

# トラップしたイオンの精密分光と光周波数標準

古部伸二

## High-Resolution Spectroscopy of Trapped Ions and Optical Frequency Standards

Shinji URABE

Impressive progress has been achieved in optical frequency standards based on a laser-cooled single ion. It seems possible to achieve an accuracy of  $10^{-18}$  for this frequency standard. In this report, the principle of measuring high-resolution optical spectra of a laser-cooled single ion, the status of investigation into several candidate ions, the factors limiting the ultimate accuracy of this standard are reviewed. And also future prospects are discussed.

**Key words:** trapped ions, laser cooling, optical frequency standard

レーザー冷却されたイオンを用いた光領域の周波数標準の研究が大きく進展してきた。光周波数の測定技術の進展とともに  $10^{-18}$  の周波数確度の可能性も議論されている。周波数標準は原子の吸収線を用いて発振器の周波数を安定化することによって実現される。一般に周波数標準に用いられる原子の吸収線には、周波数シフトが小さくシフト量の評価が容易なこと、吸収スペクトルの  $Q$  値 ( $Q = \nu_0 / \Delta\nu$ ,  $\nu_0$ : 共鳴周波数,  $\Delta\nu$ : 共鳴の半値全幅) が大きく信号検出の  $S/N$  比がよいことが要求される。イオントラップ中にレーザー冷却されたイオンを用いた光周波数標準の特徴は、粒子間の衝突やドッpler効果などの各種の周波数シフトが小さいことに加え、スペクトル幅が非常に狭く  $Q$  値の大きな共鳴を利用することである。吸収スペクトルにはイオンの基底状態と準安定状態間の光遷移（クロック遷移とよばれる）が用いられる。準安定状態の自然放出による寿命は数十 ms～数 s であるため、究極的なスペクトル幅は数 Hz～0.1 Hz 程度であり、スペクトルの  $Q$  値は  $10^{14} \sim 10^{15}$  という非常に大きな値となる。また、この光遷移は 1 個のイオンに対しても量子跳躍を観測することにより 100% の効率で検出できる。このような理由により、1980 年代初めに 1 個の冷却イオンを用いた光領域の周波数標準が

Dehmelt により提案された<sup>1)</sup>。その高いポテンシャルを示す結果が得られるようになったのは最近のことである。

### 1. 冷却イオンによる光周波数標準の原理

#### 1.1 イオンの微小領域への閉じ込め

光周波数標準では微小な電極に高周波をかけて動作させる rf (radio frequency) イオントラップ (Paul トランプともいわれる) が主に用いられる。トランプされたイオンの光吸収スペクトルの形状は上準位の放射減衰速度  $\gamma$  とイオンの振動周波数  $\omega_v$  の大きさの関係で異なってくる<sup>2)</sup>。rf イオントラップ中のイオンの運動を三次元の調和振動で表される永年運動で近似すると、基底状態と準安定状態間の遷移の場合には、振動周波数  $\omega_v$  ( $2\pi \times 1 \text{ MHz}$  程度) は  $\gamma$  より十分大きくなる。イオンと相互作用する光の場を  $x$  軸方向に進む入射平面波の形で、 $E = E_0 \cos(kx - \omega t)$  と表し、イオンの運動を簡単のため一次元で考えるとイオンは  $x = x_0 \cos \omega_v t$  で振動しているため、イオンからみる光の場は

