

热里德伯原子气体中平均场相互作用的时间延迟

Yuzhuo Wang^{1,2}, Tianxiong Gao^{1,2}, Yufan Niu³, Ying Hu^{1,2}, Linjie Zhang^{1,2}, Suotang Jia^{1,2}, Mingyong Jing^{1,2,†}, Yanhong Xiao^{1,2,3,*}

¹ State Key Laboratory of Quantum Optics Technologies and Devices, Institute of Laser Spectroscopy, Shanxi University, Taiyuan, Shanxi 030006, China.

² Collaborative Innovation Center of Extreme Optics, Shanxi University, Taiyuan 030006, China.

³ Department of Physics, State Key Laboratory of Surface Physics and Key Laboratory of Micro and Nano Photonic Structures (Ministry of Education), Fudan University, Shanghai 200433, China.

[†] jmy@sxu.edu.cn

^{*} yxiao@sxu.edu.cn

Abstract: 平均场理论常用于研究热里德伯原子集合中的非平衡动力学，但生成平均场相互作用的基本机制仍然知之甚少。在这项工作中，我们实验观察到了在平均场相互作用建立过程中存在时间延迟效应，这揭示了碰撞电离的关键作用。我们分析了相关的碰撞通道，并提出了一种微观机制，能够定量解释在光学双稳性中观察到的滞后窗口。然后，通过使用方波调制光谱（SMS）来监测平均场相互作用的生长，我们实验演示了初始里德伯激发后其动力学建立过程中的延迟。最后，我们展示了这种延迟效应如何有助于理解最近在一个热里德伯气体中观察到的自维持振荡。我们的发现为电离过程在热里德伯气体非平衡动力学中的贡献提供了有力证据，该系统对于量子传感和量子信息科学具有日益增长的兴趣。

© 2025 Optica Publishing Group

1. 介绍

里德堡原子气体是探索非平衡动力学[~] [1–3]、量子信息科学[~] [4–7] 和量子传感[~] [8–11] 的重要平台。原子之间的强相互作用取决于主量子数，引入了高且可控的非线性[~] [5, 12–15]。可选里德堡能级的间隔范围从兆赫兹到太赫兹，使得新的外部控制和检测能力成为可能[~] [2, 4, 16–18]。由于在室温下即可实现可控的相互作用，已经观察到了丰富的现象，如光学双稳（OB）[1, 19, 20]、自组织 [3] 以及自持振荡（SSO）[21–24]。也出现了许多值得注意的应用，包括单光子源 [25] 和在临界点处增强的计量学 [16, 26]。在这些研究中，大多数情况下采用平均场理论来处理相关的多体物理问题。

在热里德堡原子的平均场框架中，复杂的原子相互作用通常通过将激发激光的基本失谐 Δ 替换为一个有效的非线性失谐 $\Delta - \Delta_{\text{eff}}$ 来考虑，其中 Δ_{eff} 是里德堡人口 ρ_{rr} 的函数。常见的现象学表达式，如 $\Delta_{\text{eff}} = V\rho_{\text{rr}}^\beta$ 或 $\Delta_{\text{eff}} = \sum_{\beta=1}^n V_\beta \rho_{\text{rr}}^\beta$ ，通常被采用 [1, 16, 22, 23]，其中 V 和 V_β 表示相互作用强度，而 β 是根据相互作用函数依赖于 ρ_{rr} 的幂系数。虽然这种平均场形式主义在解释许多实验观测结果方面很有用，包括

光谱学和非线性现象 [16,27] 中的观测结果，但里德堡态人口如何贡献于平均场相互作用的微观机制仍然不清楚。

例如，在 OB 光谱的情况下，多普勒引起的频率偏移通常会导致不同速度组的原子经历不同的失谐，可能模糊 OB 光谱中的相变点 [28]。然而，实验中常规观察到 OB 窗口和尖锐的过渡现象表明，相变是由原子态的整体变化驱动的，而不是由个别速度类别的失谐驱动的。此外，在 Rydberg SSO 的情况下，有效失谐 $\Delta_{\text{eff}}(\rho_{\text{tr}})$ 被认为在驱动 Hopf 分岔中起关键作用，但由于实验观测到的振荡频率与理论之间的定量差异，其潜在的微观机制仍存在争议 [23,24]。此外，在引入延迟反馈时，即使没有腔体或直接原子间相互作用，也能观察到 SSO 现象 [29]。这表明延迟反馈可能在产生这些振荡中起基础性的作用。在此背景下，延迟反馈指的是系统中的信号经过一段时间后再次作用于系统的这样一个过程。

若干研究表明，里德堡气体中的平均场效应可能源自电离过程 [30–33]，表明里德堡种群不会立即对平均场相互作用做出贡献。还显示，OB 回滞现象源于雪崩电离过程 [32]。虽然这种电离到等离子体的转变已经通过电气读数进行了实验研究 [31]，但外部电场可以改变等离子体动力学。或者，可以通过将实验光谱与数值模型进行比较来推断等离子体特性 [33]，但这方法间接且复杂。另外，提出了一个“森林火灾”模型来描述平均场效应 [3]，解释了阈值效应和增强的退相现象，但其微观机制仍然不清楚。

在这里，我们通过实验演示并从理论上分析了平均场相互作用建立过程中的时间延迟效应，突出了微观过程在理解里德堡原子气体中非平衡动力学方面的重要性。我们首先描述了一个电离模型以解释等离子体诱导的平均场相互作用。我们表明 OB 的下支基本上对应于单个原子光谱，在这里平均场相互作用只是微扰性的。达到碰撞电离阈值时，系统会表现出向上的“跳跃”到上支。我们分析了雪崩过程和阈值效应在 OB 光谱中的后果。接下来，通过 SMS 方法，我们在里德堡态被创建后实验观察到了平均场相互作用的延迟动态建立。这为理解平均场相互作用的起源提供了新的见解，并有助于澄清双稳系统的动力学。最后，我们将我们的模型应用于分析 SSO。我们的发现阐明了热里德堡原子中平均场相互作用的基本机制，并对这些系统中的非平衡物理学提供了有价值的洞见。此外，我们提出的实验结果和 SMS 方法在研究基于原子系统的多体物理和非线性光学器件方面具有广泛的应用性。

2. 理论模型

2.1. 原子与等离子体耦合模型

由于里德堡态的电离过程不保留相位信息，产生的等离子体与原子没有相干性。我们用一个包含等离子体作为状态 [33] 的 4 级模型替代，而是简化系统为一个 3 级原子，其能级因等离子体产生的电场而偏移，如图 1(a) 所示。由电场 E 引起的直流

