

引用格式: AN Qiang, LIU Chengjing, YANG Kai, et al. Estimation of Rydberg Atomic State Population Excited by Two-photon Resonance[J]. Acta Photonica Sinica, 2023, 52(4):0426001

安强,刘成敬,杨凯,等. 双光子共振激发的里德堡原子数目估计[J]. 光子学报, 2023, 52(4):0426001

# 双光子共振激发的里德堡原子数目估计

安强,刘成敬,杨凯,姚佳伟,武博,林沂

(国防科技大学 电子科学学院 电子科学系,长沙 410073)

**摘 要:**现有量子微波测量系统中,碱金属原子气室是其核心物理组件。目前,原子气室的检测性能参数主要包括气室玻壳折射率、透光率及内部原子配比、密度等,不能直接体现出气室内被激发的里德堡原子数目,不利于装置整体性能表征和优化。根据理想气体状态方程,综合里德堡阻塞效应、气体原子分布等因素,建立了双光子共振激发的里德堡原子数目理论计算模型,提出了基于最优化电磁诱导透明光谱的里德堡原子数目估计方法,并采用两种不同形状铯原子气室进行实验估算,其结果与理论计算结果基本一致。

**关键词:**里德堡原子数目;电磁诱导透明;原子气室;双光子共振;量子微波测量

中图分类号:O439

文献标识码:A

doi:10.3788/gzxb20235204.0426001

## 0 引言

随着量子精密测量技术的发展,碱金属原子气室成为基于原子能级跃迁的原子干涉磁力仪<sup>[1]</sup>、原子钟<sup>[2]</sup>、原子陀螺仪<sup>[3]</sup>、原子电场计<sup>[4]</sup>等量子仪表的核心物理组件。碱金属原子气室通常为采用玻璃精密熔接和微加工工艺制造的密闭透明玻璃腔室,内部封装一定量的碱金属原子和特定配比的气体分子,是迄今为止量子精密测量技术最为理想的媒介之一<sup>[5]</sup>。研究表明,基于碱金属原子的量子仪表具有超高精度、小体积、低功耗等优点,在时间、频率、重力测量等方面体现出了巨大的技术优势<sup>[5-6]</sup>,尤其在微波电场测量方面,突破了以电子学为基础的传统微波电场测量体制,在克服电子热噪声限制的同时,打破了接收尺寸与待测场波长/频率相关的限制<sup>[7]</sup>,在超宽带电磁频谱监测<sup>[8]</sup>、微波电场计量<sup>[8-9]</sup>、成像<sup>[10]</sup>、通信<sup>[11-13]</sup>等领域展现出极大的应用潜力。

基于碱金属原子的微波电场测量装置,通常利用激光泵浦技术激发碱金属原子从基态跃迁至里德堡态,与微波场发生量子相干效应,从而实现微波场信息的获取<sup>[14]</sup>。测量装置的性能主要受原子气室玻壳的折射率、透光率、气室温度以及气室内原子配比、密度等参数制约,从本质上来看,即原子气室内激发的里德堡原子数目。当前,碱金属原子气室的加工制备方法主要是将受热的碱金属原子蒸气以及其他缓冲气体充入抽真空的玻壳<sup>[5]</sup>。玻壳的折射率、透光率等光学参数测量可在充制前完成,而气室内的原子配比、密度需在充制完成后进行检测<sup>[15]</sup>,检测方法主要包括基于光旋理论<sup>[16]</sup>、基于光深理论<sup>[17]</sup>以及基于自旋交换的原子密度检测<sup>[18]</sup>等。然而,这些光学参数测量和原子密度检测无法直观地反映出原子气室中激发的里德堡原子数目,这就给测量装置的整体性能表征和优化带来了较大困难。

本文根据理想气体状态方程,综合里德堡阻塞效应<sup>[19]</sup>、气体原子分布等因素,建立了双光子共振激发的里德堡原子数目理论计算模型,提出了一种基于最优化电磁诱导透明(Electromagnetically Induced Transparency, EIT)光谱的里德堡原子数目估计方法。在线偏振探测光( $\sim 852$  nm)、耦合光( $\sim 510$  nm)相对照射条件下,测量了直径约 1.0 cm、长度约 1.0 cm 的圆柱体和宽度约 1.0 cm、高度约 1.0 cm、长度约 2.0 cm

基金项目:国家自然科学基金(No. 12104509)

