囚禁冷却钙离子精密光谱实验进展

管桦^{①②③}, 黄垚^{①②③}, 高克林^{①②③*}

① 中国科学院武汉物理与数学研究所, 波谱与原子分子物理国家重点实验室, 武汉 430071;

② 中国科学院武汉物理与数学研究所, 中国科学院原子频标重点实验室, 武汉 430071;

③ 中国科学院冷原子物理中心(武汉), 武汉 430071

*联系人, E-mail: klgao@wipm.ac.cn

收稿日期: 2016-01-20; 接受日期: 2016-03-03; 网络出版日期: 2016-06-17

国家重点基础研究发展规划(编号: 2012CB821301, 2005CB724502)和国家自然科学基金(编号: 11474318, 91336211, 11034009, 11304363)资助项目

摘要 本文报道了中国科学院武汉物理与数学研究所基于单个囚禁冷却钙离子精密光谱实验进展. 采用微型射频阱(Paul阱)囚禁单个钙离子, 实现囚禁离子的激光冷却, 冷却离子被囚禁在Lamb-Dicke区域, 囚禁时间长达2个月以上. 用于钙离子 $4s^2S_{1/2}$ - $3d^2D_{5/2}$ 钟跃迁探测的729 nm激光的线宽压窄到1 Hz以下, 并实现连续1个月的稳定运行. 为了实现频率比对, 搭建了两台相似的钙离子光频标. 通过对系统误差的细致评估, 两台钙离子光频标的频率相对不确定度均小于 6×10^{-17} . 通过42 d的独立比对实验, 两台钙离子光频标的频差为 3×10^{-17} , 不确定度为 5.5×10^{-17} . 通过3 d的连续频率比对, 两台钙离子光频标的阿伦偏差为 $1 \times 10^{-14} \text{ s}^{-1/2}$, $2 \times 10^4 \text{ s}$ 稳定度达到了 7×10^{-17} . 同时, 利用基于全球定位系统(GPS)溯源到世界标准时(SI)的光频测量系统, 再次测量了钙离子钟跃迁 $4s^2S_{1/2}$ - $3d^2D_{5/2}$ 的绝对频率值, 其结果为 $(411042129776401.7 \pm 1.1) \text{ Hz}$. 在此基础上完成了两个基于单个囚禁冷却钙离子的精密光谱实验. 一是钙离子钟跃迁魔幻波长的测量, $\lambda_{|mj|=1/2} = (395.7992 \pm 7) \text{ nm}$ 和 $\lambda_{|mj|=3/2} = (395.7990 \pm 7) \text{ nm}$, 与Tang等人的理论预言相符合. 二是钙离子 $3d^2D_{5/2}$ 态寿命测量, 其结果 $(1174 \pm 10) \text{ ms}$ 与牛津大学和Innsbruck大学新近在线型阱中基于单个囚禁离子的测量结果相符合, 并与Sahoo的最新理论结果相符合.

关键词 频标, 精密测量, 钙离子, 寿命测量, 魔幻波长**PACS:** 42.62.Fi, 37.10.Ty, 43.58.Hp

1 引言

原子频标在国际时间基准、全球卫星定位系统(GPS)、信息高速公路(通讯和网络)、基本物理量测量和基本物理规律检验等方面有着广泛的应用. 从1967年起, 科学家们一直用铯原子133同位素基态两

个超精细能级之间的跃迁频率来定义“秒”. 当前, 最好的铯喷泉钟的不确定度为 2.3×10^{-16} ^[1]. 离子阱中囚禁的单离子和光晶格中囚禁的中性原子光频标的谱线Q值较高, 因此不确定度和稳定度有望达到更高的水平. 近年来, 随着冷原子技术、飞秒光梳^[2,3]及超窄线宽激光技术^[4,5]的发展, 光频标取得了突破性进展.

引用格式: 管桦, 黄垚, 高克林. 囚禁冷却钙离子精密光谱实验进展. 中国科学: 物理学 力学 天文学, 2016, 46: 073005
Guan H, Huang Y, Gao K L. The progress of the precision spectroscopy with single trapped and laser cooled $^{40}\text{Ca}^+$ ion (in Chinese). Sci Sin-Phys Mech Astron, 2016, 46: 073005, doi: 10.1360/SSPMA2016-00037

光频标的候选体系有: 锶原子^[6-9]、镱原子^[10]、锶离子^[11,12]、镱离子^[13,14]、汞离子^[15]、铝离子^[15,16]和钙离子^[17-19]等. 目前最好的锶原子光频标^[6]及铝离子光频标^[16]的不确定度已经进入了 10^{-18} 量级. 其中, 锶原子光频标的不确定度达 6.4×10^{-18} ^[6]. 稳定度方面, 锶原子光频标在10000 s的稳定度达到了 3×10^{-18} , 而镱原子光频标7 h的稳定度达到 1.6×10^{-18} . 上述基于单离子或多原子的光频标的不确定度及稳定度已经达到或超过了目前铯喷泉钟的水平. 随着新一代频标技术的发展, 科学家们可能在不远的未来重新讨论秒的定义. 而目前, 国际时间频率咨询委员会(CCTF)已经将一些原子、离子或分子的光谱频率作为“秒”定义的次级标准¹⁾. 我国也开展了光频标的研究, 如锶原子、镱原子、钙原子、汞原子、铟离子、钡离子、汞离子、铝离子和钙离子等. 例如, 中国科学院武汉物理与数学研究所(WIPM)实现了钙离子光频标的锁定和频率测量^[20], 中国计量院实现了锶原子光晶格频标的锁定和频率测量^[21], 华东师范大学提出将非均匀激发引起的频移减小到 10^{-19} 量级的方案^[22], 开展了镱原子钟跃迁光谱实验并实现了镱原子光钟的闭环锁定^[23], 并初步测量了镱原子钟跃迁的绝对频率^[24], 华中科技大学和WIPM的铝离子光频标、国防科技大学的汞离子光频标研究也取得了技术上的突破^[25,26]. 此外, 北京大学提出了主动光频标方案^[27].

钙离子除了具有其他碱土族离子所共有的能级结构简单优点之外, 它的突出特点是激光冷却和钟跃迁探测所需激光都可以利用固体激光器特别是半导体激光器实现. 因此, 钙离子光频标一直以来都是“秒”的次级定义的有力竞争者²⁾. 国际上开展钙离子光频标工作的小组有奥地利Innsbruck大学^[17]、日本国家信息与通讯研究所(NICT)^[18]、以及法国Provence大学^[19]. 基于钙43同位素的光频标研究也在进行, 其优势是跃迁中心有一条不受一阶Zeeman频移影响的谱线^[28]. 此外钙离子在量子信息等研究方面也具有广泛应用^[28-31].

本文报道了WIPM在囚禁冷却钙离子精密光谱测量方面的实验研究新进展. 首先介绍钙离子光频标的实验装置和锁定; 然后描述了两台光频标比对实验和

结果以及基于GPS参考SI对钟跃迁绝对频率的测量; 之后介绍了两项基于单个囚禁冷却钙离子精密光谱的测量工作: 一是钙离子钟跃迁魔幻波长测量, 二是钙离子 $3d^2D_{5/2}$ 态寿命测量; 最后给出总结和展望.

2 钙离子光频标

钙离子光频标主要由三部分组成, 分别为: 囚禁离子的物理系统(微型Paul阱), 冷却和探测激光系统(光电离激光、冷却光、回泵光和钟跃迁探测光等)以及用于钟跃迁绝对频率测量的飞秒光梳系统. 总体结构图如图1所示.

与光频标相关的钙离子能级见图2, 其中 $3^2D_{5/2}$ 态寿命约为1.1 s, 对应电四极跃迁 $4s^2S_{1/2}-3d^2D_{5/2}$ 的自然线宽约为0.14 Hz^[30,32].

2.1 实验装置

2.1.1 离子阱系统

1) 微型Paul阱. 实验中采用微型Paul阱实现对带电粒子的囚禁^[33-37]. 该阱由一个环电极、两个帽电极和两个补偿电极组成. 拥有开放式的结构, 有利于进行激光冷却及钟跃迁探测等激光与离子的相互作用; 微型结构也便于实现少离子或者单离子的囚禁. 第一台钙离子光频标中环帽结构以及补偿极都是由不锈钢材料制作而成, 而且支撑部分同样由磁性材料制成,

图1 (网络版彩图)钙离子光频标结构图
Figure 1 (Color online) Overall schematic diagram of the experimental setup.

1) Consultative Committee for Time and Frequency (CCTF) Report of the 19th Meeting (September 13-14, 2012);

2) Recommendation 2(c2-2009)-(CIPM)

图2 (网络版彩图)与光频标相关的 $^{40}\text{Ca}^+$ 离子各能级及相关跃迁对应的激光波长

Figure 2 (Color online) Energy level diagram and wavelengths of $^{40}\text{Ca}^+$ relative to the optical frequency standard.

这样导致以后安装磁屏蔽层以后依然存在较大的剩磁,对磁场的控制带来极大的困难,因此在设计第二台钙离子光频标离子阱结构的时候,将原来的不锈钢材料换成了无磁的铍铜材料,支撑部分换成无磁的钛金属。两个微型Paul阱,如图3所示。环的直径均为 $2r_0=0.8\text{ mm}$,帽为半球型,帽间距为 $2z_0=1.4\text{ mm}$,补偿电极分布在环平面且相互垂直,加上直流电压后用来克服实验中杂散电场的影响。离子阱置于真空环境中,本底压强 $<10^{-8}\text{ Pa}$ 。在环平面,有两个相互垂直的补偿极,联合两个帽极直流偏压,来调节离子的位置,减小离子的附加微运动。在安装离子阱时,为了防止环帽表面因不光滑而引起囚禁势场变差,我们对每一个部件(包括环、帽以及补偿极等)进行了抛光处理。

2) 磁场控制。 $^{40}\text{Ca}^+$ 离子具有一阶Zeeman效应,每

图3 微型Paul阱示意图。(a) 3D示意图;(b) 沿yz平面的剖面图

Figure 3 The diagrammatic sketch of the miniature Paul trap. (a) schematic diagram in 3 dimensions; (b) cross section along the yz plane.

条钟跃迁谱线的频率都与磁场强度近似成正比关系。磁场的变化和抖动会影响光频标的锁定,尤其是磁场的快速抖动(ac磁场),会造成谱线的增宽,从而影响到光频标的频率稳定度。因此需要对离子所在位置的磁场进行有效地控制,以排除外界环境磁场的变化对它的干扰,最有效的方法就是采用磁屏蔽。我们采用了坡莫合金作为磁屏蔽材料,在离子阱真空腔体外加上双层磁屏蔽系统以屏蔽外界磁场,如图4所示。利用高斯计对双层磁屏蔽的屏蔽效果进行测量,两台系统对直流磁场的屏蔽系数高达200以上。为了实现对离子所感受到磁场强度的控制,在磁屏蔽内的真空系统外安装了三对相互垂直的线圈,通过调节三台精密直流源的输出电流实现对离子所在位置磁场的高精度控制。

2.1.2 激光系统

1) 光电离系统。为了避免残余电荷积累对离子囚禁的影响,实验中采用 $(423+390)\text{ nm}$ 双光子电离的方式产生钙离子。光电离系统如图5所示。846 nm激光(100 mW)两次通过PPKDP晶体(长度5 mm),倍频获得423 nm激光;390 nm光由紫外LED实现。

2) 冷却和回泵光系统。 $^{40}\text{Ca}^+$ 离子 $4^2P_{1/2}$ 态寿命约为7 ns,实验中采用电偶极跃迁 $4^2S_{1/2}-4^2P_{1/2}$ 作为激光冷却

图4 (网络版彩图)磁屏蔽系统示意图

Figure 4 (Color online) Schematic diagram of the magnetic shields.

