

## 铷 87 原子双光子跃迁光谱稳频特性研究

孟一鸣<sup>1,2,3</sup>, 项静峰<sup>1</sup>, 徐斌<sup>1</sup>, 李彪<sup>1</sup>, 万金银<sup>1</sup>, 任伟<sup>1</sup>, 邓思敏<sup>1,2,3</sup>, 张迪<sup>1</sup>, 吕德胜<sup>1\*</sup><sup>1</sup>中国科学院上海光学精密机械研究所航天激光工程部, 上海 201800;<sup>2</sup>中国科学院上海光学精密机械研究所量子光学重点实验室, 上海 201800;<sup>3</sup>中国科学院大学, 北京 100049

**摘要** 铷 87 的双光子光谱具有高信噪比、无多普勒展宽、窄线宽等特点。构建了基于<sup>87</sup>Rb 原子双光子跃迁的光学频率参考, 分析测试了影响其短期稳定度的因素。利用 778 nm 外腔半导体激光器激发双光子跃迁产生 420 nm 荧光信号, 通过荧光信号锁定激光器频率。探讨了谱线线宽、信噪比、功率、温度相关的谱线展宽、光频移、系统结构稳定性和调制宽度等对频移和稳定度的影响。采用螺栓锁紧结构固定光学元件, 大幅改善了光学对准引起的稳频误差, 通过直接调制激光器电流实现了秒级稳定度为  $1.5 \times 10^{-12}$ 、500 s 稳定度为  $2.88 \times 10^{-13}$  的光学频率参考。与其他基于饱和吸收的光学频率参考相比, 构建的基于<sup>87</sup>Rb 原子双光子跃迁的光学频率参考的稳定度提高了 10~100 倍。光学对准对于提高荧光探测信噪比和优化长期稳定度具有重要意义。验证了内调制实现双光子光学频率参考的可行性, 并提出了进一步优化短期稳定度和长期稳定度可采用的技术方案。

**关键词** 激光器; 双光子跃迁; 激光稳频; 光学对准; 频率稳定度

中图分类号 TN248.4

文献标志码 A

DOI: 10.3788/CJL230627

## 1 引言

铷原子双光子光谱以谱线线宽窄、无多普勒本底和展宽等特点成为小型原子频标的选择之一。在过去的几十年中, 铷原子双光子光频标得到了广泛研究。早在 20 世纪 90 年代, Nez 等<sup>[1]</sup>就已经对铷原子双光子光谱进行了研究, 测量了双光子跃迁的绝对频率, 测量的不确定度为  $1.3 \times 10^{-11}$ 。1994 年, Millerioux 等<sup>[2]</sup>基于铷原子双光子跃迁对相关超精细能级进行了锁定, 并使用两台锁定在双光子跃迁能级上的激光器拍频, 2000 s 稳定度达到了  $3 \times 10^{-13}$ 。2000 年, Bernard 等<sup>[3]</sup>使用 1556 nm 激光器倍频实现了双光子跃迁频率的精密测量, 200 s 稳定度为  $4 \times 10^{-13}$ 。2020 年, Maurice 等<sup>[4]</sup>使用微型气室, 在微型光学基板上构建了双光子跃迁频率标准, 其在功率为 450 mW 时的 1 s 稳定度达到了  $2.9 \times 10^{-12}$ 。2021 年, 美国国家标准与技术研究院 (NIST) 的 Newman 等<sup>[5]</sup>搭建的双光子光频标在 100 s 平均时间内实现了  $1.8 \times 10^{-13}$  的稳定度。铷的双光子光学频率标准利用其紧凑和高精度的优势, 在微型光梳技术<sup>[6]</sup>的配合下, 将会适应更多的应用模式与场景, 有望成为新一代小型化高性能原子钟。

笔者利用 778 nm 外腔半导体激光器 (ECDL) 激发<sup>87</sup>Rb 原子使其发生双光子跃迁, 进而产生 420 nm 荧光信号, 通过荧光信号将激光器频率锁定在双光子跃

迁谱线上; 构建了基于<sup>87</sup>Rb 原子  $5S_{1/2} - 5D_{5/2}$  双光子跃迁的光学频率参考, 分析了谱线线宽和信噪比对短期稳定度的影响; 探讨了与功率、温度相关的谱线展宽, 分析了稳频过程中光频移、系统结构稳定性和调制宽度对光频移和稳定度的影响。最后, 利用直接调制激光器电流的方法, 采用螺栓锁紧结构对饱和吸收光路进行固定从而稳定双光子跃迁概率, 使光学频率参考达到了  $1.50 \times 10^{-12}$  的秒级稳定度, 500 s 稳定度为  $2.88 \times 10^{-13}$ 。与其他基于饱和吸收的光学频率参考<sup>[7-9]</sup>相比, 笔者所搭建的双光子光学频率参考的稳定度提高了 10~100 倍。此外, 本文还强调了光学对准对提高荧光探测信噪比和优化长期稳定度的重要性。本文验证了内调制实现双光子光学频率参考的可行性, 并探究了影响稳定度的关键因素, 提出了进一步优化短期稳定度和长期稳定度可采用的技术方案, 为 Rb 的双光子光学频率参考的发展提供了支持。

## 2 基本原理与实验设置

## 2.1 基于双光子跃迁的 420 nm 荧光光谱理论

对于双光子跃迁, 设两束对射光的频率分别为  $\omega_1$  和  $\omega_2$ , 则原子感受到的光的频率分别为  $\omega'_1 = \omega_1(1 + v/c)$  和  $\omega'_2 = \omega_2(1 - v/c)$ <sup>[10]</sup>, 其中  $v$  为原子的速度,  $c$  为光速。

由原子运动带来的多普勒频移为

收稿日期: 2023-03-21; 修回日期: 2023-04-21; 录用日期: 2023-04-28; 网络首发日期: 2023-05-15

通信作者: \*dslv@siom.ac.cn

$$\Delta\omega = (\omega_1 - \omega_2)v/c_0 \quad (1)$$

对于直接双光子跃迁方式,  $\omega_1 = \omega_2 = \omega$ , 因此无多普勒展宽。本文使用的双光子跃迁利用的是虚能级, 只需要一个频率的光, 即只需要一个激光器, 降低了稳频的难度, 而且无多普勒展宽。因此, 可利用此双光子跃迁搭建光学频率参考。

