

doi: 10.11823/j.issn.1674-5795.2023.04.08

基于双光子光谱的光学频率标准

冯晨, 吕杭哲, 段剑, 齐向晖, 王延辉*

(北京大学 电子学院, 北京 100871)

摘要: 首先概述了双光子跃迁的基本原理, 然后介绍了连续光和脉冲光激发双光子跃迁的光学频率标准在实验上的进展, 考虑到目前双光子光学频率标准的短期稳定度主要受限于本振, 因此发展高功率低频率噪声的激光器用于抑制散粒噪声和互调制噪声是提高双光子光学频率标准短期稳定度的最直接有效的办法。最后介绍了双光子光学频率标准在科学上和工程上的应用。基于双光子直接光梳光谱的氢原子能级间距的测量已经成为测量里德堡常数和质子电荷半径的重要实验技术之一, 在量子电动力学的检验中发挥着重要作用。双光子光学频率标准和微腔光梳的结合也为光学原子钟的小型化和集成化提供了新的可能。

关键词: 双光子跃迁; 频率标准; 精密测量

中图分类号: TB939

文献标志码: A

文章编号: 1674-5795(2023)04-0103-10

Optical frequency standard based on two-photon spectroscopy

FENG Chen, LYU Hangzhe, DUAN Jian, QI Xianghui, WANG Yanhui*

(Department of Electronics, Peking University, Beijing 100871, China)

Abstract: This paper outlines the basic principles of two-photon transition, and then introduces the experimental progress of two-photon optical frequency standards excited by continuous-wave and pulsed laser. Developing the lasers with higher power and lower frequency noise to suppress shot noise and intermodulation noise is the most effective way to improve the short-term stability of two-photon optical frequency standards which is limited by the performance of local oscillators. Finally, this paper summarizes the applications of two-photon optical frequency standards in science and engineering. The measurement of energy level spacing of hydrogen based on two-photon direct comb spectroscopy has become one of the most important techniques to measure Rydberg constant and proton charge radius, and plays an essential role in the test of quantum electrodynamics. The combination of two-photon optical frequency standard and microresonator-based optical frequency comb will pave the way for the miniaturization and integration of optical atomic clocks.

Key words: two-photon transition; frequency standard; precision measurement

0 引言

自英国国家物理实验室(National Physical Laboratory, NPL)第一台铯原子钟^[1]问世, 对原子跃迁

谱线的品质因数和信噪比的提升的追求从未停止。光梳^[2-4]的出现使对光学频率的直接测量成为可能, 光学原子钟具有比微波原子钟高5个数量级的跃迁频率, 因此较有可能达到更高的短期稳定度。

收稿日期: 2023-08-02; 修回日期: 2023-08-15

基金项目: 国家教育部联合基金资助项目(8091B042103)

引用格式: 冯晨, 吕杭哲, 段剑, 等. 基于双光子光谱的光学频率标准[J]. 计测技术, 2023, 43(4): 103-112.

Citation: FENG C, LYU H Z, DUAN J, et al. Optical frequency standard based on two-photon spectroscopy[J]. Metrology & Measurement Technology, 2023, 43(4): 103-112.



目前, 装载在光晶格的铯原子光钟 1 s 稳定度已经可以达到 3.1×10^{-18} , 高稳定度使光学原子钟在引力红移、洛伦兹对称性的检验和暗物质的探测等科学问题上扮演着重要的角色^[5-8], 但是对量子电动力学的检验目前只能借助电子结构简单的氢原子, 而氢原子 1S-3S 能级跃迁因对称性只能由双光子跃迁激发。在工程上, 广泛应用于通信导航的较为成熟的芯片原子钟(Chip-Scale Atomic Clock, CSAC)技术仍处于微波原子钟的阶段^[9], 亟需向小型化光钟的阶段迈进。但是激光冷却和用于激光预稳频的超稳腔的使用大大增加了系统的复杂度, 使高稳定度的光钟都停留在实验室阶段。目前已经实现的小型光钟包括基于碘分子的调制转移谱光钟和钙原子束钟等^[10-11], 但是高炉温(不低于 700 K)和声光调制器(Acousto-optic Modulators, AOM)带来的剩余幅度调制使钙束钟和碘分子钟的稳定度在数百秒便开始恶化。基于双光子光谱光钟的原子气室温度一般不超过 400 K, 也不需要使 AOM 等电学主动器件, 因此成为了小型化光钟的有力竞争者。

20 世纪末, 随着双光子光谱技术的逐渐成熟和光频链的发展, 对双光子跃迁光学绝对频率的精密测量成为可能, 因其在科学与工程上广泛的应用前景, 在最近十几年来, 众多研究机构和科研团队对双光子光学频率标准技术进行了大量研究。1999 年, Silberberg 等人^[12]通过实现量子相干操控, 使脉冲光激发双光子跃迁在接下来的十几年来得到了急速发展。2019 年, 美国国家标准与技术研究院(National Institute of Standards and Technology, NIST)研究组通过两个微腔光梳同时实现了光梳初始频率的确定和频率的精密测量, 实现了 100 s 内稳定度为 $4.4 \times 10^{-12}/\sqrt{\tau}$ 的可集成化的光钟雏形^[13]。2020 年, Hänsch 和 Udem 研究组通过测量氢原子双光子跃迁的绝对频率, 得到了质子电荷半径, 已经成为检验量子电动力学的重要实验依据之一^[14]。

通过对基于双光子光谱的光学频率标准进行

系统性综述, 较为详细地描述了双光子光钟的基本原理和利用连续光、脉冲光激发双光子跃迁作为频率标准的实验进展, 介绍了基于双光子光谱的光学频率标准对基本物理常数的测量和物理原理的检验的重要作用以及在工程上助力导航和通信的小型化和集成化发展。

