

相干布局囚禁原子钟原子气室内部缓冲 气体组分的优化

李云超^{1,2}, 胡旭文^{1,2}, 张璐^{1,2}, 刘召军^{1,2}, 张开放^{1,2}, 牟仕浩^{1,2}, 闫树斌^{1,2}, 张彦军^{1,2*}

¹中北大学仪器与电子学院, 山西 太原 030051;

²中北大学仪器科学与动态测试教育部重点实验室, 山西 太原 030051

摘要 频率稳定度是评价相干布局囚禁(CPT)原子钟性能的重要指标,而原子气室内部缓冲气体的种类及其气压比是影响 CPT 原子钟频率稳定度的主要因素。选用 Ar 与 N₂ 为缓冲气体,从理论上对其温度频移特性进行仿真分析,并在不同缓冲气体气压比例的条件实验测量了 CPT 原子钟的温度频移特性。根据理论与实验结果确定了原子气室内部缓冲气体最佳的比例,并给出了与之对应的最小温度频移工作点。研究结果对设计 CPT 原子钟原子气室内部的缓冲气体气压比及其工作温度具有借鉴作用。

关键词 原子与分子物理; 原子钟; 原子气室; 频率稳定度; 温度频移

中图分类号 TN 305.7

文献标识码 A

doi: 10.3788/LOP56.120201

Optimization of Buffer Gas Compositions in Atomic Vapor Cell for Coherent Population Trapping Atomic Clock

Li Yunchao^{1,2}, Hu Xuwen^{1,2}, Zhang Lu^{1,2}, Liu Zhaojun^{1,2}, Zhang Kaifang^{1,2},
Mou Shihao^{1,2}, Yan Shubin^{1,2}, Zhang Yanjun^{1,2*}

¹School of Instrument and Electronics, North University of China, Taiyuan, Shanxi 030051, China;

²Key Laboratory of Instrumentation Science and Dynamic Measurement, Ministry of Education,
North University of China, Taiyuan, Shanxi 030051, China

Abstract Frequency stability is an important indicator to evaluate the performance of a coherent population trapping (CPT) atomic clock, and the type and pressure ratios of the buffer gas compositions inside an atomic vapor cell are main factors influencing frequency stability. In this study, the temperature frequency shift caused by buffer gas compositions, i. e., Ar and N₂, was simulated and analyzed theoretically, and the temperature shifts caused by different pressure ratios of buffer gas compositions were tested experimentally. The optimal ratio of buffer gas compositions in the atomic vapor cell was determined based on the theoretical and experimental results, and the corresponding operation point for the minimum temperature frequency shift was found. The research results provide a valuable reference for selecting the pressure ratio of buffer gas compositions and the operation temperature of the atomic vapor cell for a CPT atomic clock.

Key words atomic and molecular physics; atomic clock; atomic vapor cell; frequency stability; temperature shift

OCIS codes 020.1335; 020.7490; 020.1670

收稿日期: 2018-11-27; 修回日期: 2018-12-21; 录用日期: 2019-01-11

基金项目: 科技部国家重点基础研究计划(2017YFB0503200)、山西省自然科学基金(201701D121065、201601D11008)、国家高分辨率对地观测系统重大专项(67-Y20A07-9002-16/17)、山西省“1311”重点学科建设计划、山西省高等学校 131 领军人才、山西省高等学校中青年拔尖创新人才、山西省留学回国人员科技活动择优资助项目

* E-mail: zhangyanjun@nuc.edu.cn

1 引言

随着原子与分子物理学理论的发展及微纳加工、微系统集成技术的进步,研究人员对原子钟、原子磁力仪、原子陀螺仪等原子物理系统的研发提出了微型化、超低功耗和高集成化等技术要求^[1-2]。基于相干布局囚禁(CPT)的原子钟因其具有体积小、功耗低的优势,在通信、时间同步、导航定位等领域具有广泛的应用前景,是原子钟微型化的发展方向^[3-4]。CPT原子钟主要利用原子气室内部碱金属原子蒸气与具有特定相位差的相干双色光相互作用而发生CPT现象,因此原子气室是CPT原子钟物理系统的核心部件。原子气室的性能及物理尺寸直接影响整个CPT原子钟系统能否实现小型化、低功耗及片上集成^[5-6]。

