
Optische Messungen der Struktur von Rydbergatomen und deren Lebensdauern

Dissertation

der Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät
der Eberhard Karls Universität Tübingen
zur Erlangung des Grades eines
Doktors der Naturwissenschaften
(Dr. rer. nat.)

vorgelegt von
Markus Mack
aus Sindelfingen

Tübingen
2015

Gedruckt mit Genehmigung der Mathematisch-Naturwissenschaftlichen
Fakultät der Eberhard Karls Universität Tübingen.

Tag der mündlichen Qualifikation: 12.04.2016

Dekan:	Prof. Dr. Wolfgang Rosenstiel
1. Berichterstatter:	Prof. Dr. József Fortágh
2. Berichterstatter:	Prof. Dr. Nils Schopohl

Inhaltsverzeichnis

Zusammenfassung	iii
Publikationsliste	v
1 Quanteninformation mit Rydbergatomen	1
2 Alkalimetall-Rydbergatome	5
2.1 Lebensdauern im thermischen Strahlungsfeld	5
2.2 Spektrum und Quantendefekt	8
2.3 Effektives Einelektronenpotential	12
3 Stark-Effekt	15
3.1 Berechnung und experimentelle Verifizierung	15
3.2 Elektrische Felder an Oberflächen	16
4 Detektion von Rydbergatomen	25
4.1 Kohärente optische Detektion	26
4.2 Experimentelle Bestimmung der Rydbergpopulation	27
5 Messung der Lebensdauern	31
5.1 Optische Lebensdauerermessung	32
5.2 Beobachtung von Lebensdauerverlängerung und -verkürzung	34
6 Fazit und Ausblick	39
Literatur	43
A Publikationen	49
Measurement of absolute transition frequencies of ^{87}Rb to nS and nD Rydberg states by means of electromagnetically induced transparency	51
Detrimental adsorbate fields in experiments with cold Rydberg gases near surfaces	59
Quasiclassical quantum defect theory and the spectrum of highly excited rubidium atoms	63
State-selective all-optical detection of Rydberg atoms	69
Measurement and numerical calculation of Rubidium Rydberg Stark spectra . . .	77
All-optical measurement of Rydberg-state lifetimes	85

Diese Arbeit wurde durch ein Stipendium im Rahmen des Nachwuchsförderprogramms der Carl Zeiss Stiftung gefördert.

Zusammenfassung

Im Rahmen der vorliegenden Dissertation wurden mit experimentellen und numerischen Methoden die Eigenschaften und Wechselwirkungen von Rydbergzuständen von Rubidiumatomen untersucht, insbesondere im Hinblick auf deren Anwendbarkeit in Protokollen der Quanteninformationsverarbeitung. Die Lebensdauern der Rydbergatome stellen dabei eine fundamentale Limitierung dar, wie gut Quantenzustände kontrolliert werden können. An zentraler Stelle in dieser Arbeit steht daher eine Methode zur Messung der Lebensdauern von Rydbergatomen, mit deren Hilfe unter anderem ein verringerter Einfluss der Schwarzkörperstrahlung in einer kryogen gekühlten Umgebung der Atome, sowie die Verkürzung der Lebensdauern durch wechselwirkungsinduzierte Kollisionen bestimmt werden konnte [6]. Die rein optische Methode basiert auf einer zeitaufgelösten Absorptionsmessung in Kombination mit einem zum jeweilig gewählten Rydbergzustand resonanten Laser, und erlaubt eine zustandsselektive Lebensdauermessung an ultrakalten Gasen. Außerdem wurde eine Methode basierend auf zeitaufgelöster elektromagnetisch induzierter Transparenz entwickelt und experimentell demonstriert, die speziell zur Messung der Population des Rydbergzustands, sowie der Kohärenz eines erzeugten Überlagerungszustands geeignet ist [4].

Eine möglichst genaue Kenntnis über die innere Struktur von Rydbergatomen ist für den Erfolg von Anwendungen und Experimenten in diesem Forschungsfeld entscheidend. Dazu wurden in Mack u. a. [1] die absoluten Energieniveaus von ^{87}Rb nS - und nD - Zuständen mit hoher Genauigkeit (≤ 1 MHz) gemessen und die Quantendefekte dieser Zustände berechnet, sowie die Bindungsenergie des Grundzustands dieses Isotops um zwei Größenordnungen genauer als zuvor bekannt bestimmt. Auf Basis der experimentellen Daten konnte eine verbesserte Beschreibung des bis dahin verwendeten Modellpotentials für das Valenzelektron von Rb-Atomen erzielt werden, das vor allem die Feinstrukturaufspaltung präziser vorher-sagen kann [3].