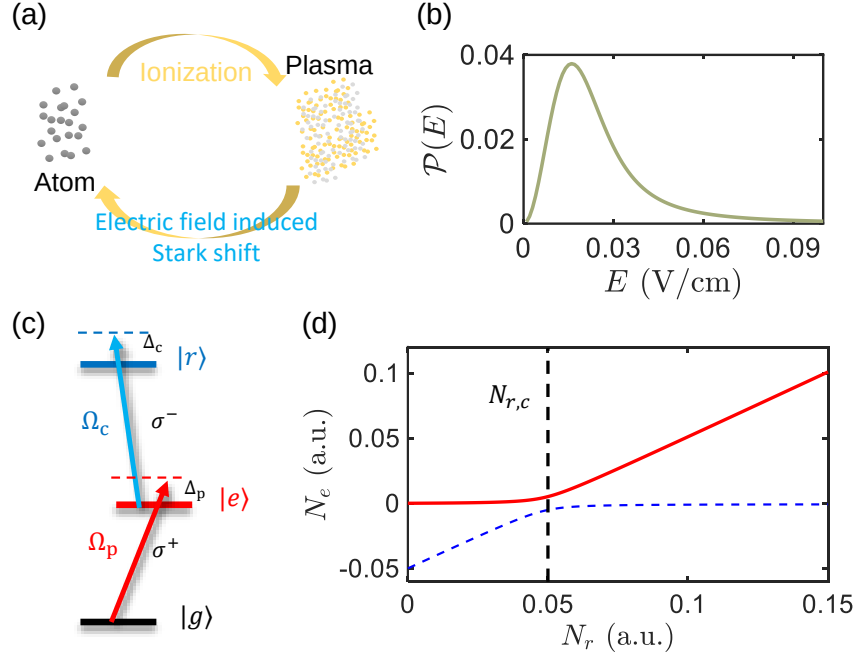


图 1. 热里德伯气体中平均场相互作用的机制。(a) 原子-等离子体耦合的示意图。(b) 一个示例, 其中 $\mathcal{P}(E)$ 的值为 $E_c = 0.01$ V/cm。(c) 双光子激发图。(d) 当在稳态下扫描 N_r 时 N_e 的解, 其中红色实线和蓝色虚线分别代表正解和负解。阈值 $N_{r,c}$ 用黑色虚线标出。模拟中使用的参数是 $a_1 = 1 \times 10^{-5}$, $a_2 = 1 \times 10^{-4}$, $a_3 = 0.02$, $\Gamma_e = 0.001$, $\Gamma'_e = 0.02$ 。

斯塔克位移是

$$\Delta_s = -\frac{1}{2}\alpha|E|^2 \quad (1)$$

其中 α 是里德堡态的原子极化率, 通过软件包 ARC [34] 计算得到。在等离子体中, 电场分布由 Holtsmark 函数 [32, 35, 36] 描述:

$$\mathcal{P}(E) = \mathcal{H}(E/E_c)/E_c \quad (2)$$

$$\mathcal{H}(\beta) = \frac{2}{\pi\beta} \int_0^\infty x \sin x e^{-(x/\beta)^{3/2}} dx, \quad (3)$$

其中 E_c 是由带电粒子密度 N_e 得出的特征电场,

$$E_c = \frac{|e|}{2\epsilon_0} \left(\frac{4}{15} N_e \right)^{2/3} \quad (4)$$

这里 e 是电子电荷, ϵ_0 是真空介电常数。示例图 1(b) 展现了电压梯度为 $E_c = 0.01$ V/cm 的 $\mathcal{P}(E)$ 情形。这种分布对赖德堡态引入了两个效应, 一个有效的频率偏移 Δ_{eff}

$$\Delta_{\text{eff}} = \int_0^\infty dE \mathcal{P}(E) \Delta_s(E) \quad (5)$$

和退相

$$\hat{L}_r = \sqrt{\Gamma_s}|r\rangle\langle r|. \quad (6)$$

$\hat{L}_r$ 反映了退相过程，它拓宽了原子光谱但不会直接改变粒子数。我们在方程 (5) 中将积分截断到 $10E_c$ 进行数值计算。包含里德堡能级的直流斯塔克位移的哈密顿量 $\hat{H}_0$ 具有以下形式（我们取 $\hbar = 1$ ）

$$\hat{H} = -\frac{1}{2} \begin{bmatrix} 0 & \Omega_p^* & 0 \\ \Omega_p & 2\Delta_p & \Omega_c^* \\ 0 & \Omega_c & 2(\Delta_p + \Delta_c + \Delta_{\text{eff}}) \end{bmatrix}, \quad (7)$$

其中 $\Omega_{p,c}$ 和 $\Delta_{p,c}$ 是两个相关跃迁的拉比频率和失谐率，如图 1(c) 所示。系统密度矩阵在 Lindblad 主方程下演化

$$\frac{d\hat{\rho}(t)}{dt} = -i[\hat{H}, \hat{\rho}(t)] + \sum_k (\hat{L}_k \hat{\rho} \hat{L}_k^\dagger - \frac{1}{2} \{\hat{\rho}(t), \hat{L}_k^\dagger \hat{L}_k\}), \quad (8)$$

其中 $\hat{L}_k (k = 1, 2, 3, r)$ 表示包括衰减通道的坍缩算符

$$\hat{L}_1 = \sqrt{\Gamma_{eg}}|g\rangle\langle e|, \quad \hat{L}_2 = \sqrt{\Gamma_{rg}}|g\rangle\langle r|, \quad \hat{L}_3 = \sqrt{\Gamma_{re}}|e\rangle\langle r| \quad (9)$$

以及方程式 (6) 中的退相因子 $\hat{L}_r$ 。迄今为止，我们已经将等离子体与里德堡能级偏移连接起来。来自等离子体的电场不仅会移动里德堡能级，还会引入额外的退相效应，这贡献于系统动态过程，该过程由方程 (8) 描述。接下来我们将讨论等离子体生成。考虑到带电粒子产生对应于里德堡原子损失，我们在 $\hat{L}_2$ 中包括了这种损失以确保种群守恒。将基态原子视为一个储层是一个很好的近似处理方法，因为在高温原子集合中，能够被激发的里德堡原子数量远少于基态原子，这是由于广泛的速度分布和相应的多普勒频移。

2.2. 碰撞电离和阈值效应

等离子体中的带电粒子来自碰撞电离。根据之前对里德堡电离 [30, 33, 37] 的研究，可以存在四种碰撞电离通道：

- ① 里德堡原子和基态原子，
- ② 里德堡原子和里德堡态原子，
- ③ 里德堡原子和电子，
- ④ 里德堡原子和里德堡离子。

电离速率由粒子密度、粒子速度和碰撞截面决定。电子和里德堡离子具有相似的密度 $N_e \approx N_{\text{ion}}$ ，因此 ③ 和 ④ 的效果可以数学上合并为一个项。基于上述讨论的电离机制，可以导出电子密度 N_e 的速率方程，这也在参考文献 [33] 中提到：

$$\frac{dN_e}{dt} = a_1 N_g N_r + a_2 N_r^2 + a_3 N_e N_r - \Gamma_e N_e - \Gamma_e' N_e^2. \quad (10)$$