1 基本原理

原子和分子通过吸收或发射一个光子从初始态 $|1\rangle$ 到达一个中间能级 $|n\rangle$, 再通过吸收或发射一个光子到达末态 $|2\rangle$ 的过程叫做双光子跃迁。因此, 根据能级构型可以将双光子跃迁分为: 阶梯式的双光子吸收、 Λ 型双光子跃迁、V型双光子跃迁以及双光子自发辐射, 四种能级结构图如图 1 所示。如无特殊说明, 本文的双光子跃迁指的是双光子吸收过程。按照中间能级是否为实际存在的能级, 可以将双光子跃迁分为直接双光子跃迁和分步双光子跃迁。

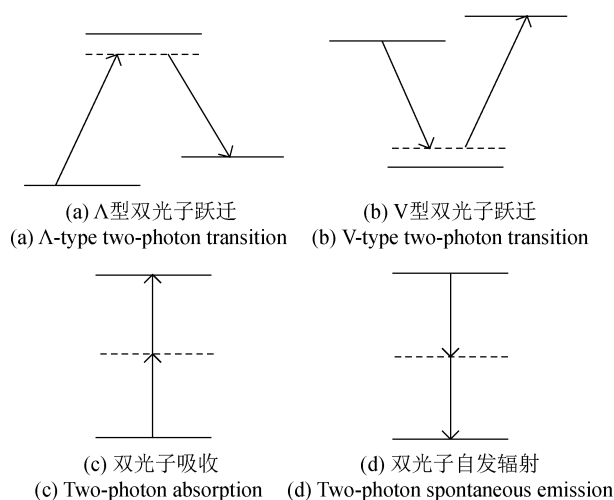


图 1 双光子跃迁能级图

Fig.1 Energy level diagrams of two-photon transitions

假设激发速度为 ν 的原子跃迁的两束光频率分别为 ω_{l1} 和 ω_{l2} , 波矢分别为 $\mathbf{k}_1$ 和 $\mathbf{k}_2$, 偏振矢量分别为 $\mathbf{e}_1$ 和 $\mathbf{e}_2$, 光电场强度大小分别为 E_{l1} 和 E_{l2} , 光强分别为 I_1 和 I_2 , 双光子跃迁的速率可以表示为

$$R_{12} = \sum_i \left| \frac{\langle 2 | e E_{l2} \mathbf{r} \cdot \mathbf{e}_2 | n \rangle \langle n | e E_{l1} \mathbf{r} \cdot \mathbf{e}_1 | 1 \rangle}{\hbar^2 (\omega_{i1} - \omega_{l1} - \nu \cdot \mathbf{k}_1)} + \frac{\langle 2 | e E_{l1} \mathbf{r} \cdot \mathbf{e}_1 | n \rangle \langle n | e E_{l2} \mathbf{r} \cdot \mathbf{e}_2 | 1 \rangle}{\hbar^2 (\omega_{i1} - \omega_{l2} - \nu \cdot \mathbf{k}_2)} \right|^2 \times g(\omega_{l1} + \omega_{l2}) \quad (1)$$

$$g(\omega_{l1} + \omega_{l2}) = \frac{\gamma_{12} I_1 I_2}{[\omega_{12} - (\omega_{l1} + \omega_{l2}) - \nu \cdot (\mathbf{k}_2 + \mathbf{k}_1)]^2 + (\gamma_{12}/2)^2} \quad (2)$$

式中： $\mathbf{r}$ 为原子被极化的位移矢量， ω_{ij} 为原子 i 和 j 能级间的跃迁频率， $\omega_{ij} \equiv \omega_i - \omega_j$ ， $\hbar$ 为约化普朗克常数， g 为原子谱线的线型， γ_{12} 为均匀展宽，一般情况下主要贡献因素是自然线宽。第一项（式(1)等号右边乘号之前）是二阶微扰论的结果，代表着原子在跃迁矩阵元的作用下由初始态 $|1\rangle$ 经过所有可能的中间能级 $|i\rangle$ 最后到达末态 $|2\rangle$ ，第二项 $g(\omega_{l1} + \omega_{l2})$ 为双光子跃迁的线型函数，可以看出对于相互平行的两束光的行波激发，Doppler宽度达到最大值，对于驻波激发，若满足 $\mathbf{k}_1 = -\mathbf{k}_2$ ，则完全实现消多普勒展宽，若激光线宽远小于自然线宽，则会得到 Lorentz 线型的原子光谱，本文主要讨论的就是这种消多普勒的双光子光谱。

在此驻波激发的双光子光谱中，速度为 $\mathbf{v}$ 的原子感受到的两束光：一束为红失谐的频率 ω_{l1} ，另一束为蓝失谐的频率 ω_{l2} ，共振条件为

$$E_2 - E_1 = \omega_{l1} + \omega_{l2} - \mathbf{v} \cdot (\mathbf{k}_2 + \mathbf{k}_1) = \omega_{l1} + \omega_{l2} \quad (3)$$

可以看出：对于驻波激发情况，只要两束激光的频率之和与原子能级共振就能激发双光子跃迁，和原子运动速度 $\mathbf{v}$ 无关，即全部运动速度的原子对跃迁信号都有贡献，这一点也可以弥补双光子跃迁速率远低于单光子跃迁速率的劣势，使跃迁信号具有足够高的信噪比，铷原子的相关能级结构和对应的双光子光谱信号如图2所示。由于单光子跃迁的选择定则要求基态和激发态具有相反的宇称，故利用双光子跃迁可以激发单个光子不能激发的“禁戒跃迁线”，这样的禁戒跃迁线往往具有更窄的线宽。跃迁矩阵元与两束光的偏振特

$$a_f(t) = -\frac{1}{\hbar^2} \sum_n \boldsymbol{\mu}_{2n} \boldsymbol{\mu}_{n1} \int_{-\infty}^t \int_{-\infty}^{t_1} \mathbf{E}(t_1) \mathbf{E}(t_2) \times \exp\{i\omega_{2n}t_1\} \exp\{i\omega_{n1}t_2\} dt_1 dt_2 \quad (4)$$