Mithilfe der Modellpotentiale und spektroskopisch gewonnenen Quantendefekte wurden Berechnungen der Verschiebungen und Aufspaltungen der Spektrallinien durch äußere elektrische Felder durchgeführt (Stark-Effekt), und experimentell in Bereichen deutlich höherer Zustände als bisher verifiziert [5]. Solche Stark-Verschiebungen stellen im Fall von durch Oberflächenadsorbate erzeugten Störfeldern eine bedeutende experimentelle Schwierigkeit für Systeme dar, in denen Rydbergatome z.B. mit einem koplanaren Resonator quantenmechanisch gekoppelt werden sollen. Eine experimentelle Quantifizierung dieses Störeinflusses mit Rydbergatomen in der Nähe einer Kupferoberfläche wurde in [2] durchgeführt.

Abstract

Utilizing experimental and numerical methods, properties and interactions of Rydberg states of rubidium atoms were studied, particularly with their applications in quantum information processing in mind. The lifetimes of the Rydberg states impose fundamental limits on the achievable fidelity of quantum operations involving Rydberg atoms. Therefore, the measurement of Rydberg state lifetimes was central to this work, including observation of lifetime increases due to reduced thermal radiation at lowered environment temperatures, as well as lifetime reduction due to interaction-induced ionizing collisions [6]. The measurements were conducted in an all-optical fashion by time-resolved monitoring of the atomic absorption signal combined with a laser resonant to the Rydberg transition, allowing for state-selective lifetime measurements in dilute clouds of ultracold atoms. Furthermore, a method based on time-resolved electromagnetically induced transparency was developed and experimentally demonstrated, which allows for Rydberg atom detection as well as, in principle, detection of coherent superpositions [4].

Detailed knowledge about the inner structure of Rydberg atoms is essential for their successful application in quantum experiments. In this work, absolute energies of ^{87}Rb nS and nD states were determined with high accuracy (≤ 1 MHz), providing their quantum defects and the binding energy of the ground state of this isotope with an accuracy improved by two orders of magnitude [1]. Based on the experimental values for the energy levels, the theoretical description of the effective potential for the valence electron of Rubidium could be improved over previous models, with particularly significant improvements regarding the values for fine structure splitting [3].

Using model potentials and the spectroscopically obtained values for the quantum defects, shifts and splittings of the spectral lines by electric fields were calculated (Stark effect), and experimentally verified in ranges of higher n quantum numbers compared to previously published measurements [5]. Such Stark shifts pose a serious challenge for experiments that aim to quantum mechanically couple Rydberg atoms with coplanar resonators, as the shifts are caused by surface adsorbates on the resonator chip and can vary in space and time. An experimental quantification of their detrimental effect was conducted in [2] with Rydberg atoms near a copper surface.

Publikationsliste

Diese Dissertation ist eine Zusammenfassung wissenschaftlicher Veröffentlichungen (kumulativ). Die Veröffentlichungen, wie im Folgenden aufgeführt, sind in Anhang A vollständig und unverändert aufgeführt.

Veröffentlichte Manuskripte

Publikation [1]

Measurement of absolute transition frequencies of ^{87}Rb to nS and nD Rydberg states by means of electromagnetically induced transparency

M. Mack, F. Karlewski, H. Hattermann, S. Höckh, F. Jessen, D. Cano, and J. Fortágh
Physical Review A **83**, 052515 (2011).

Publikation [2]

Detrimental adsorbate fields in experiments with cold Rydberg gases near surfaces

H. Hattermann, **M. Mack**, F. Karlewski, F. Jessen, D. Cano, and J. Fortágh
Physical Review A **86**, 022511 (2012).

Publikation [3]

Quasiclassical quantum defect theory and the spectrum of highly excited rubidium atoms

A. Sanayei and N. Schopohl,
J. Grimm, **M. Mack**, F. Karlewski, and J. Fortágh
Physical Review A **91**, 032509 (2015).

Publikation [4]

State-selective all-optical detection of Rydberg atoms

F. Karlewski, **M. Mack**, J. Grimm, N. Sándor, and J. Fortágh
Physical Review A **91**, 043422 (2015).

Publikation [5]

Measurement and numerical calculation of Rubidium Rydberg Stark spectra

J. Grimm, **M. Mack**, F. Karlewski, F. Jessen, M. Reinschmidt, N. Sándor, and J. Fortágh
New Journal of Physics **17**, 053005 (2015).

Publikation [6]

All-optical measurement of Rydberg-state lifetimes

M. Mack, J. Grimm, F. Karlewski, L. Sárkány, H. Hattermann and J. Fortágh
Physical Review A **92**, 012517 (2015).

Eigenanteil

Die Veröffentlichungen und die ihnen zugrundeliegende Arbeiten wurden von mir zusammen mit den jeweils angegebenen Co-Autoren erstellt bzw. durchgeführt. Meine jeweils eigenen Anteile waren:

Publikation [1]

Hauptanteil an der Konzeption und dem Aufbau des Experiments, Hauptanteil und -verantwortung an der Durchführung der Messungen, Durchführung der Datenanalyse, Erstellung des Manuskripts.

