

瓦级 319 nm 单频连续紫外激光的实现及 铯原子单光子 Rydberg 激发

王军民^{1,2*}, 白建东¹, 王杰英¹, 刘 硕¹, 杨保东^{1,2}, 何 军^{1,2}

(1. 量子光学与光量子器件国家重点实验室, 山西大学光电研究所, 太原 030006;

2. 省部共建极端光学协同创新中心, 教育部-山西省, 山西大学, 太原 030006)

摘要:结合光纤激光器、光纤放大器和非线性光学高效频率转换技术及准位相匹配材料, 服务于原子物理领域铯原子单光子跃迁里德堡激发的实际需求, 研究并掌握了产生 318.6 nm 波长连续单频紫外激光的关键技术。采用 1 560.5 nm 与 1 076.9 nm 连续激光先通过单次穿过 PPLN 非线性晶体和频, 再经腔增强谐振倍频过程高效地产生了输出功率大于 2 W 的 318.6 nm 紫外激光, 半小时内, 光功率的方均根起伏优于 0.87%。采用电子学边带锁频方案, 实现了整个紫外激光系统在保持相对于高精度超稳腔锁定条件下较大范围连续调谐, 其连续调谐范围大于 4 GHz, 残余频率起伏约 16 kHz。采用本文研制的高功率窄线宽可调谐 318.6 nm 紫外激光系统, 在铯热原子气室中实现了 $6S_{1/2} \rightarrow nP_{3/2}$ ($n = 70 \sim 100$) 的单光子跃迁里德堡激发, 并对相关现象作了相关的理论分析与研究。采用纯光学探测方案观察到了 318.6 nm 紫外激光对磁光阱中铯冷原子系综的单光子跃迁里德堡激发。

关键词: 紫外激光; 铯里德堡原子; 激光频率转换; 非线性光学效应; 激光技术

中图分类号: O437.1; O562.3 **文献标识码:** A **doi:** 10.3788/CO.20191204.0701

Realization of a watt-level 319-nm single-frequency CW ultraviolet laser and its application in single-photon Rydberg excitation of cesium atoms

WANG Jun-min^{1,2*}, BAI Jian-dong¹, WANG Jie-ying¹, LIU Shuo¹, YANG Bao-dong^{1,2}, HE Jun^{1,2}

(1. State Key Laboratory of Quantum Optics and Quantum Optics Devices,

Institute of Opto-Electronics, Shanxi University, Taiyuan 030006, China;

2. Collaborative Innovation Center of Extreme Optics, the Ministry of Education and

Shanxi Province, Shanxi University, Taiyuan 030006, China)

* Corresponding author, E-mail: wujjmm@sxu.edu.cn

Abstract: In order to meet the demand for single-photon Rydberg excitation of cesium atoms in the field of atomic physics, we investigated the key technologies of single-frequency continuous wave (CW) tunable ultraviolet (UV) laser at 318.6 nm. Combining the fiber lasers, fiber amplifiers and the nonlinear crystals, we a-

收稿日期: 2019-01-16; 修订日期: 2019-02-22

基金项目: 国家自然科学基金项目 (No. 61475091); 山西省 1331 重点学科建设工程项目

Supported by the National Natural Science Foundation of China (No. 61475091); the Shanxi Provincial 1331 Project for Key Subjects Construction

chieved 318.6 nm UV laser over 2 Watt output with cavity-enhanced second-harmonic generation following the sum-frequency generation of two infrared lasers at 1 560.5 nm and 1 076.9 nm in PPLN crystal. The typical root-mean-square fluctuation of UV laser power was less than 0.87% within 30 minutes. The electronic side-band locking scheme based on a temperature controlled hyper-fine ultra-stable ultra-low-expansion cavity placed in an ultra-high vacuum chamber was used to achieve the continuously tuning of UV laser in a wide range while still keeping it locked. The continuously tunable range was larger than 4 GHz and the residual frequency fluctuation of UV laser was about 16 kHz. We employed this high-power single-frequency continuously tunable UV laser system for the direct $6S_{1/2} \rightarrow nP_{3/2}$ ($n = 70 - 100$) Rydberg excitation of cesium atoms with atomic vapor cells in experiments. After that, relevant theoretical analysis and research have been done. With a magneto-optical trapped cesium atomic ensemble, single-photon Rydberg excitation using the UV laser system was achieved with a pure optical detection scheme.

Key words: ultraviolet laser; cesium Rydberg atoms; laser frequency conversion; nonlinear optical effects; laser technology

1 引 言

里德堡原子是指原子核外至少有一个电子被激发到主量子数 $n > 10$ 的高激发态原子。里德堡原子的这种特殊结构使其具有一系列不同于基态原子的性质,这些性质都与有效主量子数 n^* 有着密切关系^[1]。由于里德堡原子的轨道半径 ($\sim n^2$) 很大,而原子的束缚能 ($\sim n^{*-2}$) 与相邻能级间隔 ($\sim n^{*-3}$) 都会随着 n^* 的增大变得很小,因此里德堡原子很容易受到外界环境的影响。特别是,由于里德堡原子具有较大的电偶极矩 ($\sim n^2$) 和极化率 ($\sim n^{*7}$)^[2],从而使原子之间的相互作用,如范德瓦尔斯相互作用 ($\sim n^{*11}$)^[3] 和偶极-偶极相互作用 ($\sim n^{*4}$) 会随着主量子数的增加变得很强。里德堡原子的这些特性使其成为量子信息^[4]、量子计算^[5] 以及精密测量^[6] 等领域的重要研究对象。

里德堡原子制备过程中,常见的激发方式主要有 3 种:单光子激发、级联双光子激发和级联三光子激发。以碱金属原子里德堡激发为例,单光子激发过程中,原子吸收一个光子直接从基态跃迁到里德堡态 ($nS_{1/2} \rightarrow nP_{1/2,3/2}$),需要的光子能量很大,大多处于紫光和紫外光波段。例如,¹³³Cs 原子基态 $6S_{1/2} \rightarrow nP_{3/2}$ 跃迁所需的激光波长为 318 nm^[7]; ⁸⁵Rb 原子 $5S_{1/2} \rightarrow nP_{3/2}$ 跃迁所需的激光波长为 297 nm^[8]。级联双光子激发方案中,原子通

过两个不同能量的光子借助中间态跃迁到目标里德堡态 ($nS_{1/2} \rightarrow nP_{1/2,3/2} \rightarrow nS_{1/2}, nD_{3/2,5/2}$)。¹³³Cs 原子 nS 或 nD 里德堡态的制备可通过 852 nm 和 509 nm 双光子激发方案实现^[9-11]; ⁸⁷Rb 原子 nS 或 nD 里德堡态的制备则可通过 780 nm 和 480 nm 双光子过程实现^[12]。级联多光子激发方案的中间态相应增加,选用的级联激发激光也大多处于红外波段。实验中通过三光子激发制备 ⁸⁷Rb 原子 nP 里德堡态需要 780 nm、776 nm 和 1259 nm 3 个波段的激光源。相对于两步和三步激发,单光子激发所需的紫外波段激光器较难实现。由于从基态直接激发到高激发里德堡态的跃迁强度相比从基态到第一激发态的跃迁强度小 7 个数量级^[7],所以采用单光子激发方案制备里德堡原子的效率较低;此外,由于里德堡态的自发辐射寿命较长,大约在百微秒到毫秒量级,所以其能级线宽较窄,大约在 kHz 量级或以下。因此,用于单步激发的紫外激光需要满足高功率、窄线宽的要求。

相比于级联多步激发,单步激发方式有其独特的优势:一是可以避免两步和三步激发过程中原子对中间态的布居,尽管级联激发过程可通过每一步激发光相对于共振跃迁的失谐来减弱光子散射的影响,但是并不能完全消除。二是可避免多步激发过程中激发光带来的基态和里德堡态能级的光频移,以及避免由此导致的原子退相干。综上所述,虽然单步激发需要的窄线宽紫外激光实现起来有很大的技术挑战,但是对于解决物理

问题而言仍然有很大的意义。理论研究表明,不同激发方式对基于里德堡原子强相互作用受控非门的保真度的影响不同。单步激发方式的多普勒灵敏度最高,有望将 Bell 态的保真度提高到 0.999 9。因此单步里德堡激发的研究对量子计算领域的发展意义重大。

由于目前商用的连续紫外激光源大多无法满足单光子里德堡激发需求,且通过非线性技术获得高功率紫外激光实现起来非常困难。因此,传统实验中采用单步跃迁进行里德堡激发的例子非常少。当使用里德堡缀饰原子进行可调谐、长寿命的多体相互作用时,多步激发过程中中间态的光子散射变得不可忽视^[13],原因在于无中间态光子的散射可实现高保真度的量子态。早期 Gould 小组使用脉冲紫外激光实现了⁸⁵Rb原子的单光子里德堡激发^[8],但使用连续光激发才可实现里德堡原子的确定性相干操控。近年来得益于光纤激光技术的日趋成熟以及非线性频率变换技术,连续紫外激光的实现成为可能。2011年,美国国家标准技术研究院 Wineland 研究小组率先采用半导体激光器作为种子光注入光纤放大器,经非线性和频及腔增强谐振倍频的方式,产生了 750 mW 单频连续 313 nm 紫外激光,用于冷却和操控铍离子^[14]。2014年,瑞士 Lo 等人采用同样的技术路线获得了 1.9 W 的 313 nm 紫外连续激光,用于铍离子的冷却与量子态操控^[15]。沿着类似的技术路线,2014年,美国桑迪亚国家实验室 Biedermann 研究小组制备了约 300 mW 的 319 nm 连续紫外激光。通过单光子激发方式实现了铯原子 84P_{3/2}里德堡态的制备,并且在相距 6.6 μm 的两个偶极阱中观察到了两个铯原子间的里德堡阻塞效应^[7]。2016年,英国杜伦大学 Jones 研究组获得了 200 mW 的 316 ~ 319 nm 连续紫外激光,并用于铯原子里德堡激发^[16]。荷兰阿姆斯特丹自由大学 Vassen 研究组获得了 2 W 连续 319.8 nm 紫外激光,并用于光阱俘获亚稳态的氦原子^[17]。

本课题组充分利用激光技术领域中发展迅速的光纤放大器、光纤激光器等,以及非线性光学领域中新型准位相匹配频率变换材料和技术,针对铯原子单光子跃迁里德堡 nP 态 ($n = 70 \sim 100$) 激发所需的 318.6 nm 紫外窄线宽可调谐连续激光

实现的关键技术问题,开展了下列几方面的研究工作:(1)1 560.5 nm 与 1 076.9 nm 激光经高效非线性过程和频过程实现了瓦级 637.2 nm 窄线宽连续激光输出^[18]; (2)通过腔增强谐振倍频过程实现了 637.2 nm 窄线宽连续激光向 318.6 nm 紫外激光的高效倍频^[19]; (3)318.6 nm 窄线宽连续激光的大范围频率调谐与频率稳定^[20]; (4)采用所研制的高功率窄线宽 318.6 nm 紫外激光系统实现了铯原子(热原子气室和冷原子系综)的单光子跃迁里德堡激发^[21-23],并对相关问题进行了研究。

