doi: 10.3969/j.issn.1000-8349.2017.03.05

主动型氢原子钟的研究进展

何克亮^{1,2},张为群¹,林传富¹

(1. 中国科学院 上海天文台,时间频率技术研究室,上海 200030; 2. 中国科学院大学,北京 100049)

摘要: 基于氢原子微波激射器 (氢脉泽)的主动型氢原子钟 (氢钟)拥有极好的中短期频率稳定度, 而原子储存泡是氢脉泽的关键技术。位于微波谐振腔内的原子储存泡中的氢原子系综与电磁场相 互作用。简述了氢原子系综与电磁场相互作用的动力学过程、氢脉泽和主动型氢原子钟的相位噪 声,还介绍了原子储存、原子与原子的自旋交换碰撞、原子与泡壁的碰撞和磁场不均匀弛豫等主 要弛豫过程。并概述了在腔频的自动调谐方法、双选态系统方面的发展和电离源、真空系统等技 术方面的改进。最后,讨论了氢钟的发展前景。

关 键 词: 原子钟; 氢微波激射器; 原子储存泡; 弛豫; 频率稳定度 中图分类号: TH714.1 文献标识码: A

1 引 言

微波激射器和激光器都能实现电磁场的受激辐射放大,有相似的原理,都是量子电子学的重要内容;激光器主要被作为相干单色光源,而微波激射器与之不同,主要被作为频率源。 氢微波激射器 (氢脉泽)于 1961 年被 Kleppner 等人设计出来^[1],由于采用了原子储存泡技术而使其功能得以实现。原子储存泡被放置于 TE₀₁₁ 模谐振腔的中间,氢原子在原子储存泡 中储存约1s的时间,在此期间氢原子系综与电磁场发生相互作用,并且伴随有原子与原子的碰撞弛豫、原子与泡壁的碰撞弛豫、磁场不均匀导致的磁弛豫等弛豫过程。原子系综与电 磁场相互作用的动力学过程可以用半经典的密度矩阵理论来描述。大多数处于钟跃迁上能级 的氢原子在储存泡中通过跃迁放出能量,高品质谐振腔以较慢的速率损失电磁能量,最终在 腔内形成稳定的自持振荡。在理想状态下,氢脉泽自激振荡的频率很稳定,但实际上原子束 流的波动、谐振腔的温度波动、腔频的变化、磁场环境的变化等环境因素^[2]都会影响自激 振荡状态和频率的稳定度。实际的氢脉泽需要设计稳定束流、稳定温度和稳定腔频的物理部 件和相应的电子学。腔频的变化会牵引着振荡频率变化,为了获得长期的稳定度,可以采用

收稿日期: 2016-09-18; 修回日期: 2016-10-27 资助项目: 国家自然科学基金 (U1331105) 通讯作者: 张为群, wqzhang@shao.ac.cn 多种自动调谐的方法来稳定腔频^[3]。热力学噪声和振荡状态决定了氢脉泽频率稳定度的物理 极限。主动型氢原子钟(氢钟)一般不将氢脉泽(振荡频率为1.42 GHz)直接作为一个频率源, 而是让氢脉泽通过一个锁相环来控制伺服的晶体振荡器以输出需要的频率信号。从频域分析 来看,锁相环低通脉泽部分的相位噪声,高通晶体振荡器等电子学部分的噪声。氢钟的稳定 度应略低于氢脉泽热力学噪声决定的物理极限稳定度。要使氢钟长期稳定工作,需要稳定的 电离源系统、束光学系统、恒温系统、真空系统、磁屏蔽系统和接收机系统。氢脉泽的物理 结构和主动型氢钟的电子学框图分别如图1和图2所示。



图 1 氢脉泽结构图



图 2 主动型氢原子钟电子学框图

至 20 世纪 90 年代,氢钟的基本理论已比较成熟,近 20 年的主要工作集中于技术上的完善,包括腔频的新自动调谐方法^[4,5]、双选态的束光学系统^[6,7]、采用复合泵代替离子泵等,以期稳定度能接近其物理极限。目前,俄罗斯、瑞士和美国的氢钟稳定度可达2(3)×10⁻¹⁶/d。也有一些工作是关于采用介质加载谐振腔实现腔泡结构及氢钟整机的小型化^[8-11]。氢钟或者其参与构成的钟组^[12-14]作为稳定的时间频率计量装置被广泛应用于守时、导航、甚长基线干涉测量等工程项目和科学实验中,并且因氢脉泽自激振荡的频率受物理环境的影响而可将其用于基础物理理论的验证中^[15-17]。

2 动力学描述

2.1 氢原子系综与电磁场相互作用的动力学描述

氢脉泽结构如图 1。氢钟的钟跃迁是利用氢原子的基态超精细磁子能级 $|F = 1, m_F = 0$ 〉 和 $|F = 0, m_F = 0$ 〉之间的磁偶极跃迁。氢气在电离泡中被高频电离成氢原子, $|F = 1, m_F = 0, 1$ 〉两个磁子能级的氢原子经六极或四极选态磁铁进入原子储存泡。原子经由同一个泡口进入和逃逸出储存泡,并在其中停留约 1 s 的时间,与电磁场完成相互作用。储存泡的泡壁很薄,涂有 3 或 4 层特氟龙材料,使原子与泡壁碰撞的过程中只有很小的概率被弛豫。整个储存泡对谐振腔的模式和频率仅有很微小的影响。与核磁共振理论中原子系综与电磁场相互作用的经典分析方法不同,在氢钟的理论中,采用密度矩阵对氢原子系综进行描述;用经典电磁场方程来描述腔内电磁场,并采用谐振腔的微扰理论描述腔壁损耗、耦合环、原子储存泡、原子介质对谐振腔本征模式的影响。用横向弛豫 T_1 和纵向弛豫 T_2 来描述系统的各种弛豫,原子储存时间、原子与原子碰撞、原子与泡壁的碰撞等弛豫均对 T_1 、 T_2 有贡献。最终建立起密度矩阵的微分方程组。在平衡状态下,每秒进入和逃逸出原子储存泡的原子数为 ξ (各约一半处于 $|F = 1, m_F = 0, 1$ 〉态),在旋波近似的情况下,密度矩阵方程组的稳态解^[18]为:

$$\begin{cases}
M_{3s} = N(\rho_{22} - \rho_{44}) = \frac{T_1 \xi [1 + T_2^2 (w - w_0)^2]}{1 + T_1 T_2 b^2 + (w - w_o) T_2^2} \\
N\rho_{24} = \xi T_1 T_2 \frac{b}{2} e^{-iwt} \frac{i [1 + i T_2 (w - w_0)]}{1 + T_1 T_2 b^2 + (w - w_o) T_2^2} , \\
T_1 = \frac{1}{T_b} + \frac{1}{T_{1e}} + \frac{1}{T_{1w}} + \frac{1}{T_m} \\
T_2 = \frac{1}{T_b} + \frac{1}{T_{2e}} + \frac{1}{T_{2w}} + \frac{1}{T_m}
\end{cases}$$
(1)

其中, M_{3s} 代表上下能级的粒子数差, $N\rho_{24}$ 为相干项, $M_1(\omega) = N(\rho_{24} + \rho_{42})$ 表示原子系综

宏观磁矩。由谐振腔的微扰理论,考虑到原子系综的宏观磁矩,振荡频率的方程为:

$$\begin{aligned}
(\omega_c^2 - i\omega \frac{\omega_c}{Q_c} - \omega^2) B_1(\omega) &= -K\omega^2 M_1(\omega) - \frac{\omega_c^2}{Q_c} B_e(\omega) \\
K &= \frac{\mu_0 \mu_B^2 \eta}{\hbar V_b} , \qquad (2) \\
B_e(\omega) &= \frac{\mu_0 \mu_B}{\hbar} H_e(\omega) < H_{az} >_b
\end{aligned}$$

其中, $H_e(\omega)$ 为注入微波磁场强度, $B_1(\omega)$ 为稳定状态下泡内的磁感应强度。将式(1)代入 式(2),可求得平衡时腔内的磁感应强度、腔频对振荡频率的牵引、振荡束流阈值等表达式, 详细推导过程可参阅相关文献^[3]。总体来说,单个原子在自激场的作用下做 Rabi 振荡,整个 氢原子系综形成磁矩辐射电磁波,在谐振腔内形成稳定的相干微波场。这种相互作用的分析 方法,重点在于分析原子系综的宏观磁矩对谐振腔电磁场模式的微扰,其物理过程被分析得 很全面,物理图像比较清晰。也可以将原子系综视为普通的电介质,利用原子介质极化的色 散属性 ($\varepsilon(\omega)$)的因果性,即 Kronigs-Kramers 关系)对电磁场动力学方程的约束,计算出腔频 对脉泽频率的牵引公式^[19],结果与上述方法的结果一样,但很难做出更全面的计算和分析。

