具有窄线宽的三光子里德堡原子射频传感方案

Stephanie M. Bohaichuk[1], Fabian Ripka[1], Vijin Venu[1], Florian Christaller[1], Chang Liu[1], Matthias Schmidt[1], Harald Kübler[1,2], James P. Shaffer[1]

[1]Quantum Valley Ideas Laboratories，485 Wes Graham Way，滑铁卢，ON N2L 6R2，加拿大[2]5。斯图加特大学物理研究所，Pfaffenwaldring 57，70569 斯图加特，德国

我们展示了一种在室温铯蒸气池中采用共线三光子方案的基于里德堡原子的射频传感方法，该方法可最大限度地降低探测激光吸收特征的残余多普勒展宽。观测到的光谱线宽低于 200 千赫，与最常用的双光子方案的理论极限相比，自校准奥特勒-汤斯传感区域可扩展至弱**~18** 倍的场。研究表明，该方法对微秒脉冲的灵敏度足以检测为**2π × 0**.44 兆赫的射频拉比频率；在 108.9 赫兹下带宽为 480 千赫，展示了其感测适用于雷达和通信的时变信号的能力。

关键词—量子光学、里德堡原子、电场传感、射频、量子计量学、电磁感应透明（EIT）

校准是许多依赖射频（RF）电磁场的技术中至关重要的环节，这些技术包括通信、雷达、医疗保健、遥感和无损检测。然而，射频电磁场绝对测量的准确度相对较低且成本高昂，因为测量结果必须溯源至某一标准。利用原子蒸气中的里德堡原子[1–4] 的新方法前景广阔，有望在覆盖兆赫至太赫兹的宽频率范围内，为测试与测量提供传统校准射频天线的补充，甚至取而代之。基于原子的射频电场（E场）振幅传感能够实现自校准，因为测量结果可以溯源至精确确定的原子结构和基本常数[1,2]。这类传感器还具有电磁透明、便携和坚固耐用等特点。

在基于原子的射频计量中，与原子里德堡跃迁[2,5–8]（近）共振的外部射频电场会改变电磁感应透明（EIT）或电磁感应吸收（EIA）。在自校准的奥特勒-汤斯区，可测量的最小射频电场由光学吸收特征的光谱线宽决定。迄今为止，几乎所有基于里德堡原子的传感都采用双光子方案。对于基于铯的传感器，使用反向传播的 852 nm 探测激光和 509 nm 耦合激光。光谱线宽受残余多普勒展宽限制，这是由两束激光之间的波矢失配引起的。对于取向平均的跃迁偶极矩，光谱分辨率受限于2π × 3.5 兆赫[9]。光抽运可以略微提高光谱分辨率[10]。在振幅区间，双光子方案能够探测低于1 μV/cm[10,11], 的射频电场强度，相关基本极限的讨论见[2,12]。利用辅助射频电场进行外差测量，已经测得更弱的射频电场[13,14]。基于里德堡原子的传感器能够探测调制射频电场，包括亚微秒脉冲[15–20]。灵敏度取决于跃迁偶极矩和传感几何结构。

本文展示了一种在室温铯蒸气池中实现的三光子传感方案。采用 895 纳米、636 nm 激光和 2262 纳米激光共线的几何构型，对 108.9 GHz 射频电场进行传感。残余多普勒展宽得以降低，接近 2π × 51 kHz 的理论极限。两个较长波长激光场的波矢经过匹配，以补偿 636 nm 激光场的多普勒频移 [9,21]。共线几何构型具有易于对准的优势，并且在激光功率固定时可提供较大的相互作用体积。我们实现了 2π × 190 kHz 的实验光谱线宽。我们从理论上考察了光谱线宽的实际极限，并表明其不再受多普勒展宽主导。较窄的光谱线宽显著拓宽了自校准奥特勒-汤斯区，使我们能够分辨出 < 2π × 400 kHz 的谱线分裂。与取向平均后的理论极限相比，这一改进近 20 倍，而这种表现是基于里德堡原子的传感实验中鲜有实现的。我们还展示了使用匹配滤波技术 [20] 对单个 1 – 10 μs 脉冲进行传感，并在 480 kHz 探测带宽下测得低至 ~858 μV/cm 的射频电场。与以往的全光学双光子传感方案相比，本研究结果更优；在该探测带宽、几何构型和射频跃迁偶极矩条件下，结果与当前的外差实验相当。

实验装置如图 1a 所示。三束光学激发光束共线地穿过一个长 2.5 厘米的铯蒸气池。蒸气池周围放置了补偿线圈，用于抵消会使光谱线展宽的背景磁场。895 纳米探测激光驱动 $6S_{1/2}(F=4) \rightarrow 6P_{1/2}(F=3)$ 跃迁，636 纳米中间耦合光束驱动 $6P_{1/2}(F=3) \rightarrow$

$9S_{1/2}(F=4)$ 跃迁，而 2262 纳米里德堡耦合光束驱动 $9S_{1/2}(F=4) \rightarrow 42P_{3/2}$ 跃迁。636 纳米光束与 895 纳米和 2262 纳米光束反向传播。所有光束均为圆偏振。为进行窄线宽测量，895 纳米、636 纳米和 2262 纳米激光器的 $1/e^2$ 光束直径分别为 1.2 毫米、1.1 毫米和 1.3 毫米。所有激光器均采用 Pound-Drever-Hall 技术锁定至超低膨胀腔，实现频率稳定。 估算得出，895 纳米、636 纳米和 2262 纳米激光器的光谱线宽分别低于 $2\pi \times 10$ 千赫，$2\pi \times 50$ 千赫和 $2\pi \times 50$ 千赫。使用带宽为 10 兆赫的雪崩光电二极管检测探测光束吸收的变化。

