protocoles sont identiques à une barre d'erreur près. Dans le premier protocole, deux des trois tensions DC varient

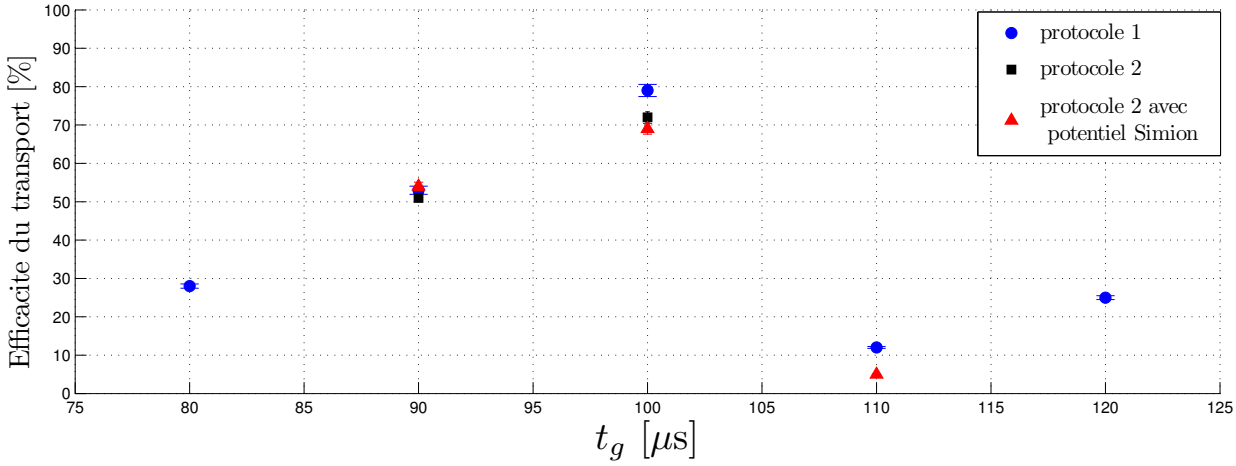

FIGURE 4.6 – Efficacité du transport aller-retour PI-PII-PI en fonction de la durée du transport (pour $V_{RF} = 1045V_{PP}$ et $V_{DC} = 1200V$). Les ronds bleus : protocole 1, les carrés noirs : protocole 2 et les triangles rouges : protocole 2 et avec le potentiel calculé avec Simion.

ce qui nécessite plus de ressources informatiques que le deuxième protocole qui consiste à faire varier uniquement une tension sur les trois. Nous gardons alors ce second protocole de transport dans la suite de nos travaux.

Sur la figure 4.6 nous comparons aussi les résultats de transport pour des tensions calculées si le potentiel est décrit par le logiciel Simion et celui pour lequel le potentiel du piège est ajusté par la relation (2.1). Pour vérifier la pertinence de cette dernière méthode

sur le transport, nous avons représenté par les triangles rouges, le transport par le protocole 2 en considérant directement le potentiel calculé. Les résultats montrent que les triangles rouges et les carrés noirs sont superposés. L'ajustement par la relation (2.1) suffit donc à reproduire les mêmes taux de transport qu'avec toute la grille de points donnée par Simion. Cela représente un gain de temps important sur le calcul des potentiels pendant le transport.

De plus, l'analyse de la figure 4.6 permet de remarquer une efficacité de transport atteignant les 80% à $t_g = 100\mu s$. Dans la suite, nous privilégions cette valeur de la durée du transport pour explorer l'impact des paramètres de confinement comme les tensions V_1 et V_{RF}.

4.2.3 Influence des paramètres de piégeage

Dans cette partie, la durée du transport est fixée à $t_g = 100\mu s$ et des transports aller-retour PI-PII-PI sont réalisés. Les ions sont donc détectés dans PI. Le but est d'étudier l'influence de la raideur des potentiels de confinement sur le transport.

Dans un premier temps, nous faisons un balayage du potentiel V_{RF} en gardant V_{DC} fixe ($V_1 = 1000V$). L'efficacité du transport est représentée sur la figure 4.7 en fonction du paramètre de Mathieu, proportionnel à la tension V_{RF}. Le transport est plus efficace

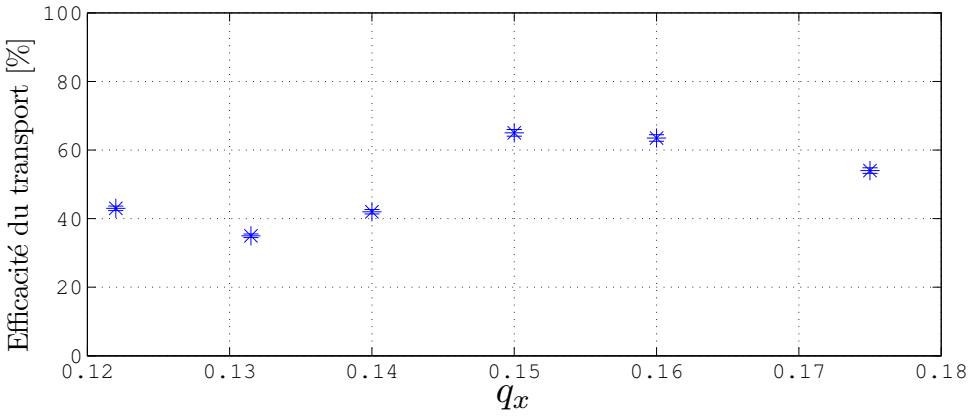

FIGURE 4.7 – Efficacité du transport en fonction du paramètre de Mathieu q_x pour $t_g = 100\mu s$ et $V_{DC} = 1000V$. Les tailles de nuages typiques sont de 2.10^4 à 3.10^4 ions.

autour de $q_x = 0,15$ soit $V_{RF} = 1045V_{PP}$.

D'autre part à V_{RF} fixe ($V_{RF} = 1045V_{PP}$), des tests de transport sont faits pour différentes tensions V_{DC}. Les résultats sont représentés sur la figure 4.8. Sur cette figure, les points bleus représentent les résultats pour des gros nuages d'environ dix à vingt mille ions, les points rouges des nuages de cinq à dix mille ions et enfin, les points noirs représentent les nuages plus petits que cinq mille ions. Nous remarquons que le maximum d'ions transportés est réalisé pour des V_i compris entre 1200 et $1400V$. Cet effet lié à V_{DC} est étudié dans la section suivante en séparant le transport dans les deux sens. L'observation de la figure 4.8 montre une petite variation de l'efficacité du transport avec le nombre d'ions. En effet, le taux de transport devient plus important lorsque la taille du nuage diminue. Cela laisse penser que l'efficacité de transport est liée au nombre d'ions.

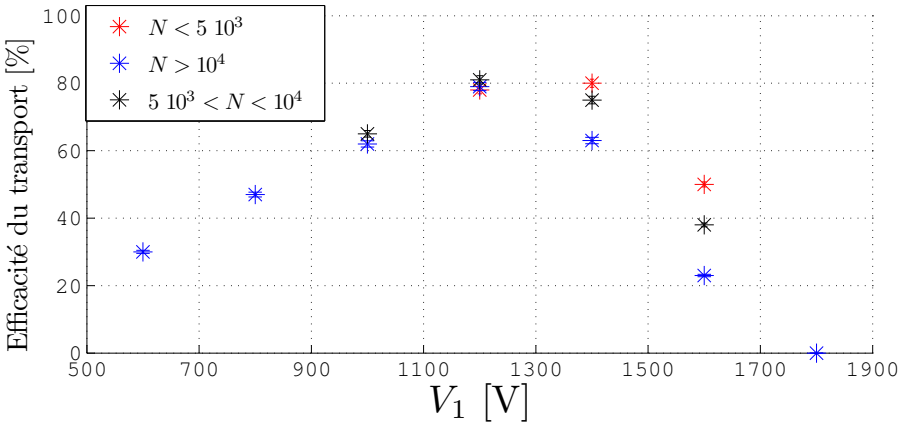

FIGURE 4.8 – Efficacité du transport aller-retour PI-PII-PI en fonction de tension V_{DC} Pour $t_{gate} = 100\mu s$ et $V_{RF} = 1045V_{PP}$. Les points bleus représentent un gros nuage d'environ 10 à 20 mille ions, les points noirs un nuage de 5 à 10 mille ions, les points rouges un nuage de moins de 5 mille ions.

4.2.4 Influence du nombre d'ions piégés sur le transport

Dans ce paragraphe, des expériences sont décrites pendant lesquelles l'objectif de détection est déplacé du piège PI vers le piège PII. Les ions sont toujours créés en PI, puis transportés en PII où ils sont détectés. Les transports s'effectuent toujours en aller-retour mais cette fois-ci $PII \rightarrow PI \rightarrow PII$. Nous étudions l'influence du nombre d'ions initial dans le piège PII sur l'efficacité de transport. La durée de transport est fixée à 100μs, les tensions $V_1 = 1200V$ et $V_{RF} = 1045V_{PP}$ ($q_x = 0,15$). La figure 4.9 montre que pour un nuage de taille inférieure à cinq mille ions, le taux de transport croît lorsque la taille diminue et peut atteindre 100% pour des nuages plus petits que deux mille ions. Cet ef-

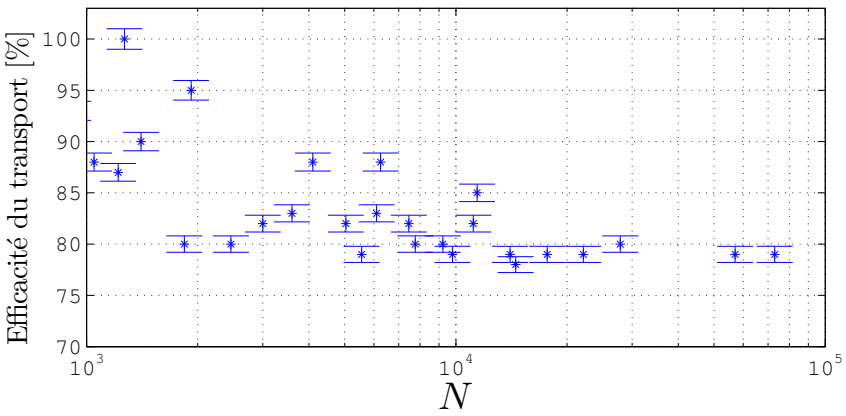

FIGURE 4.9 – Efficacité du transport aller-retour PII-PI-PII en fonction du nombre d'ions initial pour $V_1 = 1200V$ et $V_{RF} = 1045V_{pp}$ et $t_g = 100\mu s$. L'incertitude sur le nombre d'ions est de 5%.

fet de taille peut être imputé à une extension spatiale du nuage. Cette figure montre que pour ces paramètres de transport, le taux de transfert moyen aller-retour est de 80% pour

des nuages de taille supérieure à cinq mille. Ces taux élevés peuvent être réalisés avec des nuages contenant 10^5 ions.

Dans cette section nous avons fait une analyse préliminaire du transport entre les deux zones du piège. Cette étude a permis non seulement de mettre en évidence une dépendance du taux de transport au nombre d'ions initial mais aussi de monter que les transports sont très efficaces pour $t_g = 100\mu s$. Par ailleurs, la figure 4.7 présente un taux maximal de 60% pour une combinaison ($V_1 = 1000V$ et $V_{RF} = 1045V_{pp}$) contre un taux de 80% pour le couple ($V_1 = 1200V$ et $V_{RF} = 1045V_{pp}$). Cette observation peut être la signature d'une dépendance en V_{DC}. De plus, aucune conclusion n'a été tirée concernant l'influence des paramètres de piégeage et aussi de la durée du transport. L'étude faite jusqu'ici suppose que le transport est symétrique dans les deux sens PI-PII et PII-PI. Dans la suite, pour comprendre la physique du transport et mieux cerner l'influence des paramètres, nous dissocions les deux sens de transport et étudions séparément chaque sens.

4.3 Dépendance du transport entre PI et PII avec la durée

Les premières mesures montrent une dépendance forte du taux d'aller-retour des ions avec la durée de transport (section 4.2). Pour affiner cette dépendance, nous analysons en détail dans cette section l'influence du temps de transport. Les nuages transportés ont des tailles variées allant de deux mille à trente mille ions. L'amplitude de la tension RF est fixée à $V_{RF} = 1045V_{PP}$ (dans le cas contraire, la valeur est indiquée). Nous commençons par le taux d'ions qui partent du piège initial. Nous présentons ensuite les résultats des simulations de dynamique moléculaire pour la trajectoire des ions au cours du transport et nous montrons le taux d'ions qui arrivent à destination. Nous finissons cette partie par une étude sur l'effet du refroidissement sur le transport.

4.3.1 Départ d'ions du piège initial

Dans cette partie, nous étudions le pourcentage d'ions qui partent du piège initial. Pendant les expériences, nous mesurons le pourcentage d'ions restant dans le piège de départ après transport. Le pourcentage de départ est obtenu en faisant la différence entre les 100% du nuage initial et le pourcentage des ions restant en piège initial. Nous étudions séparément les deux sens de transport.

Départ des ions de PI

Nous nous intéressons aux pourcentages d'ions qui quittent le piège PI. Les ions sont détectés dans PI avant et après le transport PI-PII. La figure 4.10 montre le taux des ions qui partent de PI en fonction de la durée de transport t_g comprise entre $80\mu s$ et 2,6ms pour différentes tensions V_1 à savoir 1800V (a), 1200 (b) et 600V (c). L'observation majeure est que le nombre d'ions quittant le piège PI dépend fortement de la durée de transport. Ce nombre oscille entre 0 et 100% plusieurs fois avant d'atteindre une valeur stationnaire supérieure à 50%. En comparant les cas pour trois tensions DC différentes, nous remarquons

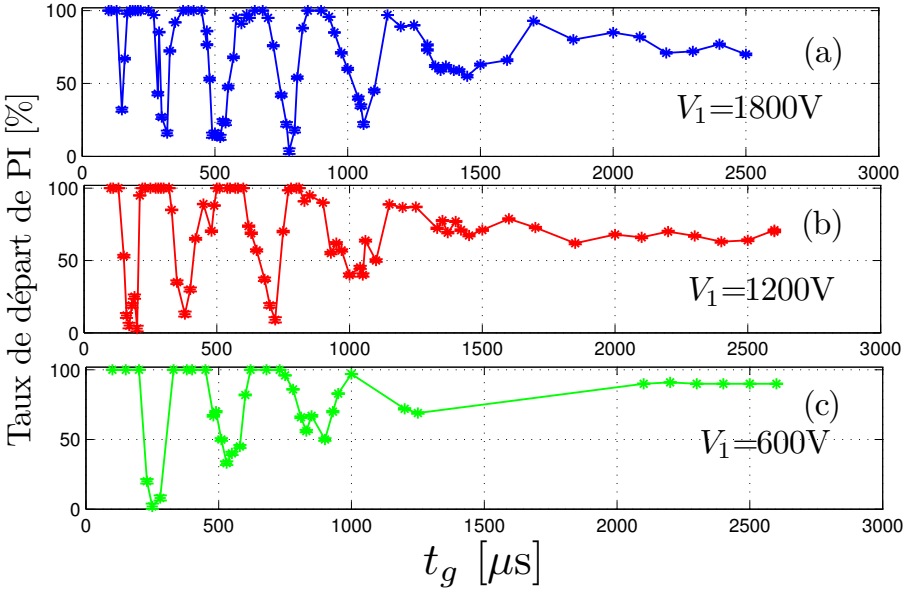

FIGURE 4.10 – Taux de départ du piège PI en fonction de la durée du transport t_g pour différentes tensions DC : $V_1 = 1800V$ (a), $V_1 = 1200V$ (b), $V_1 = 600V$ (c). La taille du nuage est comprise entre 3000 et 30 000 ions. Chaque mesure est indiquée par un point (la ligne est un support visuel). Les barres d'erreurs ont des tailles inférieures à la taille des points.

un décalage des oscillations avec t_g et une augmentation du nombre d'oscillations avec la tension DC.

Départ des ions de PII

Les ions sont créés dans PI et transportés dans PII. Ici le piège PII est le piège initial et le taux d'ions qui partent de PII est mesuré. Les résultats sont consignés dans la figure 4.11. Nous représentons le taux de départ d'ions de PII en fonction de t_g pour trois valeurs de V_1 ; 1800V (a), 1200V (b) et 600V (c).

Les mêmes remarques concernant les oscillations en fonctions de t_g sont observées dans le sens PI-PII. Mais, contrairement au paragraphe précédent, le taux de départ atteint une valeur stationnaire nulle (tous les ions restent dans PII pour les transports de grande durée). Ces courbes montrent que les transports ne sont pas symétriques dans les deux sens PI-PII et PII-PI. L'asymétrie est certainement liée au potentiel de contact qui existe en PI. Nous analysons l'effet de ce potentiel de contact sur le transport dans la section 4.5.

Les oscillations observées sur le taux d'ions quittant le piège sont indépendantes du nombre d'ions présents initialement dans le piège. En effet, pour des petits nuages, ces mêmes oscillations ont été observée pour les mêmes paramètres. Cette analyse permet de comprendre les allures des figures 4.6 et 4.8 qui résultent du produit de courbes différentes pour les deux sens de parcours.

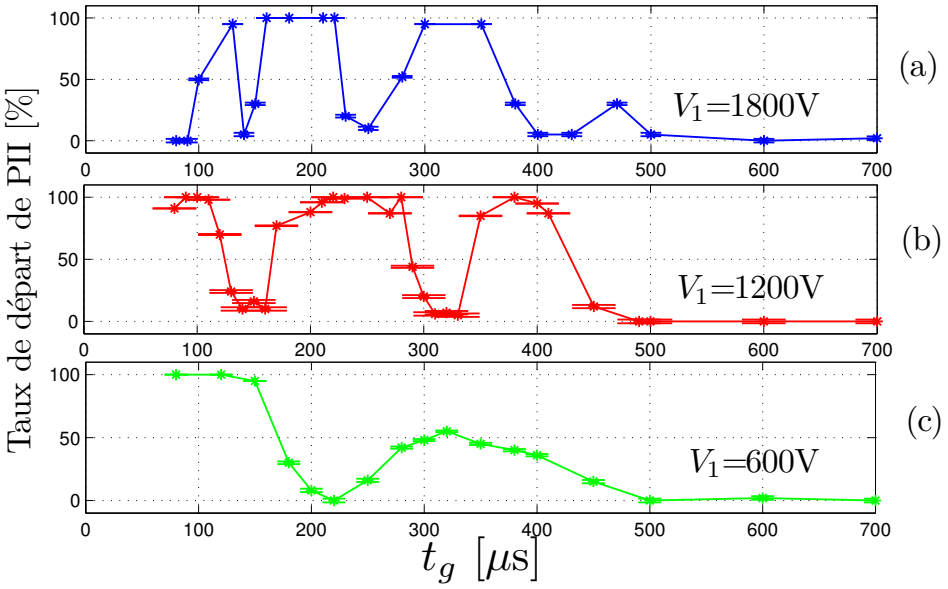

FIGURE 4.11 – Taux de départ d'ions de PII en fonction de la durée du transport t_g pour différentes tensions DC : $V_1 = 1800V$ (a), $V_1 = 1200V$ (b), $V_1 = 600V$ (c).

Départ des ions de PI avec d'autres fonctions de transport

Les oscillations du taux d'ions qui partent du piège initial sont également observées avec d'autres fonctions de transport à savoir la fonction sinusoïdale, linéaire et polynômiale [137]. Un exemple de mesures de taux de départ d'ions avec la fonction linéaire (4.14) est représenté sur la figure 4.12 en fonction de t_g entre 100 et 525μs.

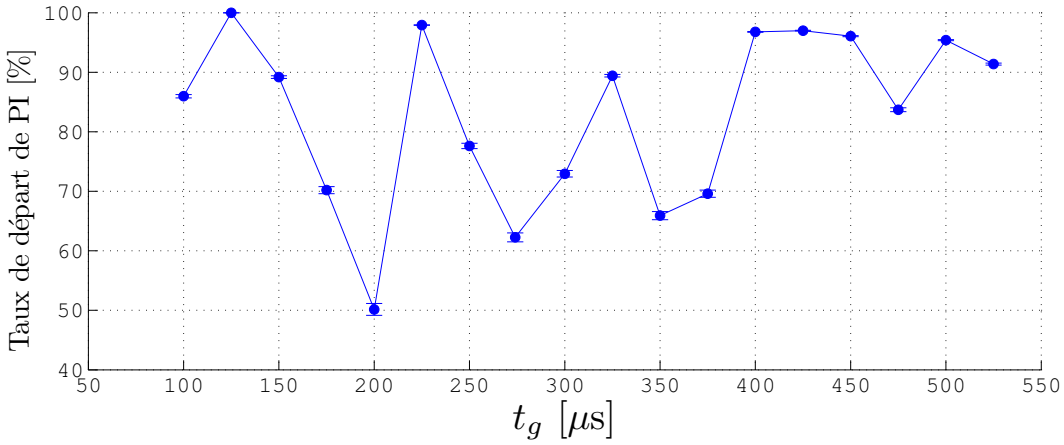

FIGURE 4.12 – Taux de départ d'ions de PI en fonction de la durée de transport utilisant la fonction de transport linéaire ($V_{RF} = 825V_{PP}$ et $V_1 = 1200V$).

$$g(t) = L\frac{t}{t_g} \tag{4.14}$$

Avec la fonction linéaire, il n'existe pas de plage large de t_g pour laquelle tous les ions partent de PI. C'est aussi cette observation qui a motivé notre choix de la fonction tangente hyperbolique comme fonction de transport.

Interprétation des résultats

Pour expliquer cette alternance entre un départ réussi des ions ou non, nous admettons que, les ions ne suivent pas effectivement le minimum de potentiel $z_{min}(t)$. Pour avoir un regard sur la sensibilité de ce phénomène au profil de potentiel, on refait le transport PI-PII avec $V_3 = -1200V$, qui ouvre le piège PII. On s'attend à ce que tous les ions s'échappent du piège s'ils traversent la position de l'électrode DC_2. Ces mesures sont faites pour d'autres conditions de piégeage ($V_{RF} = 825V_{PP}$ et $V_{DC} = 1200V$). La figure 4.13 montre les résultats de mesures du taux de départ de PI avec $V_3 = -1200V$ et $V_3 = 1200V$. Les points rouges de cette figure ne sont pas superposables à ceux de la figure 4.10-(b) car

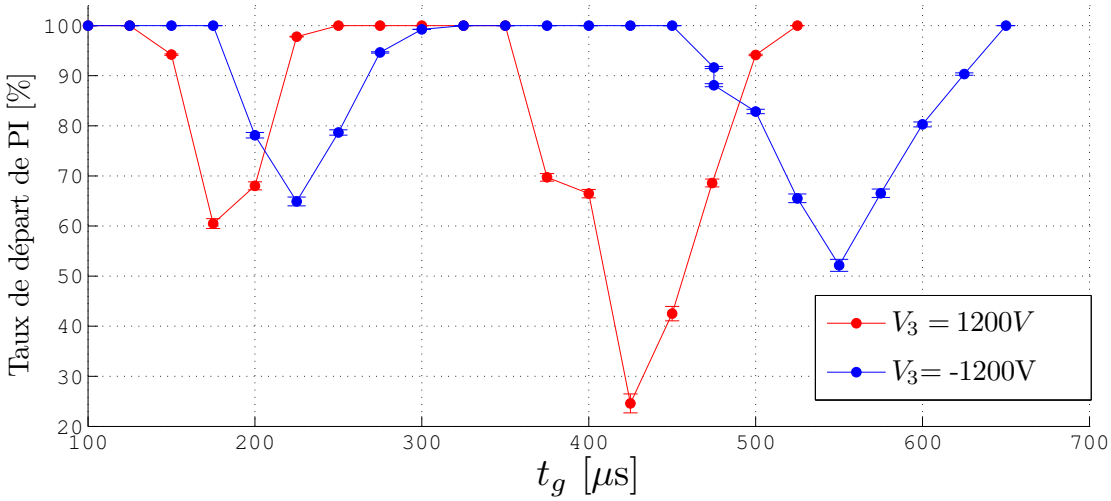

FIGURE 4.13 – Taux de départ des ions de PI en fonction de t_g pour $V_3 = 1200V$ (points rouges) et $V_3 = -1200V$ (points bleus).

24 mois séparent ces deux expériences. Cela est dû à l'évolution du potentiel de contact dans l'expérience ; nous exposons ce phénomène dans la section 4.5. Les oscillations du taux de départ des ions sont aussi observées même pour $V_3 = -1200V$ mais décalées en t_g par rapport à la configuration $V_3 = 1200V$. Ceci est certainement due à la sensibilité du transport liés aux défauts dans le potentiel qui empêche les ions de passer dans le piège PII et comme la cartographie du potentiel réellement généré dans le piège n'est pas très bien connue, cet effet ne peut être prédit par des simulations.

Pour des durées de transport plus longues que la milliseconde, le pourcentage des ions transférés atteint une valeur stationnaire (figures 4.10 et 4.11). Dans le cas idéal de symétrie, cette valeur est de 50% [2]. Dans notre double piège, une asymétrie, très probablement due au potentiel de contact dans PI, peut être responsable de la répartition observée sur les taux

2. Dans le cas d'un transfert lent, pendant un certain temps, les deux zones de piégeages forment un piège unique large. Les ions se répartissent alors de manière équitable entre les deux zones.

d'ions transférés pour des temps longs. Nous analysons cet effet de potentiel de contact à la section 4.5.

Pour justifier l'asymétrie entre les transport PI-PII et PII-PI, nous pensons que le nuage effectue des oscillations entre la zone PI et la zone PII et finit dans PI ou PII avant la fin du transport en fonction de t_g. Dans la suite de cette partie, pour justifier cette hypothèse, des simulations de dynamique moléculaire sont réalisées.

4.3.2 Calcul de la trajectoire des ions au cours du transport

Les simulations de dynamique moléculaire calculent la trajectoire d'un ion unique au cours du transport (approximation valable pour le mouvement du centre de masse du nuage dans un potentiel harmonique [137]). Les résultats de ces simulations dépendent des potentiels utilisés pour calculer la forme de la fonction de transfert $V_i(t)$ et la trajectoire de l'ion. En effet, si l'équation du mouvement est intégrée dans le potentiel axial ajusté par l'équation (2.1) tout comme pour calculer $V_2(t)$, l'ion est transféré de PI vers PII quelque soit la durée de transport. Pour être plus proche de la situation expérimentale, nous considérons toujours la fonction $V_i(t)$ utilisée pendant les expériences, mais les équations du mouvement sont intégrées dans le potentiel calculé en utilisant le logiciel Simion [100] avant d'être ajustées. Dans cette condition, la probabilité calculée pour un ion d'être transféré de PI à PII passe de 0 à 100% en fonction de la durée du transport. Nous attribuons ce phénomène à la différence entre le potentiel supposé pour calculer les $V_i(t)$ et celui utilisé pour calculer la trajectoire. La différence majeure des simulations avec les résultats expérimentaux est que les oscillations ne s'atténuent pas pour des t_g très grandes. Ceci est attribué à un effet de taille du nuage. Comme dans [137], pour des durées de transport longues, l'étendue spatiale du nuage joue un rôle non négligeable. Le nuage s'étend et visite les zones où le potentiel n'est plus harmonique. Dans ce cas, le mouvement du centre de masse ne suffit plus à expliquer l'efficacité du transport du nuage. Quelques exemples de trajectoire d'un ion sont représentés sur la figure 4.14. Pour $t_{g1} = 189\mu s$, la trajectoire de l'ion suit le minimum de potentiel de la zone PI à la zone PII. Pour des $t_{g2} = 884\mu s$, l'ion est en avance par rapport au minimum de potentiel et arrive en PII avant de retourner dans PI. Enfin pour $t_{g2} = 1621\mu s$, l'ion effectue des oscillations entre PI et PII et finit dans PII. Plus la durée de transport est longue, plus le nombre d'oscillations augmente. Cette observation permet d'expliquer les oscillations expérimentales sur les taux d'ions détectés dans le piège initial après le transport.

La période d'oscillation du taux, détectée dans le piège initial après le transport, est typiquement de $200\mu s$ dans les expériences et elle est beaucoup plus faible dans les simulations (de l'ordre de quelques dizaines de micro-secondes). Ceci peut s'expliquer par la différence entre le potentiel supposé pour calculer $V_i(t)$ et celui utilisé pour les expériences. Une description précise du champ local de piégeage est un avantage essentiel dans les expériences de transport déjà publiées [141]. Dans des micro-pièges à un ion unique, les potentiels générés ont très peu d'imperfections et améliorent la description exacte entre les potentiels supposés et ceux générés dans l'expérience. Cependant, dans des macro-pièges, il est très difficile, voir impossible, de dresser une cartographie du potentiel vu par les ions au cours du transport à l'intérieur du piège à cause de la taille du piège et celle du nuage. Néanmoins, les résultats expérimentaux montrent qu'il est possible de transférer les ions même s'il est impossible de prédire de façon exactes les paramètres expérimentaux.

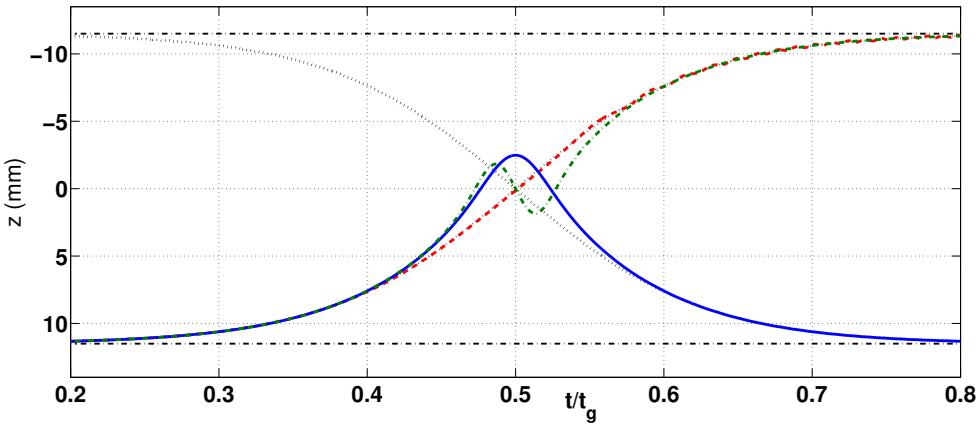

FIGURE 4.14 – Trajectoire d'un ion unique initialement au repos, calculé par des simulations de dynamique moléculaire en fonction du temps normalisé à la durée de transfert. Les équations du mouvement sont intégrées dans le potentiel calculé par le logiciel Simion et $V_2(t)$ obéis à l'équation (4.7) calculé avec $\phi_i(z) = f_i(z)$. Les tirets rouges : $t_{g1} = 189\mu s$, la courbe bleue : $t_{g1} = 884\mu s$, les pointillés verts $t_{g1} = 1621\mu s$. Les pointillés noirs correspondent aux positions des minima de potentiel pendant le transfert (dont une est couvert par les tirets rouges). Les pointillés horizontaux indiquent les positions des centres des deux pièges.

Les calculs de dynamique moléculaire ont permis de comprendre le comportement oscillant des ions restant dans le piège de départ. Au cours du transport, les ions ne suivent pas le fond du puits de potentiel comme souhaité mais effectuent des va-et-vient entre les deux parties du piège. Selon la durée de transport, ils finissent soit dans PI, PII, ou soit ils sont perdus. Dans le paragraphe suivant, nous analysons l'efficacité du transport pour savoir combien d'ions arrivent effectivement à destination.

4.3.3 Influence de la durée sur le transport PI-PII et PII-PI

Dans cette section, nous quantifions le pourcentage d'ions qui sont effectivement transportés. Pour le caractériser avec précision, il est nécessaire que les ions reviennent dans le piège initial afin de comparer le volume du nuage pour minimiser l'incertitude de mesure. De plus, translater l'objectif en temps réel entre les deux pièges pour suivre les ions provoque souvent la perte du nuage à cause des chocs mécaniques. Pour quantifier le taux de transfert pour un sens de parcours en faisant faire des aller-retour au nuage, il est important d'identifier des paramètres qui assurent un transport efficace dans les deux sens. Ces paramètres permettent d'effectuer un transfert efficace dans un sens pour décorréler les effets d'asymétrie. Les études précédentes ont identifié la durée $t_g = 100\mu s$ comme conduisant aux meilleures efficacités de transport en aller-retour. Nous avons montré (voir figure 4.9) que l'efficacité de transport dépend très peu du nombre d'ions tant que ce dernier est supérieur à 5 000 et peut atteindre 80% en aller-retour. De plus, des mesures directes du taux de transport dans un sens entre PI et PII sont faites en déplaçant à chaque fois l'objectif de détection pour détecter les ions dans les deux pièges. La figure 4.15 montre que le taux d'ions transportés dans un sens est en moyenne de 89±5% et dépend peu du

nombre d'ions. Pour étudier l'efficacité de transport en fonction de la durée de transport

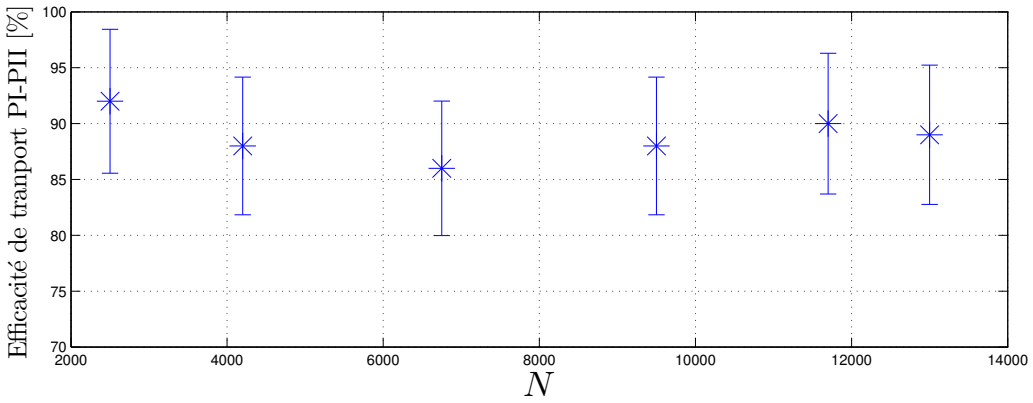

FIGURE 4.15 – Efficacité du transport dans le sens PI→PII en fonction du nombre d'ions pour $t_g = 100\mu s$ et $V_1 = 1200V$. Ces mesures sont faites en translatant l'objectif de détection entre PI et PII.

dans un sens, nous réalisons un transport connu à $100\mu s$ dans un sens et faisant varier t_g dans l'autre sens du transport. Les mesures se font à V_1=1200V.

Efficacité du transport PI-PII

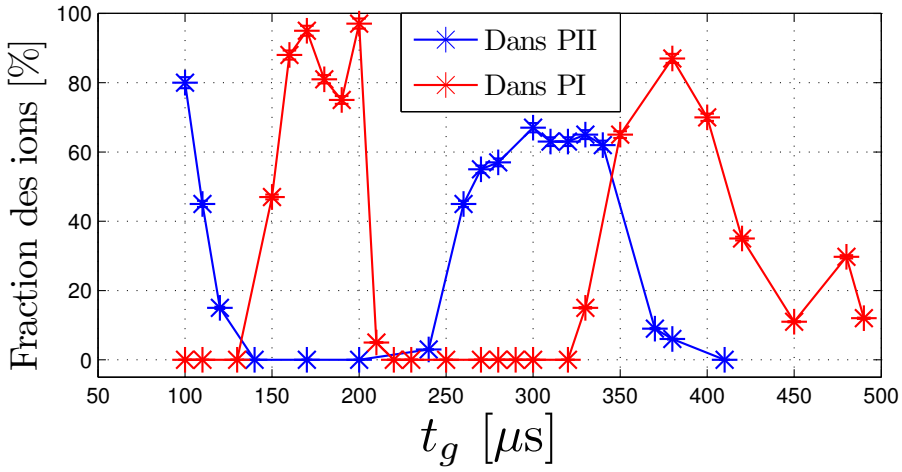

FIGURE 4.16 – Pourcentage des ions détectés dans chaque piège après un transport aller-retour PII-PI-PII en fonction de t_g. Les ions sont transportés de PII à PI avec une durée de transport de $100\mu s$ (soit un taux de 89%) et de PI à PII avec t_g. Les points bleus représentent le pourcentage des ions qui reviennent dans PII. Les points rouges représentent le pourcentage des ions qui restent dans PI après le transport PI-PII. La tension DC est $V_1 = 1200V$. (Les lignes représentent un guide visuel)

Ici, les ions sont détectés dans PII. Les résultats sont représentés sur la figure 4.16 (les points bleus). Sur cette figure est représenté aussi le taux des ions qui restent dans

PI après le transport (points rouges) [3]. L'efficacité du transport PI-PII oscille avec t_g. La comparaison des points rouges et bleus montre qu'une partie des ions qui n'arrivent pas dans PII restent dans PI et une autre partie est perdue.

