

拉姆塞光梳光谱学

章双佑 张宇 杨晚鹏 赵建业

北京大学信息科学技术学院, 北京 100871

摘要 飞秒光梳为精密光谱测量领域带来了革命性的进展, 不仅为射频与光频建立了直接的联系, 将光谱测量精度提高至 17 位, 而且还可以直接用于光谱测量, 产生了一门新的学科——直接光梳光谱学(DFCS)。在 DFCS 中, 光梳脉冲能量放大和非线性频率变换是不可或缺的手段, 但是传统的脉冲放大、高次谐波产生过程会导致光梳的频率分辨率下降, 精度和能量难以兼得。本文报道了激光光谱学中的重大进展——拉姆塞光梳光谱学, 该技术结合了两个诺贝尔奖概念, 可实现光谱的高准确度、高分辨率测量。

关键词 光谱学; 拉姆塞; 光梳; 直接光梳光谱学; 拉姆塞光梳光谱学

中图分类号 O433.1

文献标识码 A

doi: 10.3788/LOP52.113002

Ramsey-Comb Spectroscopy

Zhang Shuangyou Zhang Yu Yang Wanpeng Zhao Jianye

School of Electronics Engineering and Computer Science, Peking University, Beijing 100871, China

Abstract The development of frequency combs has revolutionized the field of precision spectroscopy. On one hand, it can directly link optical frequencies with radio frequencies, and can enable precise frequency measurement with up to 17-digit accuracy. On the other hand, it can be used to directly excite the atomic transitions and generate a new subject named direct frequency comb spectroscopy (DFCS). Amplification of the pulsed output and nonlinear processes such as wavelength conversion of frequency combs are very desirable in DFCS. However, the accuracy and resolution are often limited during the amplification and harmonic conversion. A significant progress of laser spectroscopy named Ramsey-comb spectroscopy is reported, presenting a potential solution to achieve precise measurement by combining two Nobel Prize ideas.

Key words spectroscopy; Ramsey; comb; direct frequency comb spectroscopy; Ramsey-comb spectroscopy

OCIS codes 300.6540; 320.7150; 300.6530

1 引言

基于锁模激光器的飞秒光梳由于其在光频和射频之间直接搭起了桥梁, 成为超高精度频率测量、度量学领域中不可或缺的工具^[1-4]。光梳不仅可以为连续光激光器激发原子跃迁的光谱学提供频率基准, 实现 17 位频率测量精度^[5-6], 还可以直接用来激发原子的光谱跃迁实现跃迁频率的测量(DFCS)^[7-11]。DFCS 解决了激光光谱学中一大难题——紫外、深紫外光谱的测量。由于缺少 180 nm 以下宽带可调、线宽窄的连续光激光器, 所以该部分光谱探测只能利用光梳测量。紫外、深紫外光谱探测是物理学领域中尤为重要的一部分, 可以通过对此类跃迁光谱的精密探测实现对量子电动力学(QED)、里德堡常数、电子质子质量比等基本物理学常量的验证^[12], 同时可以促进原子核以及原子核钟的研究发展^[13], 例如通过 160 nm 附近的钷-229 原子核跃迁的研究, 实现原子核内部结构的重新认识和基于此跃迁的 10^{-20} 量级准确度的原子核钟^[14]。

传统的 DFCS 需要脉冲能量放大以及非线性频率变换, 利用全重复频率放大和增强共振腔的方法实现

收稿日期: 2015-04-28; 收到修改稿日期: 2015-06-02; 网络出版日期: 2015-10-25

基金项目: 国家自然科学基金(61371074)

作者简介: 章双佑(1989—), 男, 博士研究生, 主要从事原子钟、双光子跃迁、光纤频率传输等方面的研究。

E-mail: zhangshuangyou986@163.com

导师简介: 赵建业(1972—), 男, 博士, 教授, 主要从事原子钟、光纤时频传输、光与物质相互作用、双光子跃迁等方面的研究。E-mail: zhaojianye@pku.edu.cn(通信联系人)