要使微波激射器能够实现自持振荡,有两方面的要求:一方面要使原子储存时间 T_b 、泡 壁碰撞弛豫 (纵向弛豫 T_{1w} 和横向弛豫 T_{2w})、磁弛豫 T_m 、原子自旋交换碰撞截面 σ_{ex} 、谐振 腔的品质因子 Q_c 、储存泡填充因子 η 等参数在合适的范围内,Kleppner 等人引入了振荡因 子 q来集中反应这一氢脉泽的内禀性质^[20];另一方面要控制原子束流,使其在合适的范围 内。氢脉泽的振荡因子^[20]为:

$$\begin{cases}
q = \frac{\sigma_{ex} \overline{v}_r \hbar}{2\mu_0 \mu_B^2} \frac{T_b}{T_t} \frac{1}{\eta Q_c} \frac{\xi_t}{\xi} \\
\frac{1}{T_{10}} = \frac{1}{T_{1w}} + \frac{1}{T_b} + \frac{1}{T_m} \\
\frac{1}{T_{20}} = \frac{1}{T_{2w}} + \frac{1}{T_b} + \frac{1}{T_m} \\
T_t^2 = T_{10} T_{20}
\end{cases}$$
(3)

q与原子束流无关,但正比于总束流与钟跃迁上能级的原子束流之比 (ξ_t/ξ)。氢脉泽要实现自持振荡,要求 q 因子在 $0 \sim 0.172$ 范围内,这个范围很小,反映了氢脉泽对参数要求比较严苛。从式 (3) 中可以看出, Q_c 值越大越好, T_b/T_t 越大越好, σ_{ex} 越小越好。即从有利于起振的角度看,谐振腔中能量损耗率越低越好,除储存泡储存时间外的其他弛豫越小越好,碰撞弛豫越小越好。但是,并不是说 q 越小频率稳定度越好。使谐振腔内氢原子系综的辐射功率刚好等于损耗功率的原子束流被称为阈值束流 ξ_{th} 。氢脉泽的工作束流应大于阈值束流,但不意味着束流越大稳定度越好。关于频率稳定度的分析见下节。原子储存泡内原子密度随原子束流的增大而增大,与此同时,原子与原子的自旋交换碰撞弛豫 γ_{ex} 也随原子密度而增大。当原子束流较小时, γ_{ex} 较小,不会明显增大总弛豫,脉泽功率随原子束流增大而变大,频率稳定度指标随束流增大而更好。当原子束流增加到一定值时, γ_{ex} 会较明显地增大总弛

豫,频率稳定度指标随束流增大而开始变差,脉泽功率也会逐渐变小,如图 3 b)中曲线 3 和 4。在图 3 a)中,曲线 1 表示小型化腔泡结构 (体积仅为传统型 1/3,储存时间约为 0.4 s)氢 脉泽的脉泽输出功率随原子束流变化的实验值,曲线 2 表示传统氢脉泽的脉泽输出功率随原 子束流变化的实验值。通过估算,传统氢脉泽和小型化氢脉泽的 q 值都近似为 0.08。曲线 1 和 2 的拐点对应的束流小于曲线 3 中拐点对应的束流 ($\xi_t / \xi \approx 8$),这是因为在电离泡内氢压 达到一定值时,氢原子电离效率降低导致氢原子数减小。估算表明,原子实际束流是阈值束 流的 3 ~ 4 倍时频率稳定度最好。



注: 曲线1 一小型化氢脉泽; 曲线2 一传统型氢脉泽。曲线3 一脉泽输出功率; 曲线4 一频率稳定度。

图 3 氢脉泽的频率稳定度和脉泽输出功率与原子束流的关系

2.2 频率稳定度分析

可以从相位噪声的角度来分析系统噪声对自激振荡频率稳定度的影响。氢脉泽自激振荡 有相位和幅度的波动,相位噪声会影响氢脉泽频率稳定度,幅度噪声会影响自动调谐的灵敏 度。可以用经典的方法建立起幅度和相位方程组并进行简化,得到简化后的相位方程和幅度 方程。相位方程^[3]如下:

$$T_c \ddot{\phi} + \dot{\phi} = \frac{1}{T_2} \frac{p_1}{b_s} + \frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}t} \frac{p_1}{b_s} \quad , \tag{4}$$

其中, $T_c = 2Q_c/\omega_c$ 为腔的响应时间 (约 10⁻⁵ s), p_1 为噪声引起的磁感应强度。可以依据相位方程计算出相位噪声的功率谱密度 S_{ϕ} 的解析形式。与光钟的量子噪声有所不同, 氢脉泽主要的噪声来源于黑体辐射的热力学噪声。黑体辐射每个场模的平均能量为^[19]:

$$\bar{E} = \frac{\epsilon}{\exp(\epsilon/KT) - 1} \approx KT \quad (\epsilon/KT \approx h\nu/KT \ll 1) \quad , \tag{5}$$

将热力学噪声的形式代入相位噪声功率谱的解析形式中,由相对频率波动的功率谱密度与相位噪声功率谱密度的关系 $(S_y(f) = (f^2/\nu_0^2)S_{\phi}(f))$,可以计算出相对频率波动的功率谱密度,进而可以求出稳定度的表征阿伦偏差 $\sigma_y(\tau)$ 。可以很自然地看出,阿伦偏差由热力学噪声功率 KT、脉泽功率 P 及横向弛豫时间 $T_2(Q_l = \omega_0 T_2/2)$ 决定,氢钟中长期稳定度的表达式

为[21]:

$$\sigma_y(\tau) = \left(\frac{KT}{2P_0}\right)^{1/2} \frac{1}{Q_l \tau^{1/2}} \quad , \tag{6}$$

也可以从其他角度来分析频率不确定性,例如从测不准关系出发,辐射场的光子涨落与相位 存在测不准关系 $\Delta n \Delta \phi \ge 1$,可以通过计算光子涨落来计算相位不确定性^[22]。从相位方程到 频率相对波动的功率谱密度的方法,其计算过程比较清晰;而从测不准关系出发的计算,其 物理图像更清晰。值得注意的是,在氢钟的理论框架中,并没有对脉泽线宽和信噪比进行明 确的定义。 Q_l 代表原子品质因子, $(\pi T_2)^{-1}$ 近似为脉泽线的 3 dB 线宽。脉泽的峰值功率与 单位频率的热力学噪声功率之比 (*P*/*KT*)可以近似理解为信噪比,在 10⁸ 量级。

主动型氢原子钟中氢脉泽通过一个锁相环控制伺服的晶体振荡器,通过伺服晶体振荡器 输出 5 MHz、10 MHz 或秒信号;被动型氢原子钟中氢脉泽通过一个锁频环控制伺服的晶体 振荡器而输出相应的信号。锁相环路由混频器、相位探测器、滤波器、受控晶体振荡器组成, 分一阶环路和二阶环路。锁相环路的时间常数 Γ 由环路各个器件的参数决定,其值在秒量 级。在频域,锁相环低通氢脉泽的相位抖动和高通滤波器等元器件的相位抖动,例如,对于 二阶环路,受控晶体振荡器的相位抖动^[3]为:

$$\Delta\Omega_c(s) = \frac{\Gamma\tau_1 s^2}{1 + \tau_2 s + \Gamma\tau_1 s^2} \Delta\Omega_f(s) + \frac{1 + \tau_2 s}{1 + \tau_2 s + \Gamma\tau_1 s^2} \frac{\Delta\Omega_r(s)}{n} \quad , \tag{7}$$

其中, $\Delta\Omega_f(s)$ 与 $\Delta\Omega_r(s)$ 分别代表滤波器和脉泽的相位抖动。氢脉泽的理论热力学相位噪声 和氢钟的实际噪声在频域的分布如图 4 所示。点 A 的位置与锁相环路的时间常数有关,可以 将点 A 左侧主要理解为氢脉脉泽的热力学噪声,将点 A 右侧主要理解为电子学噪声。这条实 测相位噪声有几处较大的毛刺,反应了氢钟整机有一些异常的噪声。对俄罗斯 VCH-1003M 的氢钟,点 A 在更靠左的位置,即锁相环路的时间常数更小,整个相位噪声谱更平滑。热力 学噪声表现为白频噪声 ($S_y(f)$ 表达式是 f^0 的函数),实际的氢钟还有其他阶噪声,如闪变噪 声 (决定了氢钟稳定度的闪变平台)、白相噪声。



