arXiv:2602.11563v1 [physics.atom-ph] 12 Feb 2026

里德堡介导的光子-光子相互作用产生的非线性光学光谱

Xinghan Wang,[1] Yupeng Wang,[1] Aishik Panja,[1] 和 Qi-Yu Liang[1,2]1美国印第安纳州西拉斐特市，普渡大学物理与天文学系，邮编 47907 2普渡量子科学与工程研究所，普渡大学，美国印第安纳州西拉斐特市，邮编 47907(日期：2026年2月13日)

尽管里德堡-里德堡相互作用对于量子非线性光学和量子信息处理至关重要，但其在微波和射频传感中的作用仍鲜为人知。在此，我们通过实验研究了冷原子里德堡电磁诱导透明（电磁诱导透明）中的里德堡相互作用诱导的非线性。在三能级电磁感应透明系统中，增强光子-光子相互作用会导致非线性谱展宽，并伴随共振位移；而微波缀饰四能级系统则表现出显著的非线性展宽，却未检测到光谱位移。我们的三能级数据可以用条件超原子模型解释，而四能级系统中的观测结果则出人意料地可由简单的退相干模型描述。通过与三种有代表性的模型进行比较，我们深入认识了多体相互作用在里德堡电磁诱导透明光谱学中的作用。此外，我们的结果阐明了在非线性区域进行微波场表征而不引入系统偏差的条件。本研究既推进了对多体物理的基础认识，也促进了原子传感器的实际发展。

里德堡原子为在相互作用本来较弱的中性原子系统中设计强而可调的相互作用提供了一个独具多功能性的平台。它们彼此之间以及与外场之间都具有很强的耦合。前者使可控的原子-原子、原子-光子，甚至光子-光子相互作用成为可能。强原子-原子相互作用已使原子阵列成为量子信息处理和量子模拟的领先平台 [1–4], ，而原子-光子相互作用以及由里德堡原子介导的有效光子-光子相互作用，则推动了量子光学领域的突破 [5–7] ，并为广泛的光学量子技术奠定了基础，例如按需单光子源 [8], 、确定性光子纠缠门 [9, 10], 、非经典光子态制备 [11], 、分布式量子计算 [12] 和量子网络 [13]。在后一种情况下，与外场的强耦合有望实现灵敏度极高且带宽宽广的微波（MW）和射频（RF）传感能力 [14–16]。里德堡传感器覆盖超过六个数量级的频率范围，从低于一兆赫兹一直延伸至太赫兹频段 [6, 17], ，并能提供可溯源至国际单位制（SI）且经过自校准的测量结果。

尽管绝大多数微波/射频传感器采用蒸汽池，近年来，激光冷却原子也日益受到关注。冷原子系统能显著抑制限制蒸汽池灵敏度的多普勒展宽，为实现量子极限性能提供了一条途径 [18–22]。除了提升传统传感方案的性能，冷原子还开辟了新的方法，例如利用量子纠缠 [23, 24], 相干性 [25], 和雪崩增益 [26, 27]。

然而，里德堡-里德堡相互作用在微波/射频传感中的作用仍远未得到充分探索。尽管这些相互作用对于量子信息处理应用至关重要，但在传感场景中，它们可能引入共振位移，从而导致系统性误差，并增强退相干，从而展宽光谱特征。传感信号通常经由电磁诱导透明（电磁诱导透明）进行光学读出。虽然相互作用对所得透射光谱的影响在冷原子系统中可能更为显著，但其在蒸汽池传感器中的作用同样仍未得到表征。这一空白要求更深入地理解底层原子相互作用如何影响原子传感器的前景与局限。

除了这些实际传感方面的考量，从基础物理学角度看，理解多体相互作用如何改变电磁诱导透明响应十分重要。在低光子率极限下，非线性效应可以用有效场论很好地描述 [28]。然而，在高光子率下，这种方法难以处理，这也反映了描述强相互作用多体系统这一更广泛的挑战。为理解核心物理，我们首先考虑一个没有微波/射频耦合的三能级电磁诱导透明系统。从平均场观点来看，由于范德瓦耳斯相互作用由一个 C_6 系数表征，并会产生符号确定的能级位移，因此预期所得光谱会出现与基础 C_6 相互作用符号一致的共振位移。然而，早期实验观测 [29, 30] 与这一图景相矛盾；非线性表现为共振峰高度降低，却未报告明显的频移。因此，人们提出了一种模型 [31] ，将阻塞半径内的相互作用饱和纳入考量，并证明该模型能够捕捉观测到的主要特征；然而，它仍然预言了实验中未观测到的共振频移。因此，现有研究仍不足以在该领域达成共识，也没有探讨在微波/射频驱动存在时里德堡-里德堡相互作用所带来的后果。

在这里，我们通过实验探究原子相互作用对（微波着装）冷原子里德堡电磁诱导透明的影响。首先，我们在不施加微波驱动的三

能级系统中施加探测光场和控制激光场。随着探测光子率升高、光子-光子相互作用增强，我们观察到与先前研究类似的谱峰展宽 [29, 30]。与此同时，我们还观察到这些研究未曾报告过的共振频移，这与上述模型的预测一致。接下来，我们在较强偏置磁场下引入微波驱动，以在光谱上分离塞曼子能级，从而隔离出一个有效的四能级系统。在这种情况下，当非线性展宽达到与发生频移的三能级情形相当的程度时，我们并未观察到明显的光谱位移。我们比较了当前文献中用于描述里德堡介导的光子-光子相互作用所产生非线性的三种代表性模型。这些模型预测了定性上截然不同的光谱特征：一种预测峰位移和展宽，另一种只预测频移，第三种则只预测展宽。这种定性差异使我们能够根据特征性光谱特征，而非具体的参数选择，对数据进行有意义的比较。

结果

实验装置与流程

我们在自旋极化的^{87}里德堡阻塞半径原子云中实现里德堡电磁感应透明。原子最初被制备在基态 $|1\rangle = |5S_{1/2},\ F=2,\ m_F=-2\rangle$，其中 F和 m_F 分别表示超精细能级和磁子能级。一个弱的 σ^-偏振探测激光将基态耦合到中间态 $|2\rangle = |5P_{3/2},\ F=3,\ m_F=-3\rangle$，后者通过 σ^+ 偏振控制激光耦合到里德堡态 $|3\rangle = |3_{-1/2}\rangle = |61S_{1/2},\ m_j=-1/2\rangle$ （图1(a)）。此外，微波场驱动 $|3\rangle \leftrightarrow |4\rangle = |4_{m_j}\rangle = |61P_{3/2},\ m_j\rangle$ 跃迁。这里，j 和 m_j 分别表示总角动量量子数及其在量子化轴上的投影。

原子在磁光阱中经激光冷却后，按照参考文献 [32] 所述的流程转移到远失谐的 1064 nm光偶极阱中。我们沿探测光传播方向施加偏置磁场 $B = 3.7$ 高斯，以定义量子化轴并进行光抽运。偶极阱中的原子云通过灰色光学黏团冷却至温度 $14\ \mu$K。通过施加反向传播的 780 nm 探测光束和 479 nm 控制光束，进一步降低多普勒展宽。原子云沿探测光传播方向的均方根（RMS）半径为 $10\ \mu$m，光学深度（OD）约为 0.4。

我们以 $180\ \mu$s 的周期调制偶极阱，占空比为 50%，并在偶极阱关闭期间进行探测。经过 50 个调制周期后，我们保持偶极阱关闭，使原子散开。经过 10 ms 的飞行时间后，我们探测 2 ms，以测量无原子时的计数。我们对这些无原子计数取平均值，为每次光谱扫描得到一个归一化因子，用于归一化透射数据。随后，我们对多次扫描得到的归一化探测光透射率取平均值。每个光谱数据点对应约 20 ms 的探测时间。根据无原子时的计数，并考虑收集效率和单光子计数模块（SPCM-AQRH-14-FC）的检测效率，我们推算实验装置处的探测光子率 R_p。

微波场由宽带喇叭天线（FMWAN159-10SF, Fairview Microwave）发射，天线由信号发生器（Anritsu 68369A/NV）驱动。尽管只使用了一根天线，由于微波在真空腔内组件、真空腔及附近外部结构上的反射和散射，原子处的微波场包含所有 σ^+、σ^- 和 π 偏振分量，这在冷原子实验中很常见 [33]。

物理模型

我们考虑三种具有代表性的模型，以描述里德堡-里德堡相互作用所产生的非线性。所有模型都采用超原子（SA）的概念；也就是说，阻塞体积 $V_b = \frac{4\pi}{3} R_b^3$内的所有原子会集体表现得如同一个原子，因为相互作用引起的频移会使多个里德堡激发偏离共振，从而阻止双重或更高阶激发态的形成。此处，R_b 表示阻塞半径，其定义为 $C_6^{33}/R_b^6 = \Omega_c^2/(2\Gamma_2)$，其中 C_6^{33}是里德堡态 $|3_{-1/2}\rangle$的范德华系数，Ω_c 是控制场拉比频率，而 $\Gamma_2/(2\pi) = 6.1$ 兆赫是中间态 $|2\rangle$的自发衰减率。这些模型通过将每个超原子内允许的基态限制为基态和单激发流形，来施加阻塞条件。

模型的详细描述见“方法：模型描述”。此处概述关键概念。在条件模型 [31], 中，我们对原子云进行空间粗粒化，使每个像素对应一个超原子。极化率由两种互斥条件决定：若超原子中存在里德堡激发，则其极化率与不存在控制耦合时系统的极化率相同，这代表相互作用的饱和（阻塞）；若超原子未被激发，则超原子外的原子会产生平均场位移，从而得到控制失谐经过修正的极化率。为在数值上实现该模型，我们考虑一条一维 SA 链，并将传播长度 L 划分为 $L/(2R_b)$个区间。在每一步中，我们对里德堡激发进行蒙特卡罗抽样，并据此计算探测场强度关联函数 $g^{(2)}(z)$和探测场拉比频率 $\Omega_P(z)$。探测光透射率 T 通过对 50 次独立实现的$\left|\frac{\Omega_p(z=L)}{\Omega_P(z=0)}\right|^2$ 取平均来建模。