第一作者:安强, anqiang18@nudt.edu.cn

通讯作者:林沂, linyi13@nudt.edu.cn

收稿日期:2022-09-26;录用日期:2022-11-02

<http://www.photon.ac.cn>

的长方体铯原子气室的最优化 EIT 光谱,根据光谱信息估算了气室中激发出的里德堡原子数目,其结果与理论计算结果基本一致。

## 1 理论计算模型

原子气室中小部分碱金属原子附着在玻壳内壁上,其余主要以气体形式充满整个气室腔<sup>[15]</sup>。若不考虑附着原子,气室为真空充制同种碱金属原子,原子不占有体积且相互之间无作用力,则满足理想气体状态方程

$$PV = \frac{M}{\mu} RT \quad (1)$$

式中, $P$ 为气室内部压强, $V$ 为气室腔的体积, $M$ 为气体质量, $\mu$ 为气体摩尔质量, $R$ 为摩尔气体常数, $T$ 为温度(K)。假设气室内共 $N$ 个碱金属原子,每个原子的质量为 $m$ ,则气体质量 $M$ 、气体摩尔质量 $\mu$ 可分别表示为

$$M = Nm \quad (2)$$

$$\mu = N_A m \quad (3)$$

式中, $N_A$ 为阿伏伽德罗常数( $6.02 \times 10^{23}/\text{mol}$ )。则式(1)可进一步写成

$$PV = \frac{N}{N_A} RT \quad (4)$$

单位体积内的气体原子数 $n$ 、每个原子所占据空间的体积 $V_0$ 可分别表示为

$$n = \frac{N}{V} = \frac{N_A P}{RT} \quad (5)$$

$$V_0 = \frac{V}{N} = \frac{RT}{N_A P} \quad (6)$$

若将原子占据的空间看作球体,其半径 $r_0$ 可表示为

$$r_0 = \sqrt[3]{\frac{3V_0}{4\pi}} = \sqrt[3]{\frac{3RT}{4\pi N_A P}} \quad (7)$$

通常情况下,实验中采取双光子共振激发的方式将碱金属原子从基态激发至里德堡态,因此,气室中探测光和耦合光相对照射的重叠区域才能产生里德堡原子,两束激光重叠区域的体积 $V'$ 可表示为

$$V' = \pi r^2 l \quad (8)$$

式中, $r$ 为重叠区域半径, $l$ 为气室长度。因此,重叠区域内碱金属原子的数量可用式(9)表示。

$$nV' = \frac{N_A P}{RT} \pi r^2 l \quad (9)$$

考虑到里德堡原子激发存在阻塞效应,即在里德堡阻塞半径 $r_B$ 的球域内仅可激发一个里德堡原子<sup>[19]</sup>。若将碱金属原子占据的体积看成刚性小球且简立方密堆积(空间利用率 $\eta=52.3\%$ ),则可建立如图1所示的气室内原子状态模型。因此,里德堡原子数目 $N_R$ 可近似表示为

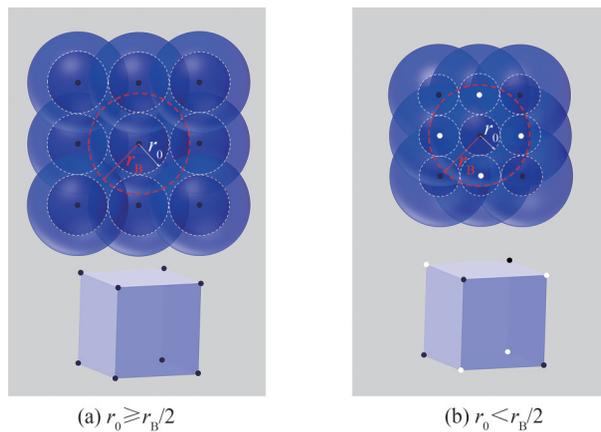


图1 气室内原子状态模型(黑色、白色实点分别表示被激发、未被激发至里德堡态的碱金属原子)  
Fig.1 The state model of atoms in vapor cell (the black and white dots represent the atoms in Rydberg and ground state, respectively)

$$N_R \approx nV' = \frac{N_A P}{RT} \pi r^2 l (r_0 \geq r_B/2) \quad (10)$$

$$N_R \approx \eta \frac{V'}{V_B} = \frac{3\eta r^2 l}{4r_B^3} (r_0 < r_B/2) \quad (11)$$

式中,里德堡阻塞半径由  $r_B = \left( \frac{C_6}{\hbar \max(\Omega, \Gamma_r)} \right)^{1/6}$  确定,  $C_6$  与主量子数的 11 次方成正比,可利用开源 ARC 工具箱计算获得<sup>[20]</sup>,  $\Omega$  是共振激光的能谱宽度,  $\Gamma_r$  为高激发态的自然线宽。

## 2 实验测量

采用双光子共振激发的方式制备里德堡原子时,在耦合光场的作用下,处于里德堡态的原子对探测光的吸收减弱甚至完全透明,通过扫描激光频率即可获得 EIT 光谱<sup>[21]</sup>。其中, EIT 光谱的产生主要是由于在探测光和耦合光的共同作用下,原子的两个跃迁通道产生相消量子干涉导致探测光透明,对探测光的透过程度(EIT 光谱特性)即可体现出原子气室中的里德堡原子状态。