Efficacité du transport PII-PI

Dans ce paragraphe, les ions sont détectés dans PI. Les résultats (les points bleus) sont représentés sur la figure 4.17 en même temps que le taux d'ions restant dans le piège PII (les points rouges) [4]. Comme dans le paragraphe précédent, il y a une alternance entre le nombre d'ions transportés et ceux restant dans PII après le transport.

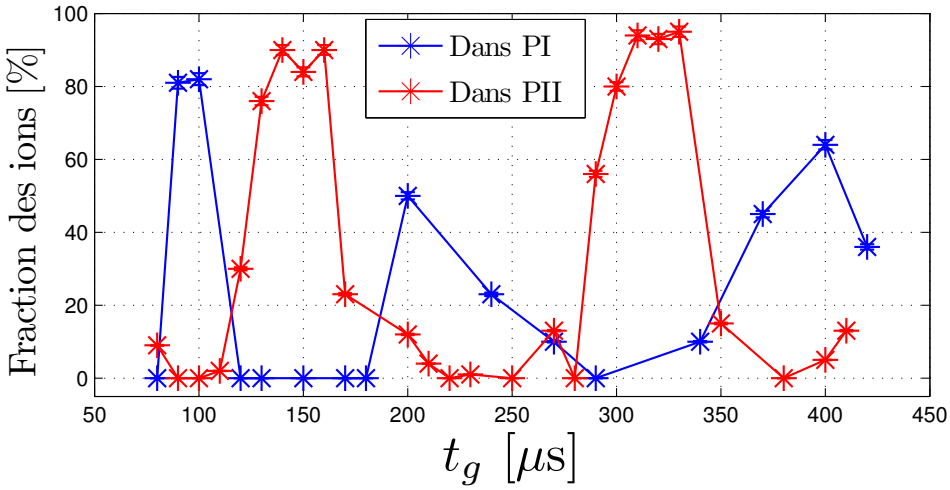

FIGURE 4.17 – Pourcentage des ions détectés dans chaque piège après un transport aller-retour PI-PII-PI en fonction de t_g. Les ions sont transportés de PI à PII avec une durée de transport de $100\mu s$ soit un taux de 90% et de PII à PI avec t_g. Les points bleus représentent le pourcentage des ions qui reviennent dans PI. Les points rouges représentent le pourcentage des ions qui reste dans PII après le transport PII-PI. La tension DC est $V_1 = 1200V$.

Pour conclure, l'analyse du taux de transport permet de montrer qu'il existe des pertes d'ions dues au transport lui même. Dans la section suivante, nous analysons ces pertes d'ions pendant le transport

4.4 Origine des pertes au cours du transport

À la fin du protocole de transport, il y a des ions qui ne se retrouvent ni dans le piège de départ, ni dans le piège d'arrivée. Dans cette partie, nous analysons quel processus induit par le transport peut expliquer ces pertes. Nous commençons par un bilan des pertes au cours du transfert PII-PI. Ensuite, nous appliquons un protocole de déformation du potentiel sans transport des ions pour tenter de quantifier ces pertes. L'influence du

3. ces mesures proviennent d'une expérience précédente où l'objectif était au dessus de PI
4. mesures provenant d'une expérience précédente où l'objectif était au dessus de PII

refroidissement sur le transport est analysée. Nous terminons cette partie par un diagnostic du chauffage des ions.

4.4.1 Bilan des pertes au cours du transport PII-PI

Pour estimer le taux de perte d'ions pendant le transport PII-PI, nous faisons la différence entre le taux de départ de PII et le taux d'arrivée en PI. Nous avons montré que le taux de transport dans un seul sens est de 89% pour $t_g = 100\mu s$. Pour estimer le taux d'ions qui arrivent en PI, il suffit de diviser l'efficacité de transport aller-retour par 89%. Le taux de perte au cours du transport PII-PI est représenté sur la figure 4.18.

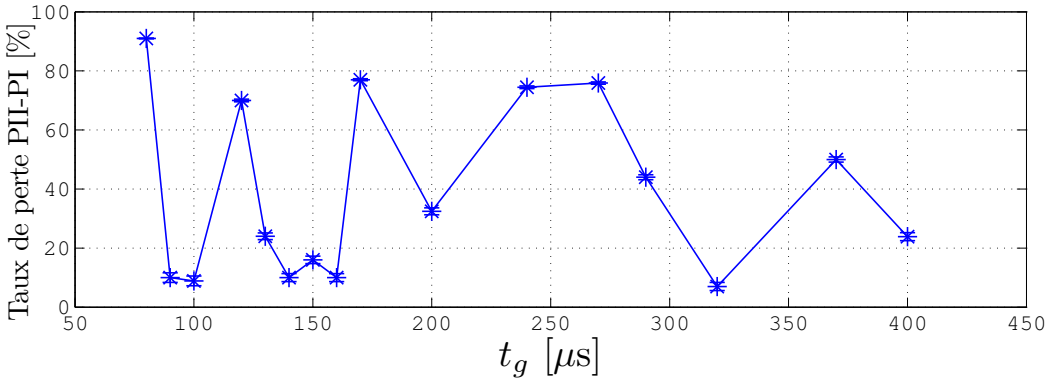

FIGURE 4.18 – Bilan des pertes au cours du transport PII-PI en fonction de la durée de transport t_g. Ce bilan est calculé en faisant la différence entre le taux de départ de PII et le taux d'arrivée dans PI.

Ce taux de perte oscille en fonction de t_g. Dans la suite, nous tentons de trouver une cause des pertes d'ions. Dans le paragraphe suivant, ces pertes sont comparées aux pertes par déformation du potentiel pendant le transport afin de trouver une corrélation entre elles.

4.4.2 Déformation du puit de potentiel sans transport des ions

Les simulations ont montré que la déformation du puits de potentiel au cours du transport est une source de chauffage qui peut conduire à la perte des ions [137] . Dans ce paragraphe, nous testons expérimentalement ce résultat numérique. Pour cela, nous appliquons aux ions la même variation de la raideur du potentiel $\omega_z(t)$ que pendant le transport mais sans les transporter. Cette expérience est réalisée en PII et la variation de $\omega_z(t)$ est celle du transport PII-PI. Dans cette étude nous comparons les pertes d'ions induites par déformation aux pertes au cours du transport. Le but est de déduire si la déformation du puits est responsable des pertes d'ions pendant le transport.

Rappelons que la raideur du puits de potentiel pendant le transport est donnée par la relation (4.4). Comme nous voulons déformer le puits dans PII sans transporter les ions, nous définissons de nouvelles évolutions des potentiels V_i notées V_{11}, V_{22} et V_{33}. La nouvelle

condition d'équilibre dans le puits de potentiel s'écrit :

$$\sum_{n=1}^{3} V_{nn}\left(t\right)\phi_n'\left(z\right)|_{z_{c2}} = 0 \tag{4.15}$$

L'égalité entre les raideurs du potentiel avec et sans transport se traduit d'après la relation (4.4) par l'équation suivante :

$$\sum_{n=1}^{3} V_n\left(t\right)\phi_n''\left(z\right)|_{z_{min}(t)} = \sum_{n=1}^{3} V_{nn}\left(t\right)\phi_n''\left(z\right)|_{z_{c2}} \tag{4.16}$$

où z_{c2} est la position du centre du piège PII. L'électrode DC1 est très éloignée du centre du piège PII et donc la contribution de V_{11} est négligeable dans le calcul. Les équations (4.15), et (4.16) permettent d'exprimer les nouvelles valeurs $V_{ii}(t)$ des tensions DC considérées en fonction de celles appliquées (V_i) pendant le transport par les relations (4.18 et 4.17).

$$V_{33}\left(t\right) = \frac{\phi_2'}{\phi_3''\phi_2' - \phi_3'\phi_2''}|_{z_{c_2}} \sum_{n=1}^{3} V_n\left(t\right)\phi_n''\left(z\right)|_{z_{min}} \tag{4.17}$$

$$V_{22}\left(t\right) = \frac{\phi_3'}{\phi_3''\phi_2' - \phi_3'\phi_2''}|_{z_{c_2}} \sum_{n=1}^{3} V_n\left(t\right)\phi_n''\left(z\right)|_{z_{min}} \tag{4.18}$$

Les $V_i(t)$ sont les valeurs des tensions appliquées pendant le transport PII-PI. Sur les barreaux DC_2 et DC_3 du piège, nous avons appliqué les tensions V_{22} et V_{33}. Dans ce protocole, les évolutions de V_{22} et V_{33} sont représentées sur la figure 4.19 pour $V_1 = 1000V$. Pour assurer la même déformation de la fréquence $\omega_z(t)$ que pendant le transport, les

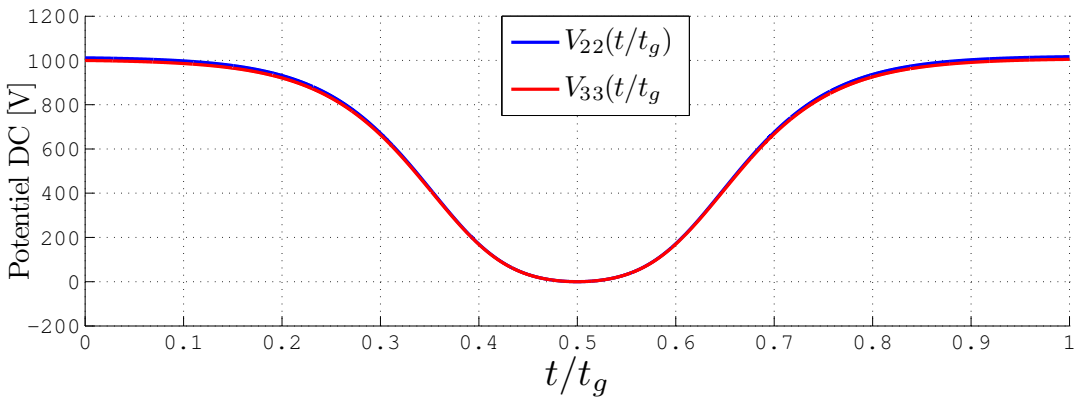

FIGURE 4.19 – Évolution des potentiels V_{22} et V_{33} appliqué sur les électrodes DC_2 et DC_3 pendant la déformation du puits lorsque $V_1 = 1000V$.

tensions V_{22} et V_{33} varient ensemble d'une valeur initiale jusqu'à zéro avant d'atteindre de nouveau la valeur de départ. Ici on ne reproduit que le terme harmonique du développement du potentiel autour du minimum et les ordres supérieurs, générés par les barrières de potentiel ne sont pas reproduits car le piège est ouvert.

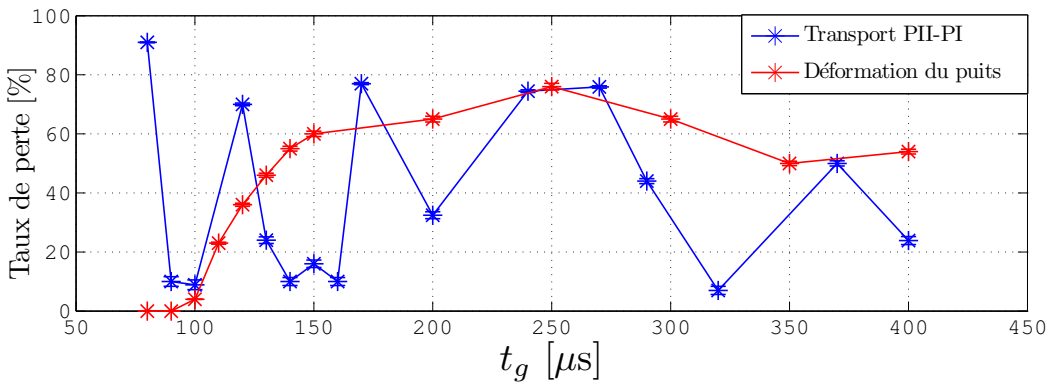

FIGURE 4.20 – Taux de pertes d'ions pendant la déformation du potentiel sans transport des ions (points rouges) et avec transport des ions (points bleus) en fonction de la durée de transport.

Pour une série, nous mesurons le taux de perte d'ions engendré par la déformation du potentiel en fonction de la durée de la déformation. Ces résultats sont représentés sur la figure 4.20 par les points rouges et les point bleus représentent les taux de perte au cours du transport PII-PI de même durée. Les pertes occasionnées par la déformation du puits n'oscillent pas avec t_g contrairement au cas où il y a du transport. Néanmoins, l'allure de cette courbe montre que pour des déformations très rapides, cette déformation n'excite pas les ions. Pour des déformations lentes, le taux de perte diminue. Cela s'explique par le fait que les potentiels évoluent lentement et comme les ions ne sont pas en mouvement ils sont peu perturbés.

En résumé, ce protocole de déformation du potentiel sans transport des ions ne permet pas d'expliquer les pertes pendant le transport. En effet, les ions sont immobiles dans le piège et les pertes peuvent être dues à l'absence de confinement du fait de la baisse des barrières de potentiel.

4.4.3 Influence de la température du nuage et du refroidissement laser pendant le transport

Influence de la température du nuage

Pour étudier l'influence de la température du nuage sur le transport, nous réalisons des transferts avec des ions en phase liquide. Quelques tentatives avec $t_g = 100\mu s$ montrent des taux de transport inférieurs à 20%. Cela s'explique par le fait que quand le nuage est liquide, l'énergie coulombienne est non négligeable par rapport à l'énergie d'agitation thermique. Au cours du transport, cette énergie est convertie en énergie cinétique et entraîne alors des pertes importantes. En conséquence, les ions sont transportés en phase gazeuse avec des températures [5] comprises entre 1 et 10K, pour éviter un excès d'échauffement et limiter ainsi les pertes.

5. Ces températures peuvent êtres estimées à la transition gaz-liquide lorsque $\Gamma_{Pl} \approx 1$ (relation 1.45) en considérant la densité en phase liquide.

Influence du refroidissement laser

Sur une série de mesures avec des nuages variant de 10 000 à 15 000 ions, nous avons comparé le taux de transfert entre PI et PII avec et sans refroidissement laser pendant le transport. Les résultats sont présentés dans le tableau 4.1. Sur les quatre mesures, deux concernent les taux d'ions qui partent de PI et deux mesures, le taux d'ions transportés de PII à PI à $t_g = 400\mu s$ avec un retour PI-PII à $100\mu s$. Le tableau 4.1 montre un faible

	Départ PI		Transport PI-PII : $100\mu s$ et PII-PI : t_g	
t_g (μs)	150	170	100	400
avec refroidissement (%)	92±2%	25±2%	65±2%	55±2%
sans refroidissement (%)	92±2%	30 ±2%	63±2%	52±2%

TABLE 4.1 – Comparaison des taux de transport avec les lasers de refroidissement allumés et éteint. Les tensions de confinement sont $V_1 = 1200V$ et $V_{RF} = 1045V_{PP}$.

écart entre le transport avec et sans refroidissement laser. Le refroidissement laser ne joue pas un rôle important au cours du transport des ions en phase gazeuse. En effet, la plage de capture Doppler est de l'ordre de 10m/s, très petite par rapport à la vitesse moyenne pendant le transport qui peut atteindre 230m/s à $t_g = 100\mu s$. La troisième colonne du tableau montre un taux de transport aller-retour PI-PII-PI à $t_g = 100\mu s$ de 65% au lieu des 80% au préalable. Cette différence est commentée dans la section 4.5 et provient de l'évolution du potentiel de contact au cours des expériences.

Dans ce paragraphe, nous avons montré que le transport est plus efficace en phase gazeuse où l'énergie coulombienne est faible. De plus, pendant le transfert, les ions ont une vitesse très élevée et sont peu sensibles au refroidissement laser. Néanmoins, à la fin du transport, le refroidissement laser permet de réduire l'agitation thermique des ions pour permettre aux ions d'atteindre plus vite un état d'équilibre. Dans la suite de cette étude, nous faisons un diagnostic du chauffage au cours du transport en analysant le temps nécessaire pour atteindre l'équilibre thermique. Cette étude a pour but de voir s'il y a une corrélation avec les pertes d'ions.

4.4.4 Chauffage au cours du transport

La signature de l'excitation du mouvement des ions au cours du transport réside dans l'évolution du signal de fluorescence des ions immédiatement après le transport (voir figure 4.5). Les fréquences des lasers sont fixées au cours du transport et pendant la phase de refroidissement après le transport. L'évolution de la fluorescence après le transport dépend de l'effet Doppler (qui dépend de la vitesse des ions le long de l'axe du piège). L'effet du chauffage des ions pendant le transport est observé sur la durée de la phase de refroidissement. Le taux de fluorescence des ions dépend de la température, du nombre d'ions [123] et résulte de la compétition entre le refroidissement laser et le chauffage RF. Pour utiliser la durée de refroidissement comme diagnostic de température après le transport, les expériences doivent être faites avec un nombre d'ions variant peu à l'arrivée. Nous exploitons donc l'évolution de la fluorescence de nuages seulement après des transports plus long que 700μs pour être sur que les nuages sont de tailles proches et qu'ils arrivent dans le piège PII (voir figure 4.10).

Nous définissons par t_f le temps nécessaire au taux de fluorescence pour atteindre la valeur stationnaire après le transfert. Ce temps est interprété comme étant un indicateur de l'excitation du mouvement. Deux spectres après transport PI-PII sont représentés sur la figure 4.21 pour $t_{g1} = 1020\mu$s et $t_{g2} = 850\mu$s. Nous observons que pour $t_{g1} = 1020\mu$s,

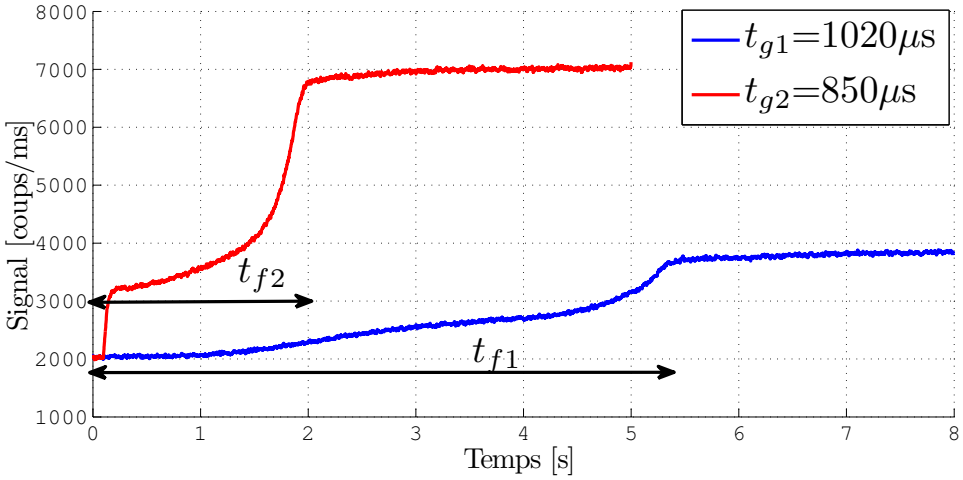

FIGURE 4.21 – Évolution du signal de fluorescence après transport en fonction du temps.

le signal des ions met plus de temps pour atteindre le niveau stationnaire que pour $t_{g1} = 850\mu$s. Nous pensons donc que les ions sont plus chauffés à t_{g1} qu'à t_{g2}. Sur la figure 4.22-(a) nous présentons les temps de refroidissement t_f en fonction de la durée de transport t_g pour des durées de transport supérieures à 700 μs. Les temps de refroidissement varient

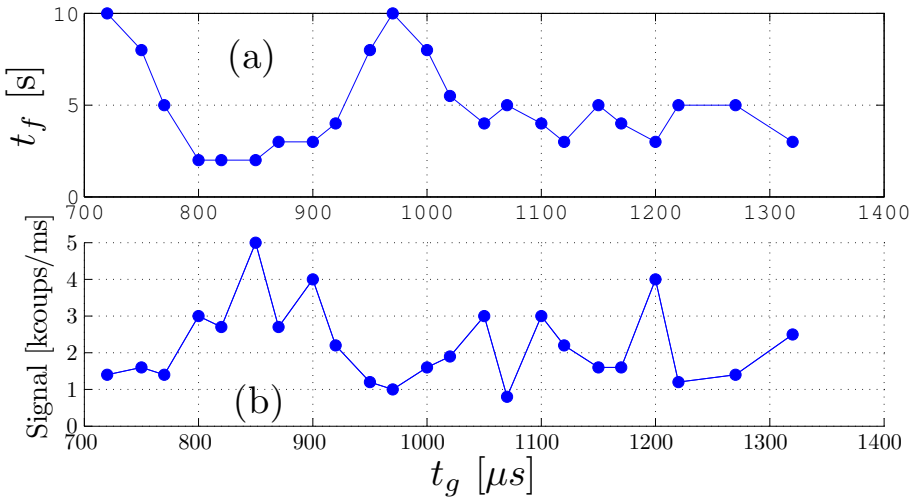

FIGURE 4.22 – (a) Temps mis par les ions dans PII (après le transport PI-PII) pour atteindre un signal stationnaire en fonction de t_g. (b) : Valeurs maximales de fluorescence atteintes par les ions. La tensions DC est $V_1 = 1800V$.

entre 2 et 10s. Ceci montre que le chauffage induit par le transport dépend de la durée

de transport. Sur la figure 4.22-(b) est représentée la fluorescence maximale, qui peut donner une indication sur le nombre d'ions. Les deux courbes (a) et (b) de la figure 4.22 montrent que les maximum du signal correspondent aux temps faibles de refroidissement. Nous déduisons alors qu'un nuage d'ions est transféré efficacement de la zone PI et la zone PII (ou PII à PI) si l'excitation est faible, ce qui est le cas aussi pour $t_g = 100\mu s$ pour lequel $t_f < 3s$. Lorsque l'on réduit l'amplitude V_{RF} des tensions RF (pour avoir $q_x = 0,12$ au lieu de 0,15), le temps de refroidissement atteint des valeurs plus faibles que 200ms et ne dépasse pas 5s. Cela montre que la vitesse des ions est moins modifiée par le transport. L'augmentation de t_f avec l'amplitude RF peut être interprétée par des termes non linéaires dans l'équation du mouvement qui couplent le mouvement sur le plan radial et la direction axiale, donnant lieu au chauffage RF.

Dans notre montage expérimental, le potentiel axial est déformé et les contributions non harmoniques du profil du potentiel sont non négligeables lorsque le minimum de potentiel traverse le centre de l'électrode centrale (DC_2). Les contributions anharmoniques induisent un couplage entre le mouvement du centre de masse et le mouvement des ions individuels dans le nuage, qui est responsable de l'augmentation de l'énergie cinétique dans le référentiel du centre de masse. Les simulations de dynamique moléculaire montrent que ce couplage, induit par la contribution anharmonique augmente avec la durée de transport. Les résultats expérimentaux ne montrent pas un tel comportement pour l'échelle de temps étudiée. La question de la dépendance du chauffage avec la durée de transport reste toujours ouverte.

4.5 Rôle du potentiel de contact

Au cours du temps, nous avons constaté une évolution des résultats du transport entre les deux pièges PI et PII. Les observations faites sont liées au potentiel de contact. Lors de la création, un jet d'atomes est injecté entre les barreaux. Certains atomes non ionisés de ce jet se déposent sur les barreaux du piège. Ces dépôts génèrent un potentiel électrostatique qui perturbe le potentiel de piégeage. Dans cette partie, nous caractérisons et analysons son rôle sur le transport des ions entre les zones PI et PII.

4.5.1 Mesure du potentiel de contact

Le potentiel de contact crée une marche de potentiel entre les fonds de potentiel de PI par rapport à PII et aussi un déplacement du puits de potentiel perpendiculairement à l'axe du piège. Appelons $\mathbf{F}_C$ la force induite sur le nuage par le potentiel de contact V_C sur les barreaux du piège. Cette force s'oppose à la force de piégeage $\mathbf{F}_r$, qui vient du pseudo-potentiel de piégeage. La condition d'équilibre des deux forces est donnée par la relation 4.19.

$$\mathbf{F_C} + \mathbf{F_r} = \mathbf{0} \tag{4.19}$$

où $F_r = m\omega_r^2(y - y_0)$ et y_0 est la position du nuage en absence de potentiel de contact. Pour exprimer la force du potentiel de contact, considérons deux barreaux opposés (dont l'un admet des dépôts) comme étant les armatures d'un condensateur séparées d'une distance $2r_0$ et dont le barreau avec dépôt est chargés positivement. La force électrostatique dans

ce condensateur est donnée par : $F_C = qV_C/2r_0$. Suivant la direction radiale, la relation (4.19) permet d'écrire la position du puits de potentiel sous la forme (4.20) :

$$y = \frac{qV_C}{2mr_0}\frac{1}{\omega_r^2} + y_0 \tag{4.20}$$

Pour caractériser ce potentiel de contact expérimentalement, il suffit de mesurer le déplacement du nuage en fonction de la force de rappel du piège en ω_r^2. Considérons un nuage moyen d'environ quatre mille ions en phase liquide dans PI. La position radiale du centre du nuage est mesurée en fonction de l'amplitude du potentiel V_{RF} appliquée. Sur la figure 4.23, est représentée la position du centre C_y en fonction de $1/\omega_r^2$. On observe bien

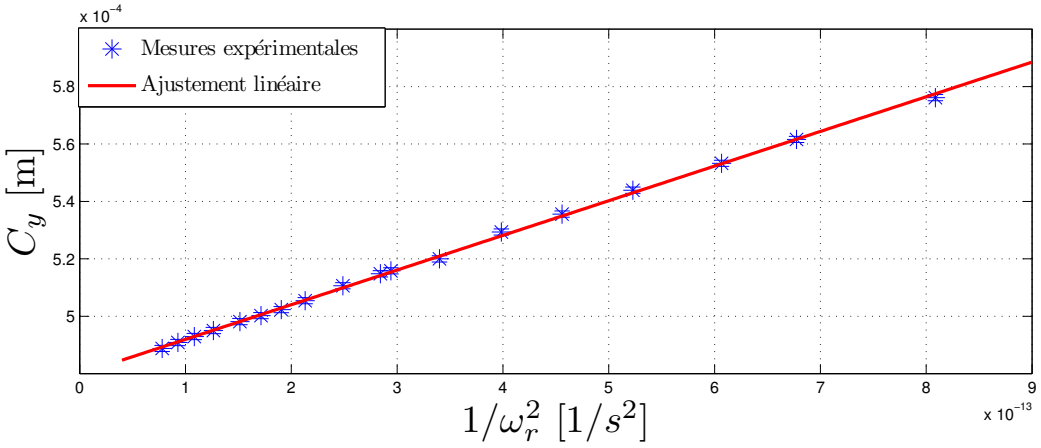

FIGURE 4.23 – Déplacement radial du centre du nuage (région centrale du piège) en fonction de $1/\omega_r^2$.

une relation linéaire que l'on peut ajuster par :

$$C_y = (1,21 \pm 0,005) \times 10^8 \frac{1}{\omega_r^2} + (0,46 \pm 0,05) \times 10^{-3} \quad \text{(mm)} \tag{4.21}$$

Par identification avec la relation (4.20), on obtient le potentiel de contact :

$$V_{C1} \quad = \quad 39,7 \pm 1,0 \quad \text{mV} \tag{4.22}$$

Par rapport au cas idéal, le fond du puits de potentiel dans le piège PI est décalé de $V_{C1} = 39,7$mV par rapport au piège PII. Ce potentiel constitue alors une marche de potentiel entre les deux pièges. Dans un piège non-perturbé et compte-tenu du facteur d'écrantage dans PI (de 0,0156), pour V_{DC} =1200V, les ions voient une différence de potentiel de 18,72V. Le potentiel de contact représente environ 0,2% de ce potentiel. Les expériences montrent que ce potentiel est suffisant pour modifier les résultats du transport. Cette marche de potentiel entre les deux pièges peut favoriser le transport de PI à PII. De plus, il y a un déplacement latéral du puits de PI par rapport PII. Une variation de V_{RF} de 800 à $1200V_{PP}$ avec une fréquence $\Omega_{RF} = 5,235$MHz, provoque un déplacement du nuage de 54μm (les nuages ayant une taille typique d'environ 200μm). Ce déplacement a une influence non négligeable sur les analyses faites jusqu'alors.

Pour analyser l'effet du potentiel de contact sur le transport, il est nécessaire de comparer les mesures prises à de grands intervalles de temps. Une mesure du potentiel de contact est faite environ un an après la précédente (4.22). Cette mesure donne une nouvelle valeur pour le potentiel de contact de :

$$V_{C2} \quad = \quad 42,5 \pm 1 \quad \text{mV} \tag{4.23}$$

La comparaison des deux potentiels de contacts (4.22) et (4.23) montre une croissance dans le temps de V_C. Dans la partie suivante, nous étudions l'influence du potentiel de contact sur le transport.

4.5.2 Influence du potentiel de contact sur le transport

Les mesures présentées sont réalisées avec des tensions $V_{DC} = 1200V$ et $V_{RF} = 1045V_{PP}$. Nous commençons par étudier l'influence du potentiel de contact sur le taux de transport à $t_g = 100\mu s$ et nous finissons avec le taux de départ des ions de PII.

Transport entre PI et PII à $t_g = 100\mu s$

Nous effectuons des transports aller-retour PI-PII-PI en fonction du nombre d'ions à $t_g = 100\mu s$ (un an après les premières mesures présentés sur la figure 4.9). Ces résultats sont présentés sur la figure 4.24-(a) par les points bleus et comparé aux premières mesures. Nous

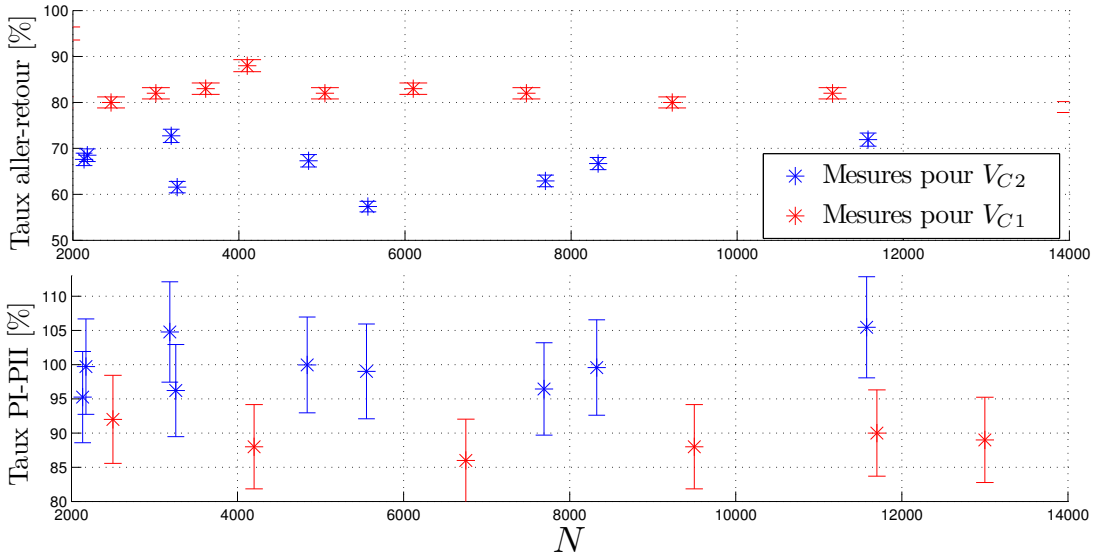

FIGURE 4.24 – (a) : Efficacité du transport aller-retour entre les deux pièges et (b) : efficacité de transport PI-PII à $t_g = 100\mu s$ pour deux valeurs du potentiel de contact.

remarquons nettement que le taux de transport aller-retour est passé de 80% à 65%. Pour mieux analyser les résultats, nous avons distingué les deux sens de transfert pendant les mesures. En effet, lors des transports représentés par les points bleus, les ions sont détectés à chaque fois dans les deux zones du piège PI et PII grâce au déplacement de l'objectif de

détection sur le rail. Les résultats du transport dans le sens PI-PII sont représentés sur la figure 4.24-(b) par les points bleus. Par comparaison avec les anciennes mesures, l'efficacité de transport PI-PII est passée de 90% à 100% en moyenne. Cela veut dire que le taux de transfert PII-PI a lui chuté de 90% à 65% en un an. L'efficacité de 100% observée pour le sens PI-PII est aussi observée sur de très grands nuages pouvant dépasser 100 000 ions. Ce résultat confirme que le potentiel de contact rend le transport asymétrique à cause de la marche de potentiel qu'il génère entre PI et PII. Cette marche de potentiel favorise le transport de PI à PII. En effet, le fond du puits de potentiel est plus haut en énergie que le fond du puits dans PII. Dans la suite, nous étudions son influence sur les départs d'ions de PI en fonction de la durée du transport.

Départ des ions de PII

La figure 4.25 présente les résultats des mesures de taux d'ions qui partent de PII au cours du transport PII-PI. Les points bleus représentent les nouvelles mesures (potentiel de

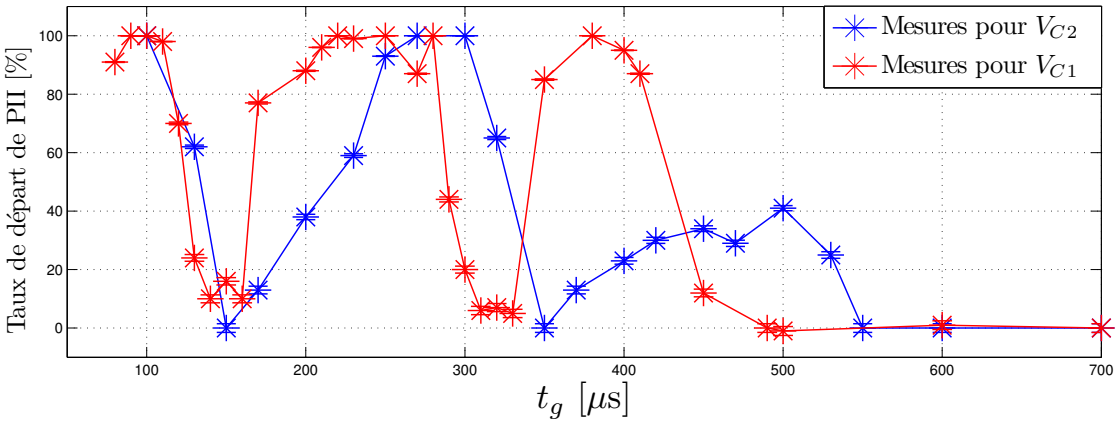

FIGURE 4.25 – Départ du piège PII en fonction de la durée de transport t_g pour deux valeurs de potentiel de contact.

contact V_{C2}=42,5mV) et les points rouges, les mesures faites à V_{C1}=39,7mV (déjà présent à la figure 4.11)-(b). Nous remarquons pour V_{C2} que l'évolution du taux de départ s'amortit vers une valeur faible pour des transports plus rapides, puis nulle. De plus, le nombre d'oscillations tend à diminuer. Dans le cas idéal sans potentiel de contact, d'après les simulations, on s'attend à ce que le taux d'ions quittant le piège lors du transport pour des durées t_g très grandes soit de 50%. En effet, à cause de la vitesse faible des ions, le potentiel central coupe le nuage en deux. Cependant, l'existence du potentiel de contact dans nos mesures implique que ce taux dépend des potentiels DC et est nul (figure 4.11) dans PII et supérieur à 50% (figure 4.10) dans PI. Ce résultat confirme le fait que le potentiel de contact favorise le transport de PI vers PII et accentue l'asymétrie du transport dans les deux sens.

Le potentiel de contact est donc un atout pour le transport des ions. Nous avons montré que le potentiel de contact crée une marche en énergie entre la zone PI et la zone PII et favorise le transport vers PII. Pour le transport entre PI et PII qui se déroule dans

le même potentiel RF, nous ne pouvons pas activement contrôler l'évolution du potentiel de contact. Cependant, lors des transports dans des potentiels RF différents, une différence de potentiel statique appliqué sur les barreaux du piège permet de générer une marche de potentiel. Au chapitre 5 nous montrons comment exploiter cette asymétrie avantageusement dans un sens.

Les résultats de transport présentés dans cette partie montrent des taux de transport atteignant les 100% sur des grands nuages. Ce transport à l'avantage de s'effectuer dans un potentiel RF identique dans les deux pièges. Dans la suite nous étendons cette analyse au transport entre piège quadrupolaire et octupolaire qui ont des potentiels RF avec des géométries différentes.