对于短期频率稳定度<sup>[11]</sup>,

$$\sigma_s = \frac{1}{2 \frac{v_0}{\Delta v} \cdot \frac{V_s}{V_N}} \quad (2)$$

式中:  $\frac{v_0}{\Delta v}$  为跃迁谱线的 Q 值, 其中  $v_0$  为谱线的中心频率,  $\Delta v$  为谱线半峰全宽 (FWHM);  $\frac{V_s}{V_N}$  为跃迁谱线的信噪比, 其中  $V_s$  为跃迁谱线信号,  $V_N$  为系统噪声。

Q 值受激光频率和谱线半峰全宽的影响。对于跃迁谱线来说, 激光频率对 Q 值的影响较小, Q 值主要受谱线半峰全宽的影响。因此, <sup>87</sup>Rb 的双光子跃迁自然线宽 (300 kHz) 比常见的饱和吸收法获得的谱线线宽小一个数量级, 更有利于提高短期稳定度。

将外腔半导体激光器的波长通过调节光栅调整到 778.1 nm, 并将 <sup>87</sup>Rb 的 5S<sub>1/2</sub> (F=2) - 5D<sub>5/2</sub> (F'=4, 3, 2, 1) 双光子跃迁谱线作为频率参考。相关能级跃迁如图 1 所示。

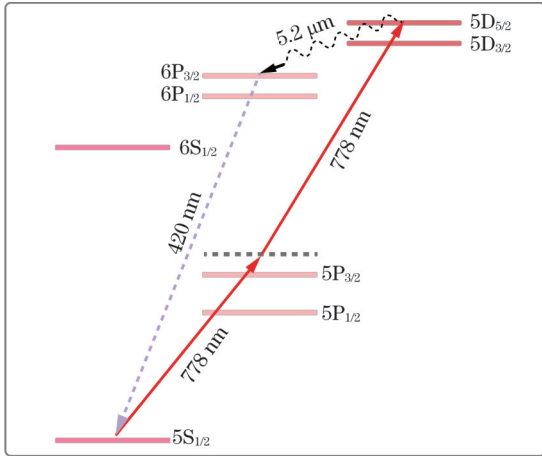


图 1 <sup>87</sup>Rb 双光子跃迁能级

Fig. 1 <sup>87</sup>Rb two-photon transition energy level

在没有外场、基态没有极化, 而且不考虑超精细结构的情况下, 态  $1gJ_g - 1eJ_e$  双光子跃迁的平均跃迁概率<sup>[12-13]</sup>为

$$\bar{\Gamma}_{ge}^{(2)} = \frac{64}{\Gamma_e h^2 c^2 \epsilon_0^2} \left(\frac{P}{S}\right)^2 \frac{1}{2J_g + 1} \sum_{m_e, m_g} |\langle J_e m_e | Q_{\epsilon_1, \epsilon_2}^{eg} | g J_g m_g \rangle|^2 \quad (3)$$

$$= \frac{1}{2} \left( D \cdot \epsilon_1 \frac{1}{\hbar\omega - H_0} D \cdot \epsilon_2 + D \cdot \epsilon_2 \frac{1}{\hbar\omega - H_0} D \cdot \epsilon_1 \right) \quad (4)$$

式中:  $\Gamma_e^{-1}$  为激发态寿命;  $h$  为普朗克常数;  $c$  为光速;  $\epsilon_0$

为介电常数;  $P$  为激光功率;  $S$  为激光束的截面;  $J_e$  为激发态电子总角动量;  $m_e$  为激发态电子磁量子数;  $J_g$  为基态电子总角动量;  $m_g$  为基态电子磁量子数;  $D$  为电偶极矩;  $\epsilon_1, \epsilon_2$  为光场中的电矢的偏振方向;  $H_0$  为自由原子的哈密顿量;  $\hbar$  为约化普朗克常数;  $\omega$  为光场的频率。

由式(3)可知, 光功率密度的平方与跃迁概率成正比。为了提高跃迁概率, 间接提高荧光强度, 应尽量使用高光功率密度的激光来激发基态原子。

<sup>87</sup>Rb 原子 5S<sub>1/2</sub> - 5D<sub>5/2</sub> 的自然线宽约为 300 kHz<sup>[14]</sup>, 但渡越时间<sup>[15]</sup>效应会引起额外的增宽。定义

$$\gamma_t = u/R \quad (5)$$

是与渡越时间相关的频率, 其中  $u = (2kT/m)^{1/2}$ ,  $k$  为玻尔兹曼常数,  $T$  为 <sup>87</sup>Rb 气室的温度,  $m$  为 <sup>87</sup>Rb 原子质量,  $R$  为 1/e 强度的高斯光斑半径。

定义  $\Delta_{FWHM}$  为半峰全宽。在一个小的变化区间内, 可以近似认为

$$\Delta_{FWHM} \propto \gamma_t \quad (6)$$

因此, 在设计光学系统时, 既要增加光功率密度, 提高谱线的信噪比, 同时也要考虑小光斑由于增加光功率密度<sup>[15]</sup>而产生的谱线增宽。温度升高可使气室内 <sup>87</sup>Rb 原子的数密度增加, 提高信噪比, 但同时也会导致跃迁时间频率增加, 从而使得谱线展宽。因此, 选择合适的加热温度十分重要。

增加光功率也会导致谱线增宽, 当  $\gamma_t/\gamma \approx 1$  时, 功率增宽的影响较小<sup>[15]</sup>。其中  $\gamma$  为碰撞频率。