脉冲能量放大^[15-16];通过原子或分子在该强激光场中辐射高次谐波的途径获得紫外光学频率梳,将光梳光谱学拓展至紫外波段。但是在非线性高次谐波产生过程中产生的相移效应限制了光梳的频谱分辨率和准确度。本文介绍了一种结合两个诺贝尔奖概念(1989年 Ramsey 技术和 2005 年光梳技术)的方法,解决激光光谱学中光梳的强度和精度问题^[17],该项技术被称为拉姆塞光梳光谱学。

2 拉姆塞光梳光谱学

高能量、高分辨的光梳是精密光谱测量的必要工具。在传统光梳光谱学中,由于采用的全重复频率放大和增强共振腔方法只能将脉冲的能量放大至微焦量级^[18],脉冲能量依然受限;同时放大和频率转换过程产生的相移效应限制了光梳光谱学的频谱分辨率。阿姆斯特丹自由大学 Eikema 研究小组结合分离振荡场与光梳技术,解决了光梳光谱学对脉冲能量以及精度的需求^[17,19]。他们通过选择性放大光梳的两个脉冲实现更高能量的脉冲放大和更宽的波长调谐性,通过后续的高次谐波产生实现了在 51 nm 附近的精确紫外光谱学测量^[19]。但是这项工作只能放大连续的两个激光脉冲,光谱的分辨率和准确度仍然受到限制。针对这一问题,于 2014 年提出了拉姆塞光梳光谱学的概念。

2.1 原理

拉姆塞光梳光谱学的原理如图 1 所示,通过选择放大任意间隔的脉冲,既能得到毫焦级的脉冲能量,激发微弱的原子跃迁,又能高精度、大范围地扫描脉冲间隔时间,实现光梳的高频率分辨率和准确度。当第一个脉冲光与原子相互作用时,原子按照自然跃迁频率 f_0 进行自由演化,原子波函数以跃迁频率自由振荡。在这个演化过程中原子可以被认为是在激发态与基态之间叠加的一种量子力学振荡。间隔时间 nT (n 为任意整数, T 为脉冲重复周期)以后,原子与第二个光脉冲发生相互作用,原子激发态的粒子数分布发生改变。前后脉冲来源于同一个光梳,因此彼此之间相位相干。取决于第二个激发场与原子振荡的相对相位,原子可能被抽运至激发态,也可能被抽运至基态。通过实验改变脉冲间隔时间 nT ,并记录不同时间间隔对应的原子激发态粒子数的周期性振荡,可以计算出跃迁频率 f_0 。

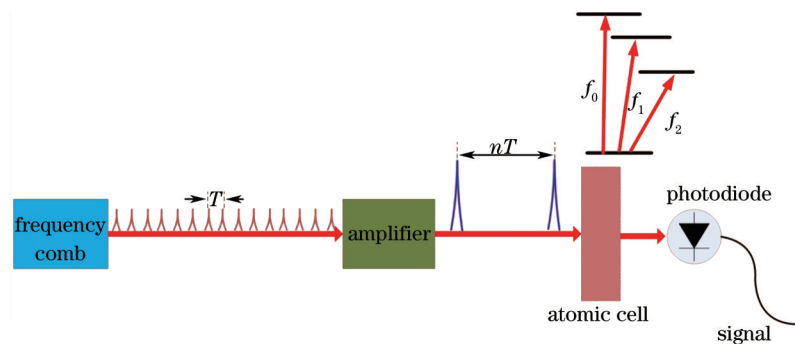


图 1 拉姆塞光梳光谱学原理

Fig.1 Principle of Ramsey-comb spectroscopy

原子激发态的粒子数分布取决于两个脉冲的延时 Δt 以及在脉冲放大过程中附加的相移 $\Delta\Phi$ 。对于一个两能级系统而言,当 Δt 改变时,上能级粒子数呈现出一种振荡,这个振荡正比于 $1 + \cos(2\pi f_i \Delta t + \Delta\Phi)$ 。通过多次扫描 Δt ,得到不同延时 Δt 时这个振荡信号的强度。当 Δt 和 $\Delta\Phi$ 已知,原子跃迁频率就可以被精确地计算得到。 Δt 的变化范围越大,计算得到的原子跃迁频率越准确。拉姆塞光梳光谱学可以利用相干放大的脉冲对实现原子光谱的多次测量。首先通过选择不同的脉冲(即改变 n 的大小)实现大范围的 Δt 改变;同时,在每一个不同的 n 取值情况下,通过改变光梳的脉冲重复频率实现高精度的延时 Δt 扫描。基于大量的测量数据,可以精密地计算出原子的跃迁频率。此外,当原子存在多个跃迁频率时(如图 1 中 f_0, f_1, f_2),激发态的跃迁信号正比于 $S = \sum A_i [1 + \cos(2\pi f_i \Delta t + \Delta\Phi)]$,通过长时间探测原子激发态的粒子数分布,可以同时测得多个跃迁频率。