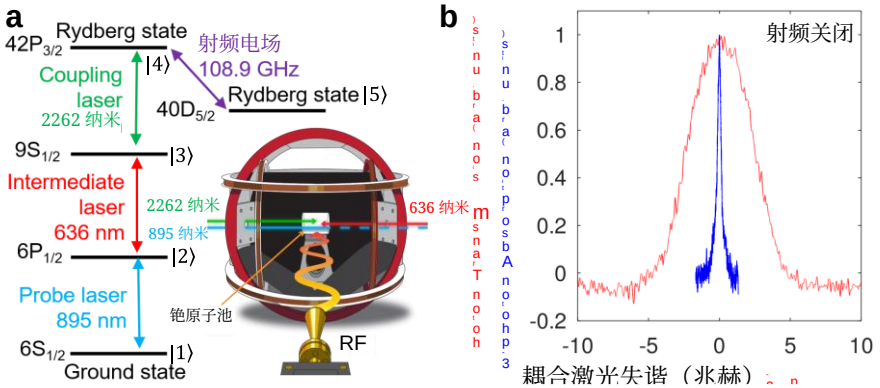

图 1。（a）能级图和实验装置。喇叭天线发射的射频电场垂直于光轴，并通过监测探测激光透过蒸气池的透射进行探测。（b）三光子激发产生的吸收特征，其谱线宽度比标准的双光子 509 852 $\Omega_{895} = 2\pi \times 1\ 0$ $\Omega_{636} = 2\pi \times 6\ 7$ $\Omega_{2262} = 2\pi \times$ and nm 激发方 0 04 $\Omega_{852} = 2\pi \times 1\ 7$ $\Omega_{509} = 2\pi \times 2\ 1$ 案窄一个数量级以上。三光子激发采用的拉比频率为 . 兆赫、. 兆赫和 . 兆赫，而双光子激发采用的拉比频率为 . 兆赫和 .兆赫。

采用 108.9 赫兹的射频电场共振驱动 $42P_{3/2} \rightarrow 40D_{5/2}$ 原子跃迁。通过可变衰减器调节射频电场强度，并放置在距离蒸气池 ~15 厘米处的微波喇叭天线辐射。射频电场垂直于激光束传播，且电场为垂直偏振。对于这一里德堡跃迁，径向偶极矩阵元为 $632ea_0$，我们采用取向平均偶极矩 $\mu = 400ea_0$ 来估算射频电场。

三光子读出的探测光吸收典型光谱线型如图 1b 所示。2262 纳米激光通过声光调制器（AOM）以 61 千赫的频率进行调制。探测激光透射信号经锁定处理 -in 放大器。三光子激发产生电磁感应吸收，其线型近似为洛伦兹型，半高全宽（FWHM）为 $2\pi \times 324$ 千赫。作为比较，图中还展示了铯原子的标准双光子装置所获得的透射线型，其中采用了反向传播的 509 纳米耦合激光和 852 纳米探测激光。在窄线宽条件下，双光子系统呈现高斯型线型，半高全宽为 $\sim 2\pi \times 5$ 兆赫，比图1c所示的三光子系统大 15× 倍。三光子读出的光谱线型呈洛伦兹型，这一事实表明其不再受多普勒效应主导。

图2a展示了不同拉比频率 Ω_{636} 下三光子信号的形状和线宽。随着 Ω_{636} 减小，信号幅度降低，线宽降至 $2\pi \times 190$ 千赫兹（$\Omega_{636} = 2\pi \times 1.7$ 兆赫），比双光子系统的取向平均残余多普勒极限小 18 倍。

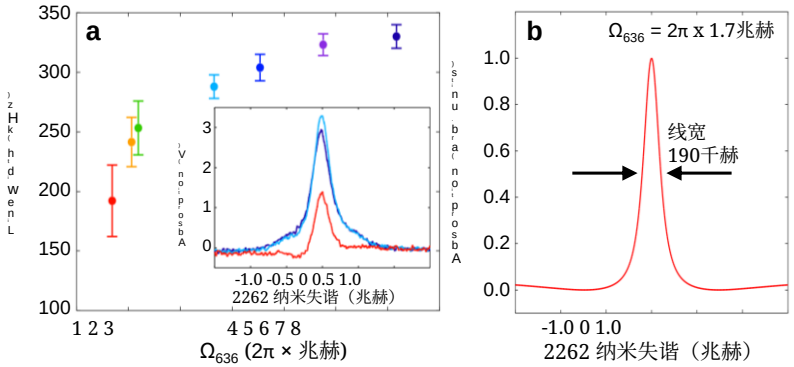

图2。（a）无射频电场时，在不同中间态耦合拉比频率 Ω_{636} 下测得的三光子信号洛伦兹线宽（半高全宽）。误差棒表示多次单独迹线所得线宽分布的一个标准差。插图显示了实验光谱线型的平均值。（b）使用密度矩阵模型模拟的三光子系统探测光吸收，得到理论洛伦兹线宽 190千赫。 Ω_{895} $= 2\pi \times 1\ 0$ $\Omega_{2262} = 2\pi \times 0\ 04$ 。兆赫和。兆赫。

为研究理论光谱线宽，我们进行了密度矩阵计算，如图2b所示。我们对图1a所示五能级梯级系统的稳态密度矩阵求解主方程，然后进行热平均（见补充材料 [22]）。我们在每个状态的林德布拉德算符中纳入辐射衰减率和黑体衰减率：$\Gamma_{21} = 2\pi \times 4.5$ 兆赫，$\Gamma_{32} = 2\pi \times 200$ 千赫兹，以及$\Gamma_{42} = 2\pi \times 2$ 千赫兹 [23]。我们纳入了 $2\pi \times 110$ 千赫兹的渡越时间展宽。还根据与各能级相互作用的激光器的光谱线宽之和，纳入了各跃迁的退相干项：$\Gamma_{11} = 2\pi \times 10$ 千赫兹，$\Gamma_{22} = 2\pi \times 60$ 千赫兹，$\Gamma_{33} = 2\pi \times 100$ 千赫兹，以及$\Gamma_{44} = 2\pi \times 50$ 千赫兹。