将该模型从原始的三级系统扩展到四级系统，需要在存在三种强度各异的相互作用时，谨慎地推广模型的条件结构。这三种相互作用分别由 $|3\rangle - |3\rangle$和 $|4\rangle - |4\rangle$ 相互作用对应的范德华系数 C_6^{33}和 C_6^{44}，以及 $|3\rangle - |4\rangle$ 相互作用对应的偶极-偶极系数C_3^{34}来表征。在这种情况下，条件分支的数量和形式，以及相应的

平均场贡献，都必须重新制定，并且取决于相互作用强度层级。我们将该模型扩展到四能级系统留待未来工作，而在此着重对比这些在概念上截然不同的模型。

在无条件模型 [34], 中，我们不区分超原子是否被激发，而是仅通过修正后的控制失谐计算极化率，该失谐源自平均场位移。原始研究建议从原子间距开始积分相互作用，以获得平均场结果。这会导致非常大的光谱峰位移，而我们在三能级或四级系统中都没有观察到这种现象。为与其他模型及超原子框架保持一致，我们改为将下限设为 R_b，这反映出只有阻塞体积之外的外部超原子才会对平均场相互作用有所贡献。

应用于四能级系统时，平均场相互作用会修正失谐和微波拉比频率，如下所示： $\delta_2 \to \delta_2 - s_{33} - s_{34}$, $\delta_3 \to \delta_3 - s_{44} - s_{43}$ 和 $\Omega_m \to \Omega_m + 2e_{34}$。这里， s_{33} 和 s_{44} 分别表示源自 C_6^{33}和 C_6^{44}的能级位移。我们的能级相互作用同时具有位移和分裂效应。因此，我们将成对相互作用拟合为形式 $C_6^{34}/R^6 \pm C_3^{34}/R^3$ （“方法：相互作用系数”）。 C_6^{34}项会使能级 $|3\rangle$发生 s_{34} 位移，并使能级 $|4\rangle$ 发生 s_{43} 位移。 C_3^{34}项会产生交换相互作用 e_{34}。 $\delta_2 = \Delta_p + \Delta_c$ 是双光子失谐， $\delta_3 = \Delta_p + \Delta_c + \Delta_m$ 是三光子失谐， Ω_m 是微波拉比频率，而 Δ_p、 Δ_c 和 Δ_m分别是探测光、控制光和微波失谐。

最后，在退相干模型 [18], 中，我们将平均场相互作用的方差视为一种额外的退相干机制，并将其纳入里德堡退相干速率的增大中，而非修改极化率中的失谐和微波拉比频率。具体而言，我们通过替换 $\Gamma_3 \to \Gamma_3 + \sqrt{\mathrm{Var}_{33}} + \sqrt{\mathrm{Var}_{34}^s} + \sqrt{\mathrm{Var}_{34}^e}$ 和 $\Gamma_4 \to \Gamma_4 + \sqrt{\mathrm{Var}_{44}} + \sqrt{\mathrm{Var}_{43}^s} + \sqrt{\mathrm{Var}_{34}^e}$来修改林德布拉德算符中的跳跃算符 $L_k = \sqrt{\Gamma_k}\,|k\rangle\langle k|$，其中 $\mathrm{Var}_{33}, \mathrm{Var}_{44}, \mathrm{Var}_{34}^s$、 Var_{43}^s 和 Var_{34}^e 分别是与 s_{33}、 s_{44}、 s_{34}、 s_{43}和 e_{34}相关的方差。

对于所有模型，探测跃迁相干性 ρ_{21} 由主方程计算得到

$$\dot{\rho} = \frac{i}{\hbar}[\rho, H] - \sum_k \frac{1}{2}\left(L_k^\dagger L_k \rho + \rho L_k^\dagger L_k - 2L_k \rho L_k^\dagger\right) \quad (1)$$

with

$$H = \hbar\Big(- \Delta_p\,|2\rangle\langle 2| - \delta_2\,|3\rangle\langle 3| - \delta_3\,|4\rangle\langle 4| + \frac{\Omega_p}{2}\,|1\rangle\langle 2| + \frac{\Omega_c}{2}\,|2\rangle\langle 3| + \frac{\Omega_m}{2}\,|3\rangle\langle 4| + \mathrm{h.c.}\Big) \quad (2)$$

$L_2 = \sqrt{\Gamma_2}\,|1\rangle\langle 2|$、 $L_k = \sqrt{\Gamma_k}\,|k\rangle\langle k|$和$k \in \{3, 4\}$是唯一考虑的林布拉德项。室温下，$61S_{1/2}$ 和$61P_{3/2}$ 里德堡态的寿命均长于 100 μs，因此与其他退相干过程相比，其衰减率可以忽略不计。

密度矩阵 ρ 的稳态解与探测光透射率 T 的关系如下：

$$T = \exp\left[\mathrm{OD}\ \mathrm{Im}(\rho_{21})\frac{\Gamma_2}{\Omega_p}\right] \quad (3)$$

尽管方程中明确出现了 Ω_p，但在不存在里德堡-里德堡相互作用，且处于单原子饱和的弱探测极限时，光谱几乎不依赖于 Ω_p。在这种情况下， ρ_{21} 的稳态解与 Ω_p成正比，因此在归一化的探测透射率中会相互抵消。对于实验中相关的探测场拉比频率，我们处于这一弱探测极限。因此，观察到的光谱对 Ω_p 的依赖源于里德堡介导的非线性，而非单原子电磁诱导透明物理。

三能级系统中的非线性

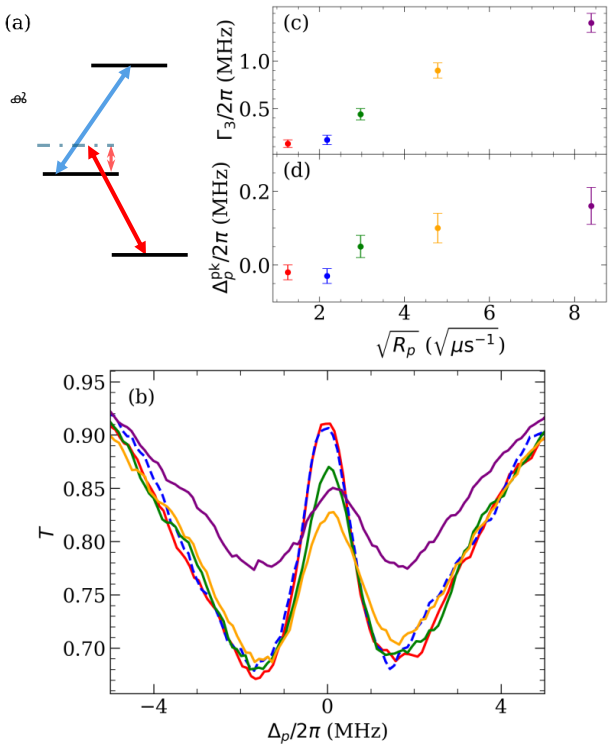


图1. 三能级系统中的非线性。(a) 能级示意图。(b) 测得的电磁感应透明光谱随探测光失谐的变化。为清晰起见，我们对数据进行平滑处理，使用的移动平均窗口大小为 9（原始数据见图 2）。探测速率为$R_p = \{1.6, 4.8, 8.8, 22.9, 70.5\}$ μs^{-1}，对应{red, blue, green, orange, purple}颜色。面板(c,d)中沿用相同的颜色编码。(c) 通过对原始数据拟合线性模型，提取 Γ_3。(d) 通过对中央区域的原始数据进行高斯拟合，确定峰位 Δ_p^{pk}。

非线性相互作用的贡献可通过原子密度和

探测场拉比频率来系统地改变。提高原子密度，从而增加固定原子-光子相互作用体积内的原子数，可通过降低原子散粒噪声来提高信噪比，而提高探测光功率则可降低光子散粒噪声；然而，这两种增强也会增加非线性相互作用。这就提出了一个问题：在存在非线性效应的情况下是否仍能进行传感，以及此类效应是否会引入系统误差。

我们首先研究不含微波耦合的三能级电磁诱导透明系统。随着探测光子率增加，主要效应是共振峰高度降低（图1(b)），这与先前的实验研究结果一致 [29, 30]。为量化这一现象，我们将线性模型（方程 1 和 2，不包含相互作用诱导的替换项，且 $\Omega_m = 0$）拟合到数据（参数详情见“方法：光谱拟合”），并绘制拟合得到的Γ_3 值随探测速率平方根的变化曲线（图 1(c)）。在最低的两个速率下，里德堡-里德堡相互作用的影响可以忽略不计，Γ_3 没有表现出对速率的依赖。随着速率进一步增加，Γ_3 也随之增加。我们将最高速率下的光学深度降低归因于动量冲击导致探测区域内的原子损失。

值得注意的是，我们观察到最高达 0.2 兆赫的共振蓝移（图 1(d)），同时伴有峰高降低；后者随探测速率增加而加剧，与 Γ_3 的变化类似。从平均场观点来看，这种频移是预期的：S态原子之间的里德堡相互作用会使能级上移，从而减小有效双光子失谐，进而使共振峰蓝移。为确保观察到的频移并非由未受控参数造成，我们以随机顺序在不同探测光拉比频率下采集光谱数据，并采用重新随机排列的顺序多次重复整个采集序列。