注: 曲线 1 表示氢钟物理部分 (氢脉泽) 热力学理论噪声; 曲线 2 表示主动型氢原子钟的实际噪声。

图 4 5MHz 输出相位噪声频域表示

3 氢原子的弛豫和频移及其确定方法

3.1 自旋交换碰撞的弛豫与频移

自旋交换碰撞是氢脉泽中氢原子除逃逸出储存泡外最主要的弛豫项,既会导致横向弛豫, 又会导致纵向弛豫。对于两个粒子的碰撞问题,从时间演化算子出发,很容易推导出微分散 射截面 do 与散射振幅的关系 (do/d $\Omega = |f_{p_i}(\theta)|^2$)。因此,只要根据两粒子的相互作用势, 求出散射波函数,就可以求出散射振幅和微分散射截面,再对微分散射截面进行积分就可以 得到散射截面 o。两个氢原子发生碰撞时,主要是核外电子的相互碰撞。电子是费米子,碰 撞的两个电子的波函数应是交换反对称的。交换反对称性限制了当两个电子的空间波函数具 有对称和反对称性时,相应的自旋波函数部分具有反对称和对称性。因此两个电子的空间波 函数构成两种对称状态,对称态是三重态,反对称态是单重态。单重态和三重态对应的能量 不同,即相当于在原来的库伦势上附加了不同的势,对应两个不同的散射通道,如图 5 所示。 Kolos 和 Wolniewicz 计算出了两种势函数相对于电子距离的精确曲线^[23]。在球坐标系中,可 以采用分波法将散射波函数展开^[24, 25]:

$$\psi_i^{(+)}(\vec{k},\vec{r}) = \sum_{l=0}^{\infty} \sum_{m=-l}^{l} C_{lm}(k) R_l(kr) Y_{lm}(\theta,\phi) \quad , \tag{8}$$

其中, $Y_{lm}(\theta, \phi)$ 为球谐函数, $R_l(kr)$ 是 l 阶球贝塞尔方程的解。根据势函数的具体形式,可 以求出散射振幅的解析式,进而计算出散射截面。每个分波的总散射振幅是两个通道分波散 射振幅之差,存在相干现象。值得注意的是,由于是电子的自旋交换碰撞, $|F = 1, m_F = 1\rangle$ 态的原子与 $|F = 1, m_F = 0\rangle$ 态原子的碰撞也会引起弛豫。所以可以采用双态选择器,在选 态过程中偏转掉大部分 $|F = 1, m_F = 1\rangle$ 态的原子,使其不进入储存泡,能有效地减小碰撞 弛豫,这在后面会详细论述。Allison 根据精确的势函数计算出在温度为 323 K 时自旋交换碰 撞的截面 ($\sigma_{ex} \approx 23 \times 10^{-20} \text{ m}^2$)^[26],与 Desaintfuscien 和 Audoin 的测量结果符合得很好^[27]。 由碰撞截面可以计算出纵向自旋交换碰撞弛豫和横向自旋交换碰撞弛豫 ($T_{1e} = 1/n\sigma_{ex}\bar{v},$ $T_{2e} = 4/3n\sigma_{ex}\bar{v}$)。

自旋交换碰撞会导致三种频移。虽然绝对的频移量没有泡壁碰撞频移量大,但这种频移的特点是可以随原子束流的波动而敏感地变化,如果未进行适当的调节就会影响主动型氢钟的中长期稳定度。第一种频移是由自旋交换碰撞导致的相移引起的。Bender 最先用密度矩阵计算了这种自旋交换频移的一般形式^[28]; Crampton 等人在Bender 计算的基础上将频移表示成含频移截面 λ 的形式,并设计实验测定了频移截面 ($\lambda \approx 4 \times 10^{-20} m^2$)^[29]。第二种频移是由自旋交换碰撞过程中超精细作用的中断引起的,Crampton 等人最先计算了这种频移,用 $2\epsilon_H/T_{2e}$ 表示,并测定了 ϵ_H (约 4×10^{-4})。第三种频移与磁场不均匀性和 $|F = 1, m_F = 1\rangle$ 与 $|F = 1, m_F = -1\rangle$ 态的原子数差 ($N(\rho_{11} - \rho_{33})$)有关,磁场不均匀导致的塞曼跃迁,使原子经历双共振过程而产生频移^[19],磁场不均匀性和自旋交换碰撞弛豫会耦合成一项,对碰撞频率产生影响 ($2\epsilon_M/T_{2e}$)^[30]。Crampton 和 Wang 确定了 ϵ_M 的大体值 (约 10^{-3})。综合三种



注: 曲线1表示三重态; 曲线2表示单重态。

图 5 自旋交换碰撞两种势函数

频移,自旋交换碰撞对频率的影响为^[30]:

$$\omega - \omega_0 = \left[(2Q/\omega_0)(\omega_c - \omega_0) - \alpha \lambda \right] T_2^{-1} + 2\varepsilon_H/T_{2e} + 2\varepsilon_M/T_{2e} \quad , \tag{9}$$

式中后三项分别表示自旋交换碰撞的三种频移。可以看出,脉泽的振荡频率随原子束流的 变化 (导致 T_{2e} 变化)而变化,经分析发现,存在一个使脉泽频率随束流变化不发生变化的 腔频,这就是所谓的自旋交换调节。自旋交换调节的方式因腔自动调谐的方式不同而不同。 实际上,由于 $\varepsilon_M \propto N(\rho_{11} - \rho_{33}) \propto N \propto T_{2e}^{-1}$,这第三项频移正比于 T_{2e}^{-2} ,无法用自旋交 换调节来完全消除。相对于原能级跃迁频率,经过自旋交换调节后的脉泽频率有相对频移 $(-2(\varepsilon_H + \varepsilon_M)/T_{20})$,其值约为 5.5 × 10⁻¹³,因而需要对脉泽的频率进行修正。修正频率 的不确定度由 ε_H 、 ε_M 和 T_{20} 的误差决定,在 10⁻¹⁴量级。但 ε_M 正比于 $|F = 1, m_F = 1\rangle$ 和 $|F = 1, m_F = -1\rangle$ 态的粒子数差,当束流改变时, ε_M 发生变化,导致了频移不确定度。 Zhang 等人在改变氢钟氢气压时观测到氢钟频率发生变化的现象就反映了这一点^[31]。在低 温氢脉泽^[32]的研究过程中,低温环境下的自旋交换碰撞频移有更复杂的形式。Verhear 等 人^[33]和 Koelman 等人^[34]用全量子理论对这种情况进行了计算,并在实验上进行了测量,但 实验的结果和理论的结果符合得不大好^[35, 36]。Crampton 等人在自旋交换频移方面的工作给 自旋交换调节提供了理论基础,通过自旋交换调节能有效地减弱原子束流波动对频率的影响, 进行自旋交换调节已是氢钟调试环节中的必要步骤。

3.2 泡壁碰撞弛豫与频移

从微波钟到光钟,原子钟随着原子操控和囚禁技术的发展而发展。氢脉泽采用原子储存 泡技术来囚禁氢原子,铷钟也采用铷泡的方式来囚禁铷原子,汞和钙离子钟采用离子阱的方 式来囚禁汞和钙离子^[37],锶光晶格钟将锶原子囚禁在光晶格中^[38],铯喷泉钟是让铯原子在 重力方向做上抛和下落的运动^[39]。原子储存泡是薄壁石英泡,原子从同一个出入口进入和逃

352

逸出储存泡,由于出入口的面积很小,原子在泡内不断地与泡壁碰撞,直至通过出入口逃逸 出去。原子在泡内经历的时间,就是原子储存时间,由原子储存泡的几何形状、尺寸、泡口 面积及泡口导管的长度决定。原子与泡壁碰撞,可能发生能级跃迁,或与泡壁发生化学反应, 即纵向弛豫;原子与储存泡泡壁的单次碰撞,相当于使原子 Rabi 振荡的相位与腔内电磁场 的相位有个小的相移 φ ,多次碰撞就会使原子做 Rabi 振荡的相位与腔内电磁场的相位不相 干,即横向弛豫。如果在储存泡内壁涂敷上长链分子,不与原子发生反应,且碰撞相移 φ 比 较小,就会使原子的横向和纵向弛豫都很小,相当于将跃迁上能级的原子储存在泡里面。经 过大量的实验,公认聚四氟乙烯(特氟龙)是最好的材料。在储存泡的内壁,均匀地涂敷上干 净的特氟龙分散液,经干燥脱水后在高温炉内烧结并冷却形成特氟龙膜,总共涂敷3层或4 层。不同公司或同一公司不同批次的特氟龙分散液,会导致特氟龙膜的性质有差异。原子与 泡壁碰撞纵向弛豫很小,可以忽略。原子与泡壁碰撞引起脉泽频率的移动正比于原子与壁单 次碰撞的相移和反比于两次碰撞的时间间隔 t_0 。不同大小的储存泡, t_0 不同。相移 φ 的理论 计算比较复杂,在早期的实验中,采用不同大小的储存泡,测量相应的壁移^[40],因为可计算 t_0 , 就可求出相移 φ 。相移 φ 与温度相关^[41]。由相移 φ 就可以计算泡壁碰撞的弛豫与频移, 泡壁碰撞导致的纵向弛豫、横向弛豫和相对频移的典型值分别为 0.9 s、1.2 s 和 -1.1 × 10⁻¹¹, 见表 1 。但是,由于相移 φ 的测量误差大,使得频移不确定度很大,可达 2×10^{-12} ,正是这 一点限制了泡壁频移修正的不确定度,进而限制了氢钟的准确度。特氟龙膜存在老化特性, 是影响氢钟频率漂移的重要因素。