在我们的模型中，我们发现，在 $\Omega_{895} = 2\pi \times 1.0$ 兆赫、$\Omega_{636} = 2\pi \times 1.7$ 兆赫和 $\Omega_{2262} = 2\pi \times 0.04$ 兆赫条件下，探测光吸收的光谱线型呈洛伦兹型，半高全宽为 $\sim 2\pi \times 190$ 千赫，这与这些条件下的实验线宽相近。残余多普勒展宽不再是奥特勒-汤斯区光谱分辨率的限制因素，而是线宽的多个贡献因素之一，其中还包括激光线宽、里德堡态寿命和渡越时间展宽。观测到的电磁感应吸收线型主要呈洛伦兹型而非高斯型，这一事实证明了这种变化。在我们的实验条件下，模型预测里德堡态布居数较低，为 $\rho_{44} \sim 3 \times 10^{-5}$，因此我们预计碰撞不会发挥显著作用（见补充材料）[22]。当激光线宽较小，为 <1 千赫时，渡越时间展宽和残余多普勒效应占主导，三光子线宽降至 145 千赫。光谱线宽最终受里德堡态衰减率和残余多普勒展宽限制。

图3展示了施加 108.9 GHz 连续波射频电场时的实验探测光吸收。射频电场幅度 E 由自校准原子响应直接确定：对吸收峰拟合一对洛伦兹型曲线，并提取频率劈裂 $\Delta\nu$。再使用 $E = 2\pi\hbar\Delta\nu/\mu$ 将其换算为射频电场幅度。随着施加的射频电场逐渐减弱，两个吸收峰开始重叠，直至在劈裂为 $\sim 2\pi \times 380$ kHz 时变得无法区分，此时对应的场强为 ~745 μV/cm。图3中的数据表明，在自校准工作区内可测得的最小可探测射频电场幅度，比任何双光子装置中报告过的最小自校准场强低 ~9 倍（偶极矩相当）；与不利用光抽运的方案相比，性能最高可提升 ~18 倍 [8]。

振幅区间内三光子法测量弱射频电场的灵敏度取决于对吸收微小变化的检测。与奥特勒-汤斯区相比，采用更高的中间态和里德堡耦合拉比频率可获得更高的灵敏度。由于功率受限，为提高里德堡耦合激光器的拉比频率，我们通过注入宽带多模激光二极管 [24] 对其进行放大。我们还将 2262 纳米激光的光束尺寸减小至直径 ~150 μm。为尽可能减小探测光束中不携带信号的分量，我们将 895 nm 激光的光束直径减小至 240 μm。我们选择了最大 2262 纳米和 636 纳米激光功率，并为 895 nm 激光选择了最佳功率，以使射频灵敏度达到最大。这一选择与实验和建模结果一致（见补充材料 [22]）。

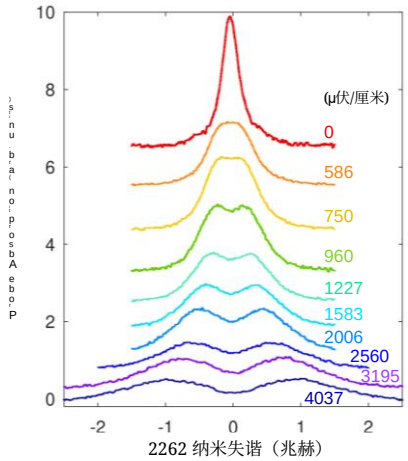

图 3. 对蒸气池中探测激光吸收的 Autler-Townes 分裂，以响应幅度从上至下逐渐增大的 108.9 GHz 连续波射频电场。顶部曲线是在未施加射频电场时测得的，其半高全宽为 284 赫兹。通过峰分裂从原子测得的自校准射频场强标注在每条曲线旁。$\Omega_{895} = 2\pi \times 1.0$ 兆赫、$\Omega_{636} = 2\pi \times 7.2$ 兆赫和 $\Omega_{2262} = 2\pi \times 0.04$ 兆赫。

我们测得在 $\Omega_{2262} = 2\pi \times 2.4$ 兆赫、$\Omega_{636} = 2\pi \times 7.2$ 兆赫和 $\Omega_{895} = 2\pi \times 1.9$ 兆赫处的射频电场灵敏度，得到的线宽为 ~1.5 兆赫。

射频电场强度通过线性衰减器调节，该衰减器在可测量 Autler-Townes 分裂的高场强下进行校准。校准时射频电场处于共振状态，但当射频电场失谐为 -125 千赫兹，且 2262 纳米的失谐方向相反、幅度约为其一半时，测得的射频电场灵敏度略高；这很可能是由交流斯塔克位移和轻微的光束未对准所致。为测量对单个射频电场脉冲的灵敏度，所有激光器的频率均被

锁定，射频电场则以微秒时间尺度进行脉冲调制。为进一步提高灵敏度并稳定原子密度，我们将蒸气池加热至 29°C。我们将蒸气池置于一个小型塑料支架中，支架内装有四个电阻式微加热器（~2 毫米 x 2 毫米），与蒸气池外侧的四角接触，旨在维持射频透明性。

为提高信噪比，并在一种更接近可部署设备预期工作模式的操作模式下获得灵敏度，我们采用数字匹配滤波器 [20,25]。对于近似方波脉冲，匹配滤波器具有明确的探测带宽 $B = 1/\tau$，其中 τ 为脉冲持续时间。匹配滤波依赖于已知的脉冲形状，我们通过对实验原子响应取平均获得该形状，见图 4a 插图 [22]。由于光束尺寸较小，即渡越时间较短，响应呈现快速的 ~0.5 μ秒上升和下降时间。图 4a 显示了匹配滤波器的典型输出，其在与模板互相关达到最大值的时刻产生峰值。我们对预期到达时间窗口内匹配滤波器的峰值进行统计，并减去未施加射频时的平均噪声峰值幅度，从而得到图 4b。