为将我们的数据与这三个模型进行比较，我们对从 R_b 到无穷远处的相互作用贡献进行积分。由于范德瓦耳斯相互作用随距离迅速衰减，上限的具体选择并不重要。我们将介质近似为均匀介质，其原子数密度为 $\varrho = 2 \times 10^{10}\ \mathrm{cm}^{-3}$，长度为 $L = 64.8\ \mu\mathrm{m}$，使得在蒙特卡洛模拟中$L/(2R_b) = 4$ 为整数。该长度 L 大致相当于从吸收成像中提取的高斯有效长度（$\sqrt{2\pi}\times$ 均方根长度）的 2.5 倍。这些模型的其余输入参数均设为通过拟合最低速率下的数据而得到的线性模型拟合值。在条件模型和退相干模型中，我们纳入一个基准里德堡退相干率 $\Gamma_3/(2\pi) = 20$ 千赫，大致用于考虑多普勒展宽和环境电场的不均匀性。在条件模型中，这是总退相干率；而在退相干模型中，它作为背景值，并在此基础上叠加相互作用诱导的退相干。在无条件模型中，$\Gamma_3/(2\pi)$经经验设定为 200 千赫，使模型预测与我们在最低速率下的测量结果一致。

如图 2 所示，无条件模型只能预测峰位移，退相干模型只能预测峰高降低，而条件模型则能同时预测两者。只有条件模型能够充分解释我们的观测结果。需要注意的是，尽管条件模型和退相干模型都预测峰高降低，其背后的机制却截然不同。在条件模型中，峰高降低源于对响应进行随机条件化。当存在里德堡激发时，响应会被投影到无控制形式，因此在该次蒙特卡罗抽样中不会对共振峰作出贡献。否则，响应仍接近通常的电磁诱导透明行为，仅带有微小的相互作用频移。相比之下，在退相干模型中，退相干源于原子的随机空间分布：不同间距的原子会产生不同的相互作用强度，从而造成能级位移分布，进而使集体响应退相干。如果将原子排列成间距明确的晶格结构，这种位置随机性便会大幅减弱，相应的退相干也会降至最低。

四能级微波电磁诱导透明系统中的非线性

在微波场存在时，我们施加较强的磁场 $B = 15.7$ 高斯和足够弱的微波场，使其与塞曼位移后的 σ^+ 跃迁共振，从而仅有一个塞曼能级 $|4_{1/2}\rangle$与$|3_{-1/2}\rangle$ 发生混合（图3(a)），由此隔离出一个四能级子系统。这种构型提供了经典的能级结构，可用于可溯源至国际单位制的自校准微波测量。在保持探测场和微波场均处于共振状态的同时扫描控制失谐 Δ_c时，探测吸收基线中会出现两个共振峰。在这类测量中，峰间距（称为奥特勒-汤斯（AT）劈裂（Δ_{AT}））通过普朗克常数（$\hbar$）和里德堡跃迁的偶极矩（$\wp_{34}$），与微波电场幅度（E_m）成正比：

$$E_m = \frac{\hbar}{\wp_{34}}\Delta_{\mathrm{AT}} \tag{4}$$

在此，我们关注里德伯介导的非线性如何影响这种分裂以及光谱。

如图3所示，峰高降低在比三能级系统更低的探测速率下便明显出现。尽管里德伯退相效应十分明显，我们并未观察到光谱峰随探测速率发生任何位移。因此，非线性光谱可用于微波探测，但代价是峰展宽。

根据高斯拟合峰位（图3(c,d)）得到的微波场电场振幅为 1.30(2) 毫伏/厘米，对应的拉比频率 $\Omega_m/(2\pi) = 2.11(4)$ 兆赫。或者，我们可以通过拟合线性模型（方程 1 和 2，不进行相互作用引起的替换）来提取这些数值。例如，图3(e)中数据的拟合结果为 $\{\Delta_m, \Omega_m, \Omega_c, \Gamma_3, \Gamma_4\}/(2\pi) =$

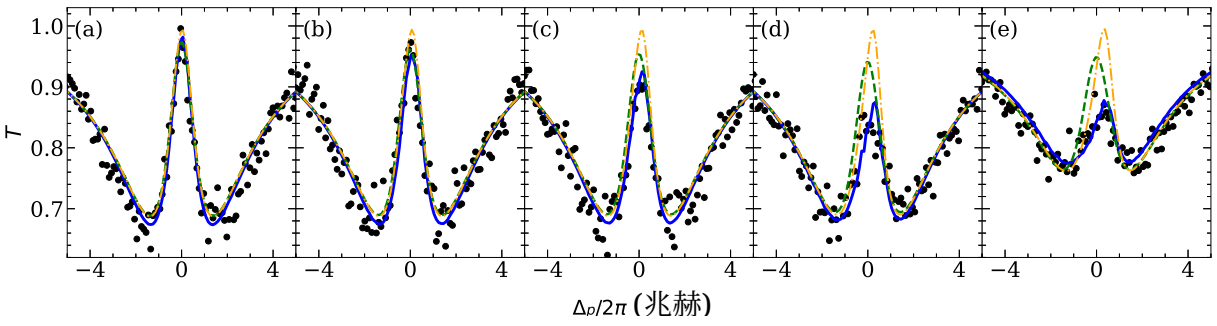


图 2. 三种模型的比较（条件模型：蓝色实线；退相干模型：绿色虚线；无条件模型：橙色点划线）与我们的三能级EIT数据（与图1中的数据集相同，以黑点表示）。面板(a–e)对应探测速率逐渐增加。

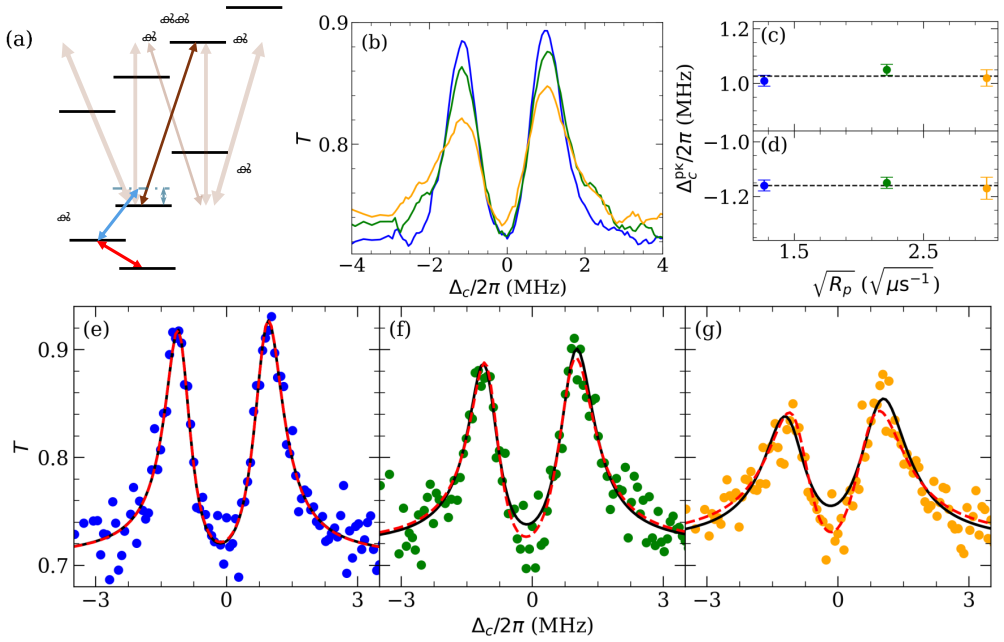


图3. 四能级系统中的非线性。(a) 能级示意图。(b) 不同控制失谐下测得的微波EIT光谱。为清晰起见，我们对数据进行了平滑处理，采用的移动平均窗口大小为9（原始数据见(e-g)图中的圆点）。{blue, green, orange}颜色对应的探测速率为 $R_p = \{1.6, 4.9, 8.9\}\ \mu s^{-1}$。两个峰之间的轻微不平衡源于较小的微波失谐 $\Delta_m/(2\pi) = 0.15$ 兆赫，这不会影响在统计不确定度范围内提取的Ω_m 值。通过对每个峰附近的原始数据进行高斯拟合，确定右峰和左峰的峰位 Δ_c^{pk}，并将其绘于(c)图和(d)图中。(e-g)图中的红色虚线和黑色实线是线性模型的拟合结果。红色虚线的 Γ_3 和 Γ_4 相互独立，拟合值分别为 $\Gamma_3/(2\pi) = \{0.17(8)\ 0.6(1)\ 1.3(1)\}$ 兆赫和 $\Gamma_4/(2\pi) = \{0.21(7)\ 0.11(8)\ 0.10(9)\}$ 兆赫。黑色实线强制满足 $\Gamma_3 = \Gamma_4$，拟合值为$\Gamma_{3,4}/(2\pi)$
=
{0.19 2 0.32 3 0.68 5 }
( ) ( ) ( ) 兆赫。

{0.15(6) 2.04(2) 2.76(6) 0.17(8) 0.21(7)} 兆赫，光学深度 OD= 0.347(4)。该 Ω_m 比通过 Autler–Townes 分裂得到的数值小 3%。事实上，通过这种方法得到的 Ω_m 系统性地小于通过 Autler–Townes 分裂提取的数值。这种差异可能是由于峰分裂相较于峰宽不足（见补充材料第1部分和参考文献 [35]）。当两个峰相距较近时，线形会发生偏斜，内侧边缘比外侧边缘更陡。因此，峰分裂与微波拉比频率 Ω_m 并不完全吻合。这种行为与潜在的电磁诱导透明响应，而非简单的峰重叠效应。因此，采用其他峰值查找方法（例如双高斯拟合）也无法消除这种差异。

线形畸变并非仅取决于峰分裂相对于峰宽的大小；Γ_3 和 Γ_4 对线形的影响方式各不相同。增大 Γ_4 会提高两个共振峰之间的探测光透射率。然而，随着探测速率增大，$\Delta_c = 0$ 附近的实验透射率仍然很低。因此，线性模型拟合始终得到较小的 Γ_4，甚至呈现出