2.2 实验

如图 2 所示,在文献[17]的实验中,采用中心波长在 760 nm 附近、重复频率为 128 MHz、脉冲能量为 6 nJ 的钛蓝宝石光梳作为脉冲光源。钛蓝宝石激光器的重复频率和载波包络频移频率都被锁定在铷钟上。通过参量放大将钛蓝宝石光梳输出的两个脉冲放大百万倍至 5 mJ。被放大的两个脉冲之间的延时大小可以

通过改变双脉冲抽运激光器(Nd:YVO₄锁模激光器)重复频率进行控制,在钛蓝宝石输出的脉冲中,只有与双脉冲抽运激光器输出脉冲时域重叠的脉冲才能得到能量放大,选择的脉冲对在光参量放大器(图2)中得到放大。参量放大器采用超高增益的Nd:YVO₄放大器作为预放,采用Nd:YAG放大器作为第二级放大。Morgenweg等通过实验证实这种高能量放大过程中引入的相移小于光载波周期的千分之一。

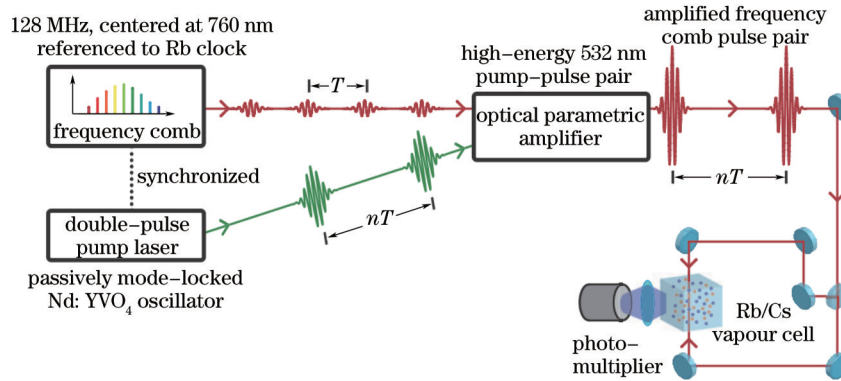


图2 实验结构图

Fig.2 Schematic of experimental setup

为了证明拉姆塞光梳光谱学的优势,Morgenweg等利用放大的光脉冲激发碱金属铷和铯原子的非共振双光子光谱。尽管非共振的双光子跃迁几率较弱、激光斑点较大,但是经过放大后的激光脉冲能量足够高,实验中依然能够得到很强的双光子信号。在脉冲间隔对应的每一个 n 范围内,通过微小改变重复频率实现百阿秒量级的脉冲间隔扫描。双光子的荧光信号含有这些扫描信号,利用光电倍增管(PMT)探测荧光信号。

图3(a)所示为扫描不同延时 Δt 的铷和铯原子的时域结果。如图3所示, $n=1$ 时, Δt 以百阿秒的步进实现3 fs扫描范围,得到一系列不同强度的信号。对于铷原子而言,铷7S的寿命较长(88 ns)^[20], n 可以扫描至44(345 ns)。对于铯原子而言, n 的扫描范围只能达到37。Morgenweg等利用这种方法实现了大范围的延时扫描,得到了更高的测量精度。原子激发态寿命越长,测得精度越高。

