### Трехфотонное лазерное возбуждение мезоскопических ансамблей холодных ридберговских атомов рубидия

Е.А.Якшина, Д.Б.Третьяков, В.М.Энтин, И.И.Бетеров, И.И.Рябцев

Исследованы спектры трехфотонного лазерного возбуждения по схеме  $5S_{1/2} \rightarrow 5P_{3/2} \rightarrow 6S_{1/2} \rightarrow 37P_{3/2}$  мезоскопических ансамблей холодных ридберговских атомов Rb в магнитооптической ловушке с использованием непрерывных одночастотных лазеров на каждой ступени. Ансамбли состояли из 1-5 атомов, и их наличие регистрировалось методом селективной полевой ионизации с постселекцией по числу атомов. Изучена зависимость формы спектра от длительности возбуждающих лазерных импульсов. Для импульсов длительностью 2 мкс минимальная ишрина спектра составляла 1.3 МГц и была обусловлена ширинами линий излучения лазеров и спектральной шириной, определяемой длительностью лазерных импульсов. Для импульсов длительностью 2 мкс наблюдались дополнительное уширение спектров и появление осцилляций Раби на крыльях трехфотонных резонансов, что говорит о достижении нами когерентного трехфотонного лазерного возбуждения ридберговских атомов. Анализ спектров в рамках четырехуровневой теоретической модели на основе оптических уравнений Блоха показал хорошее согласие экспериментальных и теоретических результатов. Была исследована также зависимость формы спектра трехфотонного возбуждения от числа регистрируемых атомов. При увеличении среднего числа атомов в спектрах одноатомного возбуждения наблюдался провал, обусловленный спецификой статистики возбуждения и регистрации ридберговских атомов. Полученные результаты важны для использования ридберговских атомов в квантовой информатике.

**Ключевые слова:** ридберговские атомы, трехфотонное возбуждение, спектроскопия, статистика регистрации, лазерное охлаждение.

#### 1. Введение

Ридберговские атомы с главным квантовым числом  $n \gg 1$  представляют собой уникальный объект для спектроскопии высокого разрешения и экспериментов в области квантовой электродинамики благодаря большим временам жизни, частотам переходов, лежащим в ИК и микроволновой областях спектра, дипольным моментам переходов порядка тысяч атомных единиц и более, а также высокой чувствительности к внешним электромагнитным полям [1]. Для слабосвязанного электрона в ридберговском атоме можно построить точные теоретические модели взаимодействия с электромагнитным полям и проводить сравнение результатов моделирования и эксперимента.

Уникальной особенностью ридберговских атомов является возможность их детектирования методом селективной полевой ионизации (СПИ) слабым электрическим полем (электрическое поле с напряженностью больше некоторого критического значения, определяемого кванто-

**И.И.Бетеров.** Институт физики полупроводников им. А.В.Ржанова СО РАН, Россия, 630090 Новосибирск, просп. Акад. Лаврентьева, 13; Новосибирский государственный университет, Россия, 630090 Новосибирск, ул. Пирогова, 2; Новосибирский государственный технический университет, Россия, 630073 Новосибирск, просп. Карла Маркса, 20

Поступила в редакцию 11 июня 2018 г., после доработки – 20 июля 2018 г.

выми числами nL, ионизует атом с вероятностью, близкой к 1), при этом с помощью электронного умножителя могут детектироваться одиночные атомы [2]. Данный метод позволяет определять как полное число ридберговских атомов, так и относительные населенности различных ридберговских состояний. Таким образом, становится возможным проведение экспериментов с одиночными или несколькими атомами.

Перечисленные выше свойства позволяют использовать атомы в ридберговских состояниях для новых актуальных исследований в области атомной и квантовой физики, в процессе которых необходимо управлять состояниями отдельных квантовых частиц и контролировать их. Лазерное возбуждение ридберговских атомов с высоким спектральным разрешением необходимо при проведении экспериментов для ряда актуальных применений этих атомов, таких как квантовая информатика [3–6] или фазовые переходы в холодных ансамблях взаимодействующих ридберговских атомов [7,8].

В экспериментах с холодными ридберговскими атомами Rb, как правило, применяется двухступенчатая схема возбуждения 5S  $\rightarrow$  5P  $\rightarrow$  nS, nD ридберговских nS- и nD-состояний из основного состояния 5S через промежуточное состояние 5P излучениями с длинами волн 780 и 480 нм [4, 6, 9, 10]. Аналогичные двухступенчатые схемы используются и для лазерного возбуждения других ридберговских атомов [11–13].