### 2.1 实验装置

EIT 光谱测量实验装置示意如图 2(a),在遮光、室温条件下,一束波长约为 852 nm 的弱探测光和一束波长约为 510 nm 的强耦合光经过偏振分束、透镜聚焦后,相向作用于直径约 1.0 cm、长度约 1.0 cm 的圆柱形原子气室,探测光、耦合光与气室中的碱金属原子相互作用产生 EIT 效应。实验中,探测光将铯原子从基态  $|6S_{1/2}\rangle$  共振激发到中间态  $|6P_{3/2}\rangle$ ,耦合光实现中间态  $|6P_{3/2}\rangle$  与里德堡态  $|42D_{5/2}\rangle$  之间的共振跃迁,如图 2(b)。同时,为保证探测光的频率稳定,采用饱和吸收谱稳频法将探测光频率锁定于铯原子  $|6S_{1/2}\rangle \rightarrow |6P_{3/2}\rangle$  跃迁线上,扫描耦合光的频率时,使用光电探测器(Thorlabs PDA36A2)记录透光原子气室的探测光光强,获得里德堡原子的 EIT 光谱。为得到最优化 EIT 光谱,使用连续可调衰减片调节探测光和耦合光的激光功率,使 EIT 透明峰与底噪的差值达到最大,此时使用光功率计(Thorlabs PM160)测量到达气室的探测光和耦合光功率分别约为 13.0  $\mu$ W 和 22.0 mW。使用波长计(Bristol 771A VIS)测量探测光和耦合光激光源(Toptica DL Pro)的波长,其中,探测光使用单模保偏光纤将 852 nm 半导体激光器出射的激光引入波长计,耦合光使用单模保偏光纤将 510 nm 激光的倍频源 1 020 nm 半导体激光器出射的激光引入波长计,测量结果如图 3。使用光束质量分析仪(Ophir SP920 s)测量准直后的光强分布,如图 4 所示,探测光和耦合光的光束直径分别约为 886.0  $\mu$ m、1 425.0  $\mu$ m。

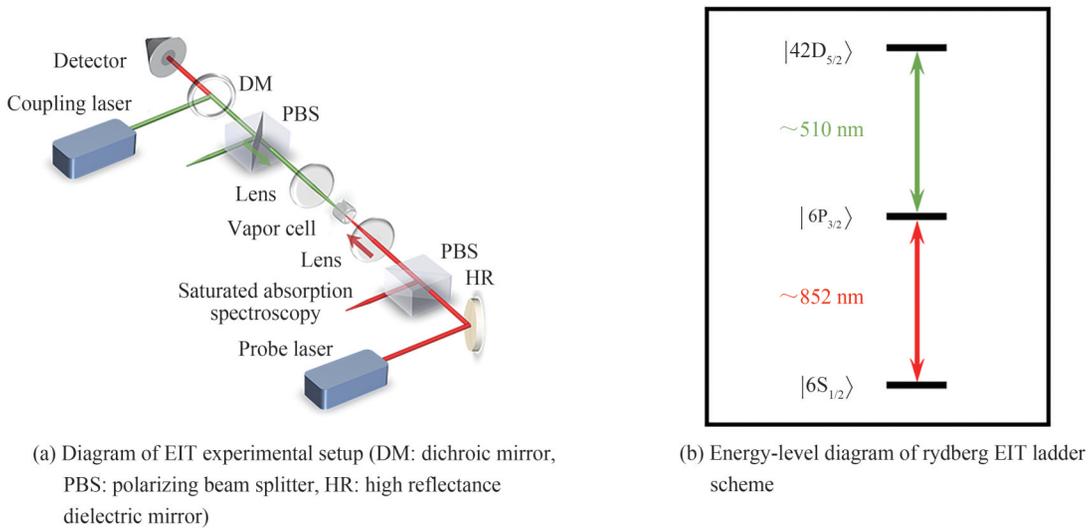


图 2 EIT 光谱测量实验装置与里德堡原子的阶梯型能级跃迁示意

Fig.2 Illustration of EIT experimental setup and energy-level diagram of Rydberg EIT ladder scheme