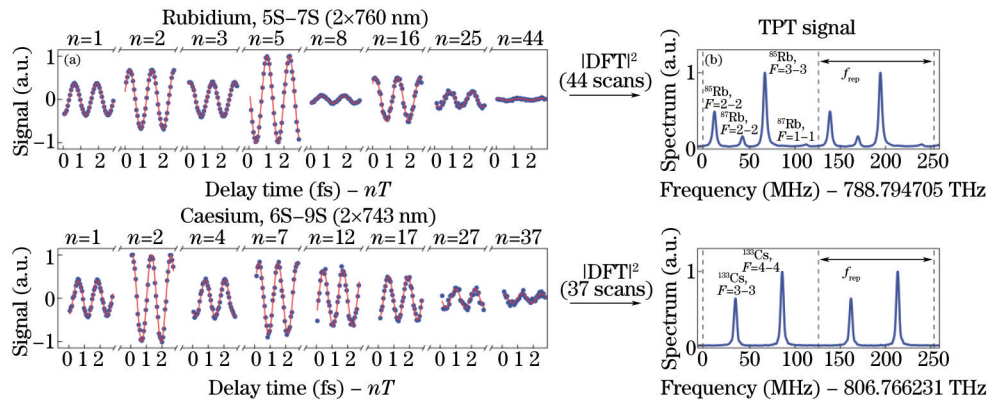


图3 拉姆塞光梳光谱学实验结果

Fig.3 Experimental result of Ramsey-comb spectroscopy

对图3(a)中的数据进行拟合计算,对于每一个 n 利用3 fs的数据可以拟合计算出对应 T 范围内的相位信息,该相位信息包含了原子跃迁的频率和强度信息。拟合出所有 n 范围内的相位信息,当拉姆塞扫描的次数多于自由参量个数(跃迁频率、跃迁强度)时,可以通过最小二乘拟合算法计算出频率和跃迁强度。如图3(b)所示,可以得到双光子跃迁谱线以及跃迁频率。关于这部分拟合计算,可以参考文献[17]的补充材料和文献[21],此处不做赘述。Morgenweg等测得⁸⁵Rb、⁸⁷Rb和¹³³Cs的跃迁频率和精细结构常数 A_{7S} 、 A_{9S} 的大小。相比铷原子而言,铯原子的双光子跃迁概率更低,激发难度更大,但是拉姆塞光梳光谱学的实验结构比之前报道的最佳结果还要好30倍。说明这种方法比传统的连续光和直接光梳光谱学表现出更优异的性能。

3 结 论

在文献[17]的实验中比较容易地获得了铯原子和铷原子相对较宽的跃迁谱线。实验是在比较容易实现

的 760 nm 和 743 nm 波长附近进行,不能完全体现拉姆塞光梳光谱学技术在紫外及深紫外光谱学中的优势。但是,这种方法测得的跃迁频率精度与基于连续光测量的精度相当,比传统的直接光梳光谱学方法高一个量级。基于参量放大的拉姆塞光梳光谱学技术结合了高频率精度、宽带的波长覆盖范围以及毫焦级脉冲能量。高能量使得拉姆塞光梳光谱学可以直接、有效地通过非线性倍频晶体或者惰性气体的相互作用,产生整数倍于入射光梳的相干辐射波,将基频光梳延伸至极紫外波段^[22]。这种方法对于简单原子光谱的高精度测量具有重要意义,如 He⁺ 原子 1S-2S 的跃迁^[23-24]。

