

铯原子 $nP_{3/2}$ ($n = 70-94$) 里德伯态的 紫外单光子激发及量子亏损测量*

刘硕¹⁾ 白建东¹⁾ 王杰英¹⁾ 何军¹⁾²⁾ 王军民^{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) (山西大学, 教育部-山西省省部共建极端光学协同创新中心, 太原 030006)

(2018年12月27日收到; 2019年1月29日收到修改稿)

基于成熟的光纤激光器、光纤放大器及高效激光频率转换技术, 我们在实验中研制了一套瓦级输出的窄线宽连续波单频可调谐 318.6 nm 紫外激光系统, 并在室温铯原子气室中实现了 $6S_{1/2}-nP_{3/2}$ ($n = 70-94$) 单光子跃迁里德伯激发. 借助由铯原子 $6S_{1/2}$ ($F = 4$) 基态、 $6P_{3/2}$ ($F' = 5$) 激发态和 $nP_{3/2}$ ($n = 70-94$) 里德伯态构成的 V 型三能级系统, 通过频率锁定于铯原子 $6S_{1/2}$ ($F = 4$)— $6P_{3/2}$ ($F' = 5$) 超精细跃迁的 852.3 nm 探测光束的吸收减弱信号获得了里德伯态的信息, 并利用高精度波长计测量了铯原子 $nP_{3/2}$ ($n = 70-94$) 里德伯态的量子亏损值. 经过与理论计算值的变化趋势进行对比, 我们认为由于原子气室的里德伯屏蔽效应并不能完全屏蔽外部直流电场, 铯原子气室内存在残余的直流电场, 影响了对里德伯态的量子亏损值的实验测量. 利用残余直流电场的 Stark 效应理论模型及其与有效主量子数 n^* 的依赖关系, 对铯原子里德伯态的量子亏损实验测量值进行了修正. 修正后的铯原子 $nP_{3/2}$ ($n = 70-94$) 态量子亏损测量值为 3.5591 ± 0.0007 , 与理论计算值相吻合.

关键词: 铯原子里德伯态, 单光子激发, 量子亏损, 里德伯屏蔽效应

PACS: 32.10.-f, 32.80.Ee, 32.30.-r

DOI: 10.7498/aps.68.20182283

1 引言

里德伯原子是一个或者多个最外层电子被激发到主量子数 n 大于 10 的高激发态的原子, 这种特殊结构使其具有很多与基态原子不同的性质^[1]: 原子核对电子的束缚能 $\sim n^{-2}$, 相邻里德伯态能级间隔 $\sim n^{-3}$, 极化率 $\sim n^7$. 处于里德伯态的原子极易受外场影响^[2,3], 因此制备原子的里德伯态在计量学^[4,5]以及量子光学领域有特殊的意义^[6-8]. 由于里德伯态的寿命 $\sim n^3$ 以及原子间的偶极-偶极相互作用 $\sim n^4$ ^[9], 里德伯原子间的相互作用强度随主量子

数 n 的增大而显著增加, 进而出现里德伯阻塞效应^[10,11]. 2014 年, 美国桑迪亚国家实验室 Biedermann 研究组^[12] 采用单光子激发铯原子的方案制备了两个偶极阱中分别俘获的两个单原子的里德伯态, 并观察到了激发阻塞效应. 进一步操控原子与原子或原子与光场的相互作用, 将促进基于原子系综或者单个中性原子的量子信息与量子计算领域的研究^[13,14].

通常制备里德伯态的方法有单光子激发和级联多光子激发. 对于碱金属原子, 从基态到里德伯态的单光子跃迁波长通常在紫外波段, 而目前商用紫外激光器输出功率在几十毫瓦量级, 较难达到单

* 国家重点研发计划课题 (批准号: 2017YFA0304502)、国家自然科学基金 (批准号: 11774210, 61875111, 61475091) 和山西省 1331 重点学科建设工程经费资助的课题.

† 通信作者. E-mail: wjjmm@sxu.edu.cn

光子激发里德伯态的要求; 而如果利用红光波段激光器直接进行倍频, 红光染料激光器存在运转及维护困难等问题, 红光半导体激光器的输出功率又太低, 均不适合产生单光子激发所需的紫外光. 所以多个研究组采用级联双光子或级联三光子激发的方式制备里德伯原子, 避开紫外波段. 但级联双光子或级联三光子激发方案存在中间态散射光子引发的原子退相干及 AC-Stark 频移等问题. 因此我们选择了单光子激发方案制备铯里德伯原子. 单光子激发铯里德伯原子实验所需的高功率 318.6 nm 紫外光, 由中心波长分别为 1560.5 nm 和 1076.9 nm 的红外光单次穿过非线性晶体和频至 637.2 nm 后, 经腔增强谐振倍频得到^[15]. 作为量子亏损理论的重要参数, 量子亏损值的研究有助于探究原子的跃迁过程, 确定里德伯原子的波函数, 并研究里德伯原子的性质. Lorenzen 和 Niemax^[16] 测量了铯原子的 $nS_{1/2}$ ($n = 9-30$), $nP_{1/2}$ 和 $nP_{3/2}$ ($n = 9-50$) 和 $nD_{3/2}$ 和 $nD_{5/2}$ ($n = 8-32$) 等主量子数较小的里德伯态的量子亏损. 受限于双光子激发方案和商用激光器的功率, 关于量子亏损的研究主要集中在低主量子数里德伯态, 涉及主量子数 n 较大的里德伯态的量子亏损的研究则较少^[17].