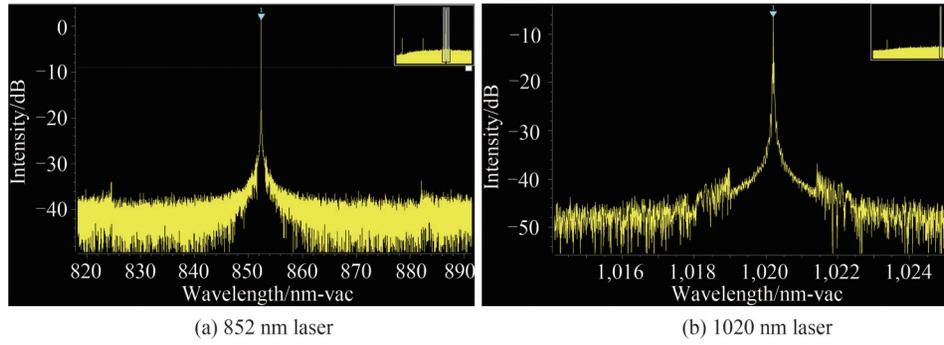


图3 激光波长测试结果  
Fig.3 The measurement results of laser wavelength

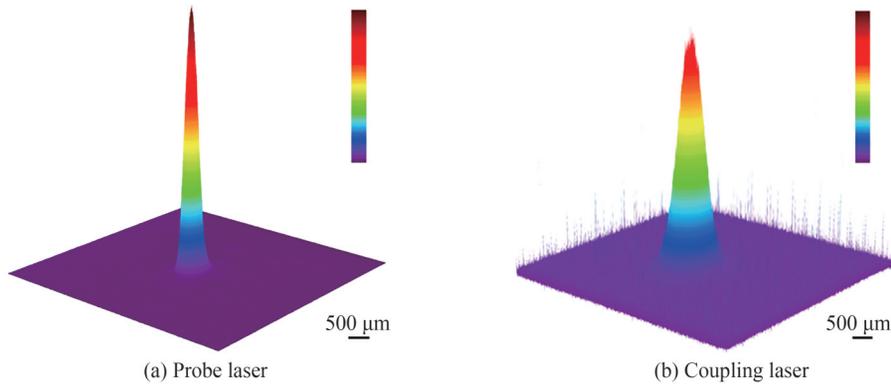


图4 准直后的激光光强分布  
Fig.4 The intensity profile of collimating laser

## 2.2 测量结果

图5(a)中蓝色实线为实验测得的对应 $|6S_{1/2}\rangle \rightarrow |6P_{3/2}\rangle \rightarrow |42D_{5/2}\rangle$ 的最优化EIT光谱特性曲线,耦合光扫描频率范围 $\Delta c/2\pi = \pm 15.0$  MHz,扫描时间 $T = 0.086$  s。其中,横坐标为耦合光扫描频率与能级共振频率的差值,纵坐标为光电探测器输出的光电压。由图5(a)可知,在共振频率附近,光电探测器输出的光电压较大,即透过原子气室的探测光光强较大,由EIT产生的基本原理可知,大部分原子处于里德堡态 $|42D_{5/2}\rangle$ ;随着耦合光频率失谐量的增加,光电探测器输出的光电压曲线趋于平滑,此时大部分原子处于中间态 $|6P_{3/2}\rangle$ 而未被激发至里德堡态 $|42D_{5/2}\rangle$ 。此外,最优化EIT光谱峰值与底噪的差值为不同激光功率入射原子气室条件下的最大值,可认为此时探测光和耦合光的重叠区域内激发至里德堡态 $|42D_{5/2}\rangle$ 的原子数目趋于饱和。因此,可以通过分析最优化EIT光谱透明峰的特性估算气室内激发的里德堡原子数目。

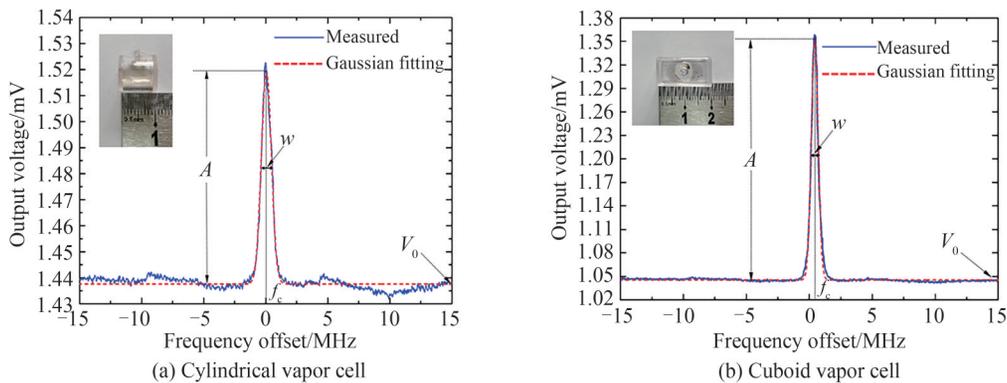


图5 原子气室的里德堡原子最优化EIT光谱特性  
Fig.5 Optimal EIT spectrogram of Rydberg atoms in cylindrical and cuboid vapor cells

图 5(a)中红色虚线为使用高斯函数拟合得到的最优化 EIT 光谱特性曲线,光电探测器输出的光电压  $V(f)$  与耦合光频率失谐量  $f$  的关系可表示为

$$V(f) = V_0 + \frac{Ae^{-\frac{4\ln 2(f-f_c)^2}{\omega^2}}}{\omega \sqrt{\frac{\pi}{4\ln 2}}} \quad (12)$$

式中,耦合光频率扫描时 EIT 光谱平滑背景对应光电探测器输出的电压值  $V_0 \approx 1.4376$  mV,光电探测器输出的最大电压值与  $V_0$  的差值  $A \approx 0.0815$  mV, EIT 光谱透明峰的半高全宽  $\omega \approx 0.9524$  MHz,光电探测器输出最大电压值时对应的耦合光频率失谐量  $f_c \approx 0.0583$  MHz)。