Publikation [2]

Beteiligung an der Konzeption und Durchführung der Messungen, sowie bei der Datenanalyse. Hauptanteil bei der für die Datenauswertung notwendigen Berechnungen der Linienverschiebungen durch den Stark-Effekt.

Publikation [3]

Beteiligung an Diskussionen des Konzepts, Zusammenstellung von experimentellen Daten, sowie redaktionelle Unterstützung bei der Anfertigung des Manuskripts.

Publikation [4]

Maßgebliche Beteiligung an der Konzeption und dem Aufbau des experimentellen Setups zur Erzeugung ultrakalter Gase sowie des Lasersystems zur Anregung und Detektion von Rydbergatomen. Beteiligung an der Durchführung des Experiments, der Datenanalyse und den numerischen Simulationen.

Publikation [5]

Beteiligung an der Konzeption und dem Aufbau des Experiments, der Durchführung der Messungen, der Datenanalyse und den numerischen Simulationen.

Publikation [6]

Eigenverantwortliche Konzeption und Aufbau des Experiments, Durchführung der Messungen und Datenanalyse, Erstellung des Manuskripts.

1 Quanteninformation mit Rydbergatomen

Bereits in den frühen 1980er-Jahren entwickelte Richard Feynman die Vorstellung, quantenmechanische Prozesse nicht wie bis heute üblich mithilfe von „klassischen“ Computern zu berechnen, sondern mit sich ebenfalls quantenmechanisch verhaltenden Systemen zu simulieren [7]. Inzwischen wird davon ausgegangen, dass sich mit einem solchen Quantencomputer prinzipiell auch klassische Aufgabenstellungen, wie z.B. die Primfaktorzerlegung großer Zahlen [8], effizient, und damit in vielen Fällen in der Praxis überhaupt erst, berechnen lassen [9]. Nach wie vor ist allerdings offen, auf Grundlage welches physikalischen Systems eine Implementierung gelingen kann. Voraussetzung sind unter anderem die Initialisierung eines definierten Quantenzustands, universelle Quantengatter zur gezielten Zustandsmanipulation und -verschränkung mit hinreichend langen Kohärenzzeiten, sowie das Auslesen des erzeugten Zustands [10]. Als Realisierungsmöglichkeiten wurden bisher z.B. Kernspins [11, 12], Quantenpunkte [13, 14], Ladungs- oder Fluss-Qubits [15–17], aber auch direkt durch lineare Optik manipulierte Photonen [18] untersucht. Einer der am weitesten fortgeschrittenen Ansätze basiert aktuell auf der kohärenten Präparation und Manipulation von lasergekühlten gefangenen Ionen [19], wofür David Wineland 2012 den Physik-Nobelpreis erhielt [20]. Diesen Nobelpreis teilte er mit Serge Haroche [21], der fundamentale Experimente zur quantenmechanischen Wechselwirkung von Atomen mit Licht durchführte, indem er Photonen in einem Hohlraumresonator durch die Wechselwirkung mit einem Übergang zwischen zirkularen Zuständen von Rydbergatomen mit diesen verschränkte und Quantenoperationen durchführte [22].

Da sich auch neutrale Atome kühlen und fangen lassen, sowie reversibel in Rydbergzustände anregen lassen, um so ähnlich stark wie Ionen miteinander wechselwirken zu können, wurden Anfang des Jahrtausends Möglichkeiten für ihre Anwendung als Bausteine der Quanteninformationsverarbeitung vorgeschlagen [23]. Eine große Rolle spielt dabei der Mechanismus der sog. Dipolblockade [24, 25], der aufgrund der Dipol-Dipol-Wechselwirkung nach der Anregung eines Rydbergatoms durch Verschiebungen der Rydbergniveaus verhindert, dass weitere Atome innerhalb eines bestimmten Blockaderadius angeregt werden können. Dieser Mechanismus erlaubt es, Rydbergatome als quantenmechanischer Schalter als Grundbaustein eines Quantencomputers zu nutzen. Mit zwei jeweils einzeln gefangenen Rydbergatomen, die in einen definierten Abstand gebracht wurden konnte die Funktion von darauf basierenden Quantengattern bereits experimentell gezeigt werden [26, 27]. Durch den

Blockade-Mechanismus lassen sich aber auch ganze Ensembles von Atomen in einen quantenmechanisch definierten Zustand mit im Idealfall exakt einer Rydberganregung bringen [28, 29], und somit Quantengatter realisieren [30], die gegenüber dem Verlust einzelner Atome unempfindlich sind und auch eine Verstärkung der Wechselwirkungen ermöglichen [24, 31].