我们利用自行研制的瓦级输出的 318.6 nm 紫外激光系统, 在室温铯原子气室和经磁光阱制备的铯冷原子系综条件下均实现了 $6S_{1/2} - nP_{3/2}$ ($n = 70-94$)

94) 单光子里德伯激发. 借助亚多普勒光谱技术得到了 $nP_{3/2}$ ($n = 70-94$) 里德伯态的信号, 并利用高精度波长计测量了对应 $nP_{3/2}$ ($n = 70-94$) 里德伯态的量子亏损值. 对比实验数据与理论计算值, 分析由于室温原子气室内里德伯原子碰撞自电离产生的对外电场不完全的屏蔽效应, 使得气室内存在残余背景直流电场, 与里德伯原子相互作用, 影响了量子亏损值的测量. 考虑 Stark 效应的理论模型, 我们利用估算的残余背景直流电场修正了量子亏损的实验数据, 修正后的结果与理论计算值吻合. 我们提出了实验上提高测量精度的可能方案.

2 原理及实验方案

与铯原子的低激发态不同, 高激发里德伯态的跃迁概率低, 用常规光学探测方法获得的吸收信号非常弱. 我们采用共振于铯原子 $6S_{1/2}$ ($F = 4$)— $6P_{3/2}$ ($F' = 5$) 超精细跃迁线的 852.3 nm 探测光的吸收减弱信号来获得单光子跃迁里德伯激发的信息^[18]. 考虑如图 1(a) 所示的铯原子 V 型三能级系统, 852.3 nm 探测光共振于 $6S_{1/2}$ ($F = 4$)— $6P_{3/2}$ ($F' = 5$) 跃迁, 318.6 nm 激发光频率扫过 $6S_{1/2}$ ($F = 4$)— $nP_{3/2}$ ($n = 70-94$) 单光子里德伯跃迁. 部分基态原子被紫外光激发到里德伯态, 导致基态原子布居数减少, 因而对 852.3 nm 探测光的吸收

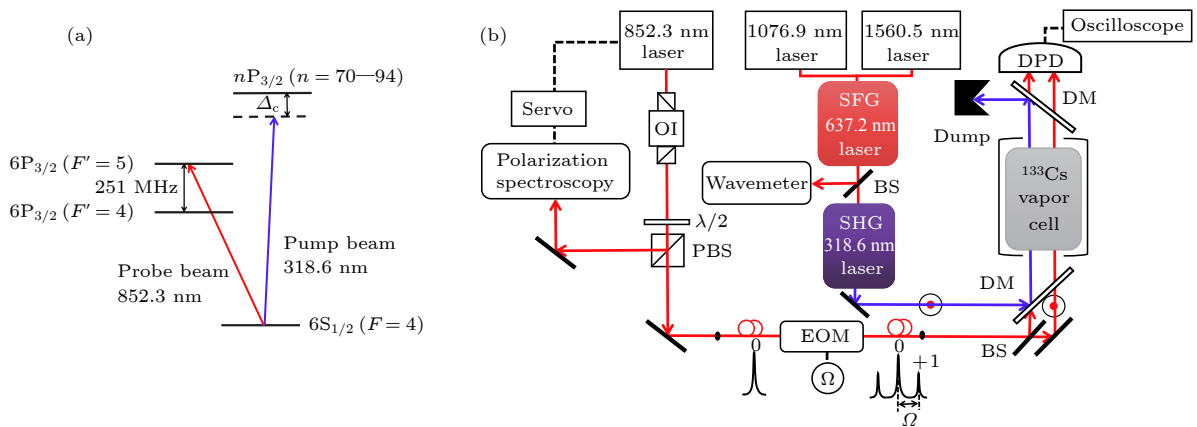


图 1 (a) 铯原子 V 型三能级系统, 318.6 nm 紫外光将原子从 $6S_{1/2}$ ($F = 4$) 基态激发到 $nP_{3/2}$ ($n = 70-94$) 里德伯态, Δ_c 为激发光相对跃迁频率的失谐量; 852.3 nm 探测光频率锁定在 $6S_{1/2}$ ($F = 4$)— $6P_{3/2}$ ($F' = 5$) 超精细跃迁; (b) 实验装置示意图; OI, 光隔离器; EOM, 带输入和输出尾纤的集成光波导型电光位相调制器; PBS, 偏振分束棱镜; BS, 分束片; DM, 双色片; DPD, 差分探测器; Ω , EOM 所加的射频调制信号

Fig. 1. (a) The V-type cesium three-level system; a 318.6 nm ultraviolet laser excited partial cesium atoms from $6S_{1/2}$ ($F = 4$) ground state to $nP_{3/2}$ ($n = 70-94$) Rydberg state, where Δ_c is the frequency detuning of pump laser; a 852.3 nm probe laser is locked to $6S_{1/2}$ ($F = 4$)— $6P_{3/2}$ ($F' = 5$) hyperfine transition. (b) Schematic diagram of experimental setup. OI, optical isolator; EOM, fiber-pigtailed integration optical waveguide phase-type electro-optic modulator; PBS, polarization beam splitter cube; BS, beam splitter plate; DM, dichroic mirror; DPD, differential photo-diode; Ω , the radio-frequency modulated signal applied on EOM.

减弱,从而可间接获得单光子跃迁里德伯激发信号.