图5 (网络版彩图)离子的产生及冷却光路图

Figure 5 (Color online) Schematic diagram of ion loading and laser cooling.

却跃迁. 由于 $^{40}\text{Ca}^+$ 离子从 $4^2P_{1/2}$ 态有1/16的几率跃迁到 $3^2D_{3/2}$ 态, 从而造成激光冷却的中断, 因此需要加入866 nm激光将离子从 $3^2D_{3/2}$ 泵回到 $4^2P_{1/2}$ 态以实现闭合的冷却循环.

实验中采用的商用半导体激光器的长期稳定度不能满足实验的需求, 因此需要对激光器的长期稳定度进行控制. 早期实验采用光电流信号进行稳频^[36]. 为了进一步降低激光器的长期漂移, 目前采用传输腔稳频技术实现对激光器的长期漂移进行控制^[38], 如图6所示. 选择窄线宽钛宝石激光器作为参考, 借助传输腔对冷却光(397 nm)和回泵光(866 nm)激光器进行了稳频, 使其达到与钛宝石激光器一样的长期稳定度. 实验中将参考光和待稳频光同时入射到传输腔, 利用信号发生器(Stanford Research Systems, DS345)产生100 Hz的三角波信号. 三角波信号经过放大电路放大后驱动传输腔的压电陶瓷(PZT)以扫描腔长, 利用光电探测器(PD)探测两束激光的透射峰信号, 同时利用DS345产生同步信号用于触发模拟-数字转换(ADC)卡的采集. 采集得到的信号用LabVIEW程序进行处理计算得到反馈误差信号, 经过比例积分处理后, 由数字-模拟转

图6 (网络版彩图) 397 nm传输腔稳频
Figure 6 (Color online) The 397 nm laser stabilization by a transfer cavity.

换(DAC)卡输出电压给反馈器件实现对待稳频光的稳频.

866 nm激光器的稳频方案与397 nm激光类似. 通过稳频, 两台激光器在几个小时内的长期漂移均被控制在1 MHz以内.

3) 钟跃迁探测激光系统. 729 nm窄线宽激光系统是实现 $^{40}\text{Ca}^+$ 离子光频标的核心技术. 729 nm窄线宽激光器作为探测光, 用于探测 $^{40}\text{Ca}^+$ 离子光频标的钟跃迁 $4s^2S_{1/2}-3d^2D_{5/2}$. $^{40}\text{Ca}^+$ 离子 $4s^2S_{1/2}-3d^2D_{5/2}$ 跃迁的自然线宽为0.14 Hz, 因此, 需要一台窄线宽激光器实现钟跃迁的有效探测. 实验室原采用Pound-Drever-Hall (PDH)方法^[39]将钛宝石激光器(MBR110, Coherent)的频率锁定到一台Zerodur材料的参考腔上^[39,40]. 近期, 我们用ULE材料的参考腔取代了Zerodur腔. 新的ULE腔长为10 cm, 细度高达200000, 放置在一台主动隔振平台(TS-140, Table Stable)上, 并进行了双层温度控制和噪声隔离. 为了评估该激光器的线宽, 进行了与另一台独立锁定激光器的拍频实验. 结果表明两激光器拍频后线宽约为1 Hz(如图7(a)). 如果两台激光器的线宽相当, 那么每台激光器的线宽约为0.8 Hz. 扣除31 mHz/s的线性漂移后, 测量得到激光器的稳定度在1–100 s的时间内为 2×10^{-15} (如图7(b)).

2.1.3 飞秒光梳

实验中, 利用飞秒光梳(FC8004, MenloSystems)实现对钙离子光频标绝对频率测量^[20](如图8). 532 nm泵浦光聚焦于钛宝石晶体, 利用被动锁模技术实现激光器的自锁模, 产生重复频为200 MHz, 30 fs左右的超短脉冲光. 待测探测光(729 nm)的绝对频率可以表示为

图7 (网络版彩图)(a) 钛宝石激光器与半导体激光器的拍频; (b) 利用两台激光器的拍频测到的频率稳定度
Figure 7 (Color online) (a) A 1 Hz linewidth beatnote of the Ti: sapphire laser and the diode laser; (b) the beatnote stability of two locked lasers.

图8 (网络版彩图) 飞秒光梳

Figure 8 (Color online) Femtosecond optical frequency comb.

$f_{\text{laser}} = nf_{\text{rep}} \pm f_{\text{CEO}} \pm f_{\text{beat}}$ [2,3,41,42], 其中 f_{rep} 为光梳的重复频率, f_{CEO} 为载波与包络之间的相位差引起的频移. 飞秒激光被分成两束: 一束用于频率的锁定, 另一束用于对待测激光的频率测量. 飞秒激光的光谱通常被展宽至一个光学倍频程, 覆盖 500–1100 nm. 可通过 f - $2f$ 干涉仪实现自溯源的 f_{CEO} 锁定. 假设基频光低频部分的频率为 $mf_{\text{rep}} + f_{\text{CEO}}$, 经倍频后频率变为 $2(mf_{\text{rep}} + f_{\text{CEO}})$, 而基频光的高频部分的频率为 $2mf_{\text{rep}} + f_{\text{CEO}}$, 两束光经拍频/差频, 探测器探测到的频率即为 f_{CEO} .

2.2 离子光谱的探测

2.2.1 单离子的囚禁及激光冷却

实验中建立和完善了激光冷却、囚禁及探测系统 [33–35,37], 现简述如下.

激光冷却实验中, $^{40}\text{Ca}^+$ 离子 $4^2P_{1/2}$ - $4^2S_{1/2}$ 跃迁发出 397 nm 荧光, 利用光电倍增管(PMT)收集. 为了减小杂散光的影响, 成像系统和 PMT 之间插入两个干涉滤光片以消除 866, 423 nm 及其基频光 846, 854 和 729 nm 激光的影响, 同时在成像点处放置一个小孔来进一步降低散射光本底. 荧光信号通过 PMT 接收后经过前置放大电路放大, 然后输入光子计数器进行计数, 并被计算机采集. 实验中通常将探测光 729 nm 入射离子阱中并挡住 854 nm 淬灭光, 激发 $^{40}\text{Ca}^+$ 离子 $4^2S_{1/2}$ - $3^2D_{5/2}$ 跃迁, 由于 $3^2D_{5/2}$ 态为亚稳态, 离子可以在该态停留较长时间, 此时离子荧光信号消失, 即“量子跳跃”(Quantum

Jumps)(如图9), 如果离子的荧光强度跳变台阶仅为一个, 则认为离子阱仅囚禁单个钙离子.

为了实现对单个囚禁离子运动状态的精密控制, 使之能实现长时间囚禁, 必须有效控制离子的微运动. 首先用优化荧光信号的方法进行微运动的抑制, 然后建立更为灵敏的射频-光子关联测量方法 [43,44], 进行了细致和更有效的补偿实验(如图10). 在射频-光子关联测量方法中, 利用两套甄别器一套记录光子信号, 另一套记录射频信号; 与此同时, 甄别器给出触发信号, 即接收到一个经甄别后的有效脉冲就输出一个 TTL 上升沿触发信号. 两套甄别器分别在光子信号到达时刻和每个射频周期结束时刻给出触发信号. 将这两个触发信号分别作为开始和停止信号输入到时间-幅度转

图9 单离子“量子跳跃”信号

Figure 9 The quantum jump signal of a single trapped $^{40}\text{Ca}^+$ ion.

图10 射频-光子关联实验装置连接示意图

Figure 10 Schematic diagram of the “RF-Photon” correlation technique.

换器(TAC), TAC将开始和停止信号间的时间间隔转化为电压信号. 再将TAC输出的电压信号输入到多通道板(MAC), MAC将不同的电压幅度值按各区间分布进行统计, 统计数据由计算机读取并显示从而得到射频-光子关联测量的实验结果. 通过降低关联信号的幅度来减小离子的微运动.

由于囚禁离子系统光窗的限制, 目前我们利用射频-光子关联技术仅在一维方向上探测和减小微运动. 为了更好地评估和减小微运动频移效应, 采取用EMCCD探测和测量微运动边带谱强度的方法进一步从三维方向评估和减小微运动. 首先利用EMCCD成像的方法可以在微米尺度上直接观察到离子在二维方向上的位移, 若离子在离子阱中的位置偏离鞍点(处于该位置时离子的微运动最小), 增加射频囚禁场的幅度可以观察到离子的位置向离子阱的鞍点靠近; 我们可以通过不断调节补偿电压, 直至改变射频囚禁场幅度时离子的位置不发生变化. 然而利用成像的方法仅能保证离子在二维方向的微运动被优化到最小, 在此基础上还必须借助在第三维方向上观测微运动边带谱强度的方法保证离子在三维方向上的微运动都被调到最小.

通过对实验参数的进一步优化(射频幅度、幅极补偿极电压等), 可以得到稳定囚禁并冷却的单离子信号, 离子发出的荧光计数可达20000/s, 扫描冷却激光时得到的离子荧光信号如图11所示; 最长连续囚禁时间增加到两个月以上.

图11 单离子的荧光信号

Figure 11 The fluorescence signal of single ion.

2.2.2 钟跃迁的探测

1) 激光时序. 对光频标实验中所用的激光均需进行时序控制. 光谱探测中, 为了避免激光造成的频移或展宽, 除探测光外的所有激光均被挡住. 实验中时序的产生由计算机完成, 计算机通过LabVIEW程序控制NI公司的数模转换卡产生TTL脉冲信号, 驱动声光调制器(AOM)和机械快门来完成对各路激光的时序控制(如图12).

实验中先利用397和866 nm激光对离子进行15 ms的激光冷却, 与此同时计算机触发光子计数器采集荧光; 随后854 nm激光与离子作用5 ms, 一旦离子发生量子跳跃, 854 nm激光将离子泵浦到 $4^2P_{3/2}$ 态, 再通过自发辐射回到冷却循环中; 然后用729 nm激光进行12 ms探测, 对应光的Fourier极限约为100 Hz. 同时397, 866和854 nm激光被挡住, 能有效减小探测时这些激光对钟跃迁谱线产生的展宽和频移; 接下来再次利用397和866 nm激光对离子进行15 ms激光冷却, 与此同时触发光子计数器采集荧光并由计算机判断是否发生量子跳跃且记录. 时序的产生有两个关键: 一是必须保证729 nm激光探测时所有其他激光被关断, 二是计算机完成判断是否发生量子跳跃后才打开854 nm激光. 该激光时序被重复多次, 得到如图13的量子跳跃谱.

2) 钟跃迁谱线的探测及光频标的锁定. 实验中利用AOM对激光器的频率进行调节, 即不断微小改变激光器的频率以探测 $^{40}\text{Ca}^+$ 离子钟跃迁谱线, 根据得到的量子跳跃数得到所需信息: 即激光器频率相对钟跃迁

图12 (网络版彩图)激光时序示意图

Figure 12 (Color online) The pulse sequence when observing the clock transition.

图13 (网络版彩图)对其中 $\Delta m_J=0$ 的1个Zeeman峰的细扫结果[37]

Figure 13 (Color online) The result of scanning one Zeeman component with $\Delta m_J=0$ [37].