式中： $\boldsymbol{\mu}_{2n}$ 和 $\boldsymbol{\mu}_{n1}$ 为电偶极跃迁矩阵元， Σ 为跃迁概率幅对所有可能的中间态求和。对于光谱范围较

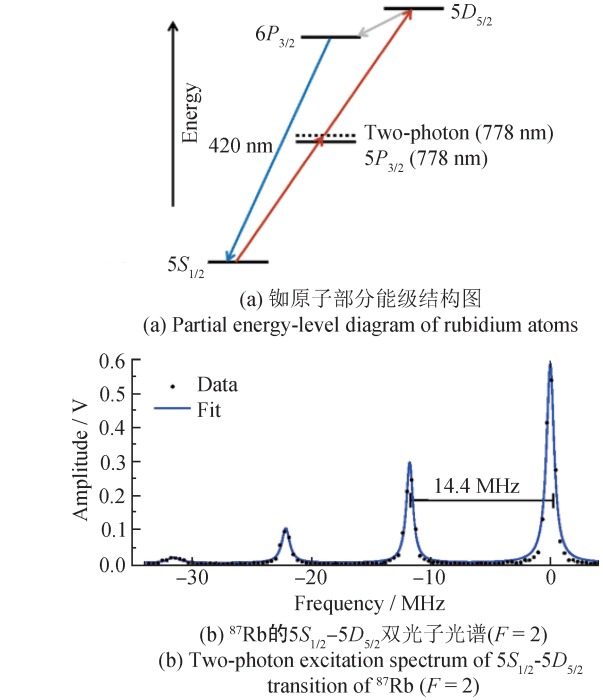


图2 铷原子部分能级结构和对应的双光子光谱信号^[30]

Fig.2 Partial energy-level and corresponding two-photon excitation spectrum signals of rubidium atoms^[30]

性有关，见表1，选择合适的两束光的偏振特性就可以选择原子到达的上能级。

由于脉冲光相比于连续光具有峰值功率高，频谱宽的特征，故利用脉冲光激发双光子跃迁也具有不同于连续光激发的优势。假设激发双光子跃迁的脉冲光的电场为 $\mathbf{E}(t)$ ，双光子跃迁的跃迁概率幅 $a_f(t)$ 可以由二阶含时微扰理论给出^[16]，公式为

窄的脉冲光，光谱范围内不存在共振能级的辅助，此情况下跃迁概率幅可以写为

表1 双光子跃迁选择定则^[15]

Tab.1 Two-photon transition selection rules^[15]

光子1 偏振	光子2 偏振	禁戒跃迁
σ^+	σ^+	$\Delta F: 0 \rightarrow 0, 0 \rightarrow 1, 1/2 \rightarrow 1/2; \Delta M \neq -2$
σ^+	π	$\Delta F: 0 \rightarrow 0, \Delta M \neq -1$
σ^+	σ^-	$\Delta M \neq 0$
π	π	$\Delta F: 0 \rightarrow 0, \Delta M \neq 0$
π	σ^-	$\Delta F: 0 \rightarrow 0, \Delta M \neq 1$
σ^-	σ^-	$\Delta F: 0 \rightarrow 0, 0 \rightarrow 1, 1/2 \rightarrow 1/2; \Delta M \neq 2$

$$a_f(t) \approx -\frac{1}{i\hbar^2} \sum_n \frac{\mu_{2n}\mu_{n1}}{\omega_{n1} - \omega_{21}/2} \times \int_{-\infty}^{\infty} E(\omega) E(\omega_{21} - \omega) d\omega \quad (5)$$

式中： $E(\omega)$ 为 $E(t)$ 的Fourier变换，此形式的跃迁概率幅说明光梳的任意一对梳齿只要满足和频与原子初态和末态的能级间距共振就可以激发双光

$$a_f'(t) = -\frac{1}{i\hbar^2} \mu_{2n}\mu_{n1} [i\pi E(\omega_{n1}) E(\omega_{21} - \omega_{n1}) + \xi \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \frac{E(\omega) E(\omega_{21} - \omega)}{\omega_{n1} - \omega}] \quad (6)$$

式中： ξ 为Cauchy主值，从共振能级的跃迁概率幅的形式可以看出，第一项 $i\pi E(\omega_{n1}) E(\omega_{21} - \omega_{n1})$ 仅与共振频率有关，第二项 $\int_{-\infty}^{\infty} d\omega \frac{E(\omega) E(\omega_{21} - \omega)}{\omega_{n1} - \omega}$ 是对脉冲其他光谱成分的积分，来源于原子在吸收第二个光子之前在中间能级的短暂停留（大约 10^{-13} s），这正如Heisenberg不确定关系预言的那样，失谐越大，在中间能级停留的概率越低。当存在共振能级的辅助时非共振过程对跃迁概率幅的贡献就可以忽略。正如光和原子相互作用的半经典的Lorentz模型预言的一样，对于红失谐和蓝失谐的光谱成分，跃迁概率幅具有符号相反的相位，因此可以利用空间光调制器改变跃迁概率幅的符号控制多个路径量子干涉的行为，这种过程被称为量子相干操控。

虽然利用脉冲光激发双光子跃迁具有通过实现空间或者光谱范围内的量子相干操控，从而达到提高荧光信噪比等连续光激发双光子跃迁无法实现的优势，但是在实验上需要实现两个脉冲序列的完美重合，同时获得光梳的初始频率和实现光梳的稳频等都大大增加了实验的复杂程度。