2 实验方案

对于 Cs 原子 $6S_{1/2} \rightarrow nP_{3/2}$ ($n = 70 \sim 100$) 单步跃迁所需的瓦级输出功率的 318.6 nm 紫外激光,需要利用高功率的 637.2 nm 红光做基频光进行倍频。但在目前,可用于 637.2 nm 波段的增益介质非常稀少。这是由于该波段商用半导体激光器通常用于激光指示和激光准直,其输出功率在毫瓦量级,而可以达到瓦级输出的宽调谐范围的钛宝石激光器无法调谐到 637.2 nm 波段。即使利用特殊染料的染料激光器可以实现 637.2 nm 激光的高功率输出,但由于染料的光漂白特性使其无法长时间稳定运转,此外,还存在染料激光器的维护及染料价格高昂等问题。所以转换思路,转而可通过非线性和频、倍频等方式研发全固态激光器获得高功率连续红光光源^[18]。制备紫外波段和紫光波段的高输出功率窄线宽可连续调谐激光器一直是激光技术领域的难题。目前,几乎所有蓝紫光和紫外波段激光均采用非线性频率转化技术来制备。近年来伴随着光纤激光技术、准位相匹配晶体材料以及镀膜技术的发展,使得高功率连续可调谐紫外激光的实现成为可能。

实验装置图如图 1 所示,高功率窄线宽的 318.6 nm 紫外光需要通过瓦级 637.2 nm 窄线宽可调谐连续激光倍频得到,所以需要 10 W 级红外段 1 560.5 nm 和 1 076.9 nm 波长的窄线宽可调谐连续激光作为非线性和频过程的光源。实验中选取了两台掺杂稀土元素的窄线宽红外波段光纤激光器作为基频光种子源,分别为 1 560.5 nm

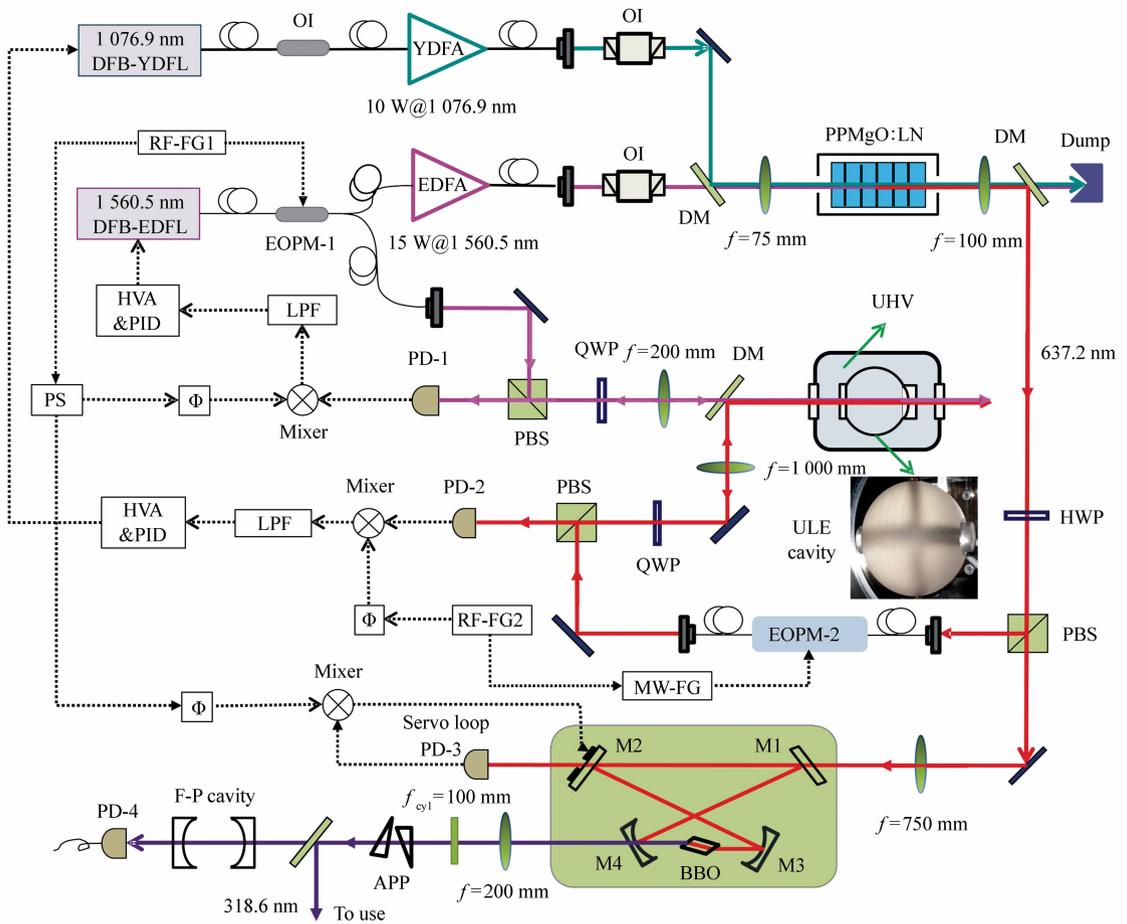


图 1 实验方案和技术路线示意图。其中 EDFA:掺铒光纤放大器;YDFA:掺镱光纤放大器;PMF:保偏光纤;OI:光隔离器; $\lambda/2$:二分之一波片;PBS:偏振分光棱镜; $\lambda/4$:四分之一波片;DM:双色片; 45° HR: 45° 高反镜;ULE:超稳腔;FG:函数发生器;EOPM:电光相位调制器;LPF:低通滤波器;PD:光电二极管;PS:射频频功率分配器;PM:相位调制器; Φ :移相器;HVA&PID:高压放大器以及比例积分差分放大器;APP:整形棱镜对

Fig. 1 Schematic diagram of the laser system. Keys to the figure: EDFA, erbium-doped fiber amplifier; YDFA, ytterbium-doped fiber amplifier; PMF, polarization-maintaining optical fiber; OI, optical isolator; $\lambda/2$, half-wave plate; PBS, polarization beam splitter cube; $\lambda/4$, quarter-wave plate; DM, dichroic mirror; 45° HR, 45° high-reflectivity mirror; FG, Function generator; ULE cavity, ultra-low expansion cavity; EOPM, electro-optic phase modulator; LPF, low-pass filter; PD, photodiode; PS, radio-frequency power splitter; PM: phase modulator; Φ , phase shifter; HVA&PID, high-voltage amplifier and proportional-integration-differential amplifier; APP, anamorphic prism pair

的分布反馈式掺铒光纤激光器和 1 076.9 nm 的分布反馈式掺镱光纤激光器。我们采用光纤延时声光频移自差拍法^[24]测量了两个种子激光器的线宽,分别约为 600 Hz 和 2 kHz,基本可以满足后续实验要求。随后分别注入输出功率分别为 15 W 和 10 W 的掺铒光纤放大器(EDFA)和掺镱光纤放大器(YDFA)对种子源的输出功率进行放大。其中首先将 1 560.5 nm 种子光耦合到一个波导型电光位相调制器(EOPM),对 1 560.5 nm 激

光进行位相调制,随后分为两路,一路激光注入超稳腔,通过电子伺服系统对激光器的压电陶瓷进行反馈,利用 PDH(Pound-Drever-Hall)技术锁定激光频率;另一路耦合进 EDFA,作为基频光使用。将 EOPM-1 置于种子源与放大器之间,主要是考虑了波导型 EOPM 的损伤阈值较低而无法运转于瓦级功率下,且由于 1 560.5 nm 激光上所加的调制频率能够通过和频过程高效地转移到生成的 637.2 nm 红光,进而用于倍频腔的锁定。尽

管倍频后紫光也会携带一定的调制,但由于实际所加的调制频率约为倍频腔线宽(2.2 MHz)的6倍,所以在倍频后边带生成的谐波功率被倍频腔大幅度抑制,可忽略。

经过光纤放大器的两束红外光各自经过一个光隔离器(OI),用于防止由于后续光学元器件产生光反馈而损伤放大器。由于采用的是I类相位匹配方式,1 560.5 nm 激光与1 076.9 nm 激光经过各自的半波片和偏振分光棱镜获得高消光比的线偏振光,并通过双色片(DM)合束后,通过透镜聚焦单次穿过周期极化的掺氧化镁铌酸锂晶体(PPMgO:LN)进行和频,再经透镜准直后,利用对1 560.5 nm和1 076.9 nm 高透、637.2 nm 高反的双色片过滤红外光成分。随后637.2 nm 激光经过半波片调整偏振态后,通过焦距为750 mm的透镜与倍频腔进行模式匹配,之后注入四镜8字形腔。为了防止高功率紫外激光的损伤,行波腔中的倍频晶体采用双布氏角切割的偏硼酸钡(BBO)晶体,透光波段为190~3 500 nm。实验上可通过调整晶体的角度和温度实现相位匹配。行波腔的M1平面镜对637.2 nm 红光具有2.2%的透射率,M2平面镜、M3平凹镜、M4平凹镜均对p偏振637.2 nm 波长高反,其中作为输出镜的M4平凹镜镀318.6 nm 紫外光的增透膜(透射率约为94.5%)。M2镜背后粘贴压电陶瓷,通过637.2 nm 激光携带的调制边带对四镜腔的腔长进行反馈锁定。出射的318.6 nm 紫外光经过透镜准直后,再经柱透镜和整形棱镜对光斑形状进行整形。随后对输出光的功率、 M^2 因子、功率稳定性和线宽等重要参数进行了评估,分析结果表明本文制备的高功率窄线宽连续可调谐的紫外激光系统完全可以满足铯原子的里德堡单光子激发实验要求。

3 318.6 nm 紫外激光系统研制

3.1 经非线性和频过程实现瓦级 637.2 nm 窄线宽可调谐红光输出及特性表征

对于后续经非线性过程高效产生高功率318.6 nm 紫外激光而言,和频及倍频过程中晶体材料的选择至关重要。目前实验上常用的非线性

晶体主要有周期极化的铌酸锂(Periodically Poled Lithium Niobate, PPLN)、周期极化掺氧化镁铌酸锂(PPMgO:LN)、周期极化的磷酸氧钛钾(PPKTP)、三硼酸锂(LBO)和 β 相偏硼酸钡(BBO)。准位相匹配的PPLN和PPKTP因具有较大的非线性系数【 d_{eff} (PPLN)~17~18 pm/V, d_{eff} (PPKTP)~7~9 pm/V】,简单的位相匹配方式和无走离效应等优点被广泛使用。但有效非线性系数较大的PPLN在室温下容易发生光折变损伤,而PPMgO:LN可以解决此问题。对于高功率密度内腔倍频到紫外波段的频率转化过程,LBO和BBO是最常用到的非线性材料,LBO晶体的透光范围可低至160 nm,而相位匹配波长只能到275 nm。BBO晶体的透光范围可到190 nm,但是相位匹配波长可低至205 nm。由于角度匹配方式使得这两种晶体均存在走离效应,LBO的走离角比BBO的小,但是BBO晶体的有效非线性系数是LBO的两倍。综合考虑,本文最终选择PPMgO:LN和BBO分别作为和频生成637.2 nm 红光以及倍频生成318.6 nm 紫外光的非线性晶体。

