

СПЕКТРОСКОПИЯ ТРЕХФОТОННОГО ЛАЗЕРНОГО ВОЗБУЖДЕНИЯ ХОЛОДНЫХ РИДБЕРГОВСКИХ АТОМОВ РУБИДИЯ В МАГНИТООПТИЧЕСКОЙ ЛОВУШКЕ

B. M. Энтин^a, E. A. Якишина^{a,b}, Д. Б. Третьяков^a, И. И. Бетеров^{a,b}, И. И. Рябцев^{a,b,c}*

*^a Институт физики полупроводников Сибирского отделения Российской академии наук
630090, Новосибирск, Россия*

*^b Новосибирский государственный университет
630090, Новосибирск, Россия*

*^c Российский квантовый центр
143025, Сколково, Московская обл., Россия*

Поступила в редакцию 13 ноября 2012 г.

Исследованы спектры трехфотонного лазерного возбуждения $5S_{1/2} \rightarrow 5P_{3/2} \rightarrow 6S_{1/2} \rightarrow nP$ холодных ридберговских атомов Rb в работающей магнитооптической ловушке с использованием непрерывных одночастотных лазеров на каждой ступени. В спектрах наблюдались два частично перекрывающихся пика разной амплитуды, которые соответствовали когерентному трехфотонному возбуждению и некогерентному трехступенчатому возбуждению вследствие наличия двух разных путей возбуждения через одетые состояния промежуточных уровней. Для анализа спектров построена четырехуровневая теоретическая модель на основе оптических уравнений Блоха. Хорошее согласие между экспериментом и теорией достигалось при введении в модель дополнительного затухания оптической когерентности вследствие конечной ширины линий лазеров и других источников уширений (паразитные электромагнитные поля, остаточное доплеровское уширение, межатомные взаимодействия).

DOI: 10.7868/S0044451013050029

1. ВВЕДЕНИЕ

Лазерное возбуждение ридберговских атомов с высоким спектральным разрешением требуется при проведении экспериментов по ряду актуальных приложений ридберговских атомов, таких как квантовая информатика [1, 2] или фазовые переходы в холодных ансамблях взаимодействующих ридберговских атомов [3, 4].

В экспериментах с холодными ридберговскими атомами Rb, как правило, применяется двухступенчатая схема возбуждения $5S \rightarrow 5P \rightarrow nS, nD$ ридберговских состояний nS и nD из основного состояния $5S$ через промежуточное состояние $5P$ излучениями с длинами волн 780 и 480 нм [1, 5, 6]. До недавнего времени типичная ширина резонансов двухсту-

пенчатого возбуждения в экспериментах различных групп составляла 3–10 МГц [1, 6–8], в то время как естественная ширина ридберговских состояний определяется их временем жизни (типичные значения 50–200 мкс [9, 10]) и не превышает нескольких килогерц. Такое значительное расхождение в ширине резонансов практически не обсуждалось, но можно было предположить, что значительный вклад в нее вносят ширины линий двух возбуждающих лазеров. Лишь недавно появились работы, в которых предприняты специальные меры по сужению ширин линий лазеров до величины менее 100 кГц [11–13]. Благодаря этому удалось получить резонансы возбуждения шириной менее 200 кГц для длительностей лазерных импульсов 5–10 мкс [11, 12] либо фурье-ограниченные резонансы с шириной 1 МГц для длительности 1 мкс [13].

Помимо ширины линии лазеров, дополнительными источниками уширения резонансов возбуждения в ансамблях холодных ридберговских ато-

*E-mail: ryabtsev@isp.nsc.ru

мов могут служить дальнодействующие взаимодействия [7, 12], паразитные электромагнитные поля [14–16], спонтанное формирование ультрахолодной плазмы [17, 18], а также остаточный эффект Доплера и эффект отдачи при поглощении фотонов [19]. Дальнодействующие взаимодействия обычно сами по себе являются предметом исследований, поэтому специальных мер борьбы с ними не требуется. Уширение от паразитных электромагнитных полей может быть подавлено с помощью дополнительных компенсирующих электродов и магнитных катушек [20]. Спонтанного формирования ультрахолодной плазмы можно избежать, если работать с атомными ансамблями умеренной плотности и умеренными интенсивностями возбуждающих лазерных лучей (правда, следует еще учитывать фотоионизацию ридберговских атомов фоновым тепловым излучением [21]). Таким образом, основными факторами, ограничивающими предельную ширину резонансов возбуждения ридберговских атомов, следует считать ширину линии лазеров, остаточный эффект Доплера и эффект отдачи при поглощении фотонов. Два последних фактора при двухфотонном возбуждении частично устраняются применением геометрии встречных волн для излучений 780 и 480 нм, однако добиться их полного подавления не представляется возможным. В нашей недавней теоретической работе [19] было показано, что это можно сделать лишь с трехфотонным возбуждением в звездообразной геометрии трех скрещенных лазерных пучков, когда сумма трех волновых векторов в точности равна нулю.

Настоящая работа посвящена экспериментальному и теоретическому исследованиям спектров трехфотонного лазерного возбуждения холодных ридберговских атомов Rb по схеме $5S_{1/2} \rightarrow 5P_{3/2} \rightarrow \rightarrow 6S_{1/2} \rightarrow nP$ в работающей магнитооптической ловушке. Целью работы было изучение влияния различных источников уширений на наблюдаемую ширину и форму резонансов возбуждения, а также построение простой теоретической модели, позволяющей учитывать и анализировать эти уширения. Ранее трехфотонное возбуждение в похожих схемах исследовалось только для горячих атомов в атомном пучке [22] и газовых ячейках [23–27], где наблюдались резонансы шириной 10–20 МГц. В работе [28] на аналогичном трехфотонном переходе $6S_{1/2} \rightarrow \rightarrow 6P_{3/2} \rightarrow 7S_{1/2} \rightarrow 26P_{3/2}$ в атомах Cs в газовой ячейке наблюдались также резонансы электромагнитно-индущенной прозрачности с шириной около 10 МГц.

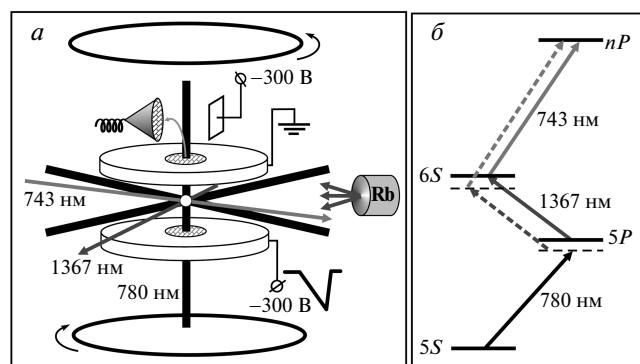


Рис. 1. *a)* Схема эксперимента с холодными ридберговскими атомами ^{85}Rb в МОЛ. Ридберговские атомы возбуждаются в малом объеме облака холодных атомов и регистрируются методом селективной ионизации электрическим полем. *б)* Схема трехфотонного лазерного возбуждения $5S_{1/2} \rightarrow 5P_{3/2} \rightarrow 6S_{1/2} \rightarrow nP$ ридберговских атомов Rb в работающей МОЛ. Первая ступень $5S_{1/2}(F = 3) \rightarrow 5P_{3/2}(F = 4)$ возбуждается непрерывным охлаждающим лазером с длиной волны 780 нм и красной отстройкой — (10–20) МГц. Лазер второй ступени на длине волны 1367 нм настроен на центр перехода $5P_{3/2}(F = 4) \rightarrow 6S_{1/2}(F = 3)$. Существуют два возможных пути возбуждения — когерентное трехфотонное через одетые состояния (пунктирные стрелки) и некогерентное трехступенчатое (сплошные стрелки)

2. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ УСТАНОВКА

Детальное описание экспериментальной установки было приведено в наших работах [29, 30]. Эксперименты выполняются с холодными атомами Rb, захваченными в магнитооптическую ловушку (МОЛ), которая показана на рис. 1 a . Охлаждение атомов осуществляется тремя ортогональными парами световых волн с длиной волны 780 нм. Охлаждающий лазер настраивается на замкнутый переход $5S_{1/2}(F = 3) \rightarrow 5P_{3/2}(F = 4)$ изотопа ^{85}Rb , а лазер перекачки — на переход $5S_{1/2}(F = 2) \rightarrow \rightarrow 5P_{3/2}(F = 3)$. В центре ловушки формируется облако из примерно 10^6 холодных атомов с размером 0.5–1.0 мм и температурой 100–200 мК.