参 考 文 献

- 1 Wang Guochao, Wei Chunhua, Yan Shuhua. Wavelength selection and non-ambiguity range analysis for optical-comb-referenced multi-wavelength absolute distance measurement[J]. *Acta Optica Sinica*, 2014, 34(4): 0412002.
王国超,魏春华,颜树华. 光梳多波长绝对测距的波长选择及非模糊度量程分析[J]. *光学学报*, 2014, 34(4): 0412002.
- 2 Yan Lulu, Zhang Yanyan, Zhao Wenyu, *et al.*. 186 MHz low amplitude noise erbium-doped-fiber femtosecond laser[J]. *Chinese J Lasers*, 2014, 41(8): 0802004.
闫露露,张颜艳,赵文宇,等. 低幅度噪声掺铒光纤飞秒激光器[J]. *中国激光*, 2014, 41(8): 0802004.
- 3 Wu Xuejian, Li Yan, Wei Haoyun, *et al.*. Femtosecond optical frequency combs for precision measurement applications [J]. *Laser & Optoelectronics Progress*, 2012, 49(3): 030001.
吴学健,李岩,尉昊贇,等. 飞秒光学频率梳在精密测量中的应用[J]. *激光与光电子学进展*, 2012, 49(3): 030001.
- 4 Shi Nuannuan, Gu Yiying, Hu Jingjing, *et al.*. Study of the tunable optical comb filter based on Sagnac interferometer loop[J]. *Acta Optica Sinica*, 2014, 34(3): 0306001.
石暖暖,谷一英,胡晶晶,等. 基于 Sagnac 环可调谐光梳状滤波器特性研究[J]. *光学学报*, 2014, 34(3): 0306001.
- 5 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[J]. *Science*, 2008, 319(5871): 1808-1812.
- 6 Chou C W, Hume D B, Koelemeij J C J, *et al.*. Frequency comparison of two high-accuracy Al⁺ optical clocks[J]. *Physical Review Letters*, 2010, 104(7): 070802.
- 7 Marian A, Stowe M C, Lawall J R, *et al.*. United time-frequency spectroscopy for dynamics and global structure[J]. *Science*, 2004, 306(5704): 2063-2068.
- 8 Marian A, Stowe M C, Felinto D, *et al.*. Direct frequency comb measurements of absolute optical frequencies and population transfer dynamics[J]. *Physical Review Letters*, 2005, 95(2): 023001.
- 9 Fendel P, Bergeson S D, Udem T, *et al.*. Two-photon frequency comb spectroscopy of the 6 s-8 s transition in cesium [J]. *Optics Letters*, 2007, 32(6): 701-703.
- 10 Stowe M C, Thorpe M J, Pe'er A, *et al.*. Direct frequency comb spectroscopy[J]. *Advances in Atomic, Molecular, and Optical Physics*, 2008, 55: 1-60.
- 11 Wolf A L, Van Den Berg S A, Ubachs W, *et al.*. Direct frequency comb spectroscopy of trapped ions[J]. *Physical Review Letters*, 2009, 102(22): 223901.
- 12 Hänsch T W. Nobel lecture: Passion for precision[J]. *Reviews of Modern Physics*, 2006, 78(4): 1297-1309.
- 13 Diddams S A. Spectroscopy: Combs grow bigger teeth[J]. *Nature Physics*, 2014, 10(1): 8-9.
- 14 Campbell C J, Radnaev A G, Kuzmich A, *et al.*. Single-ion nuclear clock for metrology at the 19th decimal place[J]. *Physical Review Letters*, 2012, 108(12): 120802.
- 15 Ozawa A, Schneider W, Hänsch T W, *et al.*. Phase-stable single-pass cryogenic amplifier for high repetition rate few-cycle laser pulses[J]. *New Journal of Physics*, 2009, 11(8): 083029.
- 16 Gohle C, Udem T, Herrmann M, *et al.*. A frequency comb in the extreme ultraviolet[J]. *Nature*, 2005, 436(7048): 234-237.
- 17 Morgenweg J, Barmes I, Eikema K S E. Ramsey-comb spectroscopy with intense ultrashort laser pulses[J]. *Nature Physics*, 2014, 10(1): 30-33.
- 18 Cingöz A, Yost D C, Allison T K, *et al.*. Direct frequency comb spectroscopy in the extreme ultraviolet[J]. *Nature*, 2012, 482(7383): 68-71.
- 19 Kandula D Z, Gohle C, Pinkert T J, *et al.*. Extreme ultraviolet frequency comb metrology[J]. *Physical Review Letters*, 2010, 105(6): 063001.
- 20 Gomez E, Aubin S, Orozco L A, *et al.*. Lifetime and hyperfine splitting measurements on the 7s and 6p levels in rubidium [J]. *JOSA B*, 2004, 21(11): 2058-2067.

- 21 Morgenweg J, Eikema K S E. Ramsey-comb spectroscopy: Theory and signal analysis[J]. *Physical Review A*, 2014, 89(5): 052510.
- 22 Pinkert T J, Kandula D Z, Gohle C, *et al.*. Widely tunable extreme UV frequency comb generation[J]. *Optics Letters*, 2011, 36(11): 2026-2028.
- 23 Herrmann M, Haas M, Jentschura U D, *et al.*. Feasibility of coherent xuv spectroscopy on the 1 S-2 S transition in singly ionized helium[J]. *Physical Review A*, 2009, 79(5): 052505.
- 24 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(6118): 417-420.

栏目编辑: 吴秀娟