

SPECTROSCOPIE HAUTE RÉSOLUTION : L'APPORT DES IONS PIÉGÉS REFROIDIS PAR LASER

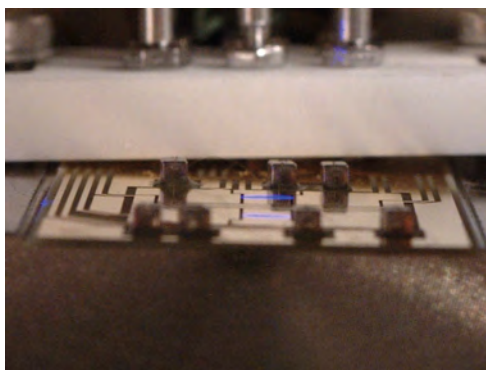
Luca GUIDONI¹, Marie HOUSSIN², Jean-Philippe KARR³

¹ Laboratoire Matériaux et Phénomènes Quantiques, Université Paris-Cité, Paris, France

² Laboratoire de Physique des Interactions Ioniques et Moléculaires, Université d'Aix-Marseille, Marseille, France

³ Laboratoire Kastler Brossel (Sorbonne Université, CNRS), Paris, et Université d'Evry, France

luca.guidoni@u-paris.fr, marie.houssin@univ-amu.fr, jean-philippe.karr@lkb.upmc.fr



Un ion unique piégé et refroidi par laser est un système quantique isolé quasi-idéal pour des études spectroscopiques de haute précision avec de nombreuses applications en métrologie et physique fondamentale. Le confinement d'un ensemble d'ions dans des configurations contrôlées et le développement de techniques d'interrogation toujours plus sophistiquées, utilisant notamment la logique quantique, offrent de nouvelles ouvertures pour continuer cette quête à la précision ultime.

<https://doi.org/10.1051/photon/202312147>

Article publié en accès libre sous les conditions définies par la licence Creative Commons Attribution License CC-BY (<https://creativecommons.org/licenses/by/4.0>), qui autorise sans restrictions l'utilisation, la diffusion, et la reproduction sur quelque support que ce soit, sous réserve de citation correcte de la publication originale.

La spectroscopie de haute précision est un outil précieux pour la physique fondamentale, permettant de réaliser des horloges atomiques, de mesurer des constantes fondamentales ou des paramètres nucléaires, de tester le modèle standard, par exemple en étudiant la variabilité des constantes fondamentales. Cela nécessite un contrôle fin des perturbations extérieures (effet Doppler, collisions, champs électriques et magnétiques), qui peut être atteint en piégeant les ions dans un champ radiofréquence (Piège de Paul) sous ultraviolette et en les refroidissant. À travers différents

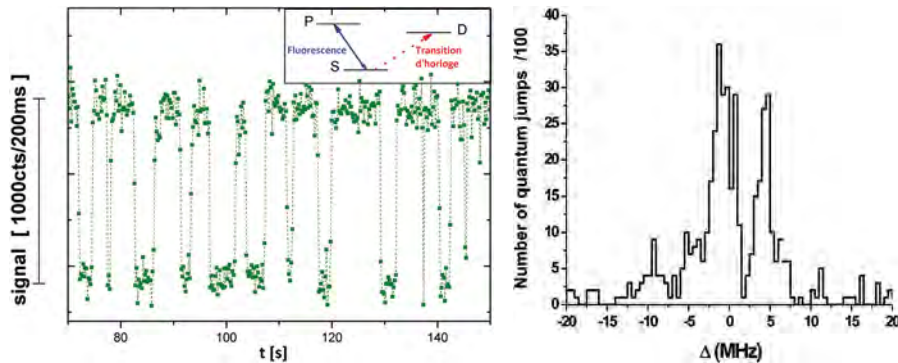
exemples, nous montrons dans cet article comment les mesures spectroscopiques sur des ions uniques, des ensembles d'ions atomiques ou moléculaires permettent d'atteindre des précisions extrêmes en constante amélioration.