2 实验进展

2.1 连续光激发双光子跃迁

1931年，Göppert-Mayer最早在理论上详细地讨论了非线性光学中的双光子过程，但因实验缺少足够强的光源，双光子跃迁一直未得到证明^[17]。1962年，哥伦比亚大学的Abella利用红宝石微波激射器观察到了铯原子 $6S_{1/2}$ - $9D_{3/2}$ 的双光子跃迁信号，但是受多普勒展宽的影响，得到的谱线并没有很高的品质因数^[18]。1970年，L. S. Vasilenko等人初步分析了双光子跃迁的线型，并提出了采用两束反向传播的光束激发双光子跃迁从而消除多普勒展宽的理想^[19]。1974年，法国的F. Biraben等

子跃迁，在此条件下，由于所有的光谱成分 $E(\omega)$ 具有相同的相位，建设性的量子干涉使Fourier变换极限的脉冲是激发双光子跃迁的最佳脉冲。对于光谱范围宽到足以覆盖到原子中间实能级的脉冲光，共振的中间态对双光子跃迁的概率幅的贡献为

人通过对比行波场和驻波场中Na原子3S-5S的双光子跃迁谱线线型，在实验上证明了利用双光子跃迁实现消多普勒光谱的可行性^[20]。同年，美国的M. D. Levenson等人利用相同的跃迁线得到的光谱超精细结构清晰可见，并由此得到了Na原子5S态的超精细结构常数^[21]；T. W. Hänsch等人实现Na原子线宽小于30 MHz的3S-4D双光子跃迁谱线^[22]；J. E. Bjorkholm和P. F. Liao利用两束输出频率不同的染料激光器激发Na原子3S-4D的双光子跃迁，经过实验发现了当一台染料激光器的频率调谐到与Na原子3S-3P跃迁频率近共振时，谱线强度提高了7个数量级，说明了分步式的双光子跃迁的跃迁速率远高于直接双光子跃迁^[23]。

随着不同波长和不同种类的激光器和光频链的发展，20世纪90年代对双光子跃迁的绝对频率测量的研究尤为活跃。1993年，F. Nez等人利用碘分子633 nm跃迁线和甲烷3.39 μm 的跃迁线的差频代替了光频链，测量了铷原子 $5S_{1/2}$ - $5D_{3/2}$ 所有超精细跃迁的绝对频率和相对跃迁强度^[24-25]。1996年，D. Touahri等人利用BNM-LPTF光频链测量了铷原子 $5S_{1/2}$ - $5D_{3/2}$ 的绝对频率^[26]。1998年，L. Hilico等人利用了三年时间来对搭建的三套铷原子双光子光频标进行测量，详细地分析了系统稳定度的影响因素并证明了已经达到当时铷原子双光子钟的稳定度极限^[27]。2002年，加拿大的M. Poulin等人将1 556.2 nm的半导体激光器通过周期极化的铌酸锂倍频得到778.1 nm的激光，并通过光反馈将线宽由1 MHz压窄到2.8 kHz，最终得到的双光子跃迁谱线线宽仅为410 kHz，已经十分接近330 kHz的自然线宽。通过伺服环路锁定得到了10 s内的稳定度达到了 $2.5 \times 10^{-13} / \sqrt{\tau}$ ，100 s内的稳定度达到了 5.8×10^{-14} ^[28]，并与加拿大国家计量标准研究院合作测量了跃迁的绝对频率^[29]。

2.2 脉冲光激发双光子跃迁

1977年, 受到 Ramsey 干涉的启发, T. W. Hänsch 和 Cohen-Tannoudji 课题组在实验上分别利用染料脉冲激光器激发钠原子的双光子跃迁并观测到消多普勒的光谱, 结果符合 Ramsey 干涉预期, 得到了窄化的线宽^[31-32]。

1996年, 英国 Strathclyde 大学的 Snadden 等人通过锁模激光器激发铷原子 $5S_{1/2}-5D_{3/2}$, $5S_{1/2}-5D_{5/2}$ 和 $5S_{1/2}-7S_{1/2}$ 的双光子跃迁, 得到的谱线线宽已经很接近自然线宽^[33], 由于当时没有光频梳, 不能确定原子跃迁线的绝对频率。2004年, NIST 的 J. Ye 研究组利用飞秒光梳同步研究了激光冷却的铷原子双光子跃迁的光谱特征(线宽和信号强度等)和时间演化动力学特征随实能级与虚能级失谐量的关系, 并利用光梳测量了跃迁的绝对频率^[34]。

除了测量特定原子跃迁线的绝对频率作为光学频率参考外, 利用量子相干操控的手段提高双光子跃迁的跃迁速率等也逐渐成为一个重要的课题。1998年, 以色列科学家 Meshulach 和 Silberberg 利用飞秒激光脉冲实现了铯原子双光子跃迁的量子相干操控, 通过改变入射光束的光谱相位分布实现了跃迁概率幅的破坏性的量子干涉^[12]。2001年, Silberberg 研究组利用空间调制器遮住 $5P_{3/2}$ 共振能级蓝失谐部分的光谱范围, 虽然牺牲了一部分光功率, 但是通过取消破坏性的量子干涉最终将荧光强度提升为原来的2倍, 实验说明了 Fourier 极限的脉冲并不是激发双光子跃迁的最优脉冲。进一步地, 如果给共振能级蓝失谐部分的光增加额外的 $\pi/2$ 相位, 就可以使破坏性的量子干涉转变为建设性的量子干涉, 实验证明这种方法可以使荧光强度增强为原来的7倍^[35]。2012年, 荷兰阿姆斯特丹大学的 Eikema 研究组通过空间光调制器对光梳施加相位掩膜来实现量子相干操控, 如图3所示, 在热原子气室中, 空间选择性地激发了含有铷和铯两种组分气体的双光子跃迁, 并测量了铷原子的超精细结构常数^[36]。2013年, 该研究组仅利用一个光栅和两个反射镜实现的脉冲整形, 大幅度抑制了双光子跃迁的多普勒本底, 提高了信噪比, 使铷原子 $5S-7S$ 双光子跃迁的绝对频率测量的系统不确定度降低了1个数量级^[37]。