这里 N_g 和 N_r 分别是基态和里德堡态的原子密度。我们将密度归一化，设定原子密度 $N_a = 1$ ，因此 $N_r, N_e \ll N_g$ ，它们都是无量纲的。等式 (10) 右边的前三个项分别代表 ①、② 和 ③+④。系数 a_1 、 a_2 和 a_3 与碰撞截面和粒子最可能的速度有关。考虑截面关系 ③ $\approx$ ② $>$ ① [30]，由于电子具有更大的可能速度，我们有 $a_3 \gg a_2 > a_1$ 。 Γ_e 是带电粒子的单体衰变率，受传输效应等多种因素的影响，最后一项 $\Gamma'_e N_e^2$ 是由于电子-离子复合导致的电子损失。常数 a_1, a_2, a_3, Γ_e 和 Γ'_e 都是频率量，我们在数值工作中将其单位设置为衰变速率 Γ_{eg} （参见方程 (9)）。

方程 (10) 描述了一个雪崩过程：电离产生了带电粒子，导致了更大的里德堡-电子碰撞概率。最终，在里德堡群体损失和电子-离子复合损失限制了电离速率时，达到了稳态。这个雪崩过程可能是 [3] 中森林火灾模型的来源，在那里表明当里德堡密度超过阈值 $N_{r,c}$ 时，会出现相互作用和相关的退相现象。通过调整失谐或激光拉比频率可以达到这一阈值，并且它与双稳态光谱中的传输跃变密切相关。在这里我们强调，密度阈值对应于碰撞阈值，正如在冷原子集合 [30, 38, 39] 中所展示的那样。雪崩阈值的机制和表达式可以通过对方程 (10) 的分析得出。雪崩发生的前提是，术语 $a_3 N_e N_r$ 必须超过其他电离过程 ($a_3 N_e N_r > a_1 N_g N_r + a_2 N_r^2$) 以及离子耗散率 ($a_3 N_e N_r > \Gamma_e N_e + \Gamma'_e N_e^2$) 的总贡献。当离子数量较少时，耗散项主要由 $\Gamma_e N_e$ 控制。因此，雪崩发生的条件是 $a_3 N_e N_r > \Gamma_e N_e$ ，导致阈值 $N_{r,c} = \Gamma_e / a_3$ 。这与稳态解的顶点

$$N_{r,c} = \frac{\Gamma_e - 2\Gamma'_e a_1 / a_3}{a_3 + 4\Gamma'_e a_2 / a_3} \approx \frac{\Gamma_e}{a_3} \quad (11)$$

在上述近似成立时一致。我们注意到二次方程 $dN_e/dt = 0$ 对于 N_e 有两个解，如图 1(d) 所示。系统遵循正解（红线），因为负解是非物理的，而 $N_{r,c}$ 在图中标记了。随着雪崩的发展和离子群体迅速增长，耗散过程变得由 $\Gamma'_e N_e^2$ 主导。在这个阶段，雪崩停止，系统达到稳态，其中 $dN_e/dt = a_3 N_e N_r - \Gamma'_e N_e^2$ 。在这个稳态中，离子密度 N_e 与 N_r 成正比，并且我们的模型简化为 $V\rho_{rr}^\beta$ 。虽然通道 ① 和 ② 对电离率贡献较小，但这些通道产生的电子作为触发其他碰撞过程所需的初始种子。上述讨论提供了对倍增过程及其阈值的直观理解。然而，更严格的分析应参考结合方程 (10) 和方程 (8) 的完整模型。

3. 实验演示

3.1. 实验设置

为了实验研究平均场相互作用，我们采用两光子激发方案。我们在一个富集的 ^{87}Rb 蒸汽池（圆柱形）中进行了电磁诱导透明 (EIT) 光谱分析，该蒸汽池长度为 7.5 厘米，直径为 2.5 厘米。如图 1(c) 所示，探测激光（红色箭头，波长 780 纳米，拉比频率 Ω_p ）和耦合激光（蓝色箭头，480 纳米， Ω_c ）将原子从基态 $|g\rangle$ 激发到里德堡态 $|r\rangle$ ，经过中间态 $|e\rangle$ 。两束激光的频率通过室温下且激光功率相对较低时（此时等离子体效应可以忽略）的里德堡 EIT 谱校准，并锁定在一个精细度约为 10000

的腔内。 $\lambda/2$ 并且使用 $\lambda/4$ 波片来补偿双色镜对两个场的偏振畸变。

通过平衡光电探测器进行差分检测 [3,9,22]，分别针对 EIT 中的探针光束和同一蒸汽单元中空间分离的参考探针光束。通过控制加热层的功率，可以将蒸气室的温度从 23° 摄氏度调节到 81° 摄氏度。相关的能级是 $|g\rangle = |5S_{1/2}, F = 2\rangle$ ， $|e\rangle = |5P_{3/2}, F = 3\rangle$ 和 $|r\rangle = |5S_{1/2}\rangle$ 。探测激光和耦合激光的偏振分别为 σ^+ 和 σ^- ，以驱动选定的跃迁，其光束腰部分别为 0.30 毫米和 0.55 毫米。

我们保留 $\Delta_p = 0$ 并扫描 Δ_c 以记录 EIT 谱。此外，我们研究动态里德堡激发过程以揭示原子与等离子体之间的耦合动力学。我们将红色激光保持开启，并使用声光调制器对蓝色激光进行调制，驱动信号为方波幅度调制射频场 (RF)。从调制产生的脉冲上升沿小于 0.2 μ 秒，通过光电探测器表征。可以从红色激光的透射中观察到里德堡态粒子数的增长，允许通过透射的上升或下降边缘研究电离过程。可以使用这种方法提取非平衡信息，我们将其命名为方波调制光谱法 (SMS)。

3.2. 磁滞和锐边

首先，我们使用我们的模型重新审视热里德堡气体中的 OB 磁滞现象。原则上，当 N_r 跨越阈值时，无论是在 EIT 光谱的红失谐侧还是蓝失谐侧，都应该观察到 OB 窗口。在图 2(a) 中，我们展示了具有 $\Omega_p/2\pi = 35.8\text{MHz}$ 、 $\Omega_c/2\pi = 1.1\text{MHz}$ 以及 Rb 单元温度 $T_{\text{cell}} = 47.9^\circ\text{C}$ 的 OB 透射光谱。蓝失谐侧 (图 2(b)) 上的 OB 窗口相对较小，这可以在下面进行解释。考虑在有无等离子体介导相互作用下的稳态平衡谱分别记为 B1 和 B0，如我们的模型计算并显示在图 3(a) 的插图中，其中 B1 相对于 B0 向左偏移，这是由于直流斯塔克位移 (参见方程 (1))。我们注意到，如图 1(b) 所示并且通过我们的计算可以证明，在峰值附近区域的平均电场与分布曲线的宽度相当，这表明直流斯塔克位移 Δ_{eff} 和不均匀电场展宽处于同一数量级 [33]。这导致 B0 和 B1 分支在 $\Delta_c > 0$ 时更接近，并且当 $\Delta_c < 0$ 时距离更大，从而给出更大的 OB 窗口 (参见图 3(a) 插图)。如果两个分支在 N_r 阈值位置的差异更大，则蓝失谐的 OB 窗口将变得更加显著。