Трехфотонное лазерное возбуждение интересно тем, что оно может обеспечить возбуждение холодных ридберговских атомов без эффекта отдачи и эффекта Доплера, тем самым исключая их разогрев при поглощении фотонов и обеспечивая высокую точность квантовых операций с ридберговскими атомами. В нашей теоретической

**Е.А.Якшина, Д.Б.Третьяков, В.М.Энтин, И.И.Рябцев.** Институт физики полупроводников им. А.В.Ржанова СО РАН, Россия, 630090 Новосибирск, просп. Акад. Лаврентьева, 13; Новосибирский государственный университет, Россия, 630090 Новосибирск, ул. Пирогова, 2; e-mail: ryabtsev@isp.nsc.ru

работе [14] было показано, что для такого возбуждения необходимо выполнение условия равенства нулю суммы волновых векторов возбуждающих лазерных излучений. Для атомов Rb одноступенчатая,  $5S \rightarrow nP$ , и двухступенчатая,  $5S \rightarrow 5P \rightarrow nS, nD$ , схемы возбуждения не удовлетворяют данному условию. Однако это можно сделать в трехступенчатой схеме  $5S \rightarrow 5P \rightarrow 6S \rightarrow nP$ , направив три лазерных пучка на ансамбль холодных атомов с трех разных сторон и под определенными углами относительно друг друга. Промежуточные резонансы такого перехода должны иметь большие отстройки, чтобы короткоживущие промежуточные уровни не заселялись. В этом случае в расчетных спектрах возбуждения ридберговских состояний наблюдаются узкие бездоплеровские резонансы с шириной, определяемой только временем взаимодействия атомов с лазерным излучением, причем как для ультрахолодных, так и для горячих атомов при комнатной температуре. Однако такая звездообразная геометрия трехфотонного лазерного возбуждения нами пока не была реализована, поскольку для этого требуется создание специальной магнитооптической ловушки (МОЛ) с определенной конфигурацией оптических окон ее вакуумной камеры.

Настоящая работа посвящена экспериментальному и теоретическому исследованию спектров трехфотонного лазерного возбуждения по схеме  $5S_{1/2} \rightarrow 5P_{3/2} \rightarrow 6S_{1/2} \rightarrow 37P_{3/2}$  мезоскопических ансамблей холодных ридберговских атомов Rb в МОЛ с использованием непрерывных одночастотных лазеров на каждой ступени. Ансамбли состояли из N = 1-5 атомов и регистрировались методом СПИ с постселекцией по числу атомов. Изучалась зависимость формы спектра возбуждения от длительности возбуждающих лазерных импульсов и числа регистрируемых ридберговских атомов.

### 2. Экспериментальная установка

Эксперименты выполнялись с холодными атомами <sup>85</sup>Rb, захваченными в МОЛ, схема которой показана на рис.1,*а* [5,15]. Охлаждение атомов осуществляется тремя ортогонально распространяющимися парами световых волн с длиной волны 780 нм. Охлаждающее лазерное излучение настраивалось на замкнутый переход  $5S_{1/2}(F=3) \rightarrow 5P_{3/2}(F=4)$  изотопа <sup>85</sup>Rb, а лазерное излучение перекачки – на переход  $5S_{1/2}(F=2) \rightarrow 5P_{3/2}(F=3)$ . В центре ло-



Рис.1. Схема эксперимента с холодными ридберговскими атомами <sup>85</sup>Rb в МОЛ (*a*), схема когерентного трехфотонного лазерного возбуждения  $5S_{1/2} \rightarrow 5P_{3/2} \rightarrow 6S_{1/2} \rightarrow nP$  ридберговских атомов Rb с отстройкой от промежуточных резонансов (*b*), временная диаграмма лазерных и электрических импульсов (*b*) и гистограмма выходных импульсов ВЭУ-6, регистрирующего электроны, образовавшиеся в результате СПИ (*z*).

вушки формируется облако из  $\sim 10^6$  холодных атомов, имеющее размер 0.5–1 мм и температуру 100–200 мкК.

Возбуждение холодных атомов Rb в ридберговские состояния nP(n = 30-100) осуществляется по трехступенчатой схеме  $5S_{1/2} \rightarrow 5P_{3/2} \rightarrow 6S_{1/2} \rightarrow 37P_{3/2}$  (рис.1,б). Первая ступень  $5S_{1/2}(F=3) \rightarrow 5P_{3/2}(F=4)$  возбуждается непрерывным излучением полупроводникового лазера с внешним резонатором Toptica DL PRO с длиной волны  $\lambda = 780$  нм и выходной мощностью до 50 мВт. Лазер имеет встроенный фарадеевский изолятор и оптоволоконный выход. Частота излучения этого лазера стабилизирована методом Паунда-Древера-Холла по резонансу насыщенного поглощения в ячейке с парами атомов Rb. Измеренная ширина линии лазерного излучения  $\Gamma_1/(2\pi)$  составляет ~0.3 МГц. Выходное излучение лазера пропускается через акустооптический модулятор (АОМ), который формирует импульсы заданной длительности с фронтами длительностью 100 нс. АОМ также обеспечивает «синюю» отстройку  $\delta_1/(2\pi) = +80$  МГц от точного атомного резонанса, чтобы не заселять промежуточный уровень 5P<sub>3/2</sub>.

На второй ступени  $5P_{3/2}(F=4) \rightarrow 6S_{1/2}(F=3)$  используется излучение с  $\lambda = 1367$  нм непрерывного одночастотного полупроводникового лазера с внешним резонатором Sacher TEC150 со встроенным фарадеевским изолятором и оптоволоконным выходом с выходной мощностью до 30 мВт. Частота этого излучения стабилизирована методом Паунда-Древера-Холла по резонансу высокостабильного оптического интерферометра Фабри-Перо Stable Laser Systems ATF. Измеренная ширина линии  $\Gamma_{2}/(2\pi)$  составляет ~0.3 МГц. Выходное излучение лазера пропускается через электрооптический модулятор (ЭОМ) с глубиной модуляции 20 дБ, который формирует импульсы заданной длительности с фронтами длительностью 2 нс. Частота излучения также имеет «синюю» отстройку  $\delta_2/(2\pi) = +82 \text{ M}\Gamma$ ц от точного атомного резонанса, чтобы не заселять промежуточный уровень  $6S_{1/2}$ .