Weiterhin sind für eine praktische Anwendbarkeit die Skalierbarkeit des Systems sowie die Möglichkeit, Quanteninformation über längere Zeiträume zu speichern, essentiell, wobei bisher keine einzelne der oben genannten Realisierungsmöglichkeiten alle Kriterien erfüllen kann. Insbesondere der rein auf gefangenen Ionen basierende Ansatz lässt sich ohne Weiteres nicht beliebig weit skalieren, da in der Regel alle Ionen miteinander wechselwirken. Aufgrund solcher Schwierigkeiten rücken aktuell Möglichkeiten in den Fokus, mehrere Systeme zu kombinieren. Während sich neutrale Atome aufgrund der kontrollierbaren Umgebungseinflüsse besonders gut als „Langzeit“-Speicher auf Zeitskalen von Millisekunden eignen, sind z.B. festkörperbasierte Realisierungsmöglichkeiten auf Grundlage von supraleitenden Qubits bestens skalierbar und erlauben schnelle Rechenoperationen auf Nanosekunden-Zeitskalen. Photonische Qubits wiederum eignen sich besonders zur Übertragung von Quanteninformation über große Distanzen. Ein hybrides System, in dem, ähnlich den Experimenten von Haroche, die Atome in Rydbergzustände gebracht werden und mit einem Mikrowellenresonator gekoppelt werden, die wiederum an ebenso in demselben Mikrowellenbereich operierenden Festkörper-Qubits koppeln, könnte die Vorteile dieser Systeme vereinen [32–34]. Besonders naheliegend ist dafür die Kombination aktueller Techniken der Präparation von atomaren Ensembles mithilfe von Atomchips [35], mit bei supraleitenden Chips langen Kohärenzzeiten der Atome im Sekundenbereich [36], und Kopplung der Atome an supraleitende Streifenleiter-Resonatoren über Rydbergniveaus der Atome [37].

Durch ihre starken, vielfältigen Wechselwirkungen und ihre experimentell günstigen Übergangsfrequenzen im Mikrowellenbereich könnten sich Rydbergatome also als das bislang fehlende Puzzleteil zur Konstruktion eines hybriden Quantensystems herausstellen. Um diese Rolle erfüllen zu können, dürfen allerdings die Rydbergzustände selbst die Kohärenz des Gesamtsystems nicht zu sehr beeinträchtigen. So ist die Präzision, mit der Quantenoperationen mit Rydbergniveaus durchgeführt werden können, im Allgemeinen durch deren natürlichen Zerfall, also deren Lebensdauern, limitiert [24]. Zusätzlich zum natürlichen Zerfall findet durch die thermische Strahlung, die bei Raumtemperatur bei den relevanten Mikrowellen-Wellenlängen nicht vernachlässigbar ist, eine Verkürzung der Rydberg-Lebensdauern statt [38]. Daneben müssen auch die starken Wechselwirkungen wie die Dipol-Dipol-Wechselwirkung, aber auch der Einfluss statischer elektrischer Felder, quantifiziert werden, um letztendlich eine hinreichend gute Kontrolle über das System zu erreichen und dessen Vorteile ausnutzen zu können. Das Ziel dieser Arbeit war von daher, unter anderem mithilfe moderner Lasertechnik möglichst genaue Charakterisierungen dieser Einflüsse, einschließlich aller relevanten zugrundeliegenden physikalischen Eigenschaften der Rydbergatome wie deren Energieniveaus und ihrer Kopplungsstärken, durchzuführen sowie Metho-

den zu entwickeln, solche Charakterisierungen an den oben genannten hybriden Systemen in Zukunft durchführbar zu machen.

2 Alkalimetall-Rydbergatome

In vielen Experimenten mit Rydbergatomen werden Atome von Alkalimetallen wie Rubidium eingesetzt, da deren Spektrum eine relativ einfache Kühlung mit aktuellen Lasersystemen erlaubt und so quantenmechanische Prozesse auf Zeitskalen im Mikrosekunden-Bereich und länger beobachtet bzw. kontrolliert angewendet werden können. Die komplexe innere Struktur der Atomkerne verhindert allerdings die exakte analytische Lösung der Schrödingergleichung für Alkali-Atome, so dass zwar viele qualitative Eigenschaften wasserstoffähnlich sind, aber eine quantitative Berechnung in der Regel nicht mit derzeitigen Mitteln (also ohne den oben angesprochenen Quantensimulator) möglich ist. In der Praxis bedeutet das, dass auf Grundlage der (exakten) quantenmechanischen Formeln Näherungen entwickelt, und ihre Gültigkeitsbereiche wiederum im Vergleich mit experimentellen Daten verifiziert werden müssen. Dies gilt insbesondere auch für die im Fokus dieser Arbeit stehenden Lebensdauern von Rubidium-Rydbergatomen, so dass zunächst ein Überblick darüber gegeben werden soll, wie diese prinzipiell berechenbar sind, sowie welche Eigenschaften der Atome als Voraussetzung dafür quantifiziert werden müssen.