人们可能会考虑 OB 窗口的锐边是否依赖于失谐，并有利于精确频率测量 [16]。为了更好地理解 OB 特性及其对计量应用的意义，我们在不同速度下扫描 Δ_c 穿越锐边 (如图 2(a) 中虚线黑框所示)，结果展示在图 2(c)。颜色更深的线条代表更快的扫描速度，在绘图时为了观察效果给不同的线条添加了时间偏移。所有扫描速度下的上升边缘几乎相同，表明传输的增加不依赖于失谐变化量，而是仅由阈值位置决定。换句话说，系统的动态主要受雪崩过程的影响，当失谐接近阈值时被触发。从我们的发现中，我们得出结论认为这种与失谐无关的锐边并不会直接提高频率测量的精度。然而，其有助于以更高的灵敏度定位跳点的能力对于计量应用可能具有优势。

此外，我们研究了在不同铷原子池温度下的跃迁。正扫描的结果见图 2(d)，其中传输被归一化以补偿光学深度的变化。光谱在开始时几乎重叠，并在跃迁处开始发散，在此过程中平均场相互作用开始发挥作用。随着铷原子池温度的升高，原子

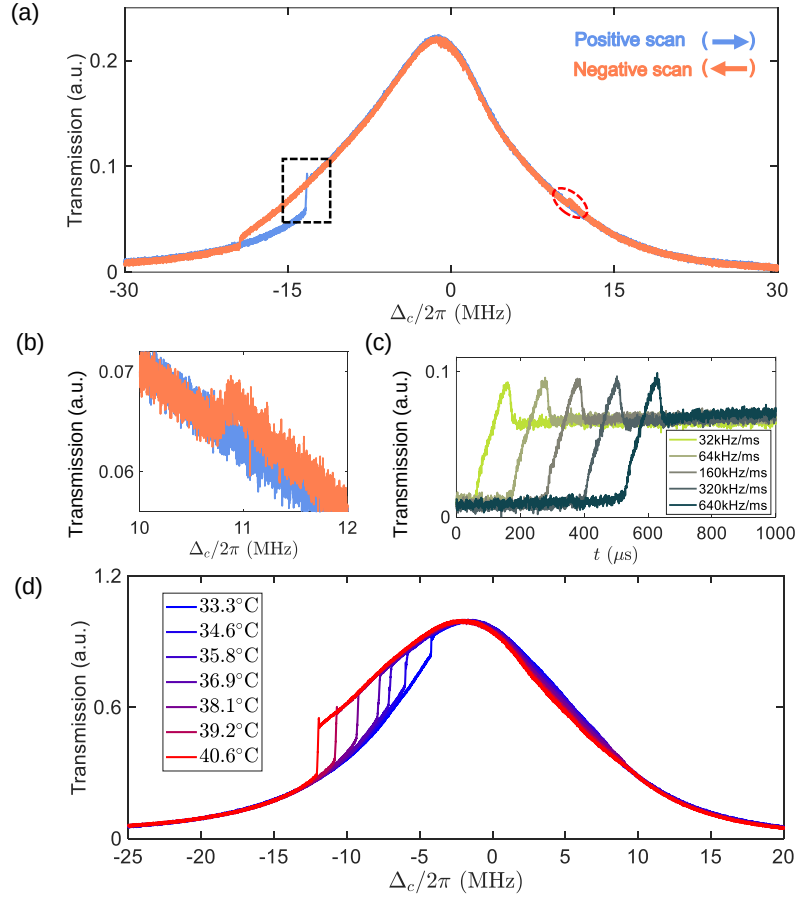


图 2. OB 光谱分析。(a) 在 $T_{\text{cell}} = 47.9^\circ\text{C}$ 和 $\Omega_p/2\pi = 35.8\text{MHz}$, $\Omega_c/2\pi = 1.1\text{MHz}$ 的一个典型 OB 传输。(b) OB 光谱在蓝失谐处的跃迁, 这是 (a) 中红色虚线圆圈的放大图。(c) 不同频率扫描速度下锐边附近的光谱, 标记为 (a) 中的虚线黑框。每个光谱为了观察目的都进行了时间偏移。参数与 (a) 相同。(d) 在不同单元温度下的传输光谱, $\Omega_p/2\pi = 24.8\text{MHz}$, $\Omega_c/2\pi = 1.6\text{MHz}$ 。

密度 N_a 变高, 方程 (10) 中的常数 a_3 变化可忽略不计, 因此需要更低的里德堡态临界人口 $\rho_{\text{r,c}} = N_{\text{r,c}}/N_a$ 以维持相同的 $N_{\text{r,c}}$ 。这与我们的实验观测结果一致: 在较高的原子密度下, 跃迁出现在更大的红失谐处, 对应于较低的里德堡态人口。

3.3. 延迟平均场相互作用的观测

然后我们报告了在里德堡激发过程中平均场相互作用的时间延迟的实验证据。我们将蓝激光调制为 2 kHz, 并使用占空比为 80% 的方波。红光和蓝光的拉比频率分别为 $\Omega_p/2\pi = 30.8\text{MHz}$ 和 $\Omega_c/2\pi = 1.3\text{MHz}$, 这些数值是从输入功率和光束腰算得 [34]。在每个调制周期中, 蓝激光关闭 100 μ s, 这个时间足够长以使里德堡种群扩散出激发区域。我们将红激光设置为共振, 并扫描蓝激光频率。SMS 如图 3(a) 所