原子气室的体积一般为几个立方毫米,为增加气室内部与激光作用的碱金属原子数量、提高谱线信噪比,通常需要对原子气室进行加热以提高原子的饱和蒸气压^[7]。同时,为减小CPT共振谱线的线宽,原子气室内部通常需要充入一定量的缓冲气体。缓冲气体与碱金属原子相互碰撞,不断改变原子运动的速率与方向,从而减小碱金属原子与气室内壁碰撞以及碱金属原子之间相互碰撞的概率,延长碱金属原子的抗弛豫时间。缓冲气体分子极化性非常弱,通常经过几百万次的碰撞才会引起退极化,因此对CPT共振谱线的线宽影响较小^[8-9]。然而,缓冲气体与碱金属原子的碰撞会引起频移,且随着原子气室工作温度的变化,此频移会更加明显,从而直接影响CPT原子钟的稳定度。对于特定缓冲气体与碱金属原子,温度频移量主要由压强和温度控制,因此,必须对原子气室进行恒温控制,且要选择合适的缓冲气体种类及其压强比^[10-12]。

本文通过理论仿真研究了混合缓冲气体条件下CPT原子钟的温度频移特性,并搭建了测量CPT原子钟温度频移的实验平台,实验测量了不同配比下缓冲气体引起的温度频移。研究了缓冲气体比例与温度频移之间的变化关系,确定了原子气室内部缓冲气体的最佳配比,找出了对应的原子气室最小温度频移工作点,为设计原子气室内部缓冲气体气压比和对应的原子气室工作温度提供了参考。

2 基本原理

描述原子钟短期稳定度的物理量 $\sigma(\tau)$ 可表示为^[13]

$$\sigma(\tau) = \frac{K}{4\nu_{\text{hf}}} \sqrt{\frac{e}{I_{\text{bg}}}} \frac{1}{q} \tau^{-1/2}, \quad (1)$$

式中: K 为与调制方式有关的常数,一般取值为0.2; ν_{hf} 为原子基态超精细跃迁频率; e 为单位电荷; I_{bg} 为背景电流; τ 为取样时间; q 为CPT共振谱线对比度与线宽的比值,且 $q = C/\Delta\nu$,其中 $\Delta\nu$ 是共振线宽, C 为信号对比度。由(1)式可知,半峰全宽 $\Delta\nu$ 越窄,原子钟的频率稳定性越好。

为了压窄CPT共振谱线线宽,以获得良好的频率稳定度,通常需要在原子气室内部充入缓冲气体。但是碱金属原子与缓冲气体之间的碰撞会改变碱金属原子超精细能级的跃迁频率,该频移量与缓冲气体的种类、压强和温度有关。为了减小缓冲气体温度频移的影响,通常在原子气室内部充入一正一负两种频移系数相反的缓冲气体。在一定温度范围内,混合缓冲气体引起的温度频移可表示为^[14]

$$\Delta\nu_{\text{bg}} = P_0 [\beta_{0s} + \delta_{0s}(T - T_0) + \gamma_{0s}(T - T_0)^2], \quad (2)$$

式中: $\Delta\nu_{\text{bg}}$ 为缓冲气体温度频移; T 表示原子气室的工作温度; T_0 为测量参数的参考温度; P_0 为参考温度 T_0 下混合缓冲气体的总气压,即 $P_0 = P_1 + P_2$, P_1 和 P_2 分别代表两种缓冲气体的压强; β_{0s} 为混合缓冲气体的压力频移系数,与原子气室温度无关; δ_{0s} 为混合缓冲气体的线性温度系数; γ_{0s} 为混合缓冲气体的二阶温度系数。 β_{0s} 、 δ_{0s} 和 γ_{0s} 可分别表示为

$$\begin{cases} \beta_{0s} = \frac{(\beta_1 + r\beta_2)}{1 + r} \\ \delta_{0s} = \frac{(\delta_1 + r\delta_2)}{1 + r} \\ \gamma_{0s} = \frac{(\gamma_1 + r\gamma_2)}{1 + r} \end{cases}, \quad (3)$$

式中:下标1和2分别代表缓冲气体1和2; β_1 和 β_2 分别为两种缓冲气体的压力频移系数; δ_1 和 δ_2 为两种缓冲气体的线性温度系数; γ_1 和 γ_2 为两种缓冲气体的二阶温度系数; $r = P_2/P_1$ 是两种缓冲气体的气压比(Ar-N₂气压比)。

