引用格式:管勇,刘丹丹,王心亮,等.双变量拉比法制备冷原子及其冷原子碰撞频移的研究[J].时间频率 学报,2020,43(4):245-252.

双变量拉比法制备冷原子及其冷原子 碰撞频移的研究

管勇^{1,2,3}, 刘丹丹^{1,2}, 王心亮^{1,2}, 张辉^{1,2,3},

施俊如^{1,2,3}, 白杨^{1,2,3}, 阮军^{1,2}, 张首刚^{1,2}

(1. 中国科学院 国家授时中心,西安 710600;2. 中国科学院 时间频率基准重点实验室,西安 710600;3. 中国科学院大学,北京 100049)

摘要: 冷原子碰撞频移是影响铯喷泉钟频率不确定度性能的主要频移项之一。采用差分法评定该 项频移时,其不确定度来源于原子团密度比的误差和高低密度运行状态下的频率波动,分别影响 该项频率评定的系统不确定度和统计不确定度。基于单变量拉比法选态的原理,我们发展了双变 量拉比法(同时调整选态微波的幅度和频率)制备不同密度比原子团的技术,分析了采用该方法 评定喷泉钟冷原子碰撞频移引入的不确定度,实验制备了均匀度 3×10⁻³的不同密度比的原子团, 可同时降低冷原子碰撞频移评定的系统不确定度和统计不确定度。

关键词: 铯原子喷泉钟; 冷原子; 冷原子碰撞频移

DOI: 10.13875/j.issn.1674-0637.2020-04-0245-08

Investigation of preparing atoms by two variable Rabi method and cold atom's collisional frequency shift in Cs fountain clock

GUAN Yong^{1,2,3}, LIU Dan-dan^{1,2}, WANG Xin-liang^{1,2}, ZHANG Hui^{1,2,3},

SHI Jun-ru^{1,2,3}, BAI Yang^{1,2,3}, RUAN Jun^{1,2}, ZHANG Shou-gang^{1,2}

(1. National Time Service Center, Chinese Academy of Sciences, Xi'an 710600, China;

2. Key Laboratory of Time and Frequency Primary Standards, Chinese Academy of Sciences, Xi'an 710600, China;

3. University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

Abstract: The cold collision frequency shift is one of the main frequency shifts in cesium fountain clock. The uncertainty of evaluating the frequency shift by differential method can be deduced from the error of density ratio and the frequency fluctuation of high and low atomic density, which affect the systematic and statistic uncertainties of the frequency shift respectively. Based on the principle of Rabi method of state selection, we

收稿日期: 2020-04-18; 接受日期: 2020-05-06

基金项目:国家重点研发计划资助项目(2016YFF0200202);中国科学院重大科技基础设施维修改造项目(DSS-WX GZ-2020-0005);中国科学院"西部之光"人才培养计划"西部青年学者"资助项目(XAB2018A06)

develop a bivariate Rabi method, where both the amplitude and frequency are adjustable, to prepare atom clouds with different density ratio. The uncertainty of evaluating the frequency shift by such method is also analyzed, and atom clouds with homogeneous density ratio up to 3×10^{-3} are realized for different density ratio. The results can be used to reduce both systematic and statistic uncertainties of the evaluation of collision frequency shift.

Key words: Cesium fountain clock; cold atoms; cold collision frequency shift

0 引言

铯喷泉钟是复现"秒"定义的频率基准装置,频率不确定度是表征其标校其他原子钟性能的重要指标。冷原子碰撞频移是影响频率不确定度性能的主要频移项之一^[1-4],起源于μK量级的冷原子之间因为碰撞引起的自旋交换效应,频移量与密度成正比^[5-8]。冷原子碰撞频移的评定通过差分法实现,即喷泉钟运行在高低密度两种状态下,通过两种状态下的频率值外推获得频移量^[9],其不确定度主要来自于高低密度运行状态下的频率波动(统计不确定度)和原子团密度比的误差(系统不确定度)。喷泉钟的原子团实验上不能测量获得其密度值,目前采用原子数比作为密度比 k 的估计值,因此密度比与原子数比可能发生误差^[10]。