谱线是偏高还是偏低,通过计算机分析处理信息后反馈到AOM实现对激光器频率的纠偏,使激光器的频率能稳定地锁定到钟跃迁谱线.

采取“四点锁定”[45]方案可以很好地消除一阶Zeeman频移的影响,但在影响 $^{40}\text{Ca}^+$ 离子钟跃迁谱线频率的诸多物理效应中,电四极频移是很重要的影响因素,需要消除电四极频移.我们选择在一个周期内探测 $|m_J|=1/2, 3/2$ 和 $5/2$ 这三对峰消除电四极频移[12,20,37],将激光器的频率锁定到这6个峰的频率平均值上,既可以消除一阶Zeeman频移也可以消除电四极频移.实验中利用适当的激光时序不断探测Zeeman谱线并提供反馈,对6个峰的锁定都类似于四点锁定[45]方法,每

个频率点进行40个脉冲周期的探测,6个峰一共要对12个频率点进行探测,探测完一轮之后给出一次纠偏频率值.

然而,一般情况下由于各方向磁场的不均匀控制,导致Zeeman谱各分量的相对强度相差较大(如图14(a)),此时在一个周期内探寻3对峰比较困难,有时甚至会无法对某些峰实现锁定,特别是要避免某些谱线较弱甚至消失的特定实验环境.理想情况下,探寻的6个峰强度基本相当时最利于锁定实验,因此需要通过控制实验的环境(包括磁场大小、方向以及激光偏振等)以达到理想的实验条件.实验中选取合适的激光偏振方向(接近竖直方向)使得3对Zeeman谱分量的强度相等:通过在探测光进阱之前加入1/2波片改变其偏振方向,并不断扫描Zeeman谱观察各分量,直到找到令人满意的Zeeman谱(如图14(b)).

不同波长的激光分别用不同焦距的透镜聚焦到阱中心,激光束腰一般在100 μm 以内,423 nm激光功率约15 μW ,397 nm激光功率约10 μW ,866 nm激光功率约600 μW ,854 nm激光功率约1 μW ,729 nm激光功率约1–2 nW.

2.3 两台离子光频标的频率比对

2.3.1 频率比对方法

为了提高钙离子光频标的精度,需要分析限制因素.通过比对测量两台光频标的频差是直接且有效的手段.两台钙离子光频标的比对方案如图15所示.图中显示了两台 $^{40}\text{Ca}^+$ 光频标频率比对测量的主要实验

图14 (a) 经过精确磁场控制前的10条Zeeman谱; (b) 经过精确磁场控制后的10条Zeeman谱

Figure 14 (a) Ten components of the Zeeman profile before adjusted; (b) ten components of the Zeeman profile after adjusted.

图15 (网络版彩图)两台钙离子光频标的频率比对方案

Figure 15 (Color online) Overview of setup for the frequency comparison of two $^{40}\text{Ca}^+$ optical frequency standards.

装置图,包括了四个系统,分别为:两套独立运行的离子囚禁系统、729 nm激光探测系统以及计算机程序控制系统. 只有实现了两套独立运行的离子囚禁系统,才能使用729 nm激光对囚禁离子进行探测,分别获得两台 $^{40}\text{Ca}^+$ 光频标的Zeeman谱线,实现两台光频标同时锁定,最终获得频率比对测量结果.

一套能够独立运行的离子阱必须具备离子囚禁、激光冷却、荧光探测收集以及离子附加微运动补偿控制电路等,除此之外,还需要磁场控制系统对离子阱中囚禁离子所处位置的剩余磁场进行有效补偿以及对附加磁场的大小和方向进行精密控制,最终获得适合锁定的Zeeman谱线. 在比对实验中,两台钙离子光频标共用397, 866, 854和729 nm等激光器. 激光系统如前所述.

两套光频标均实现闭环锁定后,比对实验能否顺利进行,主要取决于计算机程序控制是否合理,关键点如下: (1) 由于两套离子阱共用了一台729 nm激光器,因此在实验中要做到两台光频标的独立运行,在程序控制中必须实现独立探测和反馈; (2) 尽量避免外界因素的影响,比如磁场抖动等,程序控制中还要考虑对相应谱线进行同时探测,获得两套光频标的实时频差; (3) 由于729 nm探测光入射两套离子阱的束腰半径不同,要获得合适的Zeeman谱线强度,分别对探测光的功率进行独立调节; (4) 虽然采用相同探测时间得到的两套阱Zeeman谱的极限线宽相同,但由于受到各种加热展宽效应等影响,且Zeeman谱线各分量也会因磁场控制不同略有差别,因此程序控制中还要

实现两套光频标锁定参数独立调节.

经过一系列的实验工作,包括单离子的囚禁、离子微运动的补偿、磁场的精密控制以及激光的稳频,由此开展两台光频标的频率比对测量(如图15). 实验中,声光调制器AO3和AO4用来补偿超稳腔共振频率与钟跃迁频率的差值. 锁定中,虽然两套光频标共用一台探测激光器,但是探测激光分别独立反馈给AO3和AO4以补偿磁场变化并探测钟跃迁谱线,反馈给AO3和AO4的频率值就是第一台钙离子光频标(Trap-1)和第二台钙离子光频标(Trap-2)钟跃迁频率的纠偏值,最终激光器被独立锁定到不同离子的钟跃迁谱线上,而AO3和AO4记录的频率差值就是两套钙离子光频标相对频率差值,为了减小磁场抖动以及激光漂移等引入的误差,将探测激光同时并独立锁定在相应钟跃迁谱线. 在比对实验中,采用两个独立的反馈伺服回路. 通过记录加到AO3及AO4的频率,可以获得两台光频标钟输出频率的差别. 为了消除磁场漂移及激光频率漂移对两台光频标的共模抑制对测量的干扰,我们分别在同步及不同步两种情况下对两台光频标的比对进行了测量,两种情况下的比对测得的稳定度相同,表明当前两台钟的共模程度相对较小.

2.3.2 光频标频率稳定度测量

实现对探测激光以及磁场的优化后,对两套阱的单条Zeeman谱线进行细扫,729 nm激光的探测时间设置为160 ms,可获得单条Zeeman谱线宽由以前的100 Hz^[40]减小到了6 Hz(如图16(a)). 通过继续延长探测时

图16 (网络版彩图)(a) 钙离子钟跃迁其中一条 $\Delta m_f=0$ 的谱线; (b) 两台钙离子光频标比对稳定度^[46]

Figure 16 (Color online) (a) 6 Hz linewidth of one component with $\Delta m_f=0$; (b) the relative fractional stability of two independent $^{40}\text{Ca}^+$ optical frequency standards ^[46].

间并不能得到更窄的谱线, 由于实验表明激光器的线宽小于6 Hz, 初步分析应该受限于激光与离子作用的相干时间: 由于离子在离子阱中受到射频加热, 而在729 nm激光探测时是没有任何激光冷却的, 继续延长探测时间则会导致离子的温度升高, 相干时间变短, 无法得到更窄的谱线; 磁场的抖动等其他因素也可能造成相干时间的变短.

对应6 Hz谱线线宽的锁定参数下, 目前很难稳定锁定, 因此实验中通过缓慢增加探测时间来实现Zeeman谱的稳定锁定. 对于40 Hz线宽Zeeman谱, 实现了48 h的连续频率比对测量, 单台 $^{40}\text{Ca}^+$ 光频标10000 s的稳定度达到 1.6×10^{-16} 的水平; 延长探测时间到80 ms, 实现对10 Hz线宽Zeeman峰的稳定锁定, 通过为期3 d的两台光频标的比对实验, 测量得到单台光钟的相对稳定度为 $1 \times 10^{-14} \tau^{-1/2}$, 在>10000 s时进入了 10^{-17} 的量级, 如图16(b)所示. 稳定度的结果比之前光频标与氢钟的比对结果^[21]好一个数量级以上.

采用我们的实验参数(锁定线宽10 Hz, 单个探测周期约80 ms, 未采用态制备)计算, 理论上量子投影噪声(QPN)极限(如图16(b)蓝色虚线所示)与测量结果一致. 表明已经达到或接近该实验条件下的QPN. 若要继续提高光钟的稳定度, 需要延长激光与离子作用的相干时间, 更长的相干时间有望得到更窄的线宽, QPN极限会更低. 目前仅能做到稳定的80 ms相干时间, 经分析, 相干时间主要受限于离子的温度、阱的加热率以及磁场的抖动和漂移等因素.

2.3.3 钙离子光频标的不确定度评估

除了稳定度测量外, 必须对两台光频标的系统误

差进行评估; 除此之外, 由于两台光频标的环境、结构等有类似的地方, 还要考虑一些共模因素, 需要进行独立测量.

在 $^{40}\text{Ca}^+$ 离子体系 $4s^2S_{1/2}-3d^2D_{5/2}$ 钟跃迁频率测量中, 需要考虑的系统频移主要有: 二阶Doppler频移、电四极频移、Stark频移、黑体辐射频移、ac Stark频移、二阶Zeeman频移、引力红移等. 需要对上述各项系统频移进行分析, 给出各种物理效应引起的频移值及其不确定度^[20,37].

1) 黑体辐射频移. 离子阱位于真空腔内, 周围的黑体辐射会对离子钟跃迁频率产生影响, 即黑体辐射频移.

黑体辐射引起的频移如下:

$$\Delta\nu_{\text{BB}} = -\frac{1}{2}(831.9 \text{ V/m})^2 \left(\frac{T_{\text{B}}(K)}{300 \text{ K}} \right)^4 (\alpha_0(3d) - \alpha_0(4s)), \quad (1)$$

式中, $\alpha_0(4s)$ 和 $\alpha_0(3d)$ 分别为基态和激发态的标量极化率; T_{B} 是背景温度. 由于离子运动范围小, 阱的四周较空旷, 因此造成离子黑体辐射的主要来源是真空室内表面. 当真空室处于室温, 由于室温相对比较稳定且真空室由金属构成, 为热的良导体, 可认为真空室温度与室内环境温度相当. 基态和激发态的标量极化率分别为 $(76.1 \pm 1.1)\alpha_0^3$ 和 $(31.8 \pm 3)\alpha_0^3$, 其中 α_0 表示玻尔半径, $\alpha_0 \approx 0.052918 \text{ nm}$.

由式(1)可见, 需要准确评估黑体辐射频移, 必须精确评估离子所感受到的温度. 对离子光频标而言, 主要需考虑真空腔体的环境温度以及离子阱在射频作用下的温度变化. 室温没有太大波动, 考虑两台离子阱真空腔体温度均接近环境温度. 考虑到射频场可

能会对离子阱加热, 造成阱温度和环境温度不一致的情况. 在装有CaF₂玻窗的另一台真空系统可以通过红外热像仪测量加射频前后环和帽电极的温度变化, 射频所加幅度约为实验所用幅度2倍, 红外热像仪的分辨率为0.1 K, 看不出明显温度变化, 即在射频加热下, 阱的温度升高小于0.5 K, 考虑到阱体约占离子30%的立体角, 总平均温度应为(294.4±1.6) K.

将测得的温度值代入公式(1), 得到两台钙离子光频标的黑体辐射频移均为(-354.5±9.4) mHz, 其中极化率不确定引入5.2 mHz, 温度不确定度引入7.8 mHz.