L'ION UNIQUE : UN SYSTÈME MODÈLE

Les premières images par fluorescence d'ions atomiques uniques ont été obtenues au tout début des années 1980 à Heidelberg, réalisant ainsi le rêve de « voir » un atome unique isolé. Les ions, piégés sous vide par des champs électriques quadripolaires oscillants engendrés par des systèmes d'électrodes, étaient refroidis par laser

(refroidissement dit « Doppler ») à des températures de l'ordre de quelques millikelvin. L'intérêt spectroscopique et métrologique de ces systèmes a été une motivation constante pour le développement des technologies de piégeage et refroidissement. À partir d'une proposition de I. Cirac et P. Zoller en 1995, les potentialités des ions piégés pour le développement d'un ordinateur quantique ont considérablement étendu leurs domaines d'applications [1].

Du point de vue du spectroscopiste, un ion unique froid confiné sous ultraviolette permet d'éliminer tout phénomène d'élargissement inhomogène ou de temps de transit et de maîtriser les effets systématiques liés à ●●●



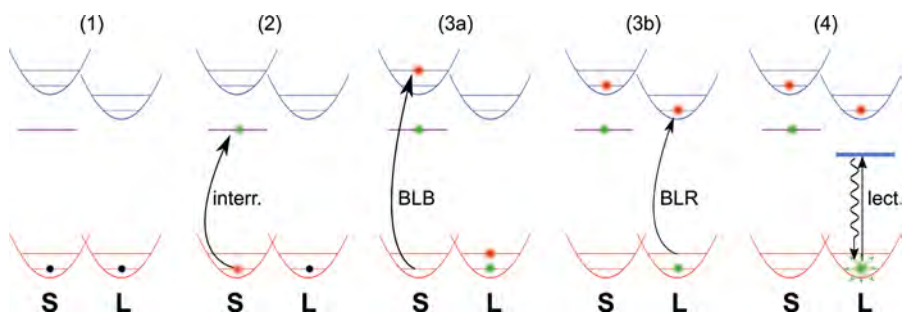
l'environnement (déplacement lumineux dû au rayonnement du corps noir, champs magnétiques et électriques résiduels...). De plus, en régime de Lamb-Dicke et de raie étroite (voir encadré), l'effet Doppler et l'effet du recul induit par le photon sont absents du spectre de la « porteuse » qui se retrouve résolue par rapport aux bandes latérales induites par le mouvement résiduel. Cela a permis le développement d'horloges à ions froids uniques dans le domaine optique qui, dans les années 2000, ont dépassé les précisions des meilleures horloges et atteignent aujourd'hui des incertitudes relatives de l'ordre de 10^{-17} (Sr^+ , Ca^+ , Hg^+) ou même quelques 10^{-18} (Yb^+). Ces horloges utilisent comme référence une transition étroite vers un état métastable à longue durée de vie ($\sim 1\text{s}$), sondée grâce à la technique de « l'électron shelving » (littéralement « mise de l'électron en étagère ») : la fluorescence d'une transition intense (souvent celle utilisée pour le refroidissement) s'éteint lorsque l'ion est dans l'état métastable (figure 1) [2]. La statistique du nombre de transitions en fonction de la fréquence du laser d'excitation permet de construire le spectre.

Même la spectroscopie de « raie large » peut tirer profit de la maîtrise des ions uniques. Le problème qui se pose alors est le recul induit par le faisceau sonde qui déforme la raie. L'effet de ce recul peut être rendu négligeable en alternant des séquences de refroidissement et d'interrogation. A titre d'exemple, dans le groupe QITE de l'Université Paris-Cité il a été possible de déterminer le centre de la transition $5S_{1/2} - 5P_{1/2}$ de l'ion Sr^+ (largeur naturelle 21.7 MHz) avec

Figure 1. À gauche, « sauts quantiques » d'un ion unique (ici, un ion calcium) par absorption d'un photon vers le niveau métastable. Lorsque l'atome est dans le cycle de refroidissement, il fluoresce (niveau haut). Lorsque l'atome est dans le niveau métastable (« shelf »), il cesse de fluoresce pendant quelques secondes (niveau bas). À droite, statistique du nombre de sauts en fonction de la fréquence du laser excitant la transition d'horloge (laboratoire PIIM).

une incertitude inférieure à 20 kHz. Cette précision a un intérêt cosmologique (le spectre des ions Mg^+ et Sr^+ sont des marqueurs dans les galaxies lointaines) et permet des mesures fines de décalages isotopiques, précieuses en physique nucléaire.