$$E = E_0 \cos(kx_0 \cos \omega_v t - \omega t)$$

$$= E_0 \sum_n J_n(kx_0) \cos[(\omega + n\omega_v)t - n\pi/2]$$

となる。 $k$  は波数、 $J_n$  は  $n$  次のベッセル関数である。イオ

$kx_0=4$

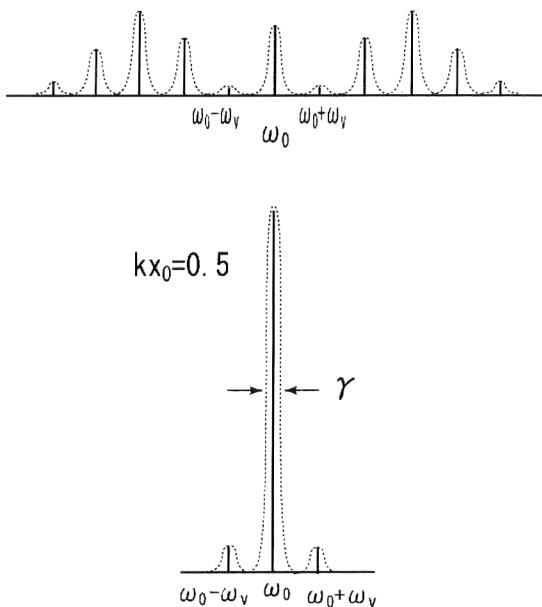


図1 イオンの振動周波数  $\omega_v$  が放射減衰速度  $\gamma$  より大きいときの光吸収のスペクトル。各サイドバンドの大きさは  $J_n(kx_0)^2$  に比例する。 $J_n$  は  $n$  次のベッセル関数,  $k$  は波数,  $x_0$  は振動の振幅。

ンのみる光の場は中心周波数  $\omega$  のキャリヤーと振動周波数  $\omega_v$  の整数倍だけ離れたサイドバンドから構成される。このため、実験室系からみたイオンの光吸収スペクトルも、共鳴周波数  $\omega_0$  のキャリヤーと周波数  $\omega_0 + n\omega_v$  をもつサイドバンドから構成される。各サイドバンドは原子の寿命によって  $\gamma$ だけ広がるが、 $\omega_v \gg \gamma$  であるためにサイドバンドスペクトルは分離して観測される。イオンのスペクトルを図1に示す。スペクトルの強度は  $J_n(kx_0)^2$  に比例する。イオンがレーザー冷却されて振動の振幅  $x_0$  が小さく光の波長以下になった場合には  $kx_0 = 2\pi(x_0/\lambda) \ll 1$  が成り立つためサイドバンドは小さくなり、中心のキャリヤー  $J_0^2$  が支配的となる。キャリヤーは一次ドップラー効果の影響をまったく受けないため、周波数標準として一次ドップラー効果のない吸収スペクトルを提供する。イオンが光の波長以下の領域に局在することを Lamb-Dicke の基準が満たされているという。リングの半径が 0.5 mm の rf トラップを 10 V 程度のポテンシャルで動作させた場合には、1 個のイオンを 5 mK 以下に冷却するとイオン振動の振幅を光の波長以下にすることが可能である。このため光周波数標準ではレーザー冷却には主にドップラー冷却が用いられる。

## 1.2 単一イオンの高分解能分光スペクトルの測定法

光の吸収による 1 個のイオンの基底状態から準安定状態

表1 光周波数標準に用いられるイオン。

イオンの種類	レーザー冷却波長 (μm)	クロック遷移 (μm)	核スピン
$^{43}\text{Ca}^+$	0.397	${}^2\text{S}_{1/2} \leftrightarrow {}^2\text{D}_{5/2}$	7/2
$^{87}\text{Sr}^+$	0.422	${}^2\text{S}_{1/2} \leftrightarrow {}^2\text{D}_{5/2}$	9/2
$^{137}\text{Ba}^+$	0.493	${}^2\text{S}_{1/2} \leftrightarrow {}^2\text{D}_{5/2}$	3/2
$^{171}\text{Yb}^+$	0.369	${}^2\text{S}_{1/2} \leftrightarrow {}^2\text{D}_{3/2}$	1/2
		${}^2\text{S}_{1/2} \leftrightarrow {}^2\text{F}_{7/2}$	
$^{199}\text{Hg}^+$	0.194	${}^2\text{S}_{1/2} \leftrightarrow {}^2\text{D}_{5/2}$	1/2
$^{69}\text{Ga}^+$	0.209	${}^1\text{S}_0 \leftrightarrow {}^3\text{P}_0$	3/2
$^{115}\text{In}^+$	0.231	${}^1\text{S}_0 \leftrightarrow {}^3\text{P}_0$	9/2
$^{205}\text{Tl}^+$	0.191	${}^1\text{S}_0 \leftrightarrow {}^3\text{P}_0$	1/2