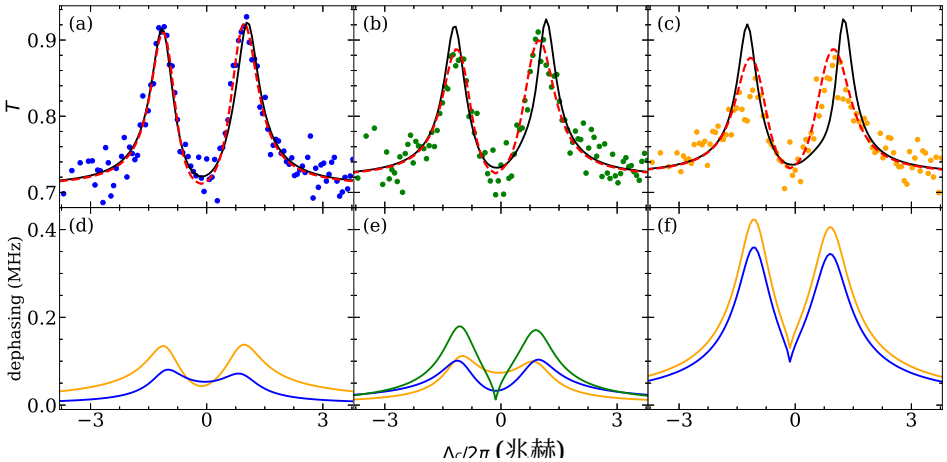


图4. 无条件模型（黑色实线）和退相干模型（红色虚线）与我们的四能级微波电磁诱导透明数据（与图3中的数据集相同，以点表示）的比较。面板（d-f）显示退相干模型中最高探测速率 $R_p = 8.9\ \mu s^{-1}$下的相互作用诱导的里德堡退相干，该速率用于面板（c）中的红色虚线。——(d）来自 $C_6^{33}(\sqrt{\mathrm{Var}_{33}}/(2\pi)$, 橙色)项和 $C_6^{44}(\sqrt{\mathrm{Var}_{44}}/(2\pi)$，蓝色)项的贡献。（e）来自 C_6^{34}项对能级 $|3\rangle$ ($\sqrt{\mathrm{Var}_{34}^{*}}/(2\pi)$，橙色)的贡献，来自 C_6^{34}项对能级 $|4\rangle$ ($\sqrt{\mathrm{Var}_{43}^{*}}/(2\pi)$，蓝色)的贡献，以及来自 C_3^{34}项对能级 $|3\rangle$ 和 $|4\rangle$ ($\sqrt{\mathrm{Var}_{34}^{c}}/(2\pi)$，绿色)的贡献。（f）能级 $|3\rangle$ （橙色）和 $|4\rangle$ （蓝色）的总相互作用诱导的里德堡退相干。

随着探测速率增大， Γ_4 反而减小的趋势。这一趋势与物理预期相反，而由此产生的较大 Γ_3 也会抑制数据中清晰可见的峰高不平衡。通过比较两种拟合方法，可以看出这些光谱效应：一种方法允许 Γ_3 和 Γ_4 独立变化（图3(e-g)中的红色虚线），另一种则将它们约束为相等（图3(e-g)中的黑色实线）。在较高探测速率下，为了与 $\Delta_c = 0$附近较低的探测光透射率保持一致，允许 Γ_4 自由变化会使其被迫取较小值；而约束 $\Gamma_4 = \Gamma_3$ 则无法再现这一特征。这些表现表明，在线性模型中考虑依赖探测速率的里德堡退相干存在局限性。尽管如此，在非线性引起的$\Gamma_{3,\ 4}$ 显著展宽电磁诱导透明线宽（$\Gamma_3 + \Gamma_4 \gtrsim \Omega_c^2/\Gamma_2$）之前，两种拟合方法得到的微波拉比频率在统计上相同，表明结果对不同拟合选择具有稳健性。当$\Gamma_{3,\ 4}$ 相对较大时，根据高探测速率数据的模型拟合所提取的微波拉比频率，可能会略微偏离根据低探测速率数据得到的结果。这种偏差反映了依赖于模型的线形畸变，因为没有任何一组参数选择能够完全再现观测到的光谱。

为表征完整的三维微波场，我们改变其频率，并选择性地使 σ^+、 π 或 σ^- 偏振分量达到共振。因此，我们分别进行三组光谱测量，以提取 $\{\sigma^+, \pi, \sigma^-\}$ 偏振的微波电场振幅（ π 和 σ^- 偏振的数据见补充材料第2部分）。从 AT 劈裂中提取的电场振幅为 $\{1.30(2)\ 1.19(1)\ 0.74(1)\}$ mV/cm；从线性模型拟合中提取的电场振幅为 $\{1.25(1)\ 1.13(1)\ 0.67(1)\}$ mV/cm。由于微波源功率和实验装置其余部分均相同，这三种偏振分量同时存在于原子位置。此外，尽管三种偏振的相互作用系数不同，我们观察到它们的光谱在探测光速率依赖性方面没有明显差异。我们证实，模型预测对这些系数的取值并不敏感。

由于未观察到光谱位移，无条件模型（图 4(a-c) 中的黑色实线）显然与我们的数据不符。令人意外的是，退相干模型（图 4(a-c) 中的红色虚线）虽然不足以解释我们的三能级EIT数据，却能够捕捉此处观察到的特征。此外，该模型预测了失谐依赖的里德堡退相干（图4(d-f)），使其随探测速率增加而增大 Γ_3 和 Γ_4至相近的数值，同时仍能捕捉两个峰之间较低的探测光透射率，从而消除了线性模型拟合中表面上的不一致。如果该模型确实是正确的底层描述，它将能够准确捕捉完整的线形，并支持在深非线性区间进行可靠拟合。此外，另一种广泛使用的微波拉比频率提取方法是将所有场固定在共振状态，并进行原子超外差测量 [36–38], ；这种方法可能同样需要针对里德堡诱导的非线性进行修正。

讨论

总之，我们已迈出实验研究由里德堡–里德堡相互作用产生的非线性三能级和四能级电磁诱导透明光谱的初步步伐。据我们所知，在三能级电磁诱导透明系统中，我们首次观测到了相互作用诱导的峰位移。四能级系统与冷原子微波传感尤其相关。在微波场存在时，非线性的出现对应于显著降低的探测速率，并表现为里德堡退相干增强，而未观察到可辨别的光谱峰位移。这意味着，最佳传感性能可能在非线性区域实现，即以峰展宽换取光子和原子散粒噪声的降低。

由于 Autler–Townes 分裂仅根据光谱峰位确定微波拉比频率，提取出的数值不受非线性影响而具有稳健性。对于对线形敏感的方法而言，中等程度的展宽不会损害准确性；然而，要在深度非线性区域可靠运行，可能需要采用能够恰当纳入线形畸变的模型。

从多体物理的角度来看，目前文献中尚未形成明确共识。我们比较了三种具有代表性的模型，它们给出的定性预测各不相同。条件模型是唯一能够同时捕捉到光子-光子相互作用增强时的峰位移和峰高降低的模型，这与我们在三能级电磁诱导透明实验中的观察结果一致。此外，该模型的物理图像也有充分的依据。我们预期，经过适当扩展后，条件模型有望解释四能级系统中的全部实验观察结果。

然而，令我们惊讶的是，退相干模型与我们的四能级数据相符，尤其是它通过依赖失谐的里德堡退相干捕捉到了光谱特征。因此，探明这种一致性背后更深层的物理原因，并明确该模型保持有效的条件，将很有价值。与条件模型相比，该模型在概念和计算方面更为简单。

未来，我们将施加一个较小的偏置磁场，使所有里德堡塞曼能级发生混合。在这种情况下，无需改变微波频率或其他实验条件来逐一使各偏振分量达到共振，我们便可通过一次光谱测量提取三种微波偏振的电场振幅。这种方法也能探测不同偏振分量之间的相对相位。根据我们在孤立四能级系统中的观察，我们预计，在适度的非线性区域运行可以增加探测光计数而不引入系统偏差，不过这一点仍有待实验验证。

方法

光谱拟合

所有拟合均使用应用于线性模型的 `curve_fit` function of`scipy.optimize` python 包完成，其中里德堡态介导的相互作用会表现为依赖于探测速率的$\Gamma_{3,\ 4}$（里德堡态退相干）以及 $\Delta_{p,\ c,\ m}$（峰位移）。下文给出低探测速率极限下 ρ_{ij} 和 Σ_{ij} 的解析解，以便于理解；所有拟合和模型模拟则通过数值求解主方程完成。

三能级电磁感应透明 我们使用公式 1 和 2，对三能级系统中的探测光频率扫描所得光谱进行拟合（图 2），不考虑相互作用引起的替换，且 $\Omega_m = 0$。在探测光速率较低的极限下，数值结果渐近趋近于

$$\rho_{21} = -\frac{i|\Omega_p|}{(\Gamma_2 - 2i\Delta_p) + |\Omega_c|^2/(\Gamma_3 - 2i\delta_2)} \tag{5}$$

最低探测速率下拟合得到的控制场拉比频率为 $\Omega_c/(2\pi) = 2.74(5)$ 兆赫。拟合较高速率的数据时，Ω_c 的值保持不变。所有速率下拟合得到的 Γ_3 均绘于图 1(c)。拟合得到的探测共振频率用于定义各自的 $\Delta_p = 0$，并据此对每条光谱进行相应的频移。实际上，所有速率下的结果彼此相差均不超过 40 千赫。拟合得到的 $-\Delta_c$ 反映了随速率变化的峰位。在图 1(d)中，我们改为对$\Delta_p/(2\pi) \in [-2, 2]$ 兆赫范围内的数据进行高斯拟合，以确定峰位。通过这种方式确定的峰位在统计上与拟合得到的 $-\Delta_c$ 一致，且不确定度更小。除最高速率外，所有速率下的光学深度相差均不超过 0.017。最高速率下的数据的光学深度按 0.76 的系数缩放，我们认为这是探测区域内原子因动量冲击而损失所致。

原则上，可以根据推断出的探测速率 R_p和探测光束腰估算探测场拉比频率 Ω_p。但实际上，由于实际光束腰及其相对于原子的位置存在不确定性，这种方法可能不够准确。如果输入测得的数值，无论是线性模型还是非线性模型，都无法再现观测到的吸收基线。因此，本文中的所有拟合和模型均使用 Ω_p 值，该值根据测得的探测光束腰（半径为 3.7 μ m，$1/e^2$ ）计算得出，并缩小 1.6 倍，以表示可能与原子位置处的有效探测尺寸有关的整体不确定性。值得注意的是，控制光束也显示出类似的缩放系数 1.4（根据其半径 6.8 μ m（ $1/e^2$）与拟合的 Ω_c计算得出）。