## 2.2 双光子光学频率参考实验设置

实验装置包括光路和后续信号处理两部分, 如图 2(a) 所示。使用线宽约为 300 kHz 的 ECDL (型号 DL Pro, Toptica, 德国) 产生 778.1 nm 激光, 激光经隔离器后被偏振分束器 (PBS) 分成两路偏振正交的光束, 其中一路功率为 20 mW 的光束进入物理系统, 另一路功率为 2 mW 的光束与光频梳 (型号 FC1500-250-WG, Menlo Systems, 德国) 的梳齿进行拍频, 光频梳的重复频率为 250 MHz, 梳齿宽度小于 1 Hz, 中心波长为 1560 nm, 光谱范围大于 25 nm。使用光子晶体光纤对光频梳进行扩谱, 以满足其与 778 nm 激光拍频的需求。使用高速光电管 (型号 PDA10A2, Thorlabs, 美国) 将拍频光信号转换为电信号, 使用低通滤波器和功率放大器放大拍频信号, 再通过频率计数器 (型号 53220A, Agilent, 美国) 对采集的拍频结果进行计数。图 2(b) 给出了光学平台结构示意图, 所有元件在手动调整后被固定在铝制底座 (未画出) 上, 两束激光通过耦合头进入光纤后分别与物理系统和拍频系统连接。主光路中的光纤 (型号 OPM-11-780, OZ OPTICS, 加拿大) 选用中心频率为 780 nm 的单模保偏光纤, 其偏振消光比的标称值为 20 dB。实验中, 精细调节自由空间光偏振与光纤偏振轴对准, 光纤输出后通过偏振分析仪测试消光比 (>25 dB)。如图 2(c) 所示, 使用高

反射率反射镜构建两束对射激光来产生无多普勒展宽的双光子荧光谱线。从光学平台耦合出来的 778.1 nm 激光经过格兰棱镜后进入气体纯度高于 99% 的  $^{87}\text{Rb}$  气室。格兰棱镜用来抑制由光纤应变导致的偏振变化, 格兰棱镜后方的光功率变化最大约为  $40 \mu\text{W}$ 。使用高频交流线圈(温度控制精度为  $0.01 \text{ }^\circ\text{C}$ )加热铷泡并消除电流产生的磁场, 以减小塞曼效应对谱线的影响。采用圆柱形保温外壳, 以便在不改变光路的情况下更换铷泡, 从而进行不同类型的双光子荧光谱线研究和频率稳定。一个反射率高于 99.9% 的反射镜用来形成反向传播的 778.1 nm 激光束, 从而实现双光子跃迁。两个凸透镜将激光聚焦在铷泡中心, 提高荧光强

度。凸透镜和光电倍增管(PMT, 型号 CR131, 滨松, 中国)用来收集和探测微弱的荧光信号, 同时采用干涉滤光片滤除 778.1 nm 激光, 消除其对 PMT 探测的影响。PMT 将探测到的荧光信号转化成电流信号, 跨阻放大器(TIA)将电流信号转换为电压信号, 电压信号通过锁相放大器与 20 kHz 调制信号锁相混频后产生误差信号。使用激光伺服装置将锁定点设置在误差信号上升沿零点进行锁频, 同时通过伺服信号控制激光器电流。整个系统通过螺钉固定在基板上, 系统内无可调整部件, 这使得系统经过长时间运行后不会因为可调整部件的位置变化而发生光路改变, 从而减小对光学对准的影响。