根据光电探测器的响应特性<sup>[22]</sup>,耦合光失谐频率为  $f_c$  时,光电探测器接收探测光与背景光的功率差可表示为

$$\Delta P(f_c) = \frac{V(f_c) - V_0}{GS_p} \quad (13)$$

式中,光电探测器的跨阻增益  $G = 7.5 \times 10^5$  V/A (50  $\Omega$ ),光电探测器对探测光波长的响应度  $S_p \approx 0.55$  A/W@852 nm。由于碱金属原子在气室中进行无规则热运动,吸收激光会产生多普勒频移,且激光光源具有一定的线宽, EIT 光谱透明峰会存在一定的展宽<sup>[23]</sup>。假设在 EIT 光谱透明峰半高全宽对应的耦合光扫描频率范围(扫描时间  $T_{\text{neff}}$ )内,里德堡原子的数目处于动态平衡状态,则光电探测器接收探测光与背景光的总能量差为

$$\Delta E = \Delta P(f_c) T_{\text{neff}} = \frac{[V(f_c) - V_0] T_{\text{neff}}}{GS_p} \quad (14)$$

式中,  $T_{\text{neff}} = 2\pi \frac{T\omega}{\Delta c}$ 。因此,光电探测器接收到能量为  $E_p$  的探测光光子数目可表示为

$$N_p = \frac{\Delta E}{E_p} = \frac{[V(f_c) - V_0] \lambda T_{\text{neff}}}{hcGS_p} \quad (15)$$

式中,  $h$  为普朗克常数,  $c$  为真空光速,  $\lambda$  为探测光波长。由于碱金属原子最外层只有一个价电子,可以认为一个探测光光子对应一个里德堡原子,因此  $N_p$  即为里德堡原子的数目。因此,如图 5(a)所示的 EIT 光谱对应的里德堡原子 ( $|42D_{5/2}\rangle$ ) 估算数目  $N_p = 2.32 \times 10^6$ 。

### 3 讨论

根据双光子共振激发里德堡原子数目的理论计算模型,实验中使用的原子气室为直径约 1.0 cm、长度约 1.0 cm 的圆柱体。在室温下(300 K)真空充制饱和蒸气压碱金属铯原子,原子气体压强约 6 666.1 Pa,由式(7)计算可知,每个原子所占据的球体半径  $r_0 = 5.29$  nm。查询 Toptica DLC pro 半导体激光器产品技术手册,可知探测光和耦合光的典型能谱宽度(5  $\mu$ s 积分时间)  $\Omega_p \approx 100$  kHz、 $\Omega_c \approx 200$  kHz,远大于里德堡态  $|42D_{5/2}\rangle$  的能级线宽  $\sim 3.84$  kHz(考虑黑体辐射情况下),利用开源 ARC 工具箱计算可知  $C_6 = 2\pi\hbar \times 1$  GHz  $\cdot \mu\text{m}^6$ ,阻塞半径  $r_B = 6.3$   $\mu\text{m}$ ,满足  $r_0 < r_B/2$  (原子数密度  $\rho_N > 7.64 \times 10^{15}/\text{m}^3$ )。因此,里德堡原子数目可用式(11)计算,  $N_R = 3.06 \times 10^6$ 。理论与实验结果基本一致,但  $N_p$  略小于  $N_R$ ,这主要是由于激光传输路径中的光能量损失引起的<sup>[24]</sup>。一方面,激光与气室内碱金属原子、气室外空气中颗粒的碰撞会引起探测光的部分散射,导致光电探测器接收到的光强变小、输出光电压变小;另一方面,原子气室玻壳、光学镜片等对探测光存在吸收、反射,也会造成探测光部分能量损失。

在式(15)中,基于最优化 EIT 光谱估算的里德堡原子数目  $N_p$  与耦合光扫频时间相关,对此作一简要分析。在实验中,耦合光典型能谱具有一定的宽度,其中心频率与扫频时间一一对应。由 EIT 光谱可以看出,耦合光在一定的频率范围内,均可将原子从中间能级激发至里德堡能级,产生这种现象的原因主要有两个方面:一方面,里德堡能级具有一定的吸收线宽,吸收线宽内的耦合光均可被原子吸收;另一方面,原子热运动引起的多普勒效应,可使能级吸收线宽外的耦合光也能被原子吸收,吸收程度与原子的运动速度有关。因此,耦合光扫频时,原子气室内的里德堡原子数目是动态变化的。然而,在最优化 EIT 光谱半高全宽对应

的耦合光扫频时间  $T_{\text{neff}}$  内,可认为原子饱和吸收耦合光,里德堡原子数目的变化较小,近似于动态平衡状态。此时,对于最外层只有一个价电子的碱金属原子,透过原子气室的探测光子数目近似等于原子气室中里德堡原子数目,通过计算光电探测器在扫频时间  $T_{\text{neff}}$  内接收的探测光能量即可实现里德堡原子数目  $N_p$  的估算。因此,里德堡原子估算数目  $N_p$  与耦合光扫频时间  $T_{\text{neff}}$  相关。