图 1(b) 为实验装置示意图, 852.3 nm 探测光由分布式布拉格反射式 (DBR) 半导体激光器产生, 光斑大小扩束至 1.3 mm ($1/e^2$), 输出通过光隔离器后, 经偏振分光棱镜分为两路: 一路注入偏振光谱装置中将激光频率锁定在铯原子 $6S_{1/2} (F = 4) - 6P_{3/2} (F = 5)$ 跃迁; 另一路耦合进带输入和输出尾纤的集成光波导型电相位调制器 (EOM), 通过改变施加在 EOM 上的射频调制信号频率 Ω 对谱线频率间隔进行标定; 随后经过分束镜将功率等分为两路用于后续实验. 激发光方面, 我们利用两中心波长分别为 1560.5 nm 和 1076.9 nm 的红外光单次穿过周期极化的掺氧化镁铈酸锂晶体和频获得 637.2 nm 红光^[15], 后经偏振分光棱镜分为两路: 一路耦合入高精度波长计 (HighFinesse WS-7, Toptica-Amstrong, 绝对精度 120 MHz) 用于校准激发光的波长, 并记录基态到里德伯态的单光子跃迁频率; 另一路进入四镜环形倍频腔利用谐振倍频方案得到单光子激发所需要的 318.6 nm 紫外光^[15], 其光斑扩束至 1.6 mm ($1/e^2$). 整个系统中 1560.5 nm 激光通过射频调制边带技术将运转频率锁定在一个超低膨胀系数的双波长 (1560.5 nm、637.2 nm) 高精度光学腔上, 扫描 1076.9 nm 激光频率即可间接实现 318.6 nm 激光的连续调谐, 进而实现不同里德伯态的激发. 利用对 318.6 nm 紫外光高反、852.3 nm 近红外光高透的双色片使激发光与一路探测光合束后穿过 10 cm 长的处于室温的熔融石英玻璃圆柱状铯原子气室. 铯原子气室置于磁屏蔽筒内, 以屏蔽外界杂散磁场的影响. 与 318.6 nm 紫外激发光合束的 852.3 nm 探测光束穿过铯原子气室后, 经双色片滤掉紫外激发光成分, 与另一路直接穿过铯原子气室的 852.3 nm 参考探测光束一起入射到差分探测器 (Model 2107 DPD, New Focus), 得到高信噪比的里德伯激发光谱.

以铯原子 $71P_{3/2}$ 里德伯态的光谱为例, 852.3 nm 探测光频率通过偏振光谱技术锁定于 $6S_{1/2} (F = 4) - 6P_{3/2} (F = 5)$ 超精细跃迁线, 同时在 $6S_{1/2} (F = 4) - 71P_{3/2}$ 跃迁线附近扫描 318.6 nm 泵浦光频率, 可得到如图 2 所示的单光子里德伯激发光谱. 由于室温铯原子气室中的多普勒效应, 所以在对应 $v_z = 0$ 速度组分的零失谐透射峰的蓝失谐一

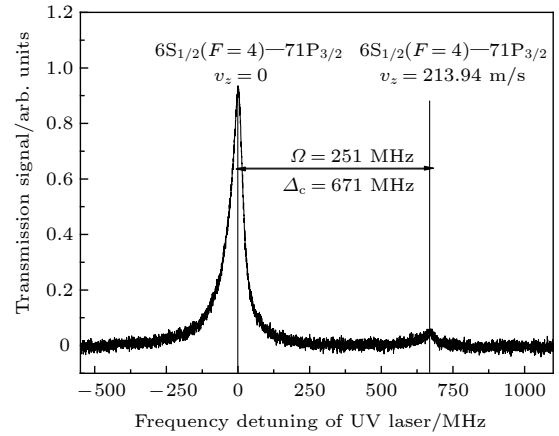


图 2 速度选择单光子跃迁铯原子 $71P_{3/2}$ 里德伯态的激发光谱. 852.3 nm 探测光共振于 $6S_{1/2} (F = 4) - 6P_{3/2} (F = 5)$ 跃迁线, 探测光功率为 159 μW ; 318.6 nm 紫外激发光频率在 $6S_{1/2} (F = 4) - 71P_{3/2}$ 态跃迁扫描, 功率为 1.6 W; 激发光频率相对 $71P_{3/2}$ 态零失谐和蓝失谐 671 MHz 时, 出现两个透射信号, 分别对应速度组分为 $v_z = 0$ (对应 852.3 nm 探测光的载频) 和 $v_z = 213.94$ m/s (对应 852.3 nm 探测光的 +1 级 251 MHz 射频调制边带) 的铯原子被激发到 $71P_{3/2}$ 态

Fig. 2. Velocity-selective spectra. The frequency of 852.3 nm probe beam is locked on the $6S_{1/2} (F = 4) - 6P_{3/2} (F = 5)$ transition and the light power is 159 μW ; the 318.6 nm coupling beam is scanned over the transition of $6S_{1/2} (F = 4) - 71P_{3/2}$ and the light power is 1.6 W. Two transmission peaks appeared when the frequency of the coupling beam resonated with the $6S_{1/2} (F = 4) - 71P_{3/2}$ transition line or blue detuning of 671 MHz, corresponding to atoms which have velocity of $v_z = 0$ (corresponding to the carrier of 852.3 nm probe beam) and $v_z = 213.94$ m/s (corresponding to the +1 order 251 MHz radio-frequency modulation component of 852.3 nm probe beam) are excited to $71P_{3/2}$ Rydberg state, respectively.

定频率处出现一个小透射峰, 表示另一速度组分的原子也被激发到 $71P_{3/2}$ 里德伯态. 为了确定另一速度组分原子的信息, 我们利用 EOM 对探测光进行调制来标定谱线间隔, EOM 上加的调制频率为 Ω , 如图 1(b), 透射峰左右将出现对应频率为 $f_p \pm \Omega$ 的 ± 1 级射频调制边带成分. 增加调制频率 Ω , 零失谐透射峰的 +1 级边带向蓝失谐方向移动. 考虑室温铯原子速度分布服从玻尔兹曼分布, 在激光传播方向上与不同速度组分的原子作用的光的频率为

$$f = f_0 \left(1 \pm \frac{v_z}{c} \right) = f_0 \pm \Delta_p. \quad (1)$$

假定探测光传播方向为 z 轴, 式中 f_0 为铯原子 $6S_{1/2} (F = 4) - 6P_{3/2} (F = 5)$ 超精细跃迁的频率, c 为光速, v_z 为原子速度在探测光传播方向上