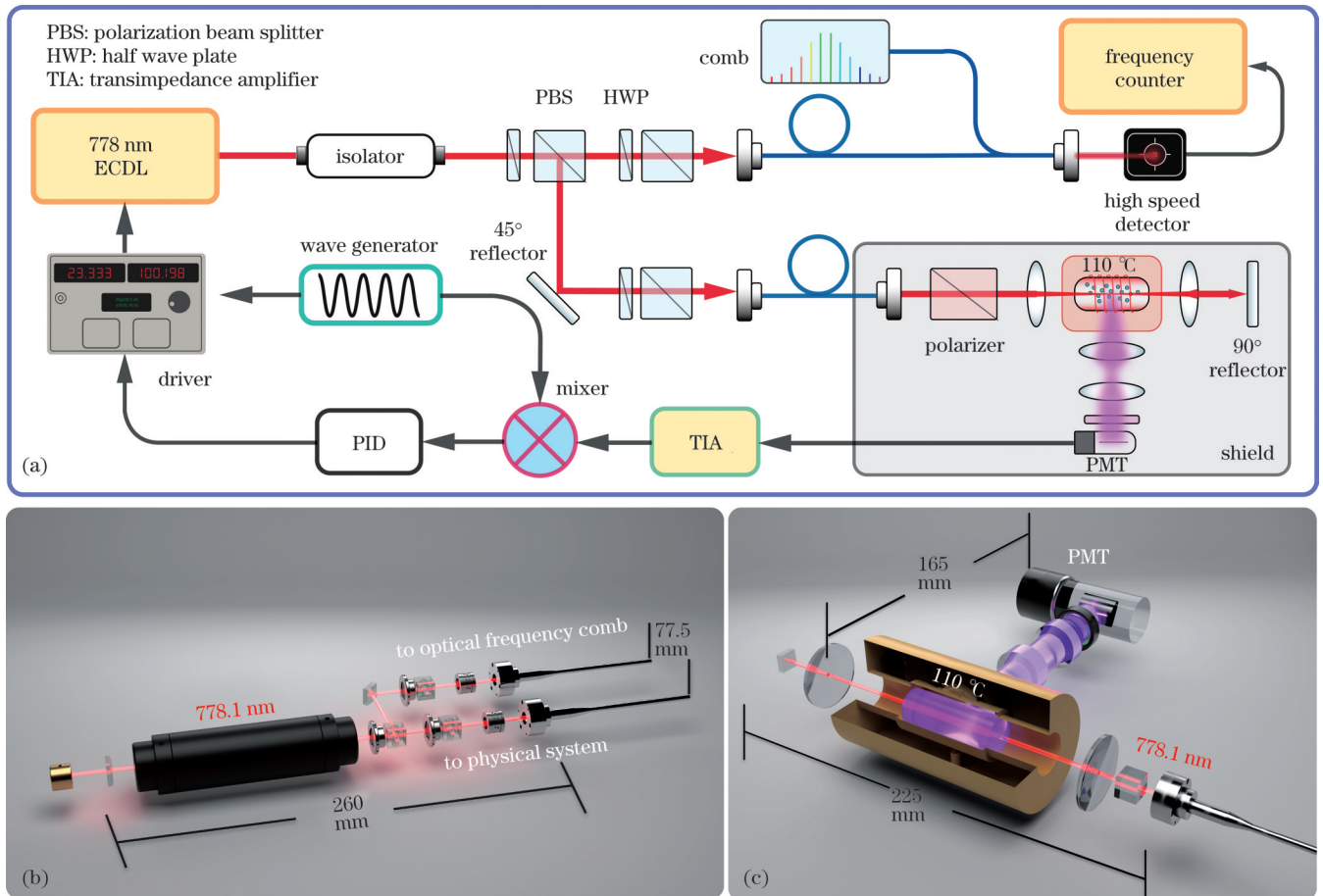


图 2  $^{87}\text{Rb}$  原子双光子光学频率参考示意图。(a) 光路与激光稳频系统; (b) 光学平台结构图; (c) 物理系统结构图

Fig. 2  $^{87}\text{Rb}$  two-photon optical frequency reference schematic. (a) Optical path and laser locking system; (b) structure of the optical bench; (c) structure of the physical system

### 3 稳频结果与分析

首先使用图 2 所示的实验装置进行荧光谱线及误差信号扫描, 然后对输入物理系统的光功率和  $^{87}\text{Rb}$  气室温度进行定标。由式(3)可知双光子跃迁概率与光功率的平方成正比, 光斑尺寸确定后, 在一定范围内增加光功率可以使双光子跃迁概率增加, 即通过 PMT 探测到的荧光信号增强, 但由式(5)、(6)可知过高的光功率会导致谱线展宽。升高温度能使  $^{87}\text{Rb}$  气室中的原

子密度增加, 在未达到饱和前, 升高温度可使荧光信号增强, 但温度过高一方面会增加温控的难度, 另一方面也会出现由背景气体和  $^{87}\text{Rb}$  原子碰撞产生的碰撞增宽。因此, 为了兼顾谱线信噪比、展宽与  $^{87}\text{Rb}$  气室温度的稳定性, 经过测试, 选择最佳的激光功率为 20 mW, 最佳的  $^{87}\text{Rb}$  气室温度为  $110 \text{ }^\circ\text{C}$ 。用激光器驱动器对激光器的压电换能器(PZT)模块进行 50 Hz 的三角波扫描, 使激光波长接近双光子跃迁谱线, 并用波长计对激光波长进行粗略测量; 通过调整 PZT 扫描偏置将波长



调整到  $5S_{1/2}(F=2) - 5D_{5/2}(F'=4, 3, 2, 1)$  的双光子跃迁谱线附近, 此时波长计读数约为 778.1065 nm。得到荧光谱线后, 缩小 PZT 的扫描范围, 并用 20 kHz 的正弦信号调制激光器电流; 调整乘法器参考信号相位后得到对应荧光信号峰值处为上升沿的误差信号。双光子跃迁谱线及误差信号如图 3 所示。图 3 下方散点图是 PMT 探测到的 420 nm 荧光信号, 信噪比约为 289, 实线为荧光信号拟合曲线。根据拟合曲线可以估算出  $5S_{1/2}(F=2) - 5D_{5/2}(F'=4)$  的谱线半峰全宽为 1.25 MHz。

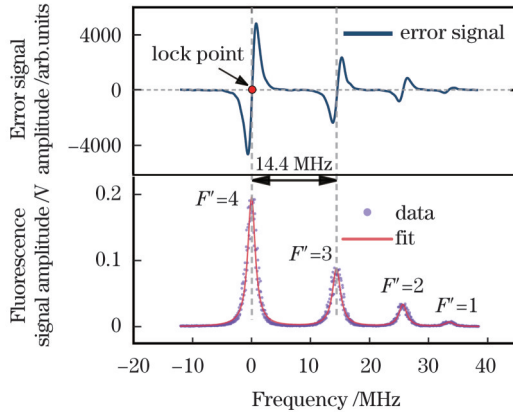


图 3  $^{87}\text{Rb}$   $5S_{1/2}(F=2) - 5D_{5/2}(F'=4, 3, 2, 1)$ , 420 nm 双光子荧光谱线和误差信号

Fig. 3  $^{87}\text{Rb}$   $5S_{1/2}(F=2) - 5D_{5/2}(F'=4, 3, 2, 1)$ , 420 nm two-photon fluorescence spectrum and related error signal

由图 3 可以看出,  $F'=4$  与  $F'=3$  的峰间隔为 14.4 MHz, 大于谱线线宽 (1.25 MHz), 有利于谱线的锁定。同时可以发现谱线相对于自然线宽 (300 kHz) 有一定展宽。导致谱线展宽的主要因素包括激光器线宽 (贡献约为 380 kHz)、谱线自然线宽 (贡献约为 300 kHz) 以及与渡越时间相关的增宽 (贡献约为 560 kHz)、功率增宽和背景气体 (氦气) 碰撞增宽等 (贡献约为 10 kHz)。

调整物理系统输入的 778.1 nm 激光功率, 获得了 10~28.89 mW 光功率范围内双光子荧光谱线  $5S_{1/2}(F=2) - 5D_{5/2}(F'=4, 3, 2, 1)$  峰的极值与光功率的关系, 如图 4 所示。由图 4 可以看出, 随着光功率增加, 荧光信号并非呈线性增大, 而是与光功率的平方成正比。这说明光功率对荧光强度具有较大影响, 这也与式 (3) 中关于光功率的描述一致。此外, 随着光功率持续增加, 荧光谱线的强度会逐渐饱和, 不再随光功率的增加而增加。然而, 由于本实验所用激光器的输出功率受到限制, 输出到物理系统的最大光功率只能达到约 28.89 mW, 因此无法观察到这种现象。

接着测试不同温度下的荧光强度。将激光功率设为 27 mW, 并调节  $^{87}\text{Rb}$  气室的温度, 待气室温度稳定后对谱线信号进行采集。图 5 展示了不同温度下 (100、110、120 °C) 采集的荧光谱线。由于温度低于