在首先进行的和频制备637.2 nm 红光的实验过程中,本文先后使用了线宽不同的两套基频种子光系统,将两种子激光分别注入15 W 掺钕光纤放大器以及10 W 掺镱光纤放大器,两路光合束后经单透镜匹配方式单次穿过PPMgO:LN晶体进行和频。通过对比不同线宽基频光对和频结果的影响,发现由于窄线宽激光的功率密度大,其和频效率优于线宽较宽的情况。对于非线性和频转化过程,为了实现最高的和频效率,基波聚焦需满足两个条件^[18]:一是两基波高斯光束的瑞利长度相等,即两基波在晶体中空间模式完全匹配;二是两基波均满足最佳聚焦条件,共焦参量 $\xi = 2.84$ 。对于30 mm长的PPMgO:LN晶体,满足最佳聚焦因子时,最佳腰斑半径分别为 $w(1\ 560.5\ \text{nm}) = 35.09\ \mu\text{m}$ 和 $w(1\ 076.9\ \text{nm}) = 29.15\ \mu\text{m}$;同理,对于40 mm长晶体,最佳腰斑半径分别为 $w(1\ 560.5\ \text{nm}) = 40.52\ \mu\text{m}$ 和 $w(1\ 076.9\ \text{nm}) = 33.67\ \mu\text{m}$ 。实验中使用同一片透镜实现两基频光模式与晶体的匹配。当使用焦距为75 mm透镜时,使用单刀法测量聚焦后腰斑半径为

$w(1\ 560.5\ \text{nm}) = 43\ \mu\text{m}$ 和 $w(1\ 076.9\ \text{nm}) = 30\ \mu\text{m}$ 。此聚焦条件略大于最佳聚焦腰斑,考虑到实验过程中两基频光功率较高,过分聚焦会使晶体中心区域产生热透镜效应。因此在设计中适当地放宽了聚焦条件。

对和频过程中用到的长度分别为 30 mm(极化周期 $\Lambda = 12.05\ \mu\text{m}$) 和 40 mm(极化周期 $\Lambda = 11.60, 11.65, 11.70, 11.75, 11.80\ \mu\text{m}$) 的 PPMgO:LN 晶体的温度调谐特性进行了研究。通过对比研究晶体的极化周期和晶体长度与准相位匹配温度以及温度带宽的关系,得知同一和频过程中相同长度不同极化周期的晶体匹配温度差别较大,而温度带宽相同。因此,实验中选择了对应

匹配温度最低的极化周期。晶体的温度带宽依赖于晶体的作用长度,如图 2 所示,晶体越长,温度带宽越窄。由图 2 可知,长度为 30 mm 的 PPMgO:LN 晶体 ($\Lambda = 12.05\ \mu\text{m}$),优化的准相位匹配温度为 $63.0\ ^\circ\text{C}$,温度半高宽为 $1.5\ ^\circ\text{C}$;长度为 40 mm 的 PPMgO:LN 晶体 ($\Lambda = 11.80\ \mu\text{m}$),优化的准相位匹配温度为 $154.0\ ^\circ\text{C}$,温度半高宽为 $1.2\ ^\circ\text{C}$ 。结合理论计算,通过优化和频过程中两基频光的聚焦条件,在长度为 40 mm 的 PPMgO:LN 晶体中,当 $1\ 560.5\ \text{nm}$ 和 $1\ 076.9\ \text{nm}$ 基频激光功率分别为 $9\ \text{W}$ 和 $14\ \text{W}$ 时,最大获得了 $8.75\ \text{W}$ 的 $637.2\ \text{nm}$ 单频红光输出,和频效率高达 38% ,结果如图 3 所示。

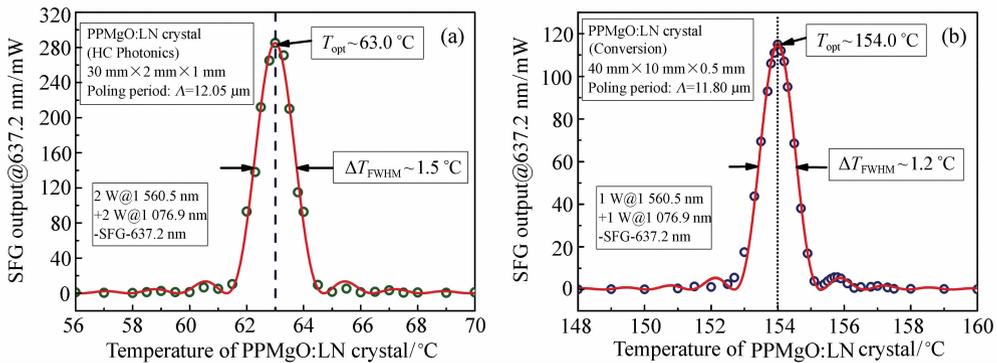


图 2 单次穿过和频 PPMgO:LN 晶体温度调谐曲线^[18]。圆点是实验数据点,实线为使用 sinc^2 函数理论拟合曲线。(a) $30\ \text{mm} \times 2\ \text{mm} \times 1\ \text{mm}$ PPMgO:LN 晶体 ($\Lambda = 12.05\ \mu\text{m}$),优化的准相位匹配温度为 $63.0\ ^\circ\text{C}$,温度半高宽为 $1.5\ ^\circ\text{C}$; (b) $40\ \text{mm} \times 10\ \text{mm} \times 0.5\ \text{mm}$ PPMgO:LN 晶体 ($\Lambda = 11.80\ \mu\text{m}$),优化的准相位匹配温度为 $154.0\ ^\circ\text{C}$,温度半高宽为 $1.2\ ^\circ\text{C}$

Fig. 2 The temperature tuning curves of the PPMgO:LN crystals for single-pass sum-frequency generation^[18]. Circles are the experimental data, while the solid lines are the theoretically fitted curves using sinc^2 function. (a) PPMgO:LN crystal of the dimension $30\ \text{mm} \times 2\ \text{mm} \times 1\ \text{mm}$ (Poling Period: $\Lambda = 12.05\ \mu\text{m}$), and the optimized QPM temperature is $63.0\ ^\circ\text{C}$ with a FWHM of $1.5\ ^\circ\text{C}$; (b) PPMgO:LN crystal of the dimension $40\ \text{mm} \times 10\ \text{mm} \times 0.5\ \text{mm}$ (Poling Period: $\Lambda = 11.80\ \mu\text{m}$), and the optimized QPM temperature is $154.0\ ^\circ\text{C}$ with a FWHM of $1.2\ ^\circ\text{C}$

接着,对和频生成的高功率 $637.2\ \text{nm}$ 红光的光束质量进行了评价,如图 4 所示,插图为光强的横向分布图,实线为高斯拟合结果。由图 4 可知两种情况下两垂直方向光强分布都符合高斯线型。实验结果表明 $637.2\ \text{nm}$ 激光的空间模式为近乎理想的 TEM_{00} 模,长度为 40 mm 的和频晶体的光束质量因子分别为 $M_x^2 = 1.08$ 和 $M_y^2 = 1.05$ 。这主要归功于两基频光放大器均为光纤输出,具有很好的光束质量。综上所述,和频光具有很好

的光束质量,为经腔增强谐振倍频高效地产生 $318.6\ \text{nm}$ 紫外激光奠定了坚实的基础。由于紫外激光的单频特性以及频率连续调谐范围由 $637.2\ \text{nm}$ 激光的相应特性决定,因此我们使用光学 F-P 腔频谱分析技术对 $637.2\ \text{nm}$ 激光的单频特性以及频率调谐特性进行了评价^[18]。分析结果表明,得到的高功率 $637.2\ \text{nm}$ 激光为单纵模运转。

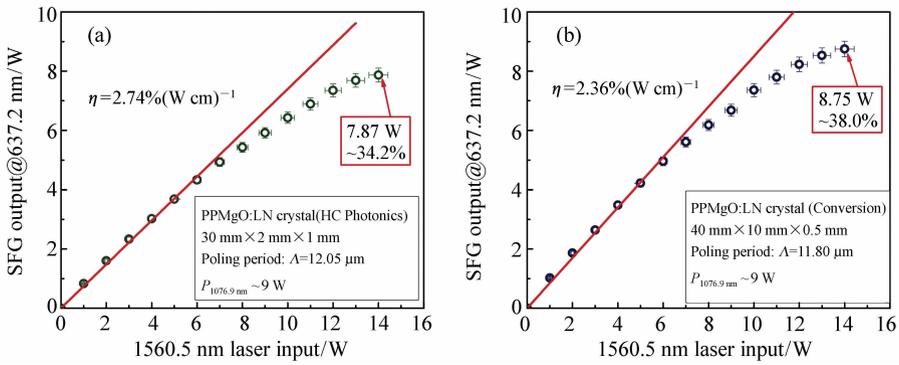


图 3 637.2 nm 和频激光输出功率随两基频光功率的变化^[18]。1 076.9 nm 激光功率固定为 9 W,改变 1 560.5 nm 激光功率,误差来源于功率计测量误差。(a)30 mm PPMgO:LN 晶体实验结果;(b)40 mm PPMgO:LN 晶体实验结果。在长度为 40 mm 的 PPMgO:LN 晶体中,当 1 560.5 nm 和 1 076.9 nm 基频激光功率分别为 9 W 和 14 W 时,最大获得了 8.75 W 的 637.2 nm 单频红光输出,和频效率高达 38%

Fig. 3 SFG output power versus power of two fundamental lasers using a 75 mm focusing lens^[18]. The 1 076.9 nm laser power was fixed at 9 W and the 1 560.5 nm laser power varied. The error bars come from the measurement error of powermeter. (a) The case of 30-mm-long PPMgO:LN crystal from HC Photonics; (b) the case of 40-mm-long PPMgO:LN crystal. In these crystal, a maximum output power for 637.2 nm single-frequency laser of up to 8.75 W was obtained when the fundamental power of 1 560.5 nm and 1 076.9 nm lasers are tuned to 9 W and 14 W, respectively. The efficiency of SFG is 38%

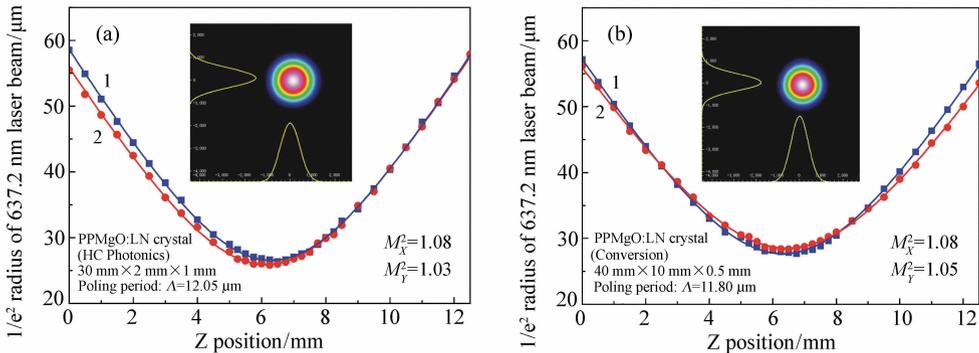


图 4 和频光束的 M^2 因子测量^[18]。方块点(1)和圆点(2)分别代表光束横截面水平和竖直两方向的测量结果,插图为典型的和频光束横截面强度分布。30 mm PPMgO:LN 晶体(a);40 mm PPMgO:LN 晶体(b)