铯喷泉钟采用拉比法制备不同密度的原子团,原子竖直上抛时为 | F = 4>态,在选态微波腔中 | F = 4, $m_F = 0$ >态的原子被激励至 | F = 3, $m_F = 0$ >态,其他 | F = 4>态的原子被推斥光推走,实现 $m_F = 0$ 钟跃 迁态原子团的制备。通过改变选态腔中的微波功率、频率和作用时间中的任意一个参数即可制备出不同 密度的原子团。选态腔中微波场的空间分布是不均匀的,两种状态的原子团的密度分布会有所不同,由 原子数比推测的密度比误差最大为 17%¹⁰;另一种方法是绝热跃迁法¹¹⁰⁻¹³,在满足量子绝热跃迁条件下 连续改变微波的功率和失谐,原子发生浸渐跃迁,密度比为 1/2 的误差为 10⁻³,但是这种方法只能制备 密度比为 1/2 的原子团,冷原子碰撞频移的统计不确定度相对较大;第3种方法由 Kurt Gibble 提出¹¹⁴, 同时改变拉比跃迁的两个参量以获得较为均匀的跃迁几率,理论分析了可以减小密度比误差至 10⁻²,降 低冷原子碰撞频移的系统不确定度。

本文在 Kurt Gibble 提出方法的基础上改进了双变量拉比法,得到的密度比误差小于 3×10⁻³,减小 了系统不确定度,同时还可以通过减小密度比 k 值降低统计不确定度。本文结构安排如下,第1节首先 理论分析了跃迁几率的空间分布,阐述了双变量拉比法的理论和计算结果,第2节接下来介绍了双拉比 参量制备不同密度原子团的实验,在中国科学院国家授时中心研制的 FO1,通过改变选态微波的功率和 原子上抛速度,得出与理论分析相一致的实验结果,最后给出了冷原子碰撞频移评定的不确定度,第3 节对文章进行了总结。

1 双变量拉比法测量冷原子碰撞频移的理论分析

铯喷泉钟测量冷原子碰撞频移时,由高密度的频率 $F_{\rm H}$,低密度的频率 $F_{\rm L}$,以及密度比k外推0密度时的频率 $F_{\rm ext}$,其不确定度为^[15]

$$\sigma_{\text{ext}}^{2}(\tau) = (\frac{1}{1-k})^{2} \sigma_{\text{L}}^{2}(\tau_{\text{L}}) + (\frac{k}{1-k})^{2} \sigma_{\text{H}}^{2}(\tau_{\text{H}}) + (\frac{F_{\text{L}} - F_{\text{H}}}{(1-k)^{2}})^{2} \sigma_{k}^{2} , \qquad (1)$$

式(1)中, σ_{ext} 、 σ_{H} 、 σ_{L} 分别是3个频率的不确定度, τ 是测量时间, τ_{H} 、 τ_{L} 分别是高低密度的测量时间。前两项是高低密度频率测量的统计不确定度,由喷泉钟高低密度运行时的频率稳定度和密度比k决定,公式右边第3项是系统不确定度,由密度比值的 σ_{k} 、高低密度频率差和k决定。在原子数减少,

同时 σ_1 未显著增加的范围内,减小k值就能减小统计不确定度和系统不确定度。

假定进入选态腔时原子团中原子的位置与速度的联合分布为 $n(\bar{r},\bar{v})$,其中 \bar{r} 是原子相对于原子团质 心的位置, \bar{v} 是原子的速度,经过选态腔后的跃迁概率为 $p(\bar{r},\bar{v})$,则选态后的原子团速度与位置的分布 为 $An(\bar{r},\bar{v})p(\bar{r},\bar{v})$,其中A为归一化系数。制备出高低密度原子团时, $n(\bar{r},\bar{v})$ 相同,跃迁概率分别为 $p_{\rm H}(\bar{r},\bar{v})$ 和 $p_{\rm L}(\bar{r},\bar{v})$ 。制备出的高低密度的原子团位置速度分布一致,则可以减小密度比误差,这一条件可以用 式(2)表示:

$$\frac{p_{\rm L}(\vec{r},\vec{v})}{p_{\rm H}(\vec{r},\vec{v})} = k_{\rm o}$$
(2)