На третьей ступени ридберговские *n*P-состояния возбуждаются из состояния  $6S_{1/2}(F=3)$  излучением непрерывного кольцевого титан-сапфирового лазера Tekhnoscan TIS-SF-07 с выходной мощностью до 500 мВт. При перестройке длины волны излучения в диапазоне 738–745 нм можно селективно возбуждать подуровни тонкой структуры с J = 1/2, 3/2 ридберговских *n*P-состояний с главным квантовым числом n = 30-120. Частота излучения стабилизируется методом Паунда–Древера–Холла по резонансу того же высокостабильного оптического интерферометра Фабри–Перо Stable Laser Systems ATF. Измеренная ширина линии  $\Gamma_3/(2\pi)$  составляет ~0.01 МГц. На выходе лазера установлен АОМ для работы в импульсном режиме с фронтами длительностью 100 нс.

Излучения лазеров второй и третьей ступеней подводятся к МОЛ через одномодовые оптические волокна. На выходе волокон они коллимируются и затем фокусируются на облако холодных атомов в геометрии скрещенных под прямым углом пучков (рис.1,*a*) с диаметрами перетяжек 10 мкм для излучения с  $\lambda = 743$  нм и 20 мкм для излучения с  $\lambda = 1367$  нм. В области пересечения сфокусированных пучков формируется эффективный объем возбужденных ридберговских атомов размером 20–50 мкм в зависимости от взаимного расположения перетяжек и наличия или отсутствия насыщения переходов. Излучение лазера первой ступени ( $\lambda = 780$  нм) не фокусируется, имеет диаметр пучка 1 мм и направляется на облако холодных атомов под углами 45° навстречу остальным пучкам. Ридберговские атомы возбуждаются лазерными импульсами с частотой следования 5 кГц.

Возбуждение ридберговских атомов осуществляется в пространстве между двумя пластинами из нержавеющей стали, формирующими однородное электрическое поле (рис.1,а). Электрическое поле используется для спектроскопии эффекта Штарка и детектирования ридберговских атомов методом СПИ [1]. Регистрация ридберговских атомов осуществляется на частоте следования 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 раструб электронного умножителя ВЭУ-6 канального типа. Импульсные сигналы с его выхода обрабатываются быстродействующим АЦП, стробинтегратором и ЭВМ. Число электронов, зарегистрированных за один лазерный импульс, определяется числом ридберговских атомов в области возбуждения и общей эффективностью регистрации электронов [2]. В наших экспериментах эффективность регистрации достигала 70% [16, 17].

Временная диаграмма сигналов в системе регистрации приведена на рис.1, в. После каждого лазерного импульса, возбуждающего часть холодных атомов в ридберговское состояние nP, включалась развертка ионизирующего электрического поля со временем нарастания около 2 мкс. В зависимости от состояния ридберговского атома ионизация происходила в разные моменты времени после лазерного импульса. Далее регистрировался импульсный ионизационный сигнал на выходе ВЭУ-6 с помощью импульса-строба, соответствующего по времени ионизации состояния *n*P. На рис.1, г показана гистограмма амплитуд выходных импульсов ВЭУ-6. На ней видны несколько пиков, отвечающих разному числу зарегистрированных ридберговских атомов N = 1-5. Интегральная амплитуда (площадь) каждого пика описывается распределением Пуассона и зависит от среднего числа регистрируемых атомов за лазерный импульс. Для рис.1, г эта величина составляет 2.2 ат./имп., при этом вероятности одно- и двухатомного возбуждения примерно равны, но одноатомный пик уже и выше. Более подробно статистические данные по лазерному возбуждению и регистрации ридберговских атомов обсуждаются в разд.5 (см. формулы (3)-(7)).

После каждого лазерного импульса система сбора данных измеряла амплитуду выходного импульса ВЭУ-6, затем по полученной заранее гистограмме (рис.1,*г*) определяла число зарегистрированных атомов, а после накопления данных за  $10^3 - 10^4$  лазерных импульсов осуществляла сортировку сигналов по числу атомов *N* и вычисляла вероятность трехфотонного лазерного возбуждения ридберговского состояния. Число атомов определялось согласно тому, в какой интервал напряжений выходных импульсов ВЭУ-6 попадал конкретный измеренный сигнал, например один атом отвечал интервалу 200–600 мВ, два атома – интервалу 600–1000 мВ, три атома – интервалу 1000–1400 мВ и т.д. Соответствующие пороги регистрации показаны на рис.1,*г* вертикальными штриховыми линиями.