的投影, $\Delta_p = f_0 v_z / c$ 为通过气室后的探测光相对于共振频率的失谐. 对于 $v_z = 0$ 即速度与光传播方向垂直的铯原子, $\Delta_p = 0$, 对应探测光共振于铯原子 $6S_{1/2} (F = 4) - 6P_{3/2} (F = 5)$ 超精细跃迁线; 而对于 $v_z = 213.94$ m/s 速度组分的铯原子, 探测光相对原子 $6S_{1/2} (F = 4) - 6P_{3/2} (F = 5)$ 跃迁线负失谐 $\Delta_p = 251$ MHz, 对应共振于 $6S_{1/2} (F = 4) - 6P_{3/2} (F = 4)$ 跃迁线. 谱线的间隔对应激发态 $6P_{3/2} (F = 4)$ 态与 $6P_{3/2} (F = 5)$ 态的超精细分裂间隔, 因此蓝失谐透射峰表示速度分量为 $v_z = 213.94$ m/s 的铯原子被激发到 $71P_{3/2}$ 里德伯态. 考虑跃迁频率匹配, 318.6 nm 激发光的失谐可由探测光的失谐得出:

$$\Delta_c = \frac{f_c}{f_p} \Delta_p, \quad (2)$$

这里 f_p, f_c 分别为探测光和激发光的频率, 多普勒因子 $f_c/f_p \approx 2.675$. 当 $\Omega = 251$ MHz 时, 318.6 nm 紫外光相对里德伯共振频率失谐 671 MHz. 由于存在多普勒效应, 我们得到的光谱依赖于原子的速度成分, 是速度选择光谱. 有关此光谱我们已经在之前的工作 [18] 中进行了讨论.

3 铯原子 $nP_{3/2}$ 高激发态量子亏损的测量及其变化趋势的分析

处于里德伯态的原子, 最外层电子远离原子核, 内层电子与原子核可看作带一个正电荷的“原子实”, 进而可以将里德伯原子近似看作类氢原子进行处理. 最外层电子与原子实存在两种相互作用: “贯穿”作用和极化作用. 在轨道角动量量子数 l 较低的能态, 对电子总能量的降低起主要作用的是“贯穿”效应, 外层电子“贯穿”进原子实后受到原本被内层电子屏蔽的核电荷作用, 束缚能增加, 总能量减小. 电子出现在原子实内的概率与径向波函数 $R(r)$ 的平方成正比, 因此“贯穿”作用是短程相互作用, 在 n 较低的轨道作用明显. 随着主量子数 n 的增加, 电子出现在原子实内的概率减小, 量子亏损也随之减小. 而在 l 较大的能态, 最外层电子由于离心势 $l(l+1)/2r^2$ 的作用几乎不再“贯穿”原子实, 只有极化作用对量子亏损有贡献, 原子实的极化能量可表示为 [1]

$$E_{\text{pol}} = -\frac{\alpha_d}{2} \langle r^{-4} \rangle - \frac{\alpha_q}{4} \langle r^{-6} \rangle \approx -\frac{\delta_{n,l}}{n^3}, \quad (3)$$

这里 α_d 和 α_q 分别为原子实的电偶极极化率和电四极极化率, $\delta_{n,l}$ 为量子亏损; $\langle r^{-4} \rangle$ 项与 $\langle r^{-6} \rangle$ 项对主量子数 n 的依赖关系均为 n^{-3} , 但 $\langle r^{-4} \rangle$ 项正比于 l^5 , 而 $\langle r^{-6} \rangle$ 项正比于 l^8 , 因此在 l 较大的能态其电偶极作用远大于电四极作用, 量子亏损值 $\delta_{n,l}$ 主要依赖于 l .

由于实验中我们制备并研究的里德伯态为铯原子 $nP_{3/2} (n = 70-94)$ 态, 轨道角动量量子数 l 不变, 因此只需要考虑不同主量子数 n 对量子亏损的影响. 碱金属铯原子的量子亏损可由下式计算 [1],

$$\delta_{n,l} = \delta_0 + \frac{\delta_2}{(n - \delta_0)^2} + \frac{\delta_4}{(n - \delta_0)^4} + \frac{\delta_6}{(n - \delta_0)^6} + \dots, \quad (4)$$

在原子处于主量子数 n 较大的高激发里德伯态时, 上式仅需考虑前两项, 铯原子 $nP_{3/2}$ 态对应的参数 δ_0 和 δ_2 可通过查阅文献 [1] 得到, 代入 (4) 式即可计算得到对应能态的量子亏损值. 图 3 为理论计算得到的铯原子 $nP_{3/2} (n = 50-100)$ 态的量子亏损值随主量子数 n 的变化, 随着主量子数 n 的增加, 量子亏损值缓慢减小.

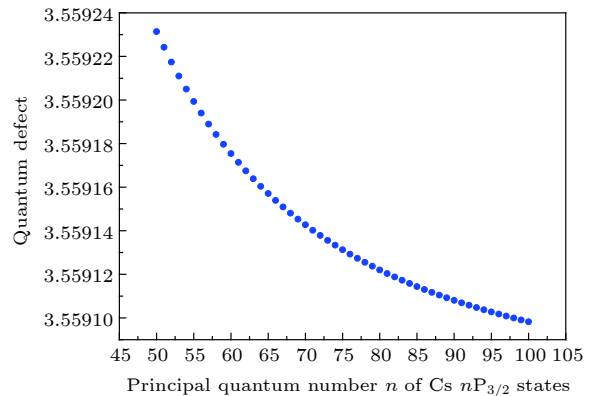


图 3 铯原子 $nP_{3/2} (n = 50-100)$ 里德伯态量子亏损随主量子数 n 的变化. 量子亏损随着主量子数 n 增加而缓慢减小

Fig. 3. The theory values of quantum defects for cesium $nP_{3/2} (n = 50-100)$ Rydberg states. Quantum defect is decreasing with increasing of the principal quantum number n .