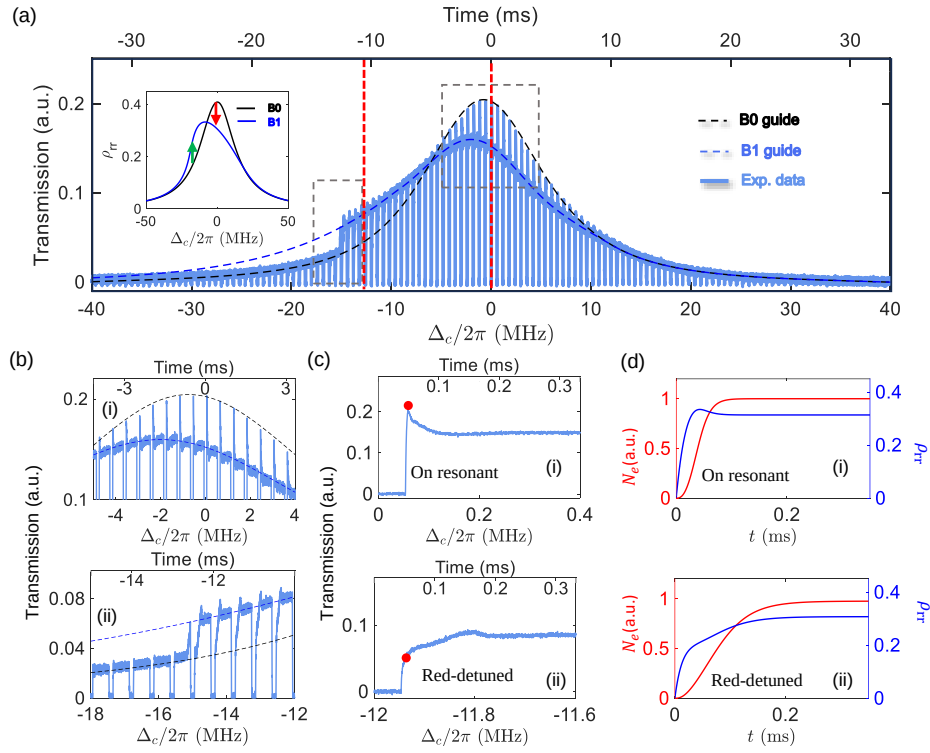


图 3. 延时的平均场相互作用。(a) 使用 2 kHz 调制的蓝光激光在 $T_{\text{cell}} = 47.5^\circ\text{C}$ 和 $\Omega_p/2\pi = 30.8\text{MHz}$, $\Omega_c/2\pi = 1.3\text{MHz}$ 下传输。时间轴也被提供, 并且 $t = 0$ 与共振点对齐。黑色实线是一个代表单原子 EIT 谱的参考线。插图是用 B0 (黑) 和 B1 (蓝) 分支计算出的曲线。箭头表示传输的弛豫方向。(b,c) (a) 中在不同放大倍率下的近共振区和红移区的局部放大图, 分别用灰色虚线框 (b) 和红色虚线 (c) 标记。在 (c) 中, $t = 0$ 被调整到此图的开始处以方便查看。(d) 数值计算的时间依赖性 ρ_{rr} 和 N_e 。参数被设置为 $\Omega_p/2\pi = 15$ 兆赫, $\Omega_c/2\pi = 1.2$ 兆赫, $a_1 = 3 \times 10^{-5}$, $a_2 = 0.01$, $a_3 = 0.02$, $\Gamma_e = 0.02$, $\Gamma'_e = 0.02$ 。

示, 而为了对比, 没有调制的光谱如图 2(a) 所示。图 3(b) 显示了探针传输演化的细节。在近双光子共振和红失谐区域, 传输达到一个初始值 (如图 3(c) 放大图片中的红色圆点所示), 经过一些过渡后达到相对稳定的水平。这个稳定水平比初始值高 (低) 于红失谐 (近共振) 区域。这种现象可以解释如下, 并且是平均场中时间延迟的证据。

蓝激光激活后的动态过程可以分为两个不同的阶段: 首先, 系统经历正常的 EIT 激发 (没有等离子体介导的相互作用) 进入 B0 分支, 这由连接红色点形成的虚线黑色线条表示; 其次, 由于碰撞产生的平均场相互作用使系统放松到考虑等离子体效应下的稳态, 称为 B1 分支, 这由连接每个调制周期中稳定传输水平形成的虚线蓝色线条表示。使用我们的模型计算的 B0 和 B1 光谱 (图 3(a) 插图) 可以用来说明这一过程: 系统首先进入黑色曲线 B0 然后放松到蓝色曲线 B1, 如箭头所示。在红

失谐（共振）区域，绿色（红色）箭头表示探测传输的增加（减少），这与图 3(c) 中的实验趋势相符。

为了验证我们的模型引入的延迟效应，我们进行了从基态驱动原子时 ρ_{rr} 和 N_e 的动力学模拟。时间依赖曲线显示在图 3(d) 中， ρ_{rr} 曲线的趋势定性上与图 3(c) 中的测量传输一致。平均场相互作用直到雪崩过程开始且 N_e 快速增长时才显示出显著效应。此时，系统进入其第二步动力学。利用这种延迟效应，我们通过调制方法甚至在 OB 窗口之外也获得了非相互作用分支的分布。总体而言，上述实验和模拟表明，平均场相互作用是在里德堡态人口形成之后才被延迟的。

3.4. 时间依赖的能量偏移来自非平衡谱

我们已经在上面确认了，平均场相互作用在初始里德堡态生成后的有限延迟时间内生效，而不是瞬时的。在本节中，我们将展示可以从中提取平均场相互作用的延迟时间以及斯塔克位移的时间演化。我们将扫描速度降低到 50 kHz/ms，并以 10 kHz 的方波调制蓝色激光，占空比为 40%，这使得每个周期内激光开启和关闭的时间分别为 40 μ s 和 60 μ s。我们将每个周期内的开启时间标记为 $\{t(\Delta_c)\}$ ，如图 4(a) 中的黑点所示，频率为 $\Omega_p/2\pi = 47.5\text{MHz}$ ， $\Omega_c/2\pi = 1.2\text{MHz}$ 。在所有循环的 $\{t(\Delta_c) + t_D\}$ 处收集的传输点被绘制出来，形成一个新的光谱 $T(t_D, \Delta_c)$ ，我们称之为采样-SMS。这里 $T(t_D, \Delta_c)$ 是在蓝色激光开启后延迟时间 t_D 处的一个非平衡光谱。在 1 MHz 调谐范围内有 62.5 个采样点，这确保了一个相对平滑的光谱。我们可以基于 $T(t_D, \Delta_c)$ 推导出相互作用引起的位移，其中包含从 0 到 t_D 累积的相互作用。采样-SMST(t_D, Δ_c) 及其 $t_D = 1, 3, 6, 20, 35 \mu$ 显示在图 4(b) 中。曲线颜色与 (a) 中的对应点的颜色相匹配，对于相应的 t_D 。 $\Delta_{\text{eff}}(t_D)$ 由曲线 $T(t_D, \Delta_c)$ 峰值处的失谐表示。它逐渐向红色一侧移动，表明平均场相互作用的增长。

由于采样的 SMS 既不是高斯形状也不是洛伦兹形状，我们通过加权平均得到峰值位置：

$$\Delta_{\text{eff}}(t_D) = \frac{\Delta_c \times T(\Delta_c, t_D)}{\sum T(\Delta_c)} \quad (12)$$

这在 $T(t_D, \Delta_c)$ 超过其 95% 最大值的区域内进行，并且 $T(t_D, \Delta_c)$ 本身充当权重。 $\Delta_{\text{eff}}(t_D)$ 的结果显示在图 4(c) 中。 Δ_{eff} 延迟一段时间后，转向红失谐方向，并在大约 $2\pi \times (-3.0)$ 兆赫处稳定下来，在 $t_D = 30 \mu$ 秒时。这表明系统演化到了其稳态，其中条件 $dN_e/dt = 0$ 得到满足，正如方程 (10) 所描述的。我们注意到这个时间延迟比里德堡种群激发的弛豫要长得多，这是我们从低密度 SMS（图 4(d)）中获得的结果。因此， $\Delta_{\text{eff}}(t_D)$ 的逐渐增加反映了平均场相互作用的建立过程，或者是电离的过程。

3.5. 延迟平均场相互作用对 SSO 的影响

SSO 是非平衡系统中的典型现象。在适当的实验参数下，可观测量的值可以表现出振荡，正如在原子腔系统 [40–42]、热里德堡原子气体 [21–24]、液晶 [43–45] 和