Эксперименты по спектроскопии трехфотонного возбуждения выполнялись в предварительно выключаемой на короткое время МОЛ. Для этого во все охлаждающие лазерные пучки были установлены AOM, которые выключали их на 20 мкс, а после измерения включали вновь. Градиентное магнитное поле MOЛ при измерениях не выключалось, но его влияние минимизировалось путем настройки положения объема возбуждения в точку, соответствующую нулевому магнитному полю, что контролировалось по отсутствию зеемановского расщепления микроволнового перехода  $37P_{3/2} \rightarrow 37S_{1/2}$  на частоте 80 ГГц согласно методу нашей работы [18]. Это позволяло иметь большую частоту следования лазерных импульсов (5 кГц) и отслеживать изменение сигналов от ридберговских атомов в реальном времени на экране осциллографа и в компьютерной системе сбора данных.

### 3. Теоретическое описание трехфотонного лазерного возбуждения

При теоретическом описании основное состояние  $5S_{1/2}(F=3)$  обозначим как состояние 0, первое промежуточное состояние  $5P_{3/2}(F=4)$  – как 1, второе промежуточное состояние  $6S_{1/2}(F=3)$  – как 2 и ридберговское состояние  $nP_{3/2}$  – как 3 (рис.1, $\delta$ ). Для каждого промежуточного однофотонного перехода с номером j = 1, 2, 3 введем соответствующую частоту Раби  $\Omega_j = d_j E_j / \hbar (d_j - дипольные моменты однофотонных переходов, <math>E_j$  – амплитуды электрического поля для линейно поляризованных световых полей) и отстройку  $\delta_j$ . Сканирование полной отстройки  $\delta = \delta_1 + \delta_2 + \delta_3$  трехфотонного перехода 0  $\rightarrow$  3 может осуществляться сканированием отстройки любого перехода.

Как было показано нами в работе [14], 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  $a_j$  возбуждения каждого уровня (j = 0-3) в приближении вращающейся волны. В результате получается следующая зависимость населенности ридберговского состояния от времени взаимодействия t при когерентном трехфотонном лазерном возбуждении:

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

где  $\Omega = \Omega_1 \Omega_2 \Omega_3 / (4\delta_1 \delta_3) - эффективная частота Раби при$  $трехфотонном возбуждении; <math>\Lambda_0 = \Omega_1^2 / (4\delta_1)$  и  $\Lambda_3 = \Omega_3^2 / (4\delta_3)$ световые сдвиги состояний 0 и 3 соответственно. Уравнение (1) показывает, что условием точного трехфотонного резонанса является равенство  $\delta + \Delta = 0$ , где полный световой сдвиг  $\Delta = \Lambda_0 + \Lambda_3$ , при этом населенность осциллирует между основным и ридберговским состояниями на частоте  $\Omega$ . Это уравнение описывает также спектр возбуждения ридберговского состояния при сканировании  $\delta$ для фиксированного времени взаимодействия *t*.

В более реалистичной теоретической модели, учитывающей спонтанную релаксацию возбужденных уровней 1–3, осцилляции Раби затухают с константой затухания  $\gamma = 1/\tau$ , определяемой обратным временем жизни ридберговского состояния  $\tau$ , или еще быстрее, если отстройки от промежуточных резонансов недостаточно велики. При этом населенность ридберговского состояния выходит на некоторое стационарное значение. Такая модель была построена нами в четырехуровневом приближении на основе оптических уравнений Блоха для матрицы плотности [15]. Найти точное аналитическое решение для населенности  $\rho_{33}$  ридберговского состояния при произвольных частотах Раби и отстройках не представляется возможным, поэтому в общем случае необходимо решать задачу численно. Однако при слабом возбуждении ( $\Omega \ll \gamma$ ) нами было найдено следующее приближенное аналитическое решение:

$$|a_3|^2 = \rho_{33} \approx \frac{\Omega^2}{2\Omega^2 + \gamma^2 + 4\delta^2}$$
$$\times [1 + \exp(-\gamma t) - 2\exp(-\gamma t/2)\cos(t\sqrt{\Omega^2 + \delta^2})]. \quad (2)$$

Из него видно, что при больших временах взаимодействия ( $\gamma t \gg 1$ ) осцилляции Раби затухают и населенность выходит на стационарное значение, описываемое лоренцевским контуром спектра возбуждения.

Кроме того, разработанная теоретическая модель [15] позволяет дополнительно учесть конечные ширины линий  $\Gamma_i$  всех трех лазерных излучений в модели диффузии фазы, когда в лазерном излучении присутствуют случайные флуктуации фазы, но отсутствуют амплитудные флуктуации [19]. Для этого в уравнениях для оптических когерентностей в каждую отстройку  $\delta_i$  была добавлена мнимая часть, равная по модулю  $\Gamma_i/2$ , для внесения дополнительного затухания когерентности. Наши численные расчеты согласно данной модели показали хорошее согласие экспериментальных и теоретических результатов [15]. Однако необходимо отметить, что в такой модели спектр лазерного излучения имеет лоренцевскую форму, в то время как обычно для него характерен гауссов профиль с более быстрым спаданием на крыльях. Поэтому теоретические спектры возбуждения ридберговских состояний в указанной модели могут иметь некоторые расхождения с экспериментальными данными на крыльях резонансов.