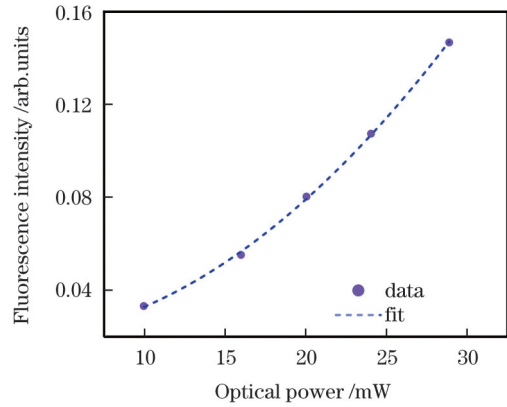


图 4 双光子荧光谱线  $5S_{1/2}(F=2) - 5D_{5/2}(F'=4)$  峰的极值与光功率的关系

Fig. 4 Relation of the  $5S_{1/2}(F=2) - 5D_{5/2}(F'=4)$  peak of two-photon fluorescence spectrum and optical power

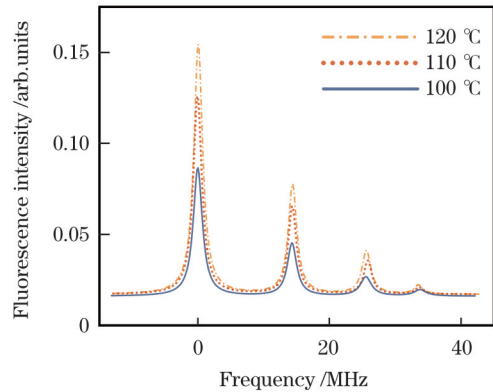


图 5  $^{87}\text{Rb}$  气室温度对荧光信号的影响

Fig. 5 Effect of temperature of  $^{87}\text{Rb}$  cell on fluorescence signal

100 °C 时, 谱线信号较弱, 不利于荧光光谱扫描, 因此从 100 °C 开始扫描。另外, 当温度高于 120 °C 时,  $^{87}\text{Rb}$  气室的温度控制会受到环境的影响, 抖动较大, 因此选择在 100~120 °C 的温度区间进行测试。

由图 5 可知, 随着温度升高, 荧光信号逐渐增强, 且信号强度与温度近似呈线性关系。这是因为调节温度会在一定程度上改变气室中原子气体的密度。与图 4 所示光功率对荧光强度影响中描述的饱和现象类似, 当温度升高到一定程度时, 荧光强度将不再随温度的升高而增加。由于本次实验中使用的加热设备的温度控制范围有限, 因此无法达到出现饱和现象的温度。从谱线位置来看, 不同光功率下谱线峰的位置有所不同, 且没有一定的规律, 推测这是由谱线抖动造成的。

接着进行光频移测试实验。使用图 2 所示的装置, 在光斑直径为 120  $\mu\text{m}$ 、温度为 110 °C 的条件下通过半波片和 PBS 控制输入物理系统的光功率。激光频率锁定后, 利用频率计数器对激光器和光梳的拍频光进行采集, 利用低通滤波器和功率放大器对光信号进行放大和滤波。单个功率点下多次测试并取平均值后得到了频率与光功率的关系, 如图 6 所示。

从图 6 可以看出, 在一定的光功率范围内, 光功率

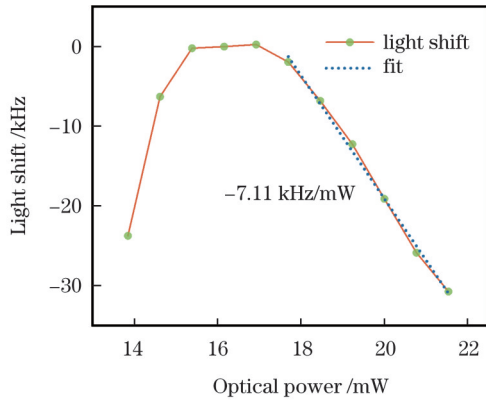


图6 光功率导致的频率偏移(散点为拍频数据,实线为拍频数据的拟合曲线)

Fig. 6 Frequency shift due to optical power (The dots and solid line indicate the beat frequency data and fitted shift, respectively)

与光频移呈线性关系,光频移量为 $-7.11 \text{ kHz/mW}$ 。这一结果与之前 Terra 等<sup>[16]</sup>的测试结果相近。同时也测试了光功率低于 $17 \text{ mW}$ 时的谱线频移,发现光频移曲线变为非线性曲线。这可能是由于泵浦光的减弱导致谱线的信噪比降低,激光锁定环路内的锁定点发生了移动,这样频率的移动就受激光锁定位置变化和光频移的共同影响。

在频率稳定度测试实验中使用锁定在 $^{87}\text{Rb}$ 双光子谱线上的 ECDL 和锁定在 GPS 驯服超稳晶振上的飞秒光学频率梳拍频。考虑到信噪比和线宽的影响,实验最终采用 $20 \text{ mW}$ 的光功率、 $110^\circ\text{C}$ 的温度和 $20 \text{ kHz}$ 的调制频率。比较了含有和不含有可调节光学元件的两种物理系统中拍频频率分布随时间的变化情况。图 7 展示了约 $4000 \text{ s}$ 内的拍频数据。对于含有可调节光学元件的系统,激光器拍频频率存在周期为 $1000 \text{ s}$ 的抖动。这可能是由于物理系统的微小形变影响了铷泡中两束对射聚焦光斑的位置,进而改变了双光子跃迁频率。同时,环境温度、气压改变也会使激光器外腔伸缩和大气折射率变化,从而导致激光频率漂移。采用固定元件的系统,即不含可调节光学元件的系统,对环境变化不敏感,激光器频率抖动范围仅为 $-2.5 \sim +2.5 \text{ kHz}$ 。 $2000 \text{ s}$ 处出现的抖动可能是较小的电流调制宽度导致的锁定点漂移。