因此, 在空间上和光谱范围内的量子相干操

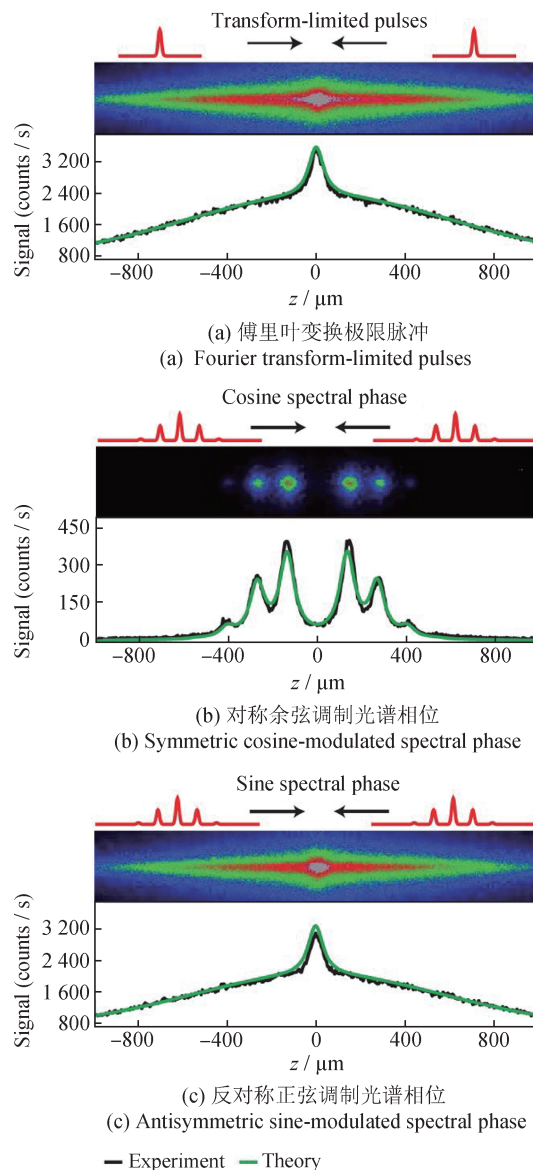


图3 利用不同的相位掩膜实现不同原子组分空间量子相干操控的实验证明

Fig.3 Experimental demonstration of different atomic species spatial coherent control using different phase masks

控的结合可以为非线性光谱、显微镜和高分辨力光谱提供更多的发展空间。

3 双光子光频标的应用

3.1 基本物理常数的测量

量子电动力学作为处理电磁相互作用最基本的理论之一, 能以小数点后12位的准确度来成功预测氢原子的能级间距和电子的朗德g因子, 并成功的解释了氢原子Lamb移动的难题^[38], 在量子电动力学中, 氢原子的能级间距 $E_{n, l, j}$ 可以写为

$$E_{n,l,j} = chR_{\infty} \left[-\frac{1}{n^2} + f_{n,l,j} \left(\alpha, \frac{m_e}{m_p} \right) + \delta_{l,0} \frac{C_{NS}}{n^3} r_p^2 \right] \quad (7)$$

式中： n 为主量子数， l 为角量子数， j 为总角量子数。第一项 $-1/n^2$ 可以由 Bohr 理论和 Schrödinger 方程得到，第二项 $f_{n,l,j}(\alpha, m_e/m_p)$ 由精细结构常数和电子、质子的质量比决定，这些基本常数可以由其他实验准确得到，最后一项 $\delta_{l,0}(C_{NS}/n^3)r_p^2$ 只对 s 电子有修正，来源于质子电荷半径。为了将原子能标转换为国际单位制 (International System of Units, SI units)，需要额外的乘一项里德堡能量 chR_{∞} 。

由公式 (7) 可知，对里德堡常数和质子电荷半径的精密测量成为了检验量子电动力学的一种有效方式。将氢原子的核外电子换为质量更大寿命更短的缪子，所形成的缪子氢原子具有大了 4 个数量级的 C_{NS} ，对质子电荷半径的灵敏度更高，缪子氢原子的能级间距应该同样服从量子电动力学的预测。但是实验上通过测量缪子氢原子得到的质子电荷半径和通过测量常规氢原子得到的质子电荷半径偏离了 4 个标准差^[39]。对于常见的测量方法—质子电子散射实验，过大的能标 ($\sim 1\,000\text{ MeV}$) 和对散射角的角分辨成为了对质子电荷半径和里德堡常数进行更准确测量的主要挑战。因此，准确地测量氢原子的能级间距，反推出里德堡常数 R_{∞} 和质子电荷半径 r_p 成为了最有效的办法。因为氢原子的 $1S-3S$ 跃迁是氢原子品质因数最高的跃迁谱线之一，所以不能通过单光子的电偶极相互作用激发，双光子光频标在量子电动力学的检验中具有独特的作用。2020 年，Hänsch 和 Udem 研究小组利用测量氢原子 $1S-3S$ 双光子跃迁的绝对频率 $f_{1S-3S} = 2\,922\,743\,278\,665.79(72)\text{ kHz}$ ^[12]，此结果比 2018 年通过连续激光得到的结果准确度提高了 3.6 倍，通过 $1S-3S$ 的绝对频率可以得到里德堡常数为 $R_{\infty} = 10\,973\,731.568\,226(38)\text{ m}^{-1}$ ，同时得到质子电荷半径 $r_p = 0.848\,2(38)\text{ fm}$ 。里德堡常数质子电荷半径的测量结果如图 4 所示，虽然利用测量氢原子 $1S-3S$ 双光子跃迁绝对频率的方法得到的质子电荷半径结果和 2014 年给出的氢原子数据相差了 2.9 倍标准差^[40]，但是通过和近期其他实验得到的缪子测量值、氢原子 Lamb 移动的结果和非常低的动量传递下的质子电子散射实验结果符合得更好^[41-42]。