我们将平均信号高度高于滤波后噪声 1σ 的场强视为最弱可测场强，据此提取该检测方案的灵敏度。我们对振幅区间内弱场条件下的数据进行最小二乘拟合，<2450 μV/cm；在此范围内，吸收变化与射频电场幅度 [26]近似呈二次关系。无射频电场时，曲线与噪声分布上侧误差棒的交点给出了脉冲持续时间为 2 μ秒时的最小可探测电场，即 1225 μV/cm，或 $\Omega_{RF} = 2\pi \times 0.63$ 兆赫。测量带宽为 500 赫兹。类似地，由于脉冲总能量较高，在脉冲持续时间为 10 μ秒（带宽为 100 赫兹）时，可测量低至 955 μV/cm 的更弱脉冲；而在脉冲持续时间为 1.25 μ秒（带宽为 800 赫兹）时，可测量 1754 μV/cm 的场强。对于短脉冲射频电场，我们的整体最佳响应是在脉冲持续时间为 2.1 μ秒时获得的，可探测低至 858 μV/cm 的场强，即拉比频率为 $2\pi \times 0.44$ 兆赫，探测带宽为 480 赫兹。

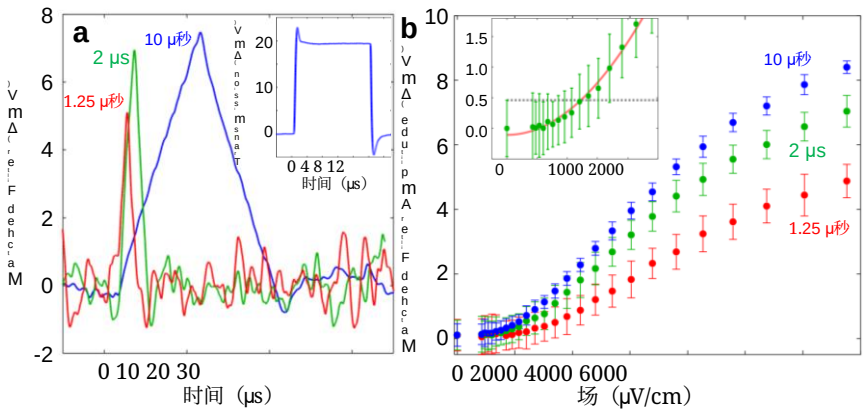

图 4. (a) 对单个 5365 μV/cm 射频脉冲的匹配滤波器输出。插图显示了对 3724 μV/cm 射频脉冲的平均原子响应，该响应用作滤波器模板。(d) 匹配滤波器对不同射频电场强度下的单个脉冲的平均信号高度输出。误差棒表示 200-400 个脉冲的一个标准差。插图显示了对弱射频电场下二次振幅区间的拟合（红色）。灵敏度由测量带宽下平均信号高度超过 1σ 噪声误差棒（插图中的黑色虚线）时的最小场强确定。

这些测量带宽附近的灵敏度对应于 ~1.25 μV cm^{-1} $Hz^{-1/2}$。由于吸收随射频电场幅度呈非线性变化，因此不应将此数值外推至较长的积分时间。以最小可探测射频拉比频率而非射频振幅来评估灵敏度，可以更好地比较技术噪声水平，因为它与跃迁偶极矩无关。对于采用匹配滤波器的双光子装置，在脉冲持续时间、测量带宽和几何构型相近的情况下，测得的相应拉比频率为 $2\pi \times 1.37$ MHz [20]。据我们所知，目前尚未有在这些带宽下开展的先进外差实验报道，但将带宽外推至 500 kHz 时，最小拉比频率可达到约 $2\pi \times 0.075$ MHz [13,14]。值得注意的是，报道这些数值的外差实验所用原子数量是本文实验的 200 多倍，探测激光功率是其 200 倍，且渡越时间展宽小 14 倍。因此，共线三光子方案在振幅区间内可提供相当或更高的脉冲灵敏度，即 $2\pi \times 0.44$ MHz，

一种双光子装置，并且即使考虑到几何条件的差异，其结果也与所引用的外差测量结果相差不到一个数量级。

通过同时提高 636 纳米和 2262 纳米的拉比频率，并采用更大的光束尺寸来减小渡越时间展宽，同时在拉比频率固定时提高探测激光的总功率，预计可大幅提升射频电场灵敏度。更高的探测激光功率可降低受光子散粒噪声限制的最低可探测射频电场，而我们的密度矩阵计算表明，最佳传感工作点位于更高的 636 纳米和 2262 纳米拉比频率处。采用更大的激光束还可增加原子数量，从而增强信号。我们保守估计，通过将灵敏度提升 30 倍以上是

可以实现的：优化耦合激光拉比频率，并将光束直径扩大 10 倍，同时保持探测激光拉比频率不变。增大激光束尺寸的一个缺点是，渡越时间展宽减小后，脉冲达到最终幅度所需的时间会增加[20]。鉴于射频诱导的电磁感应吸收变化线宽很窄[22],，三光子装置对三台激光器的频率噪声都非常敏感，因为频率噪声会转化为信号幅度噪声。据估计，我们的系统距离探测激光光子散粒噪声极限仅差一个数量级；通过采用线宽更窄的激光器（无论是改进激光器设计还是提高频率锁定性能），预计系统可以达到探测激光散粒噪声极限。经过这些改进，我们预计三光子系统的性能可与双光子系统当前最先进的外差测量结果相媲美，甚至超越它们，并有可能突破热噪声极限。

我们通过实验展示了一种用于基于里德堡原子的射频电场测量的共线三光子方案。该方案最大限度地减小了激光器之间的波矢失配，大幅降低了残余多普勒展宽。我们实现了 $2\pi \times 190$ 千赫兹的电磁感应吸收谱线宽，其受限于渡越时间展宽、自发衰减和激光线宽。该光谱线宽比标准双光子激发方案窄 18 倍以上，使得能够在 Autler-Townes 区间内测量更弱的射频电场。通过使用针对原子响应定制的匹配滤波器，我们在 108.9 吉赫兹下，以 480 千赫兹的带宽测得最低射频拉比频率为 $2\pi \times 0.44$ 兆赫。在这些带宽下，考虑几何构型和偶极矩后，最低拉比频率与最先进的实验结果相当。我们发现，增大耦合激光拉比频率和光束尺寸有利于实现最高灵敏度。窄线宽将自校准传感区间扩展至更弱的场，同时对单个射频脉冲保持高灵敏度。