2.1 Lebensdauern im thermischen Strahlungsfeld

Die Lebensdauer eines angeregten atomaren Zustands $|i\rangle$, in Abwesenheit von äußeren Einflüssen, wird durch die möglichen Kanäle für spontane Emission in energetisch tieferliegende Zustände $|j\rangle$ bestimmt [38]. Die jeweiligen Emissionsraten für Photonen mit Energie $\hbar\omega_{i,j}$ werden in elektrischer Dipolnäherung durch die Einsteinkoeffizienten beschrieben (die Zustände $|i\rangle$, $|j\rangle$ seien in der hier gewählten Notation energetisch aufsteigend sortiert),

$$\Gamma_{i,j,\text{sp}} = \begin{cases} A_{i,j} = \frac{\omega_{i,j}^3}{3\pi\epsilon_0\hbar c^3} |\vec{d}_{i,j}|^2 & i < j \\ 0 & i \geq j \end{cases} \quad (2.1)$$

mit den Übergangsfrequenzen $\omega_{i,j}$ zwischen den Zuständen und den Dipolmatrixelementen $\vec{d}_{i,j}$. Aus der Summe der Raten in alle möglichen Ziel-Zustände lässt sich damit die Lebensdauer τ des Zustands $|i\rangle$ berechnen:

$$\tau_{i,\text{sp}} = \frac{1}{\sum_j \Gamma_{i,j,\text{sp}}} \quad (2.2)$$

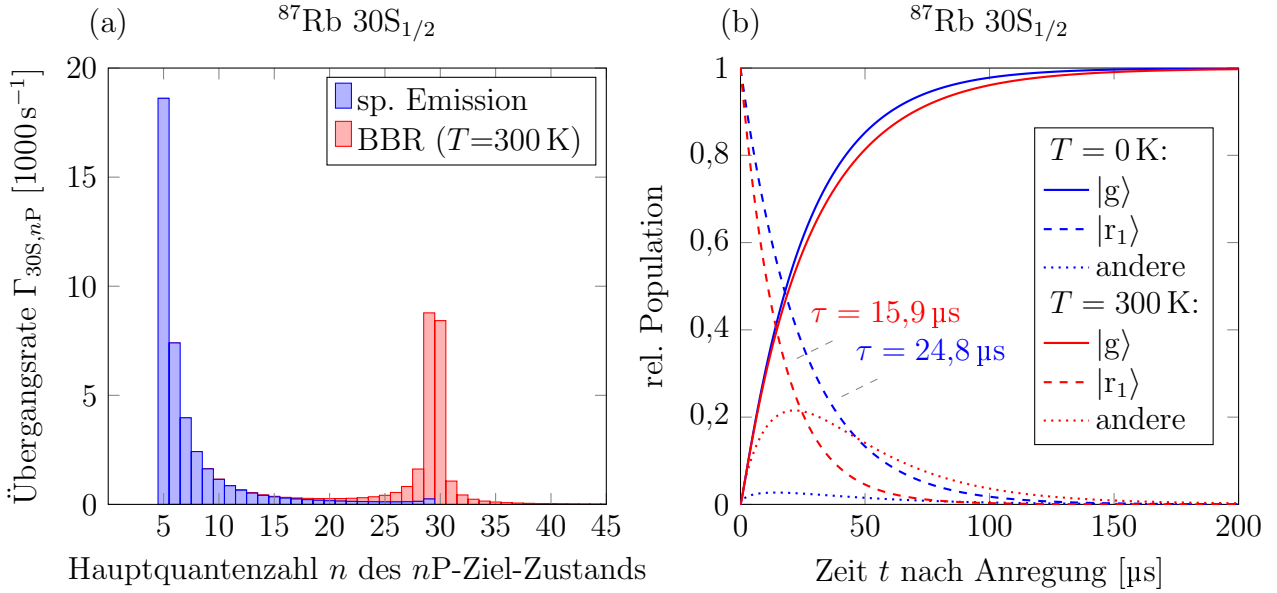


Abbildung 2.1: (a): Berechnete Übergangsraten $\Gamma_{30S_{1/2}, nP}$ aus Gl. 2.6 für alle spontanen (blaue Balken) und durch Schwarzkörperstrahlung (BBR) bei einer Umgebungstemperatur von $T = 300$ K getriebenen Übergänge (rote Balken) aus dem $|30S_{1/2}\rangle$ -Zustand eines ^{87}Rb -Atoms in die dipol-erlaubten nP -Zustände (jeweils summiert über beide Feinstrukturkomponenten $nP_{1/2}$ und $nP_{3/2}$ und mit isotroper Abstrahlung in alle Raumrichtungen). (b): Lösung des Ratengleichungssystems aus Gl. 2.7 für ein ^{87}Rb -Atom, das zum Zeitpunkt $t = 0$ in den $|r_1\rangle = |30S_{1/2}\rangle$ -Zustand angeregt wurde ($p_{r_1} = 1$), bei Umgebungstemperaturen von $T = 0$ K (blaue Linien) und $T = 300$ K (rote Linien). Die zeitabhängigen Populationen $p_i(t)$ sind für den Grundzustand $|g\rangle$, den Rydbergzustand $|r_1\rangle$ sowie die Summe aller weiteren Zustände („andere“, $\sum_{i \neq g, r_1} p_i(t)$) getrennt dargestellt. Die Population des Rydbergzustands folgt in guter Näherung einem exponentiellen Zerfall mit einem Zerfallparameter τ , welcher der Lebensdauer des Zustands entspricht und nach Gl. 2.6 berechnet werden kann.