2) 二阶Doppler频移及Stark频移. 离子在Paul阱中不停运动会引起Doppler频移, 对频率测量造成一定影响. 囚禁在Paul阱中的离子运动可以分为宏运动和微运动. 这些运动会产生二阶Doppler频移. 离子运动也会将离子推离阱中鞍点位置而产生Stark频移. 实验中通过观察离子的运动边带评估离子温度, 从而估算宏运动引起的频移; 并通过成像结合微运动边带的观测在三维方向上估算微运动大小, 从而计算微运动引起的频移. 为了便于讨论, 假设 x 方向为沿环平面的水平方向, y 方向为竖直方向, z 方向为帽极方向.

一定杂散电场下, 离子在Paul阱中会偏离鞍点一定距离并保持平衡^[44]

$$r_i \approx \frac{eE_i}{m\omega_i^2}, \quad i = x, y, z, \quad (2)$$

式中, r 为位移量, e 为离子电量, E 为杂散场强度, m 为离子质量, ω 为宏运动频率. 此时离子偏离势阱鞍点而无法被有效激光冷却, 该运动被称为附加微运动, 以区别由宏运动引起的微运动. 在该平衡点离子受到的均方囚禁场(The Mean Square of The Trap Field)为^[44]

$$E^2(r)_i = \frac{m^2 k_B T_i}{2e^2} \frac{a_i^2 + 2q_i^2}{2a_i + q_i^2} + 8 \left(\frac{q_i E_i}{2a_i + q_i^2} \right)^2, \quad i = x, y, z, \quad (3)$$

式中, k_B 为Boltzmann常数, Ω 为囚禁场的频率, T_i 为离子在 i 方向上的有效温度, a_i 和 q_i 为离子阱的囚禁参数, 对于第一台光频标, 测得的宏运动频率为 $\omega_x \approx \omega_y = 2\pi \times 1.04(1)$ MHz; $\omega_z = 2\pi \times 2.31(1)$ MHz; 计算得到离子阱的囚禁参数为由于 $|a_i| \ll |q_i|$, 式(3)可被简化为

$$\langle E^2(r)_i \rangle = \frac{m\Omega^2 k_B T_i}{e^2} + 8 \left(\frac{E_i}{q_i} \right)^2, \quad i = x, y, z, \quad (4)$$

式中, 第一项由宏运动引起, 第二项由附加微运动引起. 离子受到均方囚禁场所造成的二阶Doppler频移及Stark频移可由下式计算^[44]

$$\begin{aligned} \frac{\Delta\nu}{\nu_0} &= \sum_{i=x,y,z} \left(\frac{\Delta\nu}{\nu_0} \right)_i \\ &\approx -\frac{1}{2mc^2} \left(1 + \frac{2\pi\Delta\alpha_0 \left(\frac{m\Omega c}{e} \right)^2}{h\omega_0} \right) \sum_{i=x,y,z} k_B T_i \\ &\quad - \frac{4e^2}{m^2 c^2 \Omega^2} \left(1 + \frac{2\pi\Delta\alpha_0 \left(\frac{m\Omega c}{e} \right)^2}{h\omega_0} \right) \sum_{i=x,y,z} \left(\frac{E_i}{q_i} \right)^2, \end{aligned} \quad (5)$$

式中, c 为真空中的光速, h 为Planck常数, $\Delta\alpha_0$ 为激发态和基态的标量极化率之差. 式中第一项为宏运动造成的Stark频移及微运动(宏运动引起)造成的二阶Doppler频移之和, 第二项为附加微运动造成的频移. 注意式(5)中仅考虑了Stark频移的标量部分, 由于采用了对 $m_f = \pm 1/2$, $m_f = \pm 3/2$ 及 $m_f = \pm 5/2$ 平均的方法, 张量部分频移被抵消.

对于第二台光频标, 设置射频场频率约24.7 MHz, 通过式(5)计算得到的频移接近0.

除了式(5)中考虑的频移外, 还需要单独考虑宏运动造成的Doppler频移.

(1) 附加微运动造成的频移. 通过观察式(5)中第二项, 我们得知只要准确评估了离子受到未经补偿的静电场 E , 就可以准确评估附加微运动造成的频移.

用成像结合微运动边带的观测方法可以实现三维方向估算未经补偿的静电场 E . 实验中用电子倍增型电荷耦合器件(EMCCD)观察离子在阱中的位置, 分辨率为5 μm . 对于第一台光频标, 改变离子阱的阱深, 将宏运动频率由 $\omega_x \approx \omega_y = 2\pi \times 1.4(1)$ MHz, $\omega_z = 2\pi \times 2.9(1)$ MHz 改为 $\omega_x \approx \omega_y < 2\pi \times 0.2$ MHz, $\omega_z < 2\pi \times 0.4$ MHz, 确认离子在可观测平面内的位移小于5 μm . 实验中CCD观测方向与 x 及 z 方向约成45°夹角, 而与 y 方向垂直, 可以得到^[44]

$$\begin{aligned} |r_{y,\text{higher}} - r_{y,\text{lower}}| &\approx \frac{e|E_y|}{m} \left| \frac{1}{\omega_{y,\text{higher}}^2} - \frac{1}{\omega_{y,\text{lower}}^2} \right| < 5 \mu\text{m}, \quad (6) \\ \left| r_{x,\text{higher}} - r_{x,\text{lower}} \right| \cos \frac{\pi}{4} \pm \left| r_{z,\text{higher}} - r_{z,\text{lower}} \right| \cos \frac{\pi}{4} & \end{aligned}$$

$$\approx \frac{e}{m} \cos \frac{\pi}{4} \left| E_x \left[\frac{1}{\omega_{x,\text{higher}}^2} - \frac{1}{\omega_{x,\text{lower}}^2} \right] \right. \\ \left. \pm E_z \left[\frac{1}{\omega_{z,\text{higher}}^2} - \frac{1}{\omega_{z,\text{lower}}^2} \right] \right| < 5 \mu\text{m}. \quad (7)$$

降低射频场幅度, 若离子在 x, z 方向的位移投影到EMCCD感光面的方向相同, 上式“ $\pm$ ”取“+”号; 反之取“-”号.

除了可以通过直接观察离子在改变势阱深度情况下的位移来估算未经补偿的静电场外, 还可以通过观察微运动边带来评估. 利用729 nm激光测得微运动边带与载波的比值为该比值与未经补偿的静电场 E 的关系为^[44]

$$R_L = \frac{\langle E_L^2(t) \rangle}{2} \left(\frac{e\omega_0}{m\Omega^2 c} \right)^2, \quad (8)$$

式中为729 nm激光频率.

综合式(7)和(8), 以及实验参数, 对于第一台光频标,

$$\begin{cases} |E_x| < 5.2 \text{ V/m}, \\ |E_y| < 3.4 \text{ V/m}, \\ |E_z| < 18.9 \text{ V/m}, \end{cases} \quad (9)$$

代入式(5)计算, 附加微运动造成的频移为 (-17 ± 17) mHz.

对于第二台光频标, 与第一台类似, 可以利用EMCCD观察离子成像结合测量离子微运动边带谱的方法来实现对附加微运动引起频移的评估. 同时设置射频场频率约24.7 MHz, 通过式(5)计算得到频移接近0. 由于囚禁场频率的不确定度以及理论计算获得的极化率的不确定度, 造成了附加微运动的不确定度, 通过计算得到频移为 (0.0 ± 4.6) mHz.

(2) 宏运动造成的Stark频移及微运动(由宏运动引起)造成的二阶Doppler频移. 接下来考虑宏运动造成的Stark频移及微运动(由宏运动引起)造成的二阶Doppler频移, 即式(5)中第一项. 需要评估离子的温度.

在实验中根据离子的宏运动边带与载波之比, 对单离子温度有效值进行测量: 通过扫描729 nm激光频率, 由观察到的量子跳跃数量得到宏运动边带与载波的强度比, 可以计算离子的温度^[47], 从而推算出对应的频移^[44].

对于单离子, 可以求解以下方程组得出离子温度^[47]

$$\left| \frac{\sigma_1}{\sigma_0} \right|_i \cong \left(1 + \frac{h\nu_i}{2k_B T} \right) \frac{I_1(u)}{I_0(u)}, \quad (10)$$

$$u = \left(\frac{k_i^2 h}{4\pi^2 m \nu_i} \right) \left(\frac{k_B T}{h\nu_i} - \frac{1}{2} \right), \quad (11)$$

式中, σ_1/σ_0 为一阶边带与载波的强度比; h 为Planck常量; k_B 为Boltzmann常量; T 为离子温度的有效值; ν_i 为离子宏运动的频率; k_i 为钟跃迁激光波矢在 i 方向上的分量; m 为离子的质量; $I_n(u)$ 为 n 阶的修正贝塞尔函数.

由于难以精确测量离子宏运动方向与激光探测方向的夹角, 在离子温度评估中我们给出30%的不确定度. 通过边带与载波的比值, 得出两台光频标中离子的平均温度分别为 (5.5 ± 2.8) mK和 (3.3 ± 1.5) mK.

根据公式(5), 利用测得的离子温度可以计算得到两台光频标的该项频移分别为 (-6.7 ± 3.4) mHz和 (0.0 ± 3) mHz.

(3) 宏运动造成的二阶Doppler频移. 宏运动造成的二阶Doppler频移可以由下式计算^[44]:

$$\frac{\Delta\nu_{\text{D2, thermal}}}{\nu_0} = -\frac{3k_B T}{2mc^2}, \quad (12)$$

式中, c 为光速, T 为离子温度的有效值, m 为离子的质量, k_B 为Boltzmann常量. 通过该式计算得出, 对于两台光频标, 宏运动造成的二阶Doppler频移分别为 (-7.8 ± 3.9) mHz及 (-4.7 ± 2.2) mHz.

3) ac Stark频移. 无论是激光冷却, 还是钟跃迁频率探测, 离子都会与激光发生作用, 激光会使离子能级发生移动, 称为光频移, 或称ac Stark频移. 要提高光频标的精度, 需要消除或控制ac Stark频移. 在实验中, 采用激光时序从而尽可能减小ac Stark频移, 当利用729 nm激光对钟跃迁谱线进行探测时, 所有其他激光都用AOM或者机械快门挡住. 即使这样, 也无法保证光完全关断, 从而引起ac Stark频移, 因此必须评估各频移大小. 用AOM作为光开关时, 实测挡光效果大于40 dB; 利用机械快门作为光开关时, 挡光效果>70 dB.

对于397 nm激光, 实验中同时用一个机械快门和一个AOM来关断激光, 得到397 nm激光的光频移小于1 mHz. 对于866 nm激光, 用一个机械快门关断激光, 854 nm激光也经过866 nm光路中的机械快门, 为

了保证只有866 nm激光的光频移发生变化, 测量过程中完全关闭854 nm激光. 比较机械快门使用与否测量钟跃迁频率变化, 结果相差小于30 Hz, 那么, 假设这30 Hz是由不加机械快门引起, 当加上机械快门关光时, 由于挡光效率为大于70 dB, 得到866 nm激光的光频移小于1 mHz. 对于854 nm激光, 实验中854 nm激光光路中有两个机械快门(其中一个与866 nm激光共用), 854 nm激光的光频移小于1 mHz. 729 nm激光引起的光频移可以通过测量不同功率下 $^{40}\text{Ca}^+$ 离子的电四极跃迁的频率值获得. 由于光频移与激光的功率成正比, 因此可以通过直线拟合来推导出光频移的大小. 实验中通过改变729 nm激光光强的方法参考氢钟频率对离子谱线进行多次测量, 得出729 nm激光光强对离子Zeeman谱线的影响. 通过统计计算得到, 对于两台光频标, 729 nm激光引起的光频移分别为 (3 ± 3) mHz及 (0.3 ± 3) mHz.