Возбуждение ридберговских атомов осуществляется в пространстве между двумя пластинами из нержавеющей стали, в центре которых имеются отверстия диаметром 10 мм (рис. 1 a). Для формирования однородного электрического поля отверстия закрыты оптически прозрачными (пропускание 95 %) металлическими сетками. Электрическое поле ис-

пользуется для спектроскопии эффекта Штарка и детектирования ридберговских атомов методом селективной полевой ионизации [31]. Ридберговские атомы регистрируются с частотой повторения 5 кГц при включении импульса развертки ионизирующего электрического поля со временем нарастания 2–3 мкс. Электроны, образовавшиеся в результате ионизации, ускоряются электрическим полем, пролетают через металлическую сетку верхней пластины и с помощью отклоняющего электрода направляются во входной растроб электронного умножителя канального типа ВЭУ-6. Импульсные сигналы с его выхода обрабатываются быстродействующим АЦП, строб-интегратором и ЭВМ. Число электронов, зарегистрированных за один лазерный импульс, определяется числом ридберговских атомов в области возбуждения и общей эффективностью регистрации электронов [31]. В нашем эксперименте эффективность регистрации достигает 65 % [32].

Возбуждение холодных атомов Rb в ридберговские состояния nP ($n = 30$ – 100) осуществляется по трехступенчатой схеме (рис. 1б). Первая ступень $5S_{1/2}(F = 3) \rightarrow 5P_{3/2}(F = 4)$ возбуждается охлаждающим лазером с длиной волны 780 нм, работающим в непрерывном режиме и имеющим красную отстройку $\delta_1/2\pi = -(10$ – $20)$ МГц. Частота излучения этого лазера стабилизирована методом DAVLL по поляризационному резонансу в поглощающей ячейке, помещенной в магнитное поле [33]. Измеренная по сигналу биений двух одинаковых лазеров ширина линии составляет $\Gamma_1/2\pi \approx 1$ МГц.

На второй ступени $5P_{3/2}(F = 4) \rightarrow 6S_{1/2}(F = 3)$ используется излучение с длиной волны 1367 нм от непрерывного одночастотного полупроводникового лазера с распределенной обратной связью (EMCORE 1622A-110) с мощностью до 20 мВт, со встроенным фарадеевским изолятором и оптоволоконным выходом. Часть излучения лазера направлялась в дополнительную поглощающую ячейку с атомами Rb, где оно смешивалось с модулированным по частоте излучением с длиной волны 780 нм от дополнительного полупроводникового лазера и привязывалось к центру атомного резонанса с нулевой отстройкой $\delta_2 = 0$ по методу работы [34]. Измеренная методом гомодинирования [12] ширина линии лазера составила $\Gamma_2/2\pi \approx 3$ МГц. На выходе из лазера были установлены два последовательных оптоволоконных электрооптических модулятора, благодаря чему излучение могло подаваться в область возбуждения в непрерывном или импульсном режиме с глубиной модуляции 40 дБ.

На третьей ступени ридберговские состояния nP

возбуждаются из состояния $6S_{1/2}(F = 3)$ излучением непрерывного кольцевого титан-сапфирового лазера с выходной мощностью 100 мВт. При перестройке длины волны излучения лазера в диапазоне 738–745 нм можно селективно возбуждать подуровни тонкой структуры $J = 1/2, 3/2$ ридберговских состояний nP с главным квантовым числом $n = 30$ – 100 . Частота излучения лазера стабилизируется по опорному конфокальному интерферометру Фабри–Перо. Измеренная по сигналу обратной связи ширина линии лазера составляет $\Gamma_3/2\pi \approx 0.2$ МГц. На выходе из лазера установлен акустооптический модулятор для работы в непрерывном или импульсном режиме.

Излучения лазеров второй и третьей ступеней подводятся к МОЛ по одномодовым оптическим волокнам. На выходе из волокон они коллимируются и затем фокусируются на облако холодных атомов в геометрии скрещенных пучков (рис. 1а) с диаметрами перетяжек 10 мкм для излучения 743 нм и 20 мкм для излучения 1367 нм. В области пересечения сфокусированных лучей формируется эффективный объем возбуждения ридберговских атомов размером 20–200 мкм, в зависимости от взаимного расположения перетяжек и наличия или отсутствия насыщения переходов. Излучение первой ступени 780 нм равномерно освещает объем возбуждения с шестью сторонами, согласно оптической схеме лазерного охлаждения.

3. СПЕКТРЫ ВОЗБУЖДЕНИЯ РИДБЕРГОВСКИХ СОСТОЯНИЙ

На рис. 2а приведен обзорный спектр возбуждения двух компонент тонкой структуры $J = 1/2, 3/2$ ридберговского состояния $37P$, полученный с непрерывным лазерным излучением на всех ступенях возбуждения. Частотный интервал между двумя пиками задает масштаб частот при сканировании отстройки δ_3 лазера третьей ступени. Из известных значений квантовых дефектов [35] можно рассчитать его значение — 2144 МГц.

Для нас наибольший интерес представляло изучение спектра возбуждения состояния $37P_{3/2}$, поскольку на нем нам удалось впервые наблюдать электрически управляемый резонанс Фёрстера $37P_{3/2} + 37P_{3/2} \rightarrow 37S_{1/2} + 38S_{1/2}$ между двумя ридберговскими атомами [32]. Резонанс Фёрстера достигался приложением электрического поля 1.79 В/см и сдвигом ридберговского уровня $37P_{3/2}$ точно посередине между двумя соседними уровнями $37S_{1/2}$ и $38S_{1/2}$ за счет эффекта Штарка.