图 2 中的所有模型均采用通过拟合最低探测速率数据得到的相同输入参数：$\Omega_c/(2\pi)$ =2.744 MHz，$\Delta_c/(2\pi)$ = 0.02 MHz，光学深度 = 0.404（最高速率光谱的光学深度降至 0.309），以及最低速率下的 $\Omega_p/(2\pi)$ =0.0887 MHz（较高速率下的模型模拟根据测得的探测速率进行缩放）。对于退相干模型，相互作用诱导的 $\Gamma_3/(2\pi)$会加到 20 kHz 的基准值上。对于条件模型和非条件模型，$\Gamma_3/(2\pi)$分别为 = 20 和 200 kHz。所有模型所需的每个超原子中的原子数 $n_{\mathrm{SA}} = \varrho V_b$，由原子密度 ϱ、控制场拉比频率 Ω_c 以及范德华系数 $C_6^{33}/(2\pi)$ = 169GHz (μm)^6 [39]推导得出。根据此处的参数，$n_{\mathrm{SA}} = 46$。

四能级微波电磁诱导透明 在较大的偏置磁场下，我们可以通过改变微波频率，使σ^+-、 π-或 σ^--偏振的微波电场分量选择性地达到共振，从而分离出不同的四能级系统。通过进行三次分别针对不同跃迁的光谱测量，并拟合线性模型，我们提取出$\{E_+, E_0, E_-\}$ = {1.25 (1) 1.13(1) 0.67(1)} 毫伏/厘米，

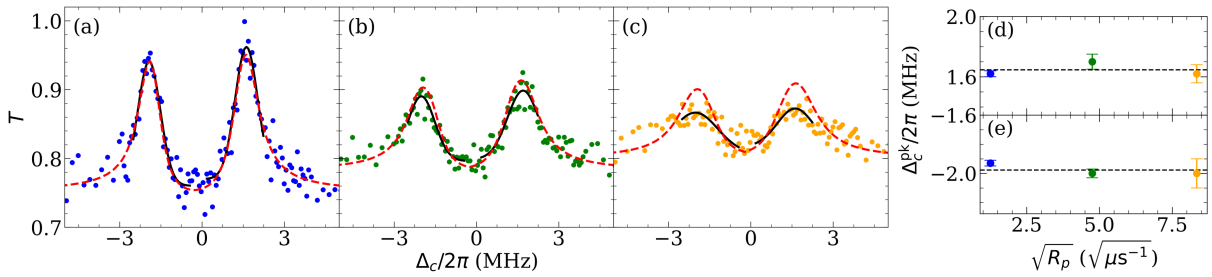


图 5. 探测场拉比频率较大时四能级系统中的非线性。(a–c) 面板展示了测得的微波EIT光谱随控制失谐的变化，探测速率为 $R_p = \{1.6, 22.6, 70.5\}\ \mu s^{-1}$，对应{blue, green, orange}颜色。$\Omega_c/(2\pi) = 3.19(8)$ 兆赫和 $\Omega_m/(2\pi) = 3.45(3)$ 兆赫是通过线性模型对(a)的拟合结果提取的，拟合中采用了独立的 Γ_3 和 Γ_4。红色虚线表示退相干模型，黑色实线表示对每个峰的高斯拟合；由此提取峰位 Δ_c^{pk}，并绘制于(d)面板（右侧峰）和(e)面板（左侧峰）中。

对应于$|3_{-1/2}\rangle \leftrightarrow\{|4_{-3/2}\rangle, |4_{-1/2}\rangle, |4_{1/2}\rangle\}$ 跃迁的拉比频率 $\{\Omega_+,\Omega_0,\Omega_-\}/(2\pi) = \{2.04(2)\ 2.61(3)\ 1.88(3)\}$ 兆赫。拟合参数为 $\{\Delta_m, \Omega_m, \Omega_c, \Gamma_3, \Gamma_4,$ 光学深度$\}$以及控制共振频率。在探测速率较低、里德堡-里德堡相互作用可忽略的极限下，我们通过三能级电磁感应透明探测频率扫描设定 $\Delta_p = 0$。拟合得到的控制共振频率确定了 $\Delta_c = 0$，其值通常与通过三能级电磁感应透明光谱独立测得的值相差不到 $2\pi\times0.2$ 兆赫。Ω_p 按照与三能级光谱相同的方法由探测速率换算得到。

图3中探测速率最低时拟合得到的控制场拉比频率为 $\Omega_c/(2\pi) = 2.76(6)$ 兆赫，在拟合更高探测速率下的数据时保持固定。 $\{\Delta_m, \Omega_m, \Omega_c\}$是图4所示退相干模型和无条件模型的输入参数。本研究中所有模型模拟均将有效云团长度$L = 64.8\ \mu$米保持固定，而原子数密度 ϱ及其对应的n_{SA}则会变化，以反映不同的光学深度。此外，R_b 也会略有变化，因为不同数据集具有不同的 Ω_c。

除了探测速率升高时出现与三能级系统类似的峰值降低外，我们还在更高的探测速率下进行了测量（图 5），最高达到图 1 中使用的探测速率。我们观察到类似的原子损失：相对于最低探测速率，最高探测速率下的原子剩余比例为 0.76；模型通过改变 ϱ 对此进行了说明。高斯拟合结果显示，在这一高探测速率下，我们没有观察到光谱位移，测量不确定度为 0.1 兆赫。这表明，图 1 中观察到的频移不太可能是由动量冲击相关效应造成的。

相互作用系数

除 C_6^{33} 外，我们还需要 $C_6^{44}/(2\pi) = -370$ 吉赫（μ米）^{6} [39] 以及能级 $|3_{-1/2}\rangle$ 和 $|4_{1/2}\rangle$ 之间的相互作用系数 。如图6所示，对势同时呈现频移和劈裂。因此，我们使用函数 $C_6^{34}/r^6 \pm C_3^{34}/r^3$ 对两条分支进行联合拟合，其中上（下）分支对应正（负）号，并获得

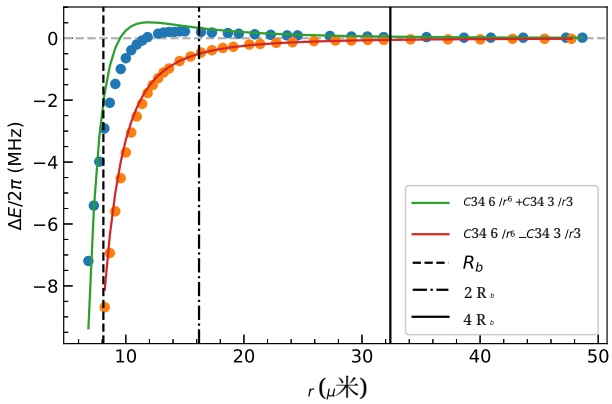


图6。相互作用能量 ΔE 随原子间距 r 的变化，适用于 $|3_{-1/2}4_{1/2}\rangle$ 双原子态。 C_6^{34}和 C_3^{34}通过对由软件 `PairInteraction` [40]获得的相互作用势的上分支（蓝色）和下分支（橙色）进行同时拟合提取。原子间轴与量子化轴（$\theta = 0$）对齐，且 B = 15.8 G。

$C_6^{34}/(2\pi) = -1517$吉赫（μ米）^{6}和 $C_3^{34}/(2\pi) = 1.768$吉赫（μ米）^{3}。C_6^{44}、 C_6^{34}和 C_3^{34} 均在原子间轴与量子化轴对齐时求得，即 $\theta = 0$。

模型描述

我们引入零阶和一阶集体态

$|1_{SA}\rangle = |1_1\ 1_2\ \ldots\ 1_{n_{SA}}\rangle$ $|2_{SA}\rangle = ,,,,,,,,,$ $\frac{1}{\sqrt{n_{SA}}}\sum_{j=1}^{n_{SA}} |1_1\ 1_2\ \ldots\ 2_j\ \ldots\ 1_{n_{SA}}\rangle$ $|3_{SA}\rangle =$ $\frac{1}{\sqrt{n_{SA}}}\sum_{j=1}^{n_{SA}} |1_1, 1_2, \ldots, 3_j, \ldots, 1_{n_{SA}}\rangle$, 以及 $|4_{SA}\rangle =$ $\frac{1}{\sqrt{n_{SA}}}\sum_{j=1}^{n_{SA}} |1_1, 1_2, \ldots, 4_j, \ldots, 1_{n_{SA}}\rangle$。以这些集体态为基态，我们有 $\varrho\rho_{33} \approx \varrho_{SA}\Sigma_{33}$、$\varrho\rho_{44} \approx \varrho_{SA}\Sigma_{44}$ 和 $\varrho\rho_{34} \approx \varrho_{SA}\Sigma_{34}$，其中 $\varrho_{SA} = V_b^{-1}$ 是 SA数密度。假设 MW 处于共振状态，且里德堡退相干可以忽略不计，

即 $\Delta_m = \Gamma_3 = \Gamma_4 = 0$，我们有

$$\Sigma_{33} = \frac{n_{\mathrm{SA}}|\Omega_c|^2|\tilde{\Omega}_p|^2\left(2\delta_2\right)^2}{|A|^2 + n_{\mathrm{SA}}|\Omega_c|^2|\tilde{\Omega}_p|^2\left[\left(2\delta_2\right)^2 + |\Omega_m|^2\right]} \tag{6a}$$

$$\Sigma_{44} = \frac{n_{\mathrm{SA}}|\Omega_c|^2|\tilde{\Omega}_p|^2|\Omega_m|^2}{|A|^2 + n_{\mathrm{SA}}|\Omega_c|^2|\tilde{\Omega}_p|^2\left[\left(2\delta_2\right)^2 + |\Omega_m|^2\right]} \tag{6b}$$

$$\Sigma_{34} = \frac{n_{\mathrm{SA}}|\Omega_c|^2|\tilde{\Omega}_p|^2|\Omega_m|(2\delta_2)}{|A|^2 + n_{\mathrm{SA}}|\Omega_c|^2|\tilde{\Omega}_p|^2\left[\left(2\delta_2\right)^2 + |\Omega_m|^2\right]} \tag{6c}$$