Figure 2. Étapes schématiques de la technique de spectroscopie par logique quantique. (1) Une paire d'ions est refroidie dans l'état fondamental d'un mode de vibration commun. Ce refroidissement se fait en agissant sur l'ion dit « logique » (L), l'ion d'intérêt spectroscopique (S) étant plus difficile à manipuler. (2) Un faisceau sonde « interroge » une transition très étroite de l'ion spectroscopique (transition d'horloge). En cas de succès l'électron passe dans le niveau excité (boule verte), sinon il reste dans l'état fondamental (boule rouge). (3) Comme il n'est pas possible de détecter directement l'état de l'ion S, on utilise l'état commun de vibration pour transférer cette information sur l'ion L. On effectue donc une tentative d'excitation de l'ion S sur une bande latérale bleue (BLB) d'une transition étroite auxiliaire (3a), suivie d'une tentative de « shelving » de l'ion L par une excitation de la bande latérale rouge (BLR, 3b). Ces deux étapes (3a et 3b) ne sont possibles que si l'ion S est resté dans l'état fondamental (boules rouges). (4) Une lecture de l'état de l'ion L révèle l'état initial de l'ion S. Les étapes élémentaires du transfert d'information entre ions *via* leur état commun de vibration (3a,3b) sont également à la base du fonctionnement de l'ordinateur quantique à ions piégés.



PAIRES D'IONS : REFROIDISSEMENT SYMPATHIQUE ET LOGIQUE QUANTIQUE

Un piège de Paul peut bien évidemment contenir plusieurs ions en même temps. Si ces ions sont refroidis par laser ils peuvent atteindre une température suffisamment faible pour effectuer une transition de phase qui les conduit à former un ensemble ordonné appelé « cristal de Coulomb » (figure 3). Encore plus intéressant, des ions de plusieurs espèces peuvent être piégés en même temps. Dans ce cas, même si une seule des espèces présentes est refroidie par laser, l'ensemble des ions dans le piège peut atteindre le régime cristallin : il s'agit de la méthode dite de « refroidissement sympathique » qui permet d'étendre la spectroscopie à haute résolution à des espèces impossibles à refroidir par laser.

Un cas particulièrement intéressant est celui d'une paire d'ions dont l'un possède un fort intérêt métrologique et l'autre est facilement manipulable par laser (refroidissement possible dans l'état fondamental de vibration du piège, voir encart). En 2005 à Boulder, une nouvelle technique appelée

« spectroscopie par logique quantique » (figure 2) a été inventée et démontrée [3], ouvrant la voie à des horloges optiques d'une précision inégalée. En se basant sur cette idée, le NIST de Boulder a construit en 2007 la meilleure horloge de l'époque à partir d'une paire Aluminium (spectroscopie) /Béryllium (manipulation), dont une

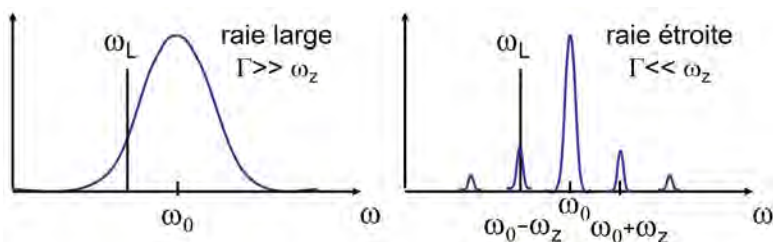
version améliorée détient actuellement le record d'exactitude (9.4×10^{-19}).