への遷移は Dehmelt によって提案されたシェルビング法を用いた量子跳躍の観測によって測定される<sup>3)</sup>。周波数標準には基底状態と 2 つの励起状態からなる V 型の 3 準位系のイオンが用いられる(図2 または図4 を参照)。1 つの励起状態は基底状態への強い遷移をもち、寿命は約  $10^{-8}$  秒程度である。もう 1 つの励起状態は準安定状態で数十 ms ~ 数 s の寿命をもつ。強い遷移を用いてイオンのレーザー冷却を行うと蛍光信号が観測される。その後準安定状態への弱い遷移に一致するレーザーを照射する。イオンが光を吸収して量子跳躍により準安定状態へ遷移するとイオンの蛍光が消失する。このため 1 個の光子の吸収を強い遷移の蛍光の変化で観測することができる。観測の効率を  $10^{-4}$  とすると、1 個の光子を約 10000 個の光子に增幅して測定することができる。この測定方法は“電子の棚上げによる量子増幅”とも名付けられる。

量子跳躍の頻度を測定すると 1 個のイオンの準安定状態と基底状態間の遷移の高分解能分光スペクトルを測定することができる<sup>4)</sup>。スペクトルを測定するためには観測用のレーザー光とレーザー冷却用のレーザー光をイオンに交互に照射する。観測用レーザーの周波数を共鳴周波数付近で少しづつ掃引して、そのたびに量子跳躍の頻度を測定して遷移確率を求める。測定されたスペクトルは量子化スペクトルともいわれ、周波数標準の参照スペクトルとして用いられる。

## 2. イオンの種類

表1 に光周波数標準の候補となるイオンの種類を示す。最外殻に 1 個の電子をもつアルカリ型イオンおよび 2 個の電子をもつアルカリ土類型イオンが候補となっている。アルカリ型イオンの場合には基底状態  ${}^2\text{S}_{1/2}$  と準安定状態  ${}^2\text{D}_{5/2}$  間の電気四重極遷移がクロック遷移として用いられる。アルカリ型イオンの場合は奇数同位体が候補となる。基底状態と準安定状態の電子の全角運動量の量子数がそれ

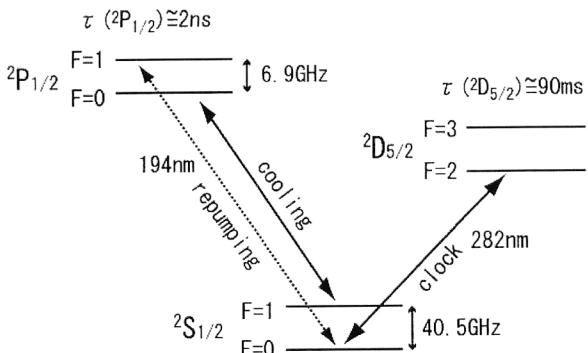


図2  $^{199}\text{Hg}^+$  のエネルギー準位図。レーザー冷却遷移は  $^2\text{S}_{1/2}$ ,  $F=1 \leftrightarrow ^2\text{P}_{1/2}$ ,  $F=0$ , クロック遷移は  $^2\text{S}_{1/2}$ ,  $F=0 \leftrightarrow ^2\text{D}_{5/2}$ ,  $F=2$  である。光ポンピングを防ぐために冷却にはもう1本のレーザーが必要である。

それ  $1/2$  と  $5/2$  であるため、奇数同位体のように核スピンの量子数が半奇数の場合は超微細構造準位の量子数  $F$  はそれぞれ整数になる。このため磁場に対する一次項がなくゼーマンシフトの小さい基底状態の  $m_F=0$  と準安定状態の  $m_F=0$  準位間の遷移をクロック遷移として用いることができる。

アルカリ土類型イオンについては一重項  $^1\text{S}_0$  と三重項  $^3\text{P}_1$  間の遷移 (intercombination line といわれる) がレーザー冷却に用いられる。この遷移は LS 結合では禁制遷移であるが、イオンが重くなるにつれて LS 結合が厳密になり立たなくなるため基底状態への遷移が存在する。表の3列目には基底状態  $^1\text{S}_0$  と準安定状態  $^3\text{P}_0$  間のクロック遷移が示される。この遷移は高次の多重極遷移についても禁制遷移であるが実際には超微細構造相互作用によって  $^1\text{P}_1$  および  $^3\text{P}_1$  準位がいくらか混じるために非常に小さい遷移確率であるが基底準位への遷移が存在する。

### 3. 冷却イオンを用いた光周波数標準の現状

光周波数標準の研究は最初にレーザー冷却の容易なアルカリ型イオンの偶数同位体を用いて進められた。最初に報告されたのは1個の  $^{88}\text{Sr}^+$  の電気四重極遷移を用いたものである。2つのイオントラップ中のイオンのクロック遷移の周波数比較やクロック遷移にロックしたレーザー周波数の絶対測定が周波数チェーンを用いて行われた<sup>5,6)</sup>。最近ではアルカリ型イオンの奇数同位体やアルカリ土類型イオンを用いて研究が進められている。以下、代表的なイオンである  $^{199}\text{Hg}^+$  と  $^{115}\text{In}^+$  について説明する。