弛豫和频移因素	纵向弛豫时间/s	横向弛豫时间/s	相对频移	相对频移不确定度
原子储存	1	—	—	—
自旋交换碰撞	0.8	1.6	2.5×10^{-13}	$< 1 \times 10^{-14}$
泡壁碰撞	0.9	1.2	-1.1×10^{-11}	$< -2 \times 10^{-12}$
磁场不均匀	1	可忽略	3×10^{-13}	$< 1 \times 10^{-14}$
二级多普勒			-4×10^{-11}	1×10^{-14}
腔牵引			自动调谐灵敏度	自动调谐灵敏度
塞曼	—	—	1×10^{-12}	1×10^{-14}

表 1 氢原子的弛豫和脉泽的频移典型值 (323 K)

在今天看来,原子储存泡可能并不复杂,它是氢钟的关键技术,花费了前人大量的精力 与心血。由于采用原子储存泡技术,氢脉泽才能够被实现;但也正是由于原子与储存泡的泡 壁频移,使氢钟的准确度不如铯钟。

3.3 磁场不均匀弛豫与频移

磁场不均匀包含 C 场的不均匀和交变磁场的不均匀。C 场即原子取向量子化的方向磁场,一般由通电螺线管线圈产生。C 场线圈一般由一个主线圈和两个副线圈构成,主线圈的长度 L 与直径 a 之比近似为 1,副线圈的 L/a 约为 0.1,整个 C 场线圈包围谐振腔、辐射罩和真空罩 (或双真空结构的内真空罩)。原子储存泡位于谐振腔和 C 场的中间区域,这一区域的 C 场可调至近似均匀,在氢钟装配好后,首先需要退磁来消除杂散磁场,接着就需

要通过 3 个拨盘来分别调节 3 个线圈中的电流,以使 C 场的不均性弛豫最小。原子在储存 泡内无规则运动的过程中,经历不均匀磁场可等效于经历了小的交变磁场,原子会在能级 ($|F = 1, m_F = 1, 0, -1$))间发生塞曼跃迁。在 C 场很小的时候,这种弛豫率可以直接用微扰 跃迁的方法估算;当 C 场很大时,不均匀场导致的微扰场频率小于此时的塞曼频率,不发生 塞曼跃迁,纵向磁弛豫可忽略。

理想情况下储存泡内的交变磁场应与 C 场方向相同,且在整个区域内是相等的,而实际上谐振腔工作于 TE₀₁₁ 模式,交变磁场轴向分量并不相等,且存在径向分量。为保证储存泡内交变场同向,磁场储存泡的径向半径最大为 0.63 × R (R 为谐振腔的半径)。因交变磁场轴向分量的大小不同,原子做 Rabi 振荡的频率略有不同,相对于腔内相干电磁场出现相移,因此导致横向弛豫。C 场不均匀和交变场不均匀都可能使原子在 $|F = 1, m_F = 1, -1\rangle$ 能级间发生 Majorana 跃迁,但这种弛豫很小。C 场的不均匀和交变磁场的不均匀和自旋交换碰撞弛豫会耦合成一项,产生频移,即上述的自旋交换频移的第三种频移。磁场不均匀弛豫的具体值与调节后 C 场的不均匀性有关,一般在秒量级;磁场不均匀导致的相对频移在 10⁻¹³ 量级,相对频移不确定度在 10⁻¹⁵ 量级^[42]。

3.4 多普勒频移、塞曼频移和腔牵引频移

由于氢脉泽采用谐振腔的低阶本征模式 (TE₀₁₁ 模),谐振腔的尺度与电磁场的波长相当, 而将原子的运动范围限制在电磁场波长的范围内时,一阶多普勒频移和展宽消失了。但相对 论导致的二阶多普勒效应引起的频移很大,达4×10⁻¹¹,比泡壁频移还大。但这种频移可以 用公式准确计算,原子的速度由温度决定,只要将温度的不确定度控制在 0.1 K 的范围内, 多普勒导致的频移不确定度在 10⁻¹⁴ 量级,小于泡壁频移的不确定度。

C 场会使磁子能级发生轻微的移动,使钟跃迁频率的频移大小为 $K_0 \times B^2$ ($K_0 = 2.7730 \times 10^{11}$ Hz·T⁻²)。一般通过测塞曼频率测出 C 场的大小而计算出这一频移修正值。但测量的塞曼频率代表整个储存泡区域的平均塞曼频率,并且存在测量误差。在 C 场大小为 10^{-7} T 时,相对频移及其不确定度分别在 10^{-13} 和 10^{-14} 量级。C 场增大,塞曼频移和频移 不确定度可能会增大。

从上述分析和表 1 中可以看出,四种主要的弛豫因素在同一量级;但将五种频移因素 (腔牵引频移除外)比较,泡壁频移的不确定度明显大于其他的频移不确定度,是影响准确度 的主要因素。氢钟采用腔的自动调谐系统来控制腔频变化对振荡频率的牵引,有多种调谐方 式。每种调谐方式有不同的反馈调节时间,有不同的调谐精度,更详细的分析见 4.2 节。

3.5 原子储存时间对频率稳定度的影响

原子储存时间、原子储存泡的尺寸及原子束流,决定了储存泡内原子的密度,从而影响 自旋交换碰撞弛豫和泡壁碰撞弛豫。原子储存时间和其他弛豫时间的比值在 0.5 时,比较合 适。考虑到不同的原子储存时间,并计算出相应的自旋交换碰撞弛豫和泡壁碰撞弛豫,分析 了不同的原子储存时间对频率稳定度的影响,结果如图 6 所示。可以看出,采用小型化的储 存泡时,应适当缩短原子储存时间。原子储存时间的调整,应根据储存泡的体积,通过调节 泡口面积和与泡口相连导管的长度来实现。



注: 曲线 1 表示采用介质加载谐振腔的小型储存泡 $(7.1 \times 10^{-4} \text{ m}^3)$: 曲线 2 表示采用双选态系统和传统原子储 存泡; 曲线 3 表示采用传统原子储存泡 $(2.1 \times 10^{-3} \text{ m}^3)$ 。

图 6 1 000 s 频率稳定度与储存时间的关系 (不同颜色的线束流不同)

3.6 弛豫时间测量

如果能对各个弛豫时间分量进行测量,将会有助于评定原子钟的性能。分别测出各个弛 豫分量很困难,可以利用自由感应衰变的方法,测量出横向和纵向弛豫。具体方法是:先开 启原子束流,当原子储存泡内的原子数达到平衡时,突然关闭原子束流,并即时或经过很短 的时间,通过耦合环给腔内注入一个激励脉冲信号,激励储存泡内的原子受激辐射;从另一 个耦合环接收这个过程的衰减信号,从衰减过程计算出横向时间 T₁和纵向时间 T₂^[43]。也可 以通过腔的牵引效应测出线 Q_l值,得到原子线宽,与T₁、T₂进行比较。各种弛豫过程导致 的弛豫和频移的典型值如表 1 所示。

3.7 氢脉泽与气体激光器的比较

氢脉泽与连续运转的激光器有相似的原理,而自由运转激光器的频率稳定性远不如氢脉泽。将自由运转的 He-Ne 激光器放在隔温、隔振和真空的环境中,其频率稳定度约为 10⁻⁷,远低于氢脉泽的频率稳定度 (10⁻¹³ ~ 10⁻¹⁶)。氢脉泽与气体激光器的不同主要体现在:

(1) 自由运转气体激光器的功率可达 mW, 远大于氢脉泽的输出功率 (10⁻¹³ W); 但是 其谱线宽度可达 10⁹ Hz, 比氢脉泽的谱线宽度 (1 Hz) 宽得多。以 633 nm 氦氖激光器为例, 自然线宽约为 15 MHz, 原子或分子之间的碰撞展宽可达 75 MHz/Torr, 多普勒展宽可达 1500 MHz^[44]。如 §3.4 中所述, 氢脉泽中一阶多普勒频移和展宽消失了,只有相对论效应的 二阶多普勒频移。而对于激光器,只有谐振腔的高阶模式才能和激光频率匹配,即腔的轴线 方向有约数千个波节或波腹,而原子的运动范围远大于激光频率所对应的波长,多普勒效应 很明显。

(2) 激光器的原子品质因子 (Q_a) 和腔品质因子 (Q_c) 分别约为 10⁵ 和 10⁸(估算值,难以 测量)^[19],而氢脉泽的 Q_a 和 Q_c 分别约为 10⁹ 和 10⁴。激光器的腔频变化对频率的牵引因子 (Q_a/Q_c) 比氢脉泽的牵引因子 (Q_c/Q_a) 大。并且,氢脉泽的腔频温度系数在 kHz/K 量级,而

激光器的腔频温度系数可达 10⁶ Hz/K。另外,氢脉泽中可以通过带变容二极管的耦合环轻易 地调节腔频,激光器却只能改变腔的长度,调节方式没有氢脉泽简单。总之,激光器的频率 受腔频波动和外界环境波动的影响比氢脉泽大很多。