GRANDS NOMBRES D'IONS

Ne gagnerait-on pas à utiliser des ions piégés en grand nombre pour améliorer la statistique des mesures ? Cependant, le refroidissement dans l'état ●●●

LE RÉGIME DE LAMB-DICKE

Dans un piège de Paul typique, le mouvement d'un ion peut être décrit comme la superposition d'un mouvement d'oscillateur harmonique dit « macromouvement » à une fréquence de l'ordre de la dizaine de kHz à quelques MHz et d'une oscillation rapide de faible amplitude à la fréquence du champ radiofréquence de piégeage appelée « micromouvement ». Le mouvement de l'ion induit via l'effet Doppler une modulation de la fréquence d'une onde électromagnétique incidente. Pour une transition atomique (pulsation ω_0) de largeur bien inférieure à la fréquence de modulation, le spectre est alors constitué d'une porteuse à ω_0 et de bandes latérales écartées de n fois la fréquence du mouvement. La porteuse n'est pas élargie par l'effet Doppler du premier ordre permettant une résolution uniquement de la raie et par le temps d'interrogation.



Dans un modèle quantique, le macro-mouvement le long de l'axe du piège est bien décrit par l'Hamiltonien d'un oscillateur harmonique quantique d'énergies propres $E_n = (n + 1/2)\hbar\omega_z$. Si l'énergie de recul $E_r = \frac{\hbar^2 k^2}{2m}$ transmise

à l'ion de masse m lors de l'absorption ou l'émission d'un photon de l'onde laser (vecteur d'onde k) est faible devant $\hbar\omega_z$, les transitions modifiant l'état de mouvement de l'ion (correspondant aux bandes latérales) sont faibles : c'est le régime de Lamb-Dicke. Soit η tel que $\eta^2 = \frac{E_r}{\hbar\omega_z}$, on a $\eta^2 \ll 1$.

Le paramètre de Lamb-Dicke η est aussi défini comme $\eta = kz_0 = \frac{2\pi}{\lambda} z_0$ où λ est la longueur d'onde du laser et $z_0 = \sqrt{\frac{\hbar}{2m\omega_z}}$ l'extension de la fonction d'onde dans l'état fondamental du mouvement. La condition précédente devient $\eta = kz_0 \ll 1$ soit $z_0 \ll \lambda/2\pi$.

L'amplitude de mouvement typique d'un ion refroidi par refroidissement Doppler étant de l'ordre du micromètre, cette condition est beaucoup plus facile à atteindre pour des transitions dans le domaine micro-onde ou térahertz où les longueurs d'onde sont respectivement de l'ordre du centimètre ou millimètre que dans le domaine optique. Cela a permis de réaliser, avec des nuages d'ions, des étalons de fréquence micro-onde compétitifs avec les meilleures horloges à césium.

Dans le régime où les bandes latérales sont bien résolues, il est possible d'appliquer la technique du « refroidissement par bande latérale » (sideband cooling). Au moyen d'une excitation laser de la première bande « rouge » à $\omega_l = \omega_0 - \omega_z$, l'ion peut être refroidi au-delà de la limite du refroidissement Doppler jusqu'à l'état fondamental de mouvement, ouvrant la voie aux manipulations quantiques.



SPECTROSCOPIE NIR / MIR

SPECTROSCOPIE MIR EN TEMPS RÉEL

- ▲ Gamme spectrale : 2-5μm/7-12μm
- ▲ 400 Hz à 130 kHz
- ▲ Sensibilité 5 pW/nm
- ▲ Résolution 2.5 cm⁻¹



SPECTROMÈTRE NIR COMPACT À TRANSFORMÉE DE FOURIER

- ▲ Gamme spectrale : 900-2600 nm (360 nm à 12 μm suivant modèles)
- ▲ Résolution 8 cm⁻¹