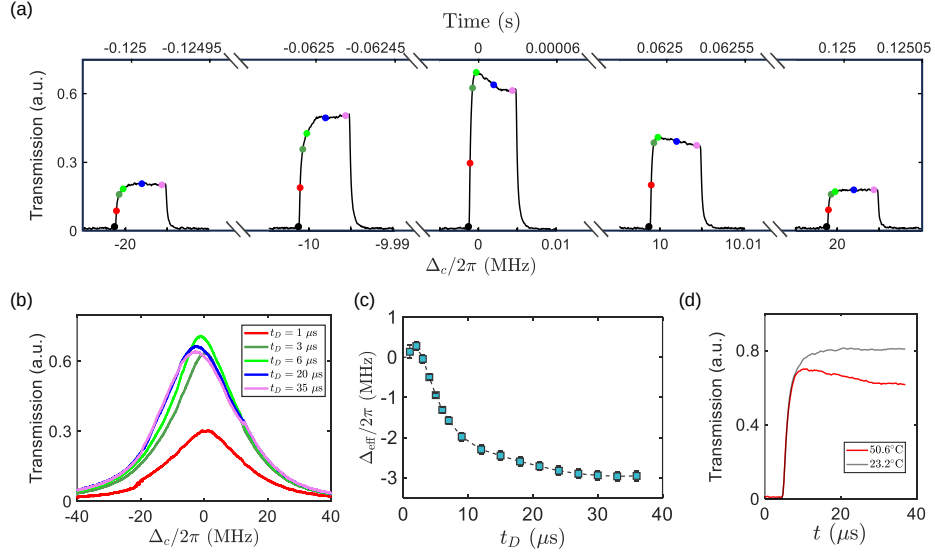


图 4. 平均场相互作用的动态构建。(a) SMS 采样示例。黑点标记不同的开启时间 $\{t(\Delta_c)\}$, 其他颜色的点是 $t(\Delta_c) + t_D = 1, 3, 6, 20, 35 \mu\text{s}$ 处的采样点。传输脉冲显示在约 $\Delta_c/2\pi = -20, -10, 0, 10, 20 \text{ MHz}$ 附近。其他参数为 $T_{\text{cell}} = 50.6^\circ\text{C}, \Omega_p/2\pi = 47.5 \text{ MHz}, \Omega_c/2\pi = 1.2 \text{ MHz}$ 。(b) 在 $t_D = 1, 3, 6, 20, 35 \mu\text{s}$ 秒时采样的 SMS 的全局视图。每条曲线的颜色与 (a) 中对应 t_D 的点的颜色相匹配。(c) 从 (b) 得出的频谱偏移 Δ_{eff} 。误差棒是 10 次重复的 SMS 实验的标准偏差。(d) 在高和低原子密度下探针传输的上升沿。在保持其他参数不变的情况下, 通过设置 $T_{\text{cell}} = 23.2^\circ\text{C}$ 获取低密度信号。由于光深度减少导致的信号增加, 使用了一个电压重缩放因子以便于比较。

许多其他系统 [46–50] 中所报道的。这种振荡表明非线性系统的极限环解, 并且有时与“时间晶体” [22, 29, 51] 相关联。我们指出, 讨论在第 3.3 节中的延迟相互作用可以作为提供延迟反馈并产生 SSO 的机制: 里德堡原子被电离成等离子体, 而等离子体的电场反过来影响里德堡激发, 形成了具有特定时间尺度的“反馈环路”。我们通过仔细调整激光的失谐和功率, 在图 5(a) 显示的尖锐边缘附近发现 SSO。振荡始于传输跃变, 并持续在一个范围内的 10 兆赫, 直到其幅度在 $\Delta_c/2\pi = 154$ 兆赫时逐渐下降。为了研究给定实验参数集下的动力学, 我们将失谐固定在 $\Delta_c/2\pi = 150$ 兆赫来分析时间波动和振荡传输 (图 5(b)), 以及相应的 FFT 幅度谱如图 5(c) 所示。振荡频率约为 12.5 千赫兹, 全宽半最大值线宽约 20 赫兹 (见插图), 显示出超稳定的振荡。这种振荡是自持续的, 并没有可观察到的衰减。我们注意到, 振荡周期与平均场相互作用的延迟时间在同一时间尺度上, 这进一步支持了 SSO 和电离过程之间的联系。

ρ_{33} 和 $\text{Im}(\rho_{21})$ 的数值模拟显示在图 5(d) 中。所使用的参数与实验参数相似, 只是显著较小的 Ω_p 是为了考虑红激光沿蒸气室传播时的衰减。考虑到两个激光频率

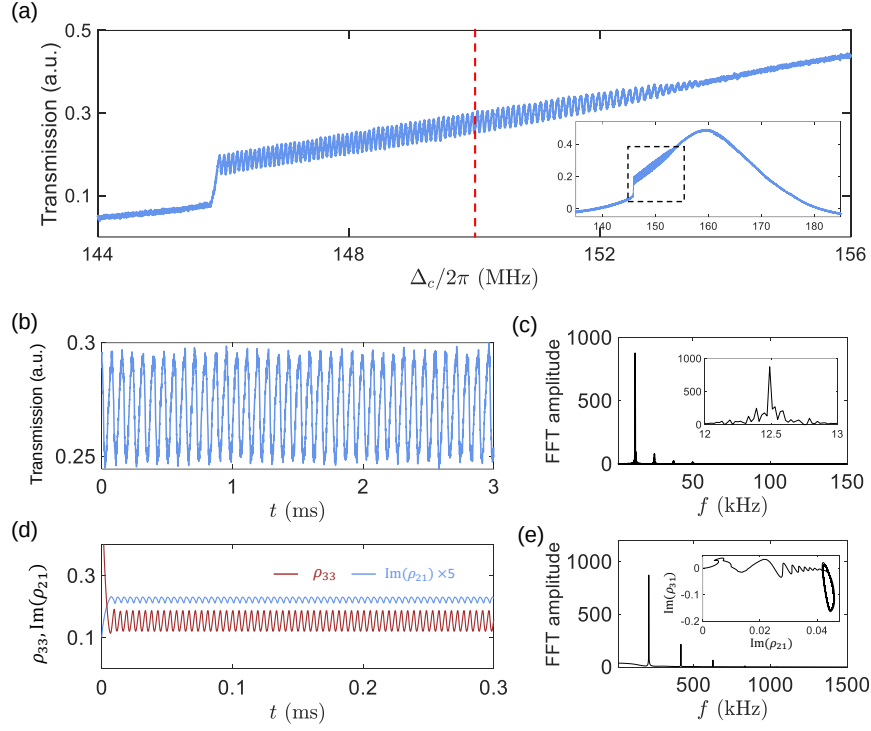


图 5. 延迟平均场相互作用和 SSO。(a) SSO 光谱的一部分，频率为 $\Omega_p/2\pi = 36.9$ 兆赫兹、 $\Omega_c/2\pi = 1.3$ 兆赫兹和 $\Delta_p/2\pi = -100$ 兆赫兹。插图是全局视图。(b) 在 $\Delta_c/2\pi = 150$ 兆赫兹处测量的时间依赖传输。(c) (b) 的频率谱，插图是 12.5 千赫兹附近的放大图。(d) 数值模拟时间演化中的 ρ_{33} 和 $\text{Im}(\rho_{21})$ ，其中 $\Omega_p/2\pi = 24$ 兆赫兹， $\Omega_c/2\pi = 1.2$ 兆赫兹， $\Delta_p/2\pi = -99$ 兆赫兹， $\Delta_c/2\pi = 163.8$ 兆赫兹， $v = 95$ 米/秒。(e) (d) 中 $\text{Im}(\rho_{21})$ 的谱。插图是坐标 $(\text{Im}(\rho_{21}), \text{Im}(\rho_{31}))$ 的轨迹。