4.6 Étude du transport entre un piège quadrupolaire et un piège octupolaire

Le transport entre un piège quadrupolaire et octupolaire est plus compliqué que le transport entre deux zones quadrupolaires. En effet, entre ces deux pièges, il y a rupture du potentiel RF. Pour faciliter la compréhension, la figure 2.2 est reprise. La figure 4.26 montre une représentation schématique du piège (a) et du potentiel axial (b). La partie

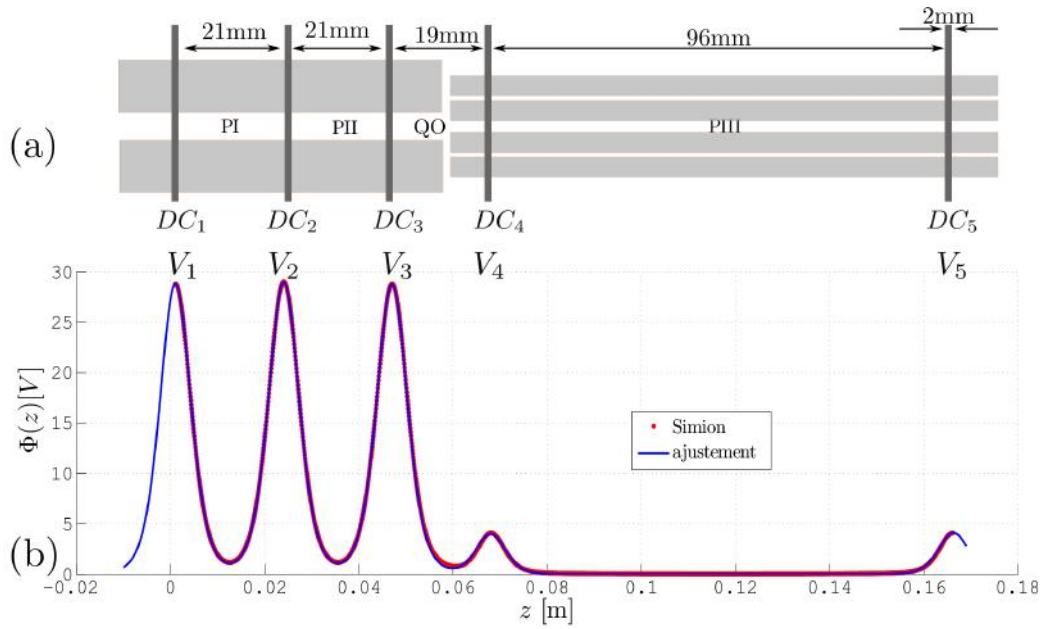

FIGURE 4.26 – Représentation schématique du piège (a) et du potentiel axial (b).

octupolaire est appelé PIII et la zone d'interface quadrupole-octupole entre les électrodes DC_3 et DC_4 sera appelé zone QO. Dans cette zone, la discontinuité de potentiel peut jouer un rôle non négligeable sur le résultat du transport. Il est donc important de bien contrôler les variations temporelles des potentiels $V_3(t)$ et $V_4(t)$. De plus, l'écrantage par les barreaux RF est très élevé et rend la raideur du potentiel très petite dans le piège octupolaire par rapport au piège quadrupolaire (voir figure 4.26-(b)). Dans cette partie,

nous commençons par présenter le protocole de transport entre PII et PIII. Ensuite les résultats concernant le taux de départ de PII et d'arrivée dans PIII sont exposés et pour conclure sur l'optimisation de l'efficacité du transport.

4.6.1 Protocole de transport PII-PIII

Le protocole de transport s'inspire de celui présenté dans la première section de ce chapitre. L'évolution souhaitée pour le minimum de potentiel $z_{min}(t)$ se fait suivant la relation (4.5) où la fonction de transport $g(t)$ est la même fonction tangente hyperbolique (4.6). L est la distance entre les centres de PII et PIII et vaut $L = 81,5$mm. L'objectif est de calculer les variations des tensions V_i nécessaires pour alimenter les électrodes DC_i afin de créer les variations du minimum de potentiel identiques à z_{min} calculé. Au cours de ce transport, quatre tensions DC sont impliquées à savoir V_2, V_3, V_4 et V_5. La zone QO n'est pas considérée comme une zone de piégeage à cause de la discontinuité des potentiels RF avec l'extrémité des barreaux quadrupolaires et octupolaires. L'expérience a montré qu'il est impossible de piéger les ions dans cette partie du piège. Le transfert est réalisé alors en une seul fois de PII à PIII la zone QO étant considérée comme une zone de passage. Pour simplifier la compréhension et superposer ce transport au protocole PI-PII, nous choisissons de décrire le protocole PII-PIII en deux étapes. La première étape concerne le transport entre le piège PII-QO et la deuxième étape concerne le transport entre QO-PIII. L'évolution du minimum de potentiel $z_{min}(t)$ est alors divisée en deux parties : la première partie $z_{m1}(t)$ pour le transport du centre de PII au centre de QO et $z_{m2}(t)$ pour le transport du centre de la zone QO au centre de la zone PIII.

Étape 1 : transport PII-QO

Pour le transfert des ions de PII à QO, les potentiels impliqués sont : V_2, V_3 et V_4. Le protocole décrit dans la section 4.1.2 est appliqué. Dans ce cas, le potentiel V_2 est fixe, les potentiels V_3 (4.25) et V_4 (4.24) sont calculés en s'inspirant des relations (4.7) et (4.12)

$$V_4 = V_2 \left[\frac{\phi_3'\phi_2'' - \phi_2'\phi_3''}{\phi_4'\phi_3'' - \phi_3'\phi_4''} \right]_{z_3} \tag{4.24}$$

$$V_3(t) = -\left[\frac{V_2\phi_2'(z) + V_4\phi_4'(z)}{\phi_3'(z)} \right]_{z_{m1}(t)} \tag{4.25}$$

où z_3 est la position du centre de l'électrode DC_3. À la fin de cette étape, les ions passent par le centre de la zone QO et la deuxième étape de transfert vers le piège octupolaire prend le relais.

Étape 2 : transport QO-PIII

Pour la deuxième étape, le transport se passe entre le centre de QO et le centre de PIII. Les tensions impliquées sont V_3, V_4 et V_5. Sans interruption à la fin de la première étape, V_3 garde sa valeur issue de l'étape 1, comme valeur initiale pour calculer les tensions $V_4(t)$ et V_5. Nous définissons les nouvelles variations des tensions V_4 (4.27) et V_5 (4.26)

$$V_5 = V_3 \left[\frac{\phi_4' \phi_3'' - \phi_3' \phi_4''}{\phi_5' \phi_4'' - \phi_4' \phi_5''} \right]_{z_4} \tag{4.26}$$

$$V_4(t) = -\left[\frac{V_3(T)\phi_3'(z) + V_5 \phi_5'(z)}{\phi_4'(z)} \right]_{z_{m2}(t)} \tag{4.27}$$

où z_4 est le centre de l'électrode DC_5. Les potentiels V_3 et V_4 calculés pendant le transport sont représentés sur la figure 4.27-(a) pour $V_2 = 1800V$.

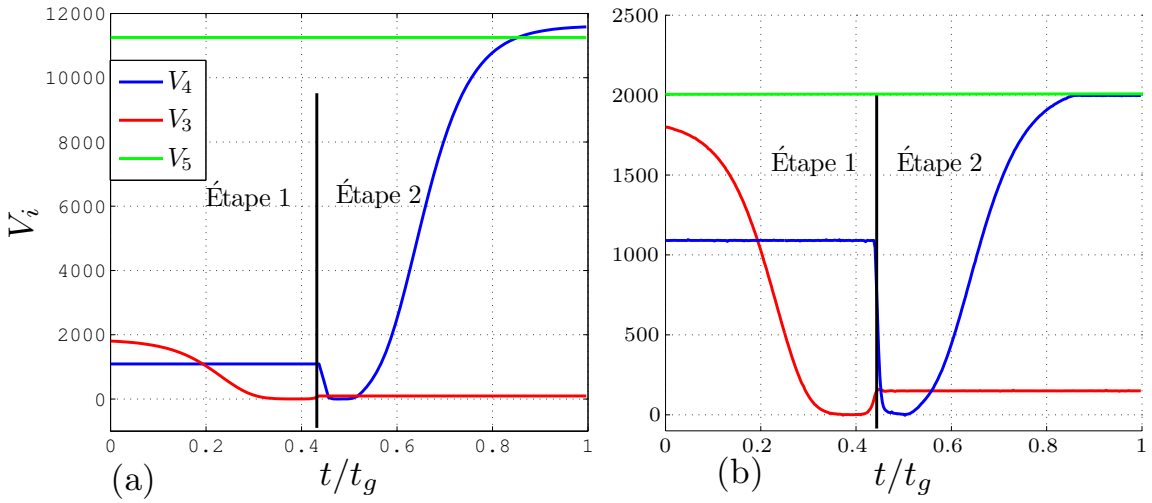

FIGURE 4.27 – Potentiel calculé (a) et celui généré (b) par les alimentation DC en fonction de la durée de transport normalisée pour $V_2 = 1800V$. Le trait vertical noir montre le passage par le centre de QO (sépare les deux étapes).

Dans le piège octupolaire, à cause de la longueur, l'ajustement d'équation (2.1) ne reproduit pas fidèlement le fond du puits de potentiel expérimental calculé par le logiciel Simion. Pour le transport entre les pièges quadrupolaire et octupolaire, nous utilisons la grille de potentiel réel ϕ calculée par Simion. Pour reproduire fidèlement le minimum de potentiel calculé $z_{min}(t)$, il faudrait disposer d'un générateur capable de délivrer des tensions V_4 et V_5 pouvant atteindre 12 000V. Cependant, les hautes tensions délivrées par nos générateurs DC sont limitées à 2000V. Pour reproduire fidèlement les potentiels calculés avec cette valeur, il faudait réduire la longueur de la partie octupolaire. Dans la configuration actuelle du piège où $L = 81,5$mm, quand les valeurs demandées de V_4 et V_5 dépassent 2000V, elle sont fixées à $V_{4,5} = 2000V$. La figure 4.27-(b) présente les potentiel générés dans ces conditions. Nous représentons sur la figure 4.28, la position des minima de potentiel dans chaque partie du piège et ceux calculés au cours du transport. Nous remarquons que les minima de potentiel entre les zones du piège ne se rejoignent pas. De ce fait, il sera impossible de transférer les ions en suivant fidèlement des minima de potentiel.

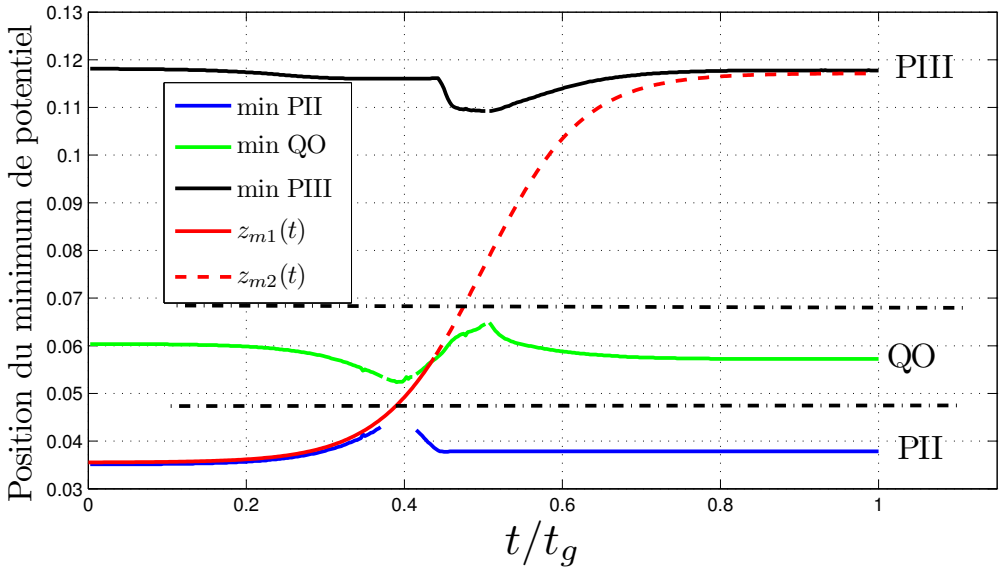

FIGURE 4.28 – Positions des minima de potentiel dans chaque zone pendant le transport PII-QO-PIII pour $V_2 = 1800V$ en fonction du temps normalisé à la durée de transport. Les discontinuités observées sont dues à l'absence de minimum dans la zone considérée. $z_{m1}(t)$ est la partie de $z_{min}(t)$ correspondant au transport de PII à QO et $z_{m2}(t)$ la partie du transport de QO à PIII.

4.6.2 Analyse transport PII-PIII

Les ions sont créés dans la première partie PI, transportés dans PII avec une durée de transport $t_g = 100\mu s$. Ils sont ensuite détectés dans PII avant d'être transférés dans la zone octupolaire PIII où il sont de nouveau détectés. L'efficacité du transport PII-PIII est le rapport entre le nombre d'ions détecté en PIII sur le nombre d'ions initial dans PII. La méthode d'analyse du nombre dans la partie octupolaire est décrite dans la section (6.3.3).

L'analyse du transport entre PI et PII a montré que le taux de départ d'ions du piège initial oscille en fonction de la durée de transport t_g. Il est alors important de vérifier cela en piège PII pendant le transport et entre PII et PIII avant d'analyser le taux d'ions détectés dans la partie octupolaire.

Départ des ions de PII

Dans ce paragraphe, nous analysons le taux d'ions qui partent du piège PII au cours du transport PII-PIII. Pour cela, nous mesurons le volume du nuage avant et après le transport dans le piège initial PII. Le résultats sont présentés sur la figure 4.29 en fonction de la durée de transport pour $V_2 = 1800V$, amplitude radio-fréquence du piège quadrupolaire $V_{RF}^Q = 820V_{PP}$ et amplitude RF du piège octupolaire $V_{RF}^O = 1070V_{PP}$. Sans surprise, les oscillations sont observées tout comme entre PI et PII. Pour des durées de transport très longues, les ions ne quittent plus le piège PII.

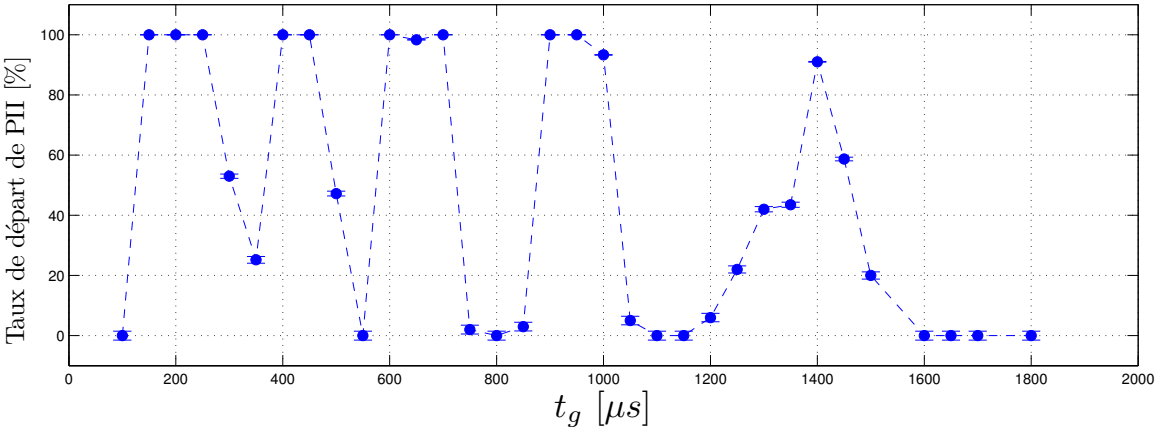

FIGURE 4.29 – Taux d'ions qui quittent le piège PII au cours du transport PII-PIII en fonction de la durée de transport t_g pour $V_2 = 1800V$, $V_{RF}^Q = 820V_{PP}$ et $V_{RF}^O = 1070V_{PP}$. (la ligne est un guide visuel)

Taux d'ions transférés dans le piège octupolaire

Une première étude du taux d'ions transférés en piège octupolaire est faite en fonction de la durée du transport pour les mêmes paramètres de piégeages. La figure 4.30 présente un taux de transport aller maximal détecté dans PIII de 8,5% à 400μs. Ce taux très faible

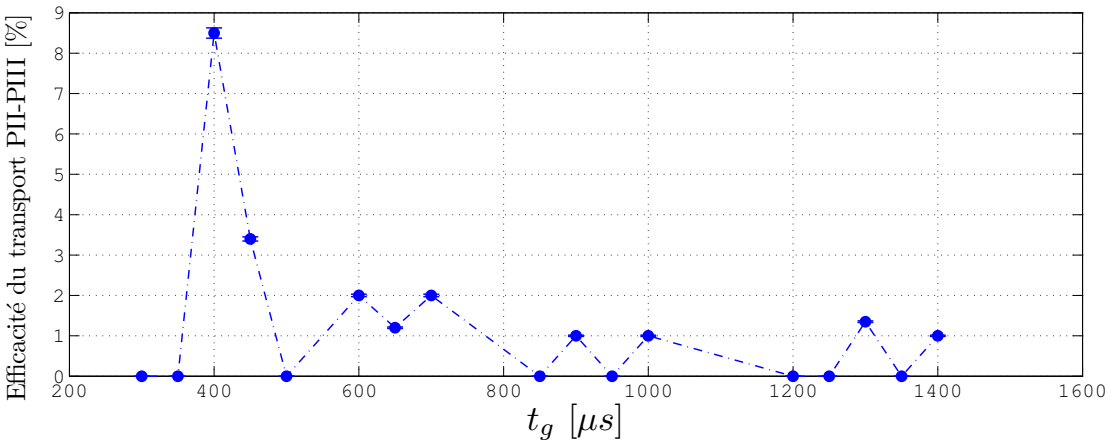

FIGURE 4.30 – Efficacité du transport PII-PIII en fonction de t_g.

s'explique par la discontinuité de la position des minima de potentiel entre les zones du piège (figure 4.28). Pour avoir un taux d'ions élévé dans le piège octupolaire, il est nécessaire de faire une étude d'optimisation.

4.6.3 Optimisation du protocole de transport PII-PIII

Nous avons tout d'abord estimé l'influence de la phase relative des tensions radio-fréquence entre le piège quadrupolaire et le piège octupolaire. Pour cela, nous comparons les fréquences d'oscillation des deux tensions RF de 5,3MHz pour le piège quadrupolaire et de 3,3MHz pour le piège octupolaire. Les deux générateurs ont des périodes inférieurs à 1μs alors que les durées typiques du transport sont de quelques centaines de micro-secondes. Donc il semble peu probable que la phase relative joue un rôle sur l'efficacité. Nous n'avons donc pas exploré cette voie. Dans la suite de cette partie, les tests de transport d'ions sont faits avec $t_g = 650\mu$s.

Introduction d'un délai entre les évolutions de V_3 et V_4

Les observations et les simulations de dynamique moléculaire sur le transport PI-PII ont montré que le centre de masse du nuage d'ions ne suit pas $z_{min}(t)$ pendant le transport. Pour cette raison, nous avons effectué une tentative d'amélioration du transport en décalant l'évolution de $V_4(t)$ dans le temps par rapport au calcul d'une quantité Δt (de l'ordre de quelques dizaines de micro-secondes). Les résultats montrent un taux de transport maximal de 7% ; soit aucune amélioration sur le taux de transport. Ce résultat nous amène à conclure qu'un délai sur l'évolution des tensions ne permet pas d'améliorer l'efficacité du transport. Nous privilégions maintenant la piste du potentiel de contact

Ajout d'une marche de potentiel entre PII et PIII

Nous avons vu lors du transport de PI à PII qu'une marche générée par le potentiel de contact entre PI et PII favorise le transport vers PII. De plus, pour le transport PII-PIII, la discontinuité de $z_{min}(t)$ entre les zones du piège impose une vitesse importante des ions pour traverser la frontière des zones. Comme il n'existe pas de potentiel de contact dans PII, il est créé en ajoutant une différence de potentiel ΔV_s positive sur les barreaux RF du piège quadrupolaire (pour relever le fond du puits dans PII par rapport au piège PIII) et favoriser le transport vers PIII. Nous avons effectué des transports sur des nuages de tailles variées allant de 5000 à 120000 ions dans le piège PII. La figure 4.31 présente le taux de transport PII-PIII en fonction du potentiel statique ΔV_s pour $V_2 = 1800V$, $V_{RF}^Q = 820V_{PP}$ et $V_{RF}^O = 1070V_{PP}$. Les carrés et les ronds bleus représentent respectivement les taux de transport PII-PIII et le taux d'ions restés dans PII après le transport pour des nuages de taille inférieurs à 50 000 ions et les rouges les nuages de taille supérieurs à 50 000 ions. Nous observons un taux de transport très intéressant de 85% pour des tensions $\Delta V_s = 1750$mV et $\Delta V_s = 3250$mV.

Une chute sur le taux de transfert est observée autour de $\Delta V_s = 2500$mV. Bien que pour cette valeur de ΔV_s, le taux d'ions restant dans PII est d'environ 5%. Cela confirme que les ions sont effectivement partis de PII. Nous pensons que cela correspond aux conditions pour lesquelles les ions finissent leur parcours dans QO. À partir de $\Delta V_s = 3250$mV, le taux d'ions transportés décroît rapidement et devient nul à partir de $\Delta V_s = 5000$mV. Lorsque ΔV_s est très grand, la marche de potentiel créée devient importante et donne l'énergie nécessaire au nuage pour s'échapper du puits de potentiel. La figure 4.31 montre également que le pourcentage de transport semble dépendre du nombre d'ions pour $\Delta V_s = 1750$mV, il est indépendant du nombre d'ions pour $\Delta V_s = 3250$mV.

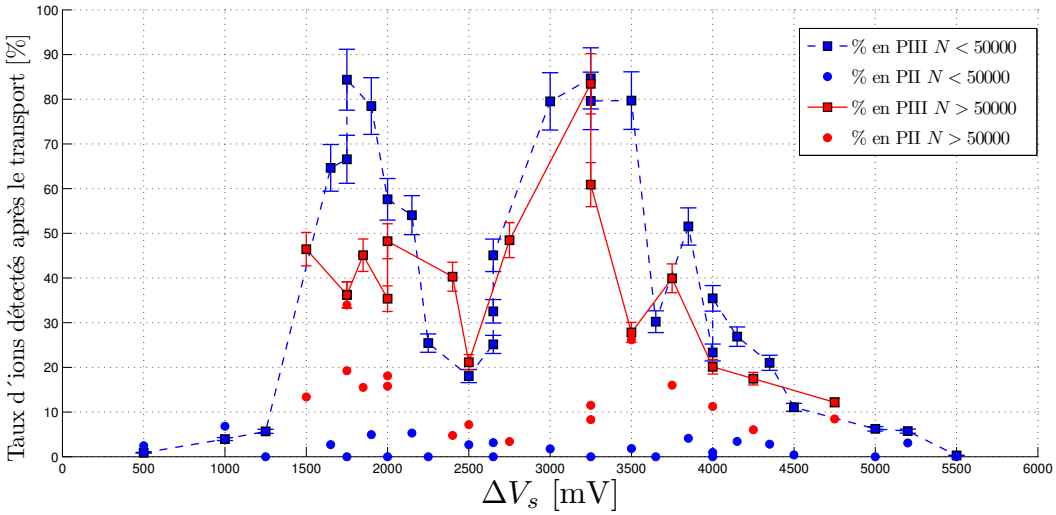

FIGURE 4.31 – Taux d'ions détectés dans PIII après le transport PII-PIII en fonction de ΔV_s pour $t_g = 100\mu$s, $V_2 = 1800V$, $V_{RF}^Q = 820V_{PP}$ et $V_{RF}^O = 1070V_{PP}$. Les carrés et les ronds bleus représentent respectivement les taux de transport PII-PIII et le taux d'ions restés dans PII pour des nuages tailles inférieures à 50 000 ions et les couleurs rouges correspondent au nuages de tailles supérieures à 50 000 ions.

L'optimisation de notre protocole de transport a permis d'améliorer le taux de transfert de 5% à 85%, même pour de gros nuages d'ions grâce à un ajout de potentiel statique sur les barreaux du piège quadrupolaire. De plus, ce taux de transport vers le piège octupolaire semble dépendre du nombre d'ions pour le premier maximum de transfert. Dans la suite, nous vérifions cela ainsi que l'influence des paramètres de piégeage.

4.6.4 Influence des paramètres expérimentaux sur le transport PII-PIII

Dans cette partie, nous étudions l'influence des paramètres expérimentaux à savoir le nombre d'ions initial dans le piège PII et la combinaison des amplitudes RF des pièges octupolaire et quadrupolaire. Tous les mesures sont faites avec $t_g = 650\mu s$, $V_2 = 1800V$, $V_{RF}^Q = 820V_{PP}$ et $V_{RF}^O = 1060V_{PP}$ (sauf indication contraire) pour assurer une probabilité maximale de départ des ions de PII.

Influence du nombre d'ions initial dans PII

Nous avons choisi de vérifier l'influence du nombre d'ions initial dans PII sur le transport pour $\Delta V_s = 1750$mV (d'après les observations faites de la figure 4.31). Sur une série de nuages de tailles différentes, nous avons effectué des transports entre PII et PIII. Les résultats sont présentés sur la figure 4.32 où les carrés représentent le taux d'ions détectés dans PIII et les ronds le taux d'ions restés dans PII. Tout comme pour le transport PI-PII, le taux des ions transportés peut atteindre les 100% pour des nuages de tailles inférieures à

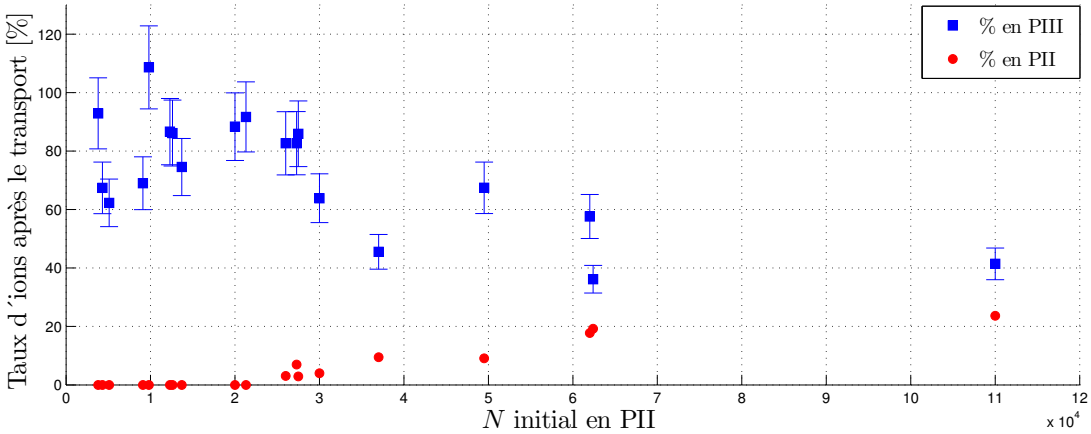

FIGURE 4.32 – Taux d'ions détectés dans PIII (les carrés bleus) après le transport en fonction du nombre d'ions initial dans PII. Les ronds rouges représentent le taux d'ions restés dans PII. $t_g = 650\mu s$ et $V_s = 1750$mV

30 000 ions. Pour des nuages de tailles supérieures, nous observons des taux moyens de 40%. On observe également que le taux d'ions restant dans PII augmente avec le nombre d'ions mais la somme avec le taux de transport reste inférieure à 100%. La différence représente alors les pertes au cours du transport. Ces observations sont compatibles avec la figure 4.31. Nous pouvons dire que le taux de transport PII-PIII à $\Delta V_s = 3250$mV, varie de 85% à 100% quelque soit la taille du nuage.

Influence des amplitudes radio-fréquence des deux pièges

Dans ce paragraphe, nous analysons l'influence du couple V_{RF}^Q et V_{RF}^O pour $\Delta V_s = 1750$mV. En effet, contrairement au transport entre PI et PII où les ions voient la même tension RF, le transport PII-PIII fait intervenir une discontinuité de potentiel RF dans la zone QO. Ceci peut être la cause de certaines pertes d'ions au cours du transport. L'amplitude RF du piège quadrupolaire V_{RF}^Q est fixée à $821V_{PP}$ et le transport est testé pour différentes valeurs de V_{RF}^O. Les résultats de mesures (figure 4.33) sur des nuages de tailles inférieures à 30 000 ions montrent que l'efficacité du transport décroît en fonction de l'amplitude radio-fréquence. Comme le chauffage RF est faible dans la partie octupolaire par rapport à la partie quadrupolaire, nous excluons cette piste. Par contre, pour une fréquence RF fixée, le puits de potentiel est de plus en plus ouvert lorsque V_{RF} diminue. Ce résultat peut s'expliquer par le fait qu'il est plus facile de transférer un fluide vers un volume plus large.

Dans les horloges micro-onde à piège double, les pompages optiques et les mesures de populations ont lieu dans le piège quadrupolaire géométriquement plus ouvert. Pour compléter l'analyse du transport, il est important d'étudier le transport de la partie octupolaire vers la partie quadrupolaire.

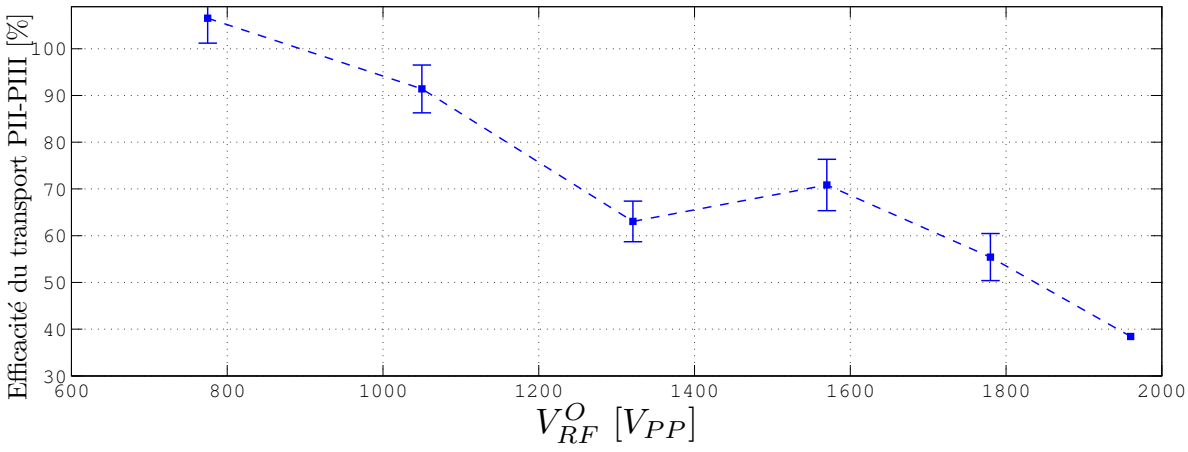

FIGURE 4.33 – Efficacité du transport PII-PIII en fonction de V_{RF}^{O} pour $V_{RF}^{Q} = 821V_{PP}$ et $\Delta V_s = 1750$mV. Les nuages considérés ici sont de l'ordre de 3.10^4 ions.

4.6.5 Tentative de transport PIII-PII.

Les potentiels axiaux dans la partie octupolaire sont écrantés par les barreaux RF comme on peut le constater sur la figure 4.26. De plus, à cause de sa longueur, la raideur du potentiel est quasiment négligeable par rapport à la partie quadrupolaire pour les mêmes paramètres de piégeage. Pour transporter les ions du piège octupolaire au piège quadrupolaire, nous appliquons une différence de potentiel positive sur les barreaux du piège PIII pour accélérer les ions vers PII. Pour que cela soit efficace il faut que les potentiels V_4 et V_5 soient capables de déplacer les ions jusqu'à l'électrode DC_4. Cependant, à cause de la longueur importante de la partie octupolaire, le déplacement du fond du puits dû aux variations du potentiel est faible. En effet, un déséquilibrage maximal des tensions telles que $V_4 = 0V$ et $V_5 = 2000V$ ne déplace le centre du piège octupolaire que de 8,7mm vers PII au lieu des 49mm nécessaire pour traverser l'électrode DC_4. Cette observation montre qu'à cause de la limitation en tension DC, notre protocole de transport n'est pas capable de transporter les ions dans le sens retour PIII-PII. Il faut une énergie extérieure pour accélérer les ions.

À ce protocole, nous ajoutons une excitation résonante des ions. En effet, pour déstabiliser le mouvement des ions vers le piège PII, avant la décroissance de V_4, nous faisons une excitation paramétrique résonante des ions (section 3.2). Malgré cette excitation, les ions ne quittent pas le piège PIII et ils sont éjectés du piège lorsque l'amplitude d'excitation devient trop grande.

Nous démontrons que dans la configuration actuelle du piège, le transport de la partie octupolaire vers la partie quadrupolaire est possible uniquement si les tensions V_4 et V_5 peuvent atteindre des valeurs supérieures aux valeurs actuelles. Ou alors, les potentiels actuels peuvent permettre de transférer les ions du piège octupolaire vers le piège quadrupolaire si la longueur de la partie octupolaire peut être réduite.

Les études menées dans cette partie ont montré que malgré des tensions DC faibles, le transport peut être effectué en donnant un petit coup d'accélération par application d'une

différence de potentiel entre les deux zones de piégeage. Cela permet de transporter jusqu'à 100% des ions vers le piège PIII. Cependant, le transport de PIII vers PII n'est pas encore effectif du fait de la faible accélération induite par la variation de V_4. Néanmoins, un des objectifs de 100% d'ions transportés du piège quadrupolaire PI jusqu'au piège octupolaire est atteint.

Conclusion

Nous avons étudié expérimentalement le transport d'un nuage de quelques dizaines de milliers d'ions dans un macro-piège radio-fréquence. Malgré une connaissance uniquement partielle de la cartographie du potentiel local, ce transport est efficacement contrôlé par les variations du potentiel appliqué à l'électrode DC centrale séparant les deux zones du piège. Notre protocole de transport s'inspire du cas sans chauffage d'un ion unique et permet de transporter jusqu'à 100% du nuage mais avec chauffage. Nous avons aussi analysé l'excitation du mouvement des ions du fait de la déformation du puits de potentiel au cours du transport. Les résultats expérimentaux et les simulations de dynamique moléculaire montrent que l'optimisation du transport dépend de la connaissance précise des tensions DC appliquées, et une petite variation de ces tensions modifie largement l'efficacité du transport. Nous observons des oscillations entre 0 et 100% des ions quittant le piège au cours du transport. De plus, le chauffage induit par le transport a aussi un comportement oscillant. Ces oscillations dans l'efficacité du transport sont modifiées par le changement d'un des paramètres de piégeage. Le minimum de chauffage est observé en appliquant de faibles tensions RF (responsables du chauffage RF). Il est cependant possible de trouver des conditions pour lesquelles l'efficacité de transfert est élevée et génère très peu de chauffage pour la même durée de transport. Un de nos objectifs est l'analyse expérimentale de la dynamique des ions dans les pièges octupolaires. Cette étude est faite au chapitre 6

Bien que numériquement, il est illusoire de vouloir reproduire exactement les potentiels expérimentaux, nous avons obtenu des transports de 100% entre PI et PII sur les nuages plus petits que 2000 ions et 80% sur des grands nuages atteignant 10^5 ions. Cette efficacité du transport a pu atteindre 100% grâce à l'évolution du potentiel de contact dans le piège PI. L'effet de ce potentiel de contact est créé artificiellement par des différences de potentiel appliquées sur les barreaux RF. Cela a permis de transférer la totalité des nuages d'ions dépassant les 10^5 ions dans la partie octupolaire. Ces résultats ont été publiés dans Physical Review A [142].

L'effet majeur du potentiel de contact en PI est l'asymétrie causée dans les deux sens du transport entre PI et PII. En effet, nos études ont également montré qu'en fonction de la durée du transport et des tensions DC appliquées, il existe des paramètres pour lesquels le nuage quitte la zone PI et arrive dans la zone PII mais ne peut pas quitter la zone PII pour les mêmes paramètres. Cette asymétrie est utile et permet d'accumuler les ions dans la deuxième partie PII du piège. La réalisation expérimentale de cette technique d'accumulation est décrite dans le chapitre suivant.

Chapitre 5

Piégeage et accumulation d'un grand nuage d'ions

Le nombre d'ions piégés est un paramètre essentiel pour des horloges micro-onde [36]. La fréquence de l'horloge est affectée par la variation du nombre d'ions piégés à travers l'effet Doppler de second ordre. Dans ce chapitre, nous optimisons les paramètres de piégeage dans le but de piéger un très grand nuage pouvant atteindre 10^7 ions. Un de nos objectifs est d'étudier le confinement de ces grands nuages dans chaque zone du piège. À cause de la répulsion coulombienne des ions, la distance moyenne entre proches voisins est grande (typiquement 20μm pour nos paramètres de confinement). L'espace occupé par le nuage augmente considérablement avec le nombre d'ions. L'extension spatiale du nuage et des contributions anharmoniques du potentiel de piégeage augmentent le chauffage des ions. Pour limiter ce chauffage, il est important de travailler avec des tensions RF très basses. La conséquence directe est la faible densité du nuage et la faible profondeur du puits de potentiel de piégeage. Tous ces facteurs contribuent à la limitation du nombre d'ions piégés.