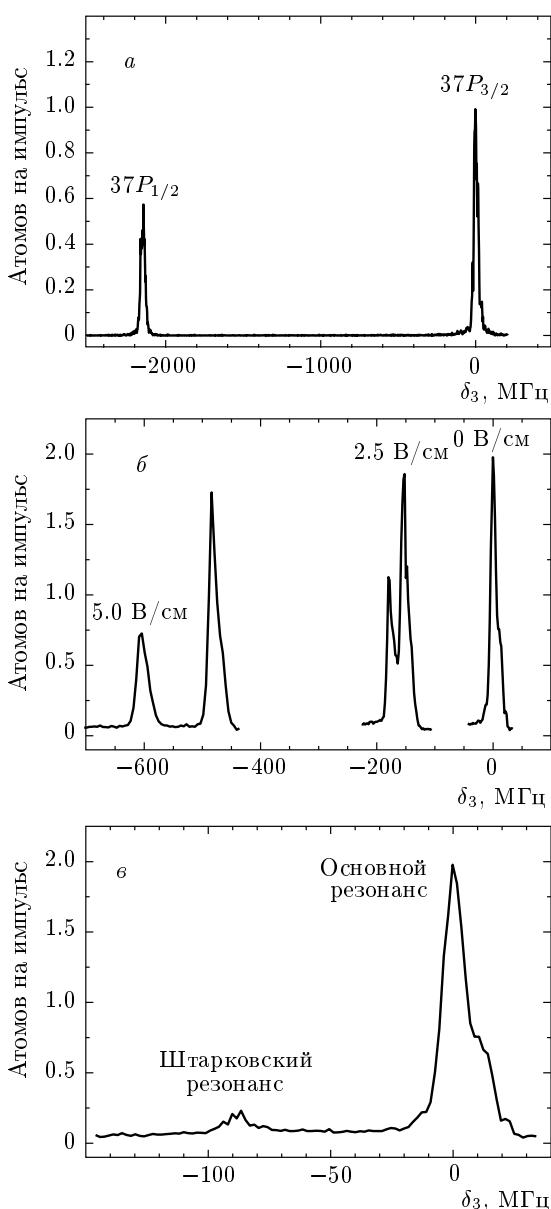


Рис. 2. а) Обзорный спектр возбуждения двух подуровней тонкой структуры ридберговского состояния $37P$. б) Эффект Штарка на переходе $6S_{1/2}(F = 3) \rightarrow 37P_{3/2}$. В электрическом поле состояние $37P_{3/2}$ расщепляется на два подуровня $|M_J| = 1/2, 3/2$ и сдвигается. в) Штарковское переключение уровней на переходе $6S_{1/2}(F = 3) \rightarrow 37P_{3/2}$ электрическим импульсом напряженностью 2 В/см и длительностью 2 мкс. Сильный пик — резонанс в отсутствие электрического поля, слабый пик — в электрическом поле

На рис. 2б показано, как изменяется спектр возбуждения состояния $37P_{3/2}$ вследствие эффекта Штарка для линейной σ -поляризации лазерного излучения. В слабом электрическом поле резонанс сдвигается в красную сторону и расщепляется на два штарковских подуровня с проекциями момента $|M_J| = 1/2, 3/2$. Величина расщепления хорошо согласуется с измеренным нами ранее значением тензорной поляризуемости состояния $37P_{3/2}$ [29].

Большие сдвиги резонансов в слабом электрическом поле позволяют использовать метод штарковского переключения уровней для простой реализации импульсного возбуждения ридберговских состояний. Ранее мы использовали этот метод для микроволновых переходов [36, 37], а для оптических переходов он применялся в работах [38–40]. На рис. 2в показан спектр возбуждения состояния $37P_{3/2}$ при приложении электрических импульсов амплитудой 2 В/см и длительностью 2 мкс, подаваемых перед каждым ионизирующим импульсом системы регистрации. В спектре наблюдается сильный несмещенный резонанс, соответствующий непрерывному возбуждению атомов лазерным излучением в отсутствие электрического поля, и слабый штарковский резонанс на отстроенной частоте, соответствующий импульсному возбуждению в электрическом поле. Запись сделана при π -поляризации лазерного излучения, когда в электрическом поле заселяется только один штарковский подуровень $37P_{3/2}(|M_J| = 1/2)$. Амплитуда штарковского резонанса заметно меньше амплитуды основного резонанса из-за большой разницы во времени взаимодействия атомов с излучением (около 100 раз).

На рис. 2в обращает на себя внимание явная асимметрия основного резонанса и присутствие в нем особенности в области синей отстройки. Для детального анализа этого явления нами были сделаны записи спектра возбуждения состояния $37P_{3/2}$ непрерывным σ -поляризованным лазерным излучением с более высоким спектральным разрешением и для различных интенсивностей и отстроек частот лазерных излучений (рис. 3а). Также для сравнения были сделаны записи спектров возбуждения высокого ридберговского состояния $77P_{3/2}$ (рис. 3б). В обоих случаях видно, что резонанс имеет двойную структуру и состоит из двух частично перекрывающихся пиков. Их природу можно понять из схемы трехфотонного лазерного возбуждения, изображенной на рис. 1б. Поскольку в работающей МОЛ лазер первой ступени имеет красную отстройку $\delta_1/2\pi = -(10-20)$ МГц, а лазер второй ступени настроен в точный резонанс $\delta_2 = 0$, трехфотонное

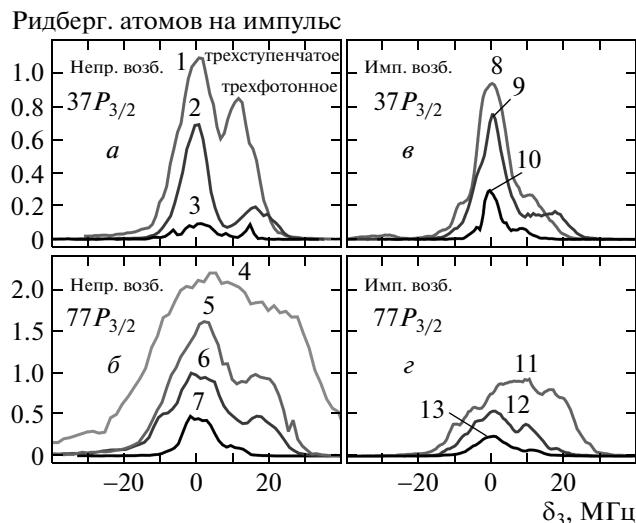


Рис. 3. Экспериментальные записи спектров трехфотонного лазерного возбуждения в непрерывном (*а, б*) и импульсном (*в, г*) режимах для ридберговских состояний $37P_{3/2}$ (*а, в*) и $77P_{3/2}$ (*б, г*) атомов Rb в работающей МОЛ. Номера спектров соответствуют записям при различных частотах Раби и отстройках охлаждающего лазера, часть из которых указана на рис. 6 (см. ниже)

возбуждение ридберговского состояния может проходить двумя путями для двух различных отстроек δ_3 лазера третьей ступени.

Первый путь, изображенный сплошными стрелками на рис. 1б, соответствует некогерентному трехступенчатому возбуждению. В этом случае промежуточное состояние $5P_{3/2}(F=4)$ сначала заселяется на крыле лоренцевского контура возбуждения первой ступени, а затем излучения второй и третьей ступени с отстройками $\delta_2 = \delta_3 = 0$ вызывают резонансные переходы из этого состояния на двух последующих ступенях. Минимальная ширина резонанса возбуждения ридберговского состояния при этом определяется обратным временем жизни состояния $6S_{1/2}(F=3)$ и составляет 3.2 МГц. Отметим, что при таком некогерентном трехступенчатом возбуждении три фотона могут поглощаться атомом в различные моменты времени в течение времени жизни промежуточных состояний.

Второй путь возбуждения, изображенный пунктирными стрелками на рис. 1б, соответствует когерентному трехфотонному возбуждению, когда все три фотона поглощаются одновременно. В этом случае возбуждение на первой ступени происходит через одетое состояние уровня $5P_{3/2}(F=4)$, имею-

щее сдвиг по энергии δ_1 (динамический штарковский сдвиг энергии пока не учитываем). На второй ступени при $\delta_2 = 0$ переход происходит также между двумя одетыми состояниями уровней $5P_{3/2}(F=4)$ и $6S_{1/2}(F=3)$, каждое из которых сдвинуто на δ_1 , так что уровень $6S_{1/2}(F=3)$ не заселяется. Наконец, на третьей ступени возбуждение идет на переходе из одетого состояния уровня $6S_{1/2}(F=3)$, для чего должно выполняться условие энергетического резонанса $\delta_1 + \delta_2 + \delta_3 = 0$. Поэтому в целом трехфотонный резонанс возникает при отстройке $\delta_3 = -\delta_1$. Ранее аналогичные двойные резонансы в холодных атомах Rb наблюдались для двухфотонных переходов [41–43].