考虑铯原子 $6S_{1/2}$ 基态的超精细结构, 量子亏损 $\delta_{n,l}$ 与跃迁能量 $E_{n,l}$ 之间的关系可由修正后的 Rydberg-Ritz 方程表示,

$$E_{n,l} = E_{\text{IP}} - \frac{R_{\text{akali}}}{(n - \delta_{n,l})^2} - E_{hf}, \quad (5)$$

其中 E_{IP} 为铯原子的电离阈值, R_{akali} 是

10973686.274 m^{-1} 为铯原子的里德伯常数, $E_{h,f} = 13.41520205 \text{ m}^{-1}$ 为铯原子 $6S_{1/2} (F = 4)$ 态相对于 $6S_{1/2}$ 基态精细结构的超精细分裂值, 为了计算方便, 此处的能量单位均以波数单位表示. 基于里德伯原子的速度选择光谱, 我们利用高精度波长计测量了不同铯原子里德伯态 $nP_{3/2} (n = 70-94)$ 的单光子跃迁频率, 利用 (5) 式拟合得到 $nP_{3/2} (n = 70-94)$ 各态量子亏损随 n 的变化趋势如图 4. 其中, 量子亏损的理论值与实验数据的整体差异是由于在波长计 120 MHz 的绝对精度范围内存在一个约 100 MHz 的固定测量误差, 这可能是由于校准波长计使用的 852.3 nm 近红外光频率与波长计实际测量的 637.2 nm 红光频率相差较远导致的, 因此量子亏损的实验数据整体与理论值存在固定的偏差. 考虑固定频率差影响后, 实验数据显示出明显的离散性. 这是由于实验中虽然 1560.5 nm 和 1076.9 nm 红外光已分别进行了频率锁定, 但是经过非线性过程产生的紫外光依然存在频率起伏, 导致测量结果存在误差, 使得整体变化趋势呈现明显的离散性. 考虑了这些影响后, 在理论计算值近

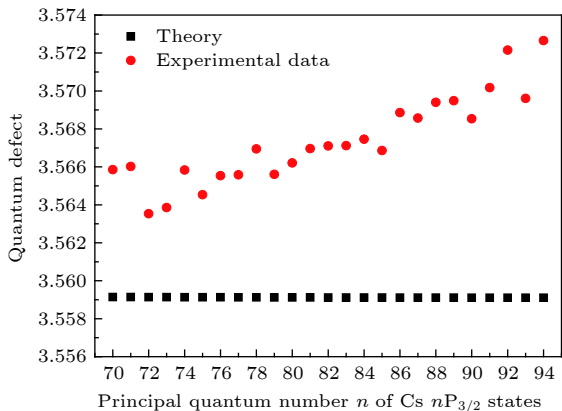


图 4 铯原子 $nP_{3/2} (n = 70-94)$ 态的量子亏损计算值与实验直接测量值的对比. 其中红色圆点为计算值, 黑色方块为实验直接测量值; 随着主量子数 n 的增加, 计算值近乎不变, 而实验直接测量值却是增加的. 这一趋势表明有一些影响因素必须要考虑, 去修正直接实验测量得到的铯原子 $nP_{3/2} (n = 70-94)$ 里德伯态的量子亏损值

Fig. 4. Comparison of direct experimentally measured data with calculated values of quantum defects for cesium $nP_{3/2} (n = 70-94)$ Rydberg states. The red dots are calculated values and the black cubes are direct experimentally measured data. When the principal quantum number n increasing, the calculated values are almost constant, but the direct experimentally measured data are increasing obviously. This variation trend indicate that some influence factors should be took into account to correct the direct experimentally measured data.

似不变的情况下, 量子亏损的实验数据呈现随 n 增加而增加的趋势.

对于铯 $nP_{3/2}$ 态里德伯原子, 由于原子半径 $\sim n^2$, 价电子贯穿原子实的概率随主量子数 n 增加而减小, 原子核对价电子的束缚能减弱, 相应的量子亏损也应随 n 增加而减小. 图 3 中的计算值变化趋势与此相符. 参考 Lorenzen 和 Niemax^[16] 的实验测量, 文中的结果显示铯原子 $nP_{3/2} (n = 9-50)$ 态的量子亏损随着主量子数 n 的增大而逐渐减小, 并在 n 较大时近似趋于不变, 且 $50P_{3/2}$ 态的量子亏损大小约为 3.5592. 由 (4) 式, $nP_{3/2} (n = 70-94)$ 态铯原子量子亏损的理论计算值约为 3.5591. 那么铯原子 $nP_{3/2}$ 态的量子亏损的变化趋势应当是随 n 的增大而逐渐减小. 这与我们实验测量结果的变化趋势相反: 里德伯态的频移随着 n 的增加而增加. 那么一定存在一个系统的扰动, 其对气室中原子能级的影响远大于“贯穿”和极化作用的影响. 考虑到主量子数 n 很大的里德伯态的量子亏损值仅在 0.00001 位变化, 可近似看作一个常数, 我们做一阶近似: 考虑到 $nP_{3/2} (n = 70-94)$ 各态的量子亏损相对 $70P_{3/2}$ 态量子亏损的差异是由外场扰动造成的, 扣除波长计误差的 $70P_{3/2}$ 态量子亏损值可以近似作为 $nP_{3/2} (n = 70-94)$ 各态的值, 则对应的理论跃迁频率与实验数据的频率差即可视为外场造成的原子能级的频移量.