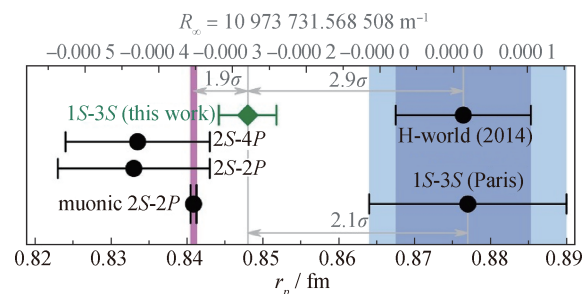


图4 里德堡常数和质子电荷半径的测量结果^[14]

Fig.4 Rydberg constant and proton charge radius measurements^[14]

3.2 小型化与集成双光子光钟

自 2000 年光梳出现之后，光学频率标准在稳定性和系统不确定度上均超越了微波频率标准。近些年，在实验室中，减小光钟 (如光晶格钟^[43]、星载光钟^[44]) 的尺寸和功耗、提升光钟可搬运性已成为重要的研究问题。在通信和导航领域，在不明显增加体积 (不超过 10 L) 和功耗 (不超过 20 W) 的条件下，亟需实现短期稳定度、长期稳定度均超越现有商用微波钟 1 个数量级的可搬运光钟。但是对于现有的高稳定度的冷原子光钟，为了实现激光冷却和探寻原子的量子态会引入多个激光光源和复杂的光学系统设计，为了匹配传统光钟原子跃迁极窄的线宽，本振激光器一般利用高精细度的法布里-珀罗超稳腔实现预稳频，这也会增加系统的体积和复杂度。考虑到以上这些困难，基于热原子的双光子跃迁的光钟以消多普勒和高信噪比的优势成为实现商用光钟的一个有力竞争者。

美国空军技术研究实验室 (Air Force Research Laboratory, AFRL) 于 2018 年利用 1 556 nm 的激光倍频，得到 778 nm 的激光对射激发铷原子的双光子跃迁，并利用光纤传播取代了空间光，实现了 10 000 s 内稳定度达到 $4 \times 10^{-13}/\sqrt{\tau}$ 的小型化光钟，发现了短期稳定度主要受限于 420 nm 荧光探测的光子散粒噪声，通过对磁场的深入研究可知，原子气室温度的波动和 778 nm 激光器的光功率对长期稳定度的影响^[28]。2020 年，NIST 在微型光学面包板上实现了体积为 35 cm³，功耗约为 450 mW，1 000 s 内稳定度达到 $2.9 \times 10^{-12}/\sqrt{\tau}$ 的小型化光钟，短期稳定度主要受限于半导体激光器的频率噪声^[45]。在此基础上，2021 年，NIST 实现了 100 s

耗,也是完全实现小型化可搬运光钟的必由之路。

随着基于四波混频的微型光梳的发展^[50-52],光梳的小型化初见雏形,实现全集成的光钟逐渐成为可能,这种全集成的光钟更适合星载和空间钟的应用。受片上光梳功率的限制,光梳的光谱很难达到倍频程,缺乏有效的自参考手段,输出的光频并不能有效传递到微波频率^[53]。为了解决此问题,NIST利用铷原子778 nm的双光子跃迁和两个自锁定的光梳(一个Si₃N₄光梳高重复频率能达到倍频程的光梳,可实现自参考;另一个SiO₂光梳光谱范围较窄用来产生电子学可探测的微波信号),微制造光子光钟结构图如图5所示,最终实现了100 s内稳定度达 $4.4 \times 10^{-12}/\sqrt{\tau}$ 的可集成光钟雏形,得到的短期稳定度远优于商用铯钟约40倍。短期稳定度主要受限于激光器的频率噪声,若使用更低频率噪声的激光器,短期稳定度有望达到1 s内 1×10^{-13} 的水平^[13]。若基于波导的二次谐波产生和集成的窄线宽激光器能够逐渐取代成品光学元件^[54-55],全集成的光钟会更加切实可行。

4 总结与展望

双光子光谱具有窄线宽和可以利用全部速度原子带来的高信噪比的优势,是光学频率参考的有力竞争者之一。双光子跃迁理论提出至今,从激光器的发展带来的实验验证,到脉冲光的量子相干操控,再到最近的质子电荷半径之谜的实验测量和双光子光钟的小型化与集成化,基于双光子跃迁的光学频率标准已经取得了很多重要的成果并一直保持活跃。目前,对于双光子光学频率标准的研究主要集中在两方面:一方面是利用氢原子独有的优势验证量子电动力学等基本物理原理和测量基本物理常数;另一方面是实现小型化集成化的商用双光子光钟。

就目前来看,还可以从以下几方面进行研究:

1) 物理原理的检验和物理常数的测量

氢原子是里德堡常数测量和量子电动力学验证的最佳选择,目前,氢原子双光子光钟需要紫外光激发(通过两次倍频的方式产生),系统不确定度主要受限于剩余Doppler频移的影响,因此,实现紫外波段的高品质本振和进一步降低氢原子的温度等问题仍需解决。

2) 小型化与集成化

目前小型化与集成化的双光子光钟短期稳定度主要受限于本振激光器的频率噪声和散粒噪声,因此,提高荧光收集效率和光功率,从而提高信噪比抑制散粒噪声,在不明显增加系统复杂度的条件下,设计降低激光器频率噪声的新方法从而抑制互调制噪声等问题仍然需要研究。