# 4. Спектры лазерного возбуждения трехфотонного перехода $5S_{1/2} \rightarrow 5P_{3/2} \rightarrow 6S_{1/2} \rightarrow 37P_{3/2}$

Для нас наибольший интерес представляло изучение спектра возбуждения ридберговского состояния  $37P_{3/2}$  атомов Rb, поскольку в нем удалось впервые наблюдать электрически управляемые резонансы Фёрстера между двумя [16] либо тремя [17] ридберговскими атомами. На рис.2 приведены экспериментальные спектры трехфотонного лазерного возбуждения этого состояния при сканировании отстройки  $\delta_3$  для различных времен взаимодействия t, трехфотонных частот Раби  $\Omega$  и динамических световых сдвигов  $\Delta$ , а также результаты численных расчетов по четырехуровневой теоретической модели работы [15]. Во всех случаях наблюдается хорошее согласие теории с экспериментом. Анализ представленных спектров позволяет сделать следующие выводы.

Во-первых, трехфотонный резонанс возникает при отстройке  $\delta_3 \approx -162 \text{ M}\Gamma\mu$ , что является следствием суммарной отстройки  $\delta_1 + \delta_2 = +162 \text{ M}\Gamma\mu$  от двух промежуточных резонансов. Такой резонанс соответствует когерентному трехфотонному возбуждению без заселения промежуточных уровней 5P<sub>3/2</sub> и 6S<sub>1/2</sub>, в отличие от некогерентного



Рис.2. Экспериментальные спектры *S* трехфотонного лазерного возбуждения ридберговского состояния  $37P_{3/2}$  при сканировании отстройки  $\delta_3$  для различных времен взаимодействия *t*, трехфотонных частот Раби  $\Omega$  и динамических световых сдвигов  $\Delta$  (левая колонка) и результаты численных расчетов согласно четырехуровневой модели [15] (правая колонка).

трехступенчатого резонанса при  $\delta_3 = 0$ , когда состояния  $5P_{3/2}$  и  $6S_{1/2}$  частично заселяются на крыльях лоренцевских контуров поглощения для первой и второй ступеней возбуждения. Различия между этими процессами обсуждались в нашей работе [15]. В частности, когерентное трехфотонное возбуждение соответствует поглощению всех трех фотонов одновременно, в то время как при трехступенчатом возбуждении фотоны могут поглощаться в разные моменты времени, что приводит к дефазировке и потере когерентности. Именно поэтому осцилляции Раби наблюдаются только для когерентного трехфотонного лазерного возбуждения. Из рис.2 видно, что при увеличении частоты Раби  $\Omega$  увеличивается и динамический сдвиг трехфотонных резонансов  $\Lambda$ , однако он сравнительно мал и по порядку величины совпадает с  $\Omega$ .

Во-вторых, минимальная ширина трехфотонного резонанса (1.3 МГц) наблюдается при максимальном времени взаимодействия 2 мкс (рис.2,а) для сравнительно небольшого значения  $\Omega/(2\pi) \approx 0.3$  МГц. При этом значении ширина резонанса обусловлена суммарной шириной линий трех лазерных излучений ( $\Gamma_1 + \Gamma_2 + \Gamma_3$ )/(2 $\pi$ )  $\approx 0.6$  МГц, динамическим полевым уширением  $\Omega/(2\pi) \approx 0.3$  МГц и спектральной шириной лазерного импульса возбуждения  $1/t \approx 0.5 \text{ M}$ Гц. В то время как последние два фактора не влияют на когерентность, как это видно из уравнений (1) и (2), ненулевая ширина линий лазерного излучения обусловливает сравнительно малое время когерентности лазерного импульса,  $1/(\Gamma_1 + \Gamma_2 + \Gamma_3) \approx 0.3$  мкс, и не позволяет увидеть в спектре осцилляции Раби, предсказываемые уравнениями (1) и (2) для времени возбуждения 2 мкс (рис.2,a). То же самое относится и к спектру при времени возбуждения 1 мкс, представленному на рис.2, б.

В-третьих, при дальнейшем уменьшении времени взаимодействия до 0.4 мкс (рис.2, в) в спектре на крыльях резонансов появляются признаки структуры, описываемой формулой (2) и соответствующей осцилляциям Раби, при этом их неполный контраст свидетельствует о наличии дефазировки и лишь о частичной когерентности осцилляций. Однако уменьшение времени взаимодействия до 0.2 мкс все же позволяет получить спектр с достаточно контрастными структурами осцилляций Раби на крыльях резонансов (рис.2,г), что говорит о достижении нами когерентного трехфотонного лазерного возбуждения ридберговских атомов. По имеющимся литературным данным такое возбуждение реализовано впервые. В то же время уменьшение длительности лазерных импульсов приводит к уширению резонансов до 2.4 МГц для спектра на рис.2, в и 3.8 МГц для спектра на рис.2, г.

В-четвертых, достигнутая минимальная ширина трехфотонных резонансов (1.3 МГц) значительно меньше тех значений (более 5 МГц), которые получены нами в предыдущих экспериментах [5,15]. Это является следствием предпринятых нами усилий по стабилизации частот и сужению ширин линий путем их привязки методом Паунда-Древера-Холла к резонансам насыщенного поглощения либо к резонансам высокостабильного интерферометра Фабри-Перо. Однако в идеале для выполнения квантовых операций с ридберговскими атомами [6] необходимо увеличить время когерентности до 100 мкс и более, что требует дальнейшего уменьшения ширин линий до 1 кГц и менее. Для этого нужно модернизировать системы стабилизации частот и увеличить ширины полос обратной связи. Также для уменьшения влияния остаточного эффекта Доплера имеет смысл реализовать трехфотонное лазерное возбуждение без эффекта отдачи и эффекта Доплера на основе звездообразной геометрии трех лазерных пучков в условиях равенства нулю суммы их волновых векторов, как было предложено нами в работе [14].