由于本实验装置不具备精密调节元件角度的条件,为了分析系统元件因不同位置处温度分布不均匀而导致的微小形变,对本实验的物理系统的对准情况进行了模拟,如图 8 所示。假设反射镜处因环境因素产生了一个微小的转动,使反射光相对于入射光有一个角度为 $\theta$ 的偏转。当 $\theta=0^\circ$ 时,两束光的重叠区域最大;当 $\theta=0.005^\circ$ 时,两束光的重叠部分只有不到原来的 $50\%$ 。原子双光子跃迁发生在对射激光重叠区域,这将导致信噪比降低和光频移,从而对系统产生很大影响。Maurice 等<sup>[4]</sup>的实验表明,偏转角度 $\theta=100 \mu\text{rad}$

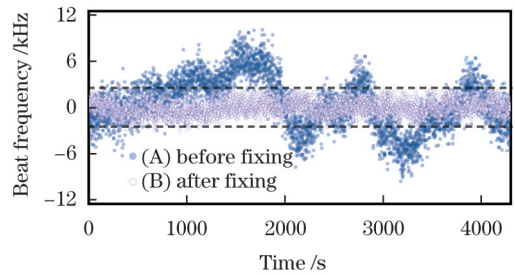


图7 拍频实验得到的频率分布(使用可调节光学元件的物理系统(A)和使用无可调节部件的物理系统(B)进行拍频的结果)

Fig. 7 Frequency distribution obtained by the beat frequency experiment (the physical system with (A) or without (B) adjustable components for the beat frequency, respectively)

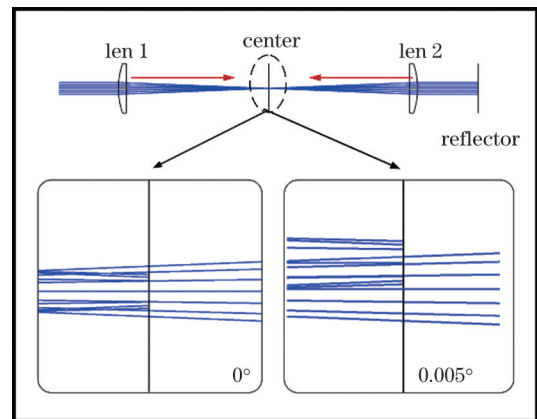


图8 物理系统光束聚焦示意图(下图展示了反射光未偏转(左)和偏转 $0.005^\circ$ (右)时,焦点附近的对准情况)

Fig. 8 Schematic diagram of the physical system beam focus (The lower figures show the alignment near the focal point with the reflected light undeflected (left) and deflected by  $0.005^\circ$  (right))

( $0.0057^\circ$ )时,将会产生高达约 $4.71 \text{ kHz}$ 的光频移和 $17\%$ 的荧光信号减弱。因此,高精度对准和减小光学元件对环境变化的敏感度对于提升频率稳定度十分重要。

此外,还测试了调制宽度对拍频频率的影响。将调制电压峰值对应的激光频率调制范围 $\nu_m$ 与谱线宽度 $\Delta_{\text{FWHM}}$ 之比定义为调制宽度。图 9 展示了调制宽度从 $0.25$ 增大到 $0.87$ 时对应的频率偏移,每个调制宽度下采集一组拍频数据进行平均得到对应的频率。调制宽度的分辨率为 $0.062$ ,改变 $0.062$ 的调制宽度最多可带来 $54.48 \text{ kHz}$ 的频移,这是由于调制噪声对谱线的锁定点有较大影响。随着调制宽度增大,调制噪声被调制信号压制,频移变小。这是因为调制宽度较大时会对谱线线型有较大影响,进而影响锁定效果。但更小的调制宽度会使误差信号的信噪比降低。在对比了不同调制宽度下的频率稳定度后,最终选择了 $0.5$ 的调制宽度进行频率稳定度测试。

使用具有螺栓锁紧结构的物理系统进行了 $2.5 \text{ h}$ 的拍频实验,拍频结果如图 10 所示。同时,监测了

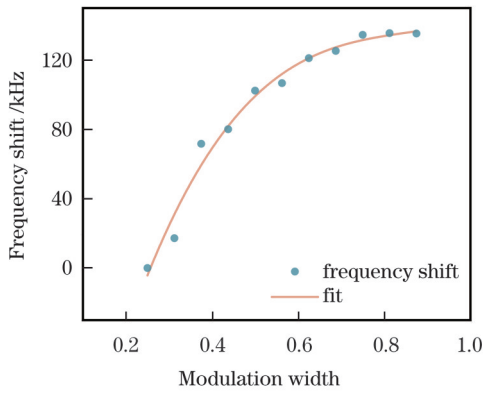


图 9 调制宽度对频率偏移的影响

Fig. 9 Effect of modulation width on frequency shift

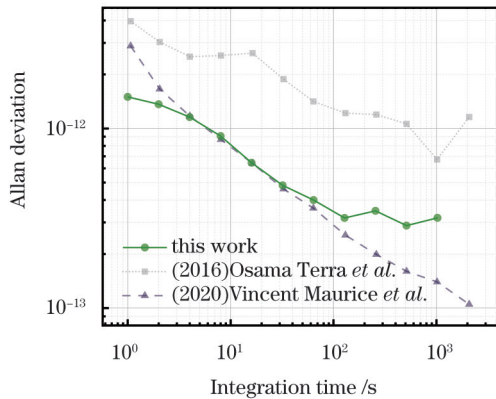


图 10 2.5 h 拍频实验中系统的 Allan 方差

Fig. 10 Allan variance of our system in the 2.5 h beat frequency experiment

光功率的抖动,并根据图 6 计算出的光频移系数将光功率抖动换算成对稳定度的影响。可以看出,激光频率的 Allan 方差在 1 s 时达到了  $1.50 \times 10^{-12}$ ,在 500 s 时降低到  $2.88 \times 10^{-13}$ ,之后又有所上升。通过实验测试发现由光功率抖动引起的光频移在秒级对稳定度的贡献为  $1.46 \times 10^{-13}$ ,对稳定度的影响较小。光梳的参考晶振在 1000 s 时的稳定度约为  $1.73 \times 10^{-13}$ ,在计算最终的系统的稳定度时,未考虑晶振稳定度的影响。系统的短期稳定度主要受激光器自身稳定度的影响,例如直接调制激光器电流导致的内调制噪声会影响稳定度的下限。由于 ECDL 的外腔对环境变化具有较高的敏感性,因此,在 100 s 后出现的稳定度波动可能与环境温度、气压有关,同时激光器内调制噪声也会对其有一定的影响。由于本实验系统采用的是无可调节元件的结构,与目前主流的饱和吸收稳频系统相比,短期稳定度提高了约 1 个数量级,千秒稳定度提高了约 2 个数量级。与 Terra 小组<sup>[16]</sup>使用了 4 kHz 超窄线宽激光器搭建的系统相比,本系统的秒级频率稳定度提升了 1.7 倍。在使用内调制方法搭建的双光子系统中<sup>[4,17]</sup>,本系统的频率稳定度也处于较高水平。