Сравнение спектров возбуждения состояний $37P_{3/2}$ на рис. 3а и $77P_{3/2}$ на рис. 3б показывает, что в целом ширина резонанса $77P_{3/2}$ превышает ширину резонанса $37P_{3/2}$ в 1.5–2 раза. Различие ширин резонансов можно объяснить двумя следующими факторами. Во-первых, в системе регистрации ридберговских атомов может присутствовать нескомпенсированное поперечное электрическое поле напряженностью 50–100 мВ/см [30]. Для низкого состояния $37P_{3/2}$ оно дает лишь небольшой штарковский сдвиг менее 150 кГц и расщепление менее 30 кГц. Однако для высокого состояния $77P_{3/2}$ скалярная и тензорная поляризуемости больше в 100 раз (масштабная зависимость n^7), поэтому сдвиг и расщепление этого уровня могут достигать соответственно 15 и 3 МГц. Во-вторых, в ансамбле ридберговских атомов могут возникать дальнодействующие взаимодействия, которые также приводят к уширению резонансов. В отсутствие электрического поля для nP -состояний атомов Rb такое взаимодействие носит ван-дер-ваальсовский характер. Оценка энергии взаимодействия для состояния $37P_{3/2}$ и среднего расстояния между ридберговскими атомами 10 мкм дает малую величину 4 кГц. Однако для высокого состояния энергия взаимодействия больше в 2000 раз (масштабная зависимость n^{11}), поэтому уширение вследствие взаимодействий может достигать нескольких мегагерц.

Также были сделаны записи спектров возбуждения при импульсной модуляции лазеров второй и третьей ступеней с длительностью 4 мкс для состояний $37P_{3/2}$ (рис. 3в) и $77P_{3/2}$ (рис. 3г). Сравнение с записями для непрерывного возбуждения (рис. 3а, б) показывает, что при импульсной модуляции резонансы в целом получаются более узкими, что, по-видимому, связано с отсутствием лазерного разогрева атомного ансамбля, но также имеют двойную структуру. Минимальная ширина трехступен-

чаторого резонанса для состояния $37P_{3/2}$ была получена при импульсной модуляции и равна 4.5 МГц (запись 10), она близка к естественной ширине 3.2 МГц. Для состояния $77P_{3/2}$ минимальная ширина 9 МГц была получена при непрерывном возбуждении (запись 7). Остальные записи на рис. 3 соответствуют большим интенсивностям лазерных излучений и демонстрируют уширение резонансов и рост их амплитуды. Для более детального анализа ширины и формы резонансов необходимо выполнить теоретическое моделирование резонансов и провести их сравнение с экспериментальными данными рис. 3.

4. ТЕОРЕТИЧЕСКАЯ МОДЕЛЬ В ЧЕТЫРЕХУРОВНЕВОМ ПРИБЛИЖЕНИИ

В теоретическом анализе мы обозначим состояние $5S_{1/2}(F = 3)$ как состояние 0, $5P_{3/2}(F = 4)$ — как 1, $6S_{1/2}(F = 3)$ — как 2 и ридберговское состояние $nP_{3/2}$ — как 3 (рис. 4a). Для каждого промежуточного однофотонного перехода $j = 1, 2, 3$ введем соответствующую частоту Раби $\Omega_j = d_j E_j / \hbar$ (здесь d_j — дипольные моменты однофотонных переходов, E_j — амплитуды электрического поля для линейно поляризованных световых полей) и отстройку δ_j . Сканирование полной отстройки $\delta = \delta_1 + \delta_2 + \delta_3$ трехфотонного перехода $0 \rightarrow 3$ может осуществляться сканированием отстройки любого перехода.

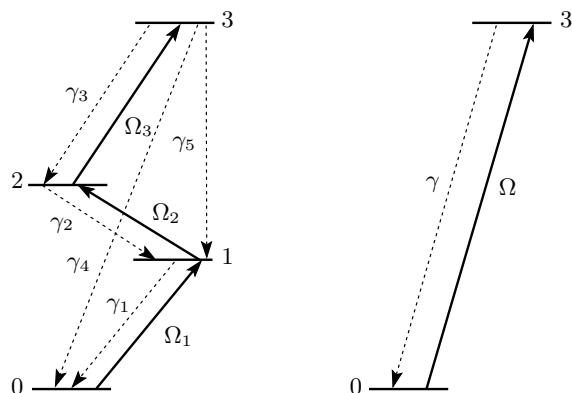


Рис. 4. а) Четырехуровневая модель трехфотонного лазерного возбуждения из основного состояния 0 в ридберговское состояние 3 через промежуточные уровни 1 и 2. б) Эквивалентная двухуровневая схема когерентного трехфотонного возбуждения при больших отстройках промежуточных уровней. В качестве Ω используется трехфотонная частота Раби, а γ — полная скорость распада ридберговского состояния

Как было показано нами в работе [19], в отсутствие спонтанной релаксации всех уровней и при достаточно больших отстройках промежуточных резонансов $\Omega_1 \ll |\delta_1|$, $\Omega_2 \ll |\delta_2|$ населенность ридберговского состояния может быть рассчитана путем решения уравнения Шредингера для нахождения амплитуд вероятностей a_j каждого уровня $j = 0-3$ в приближении врачающейся волны. В результате получается следующая зависимость населенности ридберговского состояния от времени взаимодействия t при когерентном трехфотонном лазерном возбуждении:

$$|a_3|^2 \approx \frac{\Omega^2}{\Omega^2 + (\delta + \Delta_0 + \Delta_3)^2} \times \frac{1 - \cos(t\sqrt{\Omega^2 + (\delta + \Delta_0 + \Delta_3)^2})}{2}, \quad (1)$$

где $\Omega = \Omega_1 \Omega_2 \Omega_3 / 4\delta_1 \delta_3$ — частота Раби для трехфотонного возбуждения, а $\Delta_0 = \Omega_1^2 / 4\delta_1$ и $\Delta_3 = \Omega_3^2 / 4\delta_3$ — световые сдвиги соответственно состояний 0 и 3. Уравнение (1) показывает, что условием точного трехфотонного резонанса является $\delta + \Delta_0 + \Delta_3 = 0$, при этом населенность осциллирует между основным и ридберговским состоянием на частоте Ω . Уравнение (1) также дает спектр возбуждения ридберговского состояния при сканировании δ для фиксированного времени взаимодействия t_0 .

Теперь рассмотрим более реалистичную теоретическую модель, в которой учитывается спонтанная релаксация возбужденных уровней 1–3. В четырехуровневом приближении ее можно учесть введением спонтанных переходов со скоростями $\gamma_1, \dots, \gamma_5$, как показано на рис. 4a. Скорости $\gamma_1 = 3.7 \cdot 10^7 \text{ с}^{-1}$ и $\gamma_2 = 2.0 \cdot 10^7 \text{ с}^{-1}$ соответствуют прямым спонтанным переходам в реальном атоме и определяются обратными временами жизни уровней 1 и 2. Скорость γ_3 соответствует всем возможным каналам спонтанной релаксации ридберговского состояния в состояние $6S_{1/2}$, включая как прямую релаксацию, так и релаксацию через все возможные промежуточные ридберговские состояния, заселяемые при спонтанном распаде начального ридберговского состояния и под действием фонового теплового излучения [9, 21]. Аналогично, скорость γ_4 соответствует всем каналам спонтанного распада в состояние $5S_{1/2}$, а скорость γ_5 — всем каналам спонтанного распада в состояние $5P_{3/2}$. Поскольку точный учет всех каналов распада ридберговского состояния в уравнениях практически невозможен, мы взяли скорости $\gamma_3, \gamma_4, \gamma_5$ одинаковыми и равными одной трети обратного времени жизни τ_R ридберговского состояния

при окружающей температуре 300 К ($\tau_R = 43$ мкс для состояния $37P_{3/2}$ и $\tau_R = 242$ мкс для состояния $77P_{3/2}$ [9]).