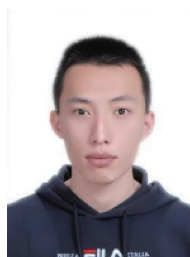
参考文献

- [1] ESSEN L, PARRY J V. The caesium resonator as a standard of frequency and time [J]. Philosophical Transactions of the Royal Society of London, 1944, 250: 45-69.
- [2] JONES D J, DIDDAMS S A, RANKA J K, et al. Carrier-envelope phase control of femtosecond mode-locked lasers and direct optical frequency synthesis [J]. Science, 2000, 288: 635-639.
- [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 [J]. Physical Review Letters, 2000, 84: 5102.
- [4] HOLZSWARTH R, UDEM T, HÄNSCH T W, et al. Optical frequency synthesizer for precision spectroscopy [J]. Physical Review Letters, 2000, 85: 2264.
- [5] TAKAMOTO M, USHIJIMA I, OHMAE N, et al. Test of general relativity by a pair of transportable optical lattice clocks [J]. Nature Photonics, 2020, 14: 411-415.
- [6] BOTHWELL T, KENNEDY C J, AEPPLI A, et al. Resolving the gravitational redshift across a millimetre-scale atomic sample [J]. Nature, 2022, 602: 420-424.
- [7] BELOY K, BODINE M I, BOTHWELL T, et al. Frequency ratio measurements at 18-digit accuracy using an optical clock network [J]. Nature, 591(7851): 564-569.
- [8] SANNER C, HUNTEMANN N, LANGE R, et al. Optical clock comparison for Lorentz symmetry testing [J]. Nature, 2019, 567: 204-208.
- [9] KITCHING J. Chip - scale atomic devices [J]. Applied Physics Reviews, 2018, 5: 031302.
- [10] SHANG H S, ZHANG X G, ZHANG S N, et al. Miniaturized calcium beam optical frequency standard using fully-sealed vacuum tube with 10^{-15} instability [J]. Optics Express, 2017, 25: 30459-30467.
- [11] ZANG E J, CAO J P, LI Y, et al. Realization of four-pass I2 absorption cell in 532 nm optical frequency standard [C]. IEEE Transactions on Instrumentation and Measurement, 2007, 56: 673-676.

- [12] MESHULACH D, SILBERBERG Y. Coherent quantum control of two-photon transitions by a femtosecond laser pulse[J]. *Nature*, 1998, 396: 239–242.
- [13] NEWMAN Z L, MAURICE V, DRAKE T, et al. Architecture for the photonic integration of an optical atomic clock[J]. *Optica*, 2019, 6: 680–685.
- [14] GRININ A, MATVEEV A, YOST D C, et al. Two-photon frequency comb spectroscopy of atomic hydrogen[J]. *Science*, 2020, 370: 1061–1066.
- [15] BONIN K D, MCILRATH T J. Two-photon electric-dipole selection rules[J]. *Journal of the Optical Society of America B*, 1984, 1(1): 52–55.
- [16] MESHULACH D, SILEBERBERG Y. Coherent quantum control of multiphoton transitions by sharpened ultrashort pulses[J]. *Physical Review A*, 1999, 60: 1287–1292.
- [17] GÖPPERT-MAYER M. Über elementarakte mit zwei quantensprüngen[J]. *Ann. Physik*, 1931, 9: 273.
- [18] ABELLA L D. Optical double-photon absorption in cesium vapor[J]. *Physical Review Letters*, 1962, 9: 453–455.
- [19] VASILENKO L S, CHEBOTAIEV V P, SHISHAEV A V. Line shape of two-photon absorption in a standing wave field in a gas[J]. *Soviet J. Experimental & Theor. Phys. Lett.*, 1970, 12: 163–165.
- [20] BIRABEN F, CAGNAC B, GRYNBERG B. Experimental evidence of two-photon transition without Doppler broadening[J]. *Physical Review Letters*, 1974, 32: 643–645.
- [21] LEVENSON M D, BLOEMBERGEN N. Observation of two-photon absorption without Doppler-broadening on the 3S–5S transition in sodium vapor[J]. *Physical Review Letters*, 1974, 32: 645–648.
- [22] HÄNSCH T W, HARVEY K, MEISEL G, et al. Two-photon spectroscopy of Na 3S–4D without Doppler broadening using cw dye laser[J]. *Optics Communications*, 1974, 11: 50–54.
- [23] BJORKHOLM J E, LIAO P F. Resonant enhancement of two-photon absorption in sodium vapor[J]. *Physical Review Letters*, 1974, 33: 128–131.
- [24] NEZ F, BIRABEN F, FELDER R, et al. Optical frequency determination of the hyperfine components of the $5S_{1/2}$ – $5D_{3/2}$ two-photon transitions in rubidium[J]. *Optics Communications*, 1993, 102: 432–438.
- [25] NEZ F, PLIMMER M D, BOURZEIX S, et al. Precision frequency measurement of the 2S–8S/8D transitions in atomic Hydrogen: new determination of the Rydberg constant[J]. *Physical Review Letters*, 1992, 69: 2326–2329.
- [26] TOUAHRI D, ACEF O, CLAIRON A, et al. Frequency measurement of the $5S_{1/2}(F=3)$ – $5D_{5/2}(F=5)$ two-photon transition in rubidium[J]. *Optics Communications*, 1997, 133: 471–478.
- [27] HILICO L, FELDER R, TOUAHRI D, et al. Metrological features of the rubidium two-photon standard of the BNM-LPTF and Kastler Brossel Laboratories[J]. *The European Physical Journal Applied Physics*, 1998, 4: 219–225.
- [28] POULIN M, LATRASSE C, TOUAHRI D, et al. Frequency stability of an optical frequency standard at 192.6 THz based on a two-photon transition of rubidium atoms[J]. *Optics Communications*, 2002, 207: 233–242.
- [29] BERNARD J E, MADEJ A A, SIEMSEN K J, et al. Absolute frequency measurement of a laser at 1 556 nm locked to the $5S_{1/2}$ – $5D_{5/2}$ two-photon transition in ^{87}Rb [J]. *Optics Communications*, 2000, 173: 357–364.
- [30] MARTIN K W, PHELPS G, LEMKE N D, et al. Compact optical atomic clock based on a two-photon transition in rubidium[J]. *Physical Review Applied*, 2018, 9: 014019.
- [31] TEETS R, ECKSTEIN J, HÄNSCH T W. Coherent two-photon excitation by multiple light pulses[J]. *Physical Review Letter*, 1977, 38: 760–764.
- [32] SALOUR M M, COHEN-TANNOUDJI C. Observation of Ramsey's interference fringes in the profile of Doppler-free two-photon resonances[J]. *Physical Review Letter*, 1977, 38: 757–760.
- [33] SNADDEN M J, BELL A S, RIIS E, et al. Two-photon spectroscopy of laser-cooled Rb using a mode-locked laser[J]. *Optics Communications*, 1996, 125(1–3): 70–76.
- [34] MARIAN A, STOWE M C, LAWALL J R, et al. United time-frequency spectroscopy for dynamics and global structure[J]. *Science*, 2004, 306: 2063–2068.
- [35] DUDOVICH N, DAYAN B, FAEDER S M, et al. Transform-limited pulses are not optimal for resonant multiphoton transitions[J]. *Physical Review Letters*, 2001, 86: 47–50.
- [36] BARMES I, WITTE S, EIKEMA K S. Spatial and spectral coherent control with frequency combs[J]. *Nature Photonics*, 2012, 7: 38–42.
- [37] BARMES I, WITTE S, EIKEMA K S. High-precision spectroscopy with counterpropagating femtosecond pulses[J]. *Physical Review Letters*, 2013, 111: 023007.
- [38] LAMB W E, RETHERFORD R C. Fine structure of the hydrogen atom by a microwave method[J]. *Physical Review*, 1947, 72: 241–243.