Durch die kubische Abhängigkeit von den Übergangsfrequenzen $\omega_{i,j}$ haben dabei für einen gegebenen Startzustand $|i\rangle$ im Allgemeinen die Übergänge zu den niedrigsten Zuständen den größten Einfluss auf die Lebensdauer (dargestellt in Abb. 2.1 (a), „sp. Emission“, für den Zustand $30S_{1/2}$ von ^{87}Rb).

Um die Dipolmatrixelemente $\vec{d}_{i,j}$ zu bestimmen, müssen aus den Wellenfunktionen ψ der jeweiligen Zustände Überlappintegrale berechnet werden:

$$\vec{d}_{i,j} = \langle j | e\vec{r} | i \rangle = e \int_{\mathbb{R}^3} \psi_j^* \vec{r} \psi_i d^3r, \quad (2.3)$$

e ist dabei die Elektronenladung.

Zusätzlich zur spontanen Emission finden in jedem realen System auch durch thermische Photonen getriebene Übergänge statt (Schwarzkörperstrahlung, engl. blackbody radiation, kurz BBR), die im Gegensatz zur spontanen Emission auch in energetisch höher liegende Zustände stattfinden. Im Fall des idealen schwarzen Strahlers mit einer Temperatur T lässt

sich aus der Planck-Verteilung die mittlere Photonen-Besetzungszahl \bar{n} bei einer gegebenen Übergangsfrequenz ω bestimmen,

$$\bar{n}_\omega = \frac{1}{e^{\frac{\hbar\omega}{kT}} - 1}. \quad (2.4)$$

Hieraus ist ersichtlich, dass der Effekt der Schwarzkörperstrahlung genau dann relevant wird, wenn die thermische Energie kT vergleichbar oder größer als die Energie $\hbar\omega$ des Übergangs wird. Für z.B. den Rubidium-Übergang von 30S nach 29P ($\omega \approx 2\pi \cdot 180$ GHz) sind diese Energien bei einer Umgebungstemperatur von ca. 9 K identisch, d.h. diese müsste nochmals deutlich tiefer abgekühlt werden, um eine signifikante Unterdrückung der durch Schwarzkörperstrahlung induzierten Übergänge zu erreichen. Die Raten der durch Schwarzkörperstrahlung stimulierten Übergänge ergeben sich durch Multiplikation mit den Einsteinkoeffizienten der spontanen Emission:

$$\Gamma_{i,j,\text{BBR}} = \bar{n}_{\omega_{i,j}} A_{i,j}. \quad (2.5)$$

Für die Gesamtlebensdauer müssen diese Raten wieder summiert und zu denen der spontanen Emission addiert werden:

$$\tau_i = \frac{1}{\sum_j \Gamma_{i,j}}, \quad \text{mit } \Gamma_{i,j} = \Gamma_{i,j,\text{sp}} + \Gamma_{i,j,\text{BBR}}. \quad (2.6)$$

Für zunehmend hohe n -Quantenzahlen wird dabei die Verkürzung der Lebensdauer durch die Schwarzkörperstrahlung im Vergleich zum spontan emittierten Anteil immer relevanter, von den Rubidium- nS -Zuständen haben bei Raumtemperatur beide Raten für $n = 47$ in Summe in etwa denselben Anteil. Prinzipiell finden durch die invers exponentiell von der Übergangsfrequenz abhängigen Schwarzkörperstrahlung bei Temperaturen von $T \leq 300$ K in erster Linie Übergänge in direkt energetisch benachbarte Zustände statt (siehe Abb. 2.1 (a), „BBR“), sofern diese aufgrund der optischen Auswahlregeln möglich sind.