其中 $A = (2\delta_2)\left[(2\Delta_p - i\Gamma_2)(2\delta_2) - |\Omega_c|^2\right] - (2\Delta_p - i\Gamma_2)|\Omega_m|^2$。对于所有模型，通过设置 $\Omega_m = 0$，我们得到三能级电磁感应透明的结果。

平均场相互作用通过对半径介于 R 和 R'之间的球壳体积积分得到：

$$s_{33} = \Sigma_{33}\varrho_{\mathrm{SA}}C_6^{33}\int_{R<r<R'} d^3r\,\frac{1}{r^6} \tag{7a}$$

$$s_{44} = \Sigma_{44}\varrho_{\mathrm{SA}}C_6^{44}\int_{R<r<R'} d^3r\,\frac{|3\cos^2\theta - 1|}{2r^6} \tag{7b}$$

$$s_{34} = \Sigma_{44}\varrho_{\mathrm{SA}}C_6^{34}\int_{R<r<R'} d^3r\,\frac{|3\cos^2\theta - 1|}{2r^6} \tag{7c}$$

$$s_{43} = \Sigma_{33}\varrho_{\mathrm{SA}}C_6^{34}\int_{R<r<R'} d^3r\,\frac{|3\cos^2\theta - 1|}{2r^6} \tag{7d}$$

$$e_{34} = |\Sigma_{34}|\varrho_{\mathrm{SA}}C_3^{34}\int_{R<r<R'} d^3r\,\frac{|3\cos^2\theta - 1|}{2r^3} \tag{7e}$$

其中，我们将各向异性里德堡-里德堡相互作用的角度依赖性近似为 $|3\cos^2\theta-1|^2$。

条件式 *SA* 模型条件探测跃迁相干性 ρ_{21} 为

$$\rho_{21} = \Sigma_{33}\rho_{21}^{\text{2-level}} + (1 - \Sigma_{33})\rho_{21}^{\mathrm{MF}} \tag{8}$$

with

$$\rho_{21}^{\text{2-level}} = -\frac{i|\Omega_p|}{\Gamma_2 - 2i\Delta_p} \tag{9a}$$

$$\rho_{21}^{\mathrm{MF}} = -\frac{i|\Omega_p|}{(\Gamma_2 - 2i\Delta_p) + |\Omega_c|^2/[\Gamma_3 - 2i(\delta_2 - s_{33})]} \tag{9b}$$

我们考虑一维 SA 链，并将传播长度 L 划分为 $L/(2R_b)$ 个区间。输入的相干探测场具有局域探测场强度关联函数 $g^{(2)}(z=0) = 1$。对于每个超原子，我们通过以 $g^{(2)}(z)$ 为权重，对局域探测强度 $|\Omega_p(z)|^2$ 进行加权，计算 $\Sigma_{33}(z)$（式 6(a)），即 $|\tilde{\Omega}_p(z)|^2 \to |\Omega_p(z)|^2 g^{(2)}(z)$。据此进行蒙特卡罗抽样：以 Σ_{33} 的概率，$n_{33} = 1$；以 $1-\Sigma_{33}$ 的概率，$n_{33} = 0$。为区别于系综平均布居 Σ_{33}，我们引入二元随机变量 n_{33} 来表示蒙特卡罗抽样结果。平均场相互作用（式 7）通过设定 $g^{(2)} = 1$ 进行计算。所得结果用于计算

$$\alpha(z) = n_{33}(z)\alpha^{\text{2-level}} + (1 - n_{33}(z))\alpha^{\mathrm{MF}}(z) \tag{10}$$

其中 $\alpha^{\text{2-level}} = -\rho_{21}^{\text{2-level}}\Gamma_2/|\varepsilon_p|$ $\alpha^{\mathrm{MF}} = -\rho_{21}^{\mathrm{MF}}\Gamma_2/|\varepsilon_p|$ 表示极化率，Ω 和 Ω。以下方程用于确定下一步 SA 的 $|\Omega_p(z)|^2$ 和 $g^{(2)}(z)$，其中使用了方程 10 中的极化率：

$$\partial_z(|\Omega_p|^2) = -\kappa(z)\,|\Omega_p|^2\,\mathrm{Im}[\alpha(z)] \tag{11a}$$

$$\partial_z g_p^{(2)}(z) = -\kappa(z)\,n_{33}(z)\,\mathrm{Im}\left[\alpha^{\text{2-level}} - \alpha^{\mathrm{MF}}(z)\right]\,g_p^{(2)}(z) \tag{11b}$$

其中 $\kappa(z) = 2\varrho\omega_p|\wp_{12}|^2/(\hbar\epsilon_0 c\Gamma_2)$。这里，$\wp_{12}$ 是 $|1\rangle \leftrightarrow |2\rangle$ 跃迁的偶极矩，ω_p 是相应的跃迁角频率。

非条件式 *SA* 模型 在此模型中，$\rho_{21} = \rho_{21}^{\mathrm{MF}}$无条件地。对于三能级电磁诱导透明系统，其形式与方程 9(b) 相同；对于四能级微波电磁诱导透明系统，则为

$$\rho_{21} = -\frac{i|\Omega_p|}{(\Gamma_2 - 2i\Delta_p) + \frac{|\Omega_c|^2(\Gamma_4 - 2i\delta_3')}{|\Omega_m + 2e_{34}|^2 + (\Gamma_3 - 2i\delta_2')(\Gamma_4 - 2i\delta_3')}} \tag{12}$$

其中 $\delta_2' = \Delta_p + \Delta_c - s_{33} - s_{34}$ 和 $\delta_3' = \Delta_p + \Delta_c + \Delta_m - s_{44} - s_{43}$。在对四能级系统建模时，由于 C_3^{34}相互作用的空间衰减较慢，我们在方程 7 中将积分范围的上限设为 $R' = L/2$。由于相互作用强度不同，每个积分都有各自的下限截断 R，其值由令相应的相互作用等于 $\Omega_c^2/(2\Gamma_2)$ 得出。$\Gamma_{3,\ 4}/(2\pi)$兆赫被纳入模型，以匹配我们在最低探测速率下的测量结果。

退相干模型在此模型中，相互作用的影响通过增加退相干而非频移来体现：

$$\rho_{21} = -\frac{i|\Omega_p|}{(\Gamma_2 - 2i\Delta_p) + \frac{|\Omega_c|^2(\Gamma_4' - 2i\delta_3)}{|\Omega_m|^2 + (\Gamma_3' - 2i\delta_2)(\Gamma_4' - 2i\delta_3)}} \tag{13}$$

其中 $\Gamma_3' = 2\pi \times 20$ 千赫$+\sqrt{\mathrm{Var}_{33}} + \sqrt{\mathrm{Var}_{34}^s} + \sqrt{\mathrm{Var}_{34}^e}$、$\Gamma_4' = 2\pi \times 20$ 千赫$+\sqrt{\mathrm{Var}_{44}} + \sqrt{\mathrm{Var}_{43}^s} + \sqrt{\mathrm{Var}_{34}^e}$，以及

$$\mathrm{Var}_{33} = \Sigma_{33}\varrho_{\mathrm{SA}}\int_{R<r<R'} d^3r\left[\frac{C_6^{33}}{r^6} - \overline{\frac{C_6^{33}}{r^6}}\right]^2 \tag{14a}$$

$$\mathrm{Var}_{44} = \Sigma_{44}\varrho_{\mathrm{SA}}\int_{R<r<R'} d^3r\left[\frac{C_6^{44}(\theta)}{r^6} - \overline{\frac{C_6^{44}(\theta)}{r^6}}\right]^2 \tag{14b}$$

$$\mathrm{Var}_{34}^s = \Sigma_{44}\varrho_{\mathrm{SA}}\int_{R<r<R'} d^3r\left[\frac{C_6^{34}(\theta)}{r^6} - \overline{\frac{C_6^{34}(\theta)}{r^6}}\right]^2 \tag{14c}$$

$$\mathrm{Var}_{43}^s = \Sigma_{33}\varrho_{\mathrm{SA}}\int_{R<r<R'} d^3r\left[\frac{C_6^{34}(\theta)}{r^6} - \overline{\frac{C_6^{34}(\theta)}{r^6}}\right]^2 \tag{14d}$$

$$\mathrm{Var}_{34}^e = |\Sigma_{34}|\varrho_{\mathrm{SA}}\int_{R<r<R'} d^3r\left[\frac{C_3^{34}(\theta)}{r^3} - \overline{\frac{C_3^{34}(\theta)}{r^3}}\right]^2 \tag{14e}$$

其中

$$\overline{\frac{C_6^{33}}{r^6}} = \frac{1}{\mathcal{N}} \int_{R<r<R'} d^3r \frac{C_6^{33}}{r^6} \tag{15a}$$

$$\overline{\frac{C_6^{ij}(\theta)}{r^6}} = \frac{1}{\mathcal{N}} \int_{R<r<R'} d^3r \frac{C_6^{ij}(\theta)}{r^6} \tag{15b}$$

$$\overline{\frac{C_3^{34}(\theta)}{r^3}} = \frac{1}{\mathcal{N}} \int_{R<r<R'} d^3r \frac{C_3^{34}(\theta)}{r^3} \tag{15c}$$

其中 $C_6^{ij}(\theta) = C_6^{ij\,|3\cos^2\theta-1|}$，$C_3^{34}(\theta) = C_3^{34\,|3\cos\theta-1|}$，归一化因子为 $\mathcal{N} = \int_{R<r<R'} d^3r = \frac{4\pi}{3}(R'^3 - R^3)$。积分范围截断值 R 和 R' 的设置方式与无条件模型相同。此外，两个模型的 $\Omega_p = \Omega_p$。