另外,碱金属原子气室加工制备过程中,首先要使用多层次键合、粘结等技术制备不同形状的玻壳,而在不同的温度下进行饱和蒸气压原子充制,以实现原子气室内原子数密度的调控<sup>[15]</sup>。然而,该调控手段具有一定的局限性,充制较低原子数密度的原子气室存在一定的困难,不能满足原子占据球体半径  $r_0$  大于  $r_B/2$  (里德堡阻塞半径  $r_B$  通常在  $\mu\text{m}$  量级) 的要求。

因此,为验证基于最优化 EIT 光谱测量里德堡原子数目方法的可行性,使用宽度约 1.0 cm、高度约 1.0 cm、长度约 2.0 cm 的长方体原子气室进行最优化 EIT 光谱测量。此时探测光、耦合光的功率分别约为 16.2  $\mu\text{W}$ 、23.5 mW,光束直径分别约为 901.0  $\mu\text{m}$ 、1 437.0  $\mu\text{m}$ ,光电探测器的设置不变。最优化 EIT 光谱特性结果如图 5(b),  $V_0 \approx 1.045 5 \text{ mV}$ ,  $A \approx 0.305 7 \text{ mV}$ ,  $\omega \approx 0.643 1 \text{ MHz}$ ,  $f_c \approx 0.432 1 \text{ MHz}$ 。根据理论模型和最优化 EIT 光谱特性分别计算了里德堡原子的数目,  $N_R = 6.33 \times 10^6$ ,  $N_p = 5.86 \times 10^6$ ,理论模型计算结果与实验估算结果基本一致,表明该理论计算模型和实验估算方法具有一定的普适性。

## 4 结论

本文建立了双光子共振激发里德堡原子数目的理论计算模型,提出了一种基于最优化 EIT 光谱的里德堡原子数目估算方法,在遮光、室温条件下,测量了两种不同形状的铯原子气室 EIT 光谱,并根据最优化 EIT 光谱特性估算了处于  $|42D_{5/2}\rangle$  能级的里德堡原子数目,与理论模型计算结果基本一致。结果表明,该计算模型和估算方法用于获取里德堡原子数目是可行的,在表征碱金属原子气室性能优劣的同时,也为以碱金属原子气室为核心器件的量子仪表性能表征和优化提供了新的方法和途径。

### 参考文献

- [1] JOHN K. Chip-scale atomic devices[J]. Applied Physics Review, 2018, 5(3): 031302.
- [2] GODUN R. Atomic clocks compared with astounding accuracy[J]. Nature, 2021, 591(7851): 534-535.
- [3] WU Y, GUO J, FENG X, et al. Atom-light hybrid quantum gyroscope[J]. Physical Review Applied, 2020, 14(6): 064023.
- [4] JING M, HU Y, MA J, et al. Atomic superheterodyne receiver based on microwave-dressed Rydberg spectroscopy[J]. Nature Physics, 2020, 16: 911-915.
- [5] LI Xinkun, WANG Feifei, LIANG Dechun, et al. Fabrication of chip-scale alkali metal cells [J]. Scientia Sinica Informationis, 2015, 45(5): 693-700.  
李新坤, 王飞飞, 梁德春, 等. 芯片级铷原子气室的制备[J]. 中国科学:信息科学, 2015, 45(5): 693-700.
- [6] HUANG Bingying, WANG Yuzhu. Improvements and applications on the cold atomic fountain[J]. Journal of Astronautic Metrology and Measurement, 2010, 30(5): 1-5.  
黄秉英, 王育竹. 冷原子喷泉的改进与应用[J]. 宇航计测技术, 2010, 30(5): 1-5.
- [7] FU Yunqi, LIN Yi, WU Bo, et al. The radio technology based on Rydberg atom[J]. Chinese Journal of Radio Science, 2022, 37(2): 279-287.  
付云起, 林沂, 武博, 等. 基于里德堡原子的无线电技术[J]. 电波科学学报, 2022, 37(2): 279-287.
- [8] HOLLOWAY C, SIMONS M, GORDON J, et al. Electric field metrology for SI traceability: systematic measurement uncertainties in electromagnetically induced transparency in atomic vapor[J]. Journal of Applied Physics, 2017, 121: 233106.
- [9] ZHOU F, JIA F, MEI J, et al. The effect of the Doppler mismatch in microwave electrometry using Rydberg electromagnetically induced transparency and Autler-Townes splitting[J]. Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics, 2022, 55(7): 075501.
- [10] DOWNES L, MACKELLAR A, WHITING D, et al. Full-field terahertz imaging at kilohertz frame rates using atomic vapor[J]. Physical Review X, 2020, 10(1): 011027.
- [11] HOLLOWAY C, SIMONS M, HADDAB A, et al. A multi-band Rydberg-atom based receiver/antenna: AM/FM stereo reception[J]. IEEE Transactions on Antennas and Propagation, 2020, 68(3): 63-76.
- [12] HOLLOWAY C, SIMONS M, GORDON J, et al. Detecting and receiving phase-modulated signals with a Rydberg atom-based receiver[J]. IEEE Antennas and Wireless Propagation Letters, 2019, 18(9): 1853-1857.
- [13] LIN Yi, WU Fengchuan, MAO Ruiqi, et al. Development of three-port fiber-coupled vapor cell probe and its application