Nous étudions dans la première partie de ce chapitre la création de ce grand nuage dans le piège PI. Les résultats du transport étudiés dans le chapitre précédant ont montré que l'efficacité de transfert dépend fortement des potentiels statiques et de la durée de transport et que le transport n'est pas symétrique dans les deux sens PI-PII et PII-PI. Dans la deuxième partie de ce chapitre, nous démontrons comment cette asymétrie dans nos conditions de travail peut être exploitée pour accumuler un grand nuage d'ions dans la partie PII du piège. Ce processus d'accumulation est optimisé en choisissant des paramètres appropriés pour le transport entre les zones du piège. La technique d'accumulation est étendue dans le piège octupolaire dans la troisième partie de ce chapitre. Cette technique ne requiert pas de refroidissement laser pendant le transport ce qui offre alors la possibilité de piéger différentes espèces d'ions pour des applications physico-chimiques. L'influence du refroidissement laser sur l'accumulation conclut ce chapitre.

5.1 Création et piégeage d'un grand nuage d'ions dans PI

Dans les pièges radio-fréquences, le nombre d'ions créés est limité par plusieurs phénomènes dont :

1. l'espace occupé par le nuage créé et le volume du piège qui jouent un rôle important sur le chauffage RF lorsqu'un grand nuage est créé. Cela vient du fait que le champs électrique vu par les ions dépend de leur position dans le piège.
2. l'effet de collisions dues à la répulsion coulombienne entre particules qui augmente le chauffage radio-fréquence des ions.
3. la densité et la vitesse du jet d'atomes neutres qui augmentent le chauffage par des collisions dans le nuage déjà créé.
4. les anharmonicités dues à l'existence des contributions d'ordres supérieurs ou le potentiel de contact sont des sources de chauffage des ions piégés.

Pour créer un grand nuage d'ions, nous optimisons les paramètres pour réduire certains de ces effets. Notre piège ne dispose pas d'électrodes supplémentaires pour la compensation des défauts du potentiel. Il est cependant possible de réduire la vitesse et la densité du jet d'atomes neutres en baissant le courant du four pendant la création. Le chauffage RF et l'effet de charge d'espace peuvent être réduits pour des nuages froids en travaillant avec des amplitudes V_{RF} des tensions radio-fréquence les plus basses possibles. De plus, le refroidissement laser joue aussi un rôle important pendant la création des ions.

Dans cette partie, nous étudions l'optimisation de la création d'un grand nuage d'ions dans le piège PI. La technique de comptage qui nous utilisons consiste à avoir un nuage en phase liquide. De nombreux essais ont montré que dans notre piège, avec la puissance du laser de refroidissement disponible, la phase liquide en piège quadrupolaire dépend de la taille du nuage. Le nombre d'ions limite pouvant être refroidis de la phase gazeuse à la phase liquide est inférieur ou égal à 10^5. La technique de photo-ionisation en phase gazeuse décrite dans le chapitre 1 ne permet que de piéger des nuages limités à ce nombre d'ions. Il y a des stratégies permettant d'augmenter le nombre d'ions en phase liquide, qui sont présentées dans la section suivante.

5.1.1 Technique de création d'un grand nuage d'ions

Pour créer un grand nuage d'ions en PI, une technique en deux étapes et basée sur les travaux de Dubost [143] est développée. Un petit nuage de quelques centaines d'ions est d'abord créé pendant une à deux secondes et refroidi par laser jusqu'à la phase liquide. Ensuite de nouveaux ions sont créés directement dans le nuage existant en phase liquide. Le nuage reste ainsi en phase liquide pendant sa croissance. Cette technique réduit l'extension spatiale du nuage et permet ainsi de créer des nuages plus grands. Cette technique nécessite plus de temps que lors de la création en phase gazeuse (chapitre 2). En effet, certains ions, ayant une grande vitesse, sont chauffés par laser (longueurs d'ondes proches de la résonance) et sont éjectés du piège. Seuls les ions avec peu de mouvement sont piégés. Dans cette étude une caractérisation n'est pas faite en fonction de V_{RF} car pour V_{RF} supérieur à $1000V_{PP}$, aucun refroidissement n'est possible en phase liquide. Nous travaillons avec des tensions RF inférieures à $1000V_{PP}$.

Ici, nous ne nous intéressons pas à la durée de création des ions mais au nombre absolu d'ions piégés. Ce nombre est optimisé avec des puissances du laser de refroidissement à 397nm de 1,5mW et de repompage 866nm à 21mW. La puissance du laser de la transition résonante de création à 423nm est de 80μW. Les résultats d'analyse sont présentés dans la section suivante.

5.1.2 Interprétation et discussion

Au chapitre 2, nous avons montré que le jet d'atomes est produit lorsque la température du four atteint 275^oC. Ici nous analysons le nombre d'ions créés dans le piège PI par le protocole décrit dans la section précédente en fonction de la durée de création pour deux températures du four différentes : $T_1 = 295^o$C et $T_2 = 310^o$C . Les tensions de confinement sont $V_{DC} = 1200V$ et $V_{RF} = 825V_{PP}$. Un nuage de quelques centaines d'ions est créé et refroidi en phase liquide. On suit la croissance d'un nuage au cours du temps. Les résultats sont présentés sur la figure 5.1. Le nombre d'ions créés croit linéairement avec la durée de création, avec une pente de 450 ions par seconde pour T_1 et une pente de 850 ions par seconde pour T_2. La limite du nombre d'ions se manifeste par leur processus d'évaporation.

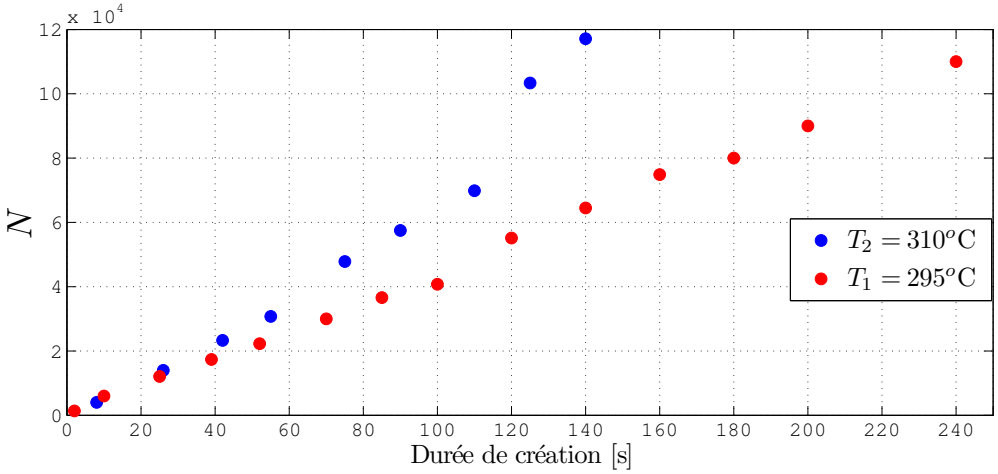

FIGURE 5.1 – Nombre d'ions en fonction de la durée de création pour deux températures du four. Les points rouges correspondent à la température du four $T_1 = 295^o$C et les points bleus la température $T_2 = 310^o$C. (Lorsque le nombre d'ions atteint $1,2.10^5$, le nuage s'évaporise à cause d'une puissance de laser de refroidissement trop faible).

Le nuage s'évaporise autour de $1,2.10^5$ ions dans les deux cas. Au delà de cette valeur, il est alors impossible d'estimer le nombre d'ions piégés. Cette taille est plus grande que la taille de liquéfaction de 10^5 montré dans la section précédente. L'évaporation du nuage observée est due à une puissance trop faible du laser de refroidissement. La valeur maximale de cette puissance au moment des mesures est de 1.5mW sur chacun des deux faisceaux à 397nm. Avec cette puissance, le chauffage RF devient plus important que le refroidissement laser lorsqu'un nombre important d'ions est piégé. Les observations passées montrent qu'augmenter la puissance du laser à 397nm permet de liquéfier des nuages beaucoup plus grands que $1,2.10^5$. Mais au moment de ces mesures, nous ne disposons pas de la puissance laser suffisante.

5.2 Méthode d'accumulation d'ions dans PII

Une technique d'accumulation des ions dans un piège est mise au point dans notre groupe. Cette technique permet de piéger un grand nuage d'ions dans un deuxième piège. La méthode s'inpire des observations faites concernant les résultats du transport d'un nuage d'ions entre deux zones quadrupolaires du piège. Dans cette partie, nous décrivons le principe de cette technique, ainsi que l'étude de l'influence des paramètres de piégeage dans l'optimisation du nombre d'ions piégés.

5.2.1 Principe de la méthode

Dans le chapitre 4 nous avons montré que le taux d'ions quittant le piège initial après le transport oscille en fonction de la durée de ce transport. De plus, à cause du potentiel de contact, ce comportement n'est pas symétrique dans les deux sens PI-PII et PII-PI. La figure 5.2 où les deux courbes ne sont pas superposées illustre ce comportement. Il existe des durées de transport, en l'occurrence 300, 550, et 780μs, pour lesquelles tous les ions quittent le piège PI pendant le transport PI-PII mais ne quittent pas PII au cours du transport PII-PI. De plus, pour des t_g supérieurs à 1,5ms, le taux d'ions qui reste dans PII est maximum alors que celui de PI est stationnaire à 30% pour $V_{DC} = 1200V$. Nous exploitons la non-coïncidence de ces taux de transport illustrés sur la figure 5.2 pour faire des transports successifs en sens unique et accumuler des ions dans le piège PII sans laisser repartir ceux existant initialement dans ce piège. Les ions sont créés dans la première

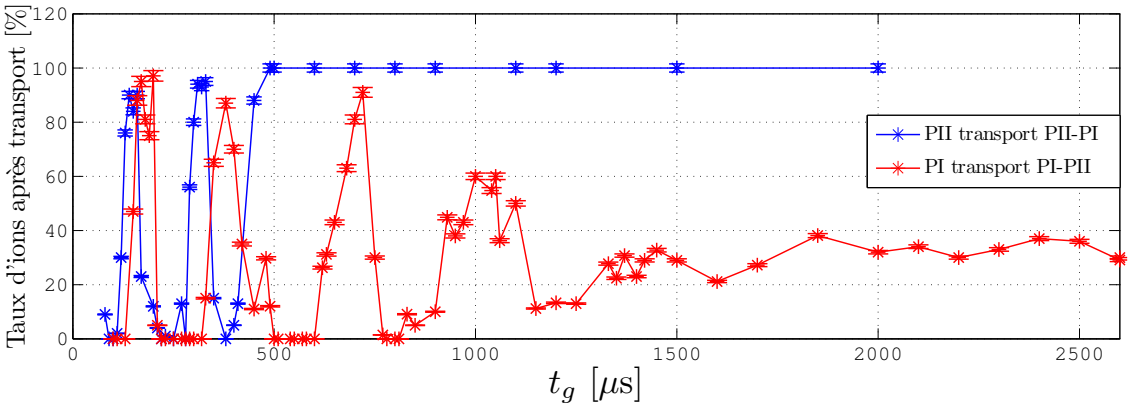

FIGURE 5.2 – Pourcentage des ions présents dans le piège initial après le transport en fonction de la durée de transport. Les points bleus : le piège initial est PII et le sens du transport est PII-PI, les points rouges : le piège initial : PI et le sens PI-PII. $V_{DC} = 1200V$ et $V_{RF} = 1045V_{PP}$. (Chaque point représente une expérience et la ligne est un guide visuel)

partie du piège, puis transférés en phase gazeuse dans PII. L'efficacité d'accumulation est quantifiée en évaluant le nombre d'ions dans le piège PII en fonction du nombre de cycle de transport. À chaque cycle de transport, un nuage identique est créé dans PI. Dans toute cette partie, les puissances laser sont : laser de refroidissement $P_B = 2,75mW$ dans chaque bras (contra-propageant et co-propageant) et de repompage $P_R = 10mW$

(sauf mentionné autrement). La figure 5.3 présente les résultats d'une expérience mesurant l'efficacité d'accumulation pour $V_{RF} = 675V_{PP}$, $V_{DC} = 200V$ et une durée de création t_C de 25s (protocole décrit dans le chapitre 2). Les résultats montrent une croissance linéaire

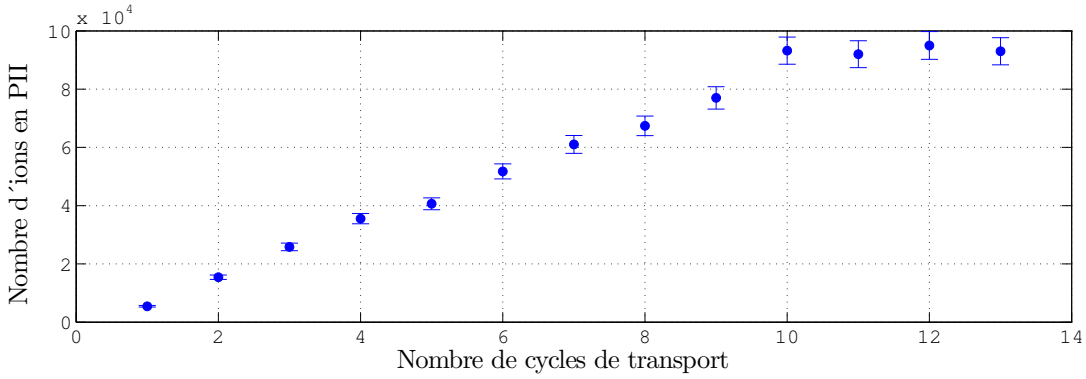

FIGURE 5.3 – Nombre d'ions en PII en fonction du nombre de cycles de transport pour $V_{RF} = 675V_{PP}$, $V_{DC} = 200V$, $P_B = 2,75mW$, $P_R = 10mW$ et $t_C = 25s$.

suivie d'une saturation du nombre d'ions dans PII en fonction du nombre de cycles de transport PI-PII. Le nombre d'ions piégés atteint une valeur maximale de 10^5 pour les paramètres considérés pour le figure 5.3. Cette limitation du nombre d'ions n'est pas due à un défaut de comptage, mais à une limite imposée par les paramètres de confinement et de refroidissement. Dans la suite de cette étude, nous tentons d'identifier le paramètre limitant la croissance du nombre d'ions.

5.2.2 Influence des tensions de piégeage

Les tensions de piégeage ont un impact non négligeable sur le nombre maximal d'ions piégés. Pour maximiser le nombre d'ions et limiter le chauffage RF, il est nécessaire de travailler avec l'amplitude RF la plus basse possible tout en assurant le confinement. Cela permet de réduire le couplage entre le champ électrique et le mouvement des ions. Dans cette partie nous étudions l'influence des tensions DC. Sur une série d'accumulations, nous comptons le nombre d'ions en PII en fonction du nombre de cycles de transport avec $V_{RF} = 830V_{PP}$, une durée de création t_C de 15s, $P_B = 3,75$mW dans chaque bras du laser de refroidissement et pour trois valeurs des tensions DC. Les résultats sont représentés sur la figure 5.4. L'objectif recherché dans cette partie est la comparaison des pentes d'accumulation du nombre d'ions. Nous remarquons que la pente est de plus en plus élevée lorsque V_{DC} diminue. De plus, en étudiant le signal du photomultiplicateur, on observe que plus la tension V_{DC} est grande, plus les ions mettent de temps à atteindre leur état stationnaire. Ce comportement peut s'expliquer par l'influence de V_{DC} sur le rapport d'aspect du nuage. À V_{RF} constante, lorsque V_{DC} augmente, le nuage devient de plus en plus sphérique et s'étend dans le plan radial et subit plus de chauffage RF. Pour une meilleure accumulation, il faut des tensions de confinement les plus petites possibles. Dans le paragraphe suivant, nous analysons l'influence du nombre d'ions initial à chaque cycle de transport dans le piège PI.

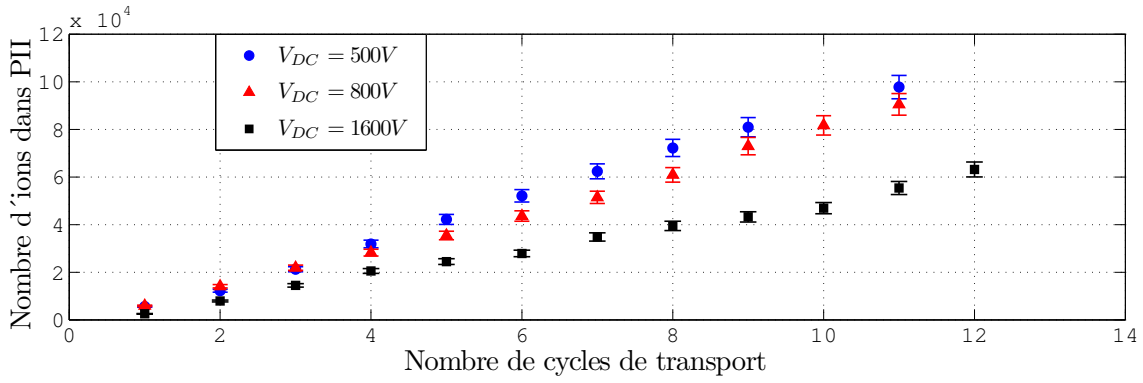

FIGURE 5.4 – Nombre d'ions détectés en PII en fonction du nombre de cycles de transport pour $V_{RF} = 830V_{PP}$ et $P_B = 3,75$mW dans chaque bras du laser de refroidissement. Les ronds bleus représentent l'accumulation avec V_{DC}=500V, les triangles rouges avec $V_{DC} = 800V$ et les carrés noirs avec $V_{DC} = 1600V$.

5.2.3 Influence du nombre d'ions initial dans PI

La quantité d'ions présents dans PI au moment de l'accumulation influe sur l'efficacité d'accumulation. En effet, une série d'expériences est faite pour trois valeurs de la durée de création t_C. La figure 5.5 présente les résultats et montre que plus le temps de création est long (donc plus le nombre d'ions à transporter est grand), plus la pente d'accumulation est importante et le plateau plus élevé. Cela peut s'expliquer par le fait que plus le nombre d'ions dans le piège PI est important plus le nombre absolu d'ions transportés augmente. Avec une durée de création en PI de 50 secondes, le plateau se trouve à $2,1.10^5$ ions contre

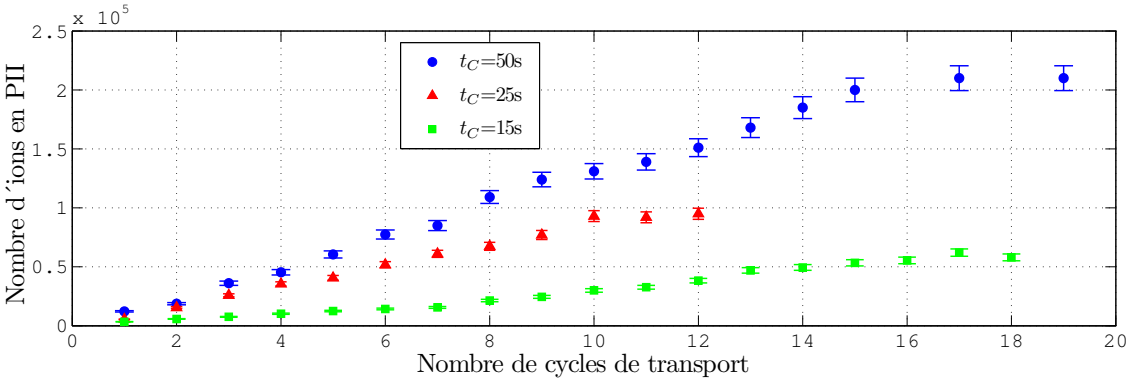

FIGURE 5.5 – Nombre d'ions détectés en PII en fonction du nombre de cycles de transport pour des nuages de tailles initiales différentes à V_{DC}=200V, $V_{RF} = 675V_{PP}$ et $P_B = 2,75$mW. Les ronds bleus : durée de création t_C=50s, les triangles rouges : t_C=25s et les carrés verts : t_C= 15s.

10^5 pour la durée de création de 25s et 6.10^4 ions pour une durée de création de 15 secondes. Ces observations montrent que le plateau est proportionnel au nombre d'ions initial dans PI car les rapports sont identiques entre les durées de création d'une part et les plateaux

d'autres part. Ceci reste cohérent avec la figure 2.14 qui montre un nombre d'ions créés proportionnel à la durée de création. Le nombre d'ions en PII est augmenté en créant un nombre plus important d'ions dans le piège PI.

5.2.4 Effet de la température des ions

Le test réalisé ici porte sur l'état du nuage qui peut avoir une influence sur l'accumulation en PII. Nous avons réalisé deux séries d'accumulations : le nuage dans PII est en phase gazeuse ou en phase liquide. Comme nous ne pouvons pas observer simultanément en PI et PII, nous admettons que l'état du nuage dans PI et dans PII sont identiques (faisceaux laser de refroidissement identiques et le même potentiel de piégeage) si la différence de taille du nuage n'est pas trop importante. Les tensions de confinement sont : V_{DC}=200V, $V_{RF} = 675V_{PP}$ et la durée de création est $t_C = 15s$. Les résultats sont représentés sur la figure 5.6. La pente d'accumulation en phase liquide est plus importante

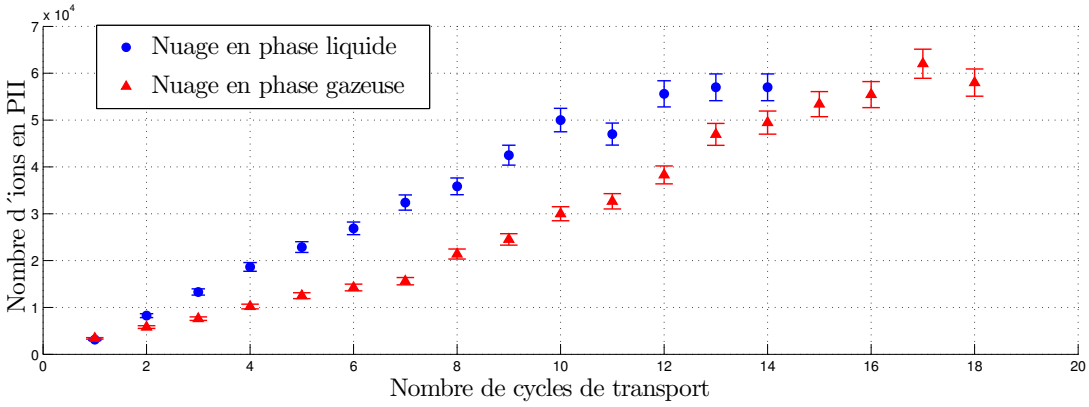

FIGURE 5.6 – Nombre d'ions détectés en PII en fonction du nombre de cycles de transport pour V_{DC}=200V, $V_{RF} = 675V_{PP}$, la puissance du laser de refroidissement : $P_B = 2,9mW$ et la puissance du repompeur : $P_R = 10mW$. Les ronds bleus : accumulation en phase liquide et les triangles rouges : en phase gazeuse. La création se fait ici avec $t_C = 15s$.

que la pente d'accumulation en phase gazeuse. L'accumulation en phase liquide permet d'atteindre plus tôt le plateau. De plus, une observation du signal du photomultiplicateur montre que les durées de refroidissement sont plus courtes lors de l'accumulation en phase liquide que l'accumulation en phase gazeuse. Ceci peut s'expliquer par la thermalisation du nuage chaud par le nuage froid [1]. La thermalisation est plus courte si les deux nuages sont froids. Cela limite alors les pertes liées au chauffage.

La figure 5.6 montre une saturation à la même valeur du nombre d'ions dans PII dans les deux cas. La saturation du nombre d'ions dans le piège ne dépend donc pas de la température des ions. Dans la suite, nous étudions l'influence de la puissance du laser de refroidissement.

1. contrairement au transport simple sans accumulation où aucun nuage dans PII ne thermalise le nuage transporté

5.2.5 Influence des puissances lasers

Dans ce paragraphe, nous comparons des mesures d'accumulation en phase liquide pour deux puissances du laser de refroidissement $P_B^1 = 2,75$mW et $P_B^2 = 4$mW dans chaque bras ; soit pour un paramètre de saturation par faisceau laser $s_1 = 1,2$ et $s_2 = 1,7$ respectivement. Les résultats sont présentés sur la figure 5.7. Nous remarquons que la pente

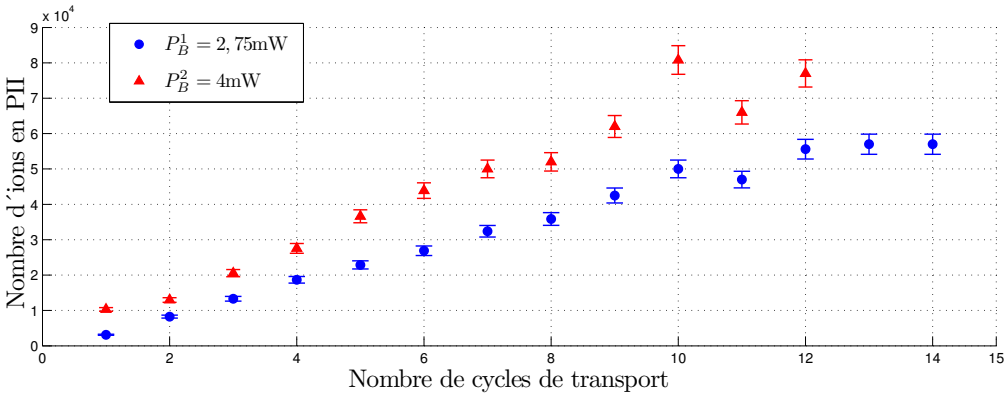

FIGURE 5.7 – Nombre d'ions détectés en PII en fonction du nombre de cycles de transport pour V_{DC}=200V, $V_{RF} = 675V_{PP}$. Les ronds bleus représentent $P_B^1 = 2,75$mW et les triangles rouges, $P_B^2 = 4$mW

d'accumulation ainsi que le plateau en nombre d'ions piégés augmentent avec la puissance. Pour piéger un très grand nuage d'ions, il faut que la puissance laser soit la plus élevée possible.

Dans cette section nous avons étudié l'influence des paramètres de confinement et de refroidissement sur l'accumulation des ions dans le piège PII. Pour optimiser le nombre d'ions maximal accumulé dans PII, il faut travailler à basse tension de confinement pour limiter le chauffage RF. De plus, un nombre d'ions initial important dans PI permet d'augmenter le niveau de saturation en nombre d'ions accumulés. Enfin, améliorer la puissance du laser de refroidissement est aussi avantageux pour le piégeage et la détection d'un nombre plus important d'ions. Cette analyse a permis de piéger des nuages de l'ordre de $2,5.10^5$ ions dans le piège PII, limité par la puissance laser disponible. Par la suite, cette technique d'accumulation est étendue à la partie octupolaire.

5.3 Accumulation des ions dans le piège octupolaire

L'analyse du transport vers le piège octupolaire (section 4.6) a révélé le même phénomène entre hautes et basses probabilités de départ qu'en piège quadrupolaire. De plus, les ions ne partent pas du piège PIII quelques soient les tensions de piégeage et la durée de transport considérée. Il est donc facile d'accumuler des ions en PIII en choisissant des paramètres où le transport est efficace. Dans cette partie, nous analysons la pente d'accumulation pour deux valeurs d'amplitude des tensions RF en piège octupolaire ($V_{RF}^O = 1060V_{PP}$ et $V_{RF}^O = 1975V_{PP}$). Le protocole est celui de la section 4.6. Une différence de potentiel de

1750mV est appliquée entre les barreaux du piège quadrupolaire et du piège octupolaire pour améliorer l'efficacité du transport. Nous mesurons le nombre d'ions détectés en PIII en fonction du nombre de cycles de transport. La technique de mesure du nombre d'ions dans le piège octupolaire est décrit dans la partie 6.3.3.

Les résultats sont présentés sur la figure 5.8. Le nombre d'ions augmente linéairement

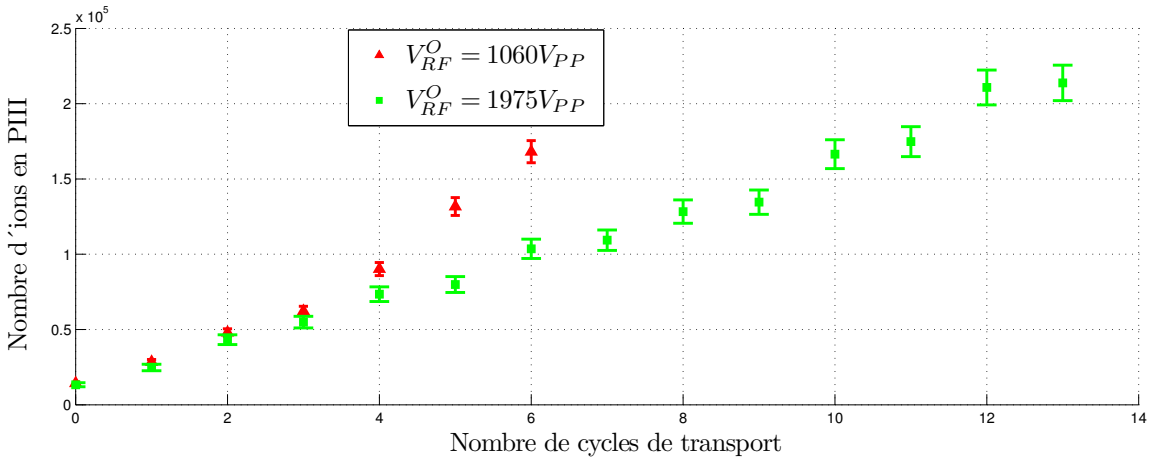

FIGURE 5.8 – Nombre d'ions détectés dans piège octupolaire PIII en fonction du nombre de cycles de transport pour deux valeurs de la tension radio-fréquence en piège octupolaire : $V_{RF}^{O} = 1060V_{PP}$ (Triangles rouges) et $V_{RF}^{O} = 1975V_{PP}$ (carrés verts). $V_{RF}^{Q} = 821V_{PP}$ dans le piège quadrupolaire, $V_2 = 1800V$ (les V_3, V_4 et V_5 sont calculés selon le protocole de transport décrit en 4.6.1), $P_B = 1,8$mW et $P_R = 5$mW.

avec le nombre de cycles de transport. De plus, la pente est plus importante pour $V_{RF}^{O} = 1060V_{PP}$ que pour $V_{RF}^{O} = 1975V_{PP}$. Cette observation est cohérente avec le fait que le transport est plus efficace pour des faibles V_{RF}^{O} à V_{RF}^{Q} fixe (voir figure 4.33). Un plateau est observé autour de $2,1.10^5$ ions pour $V_{RF}^{O} = 1975V_{PP}$. Ces mesures sont faites au moment où la puissance de laser de refroidissement a beaucoup chuté. Nous pensons que ce nombre d'ions maximal peut être amélioré avec une puissance laser plus importante. L'autre courbe ne contient pas assez de mesures successives pour atteindre un plateau.

Les expériences réalisées en piège quadrupolaire et en piège octupolaire décrivent un processus réel d'accumulation des ions, ce qui signifie que les ions peuvent être ajoutés à un nuage existant déjà dans un piège. Ce processus est d'autant plus efficace que les tensions RF et DC de confinement sont faibles et que les puissances lasers sont grandes. Actuellement, le nombre maximal d'ions piégés en PII et dans le piège octupolaire sont de l'ordre de $2,5.10^5$ ions. Les performances de notre piège restent limitées par la puissance du laser de refroidissement. Ce paramètre permet d'atteindre des grands nuages en accord avec des limitations par la température du nuage accumulé.

Pour des paramètres de piégeage et de refroidissement identiques, les observations montrent que le nombre d'ions maximal liquéfié en PI est inférieur au nombre d'ions liquéfié en PII. Cela permet de souligner une des causes de saturation liée aux imperfections du potentiel de piégeage (le potentiel est moins perturbé en PII que en PI).

La technique d'accumulation présentée est importante pour toutes les expériences où

les ions sont rares ou difficiles à produire. Elle permet de développer des nuages d'ions dans un régime pulsé en ajoutant des particules dans un nuage existant. La technique d'accumulation marche également sans l'implémentation du refroidissement laser. Nous démontrons cette propriété dans la partie suivante.

5.4 Accumulation sans refroidissement laser

Nous souhaitons démontrer ici que la technique d'accumulation fonctionne aussi même en absence de refroidissement laser même si son efficacité est moindre. Cette propriété est très avantageuse pour des expériences avec différentes espèces atomiques. Une série de mesures d'accumulation dans le piège PII sur des petits nuages d'ions est menée sans refroidissement laser. Les résultats sont représentés sur la figure 5.9 avec deux tailles de départ différentes.

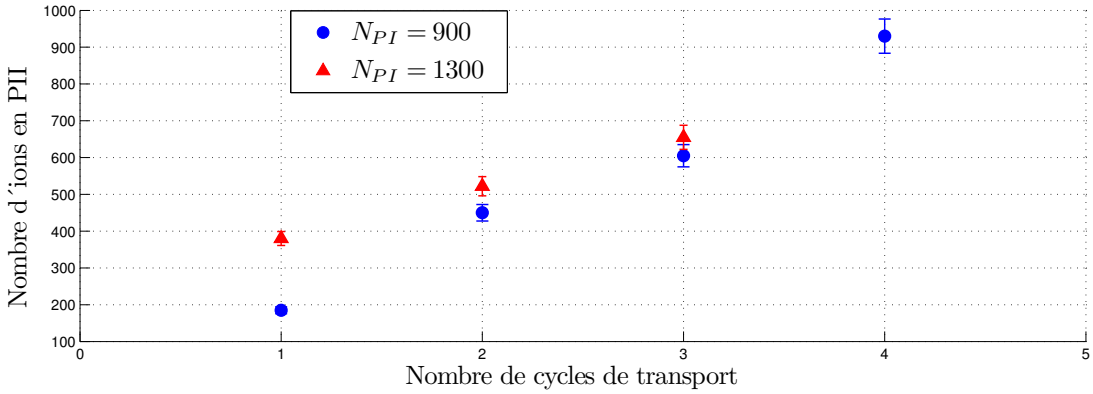

FIGURE 5.9 – Nombre d'ions détectés en PII en fonction du nombre de cycles de transport (PI-PII) pour V_{DC}=1200V, $V_{RF} = 744V_{PP}$ et sans refroidissement laser. Les ronds bleus représentent $N_{PI} = 900$ et les triangles rouges : $N_{PI} = 1300$.

Pour chaque point, les ions sont créés et transportés à chaque cycle sans refroidissement laser. Les lasers ne sont rallumés qu'après n cycles de transport pour la mesure de la taille. Après détection, les ions sont éjectés hors du piège et l'expérience est renouvelée pour le point suivant. La figure 5.9 montre le nombre d'ions dans PII en fonction du nombre de cycles d'accumulation. Même si la taille du nuage est plus petite que dans le cas d'accumulation avec refroidissement laser, nous remarquons une croissance linéaire du nombre d'ions dans le piège PII. Ce résultat montre que le mécanisme de transport et d'accumulation est efficace même sans l'application du refroidissement laser. Cela marque une étape importante dans le transport des particules chargées, car une vaste majorité des expériences repose sur le refroidissement (par gaz tampon ou par laser) pour réduire le chauffage lié au transport.

Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons étudié la création d'un grand nuage d'ions dans le piège. Le nombre d'ions pouvant être piégés et détectés est limité par les sources de chauffage

dans le piège. Pour piéger un grand nuage d'ions, il est important d'optimiser les tensions de piégeage et de les rendre les plus basses possible. De plus, les puissances laser constituent aussi un enjeu important pour maintenir un grand nuage. Les paramètres actuels ne nous permettent pas d'atteindre les 10^7 ions piégés. Nous sommes capables de piéger et de mesurer des nuages de plus de $1,2.10^5$ ions dans le piège PI et $2,5.10^5$ ions dans le piège PII. Ce nombre maximal est bien plus petit que les 10^7 ions pouvant être attendus dans chaque partie de notre piège. Il est important de poursuivre l'optimisation des paramètres, surtout en améliorant la puissance du laser de refroidissement, qui pour le moment limite fortement le nombre d'ions maximal piégés dans chaque zone. Les performances actuelles atteintes dans le pièges PII sont liées à la technique d'accumulation présentée.

Nous avons développé une technique d'accumulation des ions dans un double piège avec et sans refroidissement laser. La méthode est basée sur l'asymétrie du transport entre les deux zones du piège favorisant le transport dans un seul sens. L'accumulation des ions est un élément clé dans plusieurs expériences travaillant avec des nuages de différentes tailles en particulier lorsque le taux de création est faible. Ce mécanisme peut aussi s'adapter au cas du piégeage de plusieurs espèces atomiques dans le même piège et fonctionne en absence de refroidissement laser. Ce travail à fait objet d'un dépôt de brevet Européen [144] et d'une publication à Europhysics Letters [145]. La technique d'accumulation est étendue à la partie octupolaire et a permis de piéger un grand nuage d'environ $2,5.10^5$ ions. Les performances sont encore à optimiser.

Chapitre 6

Organisation d'un nuage d'ions froids dans le piège octupolaire

Beaucoup d'applications des ions piégés comme par exemple l'information quantique [43, 146] nécessitent des faibles amplitudes de micro-mouvement, ce qui implique le piégeage des ions au centre du piège. Cependant, pour des applications nécessitant le piégeage d'un grand nuage d'ions, l'extension spatiale du nuage augmente le chauffage RF dans les pièges quadrupolaires à cause du champ qui croit avec la distance au centre du piège. Une alternative face à cela est l'utilisation des pièges multipolaires.