数据可用性

支持本研究结论的数据和代码已在 Zenodo 上公开，网址为 https://doi.org/10.5281/zenodo.18560777。

致谢

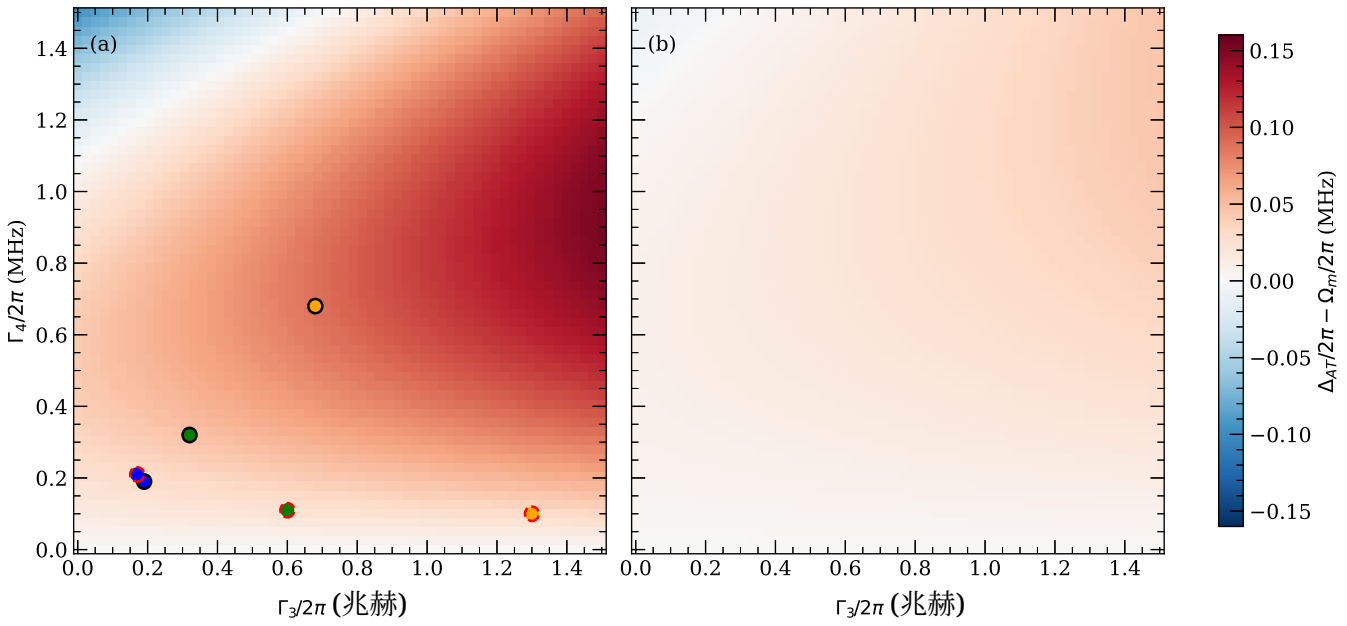
我们感谢 Chen-Lung Hung 教授和 Jonathan D. Hood 教授借给我们设备。我们感谢与 Chen-Lung Hung 进行的宝贵讨论。本工作得到普渡大学启动基金和美国空军科学研究办公室资助项目 FA9550-22-1-0327 的支持。

补充信息：里德堡介导的光子-光子相互作用产生的非线性光学光谱

第1部分：AT分裂与拟合的微波拉比频率之间的偏差

在本节中，我们报告给定的微波拉比频率 Ω_m 与相应的 Autler–Townes（AT）分裂 Δ_{AT} 之间的差异，该分裂是从不同 Γ_3 和 Γ_4 取值下模拟光谱中两个极大值的峰位提取的。模拟中使用的固定参数为 $\{\Delta_m,\Omega_m,\Omega_c\}/(2\pi) = \{0, 2.04, 2.76\}$ 兆赫以及光学深度 $= 0.347$，取自主文图3(e)的拟合结果，但 Δ_m 设为零。光谱在以下范围内进行模拟： $\Delta_c/(2\pi) \in [-\Omega_m/(4\pi) - 0.5, -\Omega_m/(4\pi) + 0.5]$ 兆赫以及$\Delta_c/(2\pi) \in [\Omega_m/(4\pi) - 0.5,\Omega_m/(4\pi) + 0.5]$ 兆赫，每个区间使用 2000 个采样点，对应的频率分辨率为 0.5 千赫。

图S7(a)清楚地表明，在我们的工作区间内，模型中使用的 Δ_{AT} the Ω_m 之间存在系统性偏差。模拟得到的偏差（（$\Delta_{\mathrm{AT}} - \Omega_m$）/（$2\pi$））为 $+0.04$ 兆赫，这与正文报告的数值（$+0.07(4)$ 兆赫）在实验不确定度范围内一致。相比之下，当微波拉比频率增加五倍时（图S7(b)），峰间距远大于线宽。在此区间内，两个共振清晰分辨，线形趋近于理想的 Autler–Townes 图景，偏差也随之消失。



图S7. AT分裂与曲线拟合结果之间的偏差。(a) 计算正文图3(e)中数据的拟合结果与 Δ_m 之间的偏差，其中 Δ_m 设为0，偏差随 Γ_3 和 Γ_4变化。彩色标记对应三组代表性参数；红色虚线和黑色实线标记边缘表示同一线性模型中的两种拟合策略，如正文图3(e)(g)所示。(b) 与(a)中的计算相同，但Ω_m 增加了五倍。

第 2 部分。图 5 和其他跃迁的拟合结果

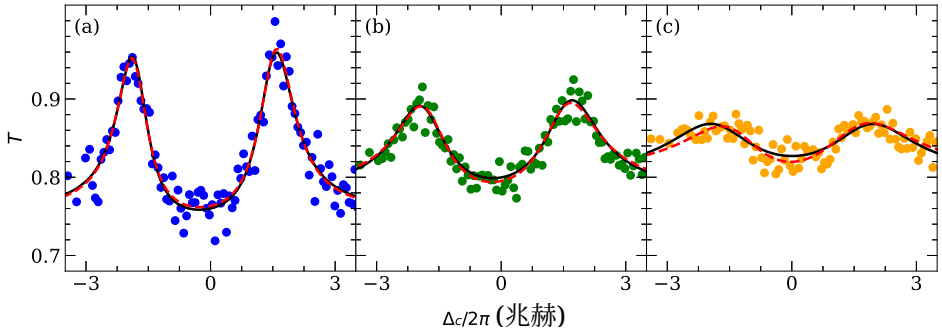


图 S8。对主文图 5 所示数据采用线性模型得到的拟合结果。在面板 (a-c) 中，红色虚线具有独立的 Γ_3 和 Γ_4，拟合值分别为 $\Gamma_3/(2\pi) = \{0.0(1)\,1。1(2)\,2。5(3)\}$ 兆赫和 $\Gamma_4/(2\pi) = \{0.3(1)\,0。4(1)\,0。8(2)\}$ 兆赫。黑色实线强制满足 $\Gamma_3 = \Gamma_4$，拟合值为 $\Gamma_{3,\,4}/(2\pi) = \{0.16(3)\,0。74(5)\,1。6(1)\}$ 兆赫。

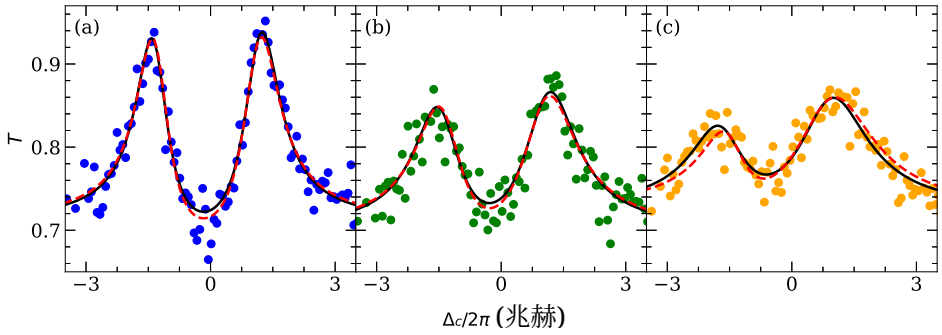


图 S9。对 π 跃迁数据采用线性模型得到的拟合结果。在面板 (a-c) 中，红色虚线具有独立的 Γ_3 和 Γ_4，拟合值分别为 $\Gamma_3/(2\pi) = \{0.4(1)\,0。9(2)\,1。2(1)\}$ 兆赫和 $\Gamma_4/(2\pi) = \{0.04(8)\,0。5(1)\,0。7(2)\}$ 兆赫。黑色实线强制满足 $\Gamma_3 = \Gamma_4$，拟合值为 $\Gamma_{3,\,4}/(2\pi) = \{0.21(3)\,0。66(5)\,1。00(6)\}$ 兆赫。

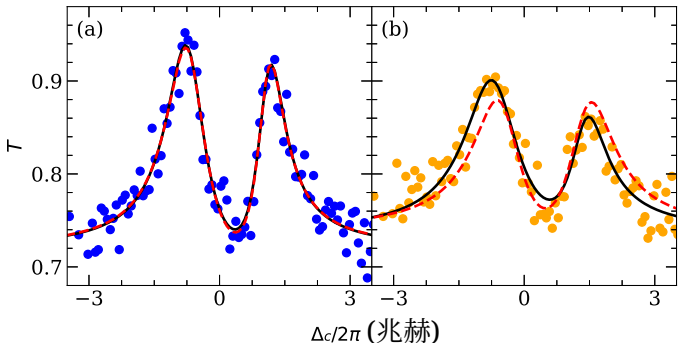


图 S10。 σ^- 跃迁数据的线性模型拟合结果。在面板 (a-b) 中，红色虚线的 Γ_3 和 Γ_4 相互独立，拟合值为 $\Gamma_3/(2\pi) = \{0.27(7)\,0.8(2)\}$ 兆赫和 $\Gamma_4/(2\pi) = \{0.18(6)\,0.3(1)\}$ 兆赫。黑色实线约束 $\Gamma_3 = \Gamma_4$，拟合值为 $\Gamma_{3,4}/(2\pi) = \{0.22(2)\,0.54(4)\}$ 兆赫。