- in microwave digital communication[J]. *Acta Physica Sinica*, 2022, 71(17): 170702.
- 林沂, 吴逢川, 毛瑞棋, 等. 三端口光纤耦合原子气室探头的开发及其微波数字通信应用[J]. *物理学报*, 2022, 71(17): 170702.
- [14] SEDLACEK J, SCHWETTMANN A, KÜBLER H, et al. Microwave electrometry with Rydberg atoms in a vapour cell using bright atomic resonances[J]. *Nature Physics*, 2012, 8(11): 819–824.
- [15] ZOU Sheng. Research of alkali metal cell based on ultra-sensitive atomic spin inertial measurement device[D]. Nanjing: Southeast University, 2016.
- 邹升. 超高灵敏原子自旋惯性测量装置碱金属气室技术研究[D]. 南京: 东南大学, 2016.
- [16] VLIEGEN E, KADLECEK S, ANDERSON L, et al. Faraday rotation density measurements of optically thick alkali metal vapors [J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 2001, 460(2–3): 444–450.
- [17] WEI K, ZHAO T, FANG X, et al. In-situ measurement of the density ratio of K-Rb hybrid vapor cell using spin-exchange collision mixing of the K and Rb light shifts[J]. *Optics Express*, 2019, 27(11): 16169–16183.
- [18] ZHANG H, ZOU S, CHEN X, et al. On-site monitoring of atomic density number for an all-optical atomic magnetometer based on atomic spin exchange relaxation[J]. *Optics Express*, 2016, 24(15): 17234–17241.
- [19] ŠIBALIĆ N, ADAMS C. Rydberg physics[M]. Bristol: IOP Publishing, 2018.
- [20] SIBALIC N, PRITCHARD J, ADAMS C, et al. ARC: an open-source library for calculating properties of alkali Rydberg atoms[J]. *Computer Physics Communications*, 2017, 220: 319–331.
- [21] BAO Shanxia. The spectroscopy of Rydberg electromagnetically induced transparency in external magnetic field [D]. Taiyuan: Shanxi University, 2017.
- 鲍善霞. 磁场调控的里德堡原子电磁诱导透明光谱[D]. 太原: 山西大学, 2017.
- [22] Thorlabs. Si switchable gain detector, 350–1100 nm, 12 MHz BW, 13 mm<sup>2</sup>, universal 8–32/M4 taps [EB/OL]. [2022-09-26]. <http://www.thorlabs.com>.
- [23] HUANG Wei, LIANG Zhentao, DU Yanxiong, et al. Rydberg-atom-based electrometry[J]. *Acta Physica Sinica*, 2015, 64(16): 160702.
- 黄巍, 梁振涛, 杜炎雄, 等. 基于里德堡原子的电场测量[J]. *物理学报*, 2015, 64(16): 160702.
- [24] SIMONS M, GORDON J, HOLLOWAY C. Fiber-coupled vapor cell for a portable Rydberg atom-based radio frequency electric field sensor[J]. *Applied Optics*, 2018, 57(22): 6456–6460.

## Estimation of Rydberg Atomic State Population Excited by Two-photon Resonance

AN Qiang, LIU Chengjing, YANG Kai, YAO Jiawei, WU Bo, LIN Yi

(*Department of Electronic Science, College of Electronic Science, National University of Defense Technology, Changsha 410073, China*)

**Abstract:** Alkali atom vapor cells are the essential component of quantum microwave measurement equipment. By means of laser pumping technology, alkali atoms can be easily excited from the ground to Rydberg states. Alkali atoms is very sensitive to electric field because of their very large polarizability, huge electric dipole and low ionization threshold field and so on. Recently, by virtue of the strong interaction of microwave field and Rydberg atoms, alkali atom vapor cells have been widely applied to detect the amplitude, frequency, phase and polarization of electric field, especially the microwave electric field. Quantum microwave measurement technology has shown significant advantages, such as the break of probe size independent of wavelength, extremely high sensitivity and accuracy, very broad spectrum measurement, and very large dynamic range. In the past decade, the technology has shown great potential for application in the monitoring of ultra wide band electromagnetic spectrum, the metering of microwave electric field, microwave imaging and communication, etc. Thereinto, the state population of Rydberg atoms in vapor cell is one of the decisive factors affecting measurement capability. Up to now, certain properties of vapor cell can be obtained by optical or other measurement technologies, such as the thickness, refractive index and transmittance of glass envelope, atomic ratio and density in vapor cells. However, all of them can not directly reflect the Rydberg atomic states in vapor cell, which could give rise to difficulties to the performance optimization of quantum measuring equipment based on atom vapor cells.