致谢

本研究得到加拿大国防研究与发展部（DRDC）通过“国防卓越与安全创新计划”（IDEaS）项目“量子飞跃：面向野外作业的小型化传感技术”（合同编号：W7714-217517/001/SV1）以及美国国防高级研究计划局（DARPA）通过“面向新技术的原子蒸气科学”（SAVaNT）项目（合同编号：HR00112190080）的资助。

参考文献

[1] J. A. Sedlacek, A. Schwettmann, H. Kübler, R. Löw, T. Pfau, 和 J. P. Shaffer, 《利用明亮原子共振在蒸气池中进行里德堡原子微波测量》, 《自然·物理》8, 819（2012）。[2] H. Fan, S. Kumar, J. Sedlacek, H. Kübler, S. Karimkashi, 和 J. P. Shaffer, 《基于原子的射频电场传感》, 《物理学杂志B：原子、分子与光学物理》48, 202001（2015）。[3] J. A. Gordon, C. L. Holloway, A. Schwarzkopf, D. A. Anderson, S. Miller, N. Thaicharoen, 和 G. Raithel, 《通过铷里德堡原子的奥特勒-汤斯分裂探测毫米波》, Appl. Phys. Lett. 105, 024104（2014）。[4] C. L. Holloway, J. A. Gordon, S. Jefferts, A. Schwarzkopf, D. A. Anderson, S. A. Miller, N. Thaicharoen, 和 G. Raithel, 《用于国际单位制可溯源自校准测量的宽带里德堡原子电场探针》, IEEE Trans. Antennas Propag. 62, 6169（2014）。[5] J. Gea-Banacloche, Y. Li, S. Jin, 和 M. Xiao, 《梯型非均匀展宽介质中的电磁感应透明：理论与实验》, 《物理评论A》51, 576（1995）。[6] M. Fleischhauer, A. Imamoglu, 和 J. P. Marangos, 《电磁诱导透明：相干介质中的光学》, 《现代物理评论》77, 633（2005）。[7] A. K. Mohapatra, T. R. Jackson, 和 C. S. Adams, 《利用电磁感应透明对高激发里德堡态进行相干光学检测》, 《物理评论快报》98, 113003（2007）。[8] M. Tanasittikosol, J. D. Pritchard, D. Maxwell, A. Gauguet, K. J. Weatherill, R. M. Potvliege, 和 C. S. Adams, 《微波缀饰里德堡暗态》, 《物理学杂志B：原子、分子与光学物理》44, 184020（2011）。[9] J. P. Shaffer 和 H. Kübler, 《利用里德堡原子进行微波电场传感的读出增强》, 载于 SPIE量子技术会议论文集, 第10674卷（2018）。[10] S. Kumar, H. Fan, H. Kübler, J. Sheng, 和 J. P. Shaffer, 《利用零差读出进行弱射频电场的原子传感》, 《科学报告》7, 42981（2017）。[11] S. Kumar, H. Fan, H. Kübler, A. J. Jahangiri, 和 J. P. Shaffer, 《利用频率调制光谱法在室温蒸气池中进行基于里德堡原子的射频测量》, Opt. Express 25, 8625（2017）。[12] H. Kübler, J. Keaveney, C. Lui, J. Ramirez-Serrano, H. Amarloo, J. Erskine, G. Gillet, 和 J. P. Shaffer, 《利用高激发原子进行微波电场原子传感：影响灵敏度的机制》, 载于 SPIE光学、光学原子与纠缠增强精密计量会议论文集, 第10934卷（2019）, 第1093406页。[13] M. Jing, Y. Hu, J. Ma, H. Zhang, L. Zhang, L. Xiao, 和 S. Jia, 《基于微波缀饰里德堡光谱的原子超外差接收机》, 《自然·物理》16, 911（2020）。

[14] M. Cai, Z. Xu, S. You, 和 H. Liu, 《里德堡原子微波传感器的灵敏度改进与测定》, Photonics 9, （2022）。[15] D. H. Meyer, K. C. Cox, F. K. Fatemi, 和 P. D. Kunz, 《利用里德堡原子和调幅微波场进行数字通信》, Appl. Phys. Lett. 112, 211108（2018）。[16] D. A. Anderson, R. E. Sapiro, 和 G. Raithel, 《用于调幅和调频无线电通信的原子接收机》, IEEE Trans. Antennas Propag. 69, 2455（2021）。[17] Y. Jiao, X. Han, J. Fan, G. Raithel, J. Zhao, 和 S. Jia, 《用于高频无线电通信中调幅基带信号的原子接收机》, Appl. Phys. Express 12, 126002（2019）。[18] C. Holloway, M. Simons, A. H. Haddab, J. A. Gordon, D. A. Anderson, G. Raithel, 和 S. Voran, 《多频段里德堡原子接收机：调幅/调频立体声接收》, IEEE Antennas Propag. Mag. 63, 63（2021）。[19] Z. Song, H. Liu, X. Liu, W. Zhang, H. Zou, J. Zhang, 和 J. Qu, 《利用连续可调射频载波进行基于里德堡原子的数字通信》, Opt. Express 27, 8848（2019）。[20] S. M. Bohaichuk, D. Booth, K. Nickerson, H. Tai, 和 J. P. Shaffer, 《里德堡原子静电计瞬态响应的起因及其对射频脉冲传感的影响》, Phys. Rev. Appl. 18, 034030（2022）。[21] N. Parjapati, N. Bhusal, A. P. Rotunno, S. Berweger, M. T. Simons, A. B. Artusio-Glimpse, Y. J. Wang, E. Bottomley, H. Fan, 和 C. L. Holloway, 《双光子与三光子里德堡电测量的灵敏度比较》, arXiv:2211.11848v2（2022）。[22] 详见*[插入链接]* 处的补充材料, 其中介绍了密度矩阵建模、碰撞效应的考察、使射频灵敏度最大化的最佳拉比频率讨论, 以及射频振幅对脉冲形状的影响。[23] N. Šibalić, J. D. Pritchard, C. S. Adams, 和 K. J. Weatherill, 《ARC：用于计算碱金属里德堡原子性质的开源库》, Comput. Phys. Commun. 220, 319（2017）。[24] C. J. H. Pagett, P. H. Moriya, R. Celistrino Teixeira, R. F. Shiozaki, M. Hemmerling, 和 Ph. W. Courteille, 《在461 纳米下对低成本高功率激光二极管进行注入锁定》, Rev. Sci. Instrum. 87, 053105（2016）。[25] M. A. Richards, 《雷达信号处理基础》, 第2版（麦格劳-希尔, 2014）。[26] F. Ripka, H. Amarloo, J. Erskine, C. Liu, J. Ramirez-Serrano, J. Keaveney, G. Gillet, H. Kübler, 和 J. P. Shaffer, 《应用驱动的里德堡原子电测量问题》, 载于 SPIE 光学与量子传感及精密计量会议论文集, 第11700卷（2021）。