内置铯原子气室的磁屏蔽筒内的剩磁小于 10 mG, 外磁场诱导的塞曼效应对实验结果的影响可忽略. 由于高激发态里德伯原子的极化率近似正比于有效主量子数 n^* 的 7 次方, $(n^*)^7$ ^[19,20], 即使是微弱的残余直流电场, 也会对处于高主量子数里德伯态的铯原子产生影响. 考虑室温铯原子气室对背景电场的里德伯屏蔽效应: 热平衡时原子速度服从麦克斯韦-玻尔兹曼分布, 且处于高激发态的里德伯原子最外层电子的束缚能低, 在室温铯原子气室中, 被激发到里德伯态的铯原子会相互碰撞或与石英玻璃器壁碰撞而发生自电离, 在外部直流电场诱导下自电离产生的正离子和电子会聚集在铯原子气室的石英玻璃内壁上, 形成一个与外部直流电场方向相反的直流电场, 使得与气室内铯原子作用的直流电场减弱^[21]. 共振情况下单位体积内的里德伯原子的比例决定于激发光的拉比频率, 当激发光光强改变时, 气室内里德伯原子成分的占比也会改变, 里德伯原子自电离所产生的直流电场大小也会发生变化; 假设外部直流电场为特定值的直流电

场, 那么无论激发光的光强如何变化, 里德伯原子自电离在气室内壁形成的直流电场的大小都不可能严格等于外部直流电场的大小, 这种室温铯原子气室的里德伯屏蔽效应不可能完全屏蔽外部直流电场, 依然存在残余直流电场, 会与气室内的铯原子作用而使得原子能级发生移动. Osterwalder 和 Merkt^[22] 曾利用高分辨率的真空紫外-毫米波双共振光谱探测到了氦里德伯原子气室内的残余背景直流电场. 实验中铯原子气室内应当存在残余直流电场, 使原子能级发生 Stark 频移, 对量子亏损测量值随主量子数 n 变化的趋势造成影响.

经铯原子气室的部分屏蔽后, 考虑对铯原子产生影响残余直流电场的 Stark 频移^[23]:

$$\Delta\varepsilon = -\frac{1}{2}\alpha E^2, \quad (6)$$

其中 E 为残余直流电场, α 为铯原子极化率. 铯原子极化率满足如下关系:

$$\alpha \propto \frac{|\langle nl|r|n'l'\rangle|^2}{E(J) - E(J')}, \quad (7)$$

式中跃迁矩阵元的平方, $|\langle nl|r|n'l'\rangle|^2 \propto n^{*4}$, 两能级之间频率差 $E(J) - E(J') \propto n^{*-3}$. 残余直流电场的 Stark 效应造成的铯原子能级频移量随主量子数 n 的增加而增大. 铯原子极化率与有效主量子数 $n^* = n - \delta_{n,l}$ 有如下近似关系,

$$\alpha \approx An^{*7} + Bn^{*6}, \quad (8)$$

对于铯原子 $nP_{3/2}$ ($n = 70-94$) 里德伯态, $A =$

2.74×10^{-9} ^[24], $B = 8.13 \times 10^{-10}$ ^[24]. 利用有效主量子数 n^* 求得铯原子 $nP_{3/2}$ ($n = 70-94$) 里德伯态的极化率如表 1 所列. 为计算方便, 极化率的单位已转换为 MHz/(V/cm)².

考虑到造成系统误差的主要原因应当是未被完全屏蔽的残余直流电场, $nP_{3/2}$ ($n = 70-94$) 态的跃迁频率计算值与实验数据的频率差即为 Stark 效应造成的铯原子里德伯态能级的移动. 将 $nP_{3/2}$ ($n = 70-94$) 里德伯态的极化率与相应的 Stark 频移代入 (6) 式进行拟合, 得到作用于铯原子气室内的残余直流电场约 (31 ± 2) mV/cm, 如图 5(a) 所示. 利用 (6) 式计算该残余直流电场造成的 $nP_{3/2}$ ($n = 70-94$) 态的 Stark 频移值, 并在跃迁频率的直接测量值中补偿该频移后, 利用 (5) 式重新拟合量子亏损值, 得到修正后的结果如图 5(b) 所示. 由于随着主量子数 n 增加, 基态到里德伯态跃迁概率减小, 高激发态里德伯原子的单光子跃迁里德伯激发信号的信噪比变差, 使得图 5(b) 中的几组实验数据与理论值存在较大偏差. 考虑此因素, 修正后的 $nP_{3/2}$ ($n = 70-94$) 量子亏损平均值为 3.5591 ± 0.0007 , 与理论计算结果吻合.

因此可以认为室温铯原子气室的里德伯静电屏蔽效应并不能完全屏蔽背景电场, 气室中存在未能完全屏蔽的残余直流电场, 对气室内的铯原子能级产生了影响. 最近我们利用磁光阱俘获的冷原子系综对残余背景电场进行了测量, 得到了与我们这

表 1 铯原子高激发 $nP_{3/2}$ ($n = 70-94$) 里德伯态的极化率
Table 1. Polarizability of highly-excited Cs $nP_{3/2}$ ($n = 70-94$) Rydberg states.

Principal quantum number	Polarizability/MHz/(V/cm) ²	Principal quantum number	Polarizability/MHz/(V/cm) ²
70	15730.1	83	54913.3
71	17463.0	84	59935.9
72	19356.9	85	65347.2
73	21424.3	86	71172.0
74	23678.2	87	77436.3
75	26132.3	88	84167.3
76	28801.2	89	91393.7
77	31700.5	90	99145.6
78	34846.4	91	107454.3
79	38256.2	92	116352.9
80	41948.1	93	125875.7
81	45941.3	94	136058.9
82	50255.9	-	-

