



离子存储、冷却及在量子频标中的应用

王正博^{①③}, 王时光^{①③}, 张建伟^{②③}, 王力军^{①②③*}

① 清华大学物理系, 北京 100084;

② 精密仪器与机械学系, 北京 100084;

③ 中国计量科学研究院-清华大学精密测量联合实验室, 北京 100084

*联系人, E-mail: lwan@mail.tsinghua.edu.cn

收稿日期: 2011-01-14; 接受日期: 2011-01-26

国家重点基础研究发展计划资助项目(编号: 2010CB922900)

摘要 首先回顾了量子频标中离子存储和冷却的基本原理, 介绍了用分子动力学计算得到的十二极阱中离子的分布和加热速率的结果. 然后在此结果基础上, 计算了十二极阱射频加热效应和离子微运动对频标造成的影响. 相比传统的四极阱, 一方面十二极阱可以降低离子云的加热速率, 有利于利用 Ramsey 脉冲进一步压窄离子谱线线宽; 另外, 十二极阱内势场中部平坦边缘陡峭, 可有效降低离子微运动带来的二级多普勒效应, 有利于提高离子频标的准确度和稳定性. 该文还介绍了美国 JPL 实验室高稳定性、高准确度、 $^{199}\text{Hg}^+$ 离子钟的工作, 以及我们正在开展的基于多极阱中激光冷却的 $^{113}\text{Cd}^+$ 离子的高稳定性量子频标的工作.

关键词 离子阱, 激光冷却, 量子频标

PACS: 39.25.+k, 95.55.Sh, 43.58.Hp

量子频率标准利用微观粒子(原子、分子或两者的离子)的量子跃迁来实现对频率的精确和稳定的控制. 为了达到高精度和高稳定性, 需要将微观粒子与外界环境相隔离, 并对其运动加以约束. 对于离子频标而言, 这便是离子的囚禁和冷却所要达到的目的.

1953 年, Paul^[1]报道了世界上首个离子阱实验. 这种装置利用随时间变化的电场在空间中产生等效势能最低点, 从而实现对带电粒子的在空间位置的束缚. 但是离子阱中被约束的带电粒子一般仍具有较大的动能, 不利于对其进行研究和应用. 例如在精密光谱和量子频标的研究中, 离子的高速运动产生的多普勒效应会造成谱线的展宽, 而囚禁时间过短

则影响使用 Ramsey 方法对谱线线宽进一步压窄. 为了获得较低的离子温度, 起初人们采用缓冲气体原子与离子的碰撞的方式降低被约束离子的动能^[2]. 20 世纪 70 年代出现的激光冷却技术是获得极低温物质的有力手段^[3]. 利用这一冷却技术可以使离子阱中的离子进一步冷却至 mK 乃至 μK 的温度范围, 从而开展更精密的测量和研究. 离子阱技术结合激光冷却技术现已成为原子分子物理领域的重要研究手段. 直到今天, 离子的存储和冷却技术仍然具有非常强盛的活力, 在精密光谱、量子计算和量子模拟、质谱分析以及本文着重介绍的量子频标领域有着重要的应用.

引用格式: 王正博, 王时光, 张建伟, 等. 离子存储、冷却及在量子频标中的应用. 中国科学: 物理学 力学 天文学, 2011, 41: 350–355

Wang Z B, Wang S G, Zhang J W, et al. Ion storage, cooling and applications in quantum frequency standards (in Chinese). Sci Sin Phys Mech Astron, 2011, 41: 350–355, doi: 10.1360/132011-58