## 4 结 论

介绍了一种基于  $^{87}\text{Rb}$  的双光子跃迁的高稳定性光学频率参考,并对系统参数如光功率、 $^{87}\text{Rb}$  气室温度、调制宽度进行了优化。这些参数对于系统的锁定效果十分重要。此外,一些关键因素,如谱线的信噪比、内调制噪声、物理系统中对射光线聚焦光斑的光学对准、系统结构的环境敏感性等制约着双光子光学频率参考的稳定度。在双光子跃迁能级窄线宽的基础上,利用高信噪比荧光信号和螺栓固定结构,使双光子光学频率参考的稳定度比目前主流的基于饱和吸收的光学频率参考高 1~2 个数量级,在同类型实验方案中处于较高水平。为了进一步减小由环境影响造成的频率漂移,可以采用热膨胀系数更低的微晶玻璃制成的底座和支架来固定光学元件,利用尺寸更小的铷泡和光学元器件压缩光路尺寸,减小由环境扰动造成的光学对准劣化,进一步提高系统的稳定性。同时,对物理平台抽真空、使用外调制等方法也可在一定程度上提高系统的性能。

## 参 考 文 献

- [1] 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(5/6): 432-438.
- [2] Millerieux Y, Touahri D, Hilico L, et al. Towards an accurate frequency standard at  $\lambda 778$  nm using a laser diode stabilized on a hyperfine component of the Doppler-free two-photon transitions in rubidium[J]. Optics Communications, 1994, 108(1/2/3): 91-96.
- [3] Bernard J E, Madej A A, Siemsen K J, et al. Absolute frequency measurement of a laser at 1556 nm locked to the  $5S_{1/2} - 5D_{5/2}$  two-photon transition in  $^{87}\text{Rb}$ [J]. Optics Communications, 2000, 173(1/2/3/4/5/6): 357-364.
- [4] Maurice V, Newman Z L, Dickerson S, et al. Miniaturized optical frequency reference for next-generation portable optical clocks[J]. Optics Express, 2020, 28(17): 24708-24720.
- [5] Newman Z L, Maurice V, Fredrick C, et al. High-performance, compact optical standard[J]. Optics Letters, 2021, 46(18): 4702-4705.
- [6] Newman Z L, Maurice V, Drake T, et al. Architecture for the photonic integration of an optical atomic clock[J]. Optica, 2019, 6(5): 680-685.
- [7] 洪毅, 侯霞, 陈迪俊, 等. 基于  $\text{Rb}^{87}$  调制转移光谱稳频技术研究[J]. 中国激光, 2021, 48(21): 2101003.  
Hong Y, Hou X, Chen D J, et al. Research on frequency stabilization technology of modulation transfer spectroscopy based on  $\text{Rb}^{87}$ [J]. Chinese Journal of Lasers, 2021, 48(21): 2101003.
- [8] 元航航, 杨博文, 赵浩杰, 等. 应用于积分球冷原子钟的窄线宽激光稳频系统[J]. 激光与光电子学进展, 2023, 60(15): 1514008.  
Qi H H, Yang B W, Zhao H J, et al. Narrow linewidth laser system for integrating sphere cold atom clock[J]. Laser & Optoelectronics Progress, 2023, 60(15): 1514008.
- [9] 项静峰, 王利国, 任伟, 等. 采用射频调制实现对单频激光器频率噪声的抑制[J]. 中国激光, 2017, 44(5): 0501009.  
Xiang J F, Wang L G, Ren W, et al. Frequency noise suppression of single-frequency laser with radio-frequency modulation[J]. Chinese Journal of Lasers, 2017, 44(5): 0501009.
- [10] 范鹏瑞. 基于铷原子双光子跃迁高分辨光谱研究[D]. 太原: 山西大学, 2017.



- Fan P R. Investigation on high resolution two-photon transition spectroscopy of rubidium atom[D]. Taiyuan: Shanxi University, 2017.
- [11] 涂建辉, 梁耀廷, 陆昉, 等. 提高铷原子频标短期稳定度的研究[J]. 宇航计测技术, 2011, 31(4): 56-58, 62.  
Tu J H, Liang Y T, Lu F, et al. Research on improving the short-term stability of rubidium frequency standard[J]. Journal of Astronautic Metrology and Measurement, 2011, 31(4): 56-58, 62.
- [12] 戴作耀, 雷仁仁. 无多普勒双光子跃迁几率的计算[J]. 原子与分子物理学报, 1990, 7(S1): 165-167.  
Dai Z Y, Lei T R. Calculation of two-photon transition probability without Doppler[J]. Chinese Journal of Atomic and Molecular Physics, 1990, 7(S1): 165-167.
- [13] Grynberg G, Cagnac B. Doppler-free multiphotonic spectroscopy [J]. Reports on Progress in Physics, 1977, 40(7): 791-841.
- [14] Sheng D, Pérez Galván A, Orozco L A. Lifetime measurements of the 5D states of rubidium[J]. Physical Review A, 2008, 78(6): 062506.
- [15] Thomas J E, Kelly M J, Monchalin J P, et al. Transit-time effects in power-broadened Doppler-free saturation resonances[J]. Physical Review A, 1977, 15(6): 2356-2365.
- [16] Terra O, Hussein H. An ultra-stable optical frequency standard for telecommunication purposes based upon the  $5S_{1/2} \rightarrow 5D_{5/2}$  two-photon transition in rubidium[J]. Applied Physics B, 2016, 122(2): 27.
- [17] Zhang S Y, Wu J T, Zhang Y L, et al. Direct frequency comb optical frequency standard based on two-photon transitions of thermal atoms[J]. Scientific Reports, 2015, 5: 15114.