Fig. 4 M^2 factors of the SFG beam^[18]. The squares(1) show the measurements of the horizontal direction X, and the circles(2) show the vertical direction Y. Insets show the typical intensity profile of the SFG laser beam. (a)The case of 30-mm-long PPMgO:LN crystal; (b)the case of 40-mm-long PPMgO:LN crystal

3.2 通过腔增强谐振倍频实现 637.2 nm 红光向 318.6 nm 紫外光高效转换

为了经非线性倍频过程高效地产生 318.6 nm 紫外激光,通过理论计算以及相关参数测试评估,最终选择了四镜 8 字形环腔作为倍频的谐振腔。如图 1 所示,晶体选用 10 mm 长双布氏角切割的 BBO 晶体。折叠角设置为 10.7°。此角度下

凹面镜倾斜入射导致的负象散和布氏角切割 BBO 晶体导致的正象散刚好可以抵消。实验测得倍频腔的内腔损耗 $L_{cav} = 0.67%$,考虑“阻抗”匹配,四镜腔的输入耦合透射率选定为 $T = 2.2%$ 。由于实验中涉及到瓦级高功率激光,块状电光位相调制器存在热不稳定性以及损伤阈值有限的问题,因此,本文采用了一种间接的调制加载

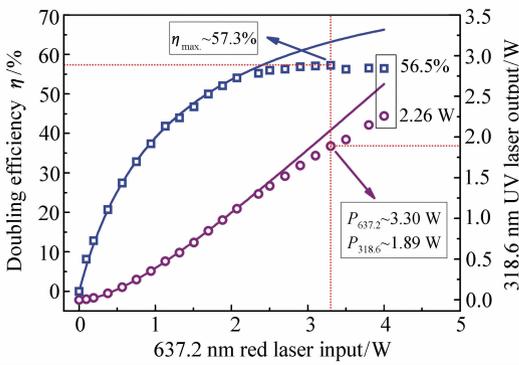


图 5 318.6 nm 紫外激光功率和倍频效率随输入 637.2 nm 激光功率的变化情况^[19]。方块和圆圈为实验测量值,实线为根据实验参数($T_1 = 2.2\%$, $L_{\text{cav}} = 0.67\%$, $E_{\text{nl}} = 6.5 \times 10^{-5}/\text{W}$)得到的理论拟合曲线^[19]。在 4 W 的 637.2 nm 红光注入条件下,可得到 2.26 W 的 318.6 nm 紫外激光输出,倍频转化效率约 56.5%

Fig. 5 318.6 nm UV laser output and doubling efficiency vary with the incident 637.2 nm laser power^[19]. Squares are the experimental data, while the circles are the theoretical results with the parameters $T_1 = 2.2\%$, $L_{\text{cav}} = 0.67\%$, and $E_{\text{nl}} = 6.5 \times 10^{-5}/\text{W}$. The 2.26 W output power for 318.6 nm UV laser is obtained by tuning the power of 637.2 nm laser to 4 W. The efficiency of SHG is 56.5%

方案。充分利用光纤放大器增益带宽非常宽的特性,将 PDH 射频边带调制锁腔所需的射频调制加载到和频过程之前的 1 560.5 nm 波长的基频种子光上,产生的射频调制边带通过掺铒光纤放大器及和频过程,可有效地转移至 637.2 nm 红光上,间接地实现了采用传统集成光波导电光位相调制器对瓦级红光的射频边带调制,进而实现了倍频腔的锁定。经过精确的模式匹配以及准确调节晶体的相位匹配角后,在 4 W 的 637.2 nm 红光注入条件下,可得到 2.26 W 的 318.6 nm 紫外激光输出,倍频转化效率约 56.5%,实验结果如图 5 所示。通过观察实验过程发现,318.6 nm 紫外激光功率进一步提高的主要限制因素是高功率和频过程中 PPMgO:LN 晶体中的热透镜效应,使得 637.2 nm 和频光光斑大小发生变化,所以耦合到倍频腔内的腰斑大小逐渐偏离倍频腔的最佳匹配

腰斑,最终导致倍频腔的模式匹配效率下降。因此,在高功率红光注入时,换用不同的透镜或者透镜组,重新对倍频腔进行模式匹配,模式匹配效率可以得到进一步提高。

我们对倍频生成的高功率 318.6 nm 紫外激光的光束质量、稳定性以及频率连续调谐范围等特性进行了表征和评价^[19]。仔细优化伺服环路参数后,使用紫外波段探测器对输出功率为 1.2 W 的紫外激光功率起伏进行监视,结果如图 6 所示。30 分钟内方均根起伏小于 0.87%,结果表明所选用的锁腔方案非常可靠。为了改善热稳定性,测量过程中 BBO 晶体保持控温。残余的功率起伏主要来源于光纤放大器偏振的变化,此变化归因于环境温度的变化和实验室气流的扰动。由于 BBO 晶体有较大的走离角,使得倍频生成的紫外光斑呈扁椭圆形状,经过柱透镜及整形棱镜对进行光斑整形后,空间模式为较好的 TEM_{00} 模, X 和 Y 两个方向的 M^2 因子分别为 1.16 和 1.48,如图 7 所示。紫外激光的单频特性以及频率连续调谐范围由 637.2 nm 激光的相应特性以及倍频腔的锁定性能共同决定。实验中使用光学 F-P 腔频谱分析技术对 318.6 nm 紫外激光的单频特性以及频率调谐特性进行了评价^[19]。结果表明,得到的高功率 318.6 nm 紫外激光为单纵模。此外,估计紫外激光的线宽小于 10 kHz。

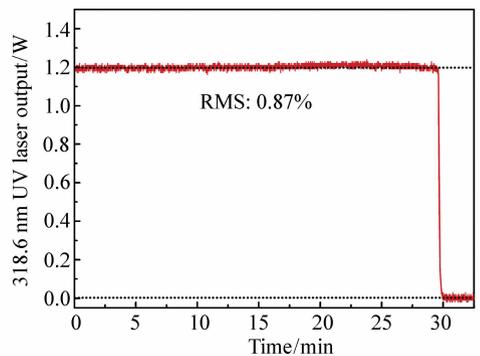


图 6 30 分钟内 318.6 nm 紫外激光在 1.2 W 输出功率下的稳定性结果^[19]。典型均方根(RMS)起伏小于 0.87%

Fig. 6 Power stability of the 318.6 nm UV laser output at 1.2 W over 30 min^[19]. The typical RMS fluctuation is less than 0.87%

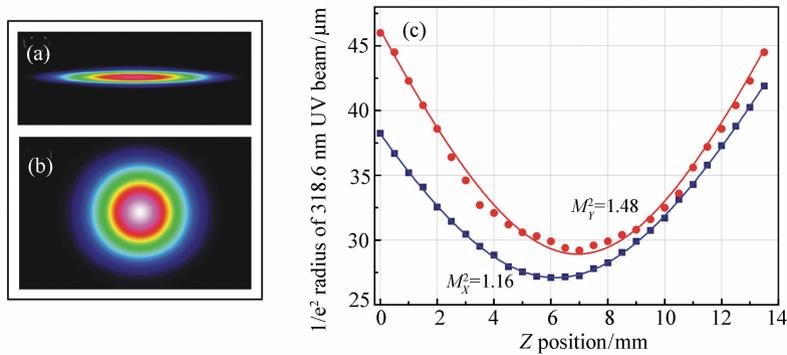


图7 318.6 nm 输出激光的光斑截面和 M^2 因子^[19]。左图为整形前(a)和整形后(b)紫外激光光斑截面图;(c)为水平和垂直两方向的光束质量因子 M_x^2 (方块点)和 M_y^2 (圆点)

Fig. 7 Beam profile and the M^2 factors for the 318.6 nm laser output^[19]. The left pictures show the UV laser spot profiles (a) before and (b) after shaping. (c)The measured beam quality factors M_x^2 (squares) and M_y^2 (circles)

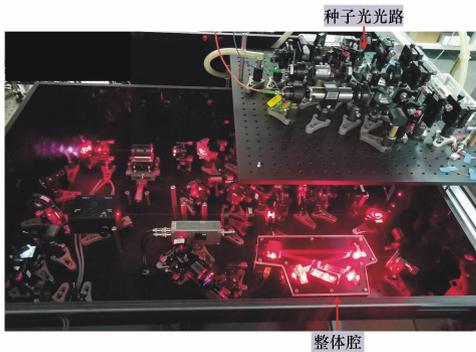


图8 紫外激光系统实物图,右上角为种子光光路(光纤激光器和光纤放大器没有显示在图中)。将各光学元件整合到700 mm×1 000 mm的铝板上,并将整个光路系统罩起来,起到了一定的隔振和防尘效果,使得整个激光系统的机械稳定性得到了明显改善

Fig. 8 The ultraviolet laser system prototype. Upper right corner for seed light path (fiber lasers and fiber amplifiers are not shown in the figure). Most of optical elements are integrated on the aluminum plate of 700 mm × 1 000 mm, and the whole optical path is covered by perspex plates, which play a certain sound insulation and dust prevention effect, and the mechanical stability of the whole laser system has been significantly improved

318.6 nm 紫外激光系统的机械稳定性对紫外激光的长期稳定运转至关重要。因此,对整个

紫外激光系统的光路做了优化设计(图8),将各光学元件整合到一张700 mm×1 000 mm的铝板上,并将整个光路及铝板罩在亚克力板制作的隔热防尘罩内,起到了一定的隔振和防尘效果,使得整个激光系统的机械稳定性得到了明显改善。在此基础上,为了提高由于光学镜架的机械不稳定性带来的紫外激光输出功率的起伏,对倍频腔进行了整体化腔体的设计,在很大程度上也改善了倍频腔的机械稳定性。此外,由于实验过程中637.2 nm红光内腔循环功率很高,此时BBO晶体内部的热稳定性将对倍频腔的锁定以及输出紫外激光的功率稳定性产生巨大影响。实验中将倍频的BBO晶体侧面做光学抛光处理后对其进行精确控温。这有助于紫外光产生过程中晶体热效应的改善,而且室温以上的控温又可以防止晶体潮解对其使用寿命的影响。目前,该系统可以在保证输出功率不变的条件下,长时间稳定运转。

3.3 窄线宽318.6nm紫外激光频率稳定与调谐

为了保证激光频率的稳定,通常将激光频率锁定到光学腔或者原子分子谱线。相比于原子分子谱线,光学超稳腔可以实现包括非原子跃迁谱线激光频率的稳定,并且锁定后的激光系统有很高的频率稳定度。因此,选择光学超稳腔作为频率标准。在实验上完成了高精度度双波长可控温的光学超稳腔系统以及真空腔体的组装及调试,以及采用干泵+分子泵+离子泵组成的全无油超高真空泵组对真空腔体抽真空。此参考腔为两镜