## 5. Трехфотонное лазерное возбуждение мезоскопических ансамблей холодных ридберговских атомов

Поскольку используемая система регистрации ридберговских атомов на основе СПИ предоставляет возможность измерения числа атомов и постселекции сигналов с сортировкой по числу атомов, нами было проведено исследование спектров трехфотонного лазерного возбуждения мезоскопических ансамблей холодных ридберговских атомов с числом атомов N = 1-5.

На рис.3 приведены экспериментальные спектры трехфотонного лазерного возбуждения ридберговского состояния  $37P_{3/2}$  для различных частот Раби  $\Omega$  при времени взаимодействия t = 2 мкс. Величины  $S_1 - S_5$  представляют собой спектры возбуждения мезоскопических ансамблей с определенным числом ридберговских атомов N = 1-5, а величина S, равная их сумме, является сигналом, соответствующим среднему числу ридберговских атомов, регистрируемых за лазерный импульс.

Для спектров полного сигнала S с увеличением  $\Omega$  наблюдается увеличение как амплитуды трехфотонного резонанса, так и его ширины в соответствии с уравнениями (1) и (5) (см. ниже). Эти спектры хорошо описываются численными расчетами по нашей четырехуровневой теоретической модели.



Рис.3. Экспериментальные спектры трехфотонного лазерного возбуждения ридберговского состояния  $37P_{3/2}$  для частот Раби  $\Omega = 0.43$  (*a*), 0.38 (*b*) и 0.28 МГц (*b*) при времени взаимодействия t = 2 мкс: сигнал *S*, соответствующий среднему числу ридберговских атомов, регистрируемых за лазерный импульс, и сигналы  $S_1$ – $S_5$ , представляющие собой спектры возбуждения мезоскопических ансамблей с определенным числом ридберговских атомов N = 1-5.

Принципиально новым в нашей работе является регистрация спектров возбуждения мезоскопических ансамблей  $S_N$  для различных N. Впервые эта особенность нашей экспериментальной установки была продемонстрирована в работе [3] на примере микроволновых переходов между ридберговскими состояниями. В отсутствие межатомных взаимодействий эти спектры описываются статистикой возбуждения и регистрации ридберговских атомов [2].

Пусть до начала лазерного импульса в объеме возбуждения находится мезоскопический ансамбль из  $N_0$  атомов Rb в основном состоянии. За время лазерного импульса имеется ненулевая вероятность *p* возбуждения каждого атома в ридберговское состояние, причем эта вероятность зависит от трехфотонной отстройки и в определенных условиях дается уравнением (1) или (2). Тогда среднее число ридберговских атомов, возбуждаемых за лазерный импульс,

$$N = pN_0. (3)$$

Статистика числа ридберговских атомов, возбуждаемых за лазерный импульс, зависит от величины p. При слабом возбуждении ( $p \ll 1$ ) можно применять распределение Пуассона для вероятности  $P_N^{\text{weak}}$  найти N ридберговских атомов после одного лазерного импульса:

$$P_N^{\text{weak}} = \frac{(\bar{N})^N}{N!} \exp(-\bar{N}).$$
(4)

Однако в общем случае, в том числе при сильном когерентном возбуждении с осцилляциями Раби, следует использовать более сложное нормальное распределение:

$$P_N^{\text{strong}} = p^N (1-p)^{N_0-N} \frac{N_0!}{N!(N_0-N)!},$$
(5)

которое справедливо для любых p и  $N_0$ . Именно такое статистическое распределение наблюдалось бы для идеального детектора ридберговских атомов, имющего вероятность регистрации T = 1.

Для реальных детекторов вероятность регистрации всегда меньше 1. Например, в наших экспериментах [16,17] вероятность регистрации составляла около 0.7, что является рекордной величиной для ридберговских атомов. Можно легко показать, что с учетом конечной вероятности регистрации справедливы следующие распределения для вероятности зарегистрировать N ридберговских атомов:

$$\bar{P}_{N}^{\text{weak}} = \frac{(\bar{N}T)^{N}}{N!} \exp(-\bar{N}T), \qquad (6)$$

$$\bar{P}_{N}^{\text{strong}} = (pT)^{N} (1 - pT)^{N_{0} - N} \frac{N_{0}!}{N!(N_{0} - N)!} .$$
<sup>(7)</sup>

Таким образом, среднее число ридберговских атомов, регистрируемых за лазерный импульс, уменьшается до  $\overline{NT}$ . Именно эта величина измеряется экспериментально при усреднении по большому числу лазерных импульсов. Например, амплитуды пиков на гистограмме, приведенной на рис.1,*г*, пропорциональны  $\overline{P}_N^{\text{weak}}$ . Поэтому отношение амплитуд проинтегрированных одноатомного и двухатомного пиков  $\overline{P}_2^{\text{weak}}/\overline{P}_1^{\text{weak}} = \overline{NT}/2$ , что дает на основе наших измерений  $\overline{NT} \approx 2.2$ .