図2に  $^{199}\text{Hg}^+$  のエネルギー準位図を示す。レーザー冷却には 194 nm にある  $^2\text{S}_{1/2}$ ,  $F=1$  と  $^2\text{P}_{1/2}$ ,  $F=0$  準位間の遷移を用いる。光ポンピングを防ぐために  $^2\text{S}_{1/2}$ ,  $F=0$  から

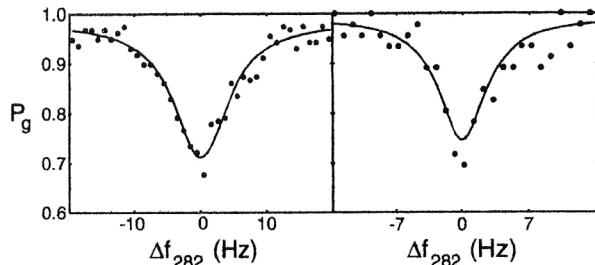


図3  $^{199}\text{Hg}^+$  のクロック遷移の量子化スペクトル。横軸は 282 nm のプローブレーザーの周波数離調、縦軸はイオンの基底状態の存在確率である。左と右の図はそれぞれ観測時間が 80 ms, 120 ms の場合の測定結果。右図においてはスペクトル幅 6.7 Hz が得られている (文献7) より)。

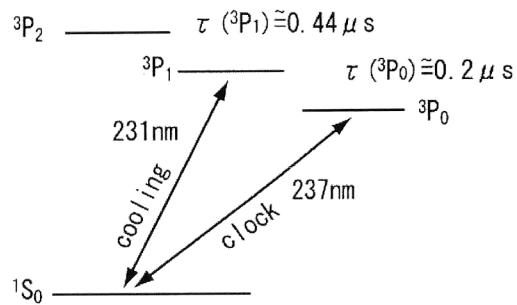


図4  $^{115}\text{In}^+$  のエネルギー準位図。レーザー冷却遷移は  $^1\text{S}_0 \leftrightarrow ^3\text{P}_1$ , クロック遷移は  $^1\text{S}_0 \leftrightarrow ^3\text{P}_0$  である。

$^2\text{P}_{1/2}$ ,  $F=1$  準位間にもう1台のレーザー光を照射する。イオンが冷却されると、再励起用のレーザーを切ってイオンを  $^2\text{S}_{1/2}$ ,  $F=0$  準位へ移す。次に 282 nm 光を照射してクロック遷移である  $^2\text{S}_{1/2}$ ,  $F=0$ ,  $m_F=0$  と  $^2\text{D}_{5/2}$ ,  $F=2$ ,  $m_F=0$  準位間の遷移を観測する。 $^{199}\text{Hg}^+$  の利点は核スピンの量子数が  $I=1/2$  であるため基底状態にゼーマン副準位の縮退のない  $F=0$  の準位が存在し、簡便に 100% の効率で準位の選別が可能であることである。 $^2\text{D}_{5/2}$  準位の寿命は 90 ms であり、究極のスペクトルの  $Q$  値は  $6 \times 10^{14}$  となる。図3は NIST (National Institute of Standards and Technology) の研究グループにより狭スペクトルレーザーを用いて測定されたクロック遷移のスペクトルの例を示す。スペクトル幅が 6.7 Hz でスペクトル  $Q$  値として  $1.6 \times 10^{14}$  という非常に大きな値が観測されている<sup>7)</sup>。

図4に  $^{115}\text{In}^+$  のエネルギー準位図を示す。 $^{115}\text{In}^+$  は基底状態の電子の全角運動量の量子数がゼロであるため超微細構造分裂がなく1本のレーザーのみで冷却できる。 $^{115}\text{In}^+$  の核スピンは  $I=9/2$  である。231 nm の円偏光を用いて  $^1\text{S}_0$ ,  $F=9/2$  と  $^3\text{P}_1$ ,  $F=11/2$  間の  $\sigma$  遷移を励起することによってレーザー冷却することができる。この遷移は遷移確率が小さいためサイドバンド冷却が可能で数十  $\mu\text{K}$  まで