1 离子存储和冷却

1.1 离子阱

应用于量子频标研究中所用到的离子阱主要有两种基本构型: 线形阱和球形阱^[4], 如图 1 所示. 线型阱由 4 根或更多的(偶数根)柱状电极构成, 通过在相邻电极上加上相反的交变电势实现对于离子在 x - y 平面的约束, 并在两端电极各加静电势, 约束离子 z 方向的运动. 而球形阱可以看做线形阱 z 轴弯曲后首尾相接并去掉内部多余导体而成, 采用圆形电极, 不需要端电极. 这两种构型的离子阱具有类似的数学描述. 简明起见, 考虑二维多极阱的电势场为

$$V(x, y) = \frac{1}{r_0^k} \sum_{i=0}^k x^{k-i} y^i [U_0 + V_{\text{RF}} \cos \Omega t], \quad (1)$$

r_0 为阱的半径, U_0 为所加电势的直流成分, V_{RF} 和 Ω 分别为交流成分的电压和圆频率. 当 $k=2$ 时, 这一表达式描述了最为常见的四极阱内部的电势, $k>2$ 时描述了多极阱内的电势. 虽然一般情况下, 阱中所存储的离子是微观尺度的粒子, 但是其运动轨迹及稳定性仍可以通过经典力学中的牛顿方程进行分析.

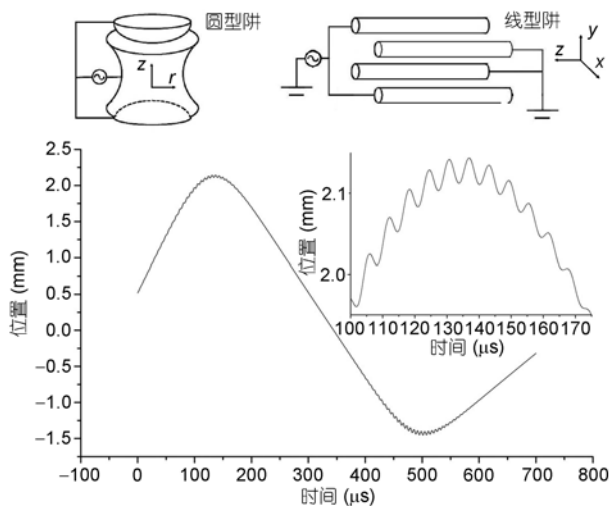


图 1 线型和圆型离子阱及阱内离子的运动示意图

Figure 1 Linear and cylindrical ion traps and an ion trajectory example.

离子的运动方程经过简单的数学变换可以化为 Mathieu 方程, 其解的稳定性可以通过两个参量 $a = \frac{8QU_0}{m\Omega^2 r_0^2}$ 和 $q = \frac{4QV_{\text{RF}}}{m\Omega^2 r_0^2}$ 在稳定性图中的位置是否

处于稳定区域内进行判断, 其中 Q 和 m 分别是离子的电量和质量. 例如, 对于 $a=0$ 的情况, $q < 0.91$ 属于稳定约束区域. 对于多粒子以及多极阱的情况, 运动方程的解析解难以获得. 这些情况下多采用数值方法, 如分子动力学方法和蒙特卡洛方法进行分析^[5-7].

通过对单离子在多极阱中运动的数值计算总结的经验性的稳定性约束的判据为

$$\eta = \frac{2Q|\Delta E_0|}{m\Omega^2} = k(k-1) \frac{QU_0}{m\Omega^2 r_0^2} \left(\frac{r}{r_0} \right)^{k-2} \leq 0.03, \quad (2)$$

由此可以得到离子运动范围的最大半径为

$$R_{\text{max}} = r_0 \left(\frac{0.3}{k(k-1)} \frac{m\Omega^2 r_0^2}{QU_0} \right)^{\frac{1}{k-2}}, \quad (3)$$

在实际中, 一般认为离子的运动不超出该范围, 离子阱对其束缚便是稳定的.

在绝热近似下, 离子在离子阱中的运动可以近似为微运动(快变)和久期运动(慢变)两种运动的简单叠加, 如图 1 所示. 如果忽略离子的快变运动, 离子的慢变运动可以看做在等效势场

$$\Phi_{\text{eff}}(\mathbf{r}) = \frac{Q^2}{4m\Omega^2} [E_{\text{amp}}(\mathbf{r})]^2 \quad (4)$$

作用下的运动, 其中 $E_{\text{amp}}(\mathbf{r})$ 为位置 $\mathbf{r}$ 处的电场的变化幅度. 等效势场可以直观反映离子阱产生的势场分布. 由(1)和(4)式计算可以得到, $\Phi_{\text{eff}}(\mathbf{r}) \propto r^{2k}$. 这一关系说明, 相比四极阱, 多极阱产生的势场可以具有更平坦的底部和更陡峭的边缘. 这对于实现高稳定性和高准确度的离子频标将非常有利. 这一点将在下面着重介绍.