偏移 $\Delta'_{p,c}(v) = \Delta_{p,c} + \vec{k}_{p,c} \cdot \vec{v}$ 中的一维多普勒频移，其中 $\vec{v}$ 为原子速度， $\vec{k}_{p,c}$ 为两个激光的波矢。模拟是在某一速度组的原子，其速度为 $v = 95$ 米/秒的情况下进行的，因此有效的双光子失谐 $\Delta'_p + \Delta'_c$ 足够小以形成里德堡态的人数，并产生显著的平均场。快速傅立叶变换幅度谱如图 5(e) 所示，在 208.9 kHz 及其谐波处显示出类似的窄峰。插图是坐标 $(\text{Im}(\rho_{21}), \text{Im}(\rho_{31}))$ 的轨迹，这是状态空间演化的二维投影。该轨迹从 (0,0) 开始，并最终被吸引到一个环上，证明了动态是一个极限环。振荡频率仍然比实验高一个数量级，但这一差距小于先前工作中模拟的结果 [21,23]。模拟的振荡频率与观测结果之间的剩余偏差主要归因于两个方面：首先，模拟仅包含一种速度的原子。当考虑不同速度组之间的耦合时，需要更大的计算资源，振荡将变得更慢。其次，激光沿气室传播的效果以及带电粒子扩散未被包括在内，这可能会引入额外的延迟机制。一个更完整的模型将在不久的将来进行追求。

4. 结论

总结来说,我们展示了通过电离在热里德伯原子集合中动态建立平均场相互作用。我们首先分析了相关的碰撞通道并解释了阈值效应,强调了 OB 光谱中的尖锐过渡是如何由不敏感于失谐的雪崩电离过程导致的。使用 SMS,我们观察到了平均场相互作用建立过程中的延迟,并描述了这种效应逐渐发展的特征。最后,我们呈现了一个高 Q SSO 信号并用电离模型来解释它。与在 ~ 10 ns 时间尺度 [25,52] 和高达 GHz 水平的拉比频率下主导动力学的偶极-偶极相互作用相比,等离子体效应为大多数非线性现象提供了更准确的解释。

然而,更定量的分析需要准确估计离子生成期间的碰撞散射截面,这对热原子系统提出了重大挑战。为了解决这一问题,我们正在积极探索各种观测技术,如荧光光谱、无线电频率传输光谱和使用内部电极的蒸气池直接测量离子信号,以全面表征并确定相关参数。初步结果表明离子信号相对于光学传输有所延迟,但此类研究的完整结果将在未来的出版物中呈现。我们的发现增强了对热里德伯原子气体非平衡动力学的理解,为许多体物理和非线性现象的研究提供了宝贵的见解。

资助. 此项工作得到量子科学与技术创新项目(编号 2023ZD0300900)、国家自然科学基金(编号 12027806)、山西省“1331 工程”资金和汉江国家实验室的支持。

致谢.

我们感谢魏一和余晨的富有成效的讨论。

披露. 作者声明没有利益冲突。

数据可用性声明. 本论文中呈现结果所依据的数据目前不公开提供,但可根据合理请求从作者处获取。

参考文献

1. C. Carr, R. Ritter, C. G. Wade, *et al.*, “Nonequilibrium Phase Transition in a Dilute Rydberg Ensemble,” *Phys. Rev. Lett.* **111**, 113901 (2013).
2. C. G. Wade, M. Marcuzzi, E. Levi, *et al.*, “A terahertz-driven non-equilibrium phase transition in a room temperature atomic vapour,” *Nat. Commun.* **9**, 3567 (2018).
3. D. Ding, H. Busche, B. Shi, *et al.*, “Phase Diagram and Self-Organizing Dynamics in a Thermal Ensemble of Strongly Interacting Rydberg Atoms,” *Phys. Rev. X* **10**, 021023 (2020).
4. D. Paredes-Barato and C. S. Adams, “All-Optical Quantum Information Processing Using Rydberg Gates,” *Phys. Rev. Lett.* **112**, 040501 (2013).
5. D. Tiarks, S. Schmidt-Eberle, T. Stolz, *et al.*, “A photon – photon quantum gate based on Rydberg interactions,” *Nat. Phys.* **15**, 124–126 (2019).
6. S. Shi, B. Xu, K. Zhang, *et al.*, “High-fidelity photonic quantum logic gate based on near-optimal Rydberg single-photon source,” *Nat. Commun.* **13**, 4454 (2022).
7. Y. Wang, J. Li, S. Zhang, *et al.*, “Efficient quantum memory for single-photon polarization qubits,” *Nat. Photonics* **13**, 346–351 (2019).
8. J. A. Sedlacek, A. Schwettmann, H. Kübler, *et al.*, “Microwave electrometry with Rydberg atoms in a vapour cell using bright atomic resonances,” *Nat. Phys.* **8** (2012).
9. M. Jing, Y. Hu, J. Ma, *et al.*, “Atomic superheterodyne receiver based on microwave-dressed Rydberg spectroscopy,” *Nat. Phys.* **16**, 911–915 (2020).