Mit den Raten aus Gl. 2.1 und 2.5 lässt sich ein Ratengleichungssystem aufstellen,

$$\dot{p}_i(t) = - \sum_j \Gamma_{i,j} p_i + \sum_j \Gamma_{j,i} p_j, \quad (2.7)$$

dessen Lösung den zeitlichen Verlauf der Populationen p_i aller Zustände wiedergibt (siehe Abb. 2.1 (b) für den Zustand $30S_{1/2}$ von ^{87}Rb). Die Zerfallskonstante des exponentiellen Zerfalls der Rydbergpopulation p_{r_1} ist dabei näherungsweise identisch mit der in Gl. 2.6 bestimmten Lebensdauer, bis auf Unterschiede aufgrund einer durch mehrfach-Übergänge stattfindenden Wiederbesetzung des $|r_1\rangle$ -Zustands, die Abweichungen im Prozentbereich verursacht und im Vergleich zu anderen Fehlerquellen (vor allem der Überlappintegrale zu den niedrig angeregten Zuständen) in der Regel vernachlässigbar ist. Neben der Population des ursprünglich angeregten Zustands ist auch die Lösung der Population des Grundzu-

stands interessant: Da durch Schwarzkörperstrahlung auch Zustände besetzt werden, die eine längere Lebensdauer als der ursprünglich angeregte Rydbergzustand besitzen, findet die asymptotisch vollständige Besetzung des Grundzustands auf einer längeren Zeitskala als das Entvölkern des Rydbergzustands statt.

Die möglichst genaue quantitative Bestimmung und experimentelle Verifizierung der für diese Berechnungen notwendigen Quantendefekte, Wellenfunktionen und Dipolmatrixelemente war eine zentrale Aufgabenstellung dieser Arbeit und wird in den nachfolgenden Kapiteln detailliert dargestellt.

2.2 Spektrum und Quantendefekt

Das Spektrum der angeregten Zustände von Alkalimetall-Atomen ist grundsätzlich wasserstoffähnlich und lässt sich durch

$$E_{n,l,j} = -\frac{\mathcal{R}}{(n - \delta_{n,l,j})^2} \quad (2.8)$$

beschreiben, mit der (isotopenabhängigen) Rydbergkonstante \mathcal{R} [38]. Der sogenannte Quantendefekt $\delta_{n,l,j}$ beschreibt dabei die Abweichung vom Wasserstoffspektrum, welche für niedrige Drehimpulsquantenzahlen $l \leq 4$ relevant und leicht vom jeweiligen Feinstruktur-Zustand j abhängig ist. Eine Berücksichtigung der Hyperfeinstruktur (HFS) ist in vielen Fällen nicht notwendig, da, abgesehen von nS -Zuständen mit $n \lesssim 30$ in der Regel die spektroskopische Genauigkeit nicht ausreichend ist um diese aufzulösen. Messungen der HFS für solche Zustände wurden z.B. in [39, 40] durchgeführt. In dieser Arbeit wurden die jeweiligen Feinstruktur-„Schwerpunkts“-Energien ohne HFS verwendet (siehe [1]). Die Abhängigkeit von $\delta_{n,l,j}$ von der Hauptquantenzahl n lässt sich durch sog. modifizierte Rydberg-Ritz-Parameter näherungsweise als

$$\delta_{n,l,j} = \delta_0 + \frac{\delta_2}{(n - \delta_0)^2} + \frac{\delta_4}{(n - \delta_0)^4} + \dots \quad (2.9)$$

darstellen, wobei im Fall von Rubidium die Terme mit δ_0 und δ_2 (jeweils zu Bestimmen für gegebenes l und j) für $n \gtrsim 20$ bereits ausreichend sind, um die spektroskopisch erreichte Genauigkeit wiederzugeben. Anschaulich lässt sich das Auftreten des Quantendefekts dadurch erklären, dass das Valenzelektron eine endliche Aufenthaltswahrscheinlichkeit im Inneren des ionischen Atomrumpfs besitzt, dort allerdings die positive Ladung des Kerns nicht mehr vollständig abgeschirmt ist und das Valenzelektron somit ein tieferes Potential bzw. eine stärkere Bindung erfährt. Eine exakte Berechnung des Quantendefekts würde das Lösen des Vielteilchen-Systems voraussetzen, im Fall von ^{87}Rb mit 37 Elektronen, 37 Protonen und 50 Neutronen ist dies allerdings mit derzeitigen Methoden keine lösbare Aufgabe. Die Quantendefekte, bzw. deren Rydberg-Ritz-Parameter (Gl. 2.9), müssen von daher für jedes Isotop und alle Kombinationen von Drehimpulsquantenzahlen spektroskopisch be-