SPECTROMÈTRE PORTABLE NIR

- ▲ Gamme spectrale : 900-2500 nm
- ▲ Source intégrée



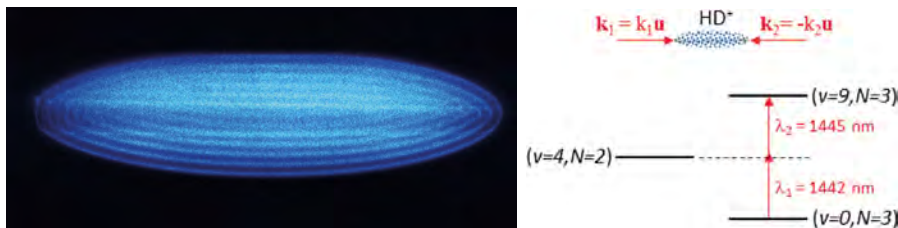


Figure 3. À gauche, cristal d'ions Be^+ piégés et refroidis par laser, imagé par une caméra EMCCD sensible à l'ultraviolet (Laboratoire Kastler Brossel). Les ions Be^+ sont visibles car ils absorbent et réémettent constamment des photons du laser de refroidissement ($\lambda = 313 \text{ nm}$). La zone horizontale sombre au centre de l'image indique la présence d'ions d'autres espèces, ici H_2^+ . À droite, schéma d'excitation d'une transition vibrationnelle de HD^+ par deux photons quasi-dégénérés contra-propageants (ν et N sont les nombres quantiques vibrationnel et rotationnel). Les longueurs d'onde λ_1 , λ_2 sont ajustées pour être à quasi-résonance avec un état ro-vibrationnel intermédiaire afin d'exalter la transition. Le vecteur d'onde total des deux photons étant $\mathbf{k} = \mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 = (k_1 - k_2) \mathbf{u}$, on peut associer à la transition une longueur d'onde effective $\lambda_{\text{eff}} = 1/(\lambda_1^{-1} - \lambda_2^{-1}) \sim 700 \mu\text{m}$ pour laquelle la condition de Lamb-Dicke est facilement satisfaite.

fondamental du mouvement devient problématique au-delà d'une dizaine d'ions, le nombre de modes à refroidir étant trop grand. Il faut donc se contenter du refroidissement Doppler rendant plus difficile la réalisation du régime Lamb-Dicke. La spectroscopie à très haute résolution sur des ensembles d'ions est pour cette raison restée longtemps limitée aux domaines RF et micro-ondes.

Les progrès récents de la spectroscopie des ions moléculaires hydrogène (H_2^+ , HD^+ ...) illustrent différentes méthodes par lesquelles il est possible d'atteindre le régime Lamb-Dicke y compris pour des transitions dans le domaine optique. Ces molécules sont les plus simples et leurs niveaux d'énergie sont calculables très précisément. Les fréquences mesurées de leurs transitions ro-vibrationnelles peuvent être comparées aux prédictions théoriques pour extraire les valeurs de constantes fondamentales, en particulier le rapport des masses du proton et de l'électron m_p/m_e . La structure complexe des niveaux d'énergie moléculaires rend cependant difficile la manipulation de ces ions. Sauf exception, ils ne peuvent pas être refroidis directement par laser et doivent être refroidis sympathiquement *via* des ions atomiques. De plus, pour des ensembles d'ions, il faut recourir à une