[1] L. Henriet、L. Beguin、A. Signoles、T. Lahaye、A. Browaeys、G.-O. Reymond 和 C. Jurczak，《中性原子量子计算》，Quantum **4**，327（2020年）。

[2] T. Graham, Y. Song, J. Scott, C. Poole, L. Phuttitarn, K. Jooya, P. Eichler, X. Jiang, A. Marra, B. Grinkemeyer 等, 《中性原子量子计算机上的多量子比特纠缠与算法》, 《自然》604, 457（2022年）。[3] J. Muniz, M. Stone, D. Stack, M. Jaffe, J. Kindem, L. Wadleigh, E. Zalys-Geller, X. Zhang, C.-A. Chen, M. Norcia 等, 《171Yb基态核自旋量子比特中的高保真通用门》, PRX Quantum 6, 020334（2025年）。[4] M. Saffman, T. G. Walker 和 K. Mølmer, 《里德堡原子量子信息》, 《现代物理评论》82, 2313（2010年）。[5] D. E. Chang, V. Vuletić 和 M. D. Lukin, 《逐光子量子非线性光学》, 《自然·光子学》8, 685（2014年）。[6] C. S. Adams, J. D. Pritchard 和 J. P. Shaffer, 《里德堡原子量子技术》, 《物理学杂志B：原子、分子与光学物理》53, 012002（2019年）。[7] Q.-Y. Liang, A. V. Venkatramani, S. H. Cantu, T. L. Nicholson, M. J. Gullans, A. V. Gorshkov, J. D. Thompson, C. Chin, M. D. Lukin 和 V. Vuletić, 《量子非线性介质中三光子束缚态的观测》, 《科学》359, 783（2018年）。[8] D. P. Ornelas-Huerta, A. N. Craddock, E. A. Goldschmidt, A. J. Hachtel, Y. Wang, P. Bienias, A. V. Gorshkov, S. L. Rolston 和 J. V. Porto, 《基于里德堡系综的高效纯净光源按需产生不可区分单光子》, 《光学》7, 813（2020年）。[9] T. Stolz, H. Hegels, M. Winter, B. Röhr, Y.-F. Hsiao, L. Husel, G. Rempe 和 S. Dürr, 《两个光学光子之间平均效率超过40%的量子逻辑门》, 《物理评论X》12, 021035（2022年）。[10] J. Vaneecloo, S. Garcia 和 A. Ourjoumtsev, 《用于光学量子工程的腔内里德堡超原子：相干控制、单次探测与光学 π 相移》, 《物理评论X》12, 021034（2022年）。[11] R. Bekenstein, I. Pikovski, H. Pichler, E. Shahmoon, S. F. Yelin 和 M. D. Lukin, 《原子阵列量子超表面》, Nature Physics 16, 676（2020年）。[12] E. Oh, X. Lai, J. Wen 和 S. Du, 《利用光子和原子存储器实现分布式量子计算》, 《先进量子技术》6, 2300007（2023年）。[13] A. Grankin, P. Guimond, D. Vasilyev, B. Vermersch 和 P. Zoller, 《自由空间光子量子链路与手性量子光学》, 《物理评论A》98, 043825（2018年）。[14] D. H. Meyer, Z. A. Castillo, K. C. Cox 和 P. D. Kunz, 《评估里德堡原子用于宽带电场传感》, 《物理学杂志B：原子、分子与光学物理》53, 034001（2020年）。[15] N. Schlossberger, N. Prajapati, S. Berweger, A. P. Rotunno, A. B. Artusio-Glimpse, M. T. Simons, A. A. Sheikh, E. B. Norrgard, S. P. Eckel 和 C. L. Holloway, 《原子蒸气中碱金属原子的里德堡态：可溯源至国际单位制的场探针与通信接收器》, 《自然评论：物理》6, 606（2024年）。[16] H. Zhang, Y. Ma, K. Liao, W. Yang, Z. Liu, D. Ding, H. Yan, W. Li 和 L. Zhang, 《用于计量、通信和混合量子系统的里德堡原子电场传感》, 《科学通报》69, 1515（2024年）。[17] J. Kitching, J. P. Shaffer 和 D. Budker, 《基于原子的电磁场量子传感》, 《光学》12, 2008（2025年）。[18] H.-T. Tu, K.-Y. Liao, H.-L. Wang, Y.-F. Zhu, S.-Y. Qiu, H. Jiang, W. Huang, W. Bian, H. Yan 和 S.-L. Zhu, 《逼近里德堡原子微波电场计的标准量子极限》, 《科学进展》10, 10.1126/sciadv.ads0683（2024年）。[19] R. Duverger, A. Bonnin, R. Granier, Q. Marolleau, C. Blanchard, N. Zahzam, Y. Bidel, M. Cadoret, A. Bresson 和 S. Schwartz, 《基于冷里德堡原子陷阱损失光谱学的微波场计量》, 《物理评论应用》22, 044039（2024年）。[20] M. J. Jamieson, K. J. Weatherill, C. S. Adams, R. K. Hanley, N. Alves 和 J. Keaveney, 《利用超冷里德堡原子进行连续时间超高频（UHF）传感》, arXiv预印本 arXiv:2504.00212（2025年）。[21] K.-Y. Liao, H.-T. Tu, S.-Z. Yang, C.-J. Chen, X.-H. Liu, J. Liang, X.-D. Zhang, H. Yan 和 S.-L. Zhu, 《通过冷里德堡原子中的电磁诱导吸收进行微波电测量》, 《物理评论A》101, 053432（2020年）。[22] F. Zhou, F. Jia, X. Liu, Y. Yu, J. Mei, J. Zhang, F. Xie 和 Z. Zhong, 《利用冷里德堡原子提升量子微波电测量的光谱分辨率和测量范围》, 《物理学杂志B：原子、分子与光学物理》56, 025501（2023年）。[23] P. L. Ocola, I. Dimitrova, B. Grinkemeyer, E. Guardado-Sanchez, T. Đorđević, P. Samutpraphoot, V. Vuletić 和 M. D. Lukin, 《纳米尺度器件附近单个里德堡原子的控制与纠缠》, 《物理评论快报》132, 113601（2024年）。[24] S. Chen, H. Fukuda, T. Inada, T. Moroi, T. Nitta 和 T. Sichanugrist, 《利用量子计算增强暗物质探测》, 《物理评论快报》133, 021801（2024年）。[25] J. Shu, B. Xu 和 Y. Xu, 《消除非相干噪声：多传感器暗物质探测的相干量子方法》, arXiv预印本 arXiv:2410.22413（2024年）。[26] C. Nill, A. Cabot, A. Trautmann, C. Groß 和 I. Lesanovsky, 《里德堡光镊阵列中的雪崩式太赫兹光子探测》, 《物理评论快报》133, 073603（2024年）。[27] X. Wang, Y. Wang 和 Q.-Y. Liang, 《通过快速绝热通道实现稳健的里德堡促进》, arXiv预印本 arXiv:2510.01504（2025年）。[28] M. Gullans, J. Thompson, Y. Wang, Q.-Y. Liang, V. Vuletić, M. D. Lukin 和 A. V. Gorshkov, 《里德堡极化激元的有效场论》, 《物理评论快报》117, 113601（2016年）。[29] T. Peyronel, O. Firstenberg, Q.-Y. Liang, S. Hofferberth, A. V. Gorshkov, T. Pohl, M. D. Lukin 和 V. Vuletić, 《强相互作用原子使单光子量子非线性光学成为可能》, 《自然》488, 57（2012年）。[30] J. D. Pritchard, D. Maxwell, A. Gauguet, K. J. Weatherill, M. Jones 和 C. S. Adams, 《里德堡阻塞系综中的协同原子-光相互作用》, 《物理评论快报》105, 193603（2010年）。[31] D. Petrosyan, J. Otterbach 和 M. Fleischhauer, 《里德堡原子中的电磁诱导透明》, 《物理评论快报》105, 193603（2011年）。

综述快报 **107**，213601（2011年）。[32] Z. Vendeiro, J. Ramette, A. Rudelis, M. Chong, J. Sinclair, L. Stewart, A. Urvoy 和 V. Vuletić，《机器学习加速的玻色-爱因斯坦凝聚》，Physical Review Research **4**，043216（2022年）。[33] D. Kurdak, Y. Li, P. R. Banner, J. Porto 和 S. Rolston，《里德伯系综实验中的高保真微波偏振控制》，arXiv预印本 arXiv:2508.06820（2025年）。[34] B.-B. Wang, D. Yan 和 J.-H. Wu，《利用修正公式增强弱相互作用里德堡原子的微波电测量》，Optics Express **33**，17026（2025年）。[35] C. L. Holloway, M. T. Simons, J. A. Gordon, A. Dienstfrey, D. A. Anderson 和 G. Raithel，《用于国际单位制溯源的电场计量：原子蒸气中电磁诱导透明的系统测量不确定度》，Journal of Applied Physics **121** （2017年）。[36] 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》，Nature Physics **16**，911（2020年）。[37] J. A. Gordon, M. T. Simons, A. H. Haddab 和 C. L. Holloway，《利用基于里德堡原子的混频器，在射频下以亚1 Hz分辨率探测弱电场》，AIP Advances **9** （2019年）。[38] N. Prajapati, A. K. Robinson, S. Berweger, M. T. Simons, A. B. Artusio-Glimpse 和 C. L. Holloway，《通过布居再泵浦增强基于电磁诱导透明的里德堡原子电测量》，Applied Physics Letters **119** （2021年）。[39] 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》，Computer Physics Communications **220**，319（2017年）。[40] S. Weber, C. Tresp, H. Menke, A. Urvoy, O. Firstenberg, H. P. Büchler 和 S. Hofferberth，《教程：里德伯相互作用势的计算》，《物理学杂志B：原子、分子与光学物理》**50**，133001（2017年）。