球形 F-P 腔,由一片平面镜和一片曲率半径为 500 mm 的平凹镜组成。腔镜和腔体均由低膨胀系数的 ULE 玻璃材料制成。腔镜镀有 1 560.5 nm 和 637.2 nm 波段的高反膜,腔长约为 47.6 mm。F-P 腔体置于热辐射屏蔽罩内并整体放置于有温控的超高真空腔体内。为了保证腔体内部温度均匀,通过主动控温的方式将腔体控于零膨胀系数点。实验中使用一台抽速为 8 L/s 的离子泵将真空腔体内压力维持于 $\sim 4 \times 10^{-7}$ Pa。

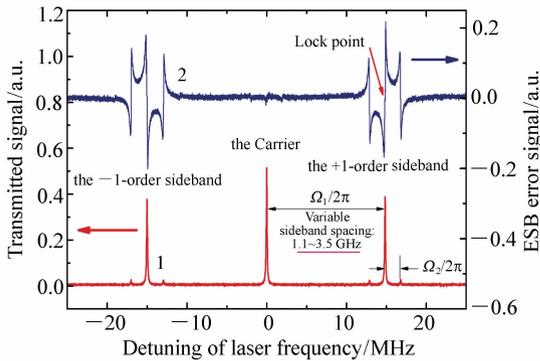


图 9 锁定 1 560.5 nm 激光频率,扫描 1 076.9 nm 激光频率,可得到经位相调制后的 637.2 nm 激光的腔透射信号(曲线 1),曲线(2)为对应的电子学边带误差信号^[20]。其中,调制频率 $\Omega_1/2\pi$ 和 $\Omega_2/2\pi$ 分别为 15 MHz 和 2 MHz,对应射频功率分别为 14 dBm 和 10 dBm

Fig. 9 Transmitted signal of the phase-modulated 637.2 nm laser (curve 1) incident on the cavity. It is obtained by sweeping the carrier frequency of the 1 076.9 nm laser while the 1 560.5 nm laser remains locked^[20]. The curve 2 represents the corresponding ESB error signal. Here, $\Omega_1/2\pi$ and $\Omega_2/2\pi$ are equal to 15 MHz and 2 MHz with RF power consumptions of 14 dBm and 10 dBm, respectively

将 1 560.5 nm 红外激光注入超稳腔进行了模式匹配,用边带标定的方法分别测量了超稳腔的自由光谱区(3.145 GHz)、腔线宽(92 kHz@ 1 560.5 nm)和精细度(3.4×10^4 @ 1 560.5 nm),利用 PDH 射频调制边带稳频技术对 1 560.5 nm 光纤激光器实现了频率稳定。采用同样的方案,将 637.2 nm 激光也注入超稳腔,进行模式匹配以

及腔线宽(105 kHz@ 637.2 nm)和精细度(3.0×10^4 @ 637.2 nm)的测量。经电子学边带(ESB)稳频技术反馈到 1 076.9 nm 光纤激光器的 PZT 端口对其进行稳频。从而实现整个 318.6 nm 紫外激光系统的频率稳定。

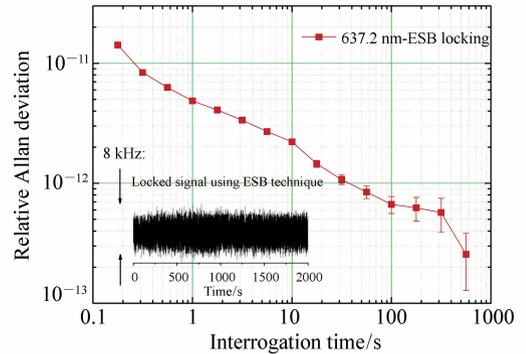


图 10 经电子学边带技术锁定后 637.2 nm 激光的相对阿伦方差,反映了激光锁定后的频率不稳定性^[20]。插图显示锁定 30 分钟内的频率起伏为 ~ 8 kHz

Fig. 10 Relative Allan standard deviation plots show the relative frequency instability of the 637.2 nm laser using the ESB (squares) locking technique^[20]. The inset is a trace of the ESB error signal when the 637.2 nm light is offset-locked. The residual fluctuation is about 8 kHz in 30 min

对于后续应用,由于铯原子里德堡态的寿命较长,能级自然线宽很窄,并且相邻里德堡态的能级间隔也很小。因此,若想激发到特定的里德堡态,要求 318.6 nm 紫外激光有很高的频率稳定度和较宽的频率连续调谐范围。实验中通过控制两基频光 1 560.5 nm 和 1 076.9 nm 的频率来实现紫外光频率的稳定和调谐。通常的紫外光谱实验,如果将 1 560.5 nm 激光器通过 PDH 射频调制边带稳频技术锁定到超稳腔上,调谐 1 076.9 nm 激光,则保持倍频腔锁定可实现 318.6 nm 大于 6 GHz 的频率调谐范围^[19]。但这种调谐方法的缺点在于激光频率在调谐过程中不是很稳定。为了得到一套频率稳定且可连续可调谐的 318.6 nm 紫外激光系统,将 1 076.9 nm 激光借助 637.2 nm 红光使用电子学边带方法也锁定到

超稳腔上。该方法与 PDH 稳频技术的不同之处在于:激光载频所加的调制边带本身也携带有调制,图 9 是经位相调制后的 637.2 nm 激光的腔透射信号(曲线 1),曲线(2)为对应的电子学边带误差信号。此方法的优点在于,激光频率在保持锁定的同时可以实现连续调谐。图 10 是经电子学边带锁定后激光的频率稳定性,得到 30 分钟内红

光的锁定起伏为 ~ 8 kHz,对应 318.6 nm 紫外激光的频率起伏约为 16 kHz。在保持整个系统锁定的条件下,通过改变电光位相调制器所加的调制频率,得到 637.2 nm 红光和 318.6 nm 紫外激光相对于超稳腔锁定后的频率连续调谐范围分别大于 1.95 GHz 和 4 GHz,如图 11 所示。

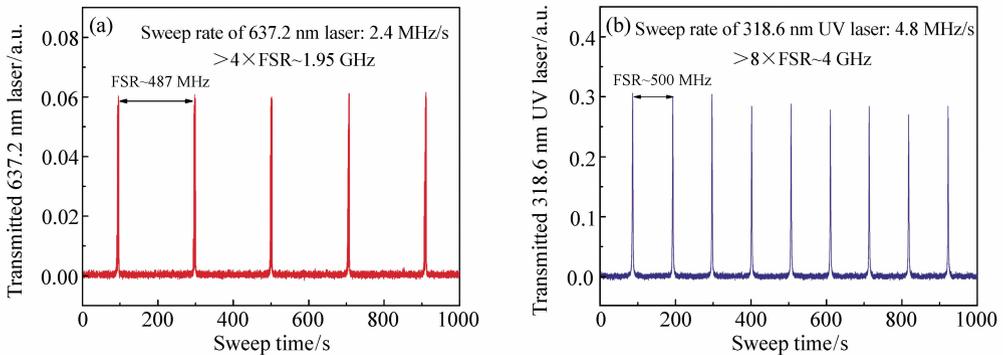


图 11 1 560.5 nm 和 1 076.9 nm 激光频率分别通过 PDH 和 ESB 技术锁定到超稳腔上^[20]。在保持倍频腔锁定的条件下,改变 EOPM-2 所加调制频率,637.2 nm 载频可连续调谐 1.95 GHz(a),同时 318.6 nm 紫外激光调谐至少 4 GHz(b)。两激光的调谐范围通过两自由光谱区分别为 ~ 487 MHz 和 ~ 500 MHz 的光学腔测得。

Fig. 11 The 1 560.5 and 1076.9 nm lasers are locked to the ULE cavity using the PDH and ESB methods^[20], respectively. By changing the modulation frequency of the EOPM-2, (a) the carrier frequency of the 637.2 nm red light is continuously tuned over 1.95 GHz; (b) Simultaneously, the 318.6 nm UV laser is tuned over 4 GHz under the condition of the doubling cavity also remains locked. The tuning ranges of the two lasers are monitored by an optical cavity with a FSR of ~ 487 and 500 MHz, respectively.

4 铯原子 318.6 nm 单光子跃迁里德堡激发

利用得到的高功率窄线宽连续可调谐 318.6 nm 紫外激光系统,在热原子气泡和冷原子磁光阱中实现了铯原子单光子跃迁里德堡激发,并对相关问题做了以下几方面的研究。

4.1 热原子气室中的铯原子单光子跃迁里德堡激发

里德堡原子的光学探测不同于第一激发态原子的探测。里德堡原子极低的跃迁几率和很小的光子散射截面导致其信号很弱。为了增强里德堡原子激发信号,实验中采用了一种变通的探测方式。通过探测共振于铯原子 $6S_{1/2}(F=4) \rightarrow 6P_{3/2}$

($F'=5$) 跃迁线的 852.3 nm 探测光透射信号的增强来间接探测单步里德堡激发信号。图 12(a) 是一个 V 型三能级系统与两光场相互作用示意图,其中三能级由基态 $|c\rangle(6S_{1/2})$ 、激发态 $|b\rangle(6P_{3/2})$ 和里德堡态 $|a\rangle(nP_{3/2})$ 组成。相比于第一激发态,里德堡态 $nP_{3/2}(n=70 \sim 100)$ 的寿命很长($\sim 100 \mu\text{s}$)^[4]。当 318.6 nm 激光频率扫描过某一里德堡跃迁线时,部分布居于基态 $6S_{1/2}$ 的原子将会被转移到长寿命的里德堡态,导致 852.3 nm 探测光与原子相互作用后的透射信号增强。

室温铯原子气室单步里德堡激发实验装置如图 12(b) 所示。852.3 nm 探测光由一台分布布拉格反射式(DBR)半导体激光器提供。输出激光经隔离器(OI)后分成两束,一束通过偏振光谱技术(PS)将激光频率锁定到铯原子 $6S_{1/2}(F=4)$

$\rightarrow 6P_{3/2} (F' = 5)$ 循环跃迁线上, 另一束耦合进 852.3 nm 波导型 EOPM, 用来标定激发光谱频率间隔。318.6 nm 耦合光调谐到里德堡跃迁线 $6S_{1/2} (F = 4) \rightarrow nP_{3/2} (n = 70 \sim 100)$ 附近, 对应调谐范围为 318.5 ~ 318.7 nm。耦合光和探测光光斑直径分别为 ~ 1.6 mm 和 ~ 1.3 mm ($1/e^2$) 的近平行光, 两光束均为线偏振光。探测光在进入 10 cm 长石英铯原子气室前分成功率相等的两束, 其中一束通过双色镜与 318.6 nm 耦合光重合穿过铯泡, 双色片对 318.6 nm 高反, 对 852.3 nm 高透。为了减少周围环境磁场的影响, 铯原子气室置于磁屏蔽筒内 (剩磁 < 10 nT)。激光穿过原子气室后经另一块双色片分束, 使用差分探测器 (DPD) 对 852.3 nm 激光的透射信号进行探测。