- [39] POHL R, ANTOGNINI A, NEZ F, et al. The size of the proton[J]. Nature, 2010, 466: 213–216.
- [40] ANTOGNINI A, NEZ F, SCHUHMANN K, et al. Proton structure from the measurement of $2S-2P$ transition frequencies of muonic hydrogen[J]. Science, 2013, 339: 417–420.
- [41] XIONG W, GASPARIAN A, GAO H, et al. A small proton charge radius from an electron-proton scattering experiment[J]. Nature, 2019, 575: 147–150.
- [42] BEZGINOV N, VALDEZ T, HORBATSCH M, et al. A measurement of the atomic hydrogen Lamb shift and the proton charge radius[J]. Science, 2019, 365: 1007–1012.
- [43] KOLLER S B, GROTTI J, VOGT S, et al. A transportable optical lattice clock with 7×10^{-17} uncertainty[J]. Physical Review Letters, 2017, 118(7).
- [44] SCHULDT T, DÖRINGSHOFF K, KOVALCHUK E V, et al. Development of a compact optical absolute frequency reference for space with 10^{-15} instability[J]. Applied Optics, 2017, 56: 1101–1106.
- [45] MAURICE V, NEWMAN Z L, DICKERSON S, et al. Miniaturized optical frequency reference for next-generation portable optical clocks[J]. Optics Express, 2020, 28: 24708–24720.
- [46] NEWMAN Z L, MAURICE V, FREDRICK C, et al. High-performance, compact optical standard[J]. Optics Letters, 2021, 46: 4702–4705.
- [47] PERRELLA C, LIGHT P S, ANSTIE J D, et al. Two color rubidium fiber frequency standard[J]. 2013, 38: 2122–2124.
- [48] PERRELLA C, LIGHT P S, ANSTIE J D, et al. Dichroic two-photon rubidium frequency standard[J]. Physical Review Applied, 2019, 12.
- [49] GERGINOV V, BELOY K. Two-photon optical frequency reference with active ac stark shift cancellation[J]. Physical Review Applied, 2018, 10: 014031.
- [50] KIPPENBERG T J, GAETA A L, LIPSON M, et al. Dissipative Kerr solitons in optical microresonators[J]. Science, 2018, 361.
- [51] LIU J, RAJA A S, KARPOV M, et al. Ultralow-power chip-based soliton microcombs for photonic integration[J]. Optica, 2018, 5: 1347–1353.
- [52] LIANG W, ELIYAHU D, ILCHENKO V S, et al. High spectral purity Kerr frequency comb radio frequency photonic oscillator[J]. Nature Communications, 2015, 6: 1–8.
- [53] PAPP S B, BEHA K, DEL'HAYE P, et al. Microresonator frequency comb optical clock[J]. Optica, 2014, 1: 10–14.
- [54] GUNDAVARAPU S, BRODNIK G M, PUCKETT M, et al. Sub-hertz fundamental linewidth photonic integrated Brillouin laser[J]. Nature Photonics, 2018, 13: 60–67.
- [55] GUO X, ZOU C L, TANG H X, et al. Second-harmonic generation in aluminium nitride microrings with 2500%/W conversion efficiency[J]. Optica, 2016, 3: 1126–1131.

(本文编辑: 朱俊真)



第一作者: 冯晨(1999—), 男, 博士研究生, 主要研究方向小型化双光子光钟。



通讯作者: 王延辉(1978—), 男, 副教授, 博士, 主要研究方向为铷原子钟, 铯原子钟与精密测量。