1.2 离子冷却技术

在激光冷却方法出现之前, 缓冲气体冷却是较为常用的冷却方式. 在离子阱中加入低压惰性气体, 如氦气^[8], 具有较高动能的离子将和与外界温度达到热平衡的缓冲气体原子发生碰撞, 在碰撞过程中离子失去能量从而实现冷却.

激光冷却是 1975 年由 Wineland 等人^[3]提出. 通过激光冷却的方式, 可以将离子冷却至阱内简谐振动态基态^[9]. 激光冷却离子的原理与原子基本相同. 当一束相对于离子内部能级红失谐的激光沿着与离子运动方向相反的方向传播时, 由于多普勒效应, 离子

将吸收激光光子, 之后通过自发辐射作用, 离子将以随机方向发射光子, 经过多次这样的散射过程之后, 离子定向运动的动能被各向同性发射的光子耗散, 从而实现冷却得益于离子之间的库仑相互作用, 只需要对一部分离子在一个方向施加冷却, 即可降低离子云整体的温度。

2 离子阱对量子频标指标的影响

根据量子频标理论^[10], 原子(离子)频标的稳定度可以写成为

$$\sigma_y(\tau) = \frac{1}{\omega_0 \sqrt{NT_R}} \tau^{1/2}, \quad (5)$$

上式中 ω_0 是原子能级跃迁圆频率, N 是原子数目, T_R 是原子与探测微波共振的时间, 即探测时间(此处假设使用 Ramsey 方法探测原子跃迁). 所以对于离子频标而言, 为了提高其稳定性, 我们除了需要选取具有频率较高同时线宽较窄谱线的离子外, 还需要有足够大量离子参与探测. 另外, 为了实现足够长的探测时间, 离子的囚禁必须足够稳定。

在影响原子(离子)频标准确度的诸多因素中, 微观粒子的运动造成的谱线的多普勒展宽是重要的误差来源. 当离子囚禁范围远小于电磁辐射的波长时(这在微波频段很容易做到), 即满足 Lamb-Dicke 条件时^[11], 一级多普勒效应可以忽略. 但是在射频离子钟常用的大离子云的情况下, 离子之间的库仑作用使得大部分离子偏离阱中心的零电场区域, 随时间变化的射频场会引起这些离子的微运动, 由此带来的二级多普勒效应将影响频标的准确度和稳定性。

2.1 射频加热效应

当多个离子存储在离子阱中时, 在射频电场作用下, 离子将从电场中获得能量, 其动能将随时间增大, 这就是射频加热效应. 射频加热效应与离子所处位置的射频场的强度有关, 场强越大, 加热效应越强. 从多极阱势场的表达式可以看出, 当电极数目增多时, 离子阱靠近中心的势场将趋于平坦. 因此, 与四极阱相比, 束缚在多极阱中的离子将受到更少的电场作用, 从而具有更小的加热效应. 同时, 在相同的阱深下, 多极阱可以获得更大的离子存储空间, 有利于大离子云的囚禁。

对于四极阱中的射频加热效应, 已有较多的理

论和实验研究^[7,12]. 而对于多极阱中的加热效应的相关研究还比较少见. 我们利用分子动力学软件 ProtoMol^[13] 结合高性能计算群集研究了十二极阱中离子数目 $N=8000\sim 10000$ 的大离子云的冷却和加热过程, 得到了其冷却至 0.6 mK 后的离子排布和 mK~K 温度范围下的加热效应, 如图 2 所示. 将本结果与文献[7]的结果对比可以发现, 应用十二极阱可以囚禁更多的离子同时将加热效应降低近一个数量级之多。