将(3)式代入(2)式,并对频率偏移量求导可得

$$\frac{d\Delta\nu}{dT} = P_0 \left[\frac{\delta_1 + r\delta_2}{1 + r} + 2 \frac{\gamma_1 + r\gamma_2}{1 + r} (T - T_0) \right]. \quad (4)$$

当 $d\Delta\nu/dT = 0$ 时,缓冲气体温度频移变化最小,此时对应的缓冲气体比例与温度的关系为

$$r(P_2/P_1) = -\frac{\delta_1 + 2\gamma_1(T - T_0)}{\delta_2 + 2\gamma_2(T - T_0)}, \quad (5)$$

$$T = -\frac{\delta_1 + r\gamma_2}{2(\gamma_1 + r\gamma_2)} \quad (6)$$

因此,根据(5)式和(6)式,选择合适的缓冲气体种类及配比,控制原子气室的工作温度处于原子钟常用的工作温度范围内,则可同时抑制线性温度频移和二阶温度频移。

频移系数有正有负,不同的温度和气压都会产生频移。表 1 为铷原子在常用缓冲气体中的气压频

表 1 当 $T_0 = 60\text{ }^\circ\text{C}$ 时 Rb 原子不同缓冲气体中的线性频移系数和温度系数

Table 1 Linear frequency shift coefficients and temperature coefficients for Rb atoms with different buffer gas compositions when $T_0 = 60\text{ }^\circ\text{C}$

Buffer gas	$\beta / (\text{Hz} \cdot \text{Pa}^{-1})$	$\delta / (\text{Hz} \cdot \text{ }^\circ\text{C}^{-1} \cdot \text{Pa}^{-1})$	$\gamma / (\text{Hz} \cdot \text{ }^\circ\text{C}^{-2} \cdot \text{Pa}^{-1})$
Ar	-0.434	-2.4×10^{-3}	-2.625×10^{-6}
N_2	4.102	3.9×10^{-3}	-1.125×10^{-5}
CH_4	3.816	4.425×10^{-3}	-4.5×10^{-7}
Kr	-4.452	-4.275×10^{-3}	0

根据(5)式,当参考温度 $T_0 = 60\text{ }^\circ\text{C}$, Ar- N_2 缓冲气体气压比 r 随温度的变化关系如图 1 所示。由图 1 可知,当温度系数为 0 时, Ar- N_2 气压比与原子气室温度近似呈反比关系,且随着 Ar 分压的升高,对应的最小频移工作点则逐渐降低。

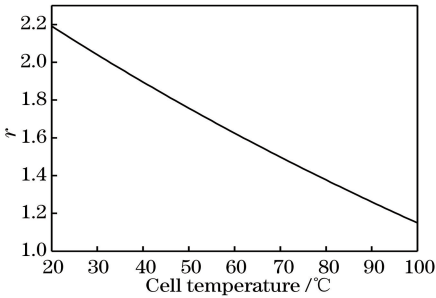
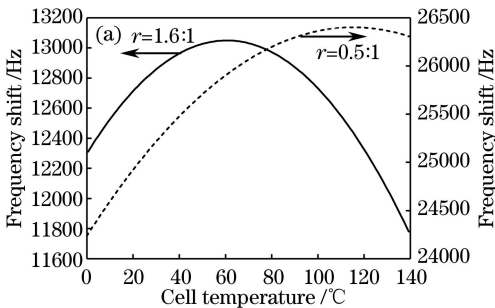


图 1 r 随温度的变化关系
Fig. 1 r versus temperature

根据(2)式,当原子气室混合缓冲气体总气压为



移系数和温度系数^[15]。由表 1 可知, N_2 引起正频移。此外, N_2 对铷原子有较好的“荧光淬灭”效果,可避免原子气室内部光辐射囚禁导致光与原子作用时间短的不足。Ar 的气压频移系数和线性温度系数均与 N_2 的相反。正负两种缓冲气体混合有利于降低缓冲气体的频移对温度的敏感性,因此本实验选用 Ar 与 N_2 的混合气体作为原子气室内部的缓冲气体。

10 kPa,参考温度为 $60\text{ }^\circ\text{C}$ 时,不同比例下混合缓冲气体温度频移的仿真结果如图 2(a) 所示。由图 2(a)可知,在一定的温度范围内,缓冲气体引起的温度频移与 Ar- N_2 气压比相关。图 2(b)为温度系数随缓冲气体比例的理论仿真结果。由图 2(b)可知,当 Ar- N_2 气压比为 1.6 时,缓冲气体线性温度系数为 0,与原子气室内部压强无关。