При сильном возбуждении полный сигнал, измеряемый как среднее число атомов, зарегистрированных за лазерный импульс, определяется выражением

$$S = pN_0 T = \sum_{N=1}^{N_0} N \bar{P}_N^{\text{strong}} = \sum_{N=1}^{N_0} S_N,$$
(8)

при этом следует положить  $p = \rho_{33}$  для спектральной зависимости вероятности возбуждения. Следовательно, полный сигнал *S* фактически представляет собой усреднение по числу зарегистрированных атомов *N*. Решение обратной задачи дается следующей формулой для многоатомных спектров на рис.3:

$$S_N = N \left(\frac{S}{N_0}\right)^N \left(1 - \frac{S}{N_0}\right)^{N_0 - N} \frac{N_0!}{N!(N_0 - N)!} \,. \tag{9}$$

Из нее видно, что для мезоскопических ансамблей с небольшим числом атомов  $N_0$  и при достаточно сильном возбуждении в центре многоатомного резонанса может образоваться провал, обусловленный чисто статистическим эффектом – вероятность возбудить и зарегистрировать более одного атома оказывается больше вероятности возбудить и зарегистрировать только один атом.

Именно этот эффект наблюдается на рис.3, *а* для одноатомного сигнала – провал в центре одноатомного спектра  $S_1$ . Для двух атомов в спектре  $S_2$  провала нет, но имеется плоская вершина резонанса, что также обусловлено уменьшением вероятности возбудить два атома в центре резонанса. Для большего числа атомов такой провал в многоатомных спектрах отсутствует. Более слабый провал наблюдается также в одноатомном спектре на рис.3, при меньшей трехфотонной частоте Раби и, следовательно, меньшей вероятности возбуждения. Наконец, на рис.3, этот провал полностью исчезает из-за недостаточно большой вероятности возбуждения.

На рис.3 обращает на себя внимание также тот факт, что с увеличением числа атомов N ширины многоатомных резонансов заметно уменьшаются. Это объясняется тем, что если одноатомный спектр дается выражением (1) или (2) для а<sub>3</sub>, то при слабом возбуждении *N*-атомный спектр будет описываться уже величиной  $|a_3|^{2N}(1-|a_3|^2)^{N_0-N}$ , из-за чего крылья резонанса в значительной степени подавляются и остается только его центральная часть. Впервые на это обстоятельство было указано в нашей работе [3], где обсуждалось также применение данного эффекта для увеличения точности спектроскопических измерений, если имеется возможность селективно регистрировать многоатомные сигналы с определенным числом атомов. Например, уравнение (1) для одного атома дает ширину резонанса, равную  $\Omega$ . Если же взять N атомов, то ширина резонанса составит  $\Omega(2^{1/N}-1)^{1/2}$ . Для N = 5 многоатомный резонанс сужается в 2.7 раза.

Многоатомные спектры на рис.3 представляют интерес для квантовой информатики. В частности, в мезоскопических ансамблях холодных атомов, возбуждаемых в ридберговские состояния, может наблюдаться эффект дипольной блокады [20,21], если энергия взаимодействия ридберговских атомов превышает ширину резонанса возбуждения (как правило, частоту Раби). При полной дипольной блокаде из всего мезоскопического ансамбля может возбудиться в ридберговское состояние только один атом, т. к. для большего числа атомов коллективные уровни энергии оказываются сдвинутыми относительно частоты невозмущенного резонанса возбуждения. Это должно приводить к радикальному изменению спектров, представленных на рис.3: остается только одноатомный сигнал (N = 1), а все остальные многоатомные резонансы исчезают. Если они не исчезают полностью, это может свидетельствовать о неполной дипольной блокаде, а изменение отношения амплитуд резонансов согласно уравнению (9) позволит определить степень полноты дипольной блокады в конкретных экспериментальных условиях. В настоящее время нами ведутся эксперименты по наблюдению этого эффекта при трехфотонном лазерном возбуждении атомов Rb в высокие ридберговские состояния с n = 100 - 120, которые имеют гораздо бо́льшие энергии межатомных взаимодействий по сравнению с атомами в состоянии 37P<sub>3/2</sub>.

#### 6. Заключение

Настоящая работа посвящена экспериментальному и теоретическому исследованию спектров трехфотонного лазерного возбуждения по схеме  $5S_{1/2} \rightarrow 5P_{3/2} \rightarrow 6S_{1/2} \rightarrow 37P_{3/2}$  мезоскопических ансамблей холодных ридберговских атомов Rb в МОЛ с использованием непрерывных одночастотных лазеров на каждой ступени. Ансамбли состояли из N = 1-5 атомов и регистрировались методом СПИ с постселекцией по числу атомов. Изучалась зависимость формы спектра трехфотонного возбуждения от длительности возбуждающих лазерных импульсов, а также от числа регистрируемых ридберговских атомов.