Les pièges multipolaires sont constitués de $2k \geq 4$ barreaux. Le pseudo-potentiel de piégeage admet un fond plat près du centre où le champ électrique varie peu (voir section 1.2.2). Ceci implique un plus faible chauffage RF des ions dans le piège octupolaire par rapport au piège quadrupolaire. Cette zone centrale de faible champ est avantageuse pour l'étude des réactions ions-molécules à basse température [6], la spectroscopie haute résolution [147] et des horloges micro-onde d'ions très stables [148, 13, 149].

Des travaux récents sont concentrés sur l'étude de la dynamique des ions et l'auto-organisation des ions formant des cristaux dans des potentiels multipolaires [26, 27, 28, 63, 150]. Ces études montrent que les ions en piège multipolaire tendent à former des structures creuses à de très faibles températures. Dans un piège multipolaire, les simulations de dynamique moléculaire montrent que les ions s'organisent à partir des structures en anneaux, des tubes ou des cylindres formés par des couches en tubes. Le rayon interne et l'épaisseur de ces structures dépendent des paramètres de piégeage et du nombre d'ions. Un seul groupe a déjà observé expérimentalement des tubes d'ions en piège octupolaire grâce au refroidissement laser [40]. La morphologie de ces structures dans les pièges multipolaires suppose un potentiel radio-fréquence avec une parfaite symétrie radiale.

Lorsque le potentiel expérimental généré ne respecte pas cette symétrie, le profil du pseudo-potentiel est modifié et les ions froids s'organisent dans une structure complètement différente de celle attendue.

Dans ce chapitre, nous analysons expérimentalement le comportement des ions froids dans le piège octupolaire. Pour notre étude, les ions sont créés dans la première partie quadrupolaire PI, transférés dans PII puis dans la partie octupolaire PIII. Le transport entre les parties PI, PII et PIII a été détaillé dans le chapitre 4 et ne sera pas rappelé ici.

6.1 Étude des défauts dans le piège multipolaire

Pour détecter les ions dans la partie octupolaire, l'objectif de détection est placé au-dessus de celui-ci. Le grandissement optique est de l'ordre de $\gamma_{PIII} = 8,5$. Les simulations de dynamique moléculaire prévoient une structure en anneaux lorsque quelques dizaines d'ions sont piégés, puis des tubes pour de grands nuages d'ions (voir la simulation de la figure 6.1). Cependant, dans notre dispositif, nous observons plutôt trois nuages distincts dans deux plans différents comme illustré sur la figure 6.2. Tout se passe comme si le potentiel de piégeage admettait des minima locaux. Dans la suite, nous analysons expérimentalement ces minima locaux en piège octupolaire avant de les caractériser numériquement afin de mieux comprendre nos observations.

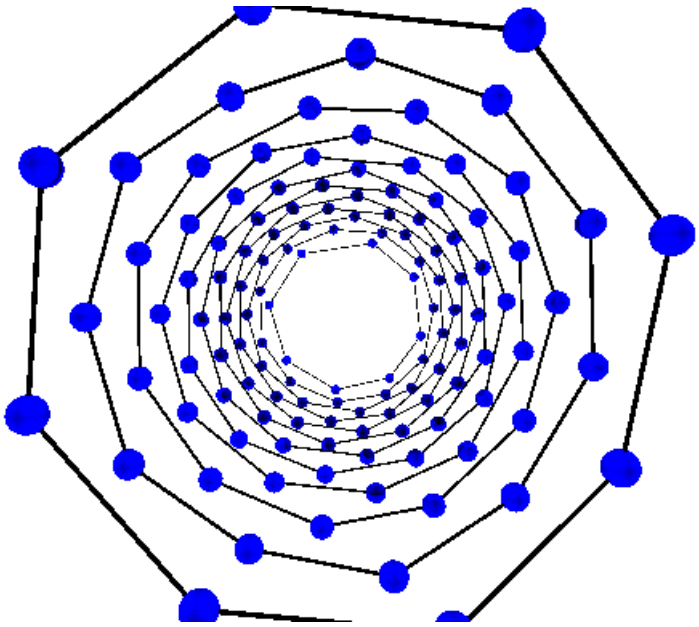

FIGURE 6.1 – Structure en tube attendue pour des ions froids dans des pièges multipolaires pour 126 ions. Simulations de dynamique moléculaire faites par M. Marciante [151].

6.1.1 Analyse expérimentale des minima locaux en piège octupolaire

L'observation d'un nuage froid en piège octupolaire montre la répartition des ions dans trois zones de piégeage distinctes que nous associons à l'existence de trois minima locaux dans le puits de potentiel radial (figure 6.2). Ces minima de potentiel sont numérotés min_1, min_2 et min_3 selon l'ordre chronologique de leur mise en évidence expérimentale. min_1 et min_2 sont dans le même plan de mise au point de l'objectif et le min_3 dans un plan au dessus. Une analyse du grandissement (section 3.3.3) montre qu'il est de $\gamma_{1,2} = 8,1$ pour les min_1 et min_2 et de $\gamma_3 = 9,1$ pour le min_3. La mise au point de l'objectif de détection sur les deux plans permet de déterminer l'écartement entre les minima locaux de potentiel dans le piège (figure 6.3). Les minima min_1 et min_2 sont dans le même plan et sont séparés de 890±5μm et le min_3 au dessus de 1100±10μm. Les centres suivants x des min_1 et min_3 sont décalés de 76±5μm.

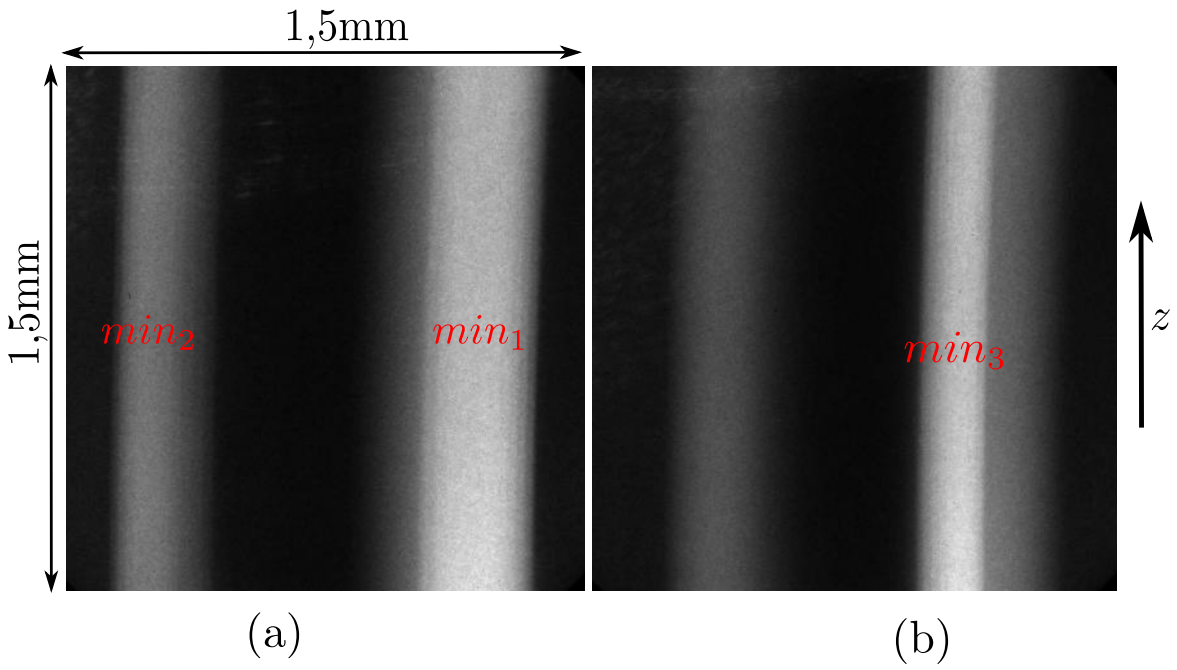

FIGURE 6.2 – Image CCD du nuage d'ions froids en piège octupolaire. Les nuages sont numérotés min_1, min_2 et min_3 selon l'ordre de leur observation dans le piège. (a) : la mise au point de l'objectif est faite sur min_1 et min_2. (b) : la mise au point sur min_3 et en arrière plan on voir faiblement les nuages en min_1 et min_2. L'axe z du piège est orienté verticalement.

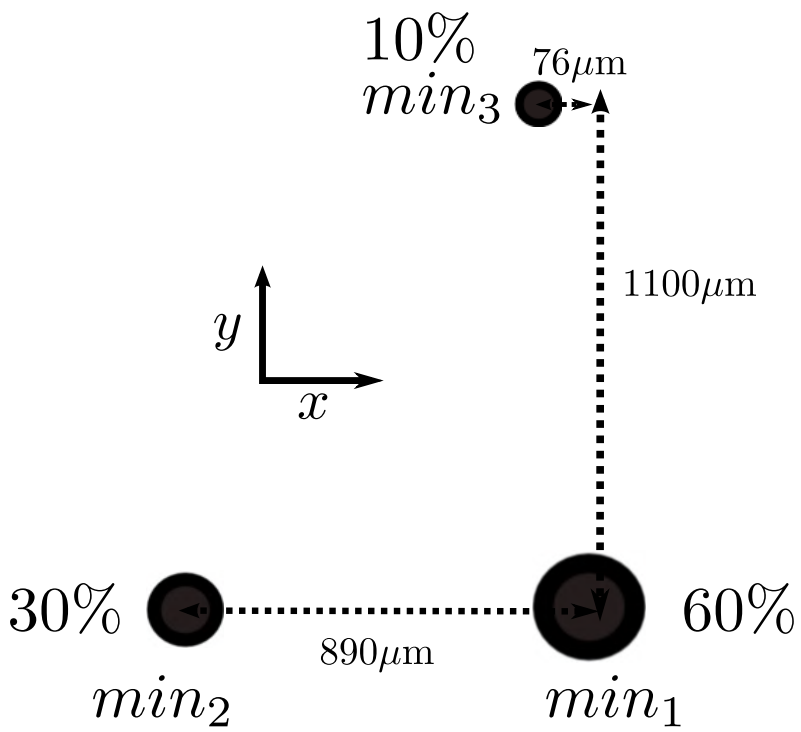

FIGURE 6.3 – Répartition des minima locaux en piège octupolaire dans le plan radial avec le pourcentage en nombre d'ions dans chaque minimum.

De tels minima locaux ont déjà été observés dans les pièges 22-poles [152] et peuvent être expliqués par l'existence d'un défaut dans la géométrie du piège. Dans un premier temps, nous analysons ces minima au moyen des calculs numériques puis, nous exploitons des observations expérimentales pour caractériser le piégeage dans ces minima locaux.

6.1.2 Simulations des défauts en piège multipolaire

Dans cette partie, nous tentons une étude générale des défauts dans des pièges multipolaires d'ordre $2k$ par simulation numérique. Le calcul de la distribution des potentiels est fait suivant le plan radial (x, y) au centre en $z = 0$. Le potentiel sur le barreau j (j =1, 2,..., $2k$) du piège est modélisé numériquement par n charges ponctuelles disposées uniformément sur un cercle de rayon r_e (le rayon des barreaux) [6]. Pour rendre compte de l'alternance du signe du potentiel sur les barreaux voisins, le signe des charges portées par les barreaux alterne lui aussi en $(-1)^j Q$. Le champ électrique total généré par les $2k$ barreaux dans le plan radial est donné par la relation suivante :

$$\mathbf{E}_{2k}(x, y) = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \sum_{j=1}^{2k} \sum_{i=1}^{n} \frac{(-1)^j Q}{(x - x_{i,j})^2 + (y - y_{i,j})^2} (\mathbf{e_x} + \mathbf{e_y}) \tag{6.1}$$

où $x_{i,j}$ et $y_{i,j}$ sont les positions de la charge i sur le barreau j, $\mathbf{e_x}$et $\mathbf{e_y}$ sont les vecteurs unitaires dans les directions x et y. Le pseudo-potentiel de piégeage, y compris le terme déconfinant du potentiel axial, est donné par la relation 1.26 rappelé ici :

$$\Psi(x, y, z) = \frac{q^2 \mathbf{E}_0^2(x, y)}{4m\Omega_{RF}^2} + q\Phi_{st}(x, y, z) \tag{6.2}$$

Pour avoir une idée de l'ampleur du défaut pouvant générer ces minima locaux, d'une part nous augmentons la distance au centre d'un barreau de 2% et d'autre part nous augmentons sa position angulaire de 2%. Dans le calcul nous considérons $n = 10$ charges.

Les résultats concernant le piège octupolaire sont présentés sur la figure 6.4 où est représenté le pseudo-potentiel pour (a) un défaut de 2% sur la distance au centre du barreau situé à la position $y = 0$ et x maximal et (b) le défaut 2% sur la position angulaire du même barreau. Nous observons dans les deux types de défaut l'existence de trois minima de potentiel. Les positions des minima locaux ne dépendent pas des tensions appliquées, mais uniquement des défauts considérés. Ce résultat est en accord avec l'observation expérimentale (figure 6.2). L'existence des minima de potentiel est donc imputée à la brisure de symétrie octupolaire dans le plan radial. Cette brisure de symétrie peut provenir soit d'un défaut d'usinage d'au moins un des barreaux du piège, soit d'un défaut de positionnement des barreaux entre eux ou d'un défaut de surface. Les observations numériques montrent un écart entre les minima locaux de l'ordre de 1mm comme présenté sur la figure 6.3. L'analyse des résultats montre que même un défaut inférieur à 1% suffit à engendrer des minima locaux éloignés les uns des autres d'environ 1mm. Ces observations amènent à se poser la question de savoir s'il est possible de réaliser expérimentalement un véritable potentiel multipolaire.

Des calculs de pseudo-potentiel dans les 12-poles et 22-poles avec les mêmes défauts de 2% sur la position d'un barreau sont montrés sur la figure 6.5 . Cinq minima locaux apparaissent dans le 12-poles (a) et dix minima dans le 22-poles (b). Les dix minima locaux pour un 22-poles ont déjà été observés expérimentalement dans [152].

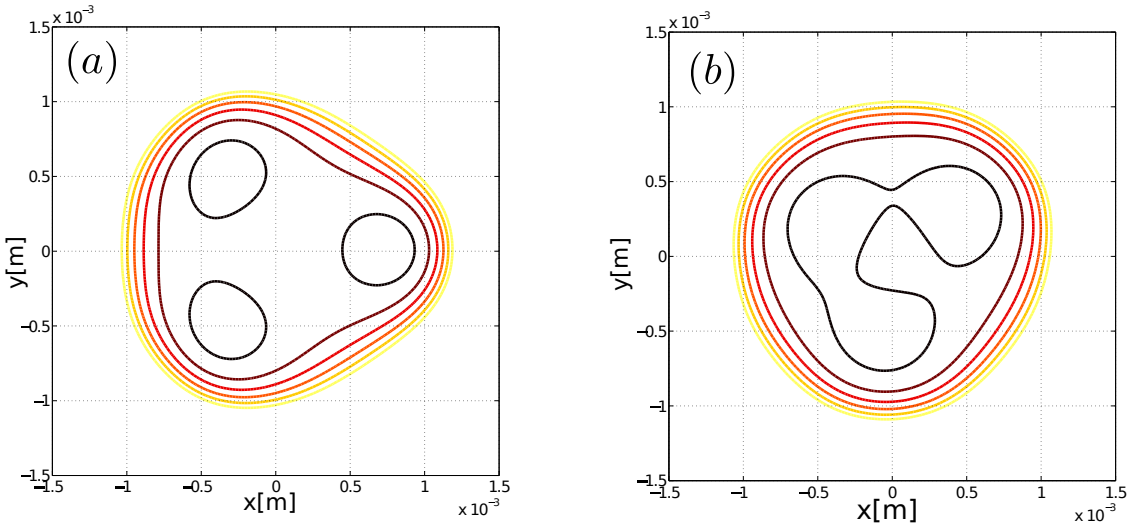

FIGURE 6.4 – Ligne iso-potentiel dans le plan radial en $z = 0$ (a) : La distance au centre d'un barreau (situé à la position $y = 0$ et x maximal) est plus grande de 2% et (b) : la position angulaire de ce barreau est plus large de 2%.

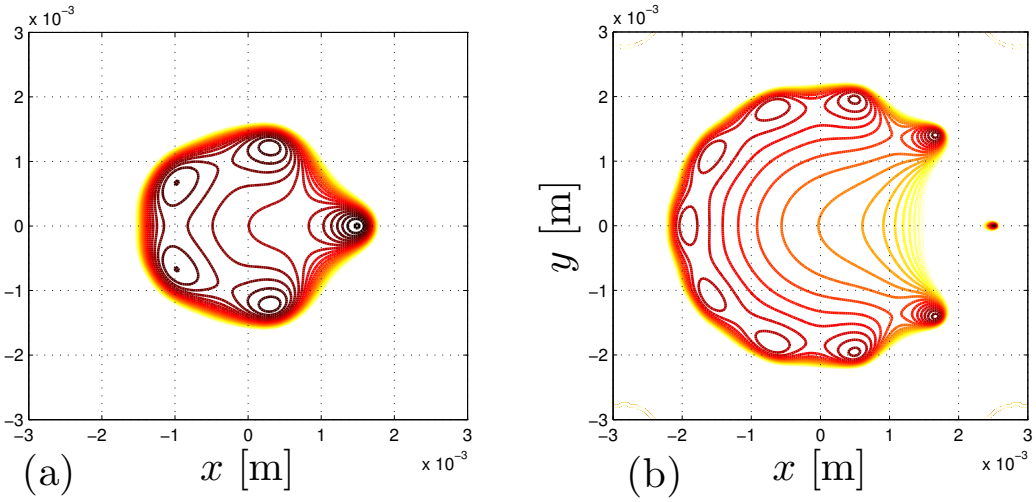

FIGURE 6.5 – Iso-potentiel dans les pièges 12-poles (a) et 22-poles (b) pour $V_{DC} = 2000V$. Le défaut considéré est une augmentation de 2% sur la distance au centre d'un barreau situé à la position $y = 0$ et x maximal.

Pour comprendre l'existence des minima locaux dans les potentiels multipolaires, nous analysons de façon formelle le champ électrique dans les pièges. Le pseudo-potentiel de piégeage est proportionnel au carré de l'amplitude du champ électrique local. Le potentiel est minimal lorsque le champ électrique est nul ($\mathbf{E_0}(r) = -\nabla\Psi = \mathbf{0}$). Dans les pièges multipolaires idéaux, le champ électrique s'écrit :

$$\mathbf{E}_{0k}(r) = \varrho_k r^{k-1}\mathbf{e_r} \tag{6.3}$$

où $\mathbf{e_r}$ est le vecteur unitaire dans la direction radiale et ϱ_k est une constante dépendant de la géométrie et des tensions de piégeage. La relation (6.3) montre que la norme du champ électrique admet une seule racine d'ordre $k-1$ au centre du piège. Par contre, si la symétrie radiale est brisée, le champ électrique devient un polynôme d'ordre $k-1$ et donc admet de façon générale $k-1$ racines. Pour un piège octupolaire $2k = 8$ soit $k-1 = 3$ zéros du champ électrique donc trois minima de potentiels, cinq minima locaux pour un 12-poles et dix pour le 22-poles.

Dans le cas particulier du piège quadrupolaire, un défaut ne génère qu'un seul minimum de potentiel mais déplacé du centre. Ce défaut de géométrie a l'avantage qu'une simple application d'un potentiel statique permet de le compenser. Cependant, pour les multipoles d'ordre supérieur, le compensation est très complexe. Une exploration de compensation de ces défauts est en cours dans l'équipe.

L'existence des minima de potentiel dans le piège octupolaire est due à un défaut sur la position d'au moins un des barreaux du piège qui brise la symétrie radiale du potentiel. Le nombre de puits locaux est lié au nombre de poles du piège ; allant de trois pour le piège octupolaire à dix minima pour les pièges 22-poles.

6.2 Refroidissement laser du nuage dans les minima locaux de potentiel

Dans le piège octupolaire, nous étudions le refroidissement laser des ions piégés dans les puits locaux grâce à la fluorescence induite collectée. Le refroidissement des ions est analysé au cours du balayage de la fréquence du laser rouge de repompage ou du laser bleu de refroidissement (à 397nm). Au cours de ces balayages le signal est collecté par le photo-multiplicateur PM1 et en même temps la caméra ICCD permet de visualiser le comportement du nuage. Nous commençons par étudier le spectre d'excitation par balayage du laser rouge avant d'aborder les transitions de phase. Pour tous les spectres, la variation de fréquences se fait toujours des fréquences plus petites vers des fréquences plus grandes.

6.2.1 Spectre d'excitation

Des nuages de taille supérieure à 10^4 sont transférés dans la partie octupolaire pour analyser le refroidissement laser et observer l'effet du chauffage RF dans les minima de potentiels. Les nuages utilisés pour ces mesures sont en phase liquide ou cristalline.

Élargissement de la raie par saturation

Des spectres par balayage de la fréquence du laser rouge à 866nm sont réalisés pour plusieurs puissances de ce même laser. Les résultats (figure 6.6) montrent un élargissement de la raie en fonction de la puissance. Pour ces mesures, la largeur du spectre passe de

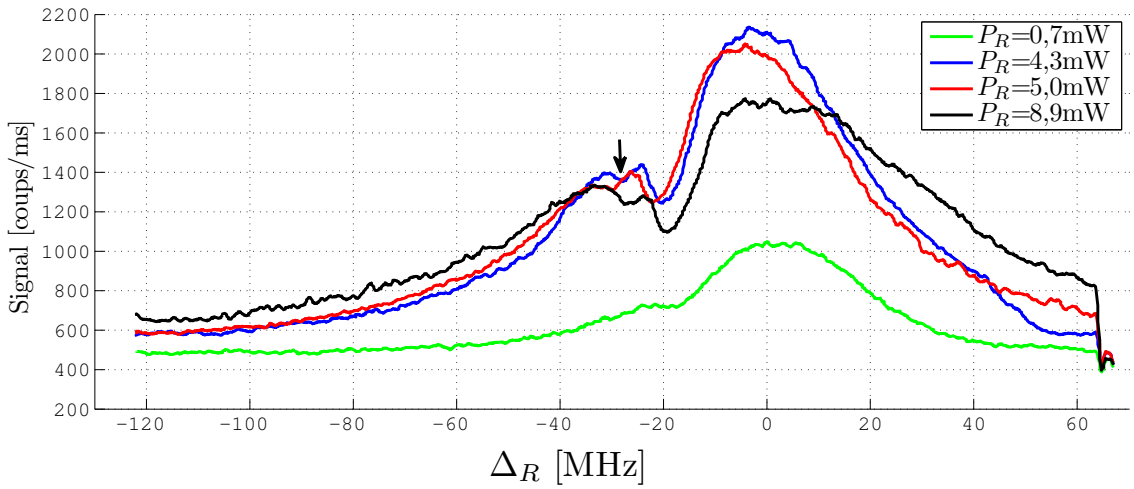

FIGURE 6.6 – Signal de fluorescence collecté dans les trois minima locaux de potentiel en fonction du désaccord du laser rouge pour différentes puissances du laser rouge. $P_B = 1$mW, $V_{RF} = 1060V_{PP}$ et $V_{DC} = 2000V$. La résonance de la transition rouge est considérée comme étant le sommet du pic vert. La chute de signal (indiquée par la flèche noire) peut être une résonance noire impliquant les sous niveaux Zeeman séparés à cause du champ magnétique terrestre.

90MHz pour une puissance du laser rouge de 9mW à une valeur minimale de 40MHz pour $P_R = 0,720$mW. Le laser bleu à 397nm a une puissance P_B de 1mW dans les deux bras co-propageant et contra-propageant et une fréquence éloignée de la résonance pour éviter la perte des ions par chauffage. Le paramètre de saturation est alors $s_B = 0,42 < 1$: la transition à 397nm n'est pas saturée. L'élargissement par saturation est donc essentiellement dû au laser à 866nm. Cette saturation est observée à partir de $P_R = 0,7$mW ($s_R = 1,2$). L'influence de la puissance du laser de refroidissement n'est pas étudiée car la puissance disponible est faible par rapport à la puissance de saturation qui est de 2,5mW (pour $s_B = 1$). Les largeurs minimales observées sont supérieures à la largeur naturelle de la transition qui est de 23MHz. La différence de largeur peut être due à l'effet Doppler.

Élargissement de la raie par effet Doppler

Pour analyser l'influence de l'effet Doppler, plusieurs spectres sont réalisés par le laser rouge et pour différentes désaccords du laser bleu. Pour ces mesures la puissance du laser rouge est de 4mW soit $\Omega_R = 42$MHz et un paramètre de saturation $s_R = 7$. Il existe un élargissement constant sur les spectres dû à la saturation. L'élargissement effectif de la raie est donné par $\Gamma_{eff} = (\Gamma^2 + \Omega_R^2/2)^{1/2}$. Par rapport à la largeur naturelle, cette relation montre que le laser rouge introduit un élargissement d'environ 15MHz. La figure 6.7 montre une série de spectres pour différents désaccords du laser bleu. La chute de

signal (indiquée par une flèche noire) peut être une résonance noire impliquant les niveaux Zeeman séparés à cause au champ magnétique terrestre. La largeur de la raie en fonction

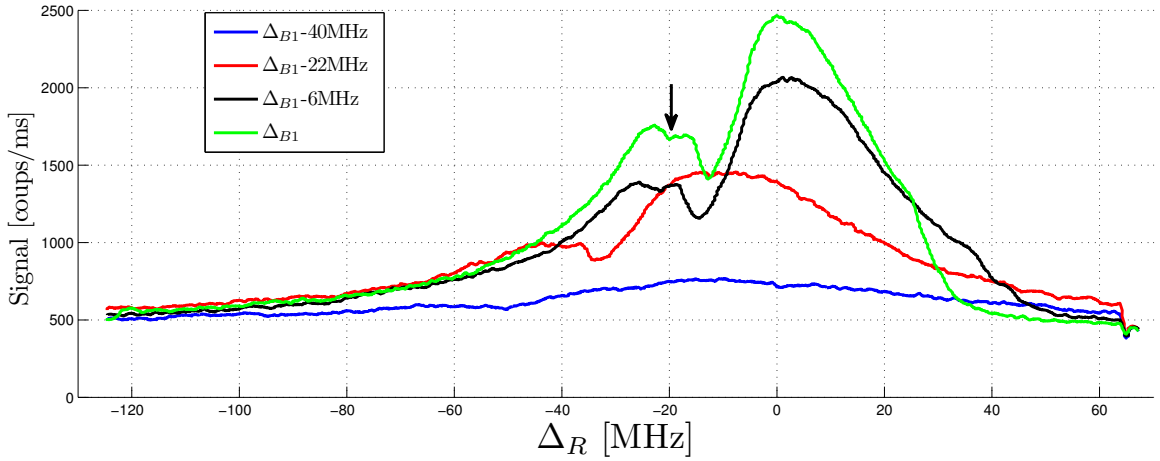

FIGURE 6.7 – Signal d'ions en balayant la fréquence du laser rouge pour quelques désaccords du laser bleu. $P_B = 1$mW, $P_R = 4$mW, $V_{RF} = 1060V_{PP}$ et $V_{DC} = 2000V$. La résonance de la transition rouge est supposée au niveau du sommet de la courbe verte. La référence en désaccord du laser bleu est la courbe verte (Δ_{B1}).

du désaccord du laser bleu est résumée dans le tableau 6.1. Si nous enlevons la contribution

Δ_B [MHz]	Δ_{B1}-40	Δ_{B1}-22	Δ_{B1}-6	Δ_{B1}
Γ_{eff} [MHz]	83	65	58	52

TABLE 6.1 – Largeur du spectre en fonction du désaccord du laser bleu. Cette largeur de la raie est mesurée incluant les deux pics observés sur les spectres.

de l'élargissement par saturation estimée plus haut, la largeur minimale observée devient 37MHz avec une incertitude d'environ ±3MHz liée à la mesure et à la dérive lente du laser. Néanmoins des mesures montrent que la largeur minimale observée en fonction des paramètres de refroidissement est toujours supérieure à la largeur naturelle. De plus, la figure 6.7 présente un élargissement de la raie noire. Ceci peut être dû au chauffage radio-fréquence lié à une valeur de V_{RF} élevée ou alors d'un refroidissement insuffisant.

6.2.2 Analyse du chauffage radio-fréquence et migration des ions dans les minima de potentiel

Dans cette partie, nous analysons le rôle du chauffage RF sur les spectres en piège octupolaire. Une série de spectres des ions par balayage du laser rouge pour différents désaccords du laser bleu est réalisée pour une amplitude RF plus élevée que pour des expériences précédentes. La figure 6.8 présente des spectres d'un même nuage pour $V_{RF} = 1655V_{PP}$ et sur le même nuage. Les spectres sont réalisés dans l'ordre de 1 à 4 et nous décrivons dans la suite les observations faites sur la caméra ICCD pendant ces spectres :

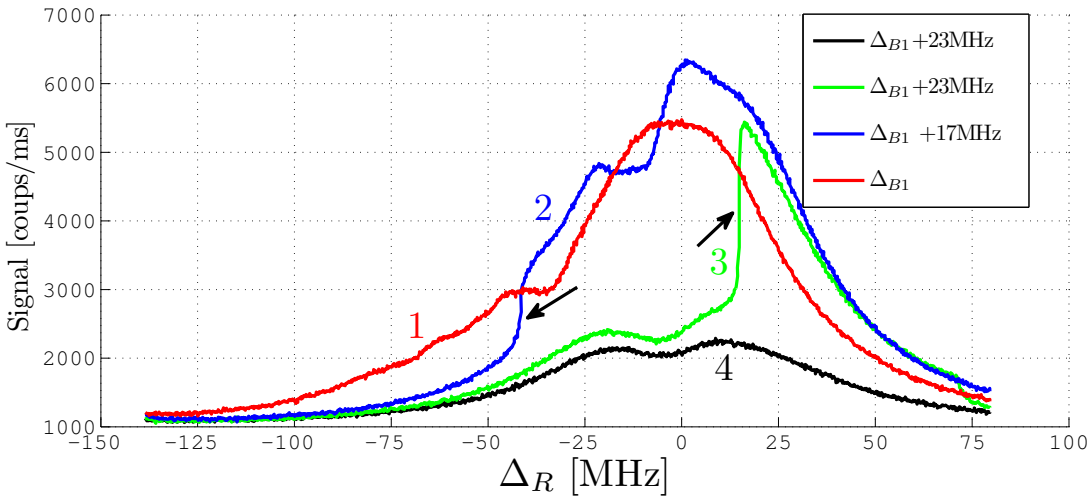

FIGURE 6.8 – Signal de fluorescence des ions dans les minima locaux en fonction de la fréquence du laser rouge pour quelques désaccords fixé du laser bleu. $V_{RF} = 1655V_{PP}$, $V_{DC} = 2000V$, $P_B = 1,25$mW et $P_R = 2$mW. La résonance de la transition rouge est supposée au niveau du sommet de la courbe rouge. La référence en désaccord bleu est la courbe rouge (Δ_{B1}). Les numéros représentent l'ordre chronologique des spectres.

— spectre 1 : tout le long du spectre, les ions peuplent les trois minima locaux. Les trois images sont nettes et contrastées, sauf tout à la fin du spectre où elles deviennent diffuses. Nous associons ces ellipses aux bords nets à la phase liquide et les images diffuses à la phase gazeuse.
— spectre 2 : au début du spectre, on observe trois nuages diffus sur la caméra. puis une hausse abrupte de signal (indiquée par la flèche noire) est observée sur le photomultiplicateur. Pendant cette phase, tous les ions quittent min_2 et min_3 pour peupler min_1. Après cette hausse de signal, l'image du nuage dans min_1 devient plus contrastée, caractéristique d'une phase liquide. À la fin de ce spectre, l'image du nuage redevient diffuse et les ions se redistribuent dans les trois minima.
— spectre 3 : le même phénomène qu'en spectre 2 est observé, mais le saut de signal marquant la migration des ions a lieu pour un désaccord Δ_R plus élevé.
— spectre 4 : les trois nuages restent diffus tout le long du spectre et on n'observe pas de migration des ions

Pour comprendre les causes de ces migrations des ions entre les minima, nous reproduisons le même type de spectre pour différentes amplitudes V_{RF}. La figure 6.9 présente ces spectres par balayage du laser rouge et le désaccord du laser bleu est choisi proche de la résonance. Dans l'ordre chronologique :

— spectre 1 : les trois images nettes et contrastées des trois nuages sont observées tout le long du spectre sauf à la toute fin du spectre où elles deviennent diffuses.
— spectre 2 : au début du spectre, on observe trois nuages diffus. Puis, tout comme pour les spectres de la figure 6.8, une hausse abrupte de signal est observée. Pendant cette phase, tous les ions quittent min_2 et min_3 pour peupler min_1. Après cette hausse de signal, l'image du nuage dans min_1 devient plus contrastée, caractéristique d'une phase liquide. À la fin de ce spectre, l'image du nuage redevient

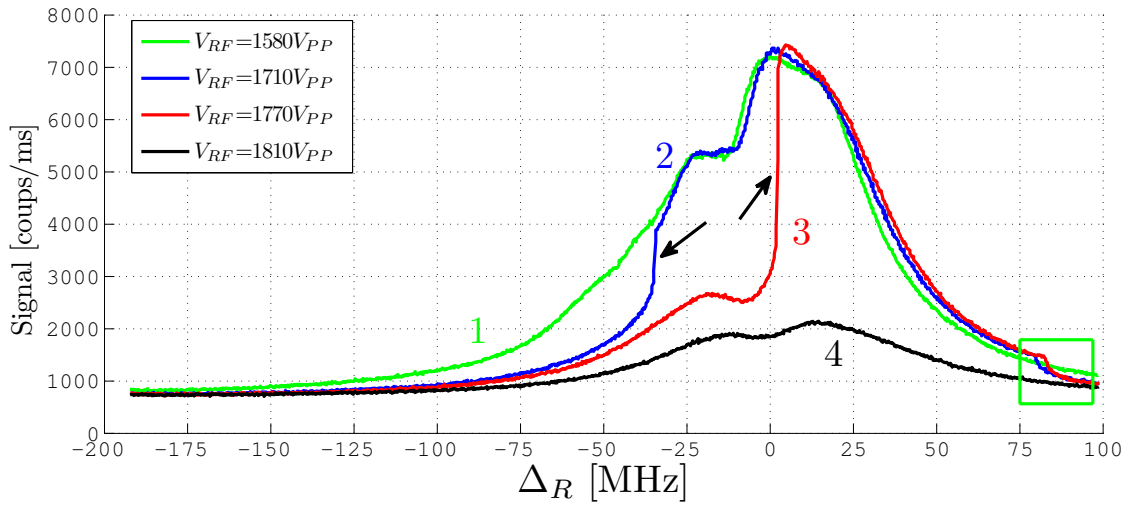

FIGURE 6.9 – Signal de fluorescence des ions en fonction du désaccord du laser rouge pour quelques amplitudes RF du piège octupolaire. $V_{DC} = 2000V$, $P_B = 1,25$mW et $P_R = 2$mW. La résonance de transition rouge est supposée comme étant le sommet de la courbe verte.

diffuse et les ions se redistribuent dans les trois minima. Cette dernière phase est visible sur les spectres par le décrochement identifié par le cadre vert.

— spectre 3 : le même phénomène qu'en spectre 2 est observé, mais le saut de signal marquant la migration des ions a lieu pour un désaccord Δ_R plus élevé.

— spectre 4 : les trois nuages restent diffus tout le long du spectre et on n'observe pas de migration des ions. Cela est certainement dû au fait que le chauffage RF l'emporte sur le refroidissement tout au long du spectre à cause d'une V_{RF} très grande.

Les spectres des figures 6.8 et 6.9 montrent un comportement identique qui semble impliquer une compétition entre le chauffage RF et le refroidissement laser. Les analyses montrent que les migrations des nuages d'ions entre les minima de potentiel se produisent uniquement lorsque le laser bleu est près de la résonance et pour des tensions RF importantes. Cependant nous ne connaissons pas pour le moment les causes exactes de cette migration. Une étude plus approfondie sera nécessaire pour comprendre et contrôler les paramètres de ce phénomène. Le transfert des ions entre les puits locaux d'un même piège pourrait être intéressant pour l'information quantique, pour les transferts de l'information quantique, si les conditions de migration sont bien controlées.

Dans la majorité des cas, les spectres ne provoquent pas la migration des ions et le passage de la phase gazeuse à liquide n'a alors aucune signature sur le spectre, ce qui montre que le chauffage RF est plus faible qu'en piège quadrupolaire. Dans le paragraphe suivant nous analysons ces transitions de phases dans les minima locaux.