补充材料：窄线宽三光子里德堡原子射频传感方案

Stephanie M. Bohaichuk[1], Fabian Ripka[1], Vijin Venu[1], Florian Christaller[1], Chang Liu[1], Matthias Schmidt[1], Harald Kübler[1,2], James P. Shaffer[1]

[1]Quantum Valley Ideas Laboratories，485 Wes Graham Way，滑铁卢，ON N2L 6R2，加拿大[2]5斯图加特大学，Pfaffenwaldring 57，70569 斯图加特，德国

I. 密度矩阵模型的详细描述

三光子系统可用五能级梯型系统的含时主方程描述，并通过该方程求解稳态下的密度矩阵 ρ：

$$\dot{\rho} = \frac{i}{\hbar}[\rho, H] + \mathcal{L}(\rho), \tag{S1}$$

H 是系统在相互作用绘景中的哈密顿量，ħ 是约化普朗克常数，L 是描述衰变和退相干的林德布拉德算符。我们用以下形式描述该系统在相互作用绘景中的哈密顿量：

$$H = \hbar \begin{pmatrix} 0 & \frac{\Omega_{895}}{2} & 0 & 0 & 0 \\ \frac{\Omega_{895}}{2} & -\Delta_2 & \frac{\Omega_{636}}{2} & 0 & 0 \\ 0 & \frac{\Omega_{636}}{2} & -\Delta_3 & \frac{\Omega_{2262}}{2} & 0 \\ 0 & 0 & \frac{\Omega_{2262}}{2} & -\Delta_4 & \frac{\Omega_{RF}}{2} \\ 0 & 0 & 0 & \frac{\Omega_{RF}}{2} & -\Delta_5 \end{pmatrix} \tag{S2}$$

哈密顿量包含每个态跃迁 j 的拉比频率 $\Omega_j = \mu_j E_j/\hbar$ 相关项，其中原子偶极矩 μ_j 按实验装置中涉及的超精细态取平均。各态的失谐量如下：

$$\Delta_2 = \Delta_{895} + k_{895} v \tag{S3a}$$

$$\Delta_3 = \Delta_2 + \Delta_{636} - k_{636} v \tag{S3b}$$

$$\Delta_4 = \Delta_3 + \Delta_{2262} + k_{2262} v \tag{S3c}$$

$$\Delta_5 = \Delta_4 + \Delta_{RF} \tag{S3d}$$

其中，v 是原子速度沿激光束方向的分量大小，k 为光子波矢。在所有模拟中，895 nm 和 636 nm 激光均保持共振（$\Delta_{895} = \Delta_{636} = 0$），射频场（$\Delta_{RF} = 0$）也保持共振。通过在各个速度 v 下求解公式 (S1)，再按玻尔兹曼分布加权并进行数值积分，可得到密度矩阵元素 ρ_{21} 的多普勒平均值，计算如下：

$$\rho_{21} = \int \sqrt{\frac{m}{2\pi k_B T}} exp\left(-\frac{mv^2}{2k_B T}\right) \rho_{21}(v)\, dv \tag{S4}$$

The 密度矩阵元素 ρ_{21} 可用于确定吸收系数 α，其描述如下 by:

$$\alpha = \frac{N\mu_{895}^2 k_{895}}{2\epsilon_0 \hbar \Omega_{895}} Im(\rho_{21}) := \alpha_0 Im(\rho_{21}), \tag{S5}$$

其中，N = 3 x 10^{16} m^{-3} 为室温下的原子数密度，ϵ_0 为真空介电常数。我们将首项系数定义为 α_0。探测激光穿过蒸气池后的总透射强度 I，可根据式 (S5) 中的吸收系数、蒸气池长度 L 和入射探测光强 I_0，用朗伯–比尔定律表示：

$$I = I_0 \exp(-\alpha L) \tag{S6}$$

II. 碰撞与两体相互作用势

为评估碰撞展宽对三光子电磁感应吸收线宽可能产生的影响，我们计算了图 S1 所示 $42P_{3/2}$ 里德堡对态的两两势能。这些计算同时考虑了偶极相互作用和四极相互作用 [1,2]。$42P_{3/2} - 42P_{3/2}$ 相互作用具有吸引性。根据图 S b，我们预计当原子间距小于 R . m 时，原子经历的失谐与激光线宽（ ≥20 $_{nn}$ ~ 4 4 μ 1 $\bar{\nu}$ 千赫兹） = 200 = 3 × 10^{16} $^{-3}$ $\Gamma_{\mathrm{coll}} \sim \rho_{44} N \pi R_{nn}^2 \bar{v} \sim 2\pi \times 2$ 相当或更大。考虑到平均热速度为 m/s，原子密度为 N m，我们预计这种情况发生的频率较低，约为 kHz，因此产生的碰撞退相干和展宽可以忽略不计。