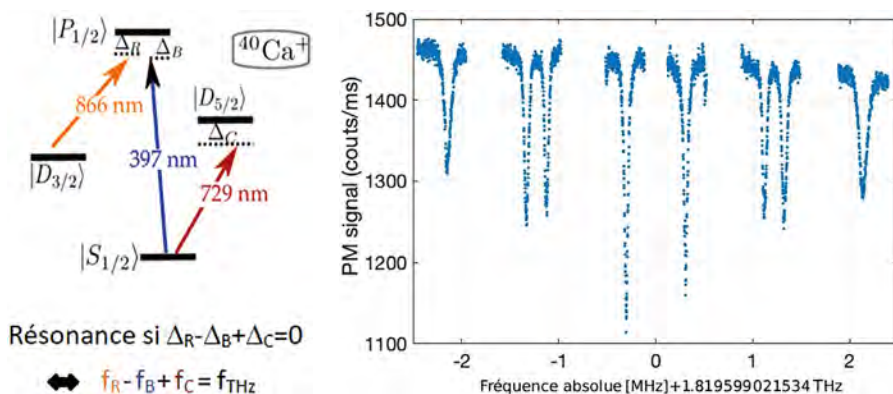
détection destructive par photodissociation sélective de l'état excité. Le signal est alors une perte d'ions. Pour la détecter, on transfère de l'énergie aux ions moléculaires par une excitation résonnante de leur mouvement *via* un potentiel électrique oscillant. Cela chauffe sympathiquement les ions atomiques refroidis par laser et induit une variation de leur fluorescence, d'autant plus importante que le nombre d'ions moléculaires est grand.

Plusieurs mesures ont été effectuées sur des ensembles d'ions HD^+

refroidis sympathiquement par Be^+ dans un piège linéaire (figure 3). Des transitions allant du domaine TéraHertz (rotationnelle) à l'infrarouge proche (ro-vibrationnelles) ont été mesurées dans le régime de Lamb-Dicke, à Düsseldorf, en exploitant le fort confinement radial des ions. Une autre solution est la spectroscopie à deux photons : lors de l'absorption de deux photons contra-propageants de même fréquence, le décalage Doppler du premier ordre est éliminé. L'expérience en cours au laboratoire Kastler Brossel (Paris) utilise ce principe pour sonder une transition vibrationnelle de H_2^+ . Une autre configuration à deux photons quasi-dégénérés (figure 3), a été démontrée dans le cas de HD^+ à Amsterdam en collaboration avec le LKB [4]. Cette méthode a mené à la mesure spectroscopique la plus précise à ce jour dans les ions moléculaires hydrogènes (incertitude relative de quelques 10^{-12}). Tous ces résultats contribueront à améliorer la détermination de m_p/m_e .

Une autre technique de spectroscopie multiphotonique permettant de s'affranchir de l'effet Doppler du premier ordre utilise le piégeage cohérent de population dans un état noir. Au laboratoire PIIM à Marseille, plusieurs centaines d'ions Ca^+ piégés sont sondés par trois lasers verrouillés en phase par l'intermédiaire d'un peigne de fréquence optique, donnant accès à des raies spectrales très contrastées. La combinaison des fréquences des trois lasers permet de construire une référence de fréquence à 1,8 THz (figure 4).

Figure 4 : À gauche, un schéma de niveaux de l'ion calcium. Si la condition de résonance est satisfaite, les ions sont dans une superposition des 2 états « D » métastables et la fluorescence décroît. À droite, composantes Zeeman d'un spectre typique de résonance noire (laboratoire PIIM).



Résonance si $\Delta_R - \Delta_B + \Delta_C = 0$

$$\leftrightarrow f_R - f_B + f_C = f_{\text{THz}}$$

Laser à diode à cavité miniature fibrée

VERS DES HORLOGES MULTI-IONS

À mesure que la précision des horloges à ions s'améliore, le problème de la faiblesse du signal, qui nécessite des temps de moyennage extrêmement longs pour que la résolution des mesures atteigne la limite imposée par l'exactitude de l'horloge, se pose avec de plus en plus d'acuité. De nombreux efforts sont donc déployés actuellement pour augmenter le nombre d'ions tout en maintenant un contrôle très précis des effets systématiques. Par exemple, un réseau de pièges permettant de confiner une centaine d'ions, sous forme de plusieurs chaînes de quelques ions, a été fabriqué. Est-il possible d'aller encore plus loin et de réaliser une horloge basée sur un cristal tridimensionnel de quelques milliers d'ions (figure 3) ? Une telle configuration a longtemps été considérée comme incompatible avec le niveau de précision ultime d'une horloge, car les ions situés à l'écart de l'axe de symétrie du piège (sur lequel le champ RF de piégeage s'annule) subissent un excès de micromouvement qui entraîne un décalage de fréquence *via* l'effet Doppler du second ordre. Il a cependant été remarqué que si la transition utilisée possède une polarisabilité différentielle négative (c'est-à-dire que la polarisabilité de l'état excité est inférieure à celle de l'état fondamental), l'effet Stark induit par le même champ RF peut compenser presque parfaitement l'effet Doppler du second ordre, à condition de choisir une valeur « magique » de la fréquence du champ de piégeage. Les ions possédant des transitions de polarisabilité différentielle négative sont rares, mais un tel ion possédant des caractéristiques