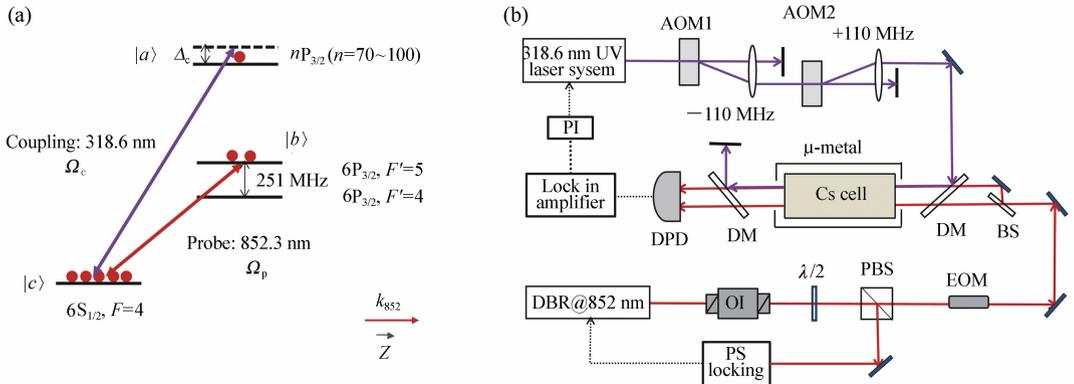


图 12 (a) Cs 原子单步里德堡激发相关能级图^[21]。852.3 nm 探测光共振于 $6S_{1/2} (F = 4) \rightarrow 6P_{3/2} (F' = 5)$, 318.6 nm 耦合光在 $6S_{1/2} (F = 4) \rightarrow nP_{3/2}$ 跃迁线附近扫描; (b) 实验装置图。318.6 nm 耦合光与 852.3 nm 探测光同向穿过长度为 10 cm 的 Cs 原子气室

Fig. 12 (a) Relevant hyperfine levels for Cs atomic single-photon Rydberg excitation^[21]. The 852.3 nm probe laser is resonant on the transition $6S_{1/2} (F = 4) \rightarrow 6P_{3/2} (F' = 5)$, and the 318.6 nm coupling laser is scanned over the Rydberg transition $6S_{1/2} (F = 4) \rightarrow nP_{3/2}$. (b) Schematic of the experimental setup. The 318.6 nm coupling laser co-propagating with the 852.3 nm probe laser in a 10-cm-long Cs vapor cell

当 852.3 nm 探测光锁定到 $6S_{1/2} (F = 4) \rightarrow 6P_{3/2} (F' = 5)$ 循环线, 318.6 nm 耦合光扫描过 $6S_{1/2} (F = 4) \rightarrow 71P_{3/2}$ 跃迁线时, $71P_{3/2}$ 态的单步里德堡激发光谱如图 13 (a) 所示。当紫外激光与 $71P_{3/2}$ 态共振频率零失谐时, 光谱中出现一个小峰。分析可知, 零失谐处透射峰来源于速度分量为 $v_z = 0$ m/s 的原子群, 而小峰则由速度分量为 $v_z = 213.9$ m/s 原子群的多普勒效应所导致的 $6S_{1/2} (F = 4) \rightarrow 6P_{3/2} (F' = 4)$ 共振跃迁产生。为了

当紫外激光扫过某一里德堡跃迁线时, 部分原子会被激发到里德堡态, 与耦合光重合的那束探测光的透射信号会因吸收减弱而被探测到。耦合光频率由高精度波长计校准。探测器输出信号经锁相放大器解调获得误差信号。误差信号经过比例积分放大器 (PI) 反馈回 1 076.9 nm 激光器的 PZT 端口来补偿其频率偏差。频率调制信号由 318.6 nm 耦合光光路中的紫外 AOM2 提供。锁相放大器输出的调制信号与 110 MHz 中心频率相加后经功率放大作为 AOM2 的信号源。两 AOM 配合使用可以补偿单个 AOM 带来的频移, 从而确保紫外激光可以准确锁定到目标里德堡跃迁线。

进一步证明激发信号透射峰来源于多普勒速度选择带来的超精细光谱分裂而不是 nP 里德堡态的精细结构分裂^[25], 我们使用波长计测量了主量子数 n 在 70 到 100 之间变化时两透射峰之间的频率间隔。测量结果表明紫外激光失谐量为常数 ~ 670 MHz, 而且其并不随主量子数的增加而增大。此外, 由于 $nP_{1/2}$ 态单步激发振子强度比 $nP_{3/2}$ 小将近 4 个数量级^[7], 光谱中未能同时观察到。

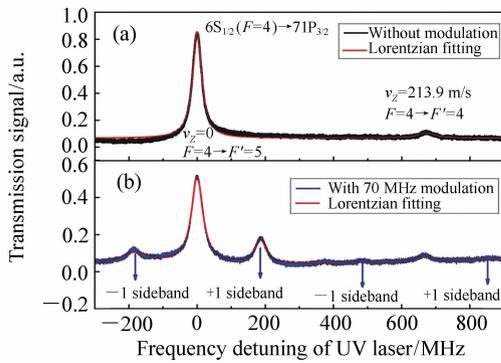


图 13 (a) 852.3 nm 探测光锁定到 $6S_{1/2} (F=4) \rightarrow 6P_{3/2} (F'=5)$ 循环线上时, Cs 原子 $6S_{1/2} (F=4) \rightarrow 71P_{3/2}$ 里德堡激发光谱。耦合光和探测光的 Rabi 频率分别为 ~ 0.30 MHz 和 ~ 8.53 MHz。(b) 852.3 nm 探测光加 70 MHz 射频频率调制时, 里德堡光谱边带标定结果, 考虑多普勒因子 $\lambda_p/\lambda_c \approx 2.675$, 观察到的光谱超精细分裂间隔为 ~ 671 MHz。红色曲线(2)为多峰 Lorentz 拟合^[21]

Fig. 13 (a) The excitation spectra of $6S_{1/2} (F=4) \rightarrow 71P_{3/2}$ Rydberg transition in a Cs vapor cell when the 852.3 nm probe laser is locked to Cs $6S_{1/2} (F=4) \rightarrow 6P_{3/2} (F'=5)$ cycling transition. The Rabi frequencies of coupling and probe beams are ~ 0.30 and ~ 8.53 MHz, respectively. (b) Sideband calibration result with a frequency modulation of 70 MHz for 852.3 nm probe laser, considering the Doppler factor of $\lambda_p/\lambda_c \approx 2.675$, the observed hyperfine interval becomes 671 MHz. Red curve (2) is a multi-peak Lorentzian fitting^[21]

4.2 A-T 分裂

A-T 分裂^[26]和电磁诱导透明 (Electromagnetically Induced Transparency, EIT) 是两种典型的量子干涉效应^[27-28], 长期以来人们在理论和实验方面对其进行了大量的研究。该效应可用于研究多种物理现象, 例如光速减慢^[29]、四波混频^[30]、自旋轨道作用增强^[31]以及里德堡态的退相干率^[32]。早期实验研究主要集中于热原子气室, 但是, 由于受室温气室中原子热运动的影响, 光谱信号携带明显的多普勒背景。冷原子系统是研究此类量子干涉效应的一种理想介质^[33], 但是光学系

统的复杂性导致其无法得到广泛的应用。目前, 基于里德堡原子量子干涉效应的应用大多选用热原子气室^[34]。

实验中将 852.3 nm 探测光锁定于 $6S_{1/2} (F=4) \rightarrow 6P_{3/2} (F'=3)$ 跃迁线, 扫描 318.6 nm 紫外激光频率, 在一定的耦合光强下, 发现单步里德堡光谱出现了显著的 A-T 分裂, 如图 14 所示。使用直观的缀饰原子理论可以解释分裂背后的物理过程^[34]。当强耦合场作用于静态二能级原子系统时, 原子的哈密顿量改变, 出现新的两个本征态, 每个本征态由原来的两个本征态构成, 本征值不同, 能级发生移动, 达到了激光缀饰原子的目的。缀饰原子的吸收光谱将在缀饰态的位置分成两个峰, 即为 A-T 分裂。V 型三能级系统的 A-T 分裂的理论模型与 Λ 型和阶梯型系统的类似^[35], 文献[22]中做了详细的讨论。图 14 为固定探测光功率时, 不同耦合光光强下的 A-T 分裂。该吸收峰为原子对应 $6S_{1/2} (F=4) \rightarrow 6P_{3/2} (F'=3)$ 跃迁吸收减弱得到的信号。由图 14 可知, 随着耦合光增强, A-T 分裂间隔变大, 双峰线宽加宽。

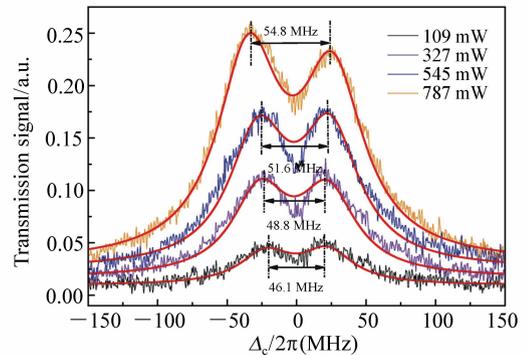


图 14 探测光锁定到 $6S_{1/2} (F=4) \rightarrow 6P_{3/2} (F'=3)$ 跃迁线时, 在不同耦合光功率下, A-T 分裂光谱随探测光失谐量的变化情况^[22]

Fig. 14 The A-T splitting spectra vary with the amount of detuning of detected light at different coupling intensities. The probe light is locked to the hyperfine transition of $6S_{1/2} (F=4) \rightarrow 6P_{3/2} (F'=3)$ ^[22]

以里德堡光谱中 $(F=4) \rightarrow (F'=3)$ 超精细跃迁为例, 图 15 给出了 $(F=4) \rightarrow (F'=3)$ 吸收信号

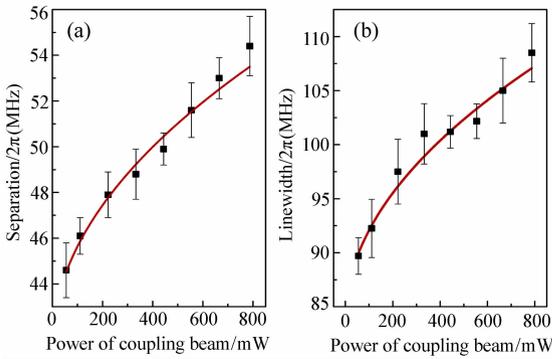


图 15 A-T 双峰间隔(a)和线宽(b)随耦合光功率的变化^[22]

Fig. 15 The separation (a) and linewidth (b) of the A-T doublet of single-photon Rydberg spectra as a function of the coupling beam power^[22]

A-T 分裂双峰间隔 (a) 和线宽 (b) 随耦合光光强的变化情况。由图 15 可知, 实验数据和理论计算符合的较好。从图 15(b) 中的拟合结果, 推知耦合光强为零时, 对应线宽为 84 MHz。这来源于其它展宽因素的贡献, 主要包括探测光的功率展宽、自然加宽、探测光与耦合光在气室中不完全重合带来的展宽、磁场展宽以及碰撞展宽等。

这部分实验为下一步构建 Rydberg 缀饰铯原子磁光阱提供了可能。该磁光阱结合了激光冷却与 Rydberg 原子间可控的强相互作用, 使得 Rydberg 缀饰原子基态既具有 Rydberg 原子的很大的电极化率和 Rydberg 原子间强的相互作用, 同时又具有基态原子很长的相干时间。在实验研究拓扑量子磁性、超固态、自旋压缩增强的量子计量等方面具有重要的价值。