由于原子团通过微波选态腔时间很短,可以假定其横向速率为0,z方向的速度v_z为匀速。采用柱 坐标系,微波选态腔竖直方向的中轴线为z轴,由于微波分布轴对称,只有原子离z轴的距离r、z,和 速度的z分量v_z对跃迁几率有影响。

|*F* = 4, *m_F* ≠ 0 >态的原子不参与选态跃迁,对选态过程没有影响,因此只考虑钟跃迁的两个能级 |*F* = 3, *m_F* = 0>和 | *F* = 4, *m_F* = 0>即可。原子跃迁过程由二能级 Schrödinger 方程来描述¹¹⁶:

$$i\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}t}\begin{bmatrix}c_1\\c_2\end{bmatrix} = \begin{bmatrix}0 & b(r,z(t))e^{i\delta t}\\b(r,z(t))e^{-i\delta t} & 0\end{bmatrix}\begin{bmatrix}c_1\\c_2\end{bmatrix},\qquad(3)$$

式(3)中, *b* 为拉比频率,正比于微波幅度, *δ* 为微波频率与原子跃迁频率的失谐量, $c_1 \, < c_2$ 为两能级的系数。跃迁几率为选态结束后的 $|c_1|^2$ 。选态腔为圆柱形微波腔,工作模式为 TE₀₁₁模,其微波幅度分布可以描述为 $b_0 J_0(\alpha r / R) \cos(\pi z / h)$,其中 b_0 是腔中心的微波场幅度, $\alpha \ge 1$ 阶 Bessel 函数的第 1 个 0 点, *R* 是微波腔半径, *h* 是微波腔高度¹¹⁷¹。原子的 *z* 坐标为 *z* = $z_0 + v_z t$,其中 z_0 是原子与微波开始相互作用时原子的 *z* 方向的位置。

如果微波持续打开,则速率为 v_z 的原子经过微波腔的时间为 h/v_z ,跃迁几率随速率发生变化。采用较短的脉冲可以避免这种影响,即在原子到达选态腔中心前T/2(T为脉冲持续时间)打开微波,所有的原子与微波作用时间一致。假定T比原子经过选态腔的时间小得多,则脉冲过程中 $\cos(\pi z / h)$ 可以近似为脉冲中点的值 $\cos(\pi(z_0 + v_z T / 2) / h)$,于是方程(3)可以变换为

$$i\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}t}\begin{bmatrix}c_1\\c_2\end{bmatrix} = \xi b_0 \begin{bmatrix}0 & e^{i\delta t}\\e^{-i\delta t} & 0\end{bmatrix}\begin{bmatrix}c_1\\c_2\end{bmatrix},\qquad(4)$$

式(4)中, $\xi = J_0(\alpha \frac{r}{R})\cos(\pi \frac{z_0 + v_z T/2}{h})$, 是原子的参数。设 $\xi = 1$ 时方程(3)解出的跃迁几率为 $p = p(b_0, \delta)$, 则对不同的r、 z_0 和 v_z , 跃迁几率为

$$p = p(\xi b_0, \delta) \ (5)$$

式(3)中高低密度跃迁几率的比值在 \bar{r} 和 \bar{v} 的六维参数空间上均匀的要求,可以化简为在 ξ 的一维参数 空间上均匀的要求

$$\frac{p(\xi b_{\rm L}, \delta_{\rm L})}{p(\xi b_{\rm H}, \delta_{\rm H})} = k , \qquad (6)$$

式(6)中, $b_{\rm H}$ 、 $\delta_{\rm H}$ 、 $b_{\rm L}$ 、 $\delta_{\rm L}$ 分别是高低密度的微波幅度和频率失谐量。由式(4)可解得跃迁几率为^[18]

$$p(b_0,\delta) = \frac{b_0^2}{b_0^2 + \delta^2} \sin^2(\frac{\pi}{2}\sqrt{b_0^2 + \delta^2}) , \qquad (7)$$