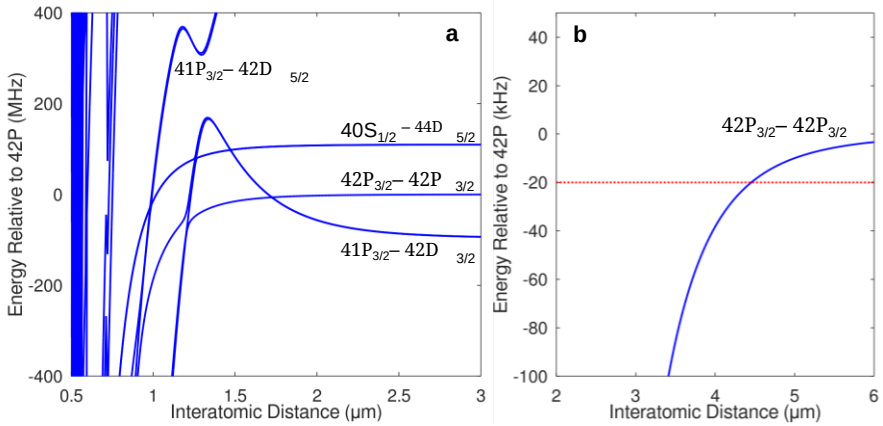

图 S1. 计算得到的 $42P_{3/2}$ 及其附近里德堡态的两体相互作用势。(a) 在原子间距为 ~1.2 μ米时，可能发生四极允许的态改变碰撞，但由于避免交叉陡峭且兰道-齐纳曲线交叉概率极低，这种情况极不可能发生。(b) 图 (a) 在小频移区域的纵向放大图。若 $42P_{3/2} - 42P_{3/2}$ 相互作用产生的失谐与激光线宽 ~20 千赫兹（红色虚线）相当，则原子间距必须小于 ~4.4 μ米，而这种情况并不常见。

III. 射频灵敏度的最佳条件

在图 S2 中，我们改变三台激光器的光功率，进而改变拉比频率，以确定电磁感应吸收和射频灵敏度的最佳条件。图 S2a 显示了未施加射频场时测得的三光子电磁感应吸收峰振幅，该振幅通过比较探测激光的光电二极管电压获得，分别对应于共振和远失谐的 2262 纳米激光。图 S2b–c 显示了对强度为 1370 μV/cm 的射频电场（电场）响应时共振吸收的变化。在奥特勒-汤斯区，较大的三光子电磁感应吸收峰可提供更高的信噪比；而在振幅区间，对射频电场的响应越大，越有利于检测。

射频灵敏度随Ω_{2262} 和Ω_{636}增加而提高，但随Ω_{2262}增加时提高得更快。这些趋势与图 S2d 所示的密度矩阵建模结果一致；该模型外推至比当前实验装置所能实现的更高拉比频率。模型中采用$2\pi \times 1$ 兆赫的渡越时间展宽，这反映了灵敏度测量所用的较小光束尺寸。模型未考虑碰撞和电离的影响，这些因素可能会使线宽展宽，并降低图中右上区域的射频灵敏度。结果表明，应提高两个耦合拉比频率，以改善射频灵敏度。

实验表明，Ω_{895} 存在一个使射频灵敏度达到最大值的最优值，该值约为使三光子电磁感应吸收峰高达到最大值时所需Ω_{895} 的一半。随着Ω_{636} 和Ω_{2262} 的变化，Ω_{895} 的最优值似乎没有显著变化。

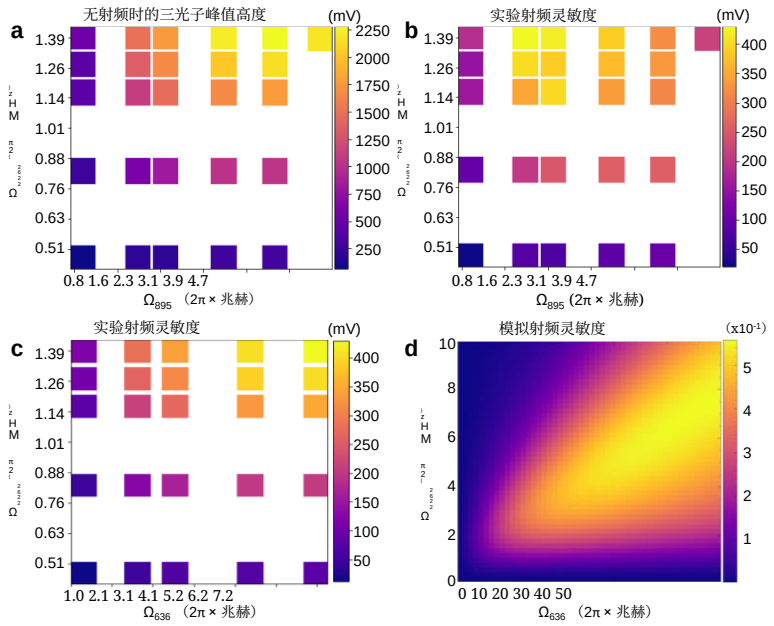

图 S2. 射频灵敏度最高时的最佳拉比频率。(a) 未施加射频时测得的三光子吸收峰高度，频率为 $\Omega_{636} = 2\pi \times 7.2$ 兆赫。(b) 入射射频电场为 ~1370 μV/cm、频率为 $\Omega_{636} = 2\pi \times 7.2$ 兆赫时测得的吸收变化。(c) 入射射频电场为 ~1370 μV/cm、频率为 $\Omega_{895} = 2\pi \times 1.9$ 兆赫时测得的吸收变化。(d) 在固定频率 $\Omega_{895} = 2\pi \times 1.9$ 兆赫下，存在 196 μV/cm 射频电场和未施加射频电场时吸收系数变化百分比的模拟图 α 。

我们在实验上可达到的最佳拉比频率下测量射频电场灵敏度，分别为$\Omega_{2262} = 2\pi \times 2.4$ 兆赫、$\Omega_{636} = 2\pi \times 7.2$ 兆赫和 $\Omega_{895} = 2\pi \times 1.9$ 兆赫。由此得到的线宽为~1.5 兆赫，如图 S3 所示。图 S3 还显示了射频电场引起的吸收变化随 2262 纳米激光失谐的变化；测量时对射频电场施加 20 千赫方波幅度调制，并使用锁相放大器进行解调。吸收变化的有效线宽在频谱上比电磁感应吸收峰更窄，为~$2\pi \times 650$ 千赫。