3 实验设计与分析

3.1 实验平台的搭建

图 3 为测量 CPT 原子钟缓冲气体温度频移特性的实验原理图,其中 QWP 为四分之一波片,PD 为光电探测器,VCSEL 为垂直腔表面激光发射器,DC 为直流电流, Γ^* 为激发态到基态能级的延迟率。实验系统主要包括微波源、激光器、四分之一波片、透镜、原子气室、光电探测器和锁相放大器等器件。

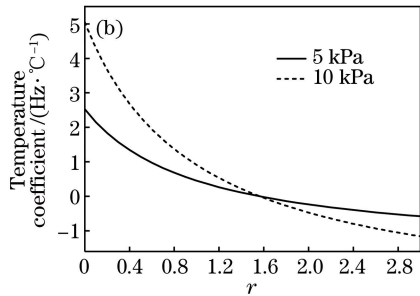


图 2 缓冲气体温度频移仿真图。(a)混合缓冲气体温度频移仿真曲线;(b)温度系数随 Ar- N_2 气压比 r 的变化曲线
Fig. 2 Simulation results of temperature frequency shift for buffer gas. (a) Frequency shift of buffer gas mixture versus cell temperature; (b) temperature coefficient versus pressure ratio r of Ar- N_2

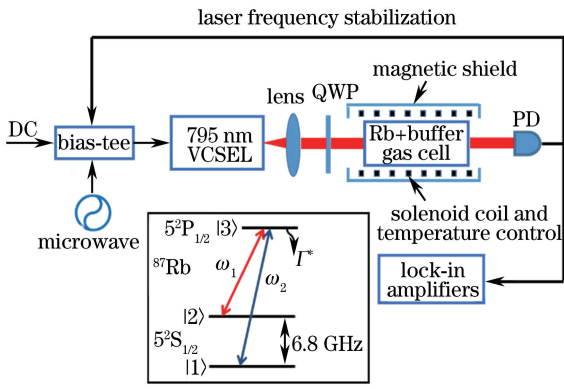


图3 原子气室频移测量系统原理图

Fig. 3 Principle diagram of frequency shift measurement in atomic vapor cell

在实验中,通过自制的两片氧化锡锡膜(ITO)加热器结构将原子气室的温度控制在 $20\sim 100\text{ }^\circ\text{C}$ 。ITO膜厚约为 200 nm ,方阻约为 $6\ \Omega$ 。为抵消加热电流的磁场,ITO加热玻璃是利用非导电环氧树脂的玻璃基板制作而成的。原子气室之外设有一对亥姆霍兹线圈,亥姆霍兹线圈产生沿光传播方向的恒定磁场,磁场强度约为 $10\ \mu\text{T}$ 。为屏蔽外界杂散磁场的影响,将原子气室放置坡莫合金磁屏蔽筒内。光源器件为 VCSEL,输出光束直径约为 1.5 mm ,光强约为 $35\ \mu\text{W}$ 。

^{87}Rb 原子基态超精细能级跃迁频率约为 6.834 GHz ,为获得与 ^{87}Rb 原子发生 CPT 共振所需的相干双色光,实验中,通过 Bias-Tee 给 VCSEL 的

驱动电流耦合 3.417 GHz 的微波调制信号,使 VCSEL 能够输出相干双色光。VCSEL 输出的相干双色光经透镜转换成平行光,经过四分之一波片将线偏正光转换成圆偏正光后进入原子气室。从原子气室出来的光携带了光与原子作用的信息,通过光电探测器将其转化为电信号后输出至示波器。在上述过程中,光电探测器探测得到的信号分为激光频率锁定和微波频率锁定两部分。激光锁频信号以铷原子的吸收谱线信号为鉴频信号,经伺服环路将激光频率锁定在吸收峰峰值对应的频率上。在激光频率锁定的情况下,扫描由输出的微波频率获得的 CPT 共振信号,然后将微波频率锁定在 CPT 共振谱线峰值对应的频率上,最后输出标准频率。将标准频率与铷原子跃迁频率进行对比,从而计算出该温度下的缓冲气体温度频移。