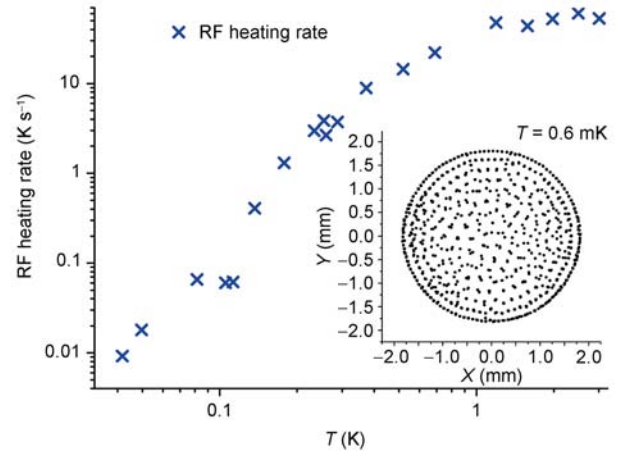


图 2 十二极阱中的离子云加热速率与温度的关系

插图展示了 0.6 mK 温度下的离子晶体

Figure 2 The heating rates of ion cloud at different temperatures in a 12-pole trap. The inset shows an ion crystal formed at 0.6 mK.

图 2 中十二极阱的射频加热速率的数据可以拟合出加热速率与离子温度的关系, 在小于 1 K 的情况下, $R_{\text{heating}} = 100T^{2.8}(\text{s}^{-1})$. 以镱离子钟为例, 若利用其 $5s^2S_{1/2} \sim 5p^2P_{3/2}$ (214.5 nm) 跃迁进行多普勒冷却, 冷却极限可以达到为

$$T_D = \frac{h\gamma}{2k_B} \approx 0.4 \text{ mK}. \quad (6)$$

若要求二级多普勒效应引起的频移控制在 10^{-15} , 离子云的温度需要保持在 1 K 以下. 从上面拟合的加热效应公式可以得出, 离子云的温度从 0.01 K $\gg T_D$ 升至 1 K 所需时间约为 18 s. 可见, 只要将预先将离子冷却至高于多普勒极限温度的温度, 就足以进行间隔为 10 s 左右的 Ramsey 脉冲探测^[14].

2.2 微运动引起的二级多普勒效应

如前所述, 二级多普勒效应的主要来源是离子

在阱中的微运动. 离子的微运动速度在整个离子阱中的分布可以用一个射频周期内速度平方的平均值表征^[15], 即

$$\langle v^2 \rangle = \frac{k^2}{4} \omega^2 r_0^2 \left(\frac{r}{r_0} \right)^{2k-2}. \quad (7)$$

根据 Boltzmann 方程或分子动力学计算得到离子在离子阱中的径向分布函数 $n(r)$ 后, 即可得到二级多普勒频移

$$\frac{\Delta f}{f} = -\frac{3k_B T}{2mc^2} \left(1 + \frac{2}{3} N_d^k \right), \quad (8)$$

其中

$$\begin{aligned} N_d^k &= \frac{m}{2k_B T} \frac{\int n(r) r \langle v^2 \rangle dr}{\int n(r) r dr} \\ &= \frac{k^2}{4} \frac{m \omega^2 r_0^2}{k_B T} \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \left(\frac{r_i}{r_0} \right)^{2k-2}. \end{aligned} \quad (9)$$

由以上公式可以计算出在同样的轴向离子密度的情况下, 十二极阱中同样数目的离子的微运动引起的二级多普勒频移不到四极阱中频移的 1/5.

3 量子频标中的应用

国际上多个小组都在研究基于囚禁离子的量子频标. 其中微波 $^{199}\text{Hg}^+$ ^[16,17] 离子频标已经具有超越铯喷泉钟的精度, 接近 10^{-16} . 目前各研究机构研究的离子种类有 $^{43}\text{Ca}^+$ ^[18], $^{171}\text{Yb}^+$ ^[19,20], $^{113}\text{Cd}^+$ ^[21], $^{137}\text{Ba}^+$ 等^[22,23], 下面将主要介绍有代表性的研究小组及我们正在开展的工作. 图 3 所示为 $^{199}\text{Hg}^+$ 和 $^{113}\text{Cd}^+$ 两离子的相关能级示意图.