In this paper, a theoretical calculation model of Rydberg atomic state population excited by two-photon resonance has been established by using the ideal gas state equation, and the Rydberg blockade effect and gas atomic distribution are comprehensively analyzed. Meanwhile, an estimation method of Rydberg atomic state population, which is accomplished by aid of optimal Electromagnetically Induced Transparency (EIT) signal of Rydberg atoms, has been proposed and demonstrated experimentally under shading condition and room temperature, by means of the cylindrical ( $\sim 1.0$  cm in diameter and length) and cuboid ( $\sim 1.0$  cm in width and height, and  $\sim 2.0$  cm in length) vapor cell, respectively. The vapor cells are filled with saturated cesium ( $^{133}\text{Cs}$ ) atoms at 300 K, and the intensity of pressure is  $\sim 6\ 666.1$  Pa. In order to obtain the theoretical calculated and experimental estimates of the Rydberg state population excited by two-photon resonance, the EIT experimental setup has been put up by  $\sim 852$  nm and  $\sim 1\ 020$  nm semiconductor laser. Both of them are produced by TOPTICA Photonics. The typical spectral linewidths ( $5\ \mu\text{s}$  integration time) of two semiconductor lasers are  $\sim 100$  kHz. The  $\sim 852$  nm laser, which is stabilized on the saturated absorption spectral signal of  $^{133}\text{Cs}$  D2-line, is employed as a probe laser to irradiate into the vapor cells to excite the  $^{133}\text{Cs}$  atoms from the ground state ( $|6S_{1/2}\rangle$ ) to intermediate state ( $|6P_{3/2}\rangle$ ). Simultaneously, after frequency-doubling of  $\sim 1\ 020$  nm laser, the coupling laser in the wavelength of  $\sim 510$  nm counter-propagates through the vapour cells to excite the atoms from the intermediate state to the Rydberg state ( $|42D_{5/2}\rangle$ ). Thereinto, the probe and coupling laser are collimated and linearly polarized. Experimentally, the wavelengths of probe and coupling laser also can be certified by wavelength meter (Bristol 771A VIS). And then, by scanning the frequency of coupling laser and adjusting the laser powers, the optimal EIT spectrum can be displayed on the oscilloscope, which is connected into the photodetector (Thorlabs PDA36A2). The gain ( $50\ \Omega$ ) of photodetector is  $\sim 7.5 \times 10^6$  V/A, and the responsivity at the wavelength of  $\sim 852$  nm is  $\sim 0.55$  A/W. The laser parameters of optimal EIT spectrum can be measured by laser beam quality analyzer (Ophir SP920 s) and power meter (Thorlabs PM160). For the cylindrical vapor cell, the power and  $1/e^2$  beam diameter of probe laser are  $\sim 13.0\ \mu\text{W}$  and  $\sim 886.0\ \mu\text{m}$ , and the ones of coupling laser are  $\sim 22.0$  mW and  $\sim 1\ 425.0\ \mu\text{m}$ . For the cuboid vapor cell, above-mentioned laser parameters are  $\sim 16.2\ \mu\text{W}$ ,  $\sim 901.0\ \mu\text{m}$ ,  $\sim 23.5$  mW and  $\sim 1\ 437.0\ \mu\text{m}$ , respectively. Comparing the natural linewidth of Rydberg state ( $|42D_{5/2}\rangle$ ) and two lasers, the Rydberg blockade radius  $r_b$  of  $|42D_{5/2}\rangle$  is calculated to be  $\sim 6.3\ \mu\text{m}$ . Because of the two-photon resonance, the Rydberg atoms only can be excited in the overlapping region of lasers. According to the ideal gas state equation and dense packing model, a theoretical calculation model of Rydberg atomic state population can be established. So the Rydberg atomic state populations in the cylindrical and cuboid vapor cell can be obtained,  $3.06 \times 10^6$  and  $6.33 \times 10^6$ , respectively. Otherwise, in the optimal EIT spectrum, the energy difference between EIT peak and ground noise can be regarded as the energy of  $\sim 852$  nm enhanced transmission laser. Furthermore, a photon represents a Rydberg atom at  $|42D_{5/2}\rangle$  level. Hence, the Rydberg atomic state populations in two vapor cells can be estimated to be  $2.32 \times 10^6$  and  $5.86 \times 10^6$ . The experimental results are in good agreement with the values calculated by aforementioned theoretical model. The theoretical model and measurement method is benefit to characterization and optimization of vapor cell properties, which can promote the rapid development of quantum microwave measurement technology based on Rydberg atoms in future.

**Key words:** Rydberg atomic state population; Electromagnetically induced transparency; Atom vapor cells; Two-photon resonance; Quantum microwave measurement

**OCIS Codes:** 260.5740; 020.5780; 270.1670; 020.1335; 070.4340