4.3 铯冷原子系综中单光子跃迁 Rydberg 激发的实验实现

在大多数 Rydberg 激发实验中, 人们采用离子探测方案来获得 Rydberg 激发信号。虽然离子探测方案有较高的效率和探测灵敏度, 然而被探测的原子在电离后被破坏, 不能被重复使用。对于涉及到量子信息方面的应用来说, Rydberg 态的非破坏性探测是很重要的。因此, 实验上采用了纯光学探测方案, 即俘获损耗 (Trap-loss) 光谱技术, 来获得铯冷原子磁光阱中单光子跃迁 Rydberg 激发信号。首先制备了典型的铯原子数约为

7×10^9 个、原子数密度约为 $5 \times 10^{10} \text{ cm}^{-3}$ 的冷原子样品。实验中, 将紫外 318.6 nm 耦合光 (光斑直径 $\sim 2.4 \text{ mm}$) 通过电子学边带锁频的方案锁定到铯原子 $6S_{1/2} (F=4) \rightarrow nP_{3/2}$ 共振跃迁线上, 然后改变集成光波导型电光相位调制器上所加的调制频率, 以实现紫外激光的频率调谐。最后通过由电脑控制的数字 CCD 相机观察磁光阱中铯冷原子的荧光损耗^[23], 得到的铯原子单光子 Rydberg 激发光谱如图 16 所示。

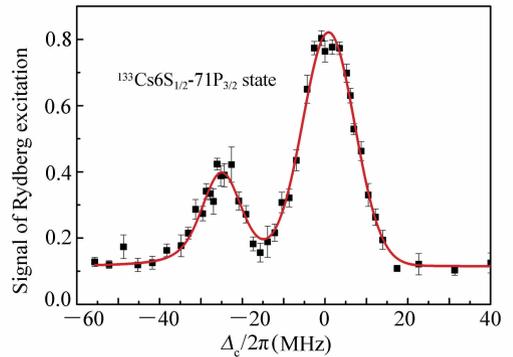


图 16 在铯冷原子磁光阱中, 利用俘获损耗光谱观察到的 Cs $6S_{1/2} (F=4) \rightarrow 71P_{3/2}$ 单光子跃迁的 Rydberg 发光谱。两个峰是由于冷却光未关断导致的 Autler-Townes 分裂^[23]

Fig. 16 In the cesium atom magneto-optical, Rydberg spectroscopy of Cs $6S_{1/2} (F=4) \rightarrow 71P_{3/2}$ single-photon transition observed by capture loss spectrum. Two peaks appeared in spectrum are due to the Autler-Townes splitting that caused by the cooling laser beams^[23]

由于铯原子磁光阱无法俘获里德堡态原子, 因此里德堡态的激发会导致原子从阱中丢失。针对这一问题, 本文采用测量精度较高的 Trap-loss 光谱方法, 通过直接测量 UV 激光与原子共振时导致的冷原子云荧光变化来判断里德堡原子的激发情况。整个测量过程保证 CCD 不饱和。经分析, 连续紫外激光激发过程中, 磁光阱荧光信号的减弱原因主要有 3 个: 一是原子被激发到 Rydberg 态而从阱中逃逸, 导致基态原子数减少, 荧光信号减弱; 二是激发光的辐射压力将原子推出阱外, 但是, 由于 318.6 nm 激光束的辐射压力导致的荧光减弱比例非常小; 三是紫外激光导致铯原子发生

光电离。

图 16 中 $71P_{3/2}$ 态的 Trap-loss 光谱中的两个峰来源于基态 $6S_{1/2}$ ($F=4$) 的 A-T 分裂。原因是激发过程中冷却光未关断,当冷却光较强时, MOT 中的冷原子与冷却光光场之间产生了较强的耦合,由于冷却光的 Rabi 频率远大于激发态自然线宽,因此,冷原子云的里德堡激发光谱中出现了 A-T 双峰结构。实验中测量了 $71P_{3/2}$ 里德堡态的 Trap-loss 光谱, A-T 双峰的线宽和分裂间距基本不随耦合光 Rabi 频率的增加而加宽^[23]。这进一步证明实验中出现的 A-T 双峰是由于冷却光较强造成铯原子基态发生了缀饰分裂,分裂间距的实验测量值为 25.1(2) MHz,和理论计算值 25.2 MHz 基本一致。所获得的光谱线宽较宽的原因主要有冷却光功率展宽、磁场展宽以及里德堡原子相互作用展宽的影响。Singer 等人对冷原子系综里德堡光谱展宽机制进行过详细的实验研究^[36]。

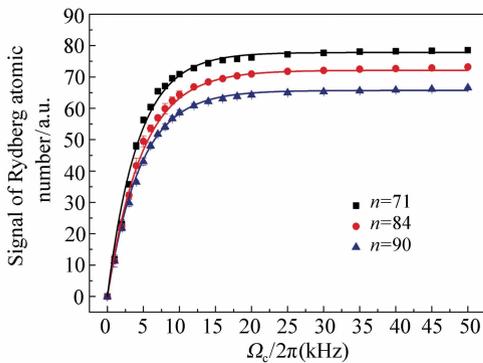


图 17 不同主量子数 n (71、84、90) 的铯原子里德堡态 $nP_{3/2}$ 激发信号随紫外激光 Rabi 频率的变化情况

Fig. 17 Rydberg state $nP_{3/2}$ excitation signals with different principal quantum numbers n (71, 84, 90) vary with Rabi frequency of ultraviolet laser

由于冷原子高度局域化的特性,使得磁光阱中占据空间某一区域的原子在强的里德堡相互作用下,有且仅有一个原子被激发到高里德堡态,进一步的激发由于能级频移导致激发光的共振频率超出激光线宽而被阻塞。距离为 R 的 nP 态里德

堡原子间的相互作用主要是长程范德瓦尔斯相互作用 (C_6/R^6)^[37-38]。观察了不同主量子数 ($n=71, 84, 90$) 下,冷原子系综中单光子里德堡激发抑制情况。实验中紫外连续激光通过电子学边带的方案锁定到 $6S_{1/2} \rightarrow nP_{3/2}$ ($n=71, 84, 90$) 共振跃迁线上。图 17 为紫外光共振激发条件下, MOT 中里德堡原子激发比例随紫外光 Rabi 频率的变化情况。从图 17 可以看出,激发到里德堡态的原子比例随紫外激光 Rabi 频率的增加而增加,并在 10 kHz 后趋于饱和,即被激发到里德堡态的原子数趋于饱和。该饱和趋势是里德堡原子之间强的长程相互作用导致的局部激发阻塞的结果,并且主量子数越大,激发阻塞现象越明显。

4.4 基于铯里德堡冷原子系综实现直流背景电场的测量

相比于基态和低激发态原子,高激发态 Rydberg 原子由于其特殊的结构而具有一系列特殊的性质,并且这些性质与有效主量子数 n^* 有着密切的关系,例如,大的电极化率 ($\sim n^{*7}$),微波跃迁偶极矩矩阵元 ($\sim n^{*2}$),以及低的场电离阈值 ($\sim n^{*-4}$),这使得里德堡原子对外界电场环境非常敏感^[1]。相比于其他传统的电场测量方法,由于原子性质的不变性,基于原子的电场测量方法不需要校准,并且在分辨率、测量精度和复现性方面有着明显优势。基于实验上获得的铯冷原子中的单光子 Rydberg 激发光谱,利用 Rydberg 原子大的电极化率对冷原子位置处的背景直流电场进行了测量。

图 18 为 $nP_{3/2}$ 里德堡态主量子数分别取 84、90、95 和 100 时,冷原子荧光损耗光谱。方块为实验数据,实线为多峰 Voigt 函数拟合结果。从图 16 中 $71P_{3/2}$ 态的 Trap-loss 光谱可以看出,在零失谐附近光谱发生 A-T 分裂。随着主量子数 n 的进一步增大,在 A-T 双峰的每一个子峰上又出现两个小峰 ($84P_{3/2}$)。这个 A-T 双峰的再次分裂主要是由于背景直流电场导致的 Stark 分裂,并且这两个小峰的间距随着主量子数 n 的增大而增加 ($90P_{3/2}$ 、 $95P_{3/2}$ 、 $100P_{3/2}$)。我们理论分析了 Stark 分裂和频移对主量子数 n 和背景直流电场的依赖

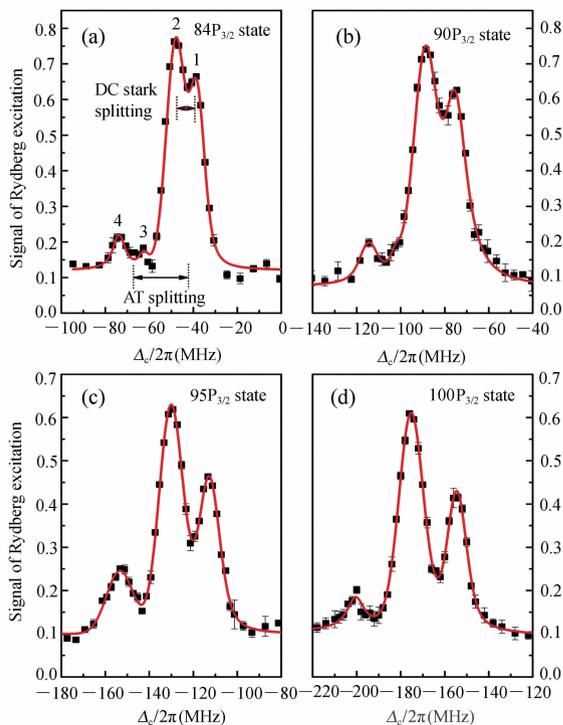


图 18 不同主量子数下,磁光阱荧光强度随紫外激光失谐量的变化关系^[23]。图(a)、(b)、(c)和(d)分别对应于 $84P_{3/2}$ 、 $90P_{3/2}$ 、 $95P_{3/2}$ 和 $100P_{3/2}$ 里德堡态激发信号。方块为实验数据,实线为多峰 Voigt 函数拟合

Fig. 18 Fluorescence intensities of magneto-optical trap change with the detuning of UV laser ($n = 84, 90, 95$ and 100 Rydberg states for figure (a), (b), (c) and (d), respectively^[23]). The squares are experimental data, and line is fitting results by the multi-peak Voigt function

关系^[23]。实验上测量了不同主量子数的铯原子 Rydberg 态在背景直流电场作用下的 Stark 分裂。将测量的 Stark 分裂结果与理论计算对比后^[23],推断出背景直流电场约为 (44.8 ± 0.4) mV/cm。图 19 为用不同里德堡态测量背景电场的结果。误差主要来源于背景电场的起伏。由上可知,高激发态 Rydberg 原子可以作为传感器,利用直流电场导致的 Rydberg 光谱的 Stark 分裂,可以用于测量背景直流电场。这使得 Rydberg 原子在量子信息、量子计量和多体物理模拟等方面具有重要的应用前景。