4) Zeeman频移. 实验中, 由于锁定方案为锁到3对Zeeman谱的平均值, 每对谱线的线性Zeeman效应引起的频移大小相等, 符号相反, 因而消除了线性Zeeman频移. 然而, 对不同谱线的探测过程存在时间差, 在此段时间内如果磁场发生变化, 在锁定过程中会产生频移. 因此, 通过评估离子所处位置磁场稳定性评估线性Zeeman效应引起的频移及误差, 评估结果为 (0.0 ± 0.6) mHz.

应用二阶微扰理论, 二阶Zeeman频移为^[47]

$$\Delta\nu_{Z2} = K \frac{\mu_B^2 B^2}{h^2 \nu_{\text{DD}}}, \quad (13)$$

式中, $\nu_{\text{DD}}=8.41\times 10^{12}$ Hz是精细结构的分裂值, h 是Planck常数, K 是常数且决定于子能级^[47],

$$\begin{aligned} K &= \frac{6}{25}; m_J = \pm \frac{1}{2}, \\ K &= \frac{4}{25}; m_J = \pm \frac{3}{2}, \\ K &= 0; m_J = \pm \frac{5}{2}. \end{aligned} \quad (14)$$

在测量时间内, 磁场大小在480–520 nT之间变化, 通过计算得到二阶Zeeman频移小于1 mHz.

5) 电四极频移. 离子在离子阱中运动时, 其电四极矩会与离子所在位置的电场梯度作用, 产生电四极频移^[48], 表达式为^[48]

$$\Delta\nu_{\text{elect-quadr}} = -\frac{1}{4} \frac{dE_z}{dz} \Theta(D, J) \frac{[3m_J^2 - J(J+1)]}{J(2J-1)} \cdot (3\cos^2\beta - 1), \quad (15)$$

式中, $dE_z/dz=4$ A是电场梯度, β 为量子化轴与电势梯度方向的夹角, $\Theta(D, J)$ 代表电四极矩.

由于电场梯度很难精密控制, 因此电四极矩很难精确测定, 在光频测量时通常同时探测 $m_J=\pm 1/2$, $m_J=\pm 3/2$ 和 $m_J=\pm 5/2$ 三对Zeeman峰, 得到三组中心频率值, 对其进行平均可以有效地消除电四极频移^[20,37,49]. 通过计算不同峰平均频率的差值可以估算电四极频移的误差. 实验估算出误差为1.6 mHz.

6) 光频标比对中须单独特别考虑的频移项. 对两台光频标的频差进行系统不确定度评估时, 一般而言如果不共模, 直接将两台光频标的系统误差叠加即可. 然而, 由于两台光频标处于同一环境, 并共用一台探测激光器, 一些共模的频移因素需要单独考虑, 如黑体辐射频移、引力红移等. 对于黑体辐射频移, 由于两台真空系统处于同一平台, 同一实验室, 温差变化相对与温度变化较小; 且我们可以不用考虑极化率的不确定度带来的频移不确定度. 实验中测得温差不确定度为0.5 K, 得到两台光频标的黑体辐射频移差为 (0.0 ± 2.4) mHz, 其中极化率不确定引入0, 温度不确定度引入2.4 mHz. 而对于引力红移, 两阱高度差 <1 cm, 对应比对引入的不确定度为0.4 mHz.

表1总结了上述所有系统误差测量或计算结果. 两台光频标系统误差均进入了 10^{-17} 量级, 第一台光频标系统误差主要受限于微运动评估精度; 第二台光频标受限于离子阱的温度测量精度.

考虑系统误差修正, 测量结果如图17所示. 由此可见, 两台光频标输出频率差别为-13 mHz. 考虑到统计不确定度为8 mHz, 两台光频标的系统不确定度为21 mHz, 总的不确定度为23 mHz; 实验测得的频率差小于总的测量不确定度.

2.4 利用GPS参考SI对钙离子钟跃迁绝对频率的测量

2.4.1 利用飞秒光梳实现光频到微波频率的传递

在钟跃迁绝对频率测量实验过程中, 光梳锁定的频率参考为主动型氢钟(Kvarz, CH1-75A). 光梳与待测激光的拍频信号经放大后, 用30 MHz的窄带带通滤波

表1 两台光频各自及比对标的系统频移和不确定度^[46]**Table 1** Systematic shifts and uncertainties for the evaluations of both the single clocks and the comparison^[46]

物理效应	Clock1		Clock2		Clock2-Clock1	
	频移 (mHz)	相对误差 (mHz)	频移(mHz)	相对误差 (mHz)	频移(mHz)	相对误差 (mHz)
黑体辐射	-354.5	9.4	-354.5	9.4	0.0	2.4
附加微运动	-17.0	17.0	0.0	4.6	17.0	17.6
Stark频移(热运动)及 二阶Doppler频移(宏 运动引起的微运动)	-6.7	3.4	0.0	0.3	6.7	3.4
二阶Doppler频移 (宏运动)	-7.8	3.9	-4.7	2.2	3.1	4.5
Ac Stark 频移 (397, 866和854 nm)	0.5	0.8	0.2	0.5	-0.3	0.9
Ac Stark 频移(729 nm)	3.0	3.0	0.3	0.3	-2.7	3.0
线性Zeeman频移	0.0	0.6	0.0	0.6	0.0	0.8
二阶Zeeman频移	0.1	0.1	0.1	0.1	0.0	0.1
电四极频移	0.0	1.6	0.0	1.5	0.0	2.2
引力红移	—	—	—	—	0.0	0.4
其他效应	0.0	0.1	0.0	0.1	0.0	0.2
伺服误差	15.9	8.1	16.0	8.0	0.1	8.4
总的频移	-367	22	-343	14	24	21

图17 (网络版彩图)两台光频标的输出频率的比较. 红线表示测量的统计平均值, 绿线表示 3σ 统计不确定度^[46]**Figure 17** (Color online) Frequency comparison of the two clocks. The mean frequency is indicated by the red line and the 3σ uncertainties^[46].

器(3 dB带宽范围25–35 MHz)滤波, 然后用参考在同一氢钟源的两台计数器分别同时读取频率. 将探测光(729 nm)锁定到超稳腔, 通过改变直接数字频率合成仪(DDS)的输出频率改变飞秒激光器的重复频率 f_{rep} .

使 f_{beat} 频率约30 MHz. 当信号在RBW=300 kHz下的信噪比小于28 dB时, 两台计数器测得的频率不一致(相差大于1 Hz), 此时测量的结果便不可信. 因此必须优化 f_{beat} 信号的信噪比, 主要是通过优化XYZ三维调整架

以及两束激光重合度进行优化. 优化后的信噪比一般可以大于28 dB. 通过读取计数器的数值, 可以实现参考氢钟频率对729 nm探测激光绝对频率测量.

2.4.2 参考氢钟的频率测量

为了测量 $^{40}\text{Ca}^+$ 离子钟跃迁频率, 将飞秒光梳锁定到氢钟上, 并且连续测量729 nm钟跃迁探测光频率; 与此同时将激光器锁定到离子钟跃迁谱线, 测量729 nm探测光器与离子谱线的频率差. 在单个囚禁 $^{40}\text{Ca}^+$ 离子系统中用探测光对钟跃迁谱线进行探测并用锁定在氢钟上的飞秒光梳对探测光进行频率测量, 然后借助GPS系统参考秒定义对氢钟的频率进行了校准.

2014年11月至2015年1月, 我们对钙离子钟跃迁绝对频率进行了三个月测量(如图18). 在此给出其中一天的测量结果并说明. 利用飞秒光梳测量参考氢钟的729 nm激光频率, 参考在氢钟的光频测量结果 $f_c(i)$ (如图19(a))有明显的短期频率抖动(约 ± 1 kHz以内), 经分析可能是由参考源(氢钟)的短期稳定度所限制. 利用AOM测得的激光与谱线中心的频率差值 $\Delta f(i)$ (如图19(b))以及参考在氢钟的光频测量结果(如图19(c)), 可以计算得到钟跃迁频率 $\nu_0(i) = f_c(i) + \Delta f(i)$, $i = 1, 2, \dots, i_{\max}$, $i_{\max}$ 为总的测量次数. 实验中测量次数约为3500, $\nu_0(i)$ 的统计分布较好地满足正态分布, 平均值的标准差 $\sigma / \sqrt{i_{\max}}$ 约为3.5 Hz(如图19(d)).

图19中每个点代表当天参考到氢钟频率的光跃迁谱线测量结果 $\nu_0(i)$, 误差棒代表当天测量平均值的标准差 $\sigma / \sqrt{i_{\max}}$. 将测量结果进行加权平均, 得到参考

氢钟频率的光频测量值. 除了对各项系统误差进行评估外, 还需对参考源氢钟的输出频率准确度进行评估. 我们采用GPS远程比对方案对氢钟进行评估. GPS接收机(WIPM)接收氢钟的10 MHz信号及PPS信号, 同时接收6–10个GPS卫星的GPS时间信号. 与此同时, 中国计量科学研究院(NIM)的GPS接收机接收UTC(NIM)频率参考信号以及GPS时间信号. 利用精确单点定位技术(Precise Point Positioning Technique, PPP), 计算两台氢钟的频率差异^[20]. 将上述相对频率偏移量进行加权平均, 得到实验中参考氢钟相对于UTC(NIM)的频率差. 与此同时, UTC(NIM)和SI秒定义之间的频率差值可以从BIPM网站获得³⁾, BIPM网站上还可以查到UTC和世界各地的一级频标(Cs喷泉钟)的比较结果, 以及根据比较结果计算出对UTC频率准确度评估值.

为了测量绝对频率值, 实验室所用的钟需要溯源到国际单位制秒, 应将钟的高度修正到大地水准面上. 处在大地表面上不同高度的钟由于受到重力场大小不同而导致的频移即引力红移. 依据湖北省武汉地震计量检定与测量工程中心对光钟所在高度进行的高程测量, 结果为 (27.8 ± 1.0) m, 对应频移为 (1.25 ± 0.05) Hz.

由系统误差和通过GPS系统对氢钟的校准, 给出最后的频率测量误差表见表2.

3 钙离子钟跃迁魔幻波长的测量

原子/离子/分子在特定波长的激光作用下, 会导致上下某两个能级具有相同的偶极极化率, 激光所引

图18 参考氢钟的 $^{40}\text{Ca}^+$ $4S_{1/2}$ - $3D_{5/2}$ 钟跃迁谱线的测量

Figure 18 Frequency measurement of the $^{40}\text{Ca}^+$ $4S_{1/2}$ - $3D_{5/2}$ clock transition referenced to a hydrogen maser.

3) Bureau International des Poids et Mesures (BIPM), Circular T.

图19 (网络版彩图)(a) 参考在氢钟的光频测量结果 $f_c(i)\Delta f(i)$; (b) 利用AOM测得的激光与谱线中心的频率差值 $\Delta f(i)$ 随时间的变化; (c) 通过 $\Delta f(i)$ 和 $f_c(i)$ 计算出的钟跃迁频率 $v_0(i)$ 随时间的变化; (d) $v_0(i)$ 的统计直方图及其高斯拟合

Figure 19 (Color online) (a) Measured probe laser frequency $f_c(i)$ using the comb referenced to the H-maser; (b) measured AOM offset frequency $\Delta f(i)$; (c) frequency of the clock transition $v_0(i)$ calculated from $\Delta f(i)$ and $f_c(i)$; (d) histogram of the $v_0(i)$ with a Gaussian fitting.