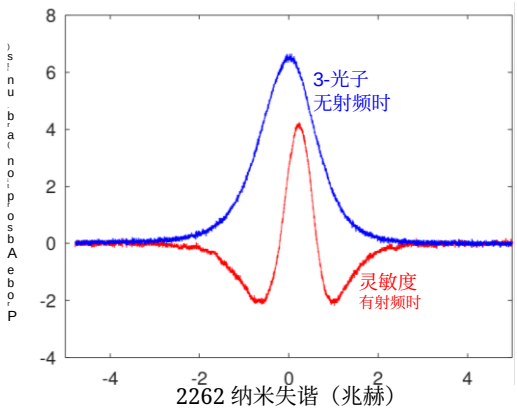

图 S3. 未施加射频电场时的探测光吸收（蓝色），采用针对射频电场灵敏度优化的激光条件。使用锁相放大器测量信号，2262 纳米激光以 60 千赫的频率进行调幅。红色显示对 1134 μV/cm 射频电场的灵敏度；测量时使用锁相放大器，以 20 千赫方波调制射频振幅，而非调制 2262 纳米激光。

IV. 脉冲形状

图 S4 展示了在室温下测得的三光子系统对持续时间各异、幅度为 3724 μV/cm 的射频电场脉冲的实验原子响应。这些响应经过 10^5 个周期的平均处理，以降低噪声，并用作匹配滤波所需的模板。较短的脉冲总能量较低，产生的匹配滤波峰值较小，同时由于带宽较高，噪声也较大。响应的上升和下降时间均为 ~0.5 μ 秒，受原子渡越时间的影响

穿过光束。由于原子响应时间有限，持续时间低于 0。5 μ秒的脉冲无法达到完整的稳态高度，因此检测时的信噪比较差。

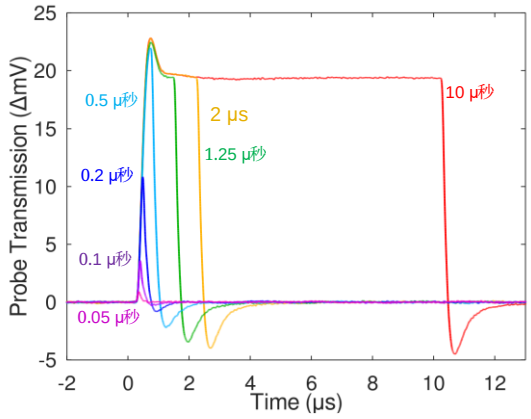

图 S4. 不同持续时间的 3724 μ伏/厘米射频脉冲引起的原子响应，取 10^5 个周期的平均值。

在图 S5 中，我们表征了不同射频电场强度下的脉冲形状。较大的射频电场幅度会产生更高的脉冲，并在脉冲两侧产生更大的过冲。随着射频电场幅度增大，脉冲上升沿的过冲也会略微变陡（即响应更快）。

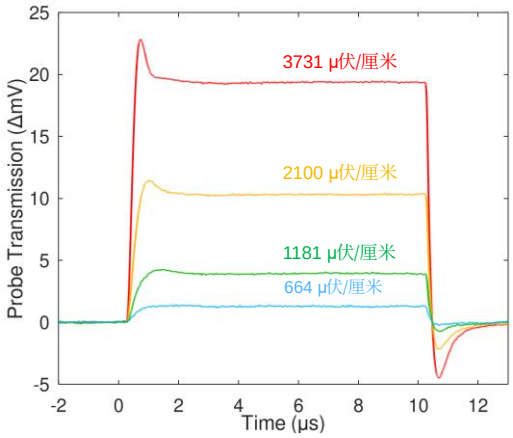

图 S5. 更强的原子响应更快且略微变陡 μ 秒不同场强的长射频脉冲，按 10^5 周期取平均。上升沿和下降沿的过冲，在较强射频电场下尤为如此。

实际上，使用与入射射频场强度相匹配的脉冲形状模板，与使用场强不匹配的模板相比，匹配滤波器的输出幅度并未表现出显著差异。图 S6 展示了使用两种不同脉冲模板处理 10 μ 秒射频脉冲的结果。这些模板已归一化为具有相同的脉冲高度，但上升沿和下降沿的过冲程度不同。在任何射频场强下，两种模板所得结果之间都没有明显差别。

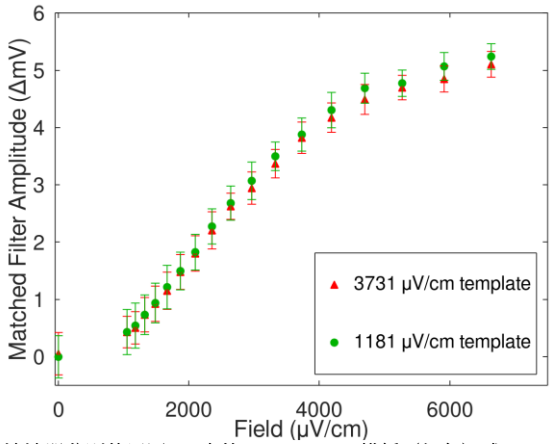

图 S6. 射频脉冲经过匹配滤波器后的灵敏度，该滤波器分别使用图 S5 中的 3731 μV/cm 模板（红色）或 1181 μV/cm 模板（绿色）构建，脉冲时长为 10 μs。

[1] A. Schwettmann、K. R. Overstreet、J. Tallant 和 J. P. Shaffer，《长程铯里德伯势阱分析》，现代光学杂志 54，2551（2007）。[2] N. Šibalić、J. D. Pritchard、C. S. Adams 和 K. J. Weatherill，ARC：用于计算碱金属里德伯原子性质的开源库，Comput. Phys. Commun. 220，319（2017）。