3.2 结果分析

为研究在一定温度范围内混合缓冲气体条件下 CPT 原子钟的温度频移特性,实验选用 3 个尺寸和形状完全相同,但缓冲气体比例不同的原子气室 (Cell1, Cell2 和 Cell3) 进行实验。缓冲气体种类为 Ar 和 N_2 ,总压强为 10 kPa ,3 个原子气室的 Ar- N_2 气压比分别为: $0.5 : 1, 1 : 1$ 和 $1.6 : 1$ 。在 $30\sim 100\text{ }^\circ\text{C}$ 重复测量了 3 个原子气室的温度频移,结果如图 4 所示,横坐标为原子气室的温度,纵坐标为相对于铷原子标准跃迁频率的温度频移。

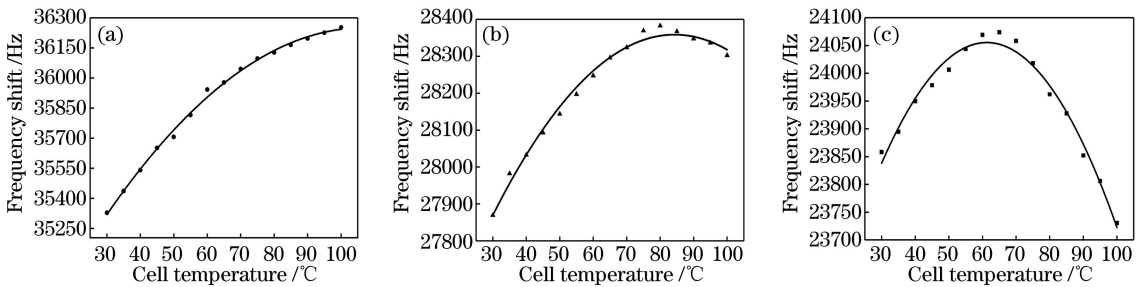


图4 不同 r 下的频移随温度的变化。(a)气室 1, $r=0.5 : 1$;(b)气室 2, $r=1 : 1$;(c)气室 3, $r=1.6 : 1$

Fig. 4 Frequency shift versus cell temperature under different r . (a) Cell 1, $r=0.5 : 1$;

(b) Cell 2, $r=1 : 1$; (c) Cell 3, $r=1.6 : 1$

在图 4 中,圆点、三角形和正方形标识的数据均为实验测量的温度频移,黑色实线是对实验测量数据进行二次拟合而得到的频移变化曲线。由图 4(a)可知,温度频移随气室温度的升高而增大,当原子气室温度为 $95\text{ }^\circ\text{C}$ 时,曲线趋于平缓。因此,当 Ar- N_2 气压比为 $0.5 : 1$ 时,一阶温度频移没有得到有效控制,表明此时原子气室内部 N_2 较多。由

图 4(b)可知,当 Ar- N_2 气压比为 $1 : 1$ 且原子气室温度为 $80\text{ }^\circ\text{C}$ 时,温度频移变化最小。由图 4(c)可知,当 Ar- N_2 气压比为 $1.6 : 1$ 且原子气室温度为 $64\text{ }^\circ\text{C}$ 时,温度频移变化最小。

根据实验测量结果可知,温度频移的最小值与 Ar- N_2 气压比相关,且随着 Ar 分压的升高,最小温度频移点逐渐降低。根据 CPT 原子钟实际工作温

度,结合理论仿真及实验结果,在缓冲气体的气压一定的情况下,当 Ar-N₂ 气压比为 1.6 : 1 时,线性温度系数为零所对应的原子气室温度为 64 °C,在此温度点附近温度频移变化最小,即为原子气室内部缓冲气体的最佳比例。此外,比较理论与实验测量值可知,实验测量的温度频移较理论值大,其可能的原因有:1)实验中原子气室内部缓冲气体比例理论值与实际值存在偏差;2)原子气室实际工作温度与采集到的温度存在误差,导致温度频移实际测量结果的不同。下一步实验,我们将采用更精密的缓冲气体充气技术以及更高精度的原子气室控温技术来减小 CPT 原子钟的温度频移。

4 结 论

分析了影响原子钟频率稳定度的关键因素,并通过理论仿真与实验测量,在不同缓冲气体气压比的条件下研究了 CPT 原子钟的温度频移特性。实验结果表明,CPT 原子钟温度频移与 Ar-N₂ 气压比相关,且随着 Ar 分压的升高,最小温度频移点逐渐降低。结合原子钟实际工作温度,当原子气室内部缓冲气体的 Ar-N₂ 气压比为 1.6 : 1 且工作温度为 64 °C 时,缓冲气体的频移对温度不敏感,即该温度点的温度频移变化最小,温度的波动对频率稳定度的影响最小。该研究结果对设计 CPT 原子钟原子气室内部缓冲气体的气压比及其对应的工作温度有一定借鉴作用,有助于提高 CPT 原子钟的稳定度。