表2 绝对频率测量误差表^[46]

Table 2 The absolute frequency measurement budget ^[46]

误差项	2014年11月		2014年12月		2015年1月		总计	
	频移(Hz)	误差(Hz)	频移(Hz)	误差(Hz)	频移(Hz)	误差(Hz)	频移(Hz)	误差(Hz)
系统误差 (表1)	0.37	0.02	0.37	0.02	0.37	0.02		
引力红移	1.25	0.05	1.25	0.05	1.25	0.05		
统计误差	0	1.3	0	0.3	0	0.4		
氢钟(由UTC (NIM)修正)	187.7	0.5	191.5	0.5	192.1	0.5		
UTC (NIM)与TAI频差	-0.7	0.8	-0.7	0.8	-0.4	0.9		
TAI	0.29	0.11	0.22	0.11	0.24	0.16		
总计	188.9	1.6	192.6	1.0	193.5	1.2		
参考氢钟的测量结果	4110421297 76590.2	—	4110421297 76594.5	—	41104212977659 5.2	—		
修正后的测量结果 -411042129776000	401.3	1.6	401.9	1.0	401.7	1.2	401.7	1.1

入的光诱导频移为零, 此波长被称为魔幻波长^[50-53]. 魔幻波长的研究是目前的研究热点之一, 它不仅使得

独立操控内部超精细自旋和外部原子(包括单元素离子)的质心运动成为现实, 而且在量子态操控以及精密

光谱方面具有广泛的应用, 在中性原子体系, 魔幻波长已经从实验上进行了测量^[9,51,54-56], 同时基于魔幻波长而发展的光晶格原子钟^[6-10]已成为原子光频标的发展主要方向之一.

在 $^{40}\text{Ca}^+$ 光频标的系统误差评估中, 囚禁离子射频场导致的运动效应是目前主要的误差来源之一, 假如可以在全光势阱中囚禁离子, 运动效应有望被大大减小甚至消除, 然而全光阱囚禁离子即使可以实现, 由囚禁激光带来的光频移将不得不考虑, 采用魔幻波长全光阱则可消除这种效应. 如果能在魔幻波长全光阱中囚禁多离子, 则有望在很大程度上提高离子光频标的稳定度, 解决单离子光频标稳定度不如目前的中性原子光频标的问题.

图20是魔幻波长测量的实验装置示意图, 整个实验装置包括三部分: $^{40}\text{Ca}^+$ 光频标系统, 395 nm激光器部分以及计算机控制系统. 在魔幻波长测量中涉及到的激光除395 nm激光(L_m)外都经过单模保偏光纤进行传输, 这是因为 L_m 直接传输的功率抖动要比经过光纤稳定得多.

如何控制所有激光的脉冲时序是精确测量 L_m 激光引入光频移非常关键的一步, 在实验中, 397, 866, 854及729 nm激光的脉冲时序与 $^{40}\text{Ca}^+$ 光频标测量钟跃迁频率时的时序相同, 为了测量 L_m 激光引入光频移大小, 引入了 L_m 激光的脉冲时序, 如图21所示, 在激光冷却阶段, 关闭 L_m 激光, 是为了避免 L_m 激光对荧光信号本底的影响, 在探测阶段, 采用的方案是40个周期打开 L_m 激光, 接着40个周期关闭 L_m 激光, 交替进行. 计算机自动记录开关 L_m 激光的频率差值, 即 L_m 激光引入的光频移大小.

为了精确测量 $\lambda_{|m_J|=1/2}$ 和 $\lambda_{|m_J|=3/2}$ 差值大小, 同时对

图20 (网络版彩图) 魔幻波长测量的整体实验装置图
Figure 20 (Color online) Schematic diagram of magic wavelength measurement setup.

图21 (网络版彩图) 魔幻波长测量实验所有激光的脉冲时序示意图
Figure 21 (Color online) Pulse sequence of the magic wavelength measurement experiment.

$\lambda_{|m_J|=1/2}$ 和 $\lambda_{|m_J|=3/2}$ 进行测定, 具体方案为: 在保证其他条件不变的情况下, 通过交替测量在同一波长下不同磁量子数 L_m 激光引入的光频移大小, 当完成一个波长下两个频移量的测量后, 在调节到下一波长, 具体如图22所示, 完成一轮测量后, 对应磁量子数 $|m_J|=1/2$ 和 $|m_J|=3/2$ 的两个魔幻波长值将同时获得. 这一测量方案避免了来自波长计的漂移、宽带谱成分以及激光功率抖动, 所以 $\lambda_{|m_J|=1/2}$ 和 $\lambda_{|m_J|=3/2}$ 的差值可以被精确测量.

根据上述测量方案, 一共进行了10轮测量, 测量结果如图23所示, 从测量结果上可知, 对应 $^2D_{5/2}$ 态 $|m_J|=1/2$ 的魔幻波长 $\lambda_{|m_J|=1/2}=(395.7992\pm 2)$ nm, 同理对应 $^2D_{5/2}$ 态 $|m_J|=3/2$ 的魔幻波长 $\lambda_{|m_J|=3/2}=(395.7990\pm 2)$ nm, 两者之间的差值为 (0.2 ± 6) pm.

魔幻波长的测量结果受诸多因素影响, 其中包括宽带谱成分、激光偏振、离子二阶多普勒效应以及激光波长等. 在所有的系统不确定度中, 由宽带谱成

图22 (网络版彩图) 在6个波长位置, 对应不同磁量子数 $|m_J|$ 交替测量方案
Figure 22 (Color online) Measurement scheme of the magic wavelength for different $|m_J|$, corresponding to 6 different wavelength.

图23 (网络版彩图)(a) 10次 $\lambda_{|m_J|=1/2}$ 的独立测量值; (b) 10次 $\lambda_{|m_J|=3/2}$ 的独立测量值; (c) 10次测量的差值大小^[57]

Figure 23 (Color online) (a) Ten measurements of $\lambda_{|m_J|=1/2}$; (b) ten measurements of $\lambda_{|m_J|=3/2}$; (c) measured wavelength difference ^[57].

分引入的不确定度是最大的一项. 在实验中, 没有采取任何的滤波措施是导致较大误差的主要原因, 所以如果使用一个腔对 L_m 激光进行模式选择, 再通过单模保偏光纤进行空间滤波, 来自这一部分的误差大小将会大大减小. 除此之外, 第二个误差源的最大项就是统计误差, 它主要由激光功率抖动引起的, 所以如果我们采用更好的功率稳定措施或者我们能够实现激光光斑强度的均匀分布, 在相同的测量时间内来自这一部分的不确定度至少可以提高一个量级, 同时, 更长的测量时间同样可以减小测量不确定度.

表3总结了各项系统误差的评估大小, 加上0.2 pm的测量不确定度, 最后给定总的不确定度为0.7 pm, 因此最终获得的两个魔幻波长值分别为 $\lambda_{|m_J|=1/2}=(395.7992\pm 7)$ nm 和 $\lambda_{|m_J|=3/2}=(395.7990\pm 9)$ nm^[57]. 获得的结果和发表的理论计算结果 $\lambda_{|m_J|=1/2}=(395.7982\pm 1)$ nm和 $\lambda_{|m_J|=3/2}=(395.7978\pm 1)$ nm符合^[58].

基于实验上测量得到的魔幻波长, 得到 $4S_{1/2}-4P_{1/2}$ 和 $4S_{1/2}-4P_{3/2}$ 跃迁线强比为 (2.009 ± 4) , 不确定度为 2.0×10^{-3} , 为原子精细结构的研究提供了实验依据.

表3 魔幻波长误差统计表^[57]

Table 3 Magic wavelength measurement uncertainty budget ^[57]

	误差源	$\lambda_{ m_J =1/2}$ 及 $\lambda_{ m_J =3/2}$ 的不确定度 (pm)
1	宽带谱激光	0.60
2	激光偏振	0.01
3	激光波长	0.06
4	二阶Doppler频移及Stark频移	0.01
5	激光波长	0.01
6	统计误差	0.20
	总误差	0.7

4 钙离子 $3d^2D_{5/2}$ 态寿命测量

由于 $^{40}\text{Ca}^+$ 离子 $3d^2D_{5/2}$ 态寿命长的特性(~ 1 s), 使其与很多研究领域具有高度的相关性, 在实验上精确测量 $3d^2D_{5/2}$ 态寿命具有重要意义. 首先, 在光频标领域, 由于 $^{40}\text{Ca}^+$ 离子亚稳态寿命约为1.1 s, $4s^2S_{1/2}-3d^2D_{5/2}$ 电四极跃迁的自然线宽为亚Hz量级, Q 值高达 10^{15} , 因此是光频标很好的候选离子体系^[17-20,46]. 其次, 由于 $3d^2D_{5/2}$ 态具有较长的寿命, 可以应用基态 $4s^2S_{1/2}$ 和亚稳态 $3d^2D_{5/2}$ 态的相干叠加态再进行编码, 较长的相干时间使其在量子信息的存储和处理方面具有广泛的应用^[28,29,31]. 此外, $^{40}\text{Ca}^+$ 离子的电四极跃迁常被用来探测运动学和星云结构, 并用来解释光谱数据, 所以在天文学上也具有重要的应用. 同时通过测量离子亚稳态寿命可以很好地检验波函数以及壳层中电子之间的相互作用^[59-62].

我们的实验基于囚禁在微型环形Paul阱中的单个 $^{40}\text{Ca}^+$ 离子进行, 实验上采用高效量子态探测方法进行荧光计数并采用高精度高同步的脉冲时序对激光进行控制.

$^{40}\text{Ca}^+$ 离子 $3d^2D_{5/2}$ 态寿命测量的简单脉冲时序图如图24所示. 一个测量周期 T 分为三个过程: 第一个过程为离子的激光冷却, 397和866 nm激光打开10 ms将离子冷却到Lamb-Dicke区域. 在激光冷却过程的前5 ms之内854 nm激光同步打开, 目的是为了在新一周期开始前将起初处于 $3d^2D_{5/2}$ 态的离子泵浦到 $4p^2P_{3/2}$ 态, 确保离子很快的跃迁到 $4s^2S_{1/2}$ 态. 第二个过程是离子搁置过程, 在冷却循环结束之后的3 ms内, 729 nm的激光将离子共振激发到 $3d^2D_{5/2}$ 态. 为了消除离子所在位

图24 (网络版彩图) $^{40}\text{Ca}^+$ 离子 $3d^2D_{5/2}$ 态寿命测量的简单脉冲时序图

Figure 24 (Color online) The main processes for the lifetime measurement of the $3d^2D_{5/2}$ state.