6.2.3 Transition de phase gaz-liquide

Dans les pièges quadrupolaires, la transition gaz/liquide se manifeste par une ou plusieurs chutes abruptes dans le spectre de fluorescence des ions (section 3.1.3), ce qui

s'explique par une compétition entre chauffage radio-fréquence et refroidissement laser. Cependant, dans les pièges multipolaires ou des pièges avec des raideurs de potentiel faibles, à cause d'un faible chauffage RF, la transition abrupte est rarement visible. Un exemple de spectre par balayage du laser de refroidissement à 397nm sur un nuage de quelques dizaines de milliers d'ions est présenté sur la figure 6.10. Sur cette figure 6.10, nous remarquons une

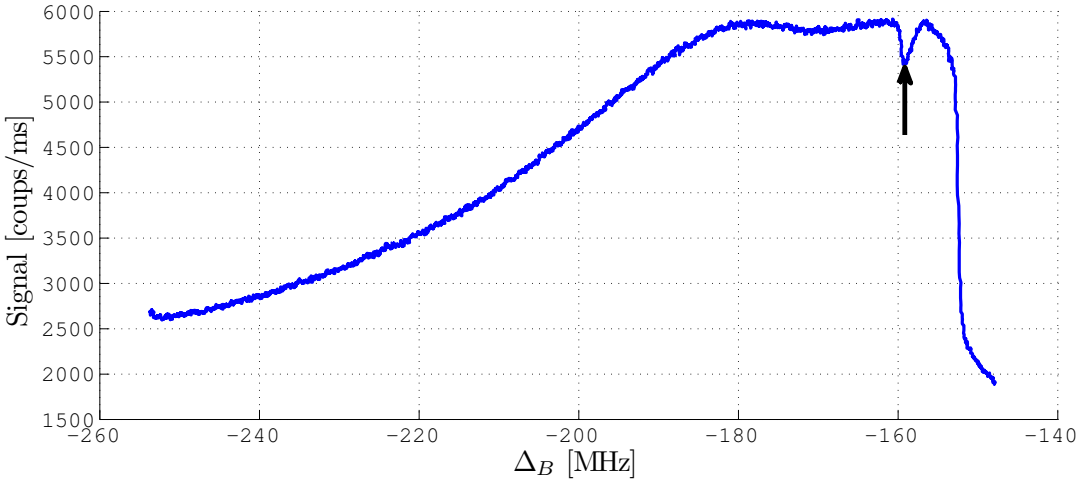

FIGURE 6.10 – Signal de fluorescence des ions dans les minima en fonction du désaccord Δ_B du laser bleu pour $V_{RF} = 1600V_{PP}$ et $V_{DC} = 2000V$. La flèche noire indique la migration des ions des min_2 et min_3 vers le min_1. Le zéro du désaccord de la fréquence du laser est choisi arbitrairement.

chute de signal avant la plus grande chute qui signe l'échauffement. D'après les observations simultanées sur la caméra, ceci est dû à une migration des ions des deux minima min_2 et min_3 vers le min_1.

Dans les pièges quadrupolaires, à cause de la compétition entre chauffage RF et refroidissement laser, le passage à la phase liquide se manifeste par une chute abrupte de signal qui n'est observable ici que si le nombre total d'ions est supérieur à 10^5, quelles ques soient les tensions RF appliquées. La figure 6.11 présente un exemple de spectre réalisé avec environ 2.10^5 ions. Trois chutes de signal sont observées, correspondant à la transition gaz/liquide dans les trois minima de potentiels. Une analyse simultanée des images CCD montre que les transitions de phase des min_2 et min_3 apparaissent pour des fréquences du laser bleu plus élevées que pour la transition de phase dans le min_1. Cette observation est compatible avec la répartition disproportionnée des ions dans les trois minima (voir section 6.3.4 pour analyse quantitative). En effet, min_1 est toujours beaucoup plus peuplé que min_2 et min_3.

Nous avons montré par les spectres d'excitation que dans les pièges avec un faible chauffage RF hors cas de migration, les transitions vers des structures ordonnées n'ont pas de signature dans le spectre de fluorescence. Pour détecter la phase du nuage, il est alors primordiale d'observer la caméra pendant la variation des fréquences laser. Dans les cristaux d'ions formés dans les minima, les ions s'organisent en couches comme montre l'exemple de la figure 6.12. Ces couches d'ions peuvent être exploitées pour caractériser les minima locaux dans les multipoles. Dans la suite nous étudions la dynamique des ions au

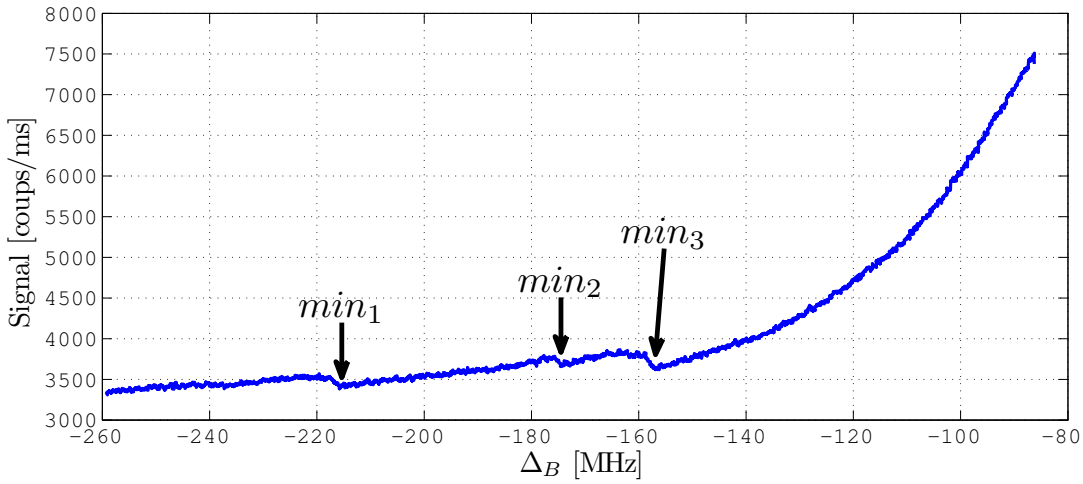

FIGURE 6.11 – Signal de fluorescence des ions en fonction du désaccord du laser bleu pour $V_{RF} = 1975V_{PP}$ et $V_{DC} = 2000V$ sur un nuage de 2.10^5 ions. Le zéro du désaccord est choisi arbitrairement. Les chutes dans le spectre de fluorescence représentent la signature des transitions de phase dans chaque minimum.

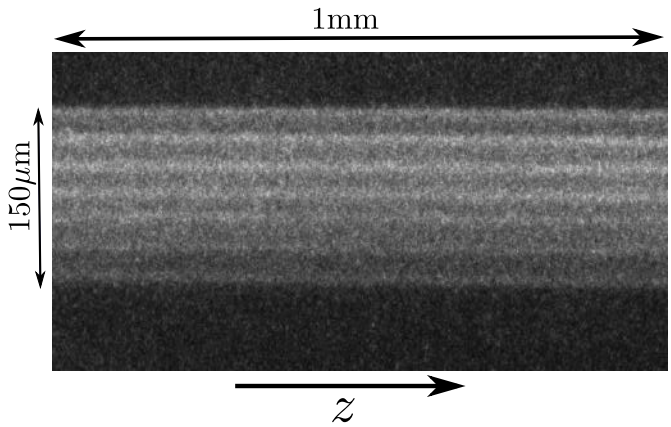

FIGURE 6.12 – Image d'un cristal d'ions dans le min_1 pour $V_{RF} = 1060V_{PP}$ et $V_{DC} = 2000V$. L'axe z du piège est orienté horizontalement.

sein du nuage.

6.3 Dynamique des ions piégés dans les minima locaux en piège octupolaire

Pour étudier le comportement des ions dans les minima locaux en piège octupolaire, nous supposons que le développement du potentiel au premier ordre autour de ces minima explique la dynamique dans le piège. Pour cela, les fonds des puits locaux sont supposés harmoniques. Dans cette partie nous vérifions cette hypothèse. Pour cela, nous commençons par mesurer les fréquences d'oscillation des ions. Puis nous analysons les rapports d'aspect des nuages qui peuvent valider l'hypothèse du potentiel harmonique local et permettre ainsi d'estimer le nombre d'ions. Nous terminons cette partie par une analyse des structures en "chaîne" et en "zigzag", propres au potentiel harmonique.

6.3.1 Mesures de fréquences d'oscillation

Pour mesurer les fréquences d'oscillation, nous utilisons la technique de l'excitation paramétrique. Cette technique est détaillée dans la section 3.2 où elle est utilisée pour la caractérisation du mouvement dans le piège quadrupolaire. Comme notre électronique ne permet pas d'additionner des tensions oscillantes sur les hautes tensions RF, les oscillations sont excitées axialement en appliquant des "tickles" sur les électrodes DC et nous comptons sur le couplage coulombien pour exciter aussi les oscillations radiales.

Fréquence d'oscillation radiale ω_x

Pour exciter la fréquence du mouvement par résonance paramétrique, il est important de savoir dans quelle gamme de fréquence travailler pour couvrir la zone à explorer avec un petit pas. Pour avoir un ordre de grandeur de la fréquence ω_x dans les minima, nous estimons la densité du nuage par $n_0 = a^{-3}$ en mesurant la distance a entre les couches d'ions formées en phase froide. Sur une image d'ions en phase cristalline prise pour $V_{RF} = 2000V_{PP}$, $a = 25\mu$m et la densité correspondante est alors de 6,4 $\times 10^{13}$ ions/m^3. Si on suppose un comportement local quadrupolaire, la fréquence ω_x correspondant à cette densité est 187kHz pour $2000V_{PP}$.

Une petite tension sinusoïdale de fréquence variable est appliquée sur l'électrode DC_5 avec pour but d'exciter la fréquence radiale du mouvement. La fréquence du tickle couvre une bande dépendant de la tension V_{RF} choisie et elle est adaptée à la bande passante de nos générateurs haute tension (avec V_{RF} de 850 à 1400 V_{PP} et V_{DC} constante à 2000V). Nous observons une chute du signal de fluorescence qui se déplace en fréquence avec V_{RF} (figure 6.13-(a)). La relation entre le carré de la fréquence de résonance ω^2 et V_{RF}^2 est linéaire (figure 6.13-(b)) comme le prévoient les équations de Mathieu (1.19). L'analyse des données expérimentales montre que la fréquence d'oscillation croit linéairement avec V_{RF} comme (6.4)

$$\omega_x = (157 \pm 1)\,\frac{V_{RF}(V_{PP})}{2000} \quad \text{kHz} \tag{6.4}$$

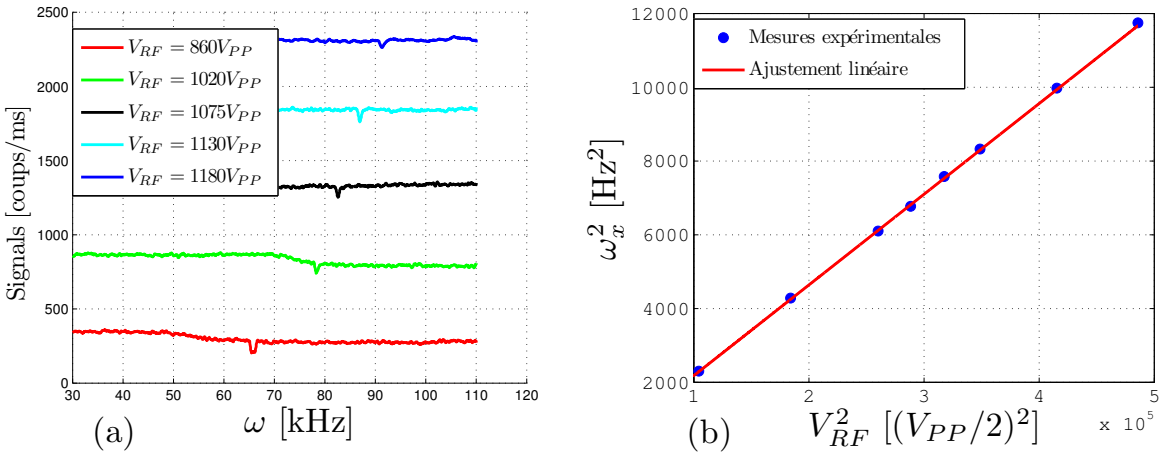

FIGURE 6.13 – (a) Signal de fluorescence en fonction de la fréquence d'excitation pour quelques valeurs de V_{RF}. Les courbes sont décalées les unes des autres pour permettre de les distinguer. (b) : ω_x^2 en fonction de V_{RF}^2.

Les résultats de ces mesures ne permettent pas de conclure quant à la fréquence d'oscillation des ions dans chaque puits local de potentiel car les courbes de la figure 6.13-(a) ne présentent qu'un seul saut de signal. Nous faisons alors l'hypothèse que les trois puits oscillent à la même fréquence. Pour vérifier cette hypothèse, nous analysons l'écart entre les couches formées en phase froide dans chaque minimum de potentiel. Les résultats montrent qu'à paramètres de piégeage identiques, l'écart entre les couches d'ions est identique dans les trois minima de potentiel avec une erreur inférieure à 5%. Un écart identique entre les trois minima locaux permet de conclure à une densité identique dans les puits. Les ions oscillent donc à la même fréquence ω_x donnée par (6.4).

Fréquence d'oscillation axiale ω_z

Pour avoir un ordre de grandeur de ω_z, le fond du puits de potentiel dans le piège octupolaire est ajusté numériquement par l'équation d'un oscillateur harmonique. Le résultat montre que $\omega_z = 3,25\sqrt{V_{DC}/2000}$ kHz. La zone de balayage du tickle est alors réduit à quelques kilo-Hertz. Les spectres du mouvement sont effectués pour différentes tensions V_{DC}. Sur certains spectres trois pics secondaires sont observés dans un grand pic principal dont un exemple est représenté sur la figure 6.14-(a) pour $V_{DC} = 1600V$. La présence de ces pics peut s'expliquer par la non dégénérescence de résonance entre les trois minima locaux. Ces pics secondaires ne sont pas présents sur tous les spectres. L'écart en fréquence entre les pics secondaires est de 40Hz, négligeable par rapport à la fréquence maximale mesurée de 3kHz. Donc cet écart est considéré inclus dans la barre d'erreur des mesures. Nous considérons dans la suite que les ions dans les trois minima de potentiel oscillent à la même fréquence. La fréquence ω_z est mesurée en fonction de V_{DC} (figure 6.14-(b)) pour $V_{RF} = 1060V_{PP}$. La relation entre ω_z^2 et V_{DC} est linéaire comme pour un potentiel harmonique. Ce résultat n'est pas surprenant car dans les pièges linéaires ideaux, le potentiel de confinement axial est harmonique. Nous déduisons par un ajustement linéaire la fréquence ω_z en fonction de V_{DC} (6.5)

$$\omega_z = (3,10 \pm 0,05)\sqrt{\frac{V_{DC}}{2000}} \quad \text{kHz} \tag{6.5}$$

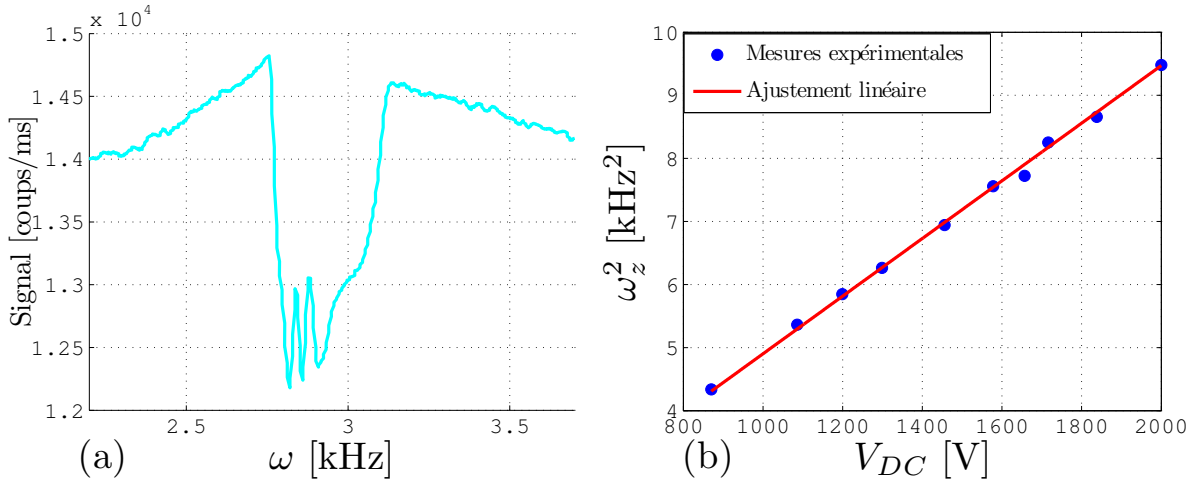

FIGURE 6.14 – (a) : signal de fluorescence dans le piège octupolaire en fonction de la fréquence du tickle. La présence de trois pics secondaires dans le pic principal marque la résonance des trois minima locaux. (b) : fréquence d'oscillation axiale ω_z en fonction de V_{DC}.

Les fréquences d'oscillation déterminées ci-dessus vérifient l'hypothèse qu'il s'agit bien de puits locaux de potentiel harmonique.

6.3.2 Vérification des lois physiques dans les minima locaux

Pour conclure sur l'hypothèse des minima locaux harmoniques en piège octupolaire, nous testons les lois physiques du piège quadrupolaire à savoir les rapports d'aspect des nuages dans ces minima.

Rapport d'aspect du nuage

Dans ce paragraphe, nous comparons les rapports d'aspect $\alpha_{exp} = R_{exp}/L_{exp}$ donné expérimentalement par la géométrie du nuage à celui $\alpha = R/L$ calculé par la relation (3.12) que nous rappellons ici :

$$\frac{\omega_z^2}{\omega_r^2} = \rho = -2\frac{\sinh^{-1}\left(\alpha^{-2}-1\right)^{1/2} - \alpha\left(\alpha^{-2}-1\right)^{1/2}}{\sinh^{-1}\left(\alpha^{-2}-1\right)^{1/2} - \alpha^{-1}\left(\alpha^{-2}-1\right)^{1/2}} \tag{6.6}$$

Cette relation est démontrée et validée expérimentalement dans les pièges quadrupolaires. Les incertitudes liées à ces valeurs sont données par les relations (6.7) et (6.8).

$$\Delta\alpha_{exp} = \alpha_{exp}\left(\frac{\Delta R_{exp}}{R_{exp}} + \frac{\Delta L_{exp}}{L_{exp}}\right) \tag{6.7}$$

$$\Delta\alpha_c = \rho\left(\frac{\partial\rho}{\partial\alpha}\right)^{-1}_{\alpha_c}\left(2\frac{\Delta\omega_z}{\omega_z} + 2\frac{\Delta\omega_x}{\omega_x}\right) \tag{6.8}$$

Sur un nuage de quelques milliers d'ions, nous effectuons une série de mesures de la demi-longueur et du rayon du nuage dans min_1 local en piège octupolaire. Pour ces mesures, la longueur du nuage est de l'ordre de 12mm. Pendant les mesures, nous avons remarqué que l'extrémité du nuage fluctue d'environ 300μm dans le sens de la longueur sur les temps d'acquisition de la caméra ICCD. De plus, une alternance dans la forme de la pointe qui passe d'une chaîne simple à un bout ronde type ellipse est observée. Nous décidons de négliger ces variations comparées à la longueur du nuage qui est de 12,5mm. De façon générale, la mesure de la longueur du nuage dans les minima est pénible du fait de leurs ordres de grandeur de 10 à 60mm alors que la taille du capteur ICCD ne fait l'image que d'un millimètre environ. Notre but est donc de pouvoir déterminer le nombre d'ions sans mesurer la longueur du nuage. Les fluctuations enregistrées sur la longueur du nuage sont considérées comme l'incertitude de mesure de la longueur $2L$ du nuage et valent $\pm 600\mu$m. Sur la figure 6.15, nous comparons les rapports d'aspect du nuage en fonction de la tension V_{RF}. Pour ces mesures, la longueur est mesurée a chaque fois par déplacement de l'objectif de détection d'un bout à l'autre du nuage. Les points bleus et rouges sont presque

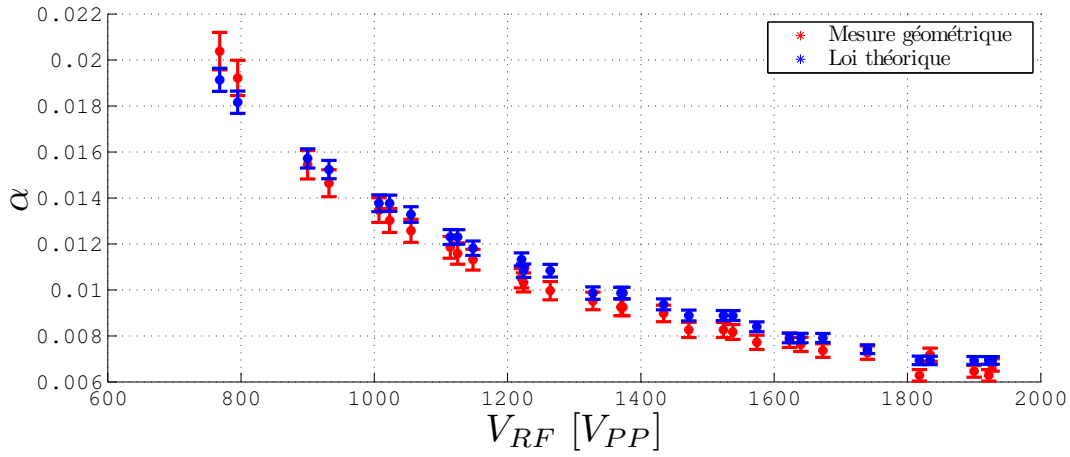

FIGURE 6.15 – Rapport d'aspect des nuages d'ions en fonction de la tension V_{RF}. Les point bleus représentent le rapport d'aspect R/L calculé par la relation (6.6) en fonction de ω_x et ω_z et les points rouges le rapport d'aspect géométrique R_{exp}/L_{exp}.

superposés aux barres d'erreurs près. La confrontation des rapports d'aspect déduit des fréquences mesurées par une technique différente de celle basée sur la morphologie des nuages froids montre une cohérence qui valide notre hypothèse que les potentiels locaux sont harmoniques.

Jusqu'ici, toutes les études tendent à confirmer l'hypothèse des minima locaux harmoniques dans les multipoles. Nous pouvons alors déterminer le nombre d'ions piégés en nous basant sur les études déjà faites en piège quadrupolaire dans la section 3.3.

6.3.3 Estimation du nombre d'ions dans les puits locaux

Dans le piège octupolaire, les électrodes DC sont très éloignées et donc ω_z est bien plus faible que dans le piège quadrupolaire. La conséquence est que le nuage est très allongé suivant l'axe du piège. Les longueurs typiques atteintes par les nuages sont comprises

entre 10mm et 60mm. Cela rend la mesure de la longueur du nuage très difficile. Dans ce paragraphe, nous proposons une méthode permettant d'estimer le nombre d'ions sans mesurer la longueur du nuage.

L'accord entre les rapports d'aspect mesuré et calculé pour les nuages dans les minima locaux permet de déterminer L à partir de la mesure du rayon R. La demi-longueur L du nuage est alors donnée par la relation $L = R/\alpha$ où α est issu de la relation (6.6). La méthode numérique d'analyse des images des ions en piège quadrupolaire que nous avons présentée à la section 3.3 permet de fitter le rayon du nuage avec une bonne incertitude. Connaissant les tensions de piégeage, le nombre d'ions piégés dans chaque minimum est déterminé dans l'hypothèse de la densité uniforme par $N_{min_j} = 4n_c R^3_{min_j}/3\alpha$ où j=1,2 ou 3 et n_c est la densité du nuage supposée uniforme donnée par la relation (1.51) que nous rappelons ici :

$$n_c = \frac{2m\epsilon_0}{q}\omega_x^2 \tag{6.9}$$

L'incertitude de mesure du nombre d'ions est donc donnée par la relation suivante :

$$\frac{\Delta N}{N} = 3\frac{\Delta R_{exp}}{R_{exp}} + \frac{\rho}{\alpha_c}\left(\frac{\partial\rho}{\partial\alpha}\right)^{-1}_{\alpha_c}\left(2\frac{\Delta\omega_z}{\omega_z} + 2\frac{\Delta\omega_x}{\omega_x}\right) + 2\frac{\Delta\omega_x}{\omega_x} \tag{6.10}$$

Le rayon du nuage dans chaque minimum est estimé avec ±2pixels d'incertitude. À $V_{DC} = 2000V$ l'incertitude maximale sur le nombre d'ions est de ±7% dans la limite de $V_{RF} = 2000V_{PP}$ de notre système. Le nombre total d'ions dans les minima locaux de potentiel est la somme des contributions des trois minima (6.11).

$$N = N_{min_1} + N_{min_2} + N_{min_3} \tag{6.11}$$

Pour valider l'hypothèse sur la densité, nous vérifions expérimentalement la conservation du nombre d'ions dans un nuage pour différentes tensions de piégeage. Ces mesures

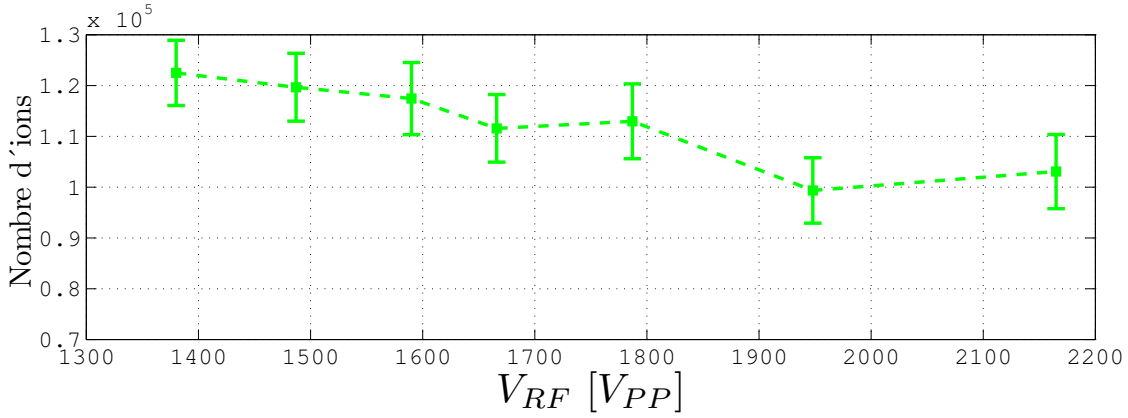

FIGURE 6.16 – Dispersion du nombre d'ions dans min_1 à différentes V_{RF} pour $V_{DC} = 2000V$.

sont faites dans min_1. Une série de mesures est faite pour différentes V_{RF} avec V_{DC} fixée à 2000V. La figure 6.16 présente les résultats de ces mesures. Une variation de 15% maximale est observée sur le nombre d'ions et repartie en $\pm 7,5\%$. Cette dispersion de mesures reste dans la barre d'erreur estimée par la relation (6.10). Ces observations et un intervalle régulier entre les lignes formées en phase liquide permettent de confirmer l'hypothèse de la densité uniforme dans les puits locaux de potentiel.

Les nombres d'ions dans les minima de potentiel ne sont pas identiques quels que soient les paramètres de piégeage. Cette observation peut être utile pour comparer les profondeurs des trois puits de potentiel.

6.3.4 Répartition des ions dans les minima locaux

Les ions transférés dans le piège octupolaire se repartissent dans les puits locaux (sauf cas de transfert entre minima) selon une certaine proportion. La figure 6.17 présente un recensement de plusieurs images des nuages dans le piège octupolaire en fonction du nombre total d'ions N (6.11). Ce recensement est fait sur des nuages de différentes tailles

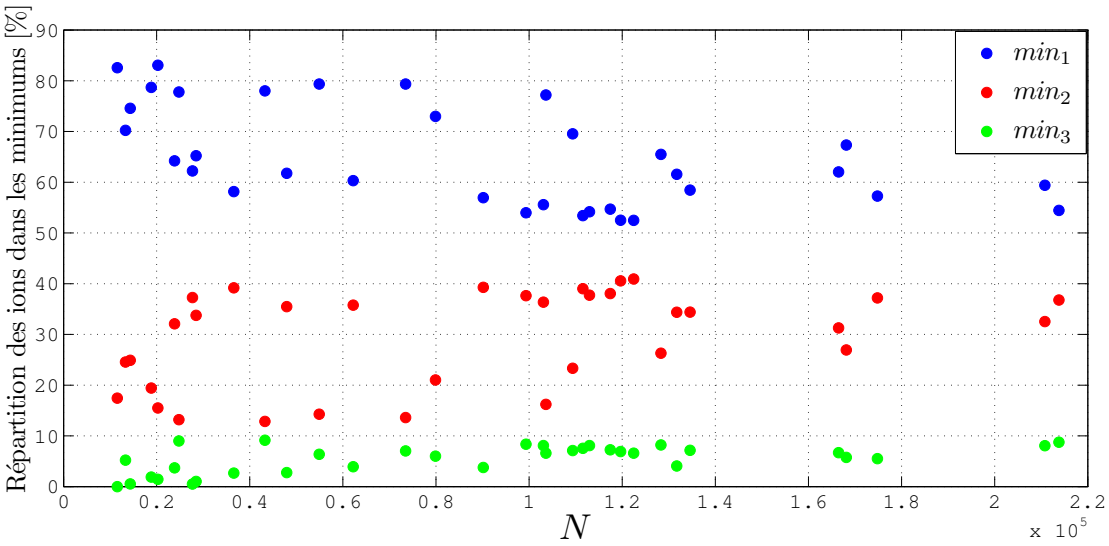

FIGURE 6.17 – Répartition des ions dans les minima locaux en fonction du nombre d'ions total N. Les points bleus représentent la fraction en min_1, les points rouges en min_2 et les points verts en min_3. Les points sur cette figure rassemblent des données prises pendant des journées différentes pour diverses paramètres de piégeage et de refroidissement.

et pour des paramètres de piégeage et de refroidissement différents. Nous remarquons dans tous les cas que la probabilité de trouver les ions dans le minima min_1 varie de 55 à 85%, celle du min_2 de 12 à 50% et celle du min_3 de 0 à 10%. Cette observation explique également l'ordre chronologique de leur découverte dans le piège. En effet, pour un petit nombre d'ions piégés, seul min_1 est peuplé. De plus, comme les trois puits de potentiels ont la même raideur de potentiel, nous pouvons dire que le minimum min_2 est moins profond que min_1 et plus profond que min_3. Cette observation pourrait expliquer pourquoi les migrations observées (section 6.2.1) se font surtout vers min_1.

Les études réalisées dans cette partie ont permis de montrer que les minima locaux de potentiel observés dans le piège octupolaire sont harmoniques et de même raideur. Les ions froids présents dans ces puits se comportent comme en piège quadrupolaire en respectant les lois théoriques des rapports d'aspect et de densité du nuage. Le nombre d'ions est déterminé de la même façon qu'en piège quadrupolaire en mesurant le demi-axe de l'ellipse. De plus, les minima de potentiels observés n'ont pas la même profondeur. L'étude de répartition des ions parmi les trois puits permet de comparer les profondeurs de chaque puits et de comprendre pourquoi dans certaines conditions les ions sont transférés des min_2 et min_3 vers le min_1.

Lorsqu'un petit nuage d'ions est cristallisé, les ions s'organisent dans une structure en chaîne ou zigzag. Pour conclure sur la caractérisation des minima locaux, nous étudions ces structures ioniques.

6.4 Étude des structures en chaîne et zigzag d'ions

Un petit nuage d'ions froids dans un minimum local s'organise dans une structure en chaîne ou en zigzag en fonction des tensions de piégeage. La figure 6.18 présente quelques exemples de structure d'ions en chaîne (a), hybride en zigzag (b) et en zigzag (c). Les

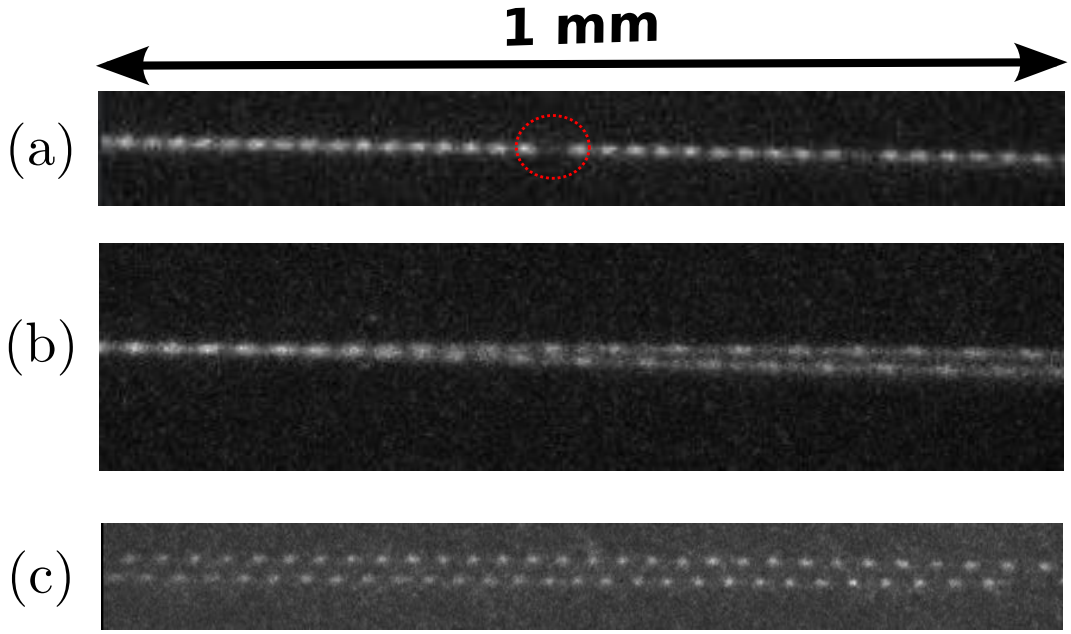

FIGURE 6.18 – (a) structure en chaîne (b) des structure hybride en zigzag et (c) la structure en zigzag. La zone entourée en rouge signe la présence d'un ion noir, peut être un isotope du calcium. L'axe du piège est orienté horizontalement.

tailles typiques de ces structures peuvent aller de 1 à 5mm dans notre piège octupolaire en fonction des tensions de piégeage. La transition de phase zigzag-chaîne ou chaîne-zigzag est caractérisée par le rapport ρ des raideurs des potentiels de confinement axial et radial ainsi que du nombre d'ions piégés donné par la relation suivante :

$$\rho = \frac{\omega_z^2}{\omega_r^2} \tag{6.12}$$

Pour un nombre d'ions donné, la transition est atteinte lorsque ρ prend une certaine valeur critique ρ_c. Pour $\rho > \rho_c$ il y a formation de structures en zigzag et pour $\rho < \rho_c$ les ions s'organisent dans une structure en chaîne. Avant d'étudier la transition de phase chaîne-zigzag, nous analysons d'abord expérimentalement les chaînes d'ions dans les minima locaux en piège octupolaire.

6.4.1 Structure en chaîne d'ions

Les chaînes formées dans les minima en piège octupolaire ont des longueurs de l'ordre de 5mm. Il est extrêmement difficile de déterminer le nombre d'ions dans les chaînes car il faut déplacer l'objectif de détection le long des ions (avec $\gamma_1 = 11,58$, le champ de la caméra est de 1,1 × 1,1 mm). Dans ce paragraphe, nous confrontons des prévisions aux observations expérimentales pour déduire une méthode de détermination du nombre d'ions dans une chaîne en observant uniquement le centre de celle-ci.

Étude théorique

Dans l'approximation de la goutte fluide à l'équilibre thermodynamique, Dubin montre que la répartition de N ions dans une chaîne est caractérisée par la relation (6.13) [153]

$$a(z) = \frac{1}{n_l(z)} = \left(\frac{3}{4}\frac{N}{L}\left(1 - \frac{z^2}{L^2}\right)\right)^{-1} \tag{6.13}$$

où $a(z)$ est la distance entre ions à la position z, n_l la densité linéique local des ions et $2L$ la longueur totale de la chaîne. La distance minimale entre ions, réalisée au centre de la chaîne, vaut $a_D = a(z = 0) = 4L/3N$ [1]. a_D dépend du nombre d'ions ainsi que de la demi-longueur de la chaîne L. Si les corrélations entre ions dues à leur auto-organisation sont prises en compte, la demi-longueur peut être estimée par la relation suivante [153] :

$$L^3 = 3Nl^3\left[\ln(6N) + \gamma_e - 13/5\right] \tag{6.14}$$

avec $l = (Ze)^2/(4\pi\varepsilon_0 m\omega_z^2)^{1/3}$ l'échelle de longueur de la distance entre ions, Z le nombre de charge et $\gamma_e = 0,577$ la constante d'Euler. Par ailleurs, dans une étude thermodynamique, G. Morigi et S. Fishman [154] montrent que pour un $N >> 1$, L^3 se comporte comme :

$$L^3 = 3Nl^3 \ln N. \tag{6.15}$$

Ces deux relations sont équivalentes si on peut négliger ($C = \ln 6 + \gamma_e - 13/5 = -0.23$) devant $\ln N$. Pour un nombre d'ions typique de 100 à 200 dans notre piège octupolaire, la constante C introduit un écart de 5% sur la longueur de la chaîne, soit environ 1,5% sur la distance minimale entre les ions. Comme notre but est la mesure de a_D, nous choisissons de négliger cet écart entre les deux expressions de L. Dans la suite nous utilisons la version simplifiée (6.15) de l'expression de L.