の冷却が可能である<sup>8)</sup>。次に冷却されたイオンに  $\pi$  偏光の 231 nm 光を照射して  $^1S_0$ ,  $m_F = \pm 1/2$  の準位に光ポンピングを行う。この光ポンピングの効率は 84% と見積もられる。その後 236.5 nm 光を照射して  $^1S_0$ ,  $m_F = \pm 1/2$  と  $^3P_0$ ,  $m_F = \pm 1/2$  の間のクロック遷移を観測する。 $^3P_0$  準位の寿命は約 0.2 s であり究極的なスペクトルの  $Q$  値は  $1.7 \times 10^{15}$  となる<sup>8)</sup>。236.5 nm 光は 946 nm の Nd:YAG レーザーの四倍波によって発生することができる<sup>9)</sup>。これまでに Max-Planck-Institut の研究グループにより 170 Hz の幅のスペクトルが観測されている<sup>10)</sup>。

スペクトル幅が 1 Hz 以下という狭いクロック遷移を観測するためにはスペクトル幅の狭い高安定レーザーが必要である。 $^{199}\text{Hg}^+$  のクロック遷移を観測するために狭スペクトル、高安定な色素レーザーが開発されている<sup>11)</sup>。スペクトル幅は 32 秒の平均時間に対して 0.6 Hz である。Pound-Drever 法を用いて温度安定化された真空槽内に置かれたフィネス 150000 の ULE 共振器 (ultra low expansion reference cavity) にレーザー周波数をロックしている。共振器の入った真空槽は床に立てた柱あるいは天井から吊り下げられた光学定盤に設置されており、各種の振動対策、音響対策が施されている。レーザーの周波数安定度は 0.1~10 s の間において  $1 \times 10^{-15}$  以下である。このレーザーを  $^{199}\text{Hg}^+$  のクロック遷移にロックして周波数の絶対測定が行われている。レーザーの絶対周波数はモードロックレーザーと非線形ファイバーによって発生された光領域の周波数コム（線スペクトルが周波数一定間隔に並んだ櫛状のスペクトル）を用いて測定されている<sup>12)</sup>。 $^{199}\text{Hg}^+$  のクロック遷移周波数として  $f = 1\,064\,721\,609\,899\,143 \pm 10$  Hz が得られている。不確定さは  $\pm 10$  Hz 以下である。 $^{115}\text{In}^+$  のクロック遷移も同様の方法によって、200 Hz 程度の誤差で測定されている。

#### 4. 周波数精度を制限する要因

周波数精度を制限する主な要因としては、二次ドッpler効果、ゼーマン効果、二次のシュタルク効果、電気四重極シフトなどがあげられる。

##### 4.1 二次ドッpler効果

二次ドッpler効果は特殊相対性理論に起因する周波数シフトで、運動するイオンの時間スケールと実験室系の時間スケールの相違によるものである。質量  $M$  で温度  $T$  のイオンの場合はこのシフトは、 $\Delta f/f = -(3k_B T)/(2Mc^2)$  となる<sup>13)</sup>。 $k_B$  はボルツマン定数、 $c$  は光速度である。たとえば  $^{115}\text{In}^+$  の場合には 1.5 Hz/K と計算される。イオン温度が 1 mK の場合にはシフト量は 1.5 mHz で、 $10^{-18}$  のオーダーのシフトとなる。

4.2 ゼーマン効果

アルカリ型イオンの場合は磁場の一次依存性のない  $m_F = 0$  と  $m_F = 0$  間の遷移を用いるためゼーマンシフトは小さい。 $^{199}\text{Hg}^+$  の場合には磁場  $H$  をガウスで表すと、 $\Delta f/f = -1.8 \times 10^{-13} \times H^2$  となる<sup>13)</sup>。磁場が 1 mG 程度に抑えられるとするとこのシフトは容易に  $10^{-18}$  以下になる。一方アルカリ土類型イオンではクロック遷移の 2 つの準位  $^1S_0$  および  $^3P_0$  の全角運動量の量子数  $F$  は半奇数となるため ( $^{115}\text{In}^+$  の場合はそれぞれ  $F = 9/2$  である)、 $m_F = 0$  の準位は存在せず、さらに 2 つの準位の  $g$  因子が超微細構造相互作用によっていくらか異なってくるため、一次のゼーマン効果が生じる。 $^{115}\text{In}^+$  についてはクロック遷移である  $^1S_0$ ,  $m_F = \pm 1/2$  と  $^3P_0$ ,  $m_F = \pm 1/2$  準位間の遷移に対して、 $\Delta f = \mp 224 \times H$  (Hz) が得られている<sup>10)</sup>。 $10^{-18}$  の確度を得るためにには磁場に対して  $\mu\text{G}$  程度の制御が必要になる。