置的磁场, 采用Hanle效应, 精密调节3对相互垂直的Helmholtz线圈的电流, 使磁场分裂下的10条Zeeman谱线的全宽<1 kHz. 第三个过程是探测过程. 第一个3 ms用来探测和记录 $4p^2P_{1/2} \rightarrow 4s^2S_{1/2}$ 跃迁的397 nm荧光, 如果离子被729 nm激光共振激发到 $3d^2D_{5/2}$ 态, 荧光信号就会掉到暗态, 这个过程被视为一个有效的测量过程. 第一次探测之后经过一个等待过程(Δt 时间)进行第二次3 ms探测, 在 Δt 的等待时间内所有的激光全部关闭, 使离子不受任何激光影响而发生自发辐射. 进行第二次探测是为了确定经过 Δt 时间自发辐射后离子仍然处于 $3d^2D_{5/2}$ 态还是已经自发辐射到了 $4s^2S_{1/2}$ 态. 对于每一个给定的等待时间 Δt , 连续重复测量上述循环(T)几千次, Δt 的变化范围从50–5000 ms. 第二次探测过程的平均荧光计数与第一次探测时的比值定义为离子亚稳态的衰变几率 P , 离子的自发辐射满足指数衰变规律: $P = e^{-\Delta t/\tau_{5/2}}$.

$^{40}\text{Ca}^+$ 离子 $3d^2D_{5/2}$ 态寿命的测量数据如图25所示. 使用线性回归函数的最小二乘法对测量数据进行拟合, 得到的寿命值为 $\tau_{5/2} = (1171 \pm 9)$ ms (拟合的置信度为 σ_1 , 866 nm激光的功率为290 μW), 拟合偏差如图25中下面部分所示.

实验中 $^{40}\text{Ca}^+$ 离子 $3d^2D_{5/2}$ 态寿命受很多因素的影响, 例如碰撞效应、离子加热效应、激光耦合效应等, 这些效应都会不同程度的影响实际测量的寿命值, 使其比自然寿命值有所减小. 各种效应、测量值与自然寿命值之间的修正计算公式表示为: $\frac{1}{\tau_m} = \frac{1}{\tau_{\text{nat}}} + \sum_i \gamma_i$, 其

中 τ_m 为测量的寿命值, τ_{nat} 为自然寿命值, γ_i 是其他所有因素的影响, 这些因素对 $3d^2D_{5/2}$ 态寿命测量造成的偏差如表4所示.

通过对图25拟合的结果进行系统误差的修正, 得到 $^{40}\text{Ca}^+$ 离子亚稳态 $3d^2D_{5/2}$ 态的寿命值为 (1174 ± 10) ms^[63], 与最近国际上发表的在线型Paul阱中测量的精度最高的实验结果 (1168 ± 7) ms^[30]和 (1168 ± 9) ms^[32]相吻合.

5 总结

我们在实验上搭建了两台钙离子光频标系统, 改进和完善了Trap I, 建立Trap II. 通过对两台光频标细致的系统误差评定, 相对不确定度均小于 6×10^{-17} . 通过两台光频标的频率比对, 两套阱的频率差为 $(3.2 \pm 5.5) \times 10^{-17}$, 其中, 统计不确定度为 1.9×10^{-17} , 系统不确定度为 5.1×10^{-17} , 同时, 两套阱20000 s的频率稳定度均达到了

图25 (网络版彩图) $^{40}\text{Ca}^+$ 离子 $3d^2D_{5/2}$ 态寿命测量数据拟合图^[63]

Figure 25 (Color online) Lifetime measurement result for the $3d^2D_{5/2}$ state. Upper: $D_{5/2}$ population, lower: residuals ^[63].

表4 $^{40}\text{Ca}^+$ 离子 $3d^2D_{5/2}$ 态寿命测量误差统计^[63]

Table 4 Error evaluation for the measurement of the lifetime of the $3d^2D_{5/2}$ state ^[63]

效应	偏移 (ms)	不确定度 (ms)
数据拟合	—	9
碰撞和混态	3	<0.1
加热和离子损失	—	<0.1
866 nm激光功率	—	3
数据分析	—	<0.1
总计	3	10

7×10^{-17} . 这是第一次显示钙离子光频标的性能优于铯喷泉钟. 同时, 我们建立了基于GPS溯源到SI秒定义的光频测量系统. 利用精确单点定位技术计算出我们所和计量院两台氢钟的频率差异, 测量一天可以达到的不确定度小于 1×10^{-14} . 实验测量钙离子频标的绝对频率为 $(411042129776401.7 \pm 1.1)$ Hz. 目前的实验系统采用一维微运动探测和抑制, 下一步需要实现离子阱三维互相垂直方向的微运动探测和抑制. 同时, 精确测量和控制离子所在位置的环境温度有利于更精确地评估离子黑体辐射频移, 同时有望在实验上测量影响离子黑体辐射频移的静态极化率之差. 我们还希望实现WIPM的钙离子光频标和NICT以及Innsbruck大学的钙离子光频标的远程比对, 同时, 我们还希望利用铯喷泉钟作参考实现光频的直接测量, 将钙离子光频标绝对频率的测量精度由目前 10^{-15} 提高到 10^{-16} .

基于建立的单个囚禁冷却钙离子光频标平台, 采用精密测量在特定波长 $^{40}\text{Ca}^+$ 离子光频跃迁的光频移,

在 $^{40}\text{Ca}^+$ 离子体系中测量了 $^{40}\text{Ca}^+$ 离子钟跃迁魔幻波长, 并分析了系统误差. 测量结果为 $^2D_{5/2}$ 态 $|m|=1/2$ 的魔幻波长 $\lambda_{|m|=1/2}=(395.7992 \pm 7)$ nm, 同理对应 $^2D_{5/2}$ 态 $|m|=3/2$ 的魔幻波长 $\lambda_{|m|=3/2}=(395.7990 \pm 7)$ nm, 与Tang等人的理论相吻合(差别小于 4×10^{-6}). 基于此魔幻波长, 得到 $4S_{1/2}$ - $4P_{1/2}$ 和 $4S_{1/2}$ - $4P_{3/2}$ 跃迁线强比为 (2.009 ± 4) , 不确定度为 2.0×10^{-3} , 为原子精细结构的研究提供了实验依据. 研究结果为提高精密测量光谱的精度提供新的思路, 也为未来基于全光囚禁的离子光频标的研究奠定了基础.

同时, 在微型Paul阱中利用单离子的量子跳跃, 采用高精度和高同步的脉冲时序以及高效量子态探测方法, 测量了 $^{40}\text{Ca}^+$ 离子 $^2D_{5/2}$ 态的寿命, 通过对激光功率、离子加热效应、背景气体碰撞效应和探测效应等系统误差及统计误差的详细评估, 最终得到 (1174 ± 10) ms 的实验测量值, 与当前国际上最新发表的实验值相吻合, 并与理论计算值很好地符合.

致谢 感谢研究组的学生刘培亮、边武和邵虎等努力工作, 朱熙文、黄贵龙、李交美、黄学人、郭彬、范浩权、刘曲、曹健、欧保全、屈万成、舒华林、朱艳舞和张志飞的早期工作以及张炜、赵研英和魏志义的光频测量的早期合作; 感谢史庭云、李承斌、唐丽艳、唐永波、马龙生、李天初、梁坤、MITROY J、SAHOO B、李瑛和陈李生的合作; 感谢叶军、MATSUBARA K、GILL P、BERGQUIST J、王义遒、叶朝辉、罗俊、王育竹、李家明、詹明生、方占军、严宗朝和李朝红等讨论和建议.

参考文献

- 1 Levi F, Davide C, Claudio E C, et al. Accuracy evaluation of ITCsF₂: A nitrogen cooled caesium fountain. *Metrologia*, 2014, 51: 270–284
- 2 Reichert J, Niering M, Holzwarth R, et al. Phase coherent vacuum-ultraviolet to radio frequency comparison with a mode-locked laser. *Phys Rev Lett*, 2000, 84: 3232–3235
- 3 Diddams S A, Jones D J, Ye J, et al. Direct link between microwave and optical frequencies with a 300 THz femtosecond laser comb. *Phys Rev Lett*, 2000, 84: 5102–5105
- 4 Hagemann C, Grebing C, Lisdat C, et al. Ultrastable laser with average fractional frequency drift rate below $5 \times 10^{-19}/\text{s}$. *Opt Lett*, 2014, 39: 5102–5105
- 5 Kessler T, Hagemann C, Grebing C, et al. A sub-40-mHz-linewidth laser based on a silicon single-crystal optical cavity. *Nat Photon*, 2012, 6: 687–692
- 6 Bloom B J, Nicholson T L, Williams J R, et al. An optical lattice clock with accuracy and stability at the 10^{-18} level. *Nature*, 2014, 506: 71–75
- 7 Le T R, Lorini L, Le C Y, et al. Experimental realization of an optical second with strontium lattice clocks. *Nat Commun*, 2013, 4: 405–415
- 8 Takamoto M, Takano T, Katori H. Frequency comparison of optical lattice clocks beyond the Dick limit. *Nat Photon*, 2011, 5: 288–292
- 9 Falke S, Lemke N, Grebing C, et al. A strontium lattice clock with 3×10^{-17} inaccuracy and its frequency. *New J Phys*, 2014, 16: 073023
- 10 Beloy K, Hinkley N, Phillips N B, et al. Atomic clock with 1 e^{-18} room-temperature blackbody stark uncertainty. *Phys Rev Lett*, 2014, 113: 260801
- 11 Barwood G P, Huang G, Klein H A, et al. Agreement between two ^{88}Sr optical clocks to 4 parts in 10^{-17} . *Phys Rev A*, 2014, 89: 050501
- 12 Dube P, Madej A A, Tibbo M, et al. High-accuracy measurement of the differential scalar polarizability of a $^{88}\text{Sr}^+$ clock using the time-dilation effect. *Phys Rev Lett*, 2014, 112: 173002
- 13 Godun R M, Nisbet-Jones P B R, Jones J M, et al. Frequency ratio of two optical clock transitions in Yb-171(+) and constraints on the time variation