## Frequency Stabilization Characteristics of $^{87}\text{Rb}$ Two-Photon Transition Spectrum

Meng Yiming<sup>1,2,3</sup>, Xiang Jingfeng<sup>1</sup>, Xu Bin<sup>1</sup>, Li Biao<sup>1</sup>, Wan Jinyin<sup>1</sup>, Ren Wei<sup>1</sup>,  
Deng Siminda<sup>1,2,3</sup>, Zhang Di<sup>1</sup>, Lü Desheng<sup>1\*</sup>

<sup>1</sup>Spaceborne Laser Engineering Department, Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China;

<sup>2</sup>Key Laboratory of Quantum Optics, Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China;

<sup>3</sup>University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China

### Abstract

**Objective** Rubidium (Rb) atomic two-photon spectra have attracted great attention in connection with small atomic frequency standards due to their narrow linewidth, absence of Doppler background, and broadening characteristics. In the past few decades, extensive research has been conducted on Rb atomic two-photon spectroscopy. As early as the 1990s, F. Nez *et al.* measured the absolute frequency of the two-photon transition with an uncertainty of  $1.3 \times 10^{-11}$ . In 1994, Y. Millerioux *et al.* locked two lasers to the relevant hyperfine levels using Rb atomic two-photon transitions and achieved an instability of  $3 \times 10^{-13}$  in the 2000 s. In 2000, J. E. Bernard *et al.* used a frequency-doubled 1556 nm laser to precisely measure the two-photon transition frequency with a stability of  $4 \times 10^{-13}$  in 200 s. In 2020, Vincent Maurice *et al.* demonstrated a two-photon transition frequency standard on a micro-optical substrate using a miniature gas cell, achieving an instability of  $2.9 \times 10^{-12}$  at 450 mW power for 1 s. In 2021, Zachary L. Newman *et al.* reported a two-photon frequency standard at NIST with an instability of  $1.8 \times 10^{-13}$  in 100 s averaging time. The Rb two-photon optical frequency standard has the advantages of compactness and high precision, and with the support of micro-comb technology, it is expected to be adaptable to a wider range of application scenarios to become the next-generation high-performance atomic clock. Therefore, it is necessary to investigate this two-photon optical reference with compact volume and high performance.

**Methods** We conducted a two-photon fluorescence spectroscopy experiment using a high-purity  $^{87}\text{Rb}$  vapor cell and a 778.1 nm laser. The laser was generated by an external cavity diode laser (ECDL) and stabilized by direct current modulation. The laser was split into two beams by a polarization beam splitter (PBS) and coupled into single-mode polarization-maintaining fibers. One beam was used to excite the atoms in the vapor cell, which was heated to 110 °C, and the other beam was used as a reference for the beat frequency measurement with an optical frequency comb. The fluorescence signal was detected by a photomultiplier tube (PMT) and amplified by a trans-impedance amplifier (TIA) and lock-in amplifier. The laser frequency was locked to the zero-crossing point of the error signal using a laser servo device. The experimental setup was fixed on an optical bench with no adjustable components so as to reduce the influence of optical alignment. We used a Glan-Taylor prism to maintain polarization, two focusing lenses to enhance the fluorescence signal, a high-reflectivity mirror, collecting lenses, a high-precision heating system, and an interference filter to optimize the fluorescence signal with a high signal-to-noise ratio and a magnetic shield to minimize the Zeeman effect.

**Results and Discussions** We obtained the fluorescence spectra and error signals of the two-photon transition  $5S_{1/2} - 5D_{5/2}$  at 420 nm in  $^{87}\text{Rb}$  atoms using an external cavity diode laser (Fig. 3). The laser frequency was scanned near the resonance and modulated by a sinusoidal current. We measured the dependence of the fluorescence on the laser power from 10 mW to 28.89 mW (Fig. 4) and on the temperature of the Rb cell from 100 °C to 120 °C. We determined the frequency shift coefficient of  $-7.11$  kHz/mW (Fig. 6), which shows a linear relationship between the optical power and the optical frequency shift over a range of optical power. We recorded

the frequency distribution in two different situations (Fig. 7) which shows that the beat frequency after locking is more stable than that before locking. Figure 8 illustrates the schematic diagram of the beam-focusing system. The alignment is shown near the focal point with the reflected light undeflected (left) and deflected by  $0.005^\circ$  (right). We tested the relation between the modulation width and the frequency shift (Fig. 9). The Allan deviation of the beat frequency reached  $1.50 \times 10^{-12}$  at an averaging time of 1 s and  $2.88 \times 10^{-13}$  at 500 s (Fig. 10).

**Conclusions** A high-stability optical frequency reference based on the two-photon transition in  $^{87}\text{Rb}$  is developed and characterized. The system parameters such as laser power, temperature of the  $^{87}\text{Rb}$  cell, and modulation width are optimized for the locking performance. The key factors that limit the stability of the two-photon optical frequency reference are identified, including the signal-to-noise ratio of the spectrum, the internal modulation noise, the optical alignment of the counter-propagating beams, and the environmental sensitivity of the system structure. The two-photon optical frequency reference achieves a stability improvement of 1–2 orders of magnitude over the conventional saturated absorption optical frequency reference and also reaches a high level among similar experimental schemes. To further reduce the frequency drift caused by environmental disturbances, future work can use low thermal expansion coefficient glass for the base and bracket of the optical components. Smaller Rb cell and optical elements are good ways to compress the optical path size. Ensuring a vacuum on the physical platform is another efficient way to decrease the influence of the environment. External modulation methods can also help to improve the system's performance.

**Key words** laser; two-photon transition; laser frequency stabilization; optical alignment; frequency stability