##### 4.3 二次のシュタルク効果

rf イオントラップの場合は高周波電場を用いてイオンを捕獲するため電場による二次のシュタルクシフトを受けれる。トラップ中のイオンの位置における rf 電場の振幅を  $E_\theta$  とするとこのシフトは、 $\Delta f = \sigma E_\theta^2/2$  と表される。 $\sigma$  はイオンの種類および遷移で決まるシュタルクシフト係数である。イオンの温度が  $T$  のときは、 $\Delta f = \sigma M \Omega^2 k_B T / e^2$  となる<sup>14)</sup>。 $M$  はイオンの質量、 $\Omega$  はトラップを駆動する高周波の角周波数、 $e$  は電荷素量である。 $\sigma$  については  $^{138}\text{Ba}^+$  の  $^2S_{1/2}$  と  $^2D_{5/2}$  の遷移について測定されている<sup>14)</sup>。たとえば  $m_s = 1/2$  と  $m_D = 1/2$  間の遷移については  $6.1 \text{ mHz}/(\text{V}/\text{cm})^2$  である。イオンの温度が 1 mK で  $\Omega/2\pi = 26 \text{ MHz}$  のときはこのシフトは 2 mHz 程度となる。 $^{115}\text{In}^+$  についてはこのシフトは  $1 \text{ mHz}/(\text{V}/\text{cm})^2$  程度と予測されており 1 mK 以下の温度のイオンに対しては  $10^{-18}$  以下になる<sup>10)</sup>。

##### 4.4 電気四重極シフト

四重極成分を含む不均一電場が存在するとイオンのエネルギー準位は電気四重極シフトを受ける<sup>15)</sup>。イオントラップでは四重極電場を用いてイオンを捕獲するためトラップ電場によってこのシフトを受ける。 $^{199}\text{Hg}^+$  などのアルカリ型イオンでは基底状態  $^2S_{1/2}$  についてはこのシフトはゼロであるが、準安定状態  $^2D_{5/2}$  はシフトする。トラップ電場によるシフトは動作パラメーターなどを用いて推定できるが、トラップ電極に付着した金属による接触電位差による不均一電場が存在する場合にはシフト量を推定することは困難である。 $^{199}\text{Hg}^+$  の実験では強い静電場を用いるリニア型トラップを用いたためこのシフトが支配的であった。このシフトは原理的には直交する 3 つの量子化磁場に対して

クロック遷移周波数を測定し平均することによって消すことが可能である<sup>16)</sup>。 $^{199}\text{Hg}^+$ の実験においてはシフト量そのものが大きかったため、平均操作によっても $10^{-14}$ 程度の周波数の不確定さが残り、最も大きな不確定要因となっている<sup>7)</sup>。このシフトはアルカリ型イオンを用いる場合には最も問題になることを Dehmelt は予測している<sup>1)</sup>。一方、 $^{115}\text{In}^+$ などのアルカリ土類型イオンの場合には $^1\text{S}_0$ および $^3\text{P}_0$ 準位はともに電子の全角運動量がゼロであるため電気四重極シフトはまったく受けない。

## 5. その他のイオン

その他のイオンとしてはアルカリ型イオンについては $^{171}\text{Yb}^+$ 、 $^{87}\text{Sr}^+$ および $^{43}\text{Ca}^+$ がある。 $^{171}\text{Yb}^+$ は PTB (Physikalisch-Technische Bundesanstalt) などで研究が進められている<sup>17)</sup>。寿命が 10 年間という準安定状態 $^2\text{F}_{7/2}$ 間の電気八重極遷移についても研究が行われている<sup>18)</sup>。 $^{87}\text{Sr}^+$ については NPL (National Physical Laboratory) などにおいて研究が進められている<sup>19)</sup>。 $\text{Ca}^+$ は量子計算などの量子制御の実験に最も多く使われる<sup>20)</sup>。 $\text{Ca}^+$ はレーザー冷却光源、クロック遷移観測用光源を半導体レーザーの基本波のみで構成できるため小型で信頼性の高い装置を構成できる利点をもっている<sup>21)</sup>。しかしながら奇数同位体 $^{43}\text{Ca}$ の自然同位体中の存在比が 0.13% と非常に小さく入手が困難なことが難点である。微量同位体はレーザー冷却や加熱とトラップの質量弁別特性を用いても選別捕獲することが可能であるが<sup>22)</sup>、最近、奇数同位体を含む $\text{Ca}^+$ の微量同位体を光イオン化法によって効率よく選別捕獲できることが示された<sup>23,24)</sup>。