Для расчета спектра возбуждения ридберговского состояния 3 в четырехуровневой модели рис. 4а требуется применять уравнения для матрицы плотности ρ_{ij} . Наиболее удобной формой их записи являются оптические уравнения Блоха [44], в которых путем замены переменных исключены комплексные экспоненты, а отстройки $\delta_1, \delta_2, \delta_3$ фигурируют только в уравнениях для приведенных оптических когерентностей ($i \neq j$) и отсутствуют в уравнениях для населенностей ($i = j$). Например, эволюция оптической когерентности между основным и ридберговским состояниями описывается выражением

$$\dot{\rho}_{03} = - \left[\frac{\gamma_3 + \gamma_4 + \gamma_5}{2} + i(\delta_1 + \delta_2 + \delta_3) \right] \rho_{03} - i \frac{1}{2} \Omega_1 \rho_{13} + i \frac{1}{2} \Omega_3 \rho_{02}. \quad (2)$$

Найти точное аналитическое решение для населенности ρ_{03} ридберговского состояния при произвольных частотах Раби и отстройках не представляется возможным, поэтому в общем случае необходимо решать задачу численно. Однако для когерентного трехфотонного возбуждения при достаточно больших отстройках $\delta_3 = -\delta_1$ можно найти сравнительно простое решение по аналогии с решением для двухуровневой системы с релаксацией. Поскольку при когерентном трехфотонном возбуждении населены только основное и ридберговское состояния, а населенность в резонансе осциллирует между ними с трехфотонной частотой Раби Ω согласно уравнению (1), четырехуровневая система на рис. 4а в некотором приближении должна быть эквивалентна двухуровневой системе с релаксацией на рис. 4б, где скорость релаксации верхнего уровня γ равна обратному времени жизни ридберговского состояния.

В модельной двухуровневой системе на рис. 4б приближенный аналитический расчет населенности возбужденного состояния 3 возможен для случаев слабого ($\Omega \ll \gamma$) либо сильного ($\Omega \gg \gamma$) возбуждения. Мы получили следующие аналитические решения:

$$\rho_{03}^{weak} \approx \frac{\Omega^2}{2\Omega^2 + \gamma^2 + 4\delta^2} \times \left[1 + e^{-\gamma t} - 2e^{-\gamma t/2} \cos \left(t\sqrt{\Omega^2 + \delta^2} \right) \right], \quad (3)$$

$$\begin{aligned} \rho_{03}^{strong} \approx & \frac{\Omega^2}{2\Omega^2 + \gamma^2 + 4\delta^2} \times \\ & \times \left[1 - \exp \left(-\frac{2\Omega^2 + \delta^2}{4\Omega^2 + \delta^2} \gamma t \right) \right] + \\ & + \frac{\Omega^2/2}{\Omega^2 + \delta^2} \left[\exp \left(-\frac{2\Omega^2 + \delta^2}{4\Omega^2 + \delta^2} \gamma t \right) - \right. \\ & \left. - \exp \left(-\frac{6\Omega^2 + \delta^2}{4\Omega^2 + \delta^2} \frac{\gamma t}{2} \right) \cos \left(t\sqrt{\Omega^2 + \delta^2} \right) \right]. \end{aligned} \quad (4)$$

Сравнение формулы (4) с более простой формулой (1) для модели без релаксации показывает, что формула (1) применима на коротких временах взаимодействия ($\gamma t \ll 1$). При больших временах взаимодействия ($\gamma t \gg 1$) осцилляции Раби затухают и населенность принимает стационарное значение, одинаковое для формул (3) и (4). Сравнение формул (3) и (4) с результатами точных численных расчетов показало, что они применимы во всех случаях, кроме $\Omega \sim \gamma$, и уже при $\Omega < 3\gamma$ и $\Omega > 3\gamma$ имеют хорошую точность. Эти формулы полезны для быстрых расчетов вероятности возбуждения, спектра перехода и временной эволюции населенностей, а также позволяют легко анализировать различные предельные случаи. Для того чтобы применить формулы (3) и (4) к аналитическому описанию спектра когерентного трехфотонного возбуждения, в них следует положить $\Omega = \Omega_1 \Omega_2 \Omega_3 / 4\delta_1 \delta_3$ (трехфотонная частота Раби), $\gamma = \gamma_3 + \gamma_4 + \gamma_5$ (обратное время жизни ридберговского состояния) и сделать замену $\delta \rightarrow \delta + \Delta_0 + \Delta_3$ для учета полевого сдвига трехфотонного резонанса.

5. СРАВНЕНИЕ ТЕОРЕТИЧЕСКИХ И ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫХ ДАННЫХ

На рис. 5а–г показаны результаты численного расчета спектров трехфотонного возбуждения ридберговских состояний для различных частот Раби на второй и третьей ступенях возбуждения и для двух времен взаимодействия 4 и 200 мкс. Частота Раби на первой ступени $\Omega_1/2\pi = 10$ МГц и отстройка $\delta_1/2\pi = -15$ МГц близки к измеренным экспериментальным значениям, а ширины линий излучения всех лазеров пока положены равными нулю ($\Gamma_1 = \Gamma_2 = \Gamma_3 = 0$). В этих условиях в расчетном спектре наблюдается узкий резонанс когерентного трехфотонного возбуждения с шириной менее 1 МГц и некогерентный трехступенчатый резонанс с шириной около 5 МГц. Изменение времени взаимодействия или частот Раби влияет только на амплитуду трехфотонного резонанса, но не изменяет его ширину, в то время как трехступенчатый резонанс