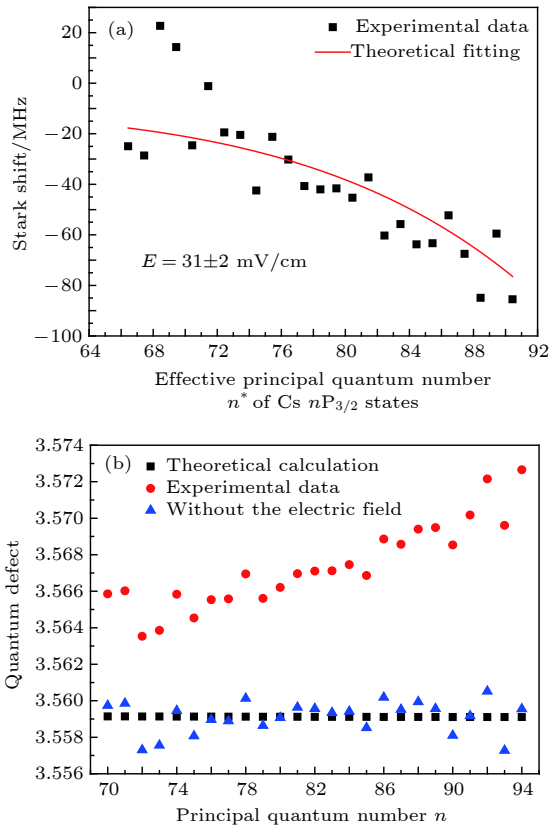


图 5 (a) 利用估算的残余直流电场对量子亏损直接实验测量值进行修正, 根据 Stark 频移量和有效主量子数 n^* 的关系, 拟合得到了作用于铯原子气室中的残余直流电场约为 (31 ± 2) mV/cm; (b) 修正 Stark 效应及波长计测量误差的影响后, 铯原子 $nP_{3/2}(n = 70-94)$ 态量子亏损的实验测量修正值约 3.5591 ± 0.0007 ; 实验数据与计算值相吻合

Fig. 5. (a) Using the estimated residual DC electric field to correct the direct experimentally measured data, according to the relationship between Stark shift and effective principal quantum number n^* , the magnitude of the residual DC electric field acting on the cesium atomic vapor cell is $-(31 \pm 2)$ mV/cm; (b) after correction of the impact of Stark effect and the measurement error of wavemeter, the corrected experimentally measured quantum defect value of cesium $nP_{3/2}(n = 70-94)$ states is $-(3.5591 \pm 0.0007)$. This corrected result is consistent with the theoretically calculated value.

里的估算基本相一致的结果^[25]. 并且在主量子数 n 很大的高激发里德伯态, 量子亏损对原子能级的影响远远小于直流电场诱导的 Stark 效应对原子能级的影响, 高激发里德伯态量子亏损的信息完全被残余电场诱导的 Stark 频移覆盖. 因此想要在实验中更为精确地测量主量子数 n 较大的里德伯态的量子亏损, 首先必须要借助法拉第笼屏蔽外部直流电场; 其次为了减小波长计测量值的误差, 需要采用更接近待测波长的激光频率来在测量过程中对波长计进行反复校准, 如我们实验中的 637.2 nm

波长测量, 可用碘分子稳定的 632.991 nm 高稳定度氦氖激光频率标准, 对光波长计进行反复校准.

4 总结与展望

利用自行研发的瓦级输出的连续可调谐窄线宽 318.6 nm 紫外激光系统, 实现了室温铯原子的单光子里德伯激发, 铯原子 $nP_{3/2}(n = 70-94)$ 里德伯态的单光子激发信号由速度选择光谱给出. 利用高精度光波长计, 我们测量了铯原子 $nP_{3/2}$ 高激发态里德伯原子的量子亏损, 经过分析并与计算值和文献记录对比后, 我们认为室温铯原子气室中, 基于里德伯原子碰撞自电离机制的里德伯静电屏蔽效应不能完全屏蔽背景电场, 气室中依然存在残余直流电场诱导 Stark 效应影响了铯原子 $nP_{3/2}(n = 70-94)$ 态的能级, 该影响远大于量子亏损对原子能级的影响, 因此量子亏损的实验数据的变化趋势与理论预测趋势出现偏差. 考虑波长计的测量误差后, 我们利用计算值与实验数据的差异估算了残余外电场. 扣除此残余直流电场造成的 $nP_{3/2}(n = 70-94)$ 态能级的频移后, 铯原子 $nP_{3/2}(n = 70-94)$ 里德伯态的量子亏损测量值修正为 3.5591 ± 0.0007 , 与计算值吻合.

实验中如果想更为精确地测量主量子数 n 较大的铯原子高激发里德伯态的量子亏损值, 需要搭建法拉第笼屏蔽外部直流电场, 消除 Stark 效应造成的系统误差. 还需要采用接近待测波长的激光频率标准, 在实验过程中对光波长计进行反复校准, 以降低光波长计的相对测量误差.

参考文献

- [1] Gallagher T F 1994 *Rydberg Atoms* (Cambridge: Cambridge University Press) p12
- [2] Zimmerman M L, Littman M G, Kash M M, Kleppner D 1979 *Phys. Rev. A* **20** 2251
- [3] Sedlacek J A, Schwettmann A, Kübler H, Shaffer J P 2013 *Phys. Rev. Lett.* **111** 063001
- [4] Carter J D, Cherry O, Martin J D D 2012 *Phys. Rev. A* **86** 053401
- [5] Sedlacek J A, Schwettmann A, Kübler H, Löw R, Pfau T, Shaffer J P 2012 *Nature Phys.* **8** 819
- [6] Zhao B, Müller M, Hammerer K, Zoller P 2010 *Phys. Rev. A* **81** 052329
- [7] Wilk T, Gaëtan A, Evellin C, Wolters J, Miroshnychenko Y, Grangier P, Browaeys A 2010 *Phys. Rev. Lett.* **104** 010502
- [8] Isenhower L, Urban E, Zhang X L, Gill A T, Henage T, Johnson T A, Walker T G, Saffman M 2010 *Phys. Rev. Lett.* **104** 010503