アルカリ土類型イオンについては $\text{Tl}^+$ 、および $\text{Ga}^+$ が考えられる。 $\text{Tl}^+$ は Dehmelt による最初の提案において候補としてあげられたものである<sup>1)</sup>。レーザー冷却遷移の波長が 191 nm、クロック遷移が 202 nm という真空紫外や深紫外領域にあるため現在のところ実験はなされていない。 $\text{Ga}^+$ は 209 nm にあるレーザー冷却遷移の遷移確率が $\text{In}^+$ よりもさらに小さいため単一イオンの蛍光検出には集光効率を上げるなどの工夫が必要である。

Dehmelt による提案から、1 個の冷却イオンを用いた光周波数標準が現実のものとなった今日に至るまで約 20 年を要している。この間にイオントラップ技術や分光計測技術はもちろんのことレーザーの周波数安定化や制御技術、さらには周波数計測技術の大きな発展があった。 $10^{-18}$  の周波数確度が期待されているが、周波数シフト要因などの原理的な面から考えると十分な可能性をもつ。アルカリ型イ

オンの場合は電気四重極シフトが最終的な確度の制限要因と予想されるがアルカリ土類型イオンについてはこのシフトはないので有利かもしれない。ただし数  $\mu\text{G}$  程度の磁場の制御が必要である。今後は周波数測定の精度の向上のためにクロック遷移観測用レーザーのさらなる高性能化が重要になってくると考えられる。レーザーの性能の向上とともに周波数確度が $10^{-15}$  あるいはそれ以下に進むにつれて冷却イオンのもつポテンシャルがより明らかになってくるだろう。

## 文 献

- 1) H. G. Dehmelt: "Mono-ion oscillator as potential ultimate laser frequency standard," IEEE Trans. Instrum. Meas., **31** (1982) 83-87.
- 2) D. J. Wineland and W. M. Itano: "Laser cooling of atoms," Phys. Rev., **20** (1979) 1521-1540.
- 3) W. Nagourney, J. Sandberg and H. Dehmelt: "Shelved optical electron amplifier: Observation of quantum jumps," Phys. Rev. Lett., **56** (1986) 2797-2799.
- 4) J. C. Bergquist, W. M. Itano and D. J. Wineland: "Recoilless optical absorption and Doppler sideband of a single trapped ion," Phys. Rev. A, **36** (1987) 428-430.
- 5) G. P. Barwood, G. Huang, H. A. Klein, P. Gill and R. B. M. Clarke: "Subkilohertz comparison of the single-ion optical clock  $^2\text{S}_{1/2}$ - $^2\text{D}_{5/2}$  transition in two  $^{88}\text{Sr}^+$  traps," Phys. Rev. A, **59** (1999) R3178-R3181.
- 6) J. E. Bernard, A. A. Madej, L. Marmet, B. G. Whitford, K. J. Siemsen and S. Cundy: "Cs-based frequency measurement of a single, trapped ion transition in visible region of the spectrum," Phys. Rev. Lett., **82** (1999) 3228-3231.
- 7) R. J. Rafac, B. C. Young, J. A. Beall, W. M. Itano, D. J. Wineland and J. C. Bergquist: "Sub-dekahertz ultraviolet spectroscopy of  $^{199}\text{Hg}^+$ ," Phys. Rev. Lett., **85** (2000) 2462-2465.
- 8) E. Peik, G. Holleman and H. Walther: "Laser cooling and quantum jumps of a single indium ion," Phys. Rev., **49** (1994) 402-408.
- 9) G. Holleman, E. Peik and H. Walther: "Frequency-stabilized diode-pumped Nd: YAG laser at 946 nm with harmonics at 473 and 237 nm," Opt. Lett., **19** (1994) 192-194.
- 10) Th. Becker, J. v. Zanthier, A. Yu. Nevesky, Ch. Schwedes, M. N. Skvortsov, H. Walther and E. Peik: "High-resolution spectroscopy of a single  $\text{In}^+$ : Progress towards an optical frequency standard," Phys. Rev. A, **63** (2001) article no. 051802.
- 11) B. C. Young, F. C. Cruz, W. M. Itano and J. C. Bergquist: "Visible lasers with subhertz linewidths," Phys. Rev. Lett., **82** (1999) 3799-3802.
- 12) Th. Udem, S. A. Diddams, K. R. Vogel, C. W. Oates, E. A. Curtis, W. D. Lee, W. M. Itano, R. E. Drullinger, J. C. Bergquist and L. Hollberg: "Absolute frequency measurement of  $\text{Hg}^+$  and  $\text{Ca}$  optical clock transitions with a femtosecond laser," Phys. Rev. Lett., **86** (2001) 4996-4999.
- 13) D. J. Wineland, W. M. Itano, J. C. Bergquist, J. J. Bollinger, F. Diedrich and S. L. Gilbert: "High accuracy spectroscopy of stored ions," Proc. 4th Symposium on Frequency Stan-