Для импульсов длительностью 2 мкс минимальная ширина спектра составляла 1.3 МГц и была обусловлена ширинами линий излучений лазеров и спектральной шириной, определяемой длительностью лазерных импульсов. Для импульсов длительностью менее 0.5 мкс наблюдались дополнительное уширение спектров и появление осцилляций Раби на крыльях трехфотонных резонансов, что говорит о достижении нами когерентного трехфотонного лазерного возбуждения ридберговских атомов. По имеющимся литературным данным такое возбуждение реализовано впервые. Анализ спектров в четырехуровневой теоретической модели на основе оптических уравнений Блоха показал хорошее согласие эксперимента с теорией. Сделан вывод о том, что для увеличения времени когерентности лазерных импульсов необходимо дальнейшее сужение ширин линий всех лазерных излучений до 1 кГц и менее. Это позволит наблюдать полные осцилляции Раби при возбуждении ридберговских состояний и выполнять на их основе квантовые логические операции с ридберговскими атомами.

Исследование зависимости формы спектра трехфотонного возбуждения от числа регистрируемых атомов показало, что при увеличении среднего числа атомов в спектрах одноатомного возбуждения появляется провал, обусловленный спецификой статистики возбуждения и регистрации одиночных ридберговских атомов. Многоатомные спектры полезны тем, что позволяют выявить наличие полного или частичного эффекта дипольной блокады для различных применений ридберговских атомов в квантовой информатике. Также нами было обнаружено сужение многоатомных спектров при увеличении числа атомов в мезоскопических ансамблях. Это может быть использовано для увеличения точности спектроскопических измерений, если имеется возможность селективно регистрировать многоатомные сигналы с определенным числом атомов.

Работа была поддержана грантами РФФИ №16-02-00383 (в части теоретического анализа лазерного возбуждения) и 17-02-00987 (в части применений в квантовой информатике), грантами РНФ №16-12-00028 (в части теоретического анализа многоатомных сигналов) и 18-12-00313 (в части экспериментов по лазерному возбуждению ридберговских атомов), а также Новосибирским государственным университетом.

- 1. Gallagher T.F. *Rydberg Atoms* (Cambridge: Cambridge University Press, 1994).
- Ryabtsev I.I., Tretyakov D.B., Beterov I.I., Entin V.M. *Phys. Rev. A*, 76, 012722 (2007); Erratum: *Phys. Rev. A*, 76, 049902(E) (2007).
- 3. Ryabtsev I.I., Tretyakov D.B., Beterov I.I. J. Phys. B, 38, S421 (2005).
- Saffman M., Walker T.G., Mølmer K. Rev. Mod. Phys., 82, 2313 (2010).
- 5. Рябцев И.И., Бетеров И.И., Третьяков Д.Б., Энтин В.М., Якшина Е.А. *УФН*, **182**, 206 (2016) [*Phys. Usp.*, **59**, 196 (2016)].
- 6. Saffman M. J. Phys. B, 49, 202001 (2016).
- 7. Pohl T., Demler E., Lukin M.D. Phys. Rev. Lett., 104, 043002 (2010).
- Cinti F., Jain P., Boninsegni M., Micheli A., Zoller P., Pupillo G. Phys. Rev. Lett., 105, 135301 (2010).

- Cubel T., Teo B.K., Malinovsky V.S., Guest J.R., Reinhard A., Knuffman B., Berman P.R., Raithel G. *Phys. Rev. A*, 72, 023405 (2005).
- Reetz-Lamour M., Deiglmayr J., Amthor T., Weidemüller M. *New J. Phys.*, **10**, 045026 (2008).
- Sautenkov V.A., Saakyan S.A., Vilshanskaya E.V., Murashkin D.A., Zelener B.B., Zelener B.V. Laser Phys., 26, 115701 (2016).
- Maller K.M., Lichtman M.T., Xia T., Sun Y., Piotrowicz M.J., Carr A.W., Isenhower L., Saffman M. *Phys. Rev. A*, **92**, 022336 (2015).
- Camargo F., Whalen J.D, Ding R., Sadeghpour H.R., Yoshida S., Burgdorfer J., Dunning F.B., Killian T.C. *Phys. Rev. A*, 93, 022702 (2016).
- Ryabtsev I.I., Beterov I.I., Tretyakov D.B., Entin V.M., Yakshina E.A. *Phys. Rev. A*, 84, 053409 (2011).
- Энтин В.М., Якшина Е.А., Третьяков Д.Б., Бетеров И.И., Рябцев И.И. ЖЭТФ, 143 (5), 831 (2013) [JETP, 116 (5), 721 (2013)].
- Ryabtsev I.I., Tretyakov D.B., Beterov I.I., Entin V.M. Phys. Rev. Lett., 104, 073003 (2010).
- Tretyakov D.B., Beterov I.I., Yakshina E.A., Entin V.M., Ryabtsev I.I., Cheinet P., Pillet P. Phys. Rev. Lett., 119, 173402 (2017).
- 18. Третьяков Д.Б., Бетеров И.И., Энтин В.М., Рябцев И.И., Чаповский П.Л. ЖЭТФ, **135**, 428 (2009) [*JETP*, **108**, 374 (2009)].
- 19. Agarwal G.S. Phys. Rev. Lett., 37, 1383 (1976).
- Lukin M.D., Fleischhauer M., Cote R., Duan L.M., Jaksch D., Cirac J.I., Zoller P. *Phys. Rev. Lett.*, **87**, 037901 (2001).
- 21. Comparat D., Pillet P. J. Opt. Soc. Am. B, 27, A208 (2010).