- [9] Saffman M, Walker T G, Mølmer K 2010 *Rev. Mod. Phys.* **82** 2313
- [10] Urban E, Johnson T A, Henage T, Isenhower L, Yavuz D D, Walker T G, Saffman M 2009 *Nature Phys.* **5** 110
- [11] Gaëtan A, Miroshnychenko Y, Wilk T, Chotia A, Viteau M, Comparat D, Pillet P, Browaeys A, Grangier P 2009 *Nature Phys.* **5** 115
- [12] Hankin A M, Jau Y Y, Parazzoli L P, Chou C W, Armstrong D J, Landahl A J, Biedermann G W 2014 *Phys. Rev. A* **89** 033416
- [13] Dudin Y O, Kuzmich A 2012 *Science* **336** 887
- [14] Keating T, Goyal K, Jau Y Y, Biedermann G W, Landahl A J, Deutsch I H 2013 *Phys. Rev. A* **87** 052314
- [15] Wang J Y, Bai J D, He J, Wang J M 2016 *J. Opt. Soc. Am. B* **33** 2020
- [16] Lorenzen C J, Niemax K 1984 *Z. Phys. A: Atoms and Nuclei* **315** 127
- [17] Li W H, Mourachko I, Noel M W, Gallagher T F 2003 *Phys. Rev. A* **67** 052502
- [18] Wang J Y, Bai J D, He J, Wang J M 2017 *Opt. Express* **25** 22510
- [19] Baugh J F, Ciocca M, Edmonds D A, Nellesen P T, Burkhardt C E, Leventhal J J 1996 *Phys. Rev. A* **54** R4641
- [20] Gallagher T F, Humphrey L M, Hill R W, Cooke W E, Edelstein S A 1977 *Phys. Rev. A* **15** 1937
- [21] Yang Z W, Jiao Y C, Han X X, Zhao J M, Jia S T 2017 *Acta Phys. Sin.* **66** 093202 (in Chinese) [杨智伟, 焦月春, 韩小萱, 赵建明, 贾锁堂 2017 *物理学报* **66** 093202]
- [22] Osterwalder A, Merkt F 1999 *Phys. Rev. Lett.* **82** 1831
- [23] Li C Y, Zhang L J, Zhao J M, Jia S T 2012 *Acta Phys. Sin.* **61** 163202 (in Chinese) [李昌勇, 张临杰, 赵建明, 贾锁堂 2012 *物理学报* **61** 163202]
- [24] He X H, Li B W, Zhang C X 1989 *Acta Phys. Sin.* **38** 1717 (in Chinese) [何兴虹, 李白文, 张承修 1989 *物理学报* **38** 1717]
- [25] Bai J D, Wang J Y, Liu S, He J, Wang J M 2018 arXiv:1811.05092v1 [physics.atom-ph]

Measurement of quantum defect of cesium $nP_{3/2}$ ($n = 70\text{--}94$) Rydberg states by using ultraviolet single-photon Rydberg excitation*

Liu Shuo¹⁾ Bai Jian-Dong¹⁾ Wang Jie-Ying¹⁾ He Jun¹⁾²⁾ Wang Jun-Min^{1)2)†}

1) (*State Key Laboratory of Quantum Optics and Quantum Optics Devices, and 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*)

(Received 27 December 2018; revised manuscript received 29 January 2019)

Abstract

A narrow-linewidth continuous-wave single-frequency tunable 318.6-nm ultraviolet laser system with watt-level output power is developed in our experiment based on well-developed fiber lasers, fiber amplifiers, and efficient laser frequency conversion technique. Cesium $6S_{1/2}\text{--}nP_{3/2}$ ($n = 70\text{--}94$) single-photon Rydberg excitation in a room-temperature cesium atomic vapor cell is realized by using our ultraviolet laser system. The single-photon Rydberg excitation signal is obtained via the V-type three-level atomic system which contains $6S_{1/2}$ ($F = 4$) ground state, $6P_{3/2}$ ($F = 5$) excited state and one of $nP_{3/2}$ ($n = 70\text{--}94$) Rydberg states. When cesium atoms populated on the ground state are partially excited to Rydberg state by the ultraviolet laser, absorption of 852.3-nm probe beam which is locked to $6S_{1/2}$ ($F = 4$)— $6P_{3/2}$ ($F' = 5$) hyperfine transition will decrease. In this way, the cesium Rydberg states are detected. The quantum defects for cesium $nP_{3/2}$ ($n = 70\text{--}94$) Rydberg states are experimentally measured with a high-precision wavemeter. The variation trend of experimentally measured data deviates from that of calculated values. Due to the fact that the cesium vapor cell is positioned in a magnetic shielding tank, the Zeeman effect can be ignored. Considering that the polarizability of Rydberg atoms is proportional to $(n^*)^7$, in which n^* is the effective principal quantum number, the Rydberg screen effect of cesium atomic vapor cell cannot completely protect cesium atoms from being perturbed by an external DC electric field. Therefore the residual DC electric field existing inside the cesium vapor cell will have a significant influence on quantum defect measurement of Rydberg atoms. Using the theoretical model of Stark effect and the relationship between polarizability of Rydberg atoms and the effective principal quantum number n^* , the corrected experimental value of quantum defect for cesium $nP_{3/2}$ ($n = 70\text{--}94$) Rydberg states is found to be $\sim(3.5591 \pm 0.0007)$. The corrected experimental value of quantum defect is consistent with the calculation.

Keywords: cesium Rydberg atoms, single-photon excitation, quantum defect, Rydberg screen effect

PACS: 32.10.-f, 32.80.Ee, 32.30.-r

DOI: 10.7498/aps.68.20182283

* Project supported by the National Key Research and Development Program of China (Grant No. 2017YFA0304502), the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11774210, 61875111, 61475091), and the Shanxi Provincial 1331 Projects for Key Subjects Construction, China.

† Corresponding author. E-mail: wjjmm@sxu.edu.cn