3.1 微波 $^{199}\text{Hg}^+$ 离子钟研究简介

美国 JPL(Jet Propulsion Lab)实验室对基于囚禁 $^{199}\text{Hg}^+$ 离子云的射频离子钟进行了系统研究, 其研究的星载离子钟采用了四极阱和多极阱结合的离子阱构型, 其中四极阱阱深较深, 用于离子的捕获和探测, 十六极阱阱深较浅, 用于离子云与 Ramsey 脉冲相互作用. 利用 $^{202}\text{Hg}^+$ 无极灯的 194 nm 谱线可在 2 s 内将 $^{199}\text{Hg}^+$ 离子经由 $^2P_{1/2}$ 泵浦至 $^2S_{1/2}(F=0)$, 然后在多极阱中与微波 Ramsey 脉冲作用后再用无极灯照射, 最后用光电倍增管探测荧光获取离子内部状态. JPL 现已实现了具有秒稳定度 $1\sim 2 \times 10^{-13} \tau^{-1/2}$, 日稳定度

$1\sim 2 \times 10^{-15} \tau^{-1/2}$ 的离子钟, 其指标可与氢钟媲美. 其小型化钟已参与 NASA 的深空探测计划, 有望成为下一代星载频率标准^[24]. 在地面频标的研究中, 他们将 $^{199}\text{Hg}^+$ 离子存储在液氮冷却的四极阱中, 并施加激光冷却, 然后用间隔为 100 s 的 Ramsey 脉冲加以探测, 实现了长中短期稳定性俱佳的地面离子钟^[25].

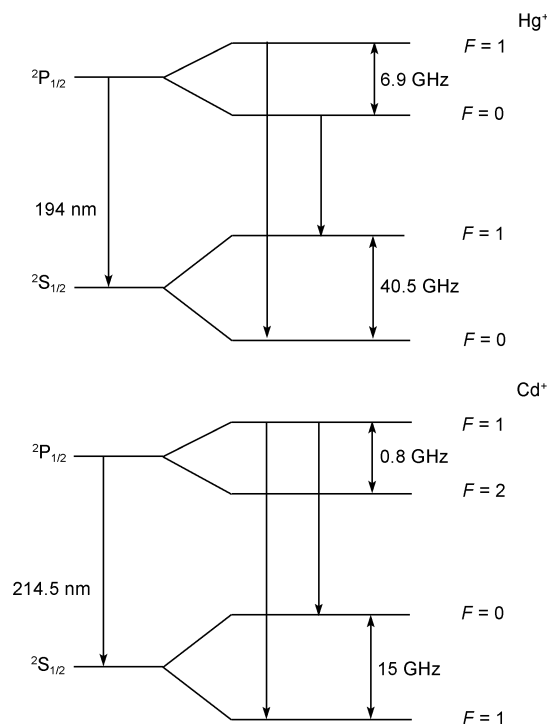


图 3 $^{199}\text{Hg}^+$, $^{113}\text{Cd}^+$ 离子能级示意图

Figure 3 Schematic level diagrams of $^{199}\text{Hg}^+$ and $^{113}\text{Cd}^+$ ions.

3.2 $^{113}\text{Cd}^+$ 微波离子钟

我们正在开展对于 $^{113}\text{Cd}^+$ 微波离子钟的研究. 首先我们将利用十二极阱实现 10^5 或更多离子的存储, 然后通过锁定频率的四倍频半导体激光利用 $^{113}\text{Cd}^+$ 的 $^2S_{1/2}(F=1)$ 至 $^2P_{3/2}(F=2)$ 跃迁对离子进行多普勒冷却, 使之达到较低的温度. 之后利用移频 0.8 GHz 后的 214 nm 激光作为泵浦光源将离子经由 $^2P_{3/2}(F=1)$ 泵浦到钟跃迁的上能级 $^2S_{1/2}(F=0)$, 然后利用间隔为 10 s 的微波 Ramsey 脉冲与处于钟跃迁上能级的离子作用, 最后用 214 nm 激光照射后用光电倍增管探测离子荧光强度. 用这一方案预期可以实现 $5 \times 10^{-14} \tau^{-1/2}$ 量级稳定度的离子频标.