- of fundamental constants. *Phys Rev Lett*, 2014, 113: 210801
- 14 Huntemann N, Okhapkin M, Lipphardt B, et al. High-accuracy optical clock based on the octupole transition in $^{171}\text{Yb}^+$. *Phys Rev Lett*, 2012, 108: 090801
 - 15 Rosenband T, Hume D B, Schmidt P O, et al. Frequency ratio of Al^+ and Hg^+ single-ion optical clocks. Metrology at the 17th decimal place. *Science*, 2008, 319: 1808–1812
 - 16 Chou C W, Hume D B, Koelmeij J C J, et al. Frequency comparison of two high-accuracy Al^+ optical clocks. *Phys Rev Lett*, 2010, 104: 070802
 - 17 Chwalla M, Benhelm J, Kim K, et al. Absolute frequency measurement of the $^{40}\text{Ca}^+ 4s^2S_{1/2}-3d^2D_{5/2}$ clock transition. *Phys Rev Lett*, 2009, 102: 023002
 - 18 Matsubara K, Hachisu H, Li Y, et al. Direct comparison of a Ca^+ single-ion clock against a Sr lattice clock to verify the absolute frequency measurement. *Opt Express*, 2012, 20: 22034–22041
 - 19 Champenois C, Houssin M, Lisowski C, et al. Evaluation of the ultimate performances of a Ca^+ single-ion frequency standard. *Phys Lett A*, 2004, 331: 298–311
 - 20 Huang Y, Cao J, Liu P, et al. Hertz-level measurement of the $^{40}\text{Ca}^+ 4s^2S_{1/2}-3d^2D_{5/2}$ clock transition frequency with respect to the SI second through the global positioning system. *Phys Rev A*, 2012, 85: 030503
 - 21 Lin Y, Wang Q, Li Y, et al. First evaluation and frequency measurement of the strontium optical lattice clock at NIM. *Chin Phys Lett*, 2015, 32: 090601
 - 22 Chen N, Xu X. Analysis of inhomogeneous-excitation frequency shifts of ytterbium optical lattice clocks. *Laser Phys Lett*, 2015, 12: 015501
 - 23 Zhang X, Zhou M, Chen L, et al. Study on the clock-transition spectrum of cold ^{171}Yb ytterbium atoms. *Laser Phys Lett*, 2015, 12: 025501
 - 24 Chen N, Zhou M, Chen H, et al. Clock-transition spectrum of ^{171}Yb atoms in a one-dimensional optical lattice. *Chin Phys B*, 2013, 22: 090601
 - 25 Zhang J, Yuan W H, Deng K, et al. A long-term frequency stabilized deep ultraviolet laser for Mg^+ ions trapping experiments. *Rev Sci Instrum*, 2013, 84: 123109
 - 26 Zou H, Wu Y, Chen G, et al. Generation of continuous-wave 194 nm laser for mercury ion optical frequency standard. *Chin Phys Lett*, 2015, 32: 054207
 - 27 Chen J. Active optical clock. *Chin Sci Bull*, 2009, 54: 348–352
 - 28 Jurcevic P, Lanyon B P, Hauke P, et al. Quasiparticle engineering and entanglement propagation in a quantum many-body system. *Nature*, 2014, 511: 202–205
 - 29 Ramm M, Pruttivarasin T, Kokish M, et al. Precision measurement method for branching fractions of excited $P_{1/2}$ states applied to $^{40}\text{Ca}^+$. *Phys Rev Lett*, 2013, 111: 023004
 - 30 Barton P A, Donald C J S, Lucas D M, et al. Measurement of the lifetime of the $3d^2D_{5/2}$ state in $^{40}\text{Ca}^+$. *Phys Rev A*, 2000, 62: 032503
 - 31 Sherman J A, Curtis M J, Szwed D J, et al. Experimental recovery of a qubit from partial collapse. *Phys Rev Lett*, 2013, 111: 180501
 - 32 Kreutz A, Becher C, Lancaster G P T, et al. Experimental and theoretical study of the $3d^2D$ -level lifetimes of $^{40}\text{Ca}^+$. *Phys Rev A*, 2005, 71: 032504
 - 33 Shu H L, Guan H, Huang X R, et al. A single laser cooled trapped $\text{Ca-40}(+)$ ion in a miniature Paul trap. *Chin Phys Lett*, 2005, 22: 1641–1644
 - 34 Guo B, Guan H, Liu Q, et al. Preliminary frequency measurement of the electric quadrupole transition in a single laser-cooled $^{40}\text{Ca}^+$ ion. *Front Phys China*, 2009, 4: 144–154
 - 35 Liu Q, Huyang Y, Cao J, et al. Frequency measurement of the electric quadrupole transition in a single laser-cooled $^{40}\text{Ca}^+$. *Chin Phys Lett*, 2011, 28: 013201–013204
 - 36 Guan H, Guo B, Huang G L, et al. Stabilization of the 397 nm and 866 nm external cavity diode lasers for cooling a single calcium ion. *Opt Commun*, 2007, 274: 182–186
 - 37 Huang Y, Liu Q, Cao J, et al. Evaluation of the systematic shifts of a single- $^{40}\text{Ca}^+$ -ion frequency standard. *Phys Rev A*, 2011, 84: 053841
 - 38 Qu W C, Huang Y, Guan H, et al. 397 nm semiconductor laser stabilized with scanning transfer cavity (in Chinese). *China Laser*, 2011, 38: 802008 [屈万成, 黄垚, 管桦, 等. 传输腔稳频的397 nm半导体激光器. *中国激光*, 2011, 38: 802008]
 - 39 Drever R W P, Hall J L, Kowalski F V, et al. Laser phase and frequency stabilization using an optical-resonator. *Appl Phys B-Photophys Laser Chem*, 1983, 31: 97–105
 - 40 Guan H, Liu Q, Huang Y, et al. A 729 nm laser with ultra-narrow linewidth for probing $4S_{1/2}-3D_{5/2}$ clock transition of $^{40}\text{Ca}^+$. *Opt Commun*, 2011, 284: 217–221
 - 41 Udem T, Holzwarth R, Hansch T W. Optical frequency metrology. *Nature*, 2002, 416: 233–237
 - 42 Cundiff S T. Colloquium: Femtosecond optical frequency combs. *Rev Modern Phys*, 2003, 75: 325–342
 - 43 Dehmelt H G. Mono-ion oscillator as potential ultimate laser frequency standard. *IEEE Trans Instrum Meas*, 1982, 31: 83–87
 - 44 Berkeland D J, Miller J D, Bergquist J C, et al. Minimization of ion micromotion in a Paul trap. *J Appl Phys*, 1998, 83: 5025–5033

- 45 Bernard J E, Marmet L, Madej A A. A laser frequency lock referenced to a single trapped ion. *Opt Commun*, 1998, 150: 170–174
- 46 Huang Y, Guan H, Liu P, et al. Frequency comparison of two $^{40}\text{Ca}^+$ optical clocks with an uncertainty at the E-17 Level. *Phys Rev Lett*, 2016, 116: 013001
- 47 Madej A A, Bernard J E, Dube P, et al. Absolute frequency of the $^{88}\text{Sr}^+ 5s^2S_{1/2}-4d^2D_{5/2}$ reference transition at 445 THz and evaluation of systematic shifts. *Phys Rev A*, 2004, 70: 012507
- 48 Itano W M. External-field shifts of the $^{199}\text{Hg}^+$ optical frequency standard. *J Res Natl Inst Stand Technol*, 2000, 105: 829–837
- 49 Dube P, Madej A A, Bernard J E, et al. Electric quadrupole shift cancellation in single-ion optical frequency standards. *Phys Rev Lett*, 2005, 95: 033001
- 50 Takamoto M, Hong F L, Higashir R, et al. An optical lattice clock. *Nature*, 2005, 435: 321–324
- 51 Barber Z W, Stalnaker J E, Lemke N D, et al. Optical lattice induced light shifts in an Yb atomic clock. *Phys Rev Lett*, 2008, 100: 103002
- 52 Yi L, Mejri S, McFerran J J, et al. Optical lattice trapping of ^{199}Hg and determination of the magic wavelength for the ultraviolet $^1S_0 \rightarrow ^3P_0$ clock transition. *Phys Rev Lett*, 2011, 106: 073005
- 53 Mitroy J, Safronova M S, Clark C W. Theory and applications of atomic and ionic polarizabilities. *J Phys B-At Mol Opt Phys*, 2010, 43: 202001
- 54 Kulosa A P, Fim D, Zipfel K H, et al. Towards a Mg lattice clock: Observation of the $^1S_0 \rightarrow ^3P_0$ transition and determination of the magic wavelength. *Phys Rev Lett*, 2015, 115: 240801
- 55 Akatsuka T, Takamoto M, Katori H. Three-dimensional optical lattice clock with bosonic ^{88}Sr atoms. *Phys Rev A*, 2010, 81: 023402
- 56 Park C Y, Yu D, Lee W, et al. Absolute frequency measurement of $^1S_0 (F=1/2) \rightarrow ^3P_0 (F=1/2)$ transition of ^{171}Yb atoms in a one-dimensional optical lattice at KRISS. *Metrologia*, 2013, 50: 119–128
- 57 Liu P, Huang Y, Bian W, et al. Measurement of magic wavelengths for the $^{40}\text{Ca}^+$ clock transition. *Phys Rev Lett*, 2015, 114: 223001
- 58 Tang Y, Qiao H, Shi T, et al. Dynamic polarizabilities for the low-lying states of Ca^+ . *Phys Rev A*, 2013, 87: 042517
- 59 Hobbs L M, Lagrange-Henri A M, Vidal-Madjar A, et al. The location of the CA II ions in the beta Pictoris disk. *Astrophys J*, 1988, 334: L41–L44
- 60 Zeippen C J. M1 and E2 transition probabilities between the $3p^64s^2S_{1/2}$ and the $3p^63d^2D_{3/2}, 2D_{5/2}$ levels in K-like elements with $Z=19$ to 24. *Astron Astrophys*, 1990, 229: 248–252
- 61 Welty D E, Morton D C, Hobbs L M, et al. A high-resolution survey of interstellar Ca II absorption. *Astrophys J Suppl*, 1996, 106: 533–562
- 62 Kwan J, Fischer W. Origins of the H, He I and Ca II line emission in classical T Tauri stars. *Not R Astron Soc*, 2011, 411: 2383–2425
- 63 Guan H, Shao H, Qian Y, et al. Combined experimental and theoretical probe of the lifetime of the $3d^2D_{5/2}$ state in $^{40}\text{Ca}^+$. *Phys Rev A*, 2015, 91: 022511

The progress of the precision spectroscopy with single trapped and laser cooled $^{40}\text{Ca}^+$ ion

GUAN Hua^{1,2,3}, HUANG Yao^{1,2,3} & GAO KeLin^{1,2,3*}

¹State Key Laboratory of Magnetic Resonance and Atomic and Molecular Physics, Wuhan Institute of Physics and Mathematics, Chinese Academy of Sciences, Wuhan 430071, China;

²Key Laboratory of Atomic Frequency Standards, Wuhan Institute of Physics and Mathematics, Chinese Academy of Sciences, Wuhan 430071, China;

³Center for Cold Atom Physics, Chinese Academy of Sciences, Wuhan 430071, China

The experimental study at Wuhan Institute of Physics and Mathematics (WIPM), Chinese Academy of Sciences (CAS) on the precision spectroscopy based on single trapped Ca^+ ion is described in this paper. A single Ca^+ ion is trapped in a miniature Paul trap and laser cooled to Lamb-Dicke regime, and the ion can be trapped more than 2 months. The linewidth of the 729 nm laser for probing the $\text{Ca}^+ 4s^2S_{1/2}-3d^2D_{5/2}$ clock transition is reduced to less than 1 Hz by locked to a super cavity, and the 729 nm laser can be locked more than 1 month continuously. Two similar Ca^+ ion optical frequency standards are set up for frequency comparison. The systematic uncertainty is evaluated to be $<6 \times 10^{-17}$ for both frequency standards. The frequency difference of two frequency standards is measured to be $3.0 (5.5) \times 10^{-17}$ within 42 d. The Allan deviation for a single clock is measured to be $1 \times 10^{-14} \tau^{-1/2}$ with a 3-d-continuous comparison, the stability for a reaches 7×10^{-17} at an averaging time of 20000 s. Meanwhile, the absolute frequency of the $\text{Ca}^+ 4s^2S_{1/2}-3d^2D_{5/2}$ clock transition is measured to be 411042129776401.7(1.1) Hz with respect to the SI second through the Global Positioning System (GPSx). The precision spectroscopy experiments are carried out based on the single Ca^+ ion system. The magic wavelengths for the Ca^+ optical frequency standard are measured to be $\lambda_{|mj|=1/2}=395.7992(7)$ nm and $\lambda_{|mj|=3/2}=395.7990(7)$ nm, which agrees with theoretical calculation made by Tang et al. The lifetime of the $3d^2D_{5/2}$ is measured to be 1174(10) ms, which is agree with the experimental measurement made by University of Oxford and University of Innsbruck and the recent theoretical calculation made by Sahoo.

optical frequency standard, precision spectroscopy, Ca^+ ion, lifetime measurement, magic wavelength

PACS: 42.62.Fi, 37.10.Ty, 43.58.Hp

doi: [10.1360/SSPMA2016-00037](https://doi.org/10.1360/SSPMA2016-00037)