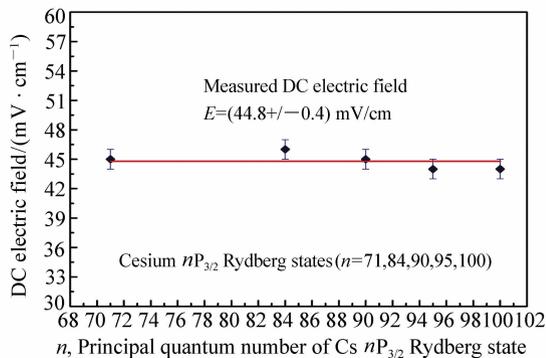


图 19 利用高激发态(主量子数 $n = 71, 84, 90, 95$ 和 100)里德堡原子测量背景直流电场的结果^[23]

Fig. 19 Background DC electric field sensed by highly-excited cesium $nP_{3/2}$ ($n = 71, 84, 90, 95$ and 100) Rydberg states^[23]. The error bars are obtained by fitting the Stark map of each Rydberg state. The line represents the average value for experimental data (diamond cube)

5 总束语

高激发态里德堡原子的特殊性质使得里德堡原子在量子信息和量子计算领域成为热门研究课题。经过十几年的发展,理论和实验研究均表明里德堡原子在量子信息处理、量子纠缠和量子逻辑门以及单光子源的制备和精密测量等方面均具有重要的应用价值。单步里德堡激发作为一种优势显著的里德堡原子制备方式,对提高量子纠缠态保真度有非常大的潜力。本课题组采用先进的光纤激光技术、光纤放大技术和高效的非线性频率转换技术,经过先和频后倍频的方式获得了高功率窄线宽可大范围连续调谐的 318.6 nm 紫外激光。在基波 637.2 nm 功率为 4 W 时,获得了最大为 2.26 W 倍频紫外激光输出。最大倍频转化效率为 57.3%。紫外激光在 1.2 W 输出功率时,30 分钟内典型方均根功率起伏小于 0.87%。光斑在两垂直方向 M^2 因子分别为 1.16 和 1.48。采用电子学边带技术将紫外激光系统的频率锁定到超稳腔,当整个紫外激光系统保持锁定时,获得了频率稳定且连续调谐范围大于 4 GHz 的紫外激光源。使用 318.6 nm 紫外激光作为激发光,采用纯

全光探测方案,在室温热原子气室和冷原子系综中实现了 Cs 原子基态 $6S_{1/2}$ 到 $nP_{3/2}$ ($n = 70 \sim 100$) 态的单步里德堡激发。观察到了连续光激发模式下的里德堡激发阻塞效应、A-T 分裂和 Stark 效应。

参考文献:

- [1] GALLAGHER T F. *Rydberg Atoms*[M]. Cambridge:Cambridge University Press,1994.
- [2] PONOMARENKO D V,SHESTAKOV A F. Polarizabilities of ns and np Rydberg states of the Li atom[J]. *Chemical Physics Letters*,1993,210(1-3):269-273.
- [3] BALUKTSIAN T,HUBER B,LÖW R,*et al.*. Evidence for strong van der Waals type Rydberg-Rydberg interaction in a thermal vapor[J]. *Physical Review Letters*,2013,110(12):123001.
- [4] SAFFMAN M,WALKER T G,MØLMER K. Quantum information with Rydberg atoms[J]. *Reviews of Modern Physics*,2010,82(3):2313-2363.
- [5] MÜLLER M,LESANOVSKY I,WEIMER H,*et al.*. Mesoscopic Rydberg gate based on electromagnetically induced transparency[J]. *Physical Review Letters*,2009,102(17):170502.
- [6] SEDLACEK J A,SCHWETTMANN A,KÜBLER H,*et al.*. Microwave electrometry with Rydberg atoms in a vapour cell using bright atomic resonances[J]. *Nature Physics*,2012,8(11):819-824.
- [7] HANKIN A M,JAU Y Y,PARAZZOLI L P,*et al.*. Two-atom Rydberg blockade using direct $6S$ to nP excitation[J]. *Physical Review A*,2014,89(3):033416.
- [8] TONG D,FAROOQI S M,STANOJEVIC J,*et al.*. Local blockade of Rydberg excitation in an ultracold gas[J]. *Physical Review Letters*,2004,93(6):063001.
- [9] ZHANG H,WANG L M,ZHANG L J,*et al.*. Stark-induced L-mixing interferences in ultracold cesium Rydberg atoms[J]. *Physical Review A*,2013,87(3):033405.
- [10] 王丽,张好,张临杰. 超冷里德堡原子的俘获损耗光谱[J]. 量子光学学报,2018,24(2):178-183.
WANG L,ZHANG H,ZHANG L J. Trap loss spectroscopy of ultracold cesium Rydberg atoms[J]. *Journal of Quantum Optics*,2018,24(2):178-183. (in Chinese)
- [11] 韩小莹,焦月春,赵建明. ns6s 里德堡分子的势能曲线[J]. 量子光学学报,2017,23(1):46-51.
HAN X X,JIAO Y CH,ZHAO J M. Potential of long-range ns6s Rydberg molecule[J]. *Journal of Quantum Optics*,2017,23(1):46-51. (in Chinese)
- [12] BARREDO D,RAVETS S,LABUHN H,*et al.*. Demonstration of a strong Rydberg blockade in three-atom systems with anisotropic interactions[J]. *Physical Review Letters*,2014,112(18):183002.
- [13] JOHNSON J E,ROLSTON S L. Interactions between Rydberg-dressed atoms[J]. *Physical Review A*,2010,82(3):033412.
- [14] WILSON A C,OSPELKAUS C,VANDEVENDER A P,*et al.*. A 750-mW, continuous-wave, solid-state laser source at 313 nm for cooling and manipulating trapped $^9\text{Be}^+$ ions[J]. *Applied Physics B*,2011,105(4):741-748.
- [15] LO H Y,ALONSO J,KIENZLER D,*et al.*. All-solid-state continuous-wave laser systems for ionization, cooling and quantum state manipulation of beryllium ions[J]. *Applied Physics B*,2014,114(1-2):17-25.
- [16] BRIDGE E M,KEEGAN N C,BOUNDS A D,*et al.*. Tunable cw UV laser with <35 kHz absolute frequency instability for precision spectroscopy of Sr Rydberg states[J]. *Optics Express*,2016,24(3):2281-2292.
- [17] RENGELINK R J,NOTERMANS R P M J W,VASSEN W. A simple 2 W continuous-wave laser system for trapping ultracold metastable helium atoms at the 319.8 nm magic wavelength[J]. *Applied Physics B*,2016,122(5):122.
- [18] WANG J Y,BAI J D,HE J,*et al.*. Realization and characterization of single-frequency tunable 637.2 nm high-power laser[J]. *Optics Communications*,2016,370:150-155.
- [19] WANG J Y,BAI J D,HE J,*et al.*. Development and characterization of a 2.2 W narrow-linewidth 318.6 nm ultraviolet laser[J]. *Journal of the Optical Society of America B*,2016,33(10):2020-2025.
- [20] BAI J D,WANG J Y,HE J,*et al.*. Electronic sideband locking of a broadly tunable 318.6 nm ultraviolet laser to an ultra-stable optical cavity[J]. *Journal of Optics*,2017,19(4):045501.
- [21] WANG J Y,BAI J D,HE J,*et al.*. Single-photon cesium Rydberg excitation spectroscopy using 318.6-nm UV laser and

- room-temperature vapor cell[J]. *Optics Express*,2017,25(19):22510-22518.
- [22] BAI J D,WANG J Y,LIU S,*et al.*. Autler-Townes doublet in single-photon Rydberg spectra of cesium atomic vapor with a 319 nm UV laser[J]. *Applied Physics B*,2019,125(3):33.
- [23] BAI J D,LIU S,WANG J Y,*et al.*. Single-photon Rydberg excitation and trap-loss spectroscopy of cold cesium atoms in a magneto-optical trap by using of a 319-nm ultra-violet laser system[J]. *arXiv*:1811.05092v2,2018.
- [24] 白建东,王杰英,王军民. 基于光纤延时声光频移自差拍法快速测量激光线宽[J]. *激光与光电子学进展*,2016,53(6):061407.
- BAI J D,WANG J Y,WANG J M. Rapid measurement of laser linewidth based on fiber-delayed AOM-shifted self-heterodyne scheme[J]. *Laser & Optoelectronics Progress*,2016,53(6):061407. (in Chinese)
- [25] THOUMANY P,HÄNSCH T,STANIA G,*et al.*. Optical spectroscopy of rubidium Rydberg atoms with a 297 nm frequency-doubled dye laser[J]. *Optics Letters*,2009,34(11):1621-1623.
- [26] AUTLER S H,TOWNES C H. Stark effect in rapidly varying fields[J]. *Physical Review*,1955,100(2):703-722.
- [27] SCULLY M O,ZUBAIRY M S. *Quantum Optics*[M] Cambridge:Cambridge University Press,1997.
- [28] FLEISCHHAUER M,IMAMOGLU A,MARANGOS J P. Electromagnetically induced transparency:Optics in coherent media[J]. *Reviews of Modern Physics*,2005,77(2):633-673.
- [29] HAU L V,HARRIS S E,DUTTON Z,*et al.*. Light speed reduction to 17 meters per second in an ultracold atomic gas [J]. *Nature*,1999,397(6720):594-598.
- [30] BRAJE D A,BALIĆ V,GODA S,*et al.*. Frequency mixing using electromagnetically induced transparency in cold atoms [J]. *Physical Review Letters*,2004,93(18):183601.
- [31] AHMED E H,INGRAM S,KIROVA T,*et al.*. Quantum control of the spin-orbit interaction using the Autler-Townes effect[J]. *Physical Review Letters*,2011,107(16):163601.
- [32] RAITZSCH U,HEIDEMANN R,WEIMER H,*et al.*. Investigation of dephasing rates in an interacting Rydberg gas[J]. *New Journal of Physics*,2009,11(5):055014.
- [33] MITSUNAGA M,IMOTO N. Observation of an electromagnetically induced grating in cold sodium atoms[J]. *Physical Review A*,1999,59(6):4773-4776.
- [34] LIANG Q B,YANG B D,YANG J F,*et al.*. Autler-Townes doublet in the absorption spectra for the transition between excited states of cold cesium atoms[J]. *Chinese Physics B*,2010,19(11):113207.
- [35] MENON S,AGARWAL G S. Gain components in the Autler-Townes doublet from quantum interferences in decay channels[J]. *Physical Review A*,1999,61(1):013807.
- [36] SINGER K,REETZ-LAMOUR M,AMTHOR T,*et al.*. Suppression of excitation and spectral broadening induced by interactions in a cold gas of Rydberg atoms[J]. *Physical Review Letters*,2004,93(16):163001.
- [37] BOISSEAU C,SIMBOTIN I,CÔTÉ R. Macrodimers: ultralong range Rydberg molecules[J]. *Physical Review Letters*,2002,88(13):133004.
- [38] MARINESCU M. Dispersion coefficients for the nP-nP asymptote of homonuclear alkali-metal dimers[J]. *Physical Review A*,1997,56(6):4764-4773.

作者简介:



王军民(1967—),男,山西河曲人,理学博士,教授,博士生导师。1999年于山西大学获得理学博士学位,现为量子光学与光量子器件国家重点实验室(山西大学)、山西大学光电研究所二级教授,主要从事量子光学、冷原子物理、激光技术等方面的研究。E-mail:wwjjmm@sxu.edu.cn