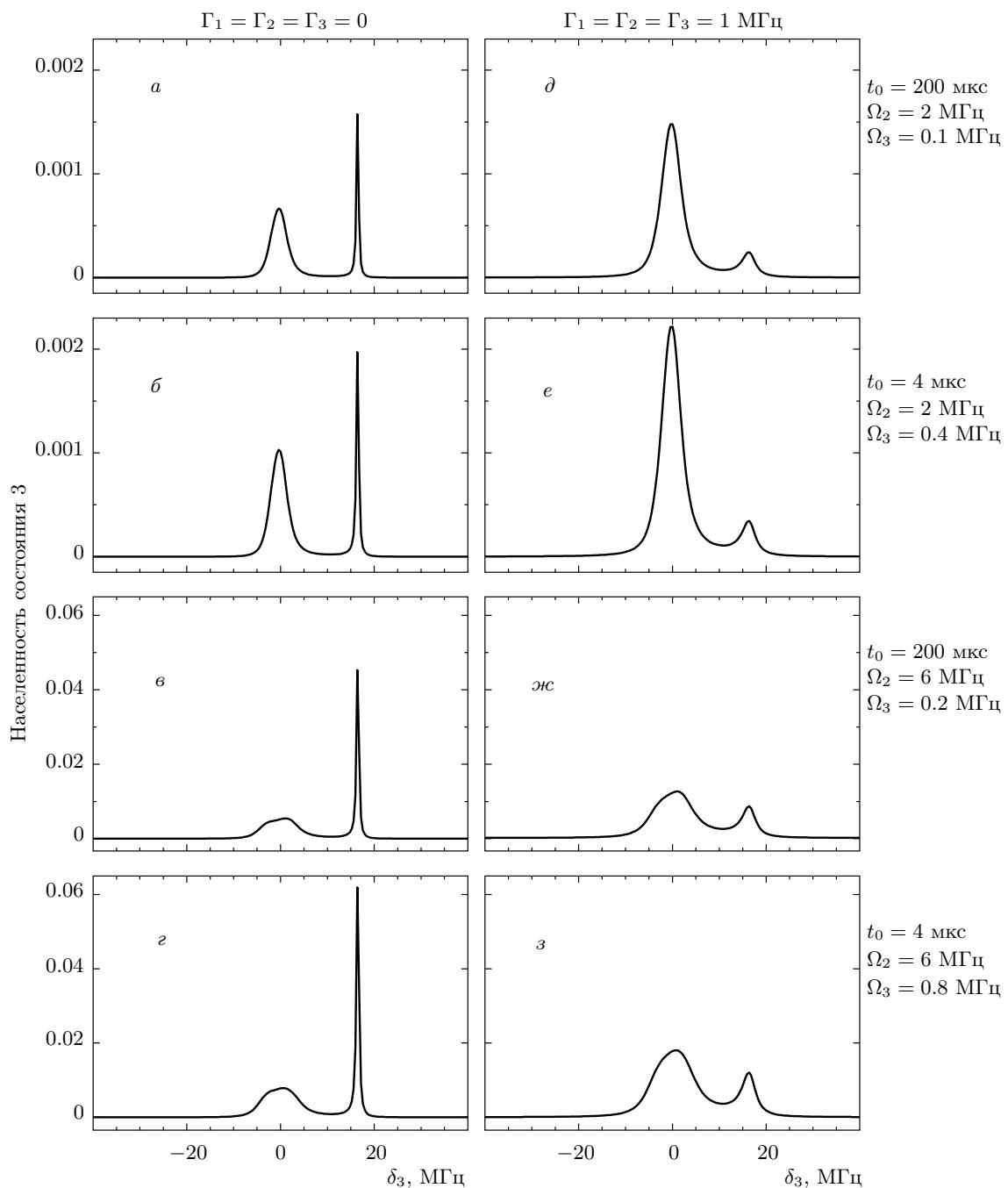


Рис. 5. Теоретические спектры трехфотонного возбуждения для монохроматического (a – g) и немонохроматического (d – f) лазерного излучения (ширины линий лазеров Γ_1 , Γ_2 , Γ_3) и непрерывного (a , b , d , e) или импульсного (c , e , f , g) возбуждения. Указаны частоты Раби для второй Ω_2 и третьей Ω_3 ступеней. Частота Раби первой ступени равна 10 МГц. Отстройка первой ступени $\delta_1 = -15$ МГц, второй ступени $\delta_2 = 0$. Эти значения соответствуют типичным экспериментальным условиям. Время жизни ридберговского состояния 43 мкс

уширяется при увеличении частоты Раби на второй ступени. Во всех случаях амплитуда трехфотонного резонанса оказывается больше амплитуды трехступенчатого, что находится в явном противоречии с экспериментальными записями на рис. 3.

Было высказано предположение, что наблюдаемое расхождение между теорией и экспериментом обусловлено неучтенный в теории конечной шириной линий трех лазеров, а также дополнительными источниками уширения, обсуждавшимися во Введении. Для их учета оптические уравнения Блоха были модифицированы следующим образом. В уравнениях для оптических когерентностей в каждую отстройку δ_i была добавлена мнимая часть, равная по модулю $\Gamma_i/2$ и взятая с правильным знаком для внесения дополнительного затухания в когерентности, например:

$$\dot{\rho}_{03} = - \left[\frac{\gamma_3 + \gamma_4 + \gamma_5}{2} + i(\delta_1 + \delta_2 + \delta_3) + \right. \\ \left. + \frac{\Gamma_1 + \Gamma_2 + \Gamma_3}{2} \right] \rho_{03} - i \frac{1}{2} \Omega_1 \rho_{13} + i \frac{1}{2} \Omega_3 \rho_{02}. \quad (5)$$

Данная модель учета ширины линии лазеров носит название модели диффузии фазы и описывает случай, когда в лазерном излучении присутствуют случайные флуктуации фазы, но отсутствуют амплитудные флуктуации [45]. Обоснование справедливости этой модели было дано в работе [46]. Отметим, что в такой модели спектр излучения лазера имеет лоренцеву форму, что характерно для полупроводниковых лазеров, однако другие типы лазеров (например, используемый нами на третьей ступени титан-сапфировый лазер) могут иметь гауссов профиль с более быстрым убыванием на крыльях. Поэтому теоретические спектры возбуждения ридберговских состояний в этой модели могут иметь некоторые расхождения с экспериментальными данными на крыльях резонансов.

На рис. 5 δ -з показаны результаты численного расчета спектров трехфотонного возбуждения ридберговских состояний с теми же значениями частот Раби и отстроек, что и на рис. 5 а-г, но при ширинах линий лазеров $\Gamma_1 = \Gamma_2 = \Gamma_3 = 2\pi \cdot 1$ МГц. Видно заметное уширение обоих резонансов и изменение соотношения их амплитуд. Последнее обстоятельство объясняется тем, что при учете ширины линии лазеров скорость затухания когерентности в уравнении (5) возрастает, что эквивалентно уменьшению эффективного времени взаимодействия. Расчетные спектры на рис. 5 δ -з теперь имеют характер, близкий к экспериментальным записям на рис. 3, как по ширине обоих резонансов, так и по соотношению их

амплитуд. Это означает, что, варьируя частоты Раби, отстройки и ширины линий трех лазеров, можно подогнать теоретические кривые к экспериментальным данным. Однако для уменьшения количества степеней свободы часть параметров, которые можно измерить, следует зафиксировать или ограничить диапазон их изменения в соответствии с экспериментальными значениями. Обсудим их более подробно.

На первой ступени возбуждения используется излучение лазера с длиной волны 780 нм, направленное на облако холодных атомов Rb с шести сторон и воспринимаемое атомами как изотропное [47]. Суммарная интенсивность шести лучей равна $I = 24$ мВт/см², что соответствует $\Omega_1 \approx 2\pi \cdot 10.4$ МГц. Отстройка первой ступени δ_1 варьируется от -10 до -20 МГц. К измеренной ширине линии лазера первой ступени (1 МГц) надо еще добавить остаточное доплеровское уширение 0.36 МГц для температуры атомов в МОЛ 150 мК и возможное зеемановское расщепление 0–0.5 МГц в неоднородном магнитном поле работающей МОЛ. Таким образом, полное уширение на первой ступени может изменяться в диапазоне $\Gamma_1/2\pi \approx 1.4$ –1.9 МГц и также является подголосочным параметром.

На второй ступени возбуждения при используемой мощности излучения от 5 нВт до 10 мкВт усредненная по сечению сфокусированного луча частота Раби Ω_2 изменяется от 0.5 до 25 МГц. Отстройка второй ступени δ_2 устанавливалась равной нулю. Измеренная ширина линии лазера второй ступени равна 3 МГц. К ней также надо добавить остаточное доплеровское уширение 0.2 МГц и зеемановское уширение 0–0.5 МГц. В результате полное уширение на второй ступени возбуждения может изменяться в интервале $\Gamma_2/2\pi \approx 3.2$ –3.7 МГц.

На третьей ступени возбуждения при мощности излучения от 2 до 50 мВт частота Раби изменяется в пределах 1–5 МГц для состояния $37P_{3/2}$ и 0.3–1.5 МГц для состояния $77P_{3/2}$ (рассчитанные значения дипольных моментов переходов в эти состояния отличаются в 3.4 раза [48]). С учетом измеренной ширины линии лазера третьей ступени (0.2 МГц), остаточного доплеровского уширения 0.38 МГц и зеемановского уширения 0–0.5 МГц получаем, что для состояния $37P_{3/2}$ полное уширение на третьей ступени может изменяться в интервале $\Gamma_3/2\pi \approx 0.6$ –1.1 МГц. Для высокого состояния $77P_{3/2}$ может иметь место дополнительное уширение от паразитного электрического поля и дальнодействующих взаимодействий, поэтому для него полное уширение выбираем изменяющимся в диапазоне 0.6–5 МГц.