参 考 文 献

- [1] Kitching J. Chip-scale atomic devices [J]. *Applied Physics Reviews*, 2018, 5(3): 031302.
- [2] Li S L, Xu J, Zhang Z Q, *et al.* Integrated physics package of a chip-scale atomic clock [J]. *Chinese Physics B*, 2014, 23(7): 074302.
- [3] Hirai Y, Terashima K, Nakamura K, *et al.* Low temperature, wafer-level process of alkali-metal vapor cells for micro-fabricated atomic clocks [C] // 2017 19th International Conference on Solid-State Sensors, Actuators and Microsystems (TRANSDUCERS), June 18-22, 2017, Kaohsiung, Taiwan, China. New York: IEEE, 2017: 431-434.
- [4] Wang X M, Meng Y L, Li L, *et al.* Frequency and intensity noises of probe laser in integrating sphere cold atom clock [J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2017, 44(9): 0912001.
王秀梅, 孟艳玲, 李琳, 等. 积分球冷原子钟的探测

光频率和强度噪声 [J]. *中国激光*, 2017, 44(9): 0912001.

- [5] Knapkiewicz P. Alkali vapor MEMS cells technology toward high-vacuum self-pumping MEMS cell for atomic spectroscopy [J]. *Micromachines*, 2018, 9: 405.
- [6] Tang Y, Ren Z M, Li Y C, *et al.* Fabrication and study of micro alkali-metal vapor cell applied to chip scale atomic clock [J]. *Laser & Optoelectronics Progress*, 2018, 55(4): 040201.
汤跃, 任子明, 李云超, 等. 应用于芯片原子钟的碱金属气室制备与研究 [J]. *激光与光电子学进展*, 2018, 55(4): 040201.
- [7] Gao Y, Dong H F, Wang X, *et al.* Combined effect of light intensity and temperature on the magnetic resonance linewidth in alkali vapor cell with buffer gas [J]. *Chinese Physics B*, 2017, 26(6): 067801.
- [8] Kroemer E, Abdel Hafiz M, Maurice V, *et al.* Cs vapor microcells with Ne-He buffer gas mixture for high operation-temperature miniature atomic clocks [J]. *Optics Express*, 2015, 23(14): 18373-18380.
- [9] Deng K, Guo T, He D W, *et al.* Effect of buffer gas ratios on the relationship between cell temperature and frequency shifts of the coherent population trapping resonance [J]. *Applied Physics Letters*, 2008, 92(21): 211104.
- [10] Li Q M, Zhang J H, Zeng X J, *et al.* Optimized condition for buffer gas in cesium atomic magnetometer [J]. *Laser & Optoelectronics Progress*, 2013, 50(7): 072802.
李庆萌, 张军海, 曾宪金, 等. 铯原子磁力仪中缓冲气体的最佳条件研究 [J]. *激光与光电子学进展*, 2013, 50(7): 072802.
- [11] Qu S P, Zhang Y, Gu S H. Dependence of the ⁸⁵Rb coherent population trapping resonance characteristic on the pressure of N₂ buffer gas [J]. *Chinese Physics B*, 2013, 22(9): 099501.
- [12] Kozlova O, Guérandel S, de Clercq E. Temperature and pressure shift of the Cs clock transition in the presence of buffer gases: Ne, N₂, Ar [J]. *Physical Review A*, 2011, 83(6): 062714.
- [13] Zheng H F, Li J, Feng K M, *et al.* Frequency discrimination for passive hydrogen maser based on single frequency modulation [J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2018, 45(3): 0311001.
郑贺斐, 李晶, 冯克明, 等. 被动型氢原子钟单频调制的鉴频特性研究 [J]. *中国激光*, 2018, 45(3): 0311001.

- [14] Vanier J, Audoin C. The quantum physics of atomic frequency standards [M]. Boca Raton: CRC Press, 1989: 685-686.
- [15] Boudot R, Miletic D, Dziuban P, *et al.* First-order cancellation of the Cs clock frequency temperature-dependence in Ne-Ar buffer gas mixture[J]. Optics Express, 2011, 19(4): 3106-3114.