针对自由运转激光的频率稳定性不好,有多种稳定频率的方法被采用来稳定激光的频率。 这些方法主要包括兰姆凹陷稳频、饱和吸收稳频和 PDH (Pound-Drever-Hall) 稳频。稳频激 光器可以获得较好的短期稳定度,但是长期稳定度还是不好,仍然受限于腔频和外界环境波 动对振荡频率的影响。例如,将 CO₂ 激光器的频率稳定在 29 THz 的 OsO₄ 吸收线上 (线宽 20 kHz),1~100 s 的频率稳定性可达 $5.6 \times 10^{-14} \tau^{-1/2}$,中长期稳定性仍然不好^[45]。光钟可 以简单地理解为一个特殊的稳频激光器,是将经过 PDH 稳频或其他稳频方法的初稳频的激 光器的频率锁定在冷原子或离子的钟跃迁谱线上。

4 主动型氢原子钟的新进展

4.1 介质加载谐振腔的小型化氢脉泽的发展

氢脉泽采用介质加载谐振腔,可以有效缩小谐振腔和储存泡的体积,从而缩小氢脉泽的 磁屏蔽、真空、恒温等外围结构,实现主动型氢脉泽的小型化。空间应用的主动型氢钟及其 参与的空间原子钟组正在研制中^[6,46],介质加载谐振腔为主动型氢钟的空间应用提供了一种 可能性。蓝宝石介质加载谐振腔^[47],由于蓝宝石介质损耗低,可以拥有很高的Q值,是目前 唯一成功应用于主动型氢脉泽的介质加载谐振腔。将 TE111 模的谐振腔应用于氢脉泽也被研 究过,但由于 TE₁₁₁ 模腔的 Q 值较低,使其难以满足主动型氢脉泽^[48] 自激振荡的条件。从 20世纪90年代开始,国内外有一些关于采用蓝宝石介质加载谐振腔的氢脉泽研究^[8, 10, 49, 50]。 蓝宝石加载谐振腔和储存泡的体积可分别缩小至传统的三分之一和四分之一。由于储存泡内 的原子数为原子束流乘以储存时间 Tb,当储存泡变小时,如果储存时间不变,泡内的原子密 度会变大,自旋交换碰撞弛豫会变得很大,影响自激振荡。可以根据自旋交换碰撞弛豫、泡 壁碰撞弛豫、磁弛豫的计算,计算出脉泽输出功率和稳定度随原子储存时间的关系,从而选 择合适的原子储存时间,如图 6。如图 7 所示,蓝宝石加载介质是一个带端盖的中空圆柱体, 介质的内壁涂敷特氟龙膜作为原子储存泡,内部空穴的体积约为7.1×10⁻⁴m³。由于谐振腔 结构的变化,理想蓝宝石腔(蓝宝石介质为规则的中空圆柱)的本征模式不是严格的 TE011 模 式, 而是与之类似的 TE_{0n1} 模式 (n 无明确的意义), 本征模式电磁场轴向分量的径向分布如 图 8 中曲线 1 所示。蓝宝石介质加载腔的填充因子更高,可达 0.5,而传统腔仅为 0.4 左右。 采用介质加载谐振腔的氢脉泽的极限稳定度略低于传统的氢脉泽的极限稳定度。

采用介质加载谐振腔,也有其他一些问题。仅加载蓝宝石晶体的介质加载腔,其腔频率-温度系数很大,达近-60kHz/K。腔频率的变化会牵引着自激振荡频率的变化,若腔频温度系数很大,对温控和腔频的自动调谐系统要求很高以致于很难达到要求。原子与泡壁碰撞的单位时间的碰撞率 (*v_c*) 也会增加,以图 7 所示的蓝宝石介质为例,其值约是传统型的 1.7 倍。泡壁频移随 *v_c* 增大而增大,但一般不会因此影响频率稳定度,因为泡壁频移不确定度由



图 7 蓝宝石 $(\alpha - Al_2O_3)$ 晶体) 储存泡



想蓝宝石介质加载腔。

图 8 谐振腔 TE₀₁₁ 模 $B_z(\rho)$ 的径向分布

测量误差决定,而不是由频移值决定。当原子储存时间为 0.4 s 时,蓝宝石储存泡中原子密度 比传统储存泡大,考虑到 v_c 增大,相同的时间内蓝宝石泡的特氟龙膜受原子碰撞的总次数是 传统储存泡的 2 倍以上。因此,蓝宝石储存泡泡壁的老化率和频率漂移率比传统储存泡大。 另外,实际的蓝宝石晶体并不是理想的结构,交变磁场的不均匀性可能会增加,进而使磁场 不均匀引起的频率不确定度有所增大。

由于蓝宝石腔大的腔频温度系数主要是因为蓝宝石晶体的介电常数温度系数大,为了减小蓝宝石腔频-温度系数,可以在蓝宝石加载谐振腔内再加载另外一种晶体钛酸锶^[11,51]。钛酸锶晶体的介电常数很大,在1.42 GHz 波段约为 200 ~ 250,且钛酸锶晶体的介电常数温度系数与蓝宝石晶体相反。加载钛酸锶晶体可以补偿蓝宝石加载腔的温度系数很大的问题。当然,加载钛酸锶晶体也会略微增加腔的损耗,降低腔的Q值。目前采用这种复杂的介质加载谐振腔的主动型氢脉泽 (储存泡体积 0.7 L),中国科学院上海天文台已在原理上获得成功,1000s的稳定度可达 6 × 10⁻¹⁵,期望频率稳定度可达 4 × 10⁻¹⁵/1000s。瑞士的纳沙泰尔天文台为欧空局研制的蓝宝石氢钟^[8],频率稳定度可达 2.5 × 10⁻¹⁵/1000s,这一指标更优的主要原因是采用了更大的蓝宝石储存泡 (体积为 1.7 L)。

4.2 自动调谐系统的发展

为了消除腔频变化对氢脉泽频率的影响,需要腔频的自动调谐系统来稳定腔频。可以采 用自旋交换调谐、相位调谐、腔频切换调谐、无负载腔探寻调谐这四种方法。每种调谐方法 采用不同的调制方法和检测方法,会引入不同的噪声。时间常数(从腔频偏移到不偏移所需 的时间)和调制环路的频率稳定度(相当于调制分辨率)是最重要的两个参数。自动调谐系统 是一个反馈环路,其整个环路的频率波动的功率谱密度为:

$$S_{y,c}(f) = \frac{(2\pi f\tau)^2}{1 + (2\pi f\tau)^2} S_{y,f}(f) + \frac{1}{1 + (2\pi f\tau)^2} S_{y,r}(f) \quad , \tag{10}$$

其中, τ 为环路的时间常数, $S_{y,c}(f)$ 、 $S_{y,f}(f)$ 、 $S_{y,r}(f)$ 分别为整个环路、脉泽自由状态、调制参考频率波动的功率谱密度。

自旋交换调谐方法,通过调制原子束流,使储存泡内的原子密度随原子束流变化而变化。 不同的原子束流,碰撞弛豫不一样,原子线宽 Q_l也就不一样。当腔频与跃迁频率无偏移时, 两种束流状态下的脉泽振荡频率相同;当腔频与跃迁频率有偏移时,两种束流状态下的脉泽 振荡频率不一样,可以通过检测脉泽的振荡频率差,产生误差信号。每一次束流调制,自激 振荡要经过几秒的时间才能达到稳定,调谐环路的时间常数很大,可达1d量级。检波过程 中需要一个独立的参考源与脉泽信号混频而使脉泽信号下变频,独立的频率参考源会引入噪 声,限制了调谐的分辨率,也就限制了脉泽的长期稳定度。

无负载腔探寻方法,如图 2 中部分框图所示,让频率为 1.420 405 GHz + g(t) 15 kHz (g(t) 是值为 1, -1 的时序方波,周期为 1 s),幅度比脉泽信号的幅度大约 10 dB (约 -90 dBm)的信号作为腔探寻信号。可以把这个探寻信号理解为以 1.42 GHz 信号为载波的方波频率调制信号 $A \times \exp\{-i[\omega_0 t + \phi(t)]\}$,相位 $\phi(t)$ 的表达式见参考文献 [3],瞬时频率为方波的形式($\omega = \omega_0 + g(t)\omega_m, \omega_m = 2\pi \times f_m$)。粗略地看,探寻信号会与原子系综相互作用,影响氢脉泽的自激振荡。将探寻信号做傅里叶展开,角频率为 $\omega_0 + n\omega_M$ 处,分波的幅度为^[3]:

$$B_n(m) = \begin{cases} \frac{2m}{\pi (m^2 - n^2)} (-1)^n \sin[\frac{\pi}{2}(m+n)] & m \neq n \\ \frac{1}{2} & m = n \end{cases}$$
(11)

其中, $m = \omega_m / \omega_M$, $\omega_M = 2\pi \times f_M$, f_M 为调制频率。氢脉泽对探寻信号的响应为

$$w_1 = p \exp(-i\omega_0 t) \sum_{n=-\infty}^{+\infty} G(\omega_0 + n\omega_M) B_n(\phi) \exp(-in\omega_M t) \quad , \tag{12}$$