Dans la référence [155] D. F. V. James montre grâce aux ajustements numériques (avec $N \leq 50$) que la distance minimale entre ions au centre est donnée par la relation empirique (6.16) :

$$a_J = 2,018lN^{-0,559} \tag{6.16}$$

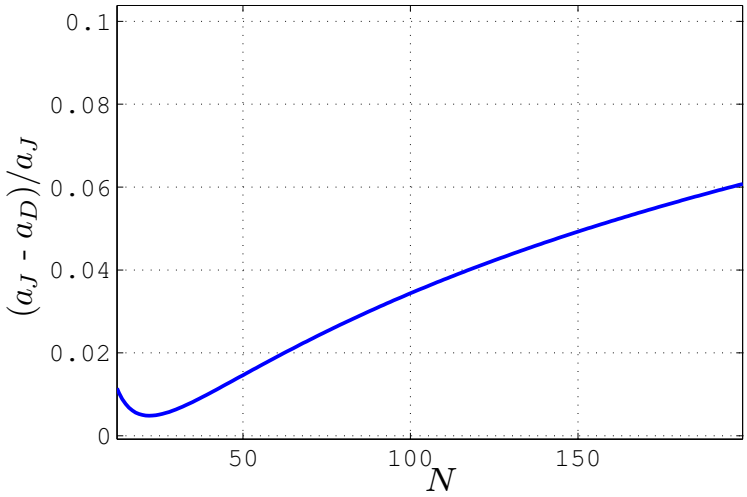

FIGURE 6.19 – Écart relatif entre a_D et a_J

Sur la figure (6.19) est représenté l'écart relatif entre a_D et a_J. Nous remarquons un écart relatif maximal de 6% dans la limite des 200 ions dans une chaîne, maximum que nous pouvons réaliser pour le moment. Les deux méthodes sont donc équivalentes avec un écart maximal de 6%. Nous allons dans la suite comparer ces deux lois à l'expérience. Pour cela, il faut tenir compte des incertitudes de mesure des paramètres expérimentaux.

Contribution des incertitudes de mesure

Pour comparer les $a(z)$ minimaux calculés par les différentes méthodes, nous avons besoin de connaître les paramètres expérimentaux à savoir ω_z et le nombre d'ions N. Les incertitudes relatives des a_D et a_J sont données par les relations (6.17) et (6.18).

$$\frac{\Delta a_D}{a_D} = \frac{\Delta N}{N}\left(\frac{4}{3}+\frac{1}{3\ln N}\right)+\frac{2}{3}\frac{\Delta\omega_z}{\omega_z} \tag{6.17}$$

$$\frac{\Delta a_J}{a_J} = 0,559\frac{\Delta N}{N}+\frac{2}{3}\frac{\Delta\omega_z}{\omega_z} \tag{6.18}$$

où ω_z est déterminée par excitation paramétrique (6.5). À ces incertitudes s'ajoute celle due au grandissement de l'optique de détection due à l'étendue spatiale du nuage. Dans cette exemple, $\gamma = 11,58 \pm 0,014L$ (avec L en millimètre) dans min_1. Cette incertitude est de l'ordre de 0,5% pour une longueur typique des chaînes d'ions de 4mm donc négligeable par rapport aux autres sources d'incertitude. Si nous supposons un nombre d'ions $N = 100 \pm 3$, $\Delta a_D/a_D = 5,3\%$ et $\Delta a_J/a_J = 3\%$. La contribution de N dans l'incertitude de mesure est grande. Réduire la barre d'erreur sur N permet de calculer des distances entre ions beaucoup plus précisément.

Étude expérimentale

Nous avons piégé dans le minimum local min_1 une chaîne d'ions. Une prise de vue tout le long de la chaine sur chaque millimètre (taille d'image du capteur CCD) enregistre

1. a_D pour Dubin

la position des ions d'un bout à l'autre. Cela est réalisable à cause de la stabilité de la chaîne sur des durées supérieures à dix minutes. Le grandissement étant de 11,58, cela veut dire qu'un déplacement de 1mm sur l'objectif revient à déplacer la zone d'observation à travers le capteur de 890 pixels (1pxel=13μm). Pour ne pas compter les ions deux fois il faut considérer 890 pixels par image à partir de la deuxième. Ainsi on peut compter le nombre d'ions dans une chaîne. Le comptage se fait grâce à un programme Matlab qui recherche les pics d'intensité sur l'image, ajuste la tache de lumière par une gaussienne et enregistre les positions. Ces résultats sont ensuite comparés aux deux modèles décrits plus haut. Une expérience est réalisée avec une chaîne d'ions avec $V_{1,2,3} = 1200V$, $V_{4,5} = 2000V$ et $V_{RF} = 1540V_{PP}$. La figure 6.20 montre les résultats de mesure, qui ne sont pas parfaitement reproduits par le modèle. En effet, une asymétrie sur la répartition des ions

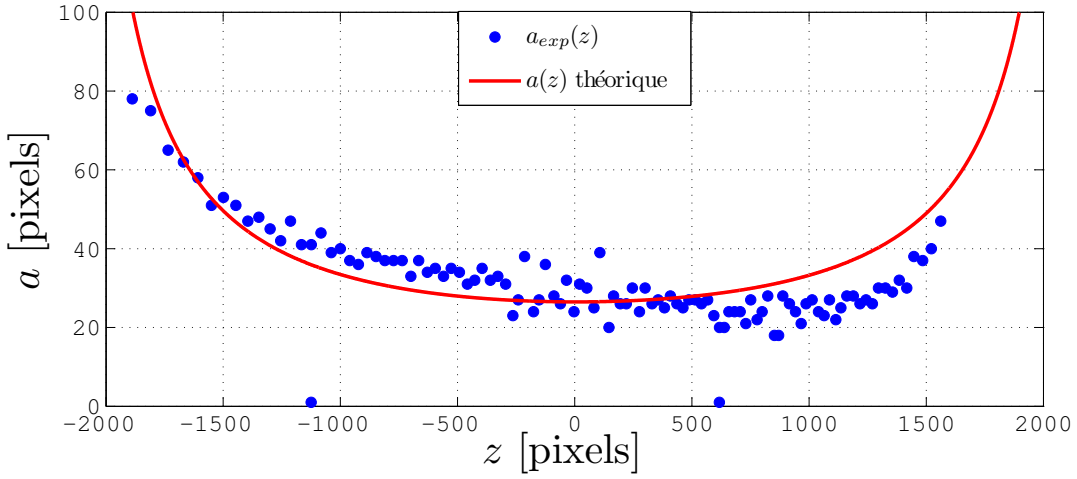

FIGURE 6.20 – Répartition des ions le long de la chaîne dans min_1. Les points expérimentaux sont représentés en bleu et la courbe rouge représente les prédictions théoriques selon l'équation (6.13) avec $N = 116 \pm 2$ ions. Le grandissement de l'optique de détection dans cette exemple est de 11,58 dans min_1. Le piège quadrupolaire est situé à gauche par rapport à la figure.

est remarquée. Cette asymétrie pourrait s'expliquer par la contribution non négligeable sur les ions, des tensions V_1, V_2 et V_3 du piège quadrupolaire (situé à gauche par rapport à la figure 6.20). Pour vérifier cette hypothèse, nous refaisons alors l'expérience avec $V_{1,2,3} = 0V$. Une chaîne contenant 155 ± 3 ions avec $V_{RF} = 2253V_{PP}$ et $V_{4,5} = 2000V$ est créée. Les résultats sont représentés sur le graphe figure 6.21. Les points bleus représentent les mesures expérimentales et la courbe rouge les prédictions selon la relation (6.13). La répartition des ions le long de l'axe se fait de façon symétrique. Aussi les prédictions sont compatibles avec l'expérience.

Néanmoins une dispersion des points d'environ $\langle z \rangle = 15$ pixels maximum est observée le long de la chaîne. Nous pensons que ceci est dû à l'agitation thermique des ions. Pour le vérifier, nous estimons la température d'agitation thermique en absence du micro-

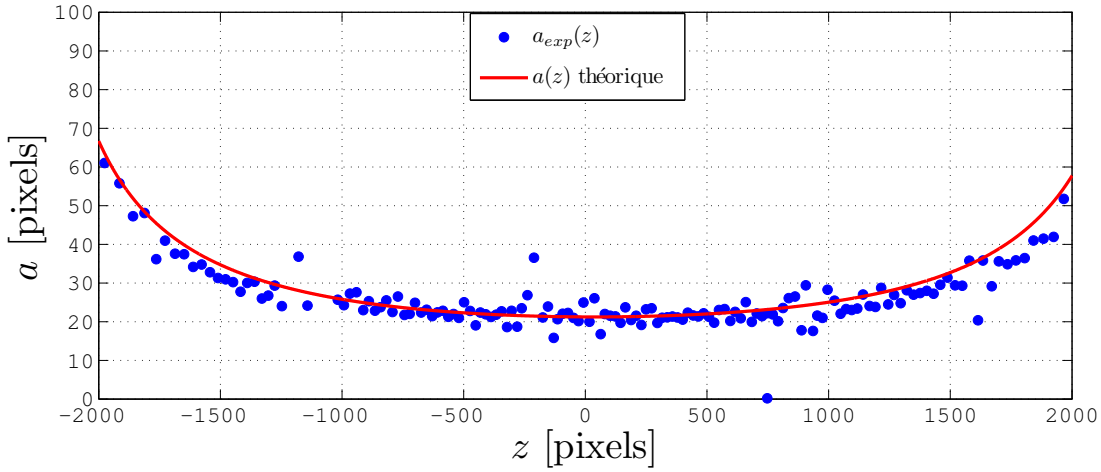

FIGURE 6.21 – Répartition des ions le long de la chaîne dans min_1. Les points expérimentaux $a_{exp}(z)$ sont représentés en bleus et la courbe rouge représente les prédictions théoriques $a(z)$ selon l'équation (6.13) avec $N = 155 \pm 3$ ions, $V_{RF} = 2253V_{PP}$ et $V_{4,5} = 2000V$. Le grandissement de l'optique de détection dans cette exemple est de 11,58 dans min_1.

mouvement suivant l'axe par la relation suivante [156] :

$$T_{ion} = \frac{\pi m \omega_z^2 \langle z \rangle^2}{k_B} \tag{6.19}$$

où $\langle z \rangle$ est la variance de la distribution spatiale le long de l'axe et k_B la constante de Boltzmann. Les températures obtenues sont de l'ordre du millikelvin qui sont des températures typiques des ions froids. Les dispersions observées sont donc dues avec une grande probabilité à l'agitation thermique des ions autour de leurs positions d'équilibres.

Dans cet exemple où $N = 155 \pm 3$, $a_J = 22,3 \pm 0,5$ pixels et $a_D = 21,2 \pm 0,8$ pixels. Si on considère pour le calcul de L la relation (6.14), $a_D = 20,9 \pm 0,8$; les deux valeurs sont comprises dans la barre d'erreur ce qui justifie notre choix de la relation simplifiée 6.15. Par ailleurs, l'écart entre atomes reste constant au centre du piège. On peut alors faire une moyenne sur plusieurs ions au centre du nuage pour déterminer la distance minimale expérimentale a_m entre deux ions.

Mesure de la distance minimale a_m au centre de la chaîne

Dans cette partie, nous faisons une étude statistique pour déterminer la distance moyenne a_m au centre entre deux ions voisins. Dans le tableau 6.2 nous avons répertorié les différentes façons d'estimer les différentes valeurs de a_m. Dans la première colonne, l'incertitude σ_0 est calculée selon la relation (6.20). Dans la deuxième colonne 2 nous faisons l'histogramme des N_c mesures au centre de la chaîne et le résultat est ajusté par une gaussienne pour en déduire la valeur moyenne et pour obtenir la largeur à mi-hauteur σ_H. Dans la troisième colonne, la position de deux ions non voisins est mesurée et la moyenne est obtenue en divisant la différence de position par le nombre d'intervalles entre

les deux ions.

$$\sigma = \sqrt{\frac{1}{n\,(n-1)} \sum_{i=1}^{N_c} (a_i - a_m)^2} \tag{6.20}$$

N_c	$a_m = \frac{1}{N_c} \sum_{i=1}^{N_c} a_i$; σ (6.20)	histogramme	moyenne 2 mesures
10	$a_m = 21,2$;$\sigma = 0,7$	$a_m = 21,1$;$\sigma_H = 2,6$	$a_m = 21,2$;$\sigma_d = 1,0$
14	$a_m = 21,7$;$\sigma = 0,6$	$a_m = 21,7$;$\sigma_H = 3,0$	$a_m = 21,7$;$\sigma_d = 0,7$
20	$a_m = 21,5$;$\sigma = 0,5$	$a_m = 21,0$;$\sigma_H = 1,9$	$a_m = 21,5$;$\sigma_d = 0,7$
30	$a_m = 21,3$;$\sigma = 0,4$	$a_m = 21,4$;$\sigma_H = 1,9$	$a_m = 21,3$;$\sigma_d = 0,3$

TABLE 6.2 – Récapitulatif des mesures de a_m selon trois méthodes expliquées dans le texte en fonction du nombre d'ions pris en compte.

Notre but étant de mesurer un nombre d'ions connaissant uniquement la distance moyenne entre voisins au centre de la chaîne, il est nécessaire de choisir une méthode d'analyse qui donne l'incertitude la plus faible. En comparant les résultats des colonnes 1 et 3 qui donnent les incertitudes les plus faibles, nous déduisons que $a_m = 21,3 \pm 0,3$ pixels avec 68% de confiance. La distance moyenne expérimentale est plus proche de a_D que de a_J mais la différence reste de l'ordre du pixel.

Comme a_J ne dépend que du nombre d'ions, en mesurant précisément la distance entre les ions du centre, la relation (6.16) permet de déduire le nombre d'ions N_0 dans la chaîne.

$$N_J = \left(\frac{2,018l}{a_m}\right)^{\frac{1}{0,559}} \tag{6.21}$$

$$\Delta N_J = \frac{1}{0,559} N_J \left(\frac{2}{3}\frac{\Delta\omega_z}{\omega_z} + \frac{\Delta a_m}{a_m}\right) \tag{6.22}$$

Pour l'exemple de la figure 6.21 on obtient $N_J = 169 \pm 7 > 155$. On trouve une valeur supérieure à la valeur attendue avec 10% d'écart. Cet écart de mesure provient de la différence d'un pixel observé entre a_J et a_m.

Par ailleurs, si on considère les relations $a_D = 4L/3N$ et (6.15), le nombre d'ions peut être obtenu par la résolution de l'équation (6.23) en remplaçant a_D par a_m.

$$\frac{\ln N_D}{N_D^2} = \frac{9}{64}\left(\frac{a_m}{l}\right)^3 \tag{6.23}$$

$$\Delta N_D = \frac{3N_D \ln N_D}{1 + 2\ln N_D}\left(\frac{2}{3}\frac{\Delta\omega_z}{\omega_z} + \frac{\Delta a_m}{a_m}\right) \tag{6.24}$$

Pour le même exemple de la figure 6.21 on obtient $N_D = 154 \pm 5$. On trouve une valeur qui colle parfaitement à la valeur attendue.

Nous avons vu dans cette partie que les modèles numérique et théorique sur les chaînes d'ions sont en accord aux barres d'erreurs près avec les expériences dans le puits

de potentiel local min_1 en piège octupolaire. De plus, la relation (6.21) permet de déduire facilement le nombre d'ions en fonction de la distance moyenne entre ions voisins mais reste limitée au niveau des incertitudes. Cependant, dans l'équation (6.23), il n'est pas possible d'exprimer le nombre d'ions analytiquement. Lors des expériences, la relation (6.21) peut permettre de donner un ordre de grandeur du nombre d'ions dans la chaîne. Mais pour connaître ce nombre avec une bonne précision, il est indispensable de résoudre numériquement l'équation 6.23 avec les paramètres expérimentaux.

6.4.2 Transition de phase vers les zigzags

Dans cette partie, nous analysons les transitions de phase chaîne-zigzag ou zigzag-chaîne dans le but de comprendre d'avantage les propriétés des minima de potentiel dans les multipoles.

Étude théorique

Dans le modèle de la goutte fluide corrigé des corrélations entre ions, Dubin montre qu'à la transition pour un nombre d'ions très grand, la relation entre ρ_D et N est donnée, par [153] :

$$\rho_D = \frac{64\left[\ln(6N) + \gamma_e - 13/5\right]}{(3x_i N)^2} \tag{6.25}$$

où $x_i = 2,05$ évalué dans [157] et $\gamma_e = 0,5772$ est la constante d'Euler. Les simulations de dynamique moléculaire faites par Schiffer [158] montrent que la transition zigzag-chaîne a lieu pour des rapports ρ_S donnés par la condition suivante pour un nombre d'ions N connu.

$$\rho_S = 2,53N^{-1,73} \qquad N < 500 \tag{6.26}$$

Nous comparons ces deux expressions avant de les confronter aux résultats expérimentaux. Sur la figure 6.22 est représenté l'écart entre les deux modèles Dubin et Schiffer. Un écart non négligeable entre les deux modèles est observé. L'écart entre ρ_D et ρ_S est minimal autour de 50 ions et vaut alors 15%. Expérimentalement, nous piégeons de 50 à 200 ions dans des chaînes et zigzags. Dans cet intervalle en N, l'écart entre les deux modèles est important. Les résultats des simulations de dynamique moléculaire de Schiffer ont été confirmées expérimentalement pour 10 ions [159]. Nous cherchons à les vérifier expérimentalement pour un grand nombre d'ions. Les équations (6.27) et (6.28) donnent les incertitudes relatives de chaque modèle pour N connu.

$$\frac{\Delta\rho_D}{\rho_D} = \frac{\Delta N}{N}\left(2 + \frac{1}{\ln N}\right) \tag{6.27}$$

$$\frac{\Delta\rho_S}{\rho_S} = 1,73\frac{\Delta N}{N} \tag{6.28}$$

Pour un nombre d'ions typique $N = 100 \pm 3$, on a $\Delta\rho_D/\rho_D = 6,6\%$ et $\Delta\rho_S/\rho_S = 5,2\%$, ce qui est inférieur à l'écart entre les deux estimations. On peut donc espérer distinguer les deux expressions.

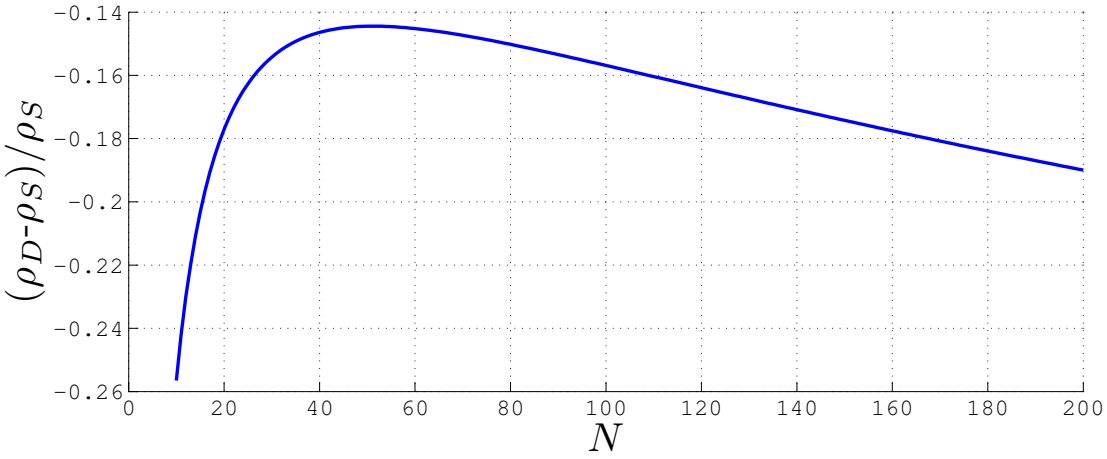

FIGURE 6.22 – Écart relatif entre les transitions des modèles Dubin ρ_D (6.25) et Schiffer ρ_S (6.26).

Étude expérimentale

Notre expérience vise à déterminer cette valeur critique et à la comparer avec les prédictions décrites ci-dessus. Pour cela, des images de nuages sont prises à des tensions V_{RF} ou V_{DC} différentes. L'incertitude liée à la valeur de ρ expérimentale est donnée par :

$$\frac{\Delta\rho_{Exp}}{\rho_{Exp}} = 2\frac{\Delta\omega_z}{\omega_z} + 2\frac{\Delta\omega_x}{\omega_x} \tag{6.29}$$

$\Delta\omega_z/\omega_z = 1,6\%$ et $\Delta\omega_x/\omega_x$ est inférieure à $\pm 1\%$ cela veut dire que $\Delta\rho_{Exp}/\rho_{Exp} < \pm 5\%$. Donc pour une mesure faite avec un nombre d'ions autour de 50, il est normalement possible de distinguer les deux lois fournies par Dubin et Schiffer.

La réalisation de l'expérience est extrêmement difficile du fait que les résultats ne sont pas reproductibles pour un même nuage. Par exemple pour un nuage donné, en faisant varier les tensions V_{RF} dans le sens décroissant, (en gardant V_{DC} fixe) une transition est détectée pour une valeur $V_{RF} = 1700V_{PP}$ (soit ω_x =133kHz). En faisant croître V_{RF} la transition est trouvée pour une valeur très différente de $V_{RF} = 1300V_{PP}$ (100kHz). A première vue on pourrait supposer un phénomène d'hystérésis mais en répétant les mêmes mesures plusieurs fois les résultats pour un sens de variation identique diffèrent à chaque fois. Face à ces observations, nous pensons que le nombre d'ions varie pendant les rampes de tensions de confinement. Pour vérifier cette hypothèse, pendant une série de mesures à différentes V_{RF}, le nombre d'ions est mesuré plusieurs fois. Nous obtenons dans l'ordre $N_1 = 136 \pm 3$, $N_2 = 110 \pm 3$, $N_3 = 98 \pm 2$ et $N_4 = 93 \pm 2$. Nous pensons alors que pendant les variations des tensions RF, certains ions migrent vers les autres minima de potentiel.

Vu les observations faites pendant les tentatives d'identification de la transition ligne-zigzag, nous pensons que les ions visitent d'autres minima de potentiel à l'intérieur du piège. Nous n'avons donc pas pu déterminer expérimentalement le point de transition entre les structures en chaîne et zigzag.

Conclusion

Les études menées dans le piège octupolaire ont montré que loin de la structure creuse attendue par les simulations numérique, nous observons des minima locaux de potentiel. Dans ces minima de potentiel, un petit nuage d'ions froids s'organise en une structure en chaîne ou zigzag, puis dans une structure elliptique pour un nuage plus gros comme dans un potentiel quadrupolaire. Ceci est dû à un défaut sur la géométrie des barreaux qui brise la symétrie octupolaire du potentiel. Les simulations ont montré qu'un défaut de 1% est suffisant pour observer les minima dans le potentiel. Le nombre de minima locaux est lié au nombre de pôles du piège, et les minima sont au nombre de trois pour le piège octupolaire. L'étude du refroidissement laser a montré que grâce à un faible chauffage radio-fréquence dans les minima en piège octupolaire par rapport au piège quadrupolaire, les transitions de phase gaz-liquide sont continues pour des nuages de quelques dizaines d'ions. Les observations ont montré que sous certaines conditions, les ions peuvent être transférés d'un minimum à l'autre. De plus, les puits locaux de potentiel n'ont pas les mêmes profondeurs. Une étude plus poussée de ce phénomène pourrait permettre de transférer de façon contrôlée les ions d'un minimum à l'autre.

Les lois théoriques concernant les fréquences d'oscillation, la morphologie et la densité des ions dans les pièges quadrupolaires sont compatibles avec ceux dans les minima locaux en piège octupolaire. Ces observations nous ont permis de conclure que les fonds des puits locaux de potentiel dans les pièges multipolaires sont harmoniques. Ces travaux sont en cours de rédaction et seront publiés dans les prochaines semaines.

La compensation des défauts dans les pièges multipolaires requiert l'utilisation des électrodes supplémentaires pour l'application des tensions statiques. Cette étude est en cours de réalisation dans notre équipe.

Conclusion et perspectives

Le travail présenté dans ce manuscrit concerne l'étude du piégeage et du transport d'un nuage d'ions dans un piège à plusieurs zones. Cette thèse s'incrit dans le cadre d'un projet visant à étudier les effets physiques pouvant affecter la stabilité d'une horloge atomique micro-onde. Ce projet scientifique est intéressant pour le CNES pour les prochaines générations d'horloges du système Galiléo. À mon arrivée dans l'équipe Confinement d'Ions et Manipulation Laser (CIML) en 2012, un piège double avait été construit s'inspirant des travaux du projet Deep Space Navigation du JPL pour la NASA concernant les horloges à ions mercure. Le piège de Marseille est composé d'une partie quadrupolaire et d'une partie octupolaire montées linéairement et destinées au piégeage des ions calcium. La partie quadrupolaire est scindée en deux zones ; une zone destinée à la création des ions et une zone destinée au piégeage. Les ions sont créés par photo-ionisation et refroidis par laser. Le but de cette thèse était de proposer des protocoles permettant de créer un grand nuage pouvant atteindre 10^7 d'ions, de les garder confinés avec des pertes inférieures à 0,1% et de les transporter entre les trois zones du piège sans perte et sans chauffage.

Au cours des premiers mois de ma thèse, nous avons choisi de caractériser la création des ions par photo-ionisation. L'analyse de cette technique en fonction des paramètres de piégeage et de refroidissement a permis le piégeage de grands nuages de façon reproductible. La méthode est rapide et permet de contrôler le nombre d'ions créés uniquement en choisissant les paramètres expérimentaux. Cependant, à cause de l'extension spatiale du nuage, du flux du jet d'atomes neutres qui perturbe le nuage et de l'intensité limitée du laser de refroidissement, le nombre d'ions que nous sommes capables de piéger de façon quantifié reste limité à 10^5 dans la première partie du piège. Comme notre objectif est la création d'un nuage plus grand, nous avons testé la création en phase liquide avec un flux d'atomes neutres modéré. Cette technique est plus lente mais permet d'avoir un nombre plus important d'ions dans la zone de création. Avec les paramètres de piégeage et de refroidissement accessibles, nous pouvons atteindre $1{,}2.10^5$ ions ce qui reste cependant limité et inférieur aux 10^7 ions visés. L'analyse de cette méthode de création a permis de détecter un facteur qui limite le nombre d'ions créés : le refroidissement laser insuffisant. Augmenter la puissance du laser de refroidissement permettrait d'améliorer le nombre d'ions pouvant être créés et mesurés.

Une fois les paramètres de la création optimisée, nous avons étudié le refroidissement laser des ions dans le piège quadrupolaire. Cette étude a permis d'observer des transitions de phase entre des phases gazeuses et des phases liquides. Dans la littérature, il est établi que la transition de phase gaz-liquide est régie par la compétition entre chauffage radio-fréquence et refroidissement laser et se manifeste par une chute abrupte de signal de fluorescence des ions. Cependant, dans nos expériences, nous avons observé plusieurs chutes de signal avant la formation des structures ordonnées. Nous analysons ce comportement comme

étant un excès de chauffage radio-fréquence ou alors un trop faible refroidissement laser qui entraîne plusieurs points d'équilibre entre chauffage et refroidissement avant la phase liquide. Les ions refroidis en phase liquide ont une densité uniforme et bien connue dont la valeur dépend du potentiel de confinement. Cette propriété offre la possibilité de mesurer le nombre d'ions piégés connaissant le volume du nuage.

Pour quantifier l'efficacité du transport, il est important de connaître le nombre d'ions transportés avec précision. Pour quantifier ce nombre d'ions en piège quadrupolaire, nous avons développé une technique numérique. Dans les piège quadrupolaires linéaires, les ions froids s'organisent dans une structure ellipsoïdale de révolution. La méthode numérique ajuste le contour du nuage (filmé par la caméra ICCD) par une ellipse à partir d'un seuil de signal définissant les bords. À partir des ellipses obtenues, les dimensions du nuage sont extraites. La technique d'analyse des images du nuage d'ions permet de déterminer le volume du nuage avec une précision de l'ordre de 1% et un nombre absolu d'ions à 5%. Cette analyse a permis de mesurer des taux de transport aller-retour avec des incertitudes inférieures à 2% et des taux d'aller simple avec des barres d'erreurs inférieures à 7%. Elle constitue la base pour la suite.

Le transport est effectué en abaissant la barrière de potentiel de confinement longitudinal qui sépare les deux parties du piège suivant une évolution calculée et contrôlée. Cet abaissement de potentiel conduit à un déplacement du fond du puits de potentiel suivant une fonction de type hyperbolique et permet de contrôler la position des ions. La méthode est appliquée pour le transport entre les deux zones quadrupolaires du piège. Les premiers résultats ont montré des taux de transport aller-retour atteignant 100% pour des petits nuages de moins de 2000 ions et des taux de 90% pour des grands nuages d'ions avec des temps de transport de 100μs (par sens de transport) [2] . Ce temps de transport est bien plus faible que les temps de transport adiabatique qui sont de l'ordre de quelques secondes dans notre cas. De plus, l'étude de l'efficacité du transport en fonction de sa durée a montré que pour certaines durées, les ions ne quittent pas le piège initial alors que pour d'autres durées, les ions sont transportés. Pour expliquer ce comportement, nous avons fait des simulations de dynamique moléculaire pour suivre la trajectoire d'un ion unique (qui est une bonne approximation du mouvement du centre de masse du nuage) pendant le transport. Les résultats ont montré que pendant le transport, les ions effectuent des va-et-vient entre les deux zones du piège et finissent dans une partie ou l'autre en fonction de la durée du transport.

Le transport n'est pas équivalent dans les deux sens de transport ; il existe certaines durées pour lesquelles les ions partent de la première zone à la deuxième zone et ne partent pas de la deuxième zone. Cette asymétrie est dûe à l'existence d'un potentiel de contact généré par les dépôts de calcium neutre sur les barreaux du piège dans la zone de création. Ce potentiel décale le fond du puits entre les deux zones et favorise le transport de la zone de création vers la zone de piégeage. Le potentiel de contact est un potentiel statique et peut aussi être reproduit avec des tensions DC. Avec l'évolution de ce potentiel de contact au fur et à mesure des expériences, nous sommes aujourd'hui capables de transporter avec une efficacité de 100% un gros nuage de l'ordre de 10^5 de la zone de création à la zone de piégeage avec une durée de transport de 100μs.

Le protocole de transport est étendu au transport entre le quadrupole et l'octupole.

2. Avec une distance de transport entre les deux zones quadrupolaires du piège de 23mm, cette durée de transport implique une vitesse moyenne des ions de 230m.s^{-1}

Pour optimiser le transport entre le piège quadrupolaire et et le piège octupolaire, une différence de potentiel est créée pour copier l'influence du potentiel de contact entre les deux pièges. Ce potentiel est généré par application d'une tension positive sur les barreaux du piège quadrupolaire qui permet de décaler le fond du puits par rapport à l'octupole. Cela a permis de transporter 100% des petits nuages et 85% des nuages dépassant les 5.10^4 ions du piège quadrupolaire au piège octupolaire avec une durée de transport de 650μs [3].

L'asymétrie de l'efficacité du transport entre les zones du piège générée par le potentiel de contact peut être exploitée pour accumuler les ions dans le piège. Cette technique a été implantée expérimentalement entre les zones du piège. La technique d'accumulation que nous avons mise au point consiste à exploiter le transport asymétrique entre deux zones du piège pour ajouter des ions dans le second piège. On utilise alors les temps de transport pour lesquels le transport de la première zone vers la deuxième est possible mais le transport de la deuxième zone vers la première est impossible. Cette technique permet d'ajouter des ions au nuage existant dans le second piège. Ceci a permis de piéger des grands nuages d'ions de l'ordre de $2,5.10^5$ dans la partie quadrupolaire du piège et dans la partie octupolaire. Les ions transférés dans le piège octupolaire ouvrent la voie à l'étude du refroidissement laser et de l'analyse de cristaux d'ions.

Contrairement à ce qui est observé dans la zone quadrupolaire, les spectres associés au refroidissement laser des ions dans le piège octupolaire ne montrent pas de transition abrupte entre les phases gazeuse et liquide du nuage. Cela permet de mettre en évidence le faible chauffage radio-fréquence des ions dans les minima locaux (due à une raideur de potentiel très faible dans les minima locaux par rapport à la partie quadrupolaire). Dans les multipoles idéaux, les ions froids piégés s'organisent en une structure creuse formée de tubes concentriques. Cependant, dans notre piège octupolaire, avec le refroidissement laser, nous observons trois nuages distincts causés par un potentiel de piégeage admettant des minima locaux. Dans ces minima locaux, un petit nuage d'ions s'organise en une structure en chaîne ou en zigzag et devient elliptique très allongé quand le nombre d'ions augmente. À l'intérieur de ces minima locaux, la morphologie des nuages d'ions obéit aux lois théoriques et numériques des ions en piège quadrupolaire. Cette caractéristique est certainement due à un défaut sur la géométrie des barreaux du piège. Grâce aux simulations numériques, nous avons démontré qu'une erreur d'alignement inférieure à 1% suffit pour expliquer ces observations. Par ailleurs, l'analyse du refroidissement laser des ions dans ces minima locaux montre que dans certaines conditions de piégeage et de refroidissement, un transfert d'ions est possible entre les minima. Si les paramètres de ce type de transfert sont controlés, ceci pourrait être une alternative aux applications physico-chimie pour mélanger des espèces différentes ou en information quantique pour la manipulation de plusieurs q-bits.

Le dispositif expérimental du piège double mis en œuvre en 2011 a donc déjà permis de comprendre plusieurs phénomènes liés au transport et au refroidissement des ions. Beaucoup d'autres études sont encore en attente d'améliorations du dispositif.

Dans une perspective d'observer des structures cristallines de grands nuages attendues par les simulations, nous tentons en ce moment d'exploiter numériquement les possibilités de correction des défauts pour un véritable potentiel octupolaire.

Nos premières tentatives de transport du piège octupolaire vers le piège quadrupolaire

3. Cette durée de transport, avec la distance de transport entre le centre du quadrupole et de l'octupole de 81,5mm donne lieu à une vitesse de 125m.s^{-1}

n'ont pas marché du fait que le potentiel de confinement longitudinal est très faible, à cause de la position des électrodes DC très éloignée du centre de l'octupole. Pour terminer la boucle d'un transport aller-retour des grands nuages d'ions entre les trois zones du piège, il faudra réduire la longueur du piège octupolaire. Sinon il faudra changer les connecteurs électriques de l'octupole qui pour le moment, ne permettent d'appliquer que 2000V au maximum, afin d'appliquer des tensions plus élevées.

Au cours des transports décrits dans ce manuscrit, les ions sont chauffés à cause de la déformation du puits de potentiel qu'on ne peut pas réduire à cause d'un nombre insuffisant d'électrodes DC. Par analogie avec le transport d'ions uniques en micro-piège, on peut supposer que ce chauffage pendant le transport pourrait être réduit en augmentant le nombre d'électrodes DC de contrôle le long du piège.

Le nombre d'ions que nous souhaitons atteindre constituent des valeurs limites du système. Il faudra trouver un compromis pour l'optique de détection entre une bonne résolution et l'observation d'un grand nuage complet. Aujourd'hui, nous observons un nombre maximal de $2,5.10^5$ ions dans le piège. Pour observer les 10^7 ions pouvant être contenus dans les différentes parties du piège il faudrait réduire le grandissement de l'optique de détection. L'observation, perpendiculairement à l'axe du piège, des structures en tubes attendues en piège octupolaire pour les ions froids requiert un système de collection dont la profondeur de champ est de l'ordre de la distance entre ions. Cela permettraient de résoudre spatialement les différents plans image et d'en déduire la morphologie du cristal. Pour la suite il serait donc nécessaire d'avoir un deuxième système de détection avec une bonne résolution permettant d'observer des cristaux d'ions.

Le nombre d'ions piégés reste limité par les paramètres de refroidissement et surtout la puissance du laser de refroidissement à 397nm qui n'est actuellement que de 1,5mW dans chaque bras. Nous pensons que dans la perspective de confiner dix millions d'ions, il sera nécessaire d'augmenter cette puissance. Ceci permettra de décorréler cet effet à d'autres effets limitant le nombre d'ions piégés.

La zone séparant le piège quadrupolaire et la zone octupolaire a une longueur comparable à la taille des zones quadrupolaires. À cause de la discontinuité des tensions radiofréquences la durée de vie des ions dans cette zone est faible. Afin de réduire les pertes d'ions pendant le transport de gros nuages entre les pièges quadrupolaire et octupolaire, il sera primordial de penser une deuxième version du piège en réduisant la taille de la zone d'interface quadrupole-octupole. Ceci permet de diminuer le temps de passage des ions dans cette zone.