4 结论

时间和频率是目前测量准确度最高的物理量, 这主要归功于量子频标的发展. 作为量子频标的重要分支, 离子频标展示了很强的竞争力. 离子的存储和冷却对于离子频标精确度和稳定性有关键作用. 一方面离子云在离子阱的射频电场作用下, 温度会随存储时间而升高, 另一方面处于电场非零区域的

离子也会在电场驱动下进行微运动. 相比传统的四极阱, 多极阱产生的势场具有中部平坦, 边缘陡峭的特点. 我们的计算结果表明在同样的离子密度下, 十二极阱可以有效地降低离子云在阱中的加热速率. 对于十二极阱内离子微运动的计算也表明使用十二极阱能够减小约 $4/5$ 的二级多普勒频移. 可以看出, 基于多极阱离子存储技术的离子频标是非常出色的频率标准.

参考文献

- 1 Paul W. Electromagnetic traps for charged and neutral particles. *Rev Mod Phys*, 1990, 62(3): 531–540
- 2 Savarda G, Becker S, Bollen G, et al. A new cooling technique for heavy ions in a Penning trap. *Phys Lett A*, 1991, 158(5): 247–252
- 3 Wineland D J, Drullinger R E, Walls F L. Radiation-pressure cooling of bound resonant absorbers. *Phys Rev Lett*, 1978, 40(25): 1639–1642
- 4 Gerlich D. Inhomogeneous electrical radio frequency fields: A versatile tool for the study of processes with slow ions. *Adv Chem Phys LXXXII*, 1992, 82(1): 1–175
- 5 Prestage J D, Williams A, Maleki L, et al. Dynamics of charged particles in a Paul radio-frequency quadrupole trap. *Phys Rev Lett*, 1991, 66(23): 2964–2967
- 6 Schiffer J P, Drewsen M, Hangst J S, et al. Temperature, ordering, and equilibrium with time-dependent confining forces. *Proc Natl Acad Sci USA*, 2000, 97(20): 10697–10700
- 7 Ryjkov V L, Zhao X Z, Schuessler H A. Simulations of the rf heating rates in a linear quadrupole ion trap. *Phys Rev A*, 2005, 71(3): 033414
- 8 Prestage J D, Tjoelker R L, Maleki L. Mercury-ion clock based on linear multi-pole ion trap. In: *Proceedings of the 2000 IEEE/EIA International Frequency Control Symposium & Exhibition*. New York: IEEE, 2000. 706–710
- 9 Turchette Q A, Kielpinski D, King B E, et al. Heating of trapped ions from the quantum ground state. *Phys Rev A*, 2000, 61(6): 063418
- 10 Riehle F. *Frequency Standards: Basics and Applications*. Weinheim: WILEY-VCH Verlag GmbH&Co., 2004. 221–223
- 11 Javanainen J, Stenholm S. Laser cooling of trapped particles III: The Lamb-Dicke limit. *Appl Phys A*, 24(2): 151–162
- 12 Turchette Q A. Heating of trapped ions from the quantum ground state. *Phys Rev A*, 61(6): 063418
- 13 Matthey T, Cickovski T, Hampton S, et al. ProtoMol: An object-oriented framework for prototyping novel algorithms for molecular dynamics. *ACM Trans Math Softw*, 2004, 30(3): 237–265
- 14 Tjoelker R L. A mercury ion frequency standard engineering prototype for the NASA deep space network. In: *Proceedings of the 1996 IEEE International Frequency Control Symposium (50th Anniversary)*. New York: IEEE, 1996. 1073–1081
- 15 Prestage J D, Tjoelker R L, Maleki L. Recent Developments in Microwave Ion Clocks. In: Luiten A N, ed, *Frequency Measurements and Control*. Berlin: Springer, 2001. 195–210
- 16 Prestage J D, Chung S K, Lim L, et al. Compact microwave mercury ion clock for deep-space applications. In: *Proceedings of the 2007 IEEE International Frequency Control Symposium-Jointly with the 21st European Frequency and Time Forum*. New York: IEEE, Electron Devices Soc & Reliability Group, 2007. 1113–1115
- 17 Berkeland D J, Miller J F, Bergquist J C, et al. Laser-cooled mercury ion frequency standard. *Phys Rev Lett*, 1998, 80(10): 2089–2092
- 18 Arbes F, Benzing M, Gudjons T, et al. Improved lifetime measurements of the $^3D_{3/2}$ and $^3D_{5/2}$ metastable states of Ca II. *Z Phys D*, 1994, 29(3): 159–161
- 19 Warrington R B, Fisk P T H, Wouters M J, et al. Development of a $^{171}\text{Yb}^+$ microwave frequency standard at the National Measurement Institute, Australia. In: *Proceedings of the 2005 IEEE International Frequency Control Symposium and Exhibition*. New York: IEEE, 2005. 611–615
- 20 Tamm Chr, Engelke D, Buhner V. Spectroscopy of the electric-quadrupole transition $^2S_{1/2}(F=0)-^2D_{3/2}(F=2)$ in trapped $^{171}\text{Yb}^+$. *Phys Rev A*, 2000, 61(5): 053405
- 21 Tanaka U, Imajo H, Hayasaka K, et al. Laser microwave double-resonance experiment on trapped $^{113}\text{Cd}^+$ ions. *IEEE Trans Instrum Meas*, 1997, 46(2): 137–140
- 22 Blatt R, Werth G. Precision determination of the ground-state hyperfine splitting in ^{137}Ba , using the ion-storage technique. *Phys Rev A*,