其中 G 为受激辐射增益。可以看出,当 m 为偶数时 (例如, $f_M = 1$ Hz, $f_m = 15$ kHz, m = 1.5 × 10⁴),探寻信号在角频率 $\omega_0 + n\omega_M$ (n 为奇数)处有分波。由于传统氢脉泽线宽 约为 1 Hz (小于 ω_M/π),且 $B_0(m) = 0$,则探寻信号对氢脉泽信号没有影响。对于采用介质 加载谐振腔的氢脉泽,脉泽线宽展宽至 2 Hz 或更大,为使探寻信号中幅度为 $B_{\pm 1}$ 的分波对 脉泽信号无影响,要满足 $\omega_M/\pi > \Delta v$,则方波的调制频率应更大一些,从原来的 1 Hz 变为 2 Hz 或者更大。如果腔频与脉泽频率偏移,谐振腔对两边的探测信号的响应幅度不一样,可 以利用这一点来设计反馈。调谐环路噪声的计算方法类似于脉泽噪声的计算方法,要满足调 谐环路的噪声比脉泽内禀热力学噪声小,须使探寻信号比脉泽信号大 10 dB 以上,以保证调 制灵敏度。

腔频切换调谐方法是相对较新的一种调谐方法,美国和俄罗斯的主动型氢原子钟经过改进都采用了这种调谐方法^[4,5],原理如图9。传统氢脉泽在谐振腔内安装2个耦合环,一个耦合出脉泽信号,一个带变容二极管的耦合环通过改变二极管的电压来调节腔频。这种调谐方法,需要在谐振腔的端面内侧再安装一个带变容二极管的耦合环,通过改变二极管上的电压来改变腔频。腔频切换的频率很快,约为100 Hz。由于维持在每个腔频的时间在0.01 s 量

级,远小于原子的弛豫时间 1 s,但是大于腔对电磁信号的响应时间 (约 10⁻⁵ s),腔频切换的 过程对脉泽的振荡状态不影响^[52]。通过探测切换调制的不同腔频对脉泽信号的响应来产生反 馈的误差信号。腔频切换调谐方法的自旋交换调节不同于无负载腔探寻方法,可以通过轻微 地调节腔频在两个腔频的相对持续时间来完成自旋交换调节。自激振荡的幅度抖动,会影响 误差信号的检测,从而影响调谐环路的噪声。经过分析,调谐环路的噪声略大于脉泽的热力 学噪声。



图 9 VCH-1003M 氢钟腔频切换调谐示意图^[4]

从调谐环路的理论噪声来看,后两种调谐方法差不多。但美俄的主动型氢钟已经采用了 腔频切换调谐方法,中国科学院上海天文台现有的主动型氢钟仍采用无负载腔探寻调谐方法, 目前正在积极发展腔频切换调谐方法。国外氢钟短期稳定度要明显优于国产的,例如在秒稳 指标上,国外氢钟可达到小于2×10⁻¹³,而国内仅有4×10⁻¹³;部分原因可能是使用腔频切 换调谐方法,其可以将电子学系统设计得更简单,更少引入电子学噪声。总体来说,要实现 快速的腔调谐,最好不要利用原子介质对探测信号的响应,主动型氢钟所使用的后两种调谐 方法与激光稳频典型的调谐方法 (PDH 调谐方法)^[53]都是如此,利用的是腔对信号的快速响 应。特别是对主动型氢原子钟,如果利用原子介质对探测信号的响应,则探测信号一定会对 振荡产生影响。

4.3 双选态方法的发展

传统的主动型氢脉泽采用单个六极磁铁或四极磁铁进行磁选态。从电离泡出射的氢原 子经过选态磁铁时, $|F = 1, m_F = 1, 0\rangle$ 态原子的有效磁矩与磁场方向相反而受到向心力; $|F = 1, m_F = -1\rangle$ 与 $|F = 0, m_F = 0\rangle$ 态原子的有效磁矩与磁场方向相同而受到沿径向向 外的力。经过选态磁铁后, $|F = 1, m_F = 1, 0\rangle$ 态的大部分氢原子被聚集而进入原子储存泡, $|F = 1, m_F = -1\rangle$ 和 $|F = 0, m_F = 0\rangle$ 态的原子被偏离掉而不能进入原子储存泡。进入储存 泡的 $|F = 1, m_F = 1\rangle$ 态的原子是无效的原子,但会与 $|F = 1, m_F = 0\rangle$ 的有效原子发生自旋 交换碰撞,增加碰撞弛豫。如果在理想状态下,不让 $|F = 1, m_F = 1\rangle$ 态的所有原子进入储 存泡,在有效原子束流不变的情况下会有效减小原子之间的碰撞弛豫,氢脉泽频率稳定度会

359

有所提高,如图6中曲线3所示。

不让 $|F = 1, m_F = 1\rangle$ 态原子进入原子储存泡的普遍办法,是采用两次选态的方法。这种选态装置大致由两个选态磁铁 (六极或四极)和在两个选态磁铁间产生原子布居转移的装置构成。第一个选态磁铁偏转掉 $|F = 1, m_F = -1\rangle$ 与 $|F = 0, m_F = 0\rangle$ 态的原子,不均匀磁场使 $|F = 1, m_F = 1\rangle$ 态原子跃迁至 $|F = 1, m_F = -1\rangle$ 态,再经过第二个选态磁铁被偏转掉,这样就只让 $|F = 1, m_F = 0\rangle$ 态的原子进入了储存泡。值得注意的是,在布居转移过程中的能级跃迁不是普通的塞曼跃迁,是一个比较复杂的问题。Schwinger 用含时微扰论计算了原子在自身运动参考系中受到一个固定角频率的旋转磁场时,会在 $|F = 1, m_F = 1\rangle$ 态与 $|F = 1, m_F = -1\rangle$ 态之间发生类似 Rabi 振荡的振荡,合理设计不均匀磁场区域的长度,就可以让原子发生 $|F = 1, m_F = 1\rangle$ 态到 $|F = 1, m_F = -1\rangle$ 态的布居转移。Urabe 和 Ohta 经过计算表明,合理尺寸的通电反向赫姆霍兹线圈产生的不均匀磁场,让经过其的原子经历一个旋转微扰电磁场,可以实现 Majorana 跃迁^[55]。近来俄罗斯的研究小组正在实验上积极研究采用这种包含反向赫姆霍兹线圈的双选态系统^[6, 56]。

另外一种实现 $|F = 1, m_F = 1\rangle$ 态原子布居转移到 $|F = 1, m_F = -1\rangle$ 态的方法叫做缓变 快速通道法。布居转移装置的不均匀磁场区域由磁场方向正交的一个静磁场和一个交变磁场 构成,见图 10。静磁场的磁场大小沿原子运动方向渐变不均匀,由变节距的螺线管产生;交 变磁场由四线圈产生,其频率大体为氢原子在静磁场作用下的超精细磁子能级间的平均塞曼 频率。氢原子在经过不均匀磁场区域,超精细能级发生分裂,并且先经历一个相对于平均塞 曼频率失谐的交变磁场,中间感受到频率与平均塞曼频率一样的交变磁场,再经历一个相对 于塞曼频率反向失谐的交变磁场。Morris 最先计算了这种物理过程,Mattison 等人设计了相 应的装置^[54],并获得了较好的选态效果,80% 的 $|F = 1, m_F = 1\rangle$ 态原子被偏转掉。





两种选态方法的不均匀磁场区域都需要放置在单独的磁屏蔽装置内,以避免选态磁铁的 强磁场对其产生影响,所以实际装置比较复杂。缓变快速通道法物理图像比较清晰,但由 于装置比较复杂,目前还未应用于工程化的主动型氢原子钟中。选态效果的检测有两种方 法。一种是测量脉泽在开启和不开启选态系统的情况下的输出功率和束流的曲线,大体推算 出振荡因子 q。根据在脉泽其他参数不变的情况下 $q \propto I_{tot}/I_{eff}$,从而可以计算出选态和不 选态在束流相同的情况下总原子数之比,反推出选态效率。另一种检测的方法是利用双共振现象^[35,57]。在谐振腔的径向再加一个交变磁场,频率为氢原子基态超精细磁子能级间的 塞曼频率,使氢原子在钟跃迁能级间振荡的同时,又在塞曼能级间振荡,即双共振。这时氢 脉泽的频率会发生偏移,偏移量与 $|F = 1, m_F = 1\rangle$ 态和 $|F = 1, m_F = -1\rangle$ 态的粒子数差 $(N(\varrho_{11} - \rho_{33}))$ 成正比。当理想选态时 $(N(\varrho_{11} - \rho_{33}) = 0)$,相同偏移的交变磁场导致振荡频 率的偏移量比不进行双选态时小很多,见图 11。氢脉泽的双共振脉泽频移可用缀饰态理论计 算,并已被实验所证实。与通过测量 q 值计算出选态和不选态的原子数变化的方法相比,用 双共振频移检测双选态效果更直观。