favorables pour le développement d'une horloge, Sn^{2+} , a récemment été identifié.

Au-delà du nombre d'ions, on peut imaginer d'augmenter le nombre d'horloges. Le développement de réseaux de liens par fibre optique permettant de transmettre un signal ultrastable sur de longues distances, comme T-REFIMEVE en France, rend désormais possibles des comparaisons directes entre horloges distantes de plusieurs centaines voire milliers de kilomètres. De telles comparaisons sont utilisées pour des tests de physique fondamentale, et pourraient servir de base pour définir une échelle de temps internationale en temps réel. Leur précision peut être améliorée grâce à l'intrication quantique, ce qui a mené à proposer la réalisation d'un « réseau quantique » d'horloges à l'échelle mondiale, dont une brique élémentaire a été démontrée récemment en intriquant deux horloges à ion unique Sr^+ [5].

CONCLUSION

De l'ion unique aux ensembles, les ions piégés refroidis par laser sont des systèmes privilégiés en spectroscopie de haute précision. Des techniques variées, comme l'interrogation multiphotonique ou par logique quantique ont été développées dans les deux dernières décennies, repoussant les limites de précision et élargissant la gamme des fréquences accessibles (du térahertz à l'ultraviolet) et les types d'ions étudiés (ions moléculaires, ions multichargés). Une voie de recherche actuelle consiste à améliorer la statistique des mesures en augmentant le nombre d'ions interrogés ou en exploitant l'intrication quantique. ●

RÉFÉRENCES

- [1] R. Blatt and D. J. Wineland, *Nature* **453**, 1008 (2008), doi: 10.1038/nature07125
- [2] W. Nagourney *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **56**, 2797 (1986), doi: 10.1103/PhysRevLett.56.2797; Th. Sauter *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **57**, 1696 (1986), doi: 10.1103/PhysRevLett.57.1696; J. C. Bergquist *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **57**, 1699 (1986), doi: 10.1103/PhysRevLett.57.1699
- [3] P. O. Schmidt *et al.*, *Science* **309**, 749 (2005), doi: 10.1126/science.1114375
- [4] S. Patra *et al.*, *Science* **369**, 1238 (2020), doi: 10.1126/science.aba0453 (arXiv:2204.10674)
- [5] B. C. Nichol *et al.*, *Nature* **609**, 689 (2022), doi: 10.1038/s41586-022-05088-z (arXiv:2111.10336)

633 nm - 1908 nm



TO39 ou Butterfly

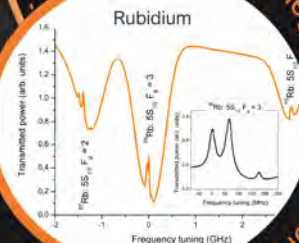
Ultra fin

largeur de raie typ. < 15 kHz

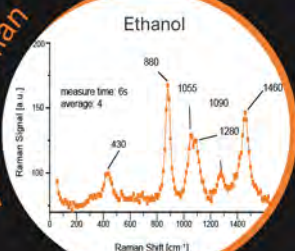
Ultra stable

cavité monolithique compacte

Refroidissement, piégeage atomes/ions



LIDAR, Raman



- + Condensat de Bose Einstein
- + Spectroscopie d'absorption