Ридберг. атомов на импульс

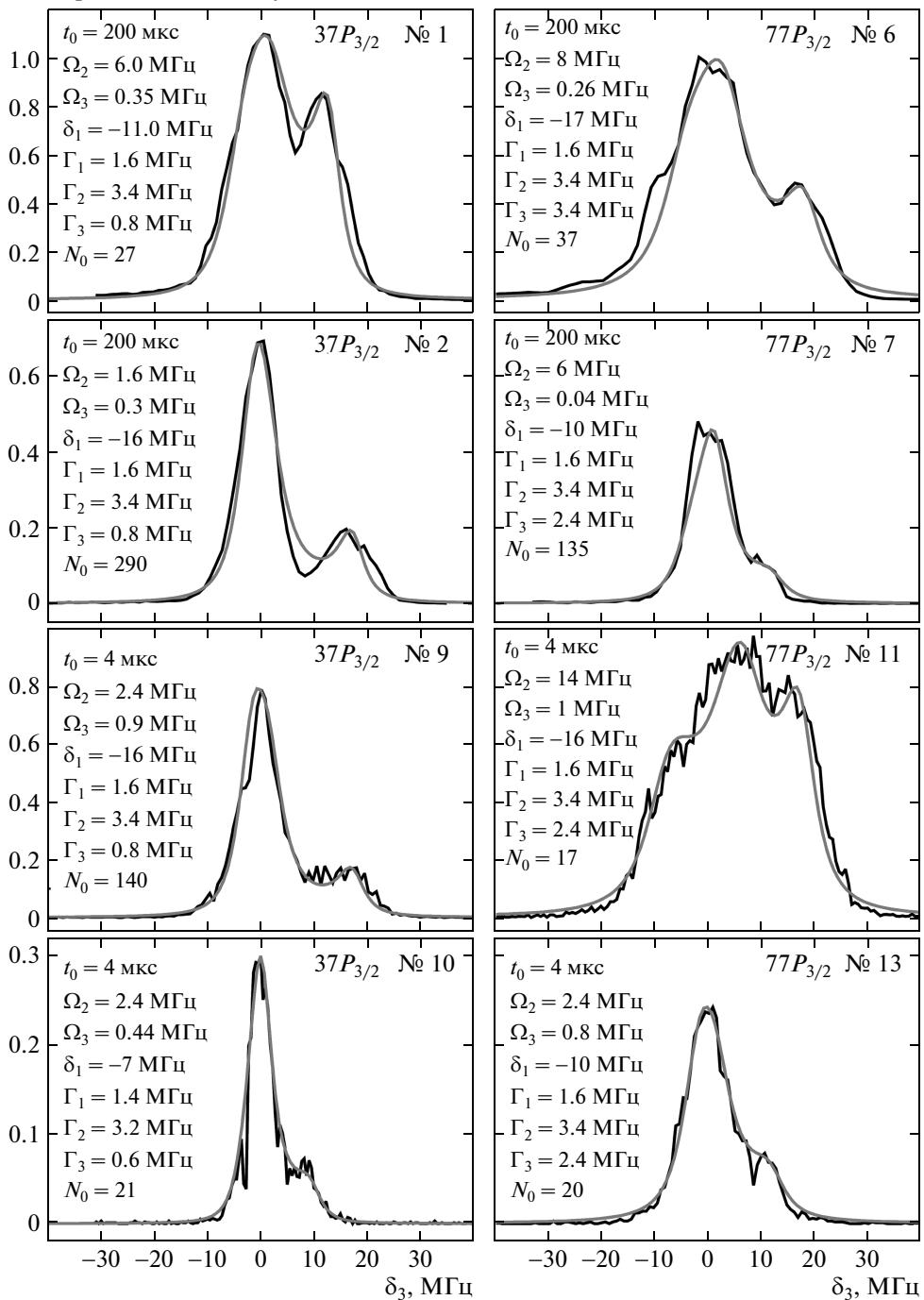


Рис. 6. Сравнение экспериментальных (черные кривые) и теоретических (серые кривые) данных. Показаны параметры, использованные для подгонки теоретической модели, и номера экспериментальных записей из рис. 3. Частота Раби на первой ступени $\Omega_1 = 10.4 \text{ МГц}$

Окончательная подгонка требует также уравнять амплитуды теоретических кривых и резонансов на экспериментальных записях. Сигнал, который измеряется в экспериментах, соответствует среднему числу ридберговских атомов, зарегистрированных за один ионизирующий импульс детектора (усреднение выполняется по большому числу импульсов $\sim 10^4$). Он равен произведению числа атомов в основном состоянии в объеме возбуждения N_0 и вероятности возбуждения ридберговского состояния ρ_{33} . Число атомов N_0 заранее неизвестно и поэтому является еще одним подгоночным параметром.

На рис. 6 приведены результаты подгонки теоретических кривых для ряда экспериментальных записей из рис. 3 (их номера указаны на рис. 6). Видно, что при тщательном подборе всех параметров теоретической модели удается добиться довольно хорошего согласия между теорией и экспериментом во всех записях. Эти параметры указаны на соответствующих рисунках, за исключением фиксированной частоты Раби на первой ступени $\Omega_1 = 2\pi \cdot 10.4$ МГц. Некоторые различия возникают лишь на крыльях резонансов, а также в точке пересечения двух резонансов, вследствие лоренцева профиля уширения в модели диффузии фазы.

6. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Четырехуровневая теоретическая модель, использованная нами для описания спектров трехфотонного возбуждения ридберговских состояний nP в атомах Rb, является сравнительно простой и не учитывает многих аспектов лазерного возбуждения в реальных экспериментах. К этим аспектам относятся наличие сверхтонкой и зеемановской структуры всех состояний, спонтанный распад состояния $6S_{1/2}$ через промежуточное состояние $5P_{1/2}$, огромное число каналов спонтанного распада ридберговских состояний через все возможные промежуточные состояния, неоднородность распределения интенсивностей лазерных лучей по объему возбуждения и лазерный разогрев ансамбля атомов при больших временах взаимодействия. Дополнительное уширение резонансов учитывается в простой модели диффузии фазы с лоренцевским контуром уширения, что не всегда соответствует форме спектра излучения реальных лазеров.

Тем не менее, рис. 6 демонстрирует, что при тщательном подборе всех параметров предложенная нами теоретическая модель дает хорошее согласие с

экспериментальными данными для различных ситуаций — больших и малых времен взаимодействия, изменения частот Раби и отстроек в широком интервале значений, присутствия паразитных электромагнитных полей. Это означает, что используемая модель позволяет выявлять различные факторы, приводящие к уширению резонансов возбуждения ридберговских состояний, и измерять или уточнять неизвестные экспериментальные параметры (частоты Раби, отстройки, число атомов в объеме возбуждения).

По результатам проведенных исследований очевидно, что дальнейшее улучшение спектрального разрешения в наших экспериментах требует сужения ширины линии каждого из лазеров до величины менее 100 кГц. Это позволит реализовать предложенную нами схему трехфотонного возбуждения ридберговских состояний без эффектов Доплера и отдачи в звездообразной геометрии [19], изучать дипольную блокаду [7] и дальнодействующие взаимодействия в ансамблях ридберговских атомов [12], наблюдать осцилляции Раби при возбуждении ридберговских состояний [13], а также реализовать детерминированное возбуждение одиночных ридберговских атомов на основе дипольной блокады и лазерных импульсов с чирпом частоты [49].

Авторы выражают признательность К. Рзажевскому (K. Rzazewski), Т. Пфау (T. Pfau) и А. В. Тайченачеву за полезные обсуждения, а также В. Л. Ревуцкому и В. Г. Гольдорту за техническое обеспечение работы. Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (гранты №№ 10-02-00133, 13-02-00283), программ РАН и СО РАН, Президента РФ (гранты №№ МК-3727.2011.2, МК-7060.2012.2), фонда «Династия», проекта FP7-PEOPLE-2009-IRSES «COLIMA» и Российского квантового центра.

ЛИТЕРАТУРА

1. M. Saffman, T. G. Walker, and K. Mølmer, Rev. Mod. Phys. **82**, 2313 (2010).
2. I. I. Ryabtsev, D. B. Tretyakov, and I. I. Beterov, J. Phys. B **38**, S421 (2005).
3. T. Pohl, E. Demler, and M. D. Lukin, Phys. Rev. Lett. **104**, 043002 (2010).
4. F. Cinti, P. Jain, M. Boninsegni, A. Micheli, P. Zoller, and G. Pupillo, Phys. Rev. Lett. **105**, 135301 (2010).