缓变快速通道法可以用另一种理论来理解。Hioe 等人把多能级系统的原子系综与电磁场 相互作用的密度矩阵微分方程组用一个形式上的的矢量方程来描述,类似于描述磁共振的赝 自旋矢量方程^[58-60]。Hioe 等人的计算表明,对于能级间距相等的三能级原子 (例如 F=1 的 塞曼能级),对其施加一个脉冲电磁场,在脉冲内电磁场的频率相对于塞曼频率从负 (正) 失 谐变到正 (负) 失谐,这样可以使原子从能级 $|F=1,m_F=1\rangle$ 态跃迁到 $|F=1,m_F=-1\rangle$ 态。这是一种违反直觉的物理现象。这种理论在其他物理问题上也有所应用,例如用不同失 谐的激光时序脉冲使原子能级的布居发生变化 ^[61]。用这种方法也许可以解释俄罗斯的主动型 氢原子钟在选态磁铁后加一个矩形脉冲的电磁场使 $|F=1,m_F=1\rangle$ 态的原子的一半跃迁至 $|F=1,m_F=-1\rangle$ 态,以消除前面提到的自旋交换碰撞的第三种弛豫。原子在选态磁铁中轴 线的延长线上运动,相当于经历一个不均匀的取向量子化的磁场,矩形脉冲内施加交变电磁 场,使原子在经过这个区域时相当于经历了一个扫频电磁场从负失谐到正失谐。Hioe 等人发 展的这种计算方法可以称作相干矢量理论,这种方法以密度矩阵方法为基础,利用了 SU(3) 群的对称性,不用完全求解密度矩阵的微分方程组,就可以得到清晰的结论。

4.4 微波问题

氢脉泽自激振荡在谐振腔中保持的微波场能量很小,大致为 -90 dBm,需要通过微波耦

合环从谐振腔中将频率稳定的微波信号输出至电子学系统处理。耦合环与微波腔之间的耦合 是一种弱耦合,耦合系数约为0.1。还会放置一个带变容二极管的耦合环,通过改变加在二极 管上的电压来调节腔频。对于腔频切换调谐方法,还需要一个带变容二极管的耦合环来调制 腔频。谐振腔可以等效为一个串联谐振电路,谐振腔与耦合环的连接可以等效为理想变压器 模型^[62]。耦合系数的测量,可以采用临界点法^[63,64],临界点法是一种简单、快速测量耦合 系数的方法,原理如图12所示。谐振腔在共振频率附近的阻抗在Smith 圆图上的形状见图 12,可以找到阻抗最大和最小对应的频率 *f*₁ 和 *f*₂ 及阻抗交叉点对应的频率 *f*₃ 和 *f*₄。谐振腔 的无载 *Q* 值近似为 (*f*₁ + *f*₂)/2(*f*₁ - *f*₂)。由于谐振腔与耦合环之间是弱耦合,从耦合环处看, 不能达到行波状态,即不能实现阻抗匹配,在耦合环处会有反射现象。在脉泽输出线端需要 插入隔离器来避免外部噪声对腔内自激振荡的影响。在通过变容二极管调节腔频时,一般增 加二极管的电压,腔频会增大;但对于蓝宝石加载谐振腔,情况恰好相反,增加二极管电压, 腔频反而减小^[65],对于这一点还没有很好的解释。



图 12 临界点法测量耦合系数示意图

4.5 辅助技术的发展

相较于传统氢脉泽,除了前述的新腔调谐方式和采用双选态方法,正在进行或已完成的 技术上的改进包括储氢方式、氢气提纯技术、氢分子电离方式、真空结构、真空泵技术。所 有的这些改进都是为了提高氢脉泽的可靠性和指标。

传统型氢脉泽的储氢方式是采用氢瓶封装高压氢气方式。氢气瓶连接钯管,加热钯管时 氢气从钯管中渗透出来而进入通往电离泡的通氢管道。氢在电离泡内被高频电离成氢原子, 氢原子经电离泡的准直器出射,进入到选态磁铁。可以采用镧镍合金储氢方式代替高压储存 方式,具有体积小、储氢密度大、储存压力低、安全性好、寿命长的特点^[66]。可以用镍管 代替钯管进行氢提纯,镍管可以过滤更多的杂质,并且流量随温度变化较缓,可以更准确地 控制氢分子的流量^[67]。氢分子在电离泡内被高频电离成氢原子的过程比较复杂^[68]。在高频 电离的状态下,电离泡内形成低温等离子体,包含电子、H、H⁺₂、H⁺₃等粒子,粒子间的碰 撞过程比较复杂^[69,70]。有多种反应可以产生氢原子,最主要的反应是电子与氢分子的碰撞; 也有多种反应可以损耗氢原子,最主要的是泡壁吸附氢原子并且使其在表面上扩散碰撞而复 合。总体来讲,大约只有百分之几的氢分子被电离成氢原子。用感式电离方式取代电极式的 电离方式,可以减少氢原子在电离泡壁上的复合。电离泡内壁的光滑性对电离效率的影响很 大^[71],内壁越光滑,可以减少氢原子在壁上的吸附和碰撞复合;因此通过氢氟酸洗净电离泡 的内壁很重要。

储存泡内的氢原子数量很少,在 10¹² ~ 10¹³ 量级。氢原子系综与电磁场的相互作用,需 要在低真空环境内 (本底真空气压约为 10⁻⁶ Pa) 完成。氢脉泽最基本的真空结构是将谐振 腔、束光学系统、电离泡、通氢管道放在一个真空内,而 C 场、恒温、磁屏蔽系统这些外围 结构不放在真空内,这是所谓的单真空结构。SOHM-4 型氢原子钟就是采用单真空结构。俄 罗斯和瑞士的主动型氢钟采用的是双真空结构,就是在单真空的基础上将外围结构也放置在 一个外真空罩内。外真空结构有利于降低脉泽部分与外界的热交换,可以减小保温层的厚度, 并且可以缩小磁屏蔽系统的尺寸从而缩小主动型氢钟尺寸。采用双真空结构的氢钟拥有更小 的体积和重量,且脉泽的温度灵敏度会更好。表 2 列出了几种氢钟的性能参数^[66],可以看 出 SOHM 和 NHM2010 两种采用单真空结构的氢钟的温度灵敏度不如其他三种采用双真空结 构的氢钟。传统的氢脉泽,维持真空一般使用溅射离子泵。可用非蒸散型吸气剂泵替代溅射 离子泵。非蒸散型吸气剂泵利用高温激活后的合金材料在常温下对气体的物理吸附,具有对 活性气体抽速大、清洁无油、高可靠性等一系列优点^[60]。在氢钟中,离子泵的体积很大也很 重,采用非蒸散型吸气剂泵和小离子泵结合的复合泵,相比于离子泵,其重量大幅减轻,体 积大幅缩小,有助于缩小主动型氢原子的体积和重量。力学结构也很重要,与频率的复现性 有关。

氢钟型号/性能参数	温度灵敏度/10 ⁻¹⁵ °C	磁灵敏度/10 ⁻¹⁸ T	复现性/10 ⁻¹⁴
SOHM	20	1.4	± 30.0
BM2101-01	5	1.0	± 10.0
VCH-1003M	2	1.0	± 1.0
iMaser3000	5	1.0	± 1.0
NHM2010	10	3.0	± 2.0

表 2 不同型号氢钟的部分性能参数比较

5 总 结

关于氢微波激射器和主动型氢原子钟的研究已进行了半个世纪,至 20 世纪 90 年代,其基本理论已比较成熟。最近 20 年来,主要集中于技术上的完善,以期在频率稳定度上达到其

物理极限。尽管近 10 年来关于光原子钟的研究很多,并且大多数光钟的理论稳定度要比氢钟好两个数量级及以上,但光钟还在实验室阶段,目前很难长期稳定运行,在未来一段时间内氢钟仍然是中短期稳定度最好的能长期稳定运行的原子钟。目前上海天文台的 SOHM 型氢钟的稳定度指标明显低于俄罗斯的 VCH-1003M 氢钟、美国的 NHM-2010 型氢钟和瑞士的 iMaser2000 型氢钟,如图 13 所示。如前所述,在真空系统、自动调谐方法、双选态器、力学结构、小型化方面还有发展的空间,需在理论和技术水平上进一步提升。将来氢钟的天稳定度应该达到或者接近 10⁻¹⁷ 量级。



图 13 主动型氢原子钟稳定度比较

参考文献:

- [1] Kleppner D, Goldenberg H M, Ramsey N F. Physical Review, 1962, 126: 603
- [2] Parker T E. IEEE Trans.Ultrason.Ferroelectr.Freq.Control, 1999, 46: 745
- [3] Vanier J, Audoin C. The Quantum Physics of Atomic Frequency Standards. Philadelphia, USA: Adam Hilger imprint by IOP Publishing Ltd, 1989: 986,1069,1093,1119,1227
- [4] Demidov N, Voronstov V, Belyaev A, et al. Proceedings of the European Frequency and Time Forum (EFTF), 2012. Piscataway: IEEE, 2012: 488
- [5] Peters H. Metrologia, 2006, 43: 353
- [6] Mikhail A. Proceedings of 2015 Joint Conference of the IEEE International Frequency Control Symposium and the European Frequency and Time Forum. Piscataway: IEEE, 2015: 480
- [7] Aleinikov M S, Blinov I Y. Measurement Techniques, 2015, 58: 892
- [8] Zivanov S, Schweda H, Goujon D, et al. Proceedings of Joint IEEE International Frequency Control Symposium/21st European Frequency and Time Forum. Piscataway: IEEE, 2007: 637