式(7)中, $\pi/2$ 的因子使 b_0 归一化, $b_0=1$ 对应 π 的微波幅度。对于高密度,选择 $b_H=1$, $\delta_H=0$, $p(\xi,0)$ 在 $\xi=1$ 处达到峰值,跃迁几率为1。由式(6)可知, $p(\xi b_L, \delta_L)$ 同样在 $\xi=1$ 处达到峰值,跃迁几率为k, 如图1所示。可解如下方程求得低密度选态的微波幅度和频率失谐:



$$p(b_{\rm L},\delta_{\rm L}) = k, \frac{\partial}{\partial\xi} p(\xi b_{\rm L},\delta_{\rm L}) \bigg|_{\xi=1} = 0 \ . \tag{8}$$

图 1 铯喷泉钟高低密度运行时选态微波激励的跃迁几率函数

均匀性条件式(6)的条件不能精确满足,采用跃迁几率比与密度比 k 的差值来衡量选态方法的均匀性。以密度比 k 为 0.5 为例,取求解方程(8)获得的参数,图 2 中展示了跃迁几率比在 ξ 从 0~1.2 之间的比值,与 0.5 的偏差小于 3 × 10⁻³。保持高低密度选态所用的微波幅度的比值恒定,输入微波的功率 波动相当于 ζ 的波动,高低密度比值仍能保持恒定。因此这种方法得到的密度比对选态腔功率波动、原 子团形状变化等因素不敏感。



图 2 铯喷泉钟高低密度运行时选态微波激励的跃迁几率比值

由于 ξ 在实际运行的喷泉钟内有一定的范围,可以根据实际情况对参数作优化,在 ξ 的实际范围内 取得更好的均匀性。假定 ξ 的范围为 0.7~1.1,采用最小二乘法获得 b_L 和 δ_L ,最小化在 ξ 范围内跃迁几 率比与密度比 k 的差值。图 3 (a)表示了选定的跃迁几率比值 k从 0.05~1 变化时,采用最小二乘法获 得的最优参数 b_L 和 δ_L 。由图 3 (b)给出了相应几率比值在 ξ 的取值范围内与目标比值的最大偏差。跃 迁几率比值为 0.36 时偏差最大,偏差量达到 5.4 × 10⁻⁴。

实验中高密度选态参数 $b_{\rm H}$ 和 $\delta_{\rm H}$ 可以通过扫描跃迁谱线获得,低密度选态参数 $b_{\rm L}$ 和 $\delta_{\rm L}$ 可以通过测量

高低密度选态的原子数比值来确定。例如,取密度比 k = 0.5,取 b_L 和 δ_L 在图 3 中最优化参数,对跃迁 几率的比值做泰勒展开,忽略相对较小的二次项:

$$p_{\rm L}/p_{\rm H} = 0.500\ 2 + 0.001\ 8\Delta b_{\rm L} - 0.922\ 7\Delta\delta + (0.001\ 3 + 2.588\ 3\Delta b_{\rm L} + 0.449\ 4\Delta\delta)(1-\xi) - 0.012\ 01(1-\xi)^2,$$
(9)

式(9)中,当 b_{L} 取值与最佳值偏离 Δb_{L} 时,跃迁几率比值与 ζ 近似成线性关系。将高低密度的微波幅度同时增大 a 倍,取两个不同的 a,测量高密度原子数 N_{H} 与低密度原子数 N_{L} 的比值在两个 a 取值时的差异,忽略较小的二次项可得:

$$\Delta \frac{N_{\rm L}}{N_{\rm H}} = \int \Delta \frac{p(ab_{\rm L}\xi, \delta_{\rm L})}{P(ab_{\rm H}\xi, \delta_{\rm H})} \mathrm{d}\xi \propto \Delta a \Delta b_{\rm L} \circ \tag{10}$$

因此,取不同的 a 值,测量原子数的比值,可以测得 b_L 与最佳值的偏离。 δ_L 与最佳值的偏离 $\Delta \delta_L$ 可以通 过跃迁几率比与密度比 k 的差值来衡量。



2 实验与结果

双变量拉比法的实验在铯喷泉钟 NTSC-F1 进行,喷泉钟的相关运行参数参考文献[3]。实验中采用脉冲宽度 3 ms 的微波脉冲进行原子选态。NTSC-F1 的选态腔为圆柱形腔,上下端面在圆心处有半径 6 mm,