10. J. Yuan, W. Yang, M. Jing, *et al.*, “Quantum sensing of microwave electric fields based on Rydberg atoms,” *Reports on Prog. Phys.* **86**, 106001 (2023).
11. D. Li, Z. Bai, X. Zuo, *et al.*, “Room temperature single-photon terahertz detection with thermal Rydberg atoms,” *Appl. Phys. Rev.* **11**, 041420 (2024).
12. H. Busche, P. Huillery, S. W. Ball, *et al.*, “Contactless nonlinear optics mediated by long-range Rydberg interactions,” *Nat. Phys.* **13**, 655–658 (2017).
13. Q.-Y. Liang, A. V. Venkatramani, S. H. Cantu, *et al.*, “Observation of three-photon bound states in a quantum nonlinear medium,” *Science* **359**, 783–786 (2018).
14. M. Marcuzzi, E. Levi, S. Diehl, *et al.*, “Universal Nonequilibrium Properties of Dissipative Rydberg Gases,” *Phys. Rev. Lett.* **113**, 210401 (2014).
15. B. Kim, K.-T. Chen, S.-S. Hsiao, *et al.*, “A weakly-interacting many-body system of Rydberg polaritons based on electromagnetically induced transparency,” *Commun. Phys.* **4**, 101 (2021).
16. D. Ding, Z. Liu, B. Shi, *et al.*, “Enhanced metrology at the critical point of a many-body Rydberg atomic system,” *Nat. Phys.* **18**, 1447–1452 (2022).
17. J. Fan, H. Zhang, Y. Jiao, *et al.*, “Manipulation of single stored-photon with microwave field based on Rydberg polariton,” *Opt. Express* **31**, 20641 (2023).
18. S. K. Barik, S. B. S. M. V. Ramana, *et al.*, “Doppler-enhanced quantum magnetometry with thermal Rydberg atoms,” *New J. Phys.* **26**, 073036 (2024).
19. N. R. d. Melo, C. G. Wade, N. Šibalić, *et al.*, “Intrinsic optical bistability in a strongly driven Rydberg ensemble,” *Phys. Rev. A* **93**, 063863 (2016).
20. H. R. Hamed, M. Sahrai, H. Khoshima, and G. Juzeliūnas, “Optical bistability forming due to a Rydberg state,” *J. Opt. Soc. Am. B* **34**, 1923 (2017).
21. D. Ding, Z. Bai, Z. Liu, *et al.*, “Ergodicity breaking from Rydberg clusters in a driven-dissipative many-body system,” *Sci. Adv.* **10**, ead15893 (2024).
22. X. Wu, Z. Wang, F. Yang, *et al.*, “Dissipative time crystal in a strongly interacting Rydberg gas,” *Nat. Phys.* **20**, 1389–1394 (2024).
23. K. Wadenpfuhl and C. S. Adams, “Emergence of Synchronization in a Driven-Dissipative Hot Rydberg Vapor,” *Phys. Rev. Lett.* **131**, 143002 (2023).
24. Y. Jiao, W. Jiang, Y. Zhang, *et al.*, “Observation of time crystal comb in a driven-dissipative system,” *arXiv:2402.13112* (2024).
25. F. Ripka, H. Kübler, R. Löw, and T. Pfau, “A room-temperature single-photon source based on strongly interacting Rydberg atoms,” *Science* **362**, 446–449 (2018).
26. K.-D. Wu, C. Xie, C.-F. Li, *et al.*, “Nonlinearity-enhanced continuous microwave detection based on stochastic resonance,” *Sci. Adv.* **10**, eado8130 (2024).
27. D. Maxwell, D. J. Szwer, D. Paredes-Barato, *et al.*, “Storage and Control of Optical Photons Using Rydberg Polaritons,” *Phys. Rev. Lett.* **110**, 103001 (2013).
28. H. Yang, C. Fan, H. Zhang, *et al.*, “Controlled bistability of cold Rydberg excitation with Doppler broadening,” *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **52**, 055502 (2019).
29. W. Wang, M. Feng, Q. Ma, *et al.*, “Observation of Continuous Time Crystal in a Spin Maser System,” *arXiv:2406.15017* (2024).
30. G. Vitrant, J. M. Raimond, M. Gross, and S. Haroche, “Rydberg to plasma evolution in a dense gas of very excited atoms,” *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* **15**, L49 (1999).
31. D. Barredo, H. Kübler, R. Daschner, *et al.*, “Electrical Readout for Coherent Phenomena Involving Rydberg Atoms in Thermal Vapor Cells,” *Phys. Rev. Lett.* **110**, 123002 (2013).
32. D. Weller, A. Urvoy, A. Rico, *et al.*, “Charge-induced optical bistability in thermal Rydberg vapor,” *Phys. Rev. A* **94**, 063820 (2016).
33. D. Weller, J. P. Shaffer, T. Pfau, *et al.*, “Interplay between thermal Rydberg gases and plasmas,” *Phys. Rev. A* **99**, 043418 (2019).
34. N. Šibalić, J. Pritchard, C. Adams, and K. Weatherill, “ARC: An open-source library for calculating properties of alkali Rydberg atoms,” *Comput. Phys. Commun.* **220**, 319–331 (2017).
35. J. Holtsmark, “Über die Verbreiterung von Spektrallinien,” *Ann. der Physik* **363**, 577–630 (1919).

36. D. A. Anderson, G. Raithel, M. Simons, and C. L. Holloway, “Quantum-optical spectroscopy for plasma electric field measurements and diagnostics,” arXiv:1712.08717 (2017).
37. W. Li, P. J. Tanner, and T. F. Gallagher, “Dipole-Dipole Excitation and Ionization in an Ultracold Gas of Rydberg Atoms,” Phys. Rev. Lett. **94**, 173001 (2005).
38. M. P. Robinson, B. L. Tolra, M. W. Noel, *et al.*, “Spontaneous Evolution of Rydberg Atoms into an Ultracold Plasma,” Phys. Rev. Lett. **85**, 4466–4469 (2000).
39. M. Robert-de Saint-Vincent, C. S. Hofmann, H. Schempp, *et al.*, “Spontaneous Avalanche Ionization of a Strongly Blockaded Rydberg Gas,” Phys. Rev. Lett. **110**, 045004 (2013).
40. A. Lambrecht, E. Giacobino, and J. Courty, “Optical nonlinear dynamics with cold atoms in a cavity,” Opt. Commun. **115**, 199–206 (1995).
41. W. Yang, A. Joshi, and M. Xiao, “Controlling dynamic instability of three-level atoms inside an optical ring cavity,” Phys. Rev. A **70**, 033807 (2004).
42. P. Kongkhambut, J. Skulte, L. Mathey, *et al.*, “Observation of a continuous time crystal,” Science **377**, 670–673 (2022).
43. M.-M. Cheung, S. D. Durbin, and Y. R. Shen, “Optical bistability and self-oscillation of a nonlinear Fabry – Perot interferometer filled with a nematic-liquid-crystal film,” Opt. Lett. **8**, 39 (1983).
44. H. Zhang, J. Dai, P. Wang, *et al.*, “Bifurcations and chaotic behavior in liquid crystal hybrid optical bistable devices,” Acta Phys. Sin. **33**, 1024 (1984).
45. J.-W. Song, S.-Y. Shin, and Y.-S. Kwon, “Optical bistability, regenerative oscillation, and monostable pulse generation in a liquid crystal bistable optical device,” Appl. Opt. **23**, 1521 (1984).
46. K. Ikeda, “Multiple-valued stationary state and its instability of the transmitted light by a ring cavity system,” Opt. Commun. **30**, 257–261 (1979).
47. G. Labeyrie, F. Michaud, and R. Kaiser, “Self-Sustained Oscillations in a Large Magneto-Optical Trap,” Phys. Rev. Lett. **96**, 023003 (2006).
48. Y. Ma and K. Yoshikawa, “Self-sustained collective oscillation generated in an array of nonoscillatory cells,” Phys. Rev. E **79**, 046217 (2009).
49. C. Chen, D. H. Zanette, J. R. Guest, *et al.*, “Self-Sustained Micromechanical Oscillator with Linear Feedback,” Phys. Rev. Lett. **117**, 017203 (2016).
50. W. Liu, Y. Kang, M. Zhang, *et al.*, “Self-sustained oscillation and cavitation characteristics of a jet in a Helmholtz resonator,” Int. J. Heat Fluid Flow **68**, 158–172 (2017).
51. Y. Huang, T. Wang, H. Yin, *et al.*, “Observation of continuous time crystals and quasi-crystals in spin gases,” arXiv:2411.19561 (2024).
52. T. Baluktsian, B. Huber, R. Löw, and T. Pfau, “Evidence for Strong van der Waals Type Rydberg-Rydberg Interaction in a Thermal Vapor,” Phys. Rev. Lett. **110**, 123001 (2013).