- Schweda H, Zivanov S, Perruchoud G, et al. Proceedings of Joint IEEE International Frequency Control Symposium/21st European Frequency and Time Forum. Piscataway: IEEE, 2007: 1116
- [10] Yang R F, Zhou T Z, Wang N R, et al. IEEE Trans.Ultrason.Ferroelectr.Freq.Control, 2010, 57: 587
- [11] 何克亮, 张为群. 仪器仪表学报, 2016, 37: 1164
- [12] Plantard C, Mbaye P M, Vernotte F, et al. IEEE Trans.Ultrason.Ferroelectr.Freq.Control, 2010, 57: 707
- [13] Laurent P, Massonnet D, Cacciapuoti L, et al. Comptes Rendus Physique, 2015, 16: 540
- [14] Heß M P, Stringhetti L, Hummelsberger B, et al. Acta Astronautica, 2011, 69: 929
- [15] Ashby N, Heavner T P, Jefferts S R, et al. Physical Review Letters, 2007, 98: 070802
- [16] Tobar M E, Stanwix P L, Mcferran J J. Physical Review D, 2013, 87: 122004
- [17] Tobar M E, Wolf P, Bize S, et al. Physical Review D, 2010, 81: 022003
- [18] 邹英华, 孙騊亨. 激光物理学. 北京: 北京大学出版社, 1991: 225
- [19] 王义道, 王庆吉, 傅济时, 等. 量子频标原理. 北京: 北京大学出版社, 1986: 141, 226, 228, 453
- [20] Kleppner D, Berg H C, Crampton S B, et al. Physical Review, 1965, 138: 972
- [21] Vanier J, Tomescu C. The Quantum Physics of Atomic Frequency Standards:Recent Developments. Boca Raton: CRC Press, 2015: 53
- [22] Jacobs S F. American Journal of Physics, 1979, 47: 597
- [23] Kolos W, Wolniewicz L. The Journal of Chemical Physics, 1965, 47: 2429
- [24] Holsten B R. Topics in Advanced Quantum Mechanics. Redwood City,USA: Addison-Wesley Publishing Company, 1992: 92
- [25] 倪光炯,陈苏卿. 高等量子力学. 上海: 复旦大学出版社, 2000: 67
- [26] Allison A C. Physical Review A, 1972, 5: 2695
- [27] Desaintfuscien M, Audoin C. Physical Review A, 1976, 13: 2070
- [28] Bender P L. Physical Review, 1963, 132: 2154
- [29] Crampton S B, Duvivier J A, Read G S, et al. Physical Review A, 1972, 5: 1752
- [30] Crampton S B, Wang H T M. Physical Review A, 1975, 12: 1305
- [31] Zhang A M, Wang W B, Gao Y, et al. IEEE International Frequency Control Symposium. Piscataway: IEEE, 2014: 398
- [32] Walsworth R L, Silvera J I F, Godfried P, H, et al. Physical Review A, 1986, 34: 2550
- [33] Verhaar B J, Koelman J M V A, Stoof H T C, et al. Physical Review A, 1987, 35: 3825
- [34] Koelman J M V A, Crampton S B, Stoof H T C, et al. Physical Review A, 1988, 38: 3535
- [35] Walsworth R L, Silvera I F. Physical Review A, 1992, 46: 2495
- [36] Hayden M E, Hurlimann M D, Hardy W N. Physical Review A, 1996, 53: 1589
- [37] Gao K L. Chinese Science Bulletin, 2013, 58: 85
- [38] Bloom B J, Nicholson T L, Williams J R, et al. Nature, 2014, 506: 71
- [39] Fang F, Li M S, Lin P W, et al. Metrologia, 2015, 52: 454
- [40] Cheng Y M, Hua Y L, Chen C B, et al. IEEE Trans.Ultrason.Ferroelectr.Freq.Control, 1980, 29: 316
- [41] Petie P, Desaintfuscien M, Audoin C. Metrologia, 1980, 16: 7
- [42] Crampton S B, Fleri E C, Wang H T M. Metrologia, 1977, 13: 131
- [43] 陈鹏飞, 谢勇辉, 林传富. 波谱学杂志, 2013, 30: 361
- [44] 沈乃澂. 光频标. 北京: 北京大学出版社, 2012: 183
- [45] Daussy C, Ducos F, Rovera, G D, et al. IEEE Trans.Ultrason.Ferroelectr.Freq.Control, 2000, 47: 518
- [46] Goujon D, Rochat D P, Mosset P, et al. Proceedings of 24th European Frequency and Time Forum. Piscataway: IEEE, 2010: 1
- [47] Hartnett J G, Locke C R, Ivanov E N, et al. Applied Physics Letters, 2006, 89: 203513
- [48] Wang Q H, Zhai Z C, Zhang W Q, et al. IEEE Trans.Ultrason.Ferroelectr.Freq.Control, 2000, 47: 197
- [49] Busca G, Bernier L G. Proceedings of Precise Time and Time Interval Applications and Planning meeting. Piscataway: IEEE, 1994: 467
- [50] Jornod A, Goujon D, Gritti D. Proceedings of the IEEE International Frequency Control Symposium and PDA Exhibition Jointly with the 17th European Frequency and Time Forum. Piscataway: IEEE, 2003: 82

- [52] Peters H E. Proceedings of 38th Annual Frequency Control Symposium. Piscataway: IEEE, 1984: 420
- [53] Black E D. American Journal of Physics, 2001, 69: 79
- [54] Mattison E M, Vessot R F C, Shen W. IEEE Trans.Ultrason.Ferroelectr.Freq.Control, 1987, 34: 622
- [55] Urabe S, Ohta Y. Japanese Jornal of Applied Physics, 1983, 22: 1009
- [56] Aleynikov M S. Measurement Techniques, 2016, 59: 235
- [57] Humphrey M A, Phillips D F, Walsworth R L. Physical Review A, 2000, 62: 063405
- [58] Hioe F T, Eberly J H. Physical Review Letters, 1981, 47: 838
- [59] Oreg J, Hioe F T, Eberly J H. Physical Review A, 1984, 29: 690
- [60] Hioe F T. Physical Review A, 1983, 28: 879
- [61] 周艳微, 叶存云, 林强, 等. 物理学报, 2005, 54: 2799
- [62] Beverini N, Vanier J. IEEE Trans.Ultrason.Ferroelectr.Freq.Control, 1979, 28: 100
- [63] Sun E Y, Chao S H. IEEE Trans.Ultrason.Ferroelectr.Freq.Control, 1995, 43: 1083
- [64] Chua L H, Syahkal D M. IEEE Trans.Ultrason.Ferroelectr.Freq.Control, 2003, 51: 978
- [65] 代克. 博士论文. 上海: 中国科学院上海天文台, 2010: 63
- [66] 王文明. 博士论文. 上海: 中国科学院上海天文台, 2012
- [67] 蔡勇,杨浩,刘俊,等. 2015 全国时间频率学术会议论文集.北京:中国计量科学研究院, 2015: 218
- [68] Geddes J, Mccullough R W, Donnelly A, et al. Plasma Sources Science and Technology, 1993, 2: 93
- [69] Kharlamov V F, Anifriev K M, Krutovskii E P, et al. Technical Physics Letters, 1998, 24: 176
- [70] Tawara H, Itikwa Y, Nishimura H, et al. Journal of Physical Chemical Reference Data, 1990, 19: 617
- [71] Wang W M, Zheng H F, Shen G H, et al. China Satellite Navigation Conference (CSNC) 2016 Proceedings:Volume III. Singapore: Springer Science+Business Media Singapore Pte Ltd, 2016: 637

Progresses in Researches of Active Hydrogen Atomic Clock

HE Ke-liang^{1,2}, ZHANG Wei-qun¹, LIN Chuan-fu¹

(1. Time and Frequency Research Center, Shanghai Astronomical Observatory, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 200030, China; 2. University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

Abstract: The active hydrogen atomic clock (H clock) based on hydrogen microwave amplification by stimulated emission of radiation (H maser) have excellent short-term and mid-term frequency stability. The atomic storage bulb is the key technology of H clock. The atomic ensemble interact with electromagnetic field in the storage bulb situated in the TE_{011} resonant cavity. The dynamical processes, the phase noise of H maser and H clock, and relaxations including storage time, spin-exchange collision, atoms collisions with wall and inhomogeneous magnetic field are briefly described. The new cavity auto-tuning method and double state selection method for improving the frequency stability are introduced. The technology improvements such as vacuum system, ionization source are also introduced. Finally, some development prospects for H clock are proposed.

Key words: atomic clock; H maser; atom storage bulb; relaxation; frequency stability