总 43 卷

长 6 cm 的截止波导以供原子通过^[17]。由于截止波导的半径,原子位置 *r* > 6 mm 的都无法通过微波腔内, 对原子团密度没有贡献,因此只考虑 *r* < 6 mm 的原子。由ζ的定义,*r* 相关的因子变化范围是 0.74~1。 原子团高斯半径为 1 mm^[19], 3 σ范围内 *z*₀ 导致的因子变化范围约为 1 ± 0.024。实际喷泉钟运行时由于环 境温度起伏导致选态腔内微波幅度出现了波动,从温度起伏范围可以确定ζ的范围约为 0.7~1.1。

高密度功率为 π 跃迁的微波功率表示为 P_{π} ,频率失谐为 0,低密度功率为 P_1 ,频率失谐为 δ 。为找 到 P_1 与 δ 的准确值,测量两个状态的原子数比值,状态 1 为功率 $P = P_{\pi} + \Delta P$,频率失谐 $\delta = 0$,状态 2 为功率 $P = P_1 + \Delta P$,频率失谐 δ 。 ΔP 取 0.4 dBm 和-3 dBm,相当于式(10)中 a 取 1.05 和 0.71,大致 与 ξ 的分布范围相当。调整 P_1 与 δ 直到两个 ΔP 对应的原子数比值都等于 0.5。测量得到低密度选态的相 应参数,功率为 $P_1 = P_{\pi} - 0.56$ dBm,频率失谐 δ 为 130 Hz。选态微波由信号源 SMB100 提供,功率的最 小调节精度为 0.01 dBm,由式(9)的线性系数,在 ξ 范围内引起的跃迁几率比值误差最大为 7 × 10⁴。 频率调节精度为 1 mHz,引起误差为 10⁶量级,可以忽略不计。

实验测量了高低密度原子数比对参数的稳定性。图 4(a)表示 ΔP 在-4~1 dBm 范围变化时,状态 1($P = P_{\pi} + \Delta P, \delta = 0$)与状态 2($P = P_1 + \Delta P, \delta = 130$ Hz)的原子数比值。原子数比值变化范围 小于 10⁻³。

由式(3)采用短脉冲选态时,理想情况下 z 方向速度分量不影响跃迁几率比值,但式(4)的理论 近似与实际情况的差异仍可能导致一定误差。实验测量得到的原子数比值随原子团在选态微波腔处速度 的变化如图 4(b)所示,跃迁比例差异在 3×10⁻³以内。7 μK 的原子团^[19]中ν_z的标准差约为 2.1 cm/s, 原子团质心通过腔的速度约为 3.82 m/s。图 4(b)中原子速度的 z 分量的范围足以涵盖原子速度分布。 因此,整个原子团的跃迁比例可以在 3×10⁻³以内保持恒定。



图 5 给出了在优化参数后原子数比值的稳定性测量结果, 3 000 s 稳定度达到 5 × 10⁻⁴。



NTSC-F1 的碰撞频移 $F_{\rm H}$ 与 $F_{\rm L}$ 的相对频差约为 2.8 × 10^{-14[20]},采取双变量拉比法测量碰撞频移,密度 比最大误差 3 × 10⁻³,代入式(1)可得系统不确定度为 3.5 × 10⁻¹⁶。

3 结语

本文采用同时调整腔功率和频率的方法来制备高低密度原子团,实现了密度比误差为 3×10^{-3} 的均 匀原子团制备,相比单变量拉比法约为碰撞频移 15%的系统不确定度^[21],采用密度比 k = 0.5 的双变量拉 比法,系统不确定度为碰撞频移的 1.2%。此种方法可以在保证跃迁比例均匀的情况下减小低密度与高 密度原子团的密度比 k。保证密度比的不确定度 σ_k 不增大,由式(1)可得,采用较小的 k 可以进一步 减小冷原子碰撞频移的统计不确定度和系统不确定度。该方法也可以应用于二级秒定义频率,如铷原子 喷泉钟、光晶格原子钟的冷原子碰撞频移的不确定度评定。

参考文献:

- LI R, GIBBLE K, SZYMANIEC K. Improved accuracy of the NPL-CsF2 primary frequency standard: evaluation of distributed cavity phase and microwave lensing frequency shifts[J]. Metrologia, 2011(48): 283-289.
- [2] GUÉNA J, ABGRALL M, ROVERA D, et al. Progress in atomic fountains at LNE-SYRTE[J]. IEEE Transactions on Ultrasonics Ferroelectrics & Frequency Control, 2012, 59(3): 391-410.
- [3] 阮军, 王叶兵, 常宏, 等. 时间频率基准装置的研制现状[J]. 物理学报, 2015, 64(16): 160308.
- [4] 王倩, 魏荣, 王育竹. 原子喷泉频标: 原理与发展[J]. 物理学报, 2018, 67(16): 163202.
- [5] ERHAAR B J, KOELMAN J M V A, STOOF H T C, et al. Hyperfine contribution to spin-exchange frequency shifts in the hydrogen maser[J]. Physical Review A, 1987, 35(9): 3825-3831.
- [6] TIESINGA E, VERHAAR B J, STOOF H T C, et al. Spin-exchange frequency shift in a cesium atomic fountain[J]. Physical Review A, 1992, 45(5): R2671-R2673.
- [7] KOKKELMANS S J J M F, VERHAAR B J, GIBBLE K, et al. Prediction for laser-cooled Rb clocks[J]. Physical Review A, 1997, 56(6): R4389-R4392.
- [8] LEO P J, JULIENNE P S, MIES F H, et al. Collisional frequency shifts in ¹³³Cs fountain clocks[J]. Physical Review Letters, 2001,

86(17): 3743-3746.

- [9] SORTAIS Y, BIZE S, NICOLAS C, et al. Cold collision frequency shifts in a ⁸⁷Rb atomic fountain[J]. Physical Review Letters, 2000, 85(15): 3117-3120.
- [10] PEREIRA D S F, MARION H, BIZE S, et al. Controlling the cold collision shift in high precision atomic interferometry[J]. Physical Review Letters, 2002, 89(23): 233004.
- [11] FERTIG C, GIBBLE K. Measurement and cancellation of the cold collision shift in an ⁸⁷Rb fountain clock[J]. Physical Review Letters, 2000, 85(8): 1622-1625.
- [12] SZYMANIEC K, CHALUPCZAK W, TIESINGA E, et al. Cancellation of the collisional frequency shift incaesium fountain clocks[J]. Physical Review Letters, 2007, 98(15): 153002.
- [13] KAZDA M, GERGINOV V, NEMITZ N, et al. Investigation of rapid adiabatic passage for controlling collisional frequency shifts in a caesium fountain clock[J]. IEEE Transactions on Instrumentation and Measurement, 2013, 62(10): 2812-2819.
- [14] GIBBLE K. Fountain clock accuracy[C]//European Frequency and Time Forum, Gothenburg: Scientific Committee, 2012:16-18.
- [15] SZYMANIEC K, PARK S E. Primary frequency standard NPL-CsF2: optimized operation near the collisional shift cancellation point[J]. IEEE Transactions on Instrumentation & Measurement, 2011, 60(7): 2475-2481.
- [16] VANIER J. The Quantum Physics of Atomic Frequency Standards[M]. Bristol and Philadelphia: Adam Hilger, 1989: 42-44.
- [17] 阮军. 守时型铯原子喷泉钟关键技术的研究和实现[D]. 北京: 中国科学院大学, 2012.
- [18] RIEHLE F. Frequency Standards[M]. New Jersey: John Wiley & Sons Inc, 2004: 133-137.
- [19] 施俊如, 王心亮, 管勇, 等. 一种精确测量原子喷泉冷原子团温度的方法[J]. 物理学报, 2019, 68(19): 190601.
- [20] 刘丹丹, 阮军, 管勇, 等. 铯原子喷泉钟频移的自动评定系统研究[J]. 时间频率学报, 2019, 42(2): 107-114.
- [21] 林睿, 王心亮, 刘丹丹, 等. 铯喷泉钟冷原子碰撞频移的差分法测量研究[J]. 时间频率学报, 2017, 40(4): 207-212.