5. T. Cubel, B. K. Teo, V. S. Malinovsky, J. R. Guest, A. Reinhard, B. Knuffman, P. R. Berman, and G. Raithel, Phys. Rev. A **72**, 023405 (2005).
6. M. Reetz-Lamour, J. Deiglmayr, T. Amthor, and M. Weidemüller, New J. Phys. **10**, 045026 (2008).
7. D. Comparat and P. Pillet, J. Opt. Soc. Amer. B **27**, A208 (2010).
8. Y. Miroshnychenko, A. Gaetan, C. Evellin, P. Grangier, D. Comparat, P. Pillet, T. Wilk, and A. Broewaeys, Phys. Rev. A **82**, 013405 (2010).
9. I. I. Beterov, I. I. Ryabtsev, D. B. Tretyakov, and V. M. Entin, Phys. Rev. A **79**, 052504 (2009).
10. D. B. Brandenberger, T. Juhasz, T. Mahlokozera, C. Vesa, R. O. Wilson, M. Zheng, A. Kortyna, and D. A. Tate, J. Phys. B **43**, 015002 (2010).
11. B. Butscher, J. Nipper, J. B. Balewski, L. Kukota, V. Bendkowsky, R. Löw, and T. Pfau, Nature Phys. **6**, 970 (2010).
12. R. Löw, H. Weimer, J. Nipper, J. B. Balewski, B. Butscher, H. P. Buchler, and T. Pfau, J. Phys. B **45**, 113001 (2012).
13. Y. O. Dudin, L. Li, F. Bariani, and A. Kuzmich, arXiv:1205.7061.
14. T. Vogt, M. Viteau, A. Chotia, J. Zhao, D. Comparat, and P. Pillet, Phys. Rev. Lett. **99**, 073002 (2007).
15. C. S. E. van Ditzhuijzen, A. F. Koenderink, J. V. Hernandez, F. Robicheaux, L. D. Noordam, and H. B. van Linden van den Heuvell, Phys. Rev. Lett. **100**, 243201 (2008).
16. M. Viteau, J. Radogostowicz, A. Chotia, M. G. Bason, N. Malossi, F. Fuso, D. Ciampini, O. Morsch, I. I. Ryabtsev, and E. Arimondo, J. Phys. B **43**, 155301 (2010).
17. M. P. Robinson, B. Laburthe Tolra, M. W. Noel, T. F. Gallagher, and P. Pillet, Phys. Rev. Lett. **85**, 4466 (2000).
18. T. Killian, T. Pattard, T. Pohl, and J. Rost, Phys. Rep. **449**, 77 (2007).
19. I. I. Ryabtsev, I. I. Beterov, D. B. Tretyakov, V. M. Entin, and E. A. Yakshina, Phys. Rev. A **84**, 053409 (2011).
20. K. Afrousheh, P. Bohlouli-Zanjani, J. D. Carter, A. Mugford, and J. D. D. Martin, Phys. Rev. A **73**, 063403 (2006).
21. I. I. Beterov, D. B. Tretyakov, I. I. Ryabtsev, V. M. Entin, A. Ekers, and N. N. Bezuglov, New J. Phys. **11**, 013052 (2009).
22. B. Sanguinetti, H. O. Majeed, M. L. Jones, and B. T. H. Varcoe, J. Phys. B **42**, 165004 (2009).
23. P. Thoumany, Th. Germann, T. Hänsch, G. Stania, L. Urbonas, and Th. Becker, J. Mod. Opt. **56**, 2055 (2009).
24. J. R. Brandenberger and G. S. Malyshev, Phys. Rev. A **81**, 032515 (2010).
25. L. A. M. Johnson, H. O. Majeed, B. Sanguinetti, Th. Becker, and B. T. H. Varcoe, New J. Phys. **12**, 063028 (2010).
26. D. P. Fahey and M. W. Noel, Opt. Express **19**, 17002 (2011).
27. L. A. M. Johnson, H. O. Majeed, and B. T. H. Varcoe, Appl. Phys. B **106**, 257 (2012).
28. C. Carr, M. Tanasittikosol, A. Sargsyan, D. Sarkisyan, C. S. Adams, and K. J. Weatherill, Opt. Lett. **37**, 3858 (2012).
29. Д. Б. Третьяков, И. И. Бетеров, В. М. Энтин, И. И. Рябцев, П. Л. Чаповский, ЖЭТФ **135**, 428 (2009).
30. Д. Б. Третьяков, И. И. Бетеров, В. М. Энтин, Е. А. Якшина, И. И. Рябцев, С. Ф. Дюбко, Е. А. Алексеев, Н. Л. Погребняк, Н. Н. Безуглов, Э. Аrimondo, ЖЭТФ **141**, 18 (2012).
31. I. I. Ryabtsev, D. B. Tretyakov, I. I. Beterov, and V. M. Entin, Phys. Rev. A **76**, 012722 (2007); *Erratum*: Phys. Rev. A **76**, 049902(E) (2007).
32. I. I. Ryabtsev, D. B. Tretyakov, I. I. Beterov, and V. M. Entin, Phys. Rev. Lett. **104**, 073003 (2010).
33. K. L. Corwin, Z.-T. Lu, C. F. Hand, R. J. Epstein, and C. E. Wieman, Appl. Opt. **37**, 3295 (1998).
34. H. S. Moon, Appl. Opt. **47**, 1097 (2008).
35. W. Li, I. Mourachko, M. W. Noel, and T. F. Gallagher, Phys. Rev. A **67**, 052502 (2003).
36. I. I. Ryabtsev and I. M. Beterov, Phys. Rev. A **61**, 063414 (2000).
37. I. I. Ryabtsev, D. B. Tretyakov, and I. I. Beterov, J. Phys. B **36**, 297 (2003).
38. S. Westermann, T. Amthor, A. L. de Oliveira, J. Deiglmayr, M. Reetz-Lamour, and M. Weidemüller, Europ. Phys. J. D **40**, 37 (2006).
39. J. Nipper, J. B. Balewski, A. T. Krupp, B. Butscher, R. Löw, and T. Pfau, Phys. Rev. Lett. **108**, 113001 (2012).

40. J. Nipper, J. B. Balewski, A. T. Krupp, S. Hofferberth, R. Löw, and T. Pfau, Phys. Rev. X **2**, 031011 (2012).
41. L. Krzemien, K. Baster, K. Brzozowski, A. Wojciechowski, J. Zachorowski, and W. Gawlik, Opt. Appl. **XL**, 571 (2010).
42. M. Viteau, J. Radogostowicz, M. G. Bason, N. Malossi, D. Ciampini, O. Morsch, and E. Arimondo, Opt. Express **19**, 6007 (2011).
43. А. В. Акимов, Е. О. Терещенко, С. А. Снигирев, А. Ю. Самокотин, А. В. Соколов, В. Н. Сорокин, КЭ **40**, 139 (2010).
44. S. Stenholm, *Foundations of Laser Spectroscopy*, Dover, Mineola, New York (2005).
45. G. S. Agarwal, Phys. Rev. Lett. **37**, 1383 (1976).
46. K. Wódkiewicz, Phys. Rev. A **19**, 1686 (1979).
47. D. A. Steck, *Rubidium 85 D Line Data*, <http://steck.us/alkalidata>.
48. I. I. Beterov, C. W. Mansell, E. A. Yakshina, I. I. Ryabtsev, D. B. Tretyakov, V. M. Entin, C. MacCormick, M. J. Piotrowicz, A. Kowalczyk, and S. Bergamini, arXiv:1207.3626.
49. I. I. Beterov, D. B. Tretyakov, V. M. Entin, E. A. Yakshina, I. I. Ryabtsev, C. MacCormick, and S. Bergamini, Phys. Rev. A **84**, 023413 (2011).