1982, 25(3): 1476–1482

- 23 Knab H, Niebling K D, Werth G. Ion trap as a frequency standard measurement of Ba, HFS frequency fluctuations. *IEEE Trans Instrum Meas*, 1985, 34(2): 242–245
- 24 Prestage J D, Weaver G L. Atomic clocks and oscillators for deep-space navigation and radio science. *Proc IEEE*, 2007, 95(11): 2235–2247
- 25 Tjoelker R L, Prestage J D, Koppang P A, et al. Stability measurements of a JPL multi-pole mercury trapped ion frequency standard at the USNO. In: *Proceedings of the 2003 IEEE International Frequency Control Symposium & Pda Exhibition Jointly with 17th European Frequency and Time Forum*. New York: IEEE, 2003. 1066–1071

Ion storage, cooling and applications in quantum frequency standards

WANG ZhengBo^{1,3}, WANG ShiGuang^{1,3}, ZHANG JianWei^{2,3} & WANG LiJun^{1,2,3*}

¹ *Department of Physics, Tsinghua University, Beijing 100084, China;*

² *Department of Precision Instruments and Mechanology, Tsinghua University, Beijing 100084, China;*

³ *NIM-THU Joint Institute of Measurement Science, Tsinghua University, Beijing 100084, China*

This paper reviews the basic principles of ion storage and cooling in the first place, and presents simulation result using a molecular dynamics method on ion distribution and RF heating rate. Based on this result, we evaluate the influence of RF heating effect and micromotions of the ions on frequency standards. Compared to conventional quadrupole trap, a 12-pole trap is able to reduce the RF heating rate of the ion cloud and to enable narrowing the linewidth with the Ramsey method. Moreover, the effective potential in the 12-pole trap has a flat bottom and a steep wall, which is capable of reducing the second order Doppler effect caused by the micromotions and thus helpful to enhance the accuracy and stability of the clock. At last, we review previous work of JPL on high performance, $^{199}\text{Hg}^+$ ion clocks and our present work of laser-cooled, $^{113}\text{Cd}^+$ ion clock based on the multipole trap.

ion trap, laser cooling, quantum frequency standards

PACS: 39.25.+k, 95.55.Sh, 43.58.Hp

doi: 10.1360/132011-58