La précision et la stabilité de fréquence des horloges optiques basées sur des ions piégés sont affectées par l'effet Doppler du fait que le régime de Lamb Dicke n'est pas satisfait sur une transition optique pour un grand nuage refroidi par laser. Cet effet Doppler peut être éliminé au premier ordre grâce à une condition de résonance à trois photons donnant lieu à un piégeage cohérent de population [88]. Dans l'objectif d'améliorer la précision et la stabilité des horloges dans le domaine térahertz basées sur le piégeage d'un grand nuage d'ions, la raie noire peut être utilisée comme référence de fréquence [160]. Cette raie noire est observée expérimentalement si les trois lasers d'excitation ont une relation de phase constante asservis simultanément sur la même référence de fréquence qui est dans ce cas délivrée par un peigne de fréquence. L'équipe dispose depuis peu d'un peigne de fréquence pour ce projet et les travaux sont en cours de réalisation.

Annexes

Annexe A

Niveaux d'énergies de l'ion calcium

Le schéma des premiers niveaux d'énergie de l'ion calcium est représenté sur la figure A.1. Il est composé de l'état fondamental $4^2S_{1/2}$, des niveaux excités $4^2P_{1/2}$ et $4^2P_{3/2}$ de durées de vie $\tau_{P_{1/2}} = 7,07 \pm 0,07$ns et $\tau_{P_{3/2}} = 6,87 \pm 0,06$ns [83]. Les niveaux d'énergie métastables $3^2D_{3/2}$ et $3^2D_{5/2}$ sont plus bas en énergie que les niveaux excités et ont des durées de vie $\tau_{D_{3/2}} = 1196 \pm 11$ms et $\tau_{D_{5/2}} = 1151 \pm 11$ms [161].

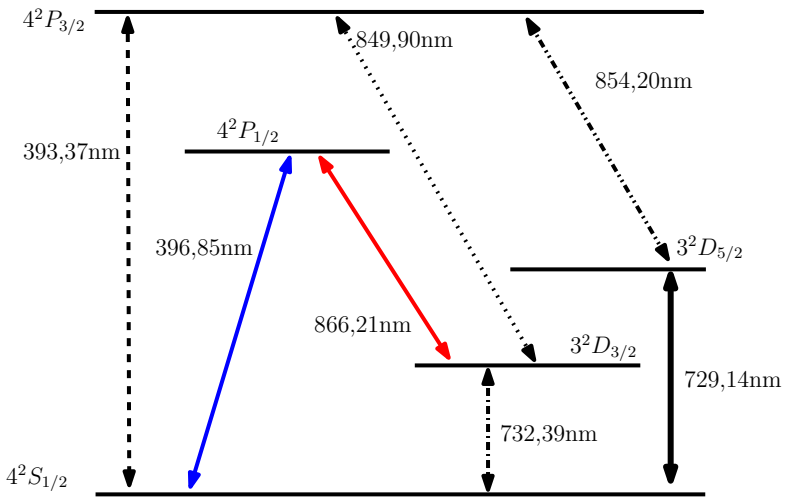

FIGURE A.1 – Schéma des premiers niveaux d'énergie de l'ion calcium et longueurs d'onde des transitions.

Ces niveaux d'énergie métastables sont couplés à l'état fondamental par une transition quadrupolaire électrique. Les niveaux excités sont couplés au niveau fondamental et métastables par des transitions dipolaires électriques. Le niveau $4^2P_{1/2}$ relaxe dans les niveaux $4^2S_{1/2}$ et $3^2D_{3/2}$. Le niveau $4^2P_{3/2}$ relaxe dans les niveaux $4^2S_{1/2}$, $3^2D_{3/2}$ et $3^2D_{5/2}$.

Le rapport de branchement $R(4^2P_{1/2} \rightarrow I)$ de l'état excité $4^2P_{1/2}$ vers l'état I ($I \in \{4^2S_{1/2}, 3^2D_{3/2}\}$) est donné par la relation (A.1) et celui $R(4^2P_{3/2} \rightarrow J)$ de l'état $4^2P_{3/2}$

vers le niveau J $\left(J \in \left\{4^2S_{1/2}, 3^2D_{3/2}, 3^2D_{5/2}\right\}\right)$ par la relation (A.2).

$$R(4^2P_{1/2} \to I) = \frac{P(4^2P_{1/2} \to I)}{\sum_I P(4^2P_{1/2} \to I)} \tag{A.1}$$

$$R(4^2P_{3/2} \to J) = \frac{P(4^2P_{3/2} \to J)}{\sum_J P(4^2P_{3/2} \to J)} \tag{A.2}$$

où $P(A \to B)$ est la probabilité de transition de A vers B. Le tableau A.1 présente les rapports de branchement de l'émission spontanée des deux niveaux excités.

rapport de branchement (%) [89, 94, 95]	
$R(4^2P_{1/2} - 4^2S_{1/2})$	93,8
$R(4^2P_{1/2} - 3^2D_{3/2})$	6,2
$R(4^2P_{3/2} - 4^2S_{1/2})$	93,0
$R(4^2P_{3/2} - 3^2D_{3/2})$	6,3
$R(4^2P_{3/2} - 3^2D_{5/2})$	0,7

TABLE A.1 – Rapport de branchement de l'émission spontanée des états excités

Bibliographie

[1] H. S. Margolis. Frequency standards with trapped ions. *Proceedings International School of Physics Enrico Fermi ; Ion Traps for Tomorrow's Application ; edited by M. Knoop, I. Marzoli and G. Morigi*, pages 139–152, IOS Press ; 2013.

[2] H. Häffner, C. F. Roos, and R. Blatt. Quantum computing with trapped ions. *Physics Reports*, 469(4) :155 – 203, 2008.

[3] G. Werth, J. Alonso, T. Beier, K. Blaum, S. Djekic, H. Häffner, N. Hermanspahn, W. Quint, S. Stahl, J. Verdú, T. Valenzuela, and M. Vogel. Highly charged ions, quantum-electrodynamics, and the electron mass. *International Journal of Mass Spectrometry*, 251(2-3) :152–158, 2006.

[4] P. Blythe, B. Roth, U. Fröhlich, H. Wenz, and S. Schiller. Production of ultracold trapped molecular hydrogen ions. *Phys. Rev. Lett.*, 95 :183002, Oct 2005.

[5] K. Mølhave and M. Drewsen. Formation of translationally cold MgH^+ and MgD^+ molecules in an ion trap. *Phys. Rev. A*, 62 :011401, Jun 2000.

[6] D. Gerlich. Inhomogeneous RF fields : A versatile tool for the study of processes with slow ions. *Adv. Chem. Phys*, 82 :1, 1992.

[7] W. Paul and H. Steinwedel. Ein neues Massenspektrometer ohne Magnetfeld. *Z. Naturforsch.*, A8(448), 1953.

[8] W. Paul, O. Osberghaus, and E. Fischer. *Forschungsberichte des Wirtschaft und Verkehrministeriums Nordrhein Westfalen.* Westdeutscher Verlag, Köln, 1958.

[9] H. G. Dehmelt. Radiofrequency spectroscopy of stored ions I : Storage. *Advances in Atomic and Molecular Physics*, 3(033414), 1967.

[10] G. Gräff, E. Klempt, and G. Werth. Method for measuring the anomalous magnetic moment of free electrons. *Zeitschrift für Physik*, 222(3) :201–207, 1969.

[11] J. D. Prestage, G. J. Dick, and L. Maleki. New ion trap for frequency standard applications. *Journal of Applied Physics*, 66(3), 1989.

[12] R. Wester. Radiofrequency multipole traps : tools for spectroscopy and dynamics of cold molecular ions. *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, 42(15) :154001, 2009.

[13] J. D. Prestage, R. L. Tjoelker, and L. Maleki. Higher pole linear trap for atomic clock applications. *Proc 1999 Joint EFTF/IEEE International Frequency Control Symposium, Besancon, France*, pages 121–124, 1999.

[14] R. H. Dicke. The effect of collisions upon the Doppler width of spectral lines. *Phys. Rev.*, 89 :472–473, Jan 1953.

[15] P. H. Dawson. *Quadrupole Mass Spectrometry and Its Applications.* Amsterdam : Elsevier Scientific Publishing Company, 1976.

[16] T. W. Hänsch and A. L. Schawlow. Cooling of gases by laser radiation. *Opt. Commun*, 13(68), 1975.

[17] D. J. Wineland and H. Dehmelt. Proposed 10^{14} $\delta\nu < \nu$ laser fluorescence spectroscopy on Tl^+ mono-ion oscillator III. *Bull. Am. Phys. Soc.*, 20(637), 1975.

[18] D. J. Wineland, R. E. Drullinger, and F. L. Walls. Radiation-pressure cooling of bound resonant absorbers. *Phys. Rev. Lett.*, 40 :1639–1642, Jun 1978.

[19] W. Neuhauser, M. Hohenstatt, P. Toschek, and H. Dehmelt. Optical-sideband cooling of visible atom cloud confined in a parabolic well. *Phys. Rev. Lett.*, 41 :233–236, Jul 1978.

[20] W. Neuhauser, M. Hohenstatt, P. E. Toschek, and H. Dehmelt. Localized visible Ba^+ mono-ion oscillator. *Phys. Rev. A*, 22 :1137–1140, Sep 1980.

[21] D. J. Wineland, J. C. Bergquist, W. M. Itano, J. J. Bollinger, and C. H. Manney. Atomic-ion Coulomb clusters in an ion trap. *Phys. Rev. Lett.*, 59 :2935–2938, Dec 1987.

[22] 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, Dec 1987.

[23] D. H. E. Dubin and T. M. O'Neil. Trapped nonneutral plasmas, liquids, and crystals (the thermal equilibrium states). *Rev. Mod. Phys.*, 71 :87–172, Jan 1999.

[24] L. Turner. Collective effects on equilibria of trapped charged plasmas. *Physics of Fluids*, 30(10), 1987.

[25] G. Birkl, S. Kassner, and H. Walther. Multiple-shell structures of laser-cooled $^{24}Mg^+$ ions in a quadrupole storage ring. *Nature*, 357(6376) :310–313, 1992.

[26] K. Okada, K. Yasuda, T. Takayanagi, M. Wada, H. A. Schuessler, and S. Ohtani. Crystallization of Ca^+ ions in a linear RF octupole ion trap. *Phys. Rev. A*, 75 :033409, Mars 2007.

[27] M. Marciante, C. Champenois, A. Calisti, and M. Knoop. Structural phase transitions in multipole traps. *Applied Physics B*, 107(4) :1117–1123, 2012.

[28] C. Champenois, M. Marciante, J. Pedregosa-Gutierrez, M. Houssin, M. Knoop, and M. Kajita. Ion ring in a linear multipole trap for optical frequency metrology. *Phys. Rev. A*, 81 :043410, Apr 2010.

[29] D.W. Allan. Statistics of atomic frequency standards. *Proceedings of the IEEE*, 54(2) :221–230, Feb 1966.

[30] H.G. Dehmelt. Monoion oscillator as potential ultimate laser frequency standard. *Instrumentation and Measurement, IEEE Transactions on*, IM-31(2) :83–87, June 1982.

[31] C. W. Chou, D. B. Hume, J. C. J. Koelemeij, D. J. Wineland, and T. Rosenband. Frequency comparison of two high-accuracy Al^+ optical clocks. *Phys. Rev. Lett.*, 104 :070802, Feb 2010.

[32] N. Huntemann, C. Sanner, B. Lipphardt, C. Tamm, and E. Peik. Reported at the European Frequency and Time Forum, 2014.

[33] F. Vedel, M. Vedel, M. Knoop, C. Champenois, and M. Houssin. étude bibliographique, tâche n°1. *CNES (2007)*, Contrat n° 60 180/00, 9 octobre 2006.

[34] F. Vedel, C. Champenois, M. Houssin, M. Knoop, and M. Vedel. Cahier de charge fonctionnel, tâche n°2. *CNES (2007)*, Contrat n° 60 180/00, 9 octobre 2006.

[35] L. S. Cutler, C. A. Flory, R. P. Giffard, and M. D. McGuire. Doppler effect due to thermal macromotion of ion in an RF quadrupole trap. *Appl. Phys. B*, 39(251), 1986.

[36] J.D. Prestage and G.L. Weaver. Atomic clocks and oscillators for deep-space navigation and radio science. *Proceedings of the IEEE*, 95(11) :2235–2247, Nov 2007.

[37] P. T. H. Fisk. Trapped-ion and trapped-atom microwave frequency standards. *Rep. Prog. Phys.*, 60 :761–817, 1997.

[38] J. Prestage, S. Chung, T. Le, M. Beach, L. Maleki, and R. Tjoelker. *Proceedings of 35th Annual Precise Time Interval (PTTI) Meeting*, 2003.

[39] C. Champenois, M. Houssin, M. Knoop, J. Pedregosa, and F. Vedel. Rapport final. *CNES (2011)*, Contrat n° 81915/00, 17 octobre 2008.

[40] K. Okada, T. Takayanagi, M. Wada, S. Ohtani, and H. A. Schuessler. Observation of ion Coulomb crystals in a cryogenic linear octupole RF ion trap. *Phys. Rev. A*, 80 :043405, Oct 2009.

[41] D. Hanneke, S. Fogwell, and G. Gabrielse. New measurement of the electron magnetic moment and the fine structure constant. *Phys. Rev. Lett.*, 100 :120801, Mar 2008.

[42] C. M. Surko. *Accumulation, storage and manipulation of large numbers of positrons in traps I- Basics.* Physics with trapped charged particules, edited by M. Knoop, and N. Madsen and R. C. Thomson ; Imperial College Press,London, Lectures from the les Houches Winter School 2014. p83-128.

[43] J. I. Cirac and P. Zoller. Quantum computation with cold trapped ions. *Phys. Rev. Lett.*, 74 :4091–4094, May 1995.

[44] William D. Phillips. Nobel lecture : Laser cooling and trapping of neutral atoms. *Rev. Mod. Phys.*, 70 :721–741, Jul 1998.

[45] Steven Chu. Nobel lecture : The manipulation of neutral particles. *Rev. Mod. Phys.*, 70 :685–706, Jul 1998.

[46] M. Saffman, T. G. Walker, and K. Mølmer. Quantum information with Rydberg atoms. *Rev. Mod. Phys.*, 82 :2313–2363, Aug 2010.

[47] H. Katori, M. Takamoto, V. G. Pal'chikov, and V. D. Ovsiannikov. Ultrastable optical clock with neutral atoms in an engineered light shift trap. *Phys. Rev. Lett.*, 91 :173005, Oct 2003.

[48] Wolfgang Paul. Electromagnetic traps for charged and neutral particles. *Rev. Mod. Phys.*, 62 :531–540, Jul 1990.

[49] M. Knoop. Étude spectroscopique du doublet métastable 3D de l'ion Ca^+ dans un piège de Paul en présence de collisions. *Thèse de doctorat, Université de Provence*, 1994.

[50] R. Campbell. *Théorie générale de l'équation de Mathieu.* Masson, Paris, 1955.

[51] *Handbook of mathematical functions.* edited by M. Abramowitch and I. A. Stegun ; Drover Publication, Inc., New York ; 1965.

[52] P. K. Ghosh. *Ion Traps.* Clarendon, Oxford, 1995.

[53] L. Ruby. Application of the Mathieu equation. *Am. J. Phys.*, 64(39), 1996.

[54] R. Blümel, J. M. Chen, E. Peik, W. Quint, W. Schleich, Y. R. Shen, and H. Walther. Phase transitions of stored laser-cooled ions. *Nature*, 334 :309–313, July 1988.

[55] R. Blümel, C. Kappler, W. Quint, and H. Walther. Chaos and order of laser-cooled ions in a Paul trap. *Phys. Rev. A*, 40 :808–823, Jul 1989.

[56] J. D. Prestage, A. Williams, L. Maleki, M. J. Djomehri, and E. Harabetian. Dynamics of charged particles in a Paul radio-frequency quadrupole trap. *Phys. Rev. Lett.*, 66 :2964–2967, Jun 1991.

[57] V. L. Ryjkov, X. Z. Zhao, and H. A. Schuessler. Simulations of the RF heating rates in a linear quadrupole ion trap. *Phys. Rev. A*, 71 :033414, March 2005.

[58] M. Drewsen, C. Brodersen, L. Hornekær, J. S. Hangst, and J. P. Schifffer. Large ion crystals in a linear Paul trap. *Phys. Rev. Lett.*, 81 :2878–2881, Oct 1998.

[59] E. Teloy and D. Gerlich. Integral cross section for ion-molecule reactions : I. the guided beam technique. *Chem. Phys*, 4 :417–27, 1974.

[60] J. Mikosch, U. Frühling, S. Trippel, R. Otto, P. Hlavenka, D. Schwalm, M. Weidemüller, and R. Wester. Evaporation of trapped anions studied with a 22-pole ion trap in tandem time-of-flight configuration. *Phys. Rev. A*, 78 :023402, Aug 2008.

[61] J. Mikosch, U. Frühling, S. Trippel, D. Schwalm, M. Weidemüller, and R. Wester. Evaporation of buffer-gas-thermalized anions out of a multipole RF ion trap. *Phys. Rev. Lett.*, 98 :223001, May 2007.

[62] J. D. Prestage, R. L. Tjoelker, and L. Maleki. Mercury-ion based on a linear multipole ion trap. *TMO Progress Report*, 42 :143, 2000.

[63] E. Yurtsever, E. D. Onal, and F. Calvo. Structure and dynamics of ion clusters in linear octupole traps : Phase diagrams, chirality, and melting mechanisms. *Phys. Rev. A*, 83 :053427, May 2011.

[64] F. Cartarius, C. Cormick, and G. Morigi. Stability and dynamics of ion rings in linear multipole traps. *Phys. Rev. A*, 87 :013425, Jan 2013.

[65] Marc Baus and Jean-Pierre Hansen. Statistical mechanics of simple Coulomb systems. *Physics Reports*, 59(1) :1 – 94, 1980.

[66] Jean Pierre Hansen. Statistical mechanics of dense ionized matter. I. Equilibrium properties of the classical one-component plasma. *Phys. Rev. A*, 8 :3096–3109, Dec 1973.

[67] E. L. Pollock and J. P. Hansen. Statistical mechanics of dense ionized matter. II. Equilibrium properties and melting transition of the crystallized one-component plasma. *Phys. Rev. A*, 8 :3110–3122, Dec 1973.

[68] W. L. Slattery, G. D. Doolen, and H. E. DeWitt. Improved equation of state for the classical one-component plasma. *Phys. Rev. A*, 21 :2087–2095, Jun 1980.

[69] R. T. Farouki and S. Hamaguchi. Thermal energy of the crystalline one-component plasma from dynamical simulations. *Phys. Rev. E*, 47 :4330–4336, Jun 1993.

[70] Setsuo Ichimaru. Strongly coupled plasmas : high-density classical plasmas and degenerate electron liquids. *Rev. Mod. Phys.*, 54 :1017–1059, Oct 1982.

[71] R. C. Davidson. Theory of non-neutral plasma. *Frontiers in Phys.*, Edited by W. A. Benjamin ; 1974.

[72] C. Champenois. About the dynamics and thermodynamics of trapped ions. *J. Phys. B. At. Mol. Opt. Phys.*, 42 :154002, 2009.

[73] S. A. Prasad and T. M. O'Neil. Finite length thermal equilibria of a pure electron plasma column. *Physics of Fluids*, 22(2), 1979.

[74] T. M. O'Neil and C. F. Driscoll. Transport to thermal equilibrium of pure electron plasma. *Phys. Fluid*, 22(266), 1979.

[75] F. Vedel and J. André. Influence of space charge on the computed statistical properties of stored ions cooled by a buffer gas in a quadrupole RF trap. *Phys. Rev. A*, 29 :2098–2101, Apr 1984.

[76] M. Marciante, C. Champenois, A. Calisti, J. Pedregosa-Gutierrez, and M. Knoop. Ion dynamics in a linear radio-frequency trap with a single cooling laser. *Phys. Rev. A*, 82 :033406, Sep 2010.

[77] D. J. Wineland and W. M. Itano. Laser cooling of atoms. *Phys. Rev. A*, 20 :1521–1540, Oct 1979.

[78] R. Blümel. Cooling-induced melting of ion crystals in a Paul trap. *Phys. Rev. A*, 51 :620–624, Jan 1995.

[79] G. Morigi and J. Eschner. Doppler cooling of a Coulomb crystal. *Phys. Rev. A*, 64 :063407, Nov 2001.

[80] R. G. DeVoe, J. Hoffnagle, and R. G. Brewer. Role of laser damping in trapped ion crystals. *Phys. Rev. A*, 39 :4362–4365, May 1989.

[81] G. C. Hegerfeldt and A. W. Vogt. Laser cooling in ion traps : Noncooling of a transverse component. *Phys. Rev. A*, 41 :2610–2613, Mar 1990.

[82] C. Cohen-Tannoudji, J. Dupont-Roc, and G. Grynberg. *Processus d'interaction entre photons et atomes.* EDP sciences, 1996.

[83] R. N. Gosselin, E. H. Pinnington, and W. Ansbacher. Measurement of the lifetimes of the $4p$ levels in Ca II using laser excitation of a fast beam. *Phys. Rev. A*, 38 :4887–4890, Nov 1988.

[84] A. Aspect, J. Dalibard, A. Heidmann, C. Salomon, and C. Cohen-Tannoudji. Cooling atoms with stimulated emission. *Phys. Rev. Lett.*, 57 :1688–1691, Oct 1986.

[85] G. Alzetta, A. Gozzini, M. Moi, and G. Orriols. *Nuovo Cimento B*, 36(5), 1976.

[86] E. Arimondo. Coherent population trapping in laser spectroscopy. In E. Wolf, editor, *Progress in Optics*, volume XXXV, chapter V, page 258. Elsevier Science, 1996.

[87] C. Cohen-Tannoudji, J. Dupont-Roc, and G. Grynberg. Processus d'interaction entre photons et atomes. *EDP Sciences*, 1976.

[88] C. Champenois, G. Morigi, and J. Eschner. Qantum coherence and population trapping in three-photon processes. *Physical Review A*, 74(053404) :1–9, 2006.

[89] M. Ramm, T. Pruttivarasin, M. Kokish, I. Talukdar, and H. Häffner. Precision measurement method for branching fractions of excited $P_{1/2}$ states applied to $^{40}Ca^{+}$. *Phys. Rev. Lett.*, 111 :023004, Jul 2013.

[90] J. Vanier. Atomic clocks based on coherent population trapping : a review. *Applied Physics B*, 81(4) :421–442, 2005.

[91] J. R. Kuklinski, U. Gaubatz, F. T. Hioe, and K. Bergmann. Adiabatic population transfer in a three-level system driven by delayed laser pulses. *Phys. Rev. A*, 40 :6741–6744, Dec 1989.

[92] M R Kamsap, T B Ekogo, J Pedregosa-Gutierrez, G Hagel, M Houssin, O Morizot, M Knoop, and C Champenois. Coherent internal state transfer by a three-photon STIRAP-like scheme for many-atom samples. *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, 46(14) :145502, 2013.

[93] D. T. C. Allcock, J. A. Sherman, D. N. Stacey, A. H. Burrell, M. J. Curtis, G. Imreh, N. M. Linke, D. J. Szwer, S. C. Webster, A. M. Steane, and D M Lucas. Implementation of a symmetric surface-electrode ion trap with field compensation using a modulated Raman effect. *New Journal of Physics*, 12(5) :053026, 2010.

[94] Nist atomic spectra database lines form. *www.physics.nist.gov*.

[95] R. Gerritsma, G. Kirchmair , F. Zähringer, J. Benhelm , R. Blatt , and C. F. Roos . Precision measurement of the branching fractions of the 4p 2P3/2 decay of Ca II. *Eur. Phys. J. D*, 50(1) :13–19, 2008.

[96] C. Champenois. Des atomes chargés et des photons : quelques phénomènes observables en piège radio-fréquence. *HDR Université de Provence-Aix-Marseille 1*, 2010.

[97] J. Pedregosa, C. Champenois, M. Houssin, and M. Knoop. Anharmonic contributions in real RF linear quadrupole traps. *International Journal of Mass Spectrometry*, 290(2-3) :100 – 105, 2010.

[98] A.J. Reuben, G.B. Smith, P. Moses, A.V. Vagov, M.D. Woods, D.B. Gordon, and R.W. Munn. Ion trajectories in exactly determined quadrupole fields. *International Journal of Mass Spectrometry and Ion Processes*, 154(1-2) :43 – 59, 1996.

[99] V.V.K Rama Rao and Amit Bhutani. Electric hexapoles and octopoles with optimized circular section rods. *International Journal of Mass Spectrometry*, 202(1-3) :31 – 36, 2000.

[100] http ://www.simion.com.

[101] J. Pedregosa-Gutierrez, D. Guyomarc'h, M. Vedel, C. Champenois, and M. Knoop. Computer-controlled high-precision Michelson wavemeter. *Eur. Phys. J. Plus*, 129(203), 2014.

[102] Carl E. Wieman and Leo Hollberg. Using diode lasers for atomic physics. *Review of Scientific Instruments*, 62(1), 1991.

[103] G. P. Agrawal and C. H. Henry. Modulation performance of semiconductor laser couple to an external high-q resonator. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 24(2), 1988.

[104] M. Houssin, B. Fermigier, and M. Desaintfuscien. Simulation of the frequency behavior of external-cavity semiconductor lasers. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 39(7) :833–837, July 2003.

[105] R. G. DeVoe and C. Kurtsiefer. Experimental study of anomalous heating and trap instabilities in a microscopic ^{137}Ba ion trap. *Phys. Rev. A*, 65 :063407, Jun 2002.

[106] S. Gulde, D. Rotter, P. Barton, F. Schmidt-Kaler, R. Blatt, and W. Hogervorst. Simple and efficient photo-ionization loading of ions for precision ion-trapping experiments. *Applied Physics B*, 73(8) :861–863, 2001.

[107] N. Kjaergaard, L. Hornekaer, A.M. Thommesen, Z. Videsen, and M. Drewsen. Isotope selective loading of an ion trap using resonance-enhanced two-photon ionization. *Applied Physics B*, 71(2) :207–210, 2000.

[108] 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, Jan 2004.

[109] J Mitroy. Energy levels and oscillator strengths for neutral calcium. *J. Phys B : At. Mol. Opt. Phys.*, 26(3703), 1993.

[110] N. F. Ramsey. *Molecular Beams.* Clarendon Press, 1956.

[111] R. C. Weast and M. J. Astle. *Handbook of Chemistry and Physics.* 1980.

[112] W. Nörtershäuser, N. Trautmann, K. Wendt, and B.A. Bushaw. Isotope shifts and hyperfine structure in the 4s2 1s0 → 4s4p1p1 → 4s4d 1d2 transitions of stable calcium isotopes and calcium-41. *Spectrochimica Acta Part B : Atomic Spectroscopy*, 53(5) :709 – 721, 1998.

[113] C. Lisowski, M. Knoop, C. Champenois, G. Hagel, M. Vedel, and F. Vedel. Dark resonances as a probe for the motional state of a single ion. *Applied Physics B*, 81(1) :5–12, 2005.

[114] J. Daligault and S. D. Baalrud. Plasma transport theory spanning weak to strong coupling. *Conference proceedings ; Non-neutral plasma Physics IX ; 11th International workshop on non-neutral plasmas ; edited by H. Himura, A. Sanpei and Y. Soga*, page 040002, AIP Publishing, Melville, New York, 2015.

[115] J. J. Bollinger. Private communication.

[116] J. P. Schiffer, M. Drewsen, J. S. Hangst, and L. Hornekær. Temperature, ordering, and equilibrium with time-dependent confining forces. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 97(20) :10697–10700, 2000.

[117] F. Vedel and M. Vedel. Nonlinear effects in the detection of stored ions. *Phys. Rev. A*, 41 :2348–2351, March 1990.

[118] R. Alheit, S. Kleineidam, F. Vedel, M. Vedel, and G. Werth. Higher order nonlinear resonances in a Paul trap. *International Journal of Mass Spectrometry and Ion Processes*, 154(3) :155 – 169, 1996.

[119] 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(1) :105–111, 2001.

[120] M. A. N. Razvi, X. Z. Chu, R. Alheit, G. Werth, and R. Blümel. Fractional frequency collective parametric resonances of an ion cloud in a Paul trap. *Phys. Rev. A*, 58 :R34–R37, Jul 1998.

[121] L. D. Landau and E. M. Lifshitz. *Mechanics.* Pergamon,Oxford, 1960.

[122] B. Roth, P. Blythe, and S. Schiller. Motional resonance coupling in cold multispecies Coulomb crystals. *Phys. Rev. A*, 75 :023402, Feb 2007.

[123] Y. S. Nam, E. B. Jones, and R. Blümel. Analytical mean-field scaling theory of radio-frequency heating in a Paul trap. *Phys. Rev. A*, 90 :013402, Jul 2014.

[124] http ://www.mathworks.com.

[125] L. Hornekær, N. Kjærgaard, A. M. Thommesen, and M. Drewsen. Structural properties of two-component Coulomb crystals in linear Paul traps. *Phys. Rev. Lett.*, 86 :1994–1997, March 2001.

[126] M. W. Senko, C. L. Hendrickson, M. R. Emmett, S. D.-H. Shi, and A. G. Marshall. External accumulation of ions for enhanced electrospray ionization Fourier transform ion cyclotron resonance mass spectrometry. *Journal of the American Society for Mass Spectrometry*, 8(9) :970 – 976, 1997.

[127] F. Herfurth. Segmented linear RFQ traps for nuclear physics. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B : Beam Interactions with Materials and Atoms*, 204 :587 – 591, 2003.

[128] D. Hucul, M. Yeo, W. K. Hensinger, J. Rabchuk, S. Olmschenk, and C. Monroe. On the transport of atomic ions in linear and multidimensional ion trap arrays. *Quantum Information and Computation*, 8 :0501 - 0578, 2008.

[129] R. Reichle, D. Leibfried, R. B. Blakestad, J. Britton, J. D. Jost, E. Knill, C. Langer, R. Ozeri, S. Seidelin, and D. J. Wineland. Transport dynamics of single ions in segmented microstructured Paul trap arrays. *Fortschr. Phys.*, 54 :666 - 685, 2006.

[130] S. Schulz, U. Poschinger, K. Singer, and F. Schmidt-Kaler. Optimization of segmented linear Paul traps and transport of stored particles. *Fortschr. Phys.*, 54(8-10) :648–665, 2006.

[131] A. Couvert, T. Kawalec, G. Reinaudi, and D. Guéry-Odelin. Optimal transport of ultracold atoms in the non-adiabatic regime. *Europhysics Letters*, 83(1) :13001, 2008.

[132] J.-F. Schaff, P. Capuzzi, G. Labeyrie, and P. Vignolo. Shortcuts to adiabaticity for trapped ultracold gases. *New Journal of Physics*, 13(11) :113017, 2011.

[133] G Huber, T Deuschle, W Schnitzler, R Reichle, K Singer, and F Schmidt-Kaler. Transport of ions in a segmented linear Paul trap in printed-circuit-board technology. *New Journal of Physics*, 10(1) :013004, 2008.

[134] A. Walther, F. Ziesel, T. Ruster, S. T. Dawkins, K. Ott, M. Hettrich, K. Singer, F. Schmidt-Kaler, and U. Poschinger. Controlling fast transport of cold trapped ions. *Phys. Rev. Lett.*, 109 :080501, Aug 2012.

[135] M. Palmero, E. Torrontegui, D. Guéry-Odelin, and J. G. Muga. Fast transport of two ions in an anharmonic trap. *Phys. Rev. A*, 88 :053423, Nov 2013.

[136] K. Wright, J. M. Amini, D. L. Faircloth, C. Volin, S. C. Doret, H. Hayden, C-S Pai, D. W. Landgren, D. Denison, T. Killian, R. E. Slusher, and A. W. Harter. Reliable transport through a microfabricated x -junction surface-electrode ion trap. *New Journal of Physics*, 15(3) :033004, 2013.

[137] J. Pedregosa-Gutierrez, C. Champenois, M. R. Kamsap, and M. Knoop. Ion transport in macroscopic RF linear traps. *International Journal of Mass Spectrometry*, 381-382 :33 – 40, 2015.

[138] K. Singer, U. Poschinger, M. Murphy, P. Ivanov, F. Ziesel, T. Calarco, and F. Schmidt-Kaler. *Colloquium* : Trapped ions as quantum bits : Essential numerical tools. *Rev. Mod. Phys.*, 82 :2609–2632, Sep 2010.

[139] E. Torrontegui, S. Ibáñez, Xi Chen, A. Ruschhaupt, D. Guéry-Odelin, and J. G. Muga. Fast atomic transport without vibrational heating. *Phys. Rev. A*, 83 :013415, Jan 2011.

[140] K. Protassov. *Analyse statistique des données expérimentales*. EDP sciences, 2002.

[141] H A Fürst, M H Goerz, U G Poschinger, M Murphy, S Montangero, T Calarco, F Schmidt-Kaler, K Singer, and C P Koch. Controlling the transport of an ion : classical and quantum mechanical solutions. *New Journal of Physics*, 16(7) :075007, 2014.

[142] M. R. Kamsap, J. Pedregosa-Gutierrez, C. Champenois, D. Guyomarc'h, M. Houssin, and M. Knoop. Fast and efficient transport of large ion clouds. *Phys. Rev. A*, 92 :043416, Oct 2015.

[143] B. Dubost. Interaction lumière matière avec des ensembles atomiques. *Thèse de doctorat, Université Paris Diderot, Paris 7*, 2012, page : 49.

[144] C. Champenois, M. Houssin, M. Kamsap, M. Knoop, and J. Pedregosa Gutierrez. Method of accumulating ions. *European patent pending*, EP15159063, March 2015.

[145] M. R. Kamsap, C. Champenois, J. Pedregosa-Gutierrez, M. Houssin, and M. Knoop. Fast accumulation of ions in a dual trap. *Europhysics Letters*, 110(6) :63002, 2015.

[146] 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 :4714–4717, Dec 1995.

[147] O. Asvany, O. Ricken, H. S. P. Müller, M. C. Wiedner, T. F. Giesen, and S. Schlemmer. High-resolution rotational spectroscopy in a cold ion trap : H_2D^+ and D_2H^+. *Phys. Rev. Lett.*, 100 :233004, Jun 2008.

[148] L. Maleki and J. D. Prestage. *Lect. Notes. Phys*, 404 :579, 2000.

[149] L. Maleki and J. Prestage. Search for new physics with atomic clocks. In S. G. Karshenboim and E. Peik, editors, *Astrophysics, Clocks and Fundamental Constants*, volume 648 of *Lecture Notes in Physics*, pages 331–341. Springer Berlin Heidelberg, 2004.

[150] F. Calvo, C. Champenois, and E. Yurtsever. Crystallization of ion clouds in octupole traps : Structural transitions, core melting, and scaling laws. *Phys. Rev. A*, 80 :063401, Dec 2009.

[151] M. Marciante. Dynamique d'ions en pièges radio-fréquences. *Thèse de doctorat, Université de Provence- Aix-Marseille I*, 2011.

[152] R. Otto, P. Hlavenka, S. Trippel, J. Mikosch, K. Singer, M. Weidemüller, and R. Wester. How can a 22-pole ion trap exhibit ten local minima in the effective potential ? *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, 42(15) :154007, 2009.

[153] D. H. E. Dubin. Theory of structural phase transitions in a trapped Coulomb crystal. *Phys. Rev. Lett.*, 71 :2753–2756, Oct 1993.

[154] G. Morigi and S. Fishman. Dynamics of an ion chain in a harmonic potential. *Phys. Rev. E*, 70 :066141, Dec 2004.

[155] D. F. V. James. Quantum dynamics of cold trapped ions with application to quantum computer. *Applied Physics B Laser and Optics*, 66 :181–190, 1998.

[156] F. Reif. *Fundamentals of Statistical and Thermal Physics*. Waveland Press, INC. ; 1965.

[157] Hiroo Totsuji and Jean-Louis Barrat. Structure of a nonneutral classical plasma in a magnetic field. *Phys. Rev. Lett.*, 60 :2484–2487, Jun 1988.

[158] J. P. Schiffer. Phase transitions in anisotropically confined ionic crystals. *Phys. Rev. Lett.*, 70 :818–821, Feb 1993.

[159] D. G. Enzer, M. M. Schauer, J. J. Gomez, M. S. Gulley, M. H. Holzscheiter, P. G. Kwiat, S. K. Lamoreaux, C. G. Peterson, V. D. Sandberg, D. Tupa, A. G. White, R. J. Hughes, and D. F. V. James. Observation of power-law scaling for phase transitions in linear trapped ion crystals. *Phys. Rev. Lett.*, 85 :2466–2469, Sep 2000.

[160] C. Champenois, G. Hagel, M. Houssin, M. Knoop, C. Zumsteg, and F. Vedel. Terahertz frequency standard based on three-photon coherent population trapping. *Phys. Rev. Lett.*, 99 :013001, Jul 2007.

[161] 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(2) :163–171, 2004.