- dard and Metrology* (Springer-Verlag, Heidelberg, 1989) pp. 71-77.
- 14) N. Yu, X. Zhao, H. Dehmelt and W. Nagourney: "Stark shift of a single barium ion and potential application to zero-point confinement in a rf trap," Phys. Rev. A., **50** (1994) 2738-2741.
  - 15) I. I. Sobelman: "The atom in an external electric field," *Atomic Spectra and Radiative Transition*, Chapter 7, 2nd ed. (Springer-Verlag, Heidelberg, 1992) pp. 173-188.
  - 16) D. J. Wineland, J. C. Bergquist, W. M. Itano, F. Diedrich and C. S. Weimer: "Frequency standards in optical spectra," *The Hydrogen Atom*, eds. G. F. Bassani, M. Inguscio and T. W. Hänsch (Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, 1989) pp. 123-133.
  - 17) Chr. Tamm, D. Engelke and V. Bühner: "Spectroscopy of the electric-quadrupole transition  $^2\text{S}_{1/2}$  ( $F=0$ )- $^2\text{D}_{3/2}$  ( $F=2$ ) in trapped  $^{171}\text{Yb}^+$ ," Phys. Rev. A, **61** (2000) article no. 053405.
  - 18) S. A. Webster, P. Taylor, M. Robert, G. P. Barwood and P. Gill: "Kilohertz-resolution spectroscopy of the  $^2\text{S}_{1/2}$ - $^2\text{F}_{7/2}$  electric octupole transition in a single  $^{171}\text{Yb}^+$  ion," Phys. Rev. A, **65** (2002) article no. 052501.
  - 19) M. G. Boshier, G. P. Barwood, G. Huang and H. A. Klein: "Polarization-dependent optical pumping for interrogation of a magnetic-field-independent "clock" transition in laser-cooled  $^{87}\text{Sr}^+$ ," Appl. Phys. B, **71** (2000) 51-56.
  - 20) A. B. Mundt, A. Kreuter, C. Becher, D. Leibfried, J. Eschner, F. Schmidt-Kaler and R. Blatt: "Coupling a single atomic quantum bit to a high finesse optical cavity," Phys. Rev. Lett., **89** (2002) article no. 103001.
  - 21) K. Toyoda, A. Miura, S. Urabe, K. Hayasaka and M. Watanabe: "Laser cooling of calcium ions by use of ultraviolet laser diodes: significant induction of electron-shelving transitions," Opt. Lett., **26** (2001) 1897-1899.
  - 22) K. Toyoda, H. Kataoka, Y. Kai, A. Miura, M. Watanabe and S. Urabe: "Separation of laser-cooled  $^{42}\text{Ca}^+$  and  $^{44}\text{Ca}^+$  in a linear Paul trap," Appl. Phys. B, **72** (2001) 327-330.
  - 23) S. Glude, 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," Appl. Phys. B, **73** (2001) 861-863.
  - 24) A. Mortensen, J. Lindballe, I. S. Jensen, D. Voigt and M. Drewsen: "Isotope selection for ion quantum information processing," *18th International Conference on Atomic Physics*, Poster Presentation Abstracts, K10 (Cambridge, Massachusetts, USA, 2002) p. 253.

(2002年7月27日受理)