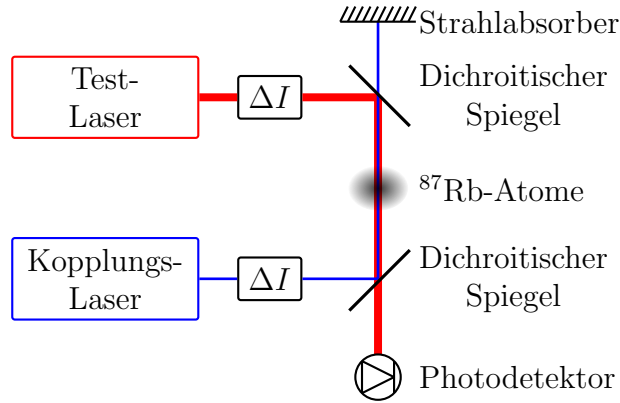


Abbildung 2.2: Experimentelle Anordnung zur Anregung und Detektion von Rydbergatomen bzw. deren Spektrallinien, wie sie in dieser Arbeit verwendet wurde. Der Testlaser (Toptica DL Pro) mit ca. 780 nm Wellenlänge (rot dargestellt) wird durch Atome des Isotops ^{87}Rb entsprechend den experimentellen Rahmenbedingungen absorbiert und das Absorptionssignal mit einem Photodetektor gemessen. Die Anregung in Rydbergniveaus bzw. deren Nachweis findet mithilfe des Kopplungslasers (Toptica TA SHG Pro, 960 nm, frequenzverdoppelt zu 480 nm, blau dargestellt) statt, der das Absorptionssignal des Testlasers modifiziert. Die Intensitäten beider Laser sind mithilfe von Intensitätsmodulatoren (ΔI) veränderbar, bevor sie auf die Atome treffen. Die Experimente aus den Veröffentlichungen [1, 5] fanden dabei an Rubidium-Dampfzellen statt, wobei Intensitätsmodulationen des Kopplungslasers mit einem Chopper-Rad bzw. einem akustooptischen Modulator (AOM) eingesetzt wurden, um mithilfe von Lock-In-Techniken die Signalqualität des Photodiodensignals zu verbessern. Alle weiteren Experimente wurden, wie in den jeweiligen Kapiteln beschrieben, mit kalten Atomen durchgeführt, wobei mithilfe von AOMs als Intensitätsmodulatoren beide Laser definierte Pulsfolgen ausführen konnten. In diesen Experimenten wurde der Kopplungslaser auf die Atomwolke bzw. einen Ausschnitt davon in der Größenordnung einiger 100 μm fokussiert. Mit dem Teststrahl wurden mithilfe einer Abbildungsoptik vor dem Photodetektor die sich im Fokus befindlichen Atome auf den Photodetektor abgebildet. (basierend auf Fig. 5 in Karlewski u. a. [4]).

stimmt werden. Die höchste Genauigkeit bei der Messung von Rubidium-Quantendefekten wurde dabei bisher mithilfe von Mikrowellenspektroskopie erreicht [39]. Damit konnten die Energiedifferenzen zwischen naheliegenden Rydbergniveaus von ^{85}Rb mit Genauigkeiten im Bereich von 10 kHz, nicht jedoch deren absolute Energien im Bezug auf den Grundzustand gemessen werden.

Ein Ziel dieser Arbeit war die Bestimmung der absoluten Energien und Quantendefekte der Rydbergniveaus des häufig verwendeten Rubidium-Isotops ^{87}Rb . Dazu wurde eine optische Messmethode auf Basis von elektromagnetisch induzierter Transparenz (EIT) gewählt [41], deren Anwendbarkeit zur Detektion von Rydberg-Spektrallinien vor wenigen Jahren demonstriert wurde [42]. Prinzipiell handelt es sich dabei um eine Erweiterung der Absorptionsspektroskopie, wobei ein *Testlaser* wie in Abb. 2.2 dargestellt durch die Probe mit, in dieser Arbeit, Rubidium-Atomen gelenkt und die verbleibende Intensität mit einem Photodetektor gemessen wird.

Wird die Frequenz dieses Testlasers über den atomaren Übergang zwischen einem Grundzustand $|g\rangle$ (hier $^{87}\text{Rb } 5S_{1/2}(F=2)$) und angeregten Zustand $|e\rangle$ ($5P_{3/2}(F=3)$) gestimmt, ergibt sich für unbewegte Atome das Absorptionsprofil in Abb. 2.3 (b) (rot). EIT tritt nun auf, wenn zusätzlich zeitgleich ein *Kopplungslaser* eingestrahlt wird, der einen der beiden Zustände ($|e\rangle$) an einen dritten Zustand koppelt – hier ein Rydbergniveau $|r_1\rangle$ in einem nS oder nD -Zustand (siehe Termschema in Abb. 2.3 (a)). Ist dieser Kopplungslaser resonant zum Übergang, entsteht in der Mitte des Absorptionsprofils ein Transparenzfenster, das mit zunehmender Intensität des Kopplungslasers eine Aufspaltung in zwei im Frequenzraum zunehmend getrennte Absorptionslinien bewirkt (Autler-Townes splitting). Für die Bestimmung von Rydberg-Energieniveaus war es zweckmäßig statt der Frequenz des Testlasers die des Kopplungslasers zu verstimmen, während der Testlaser stets exakt auf Resonanz gehalten, d.h. im Normalfall maximal absorbiert wird. Jede Verringerung der Absorption des Testlasers aufgrund einer Verstimmung des Kopplungslasers kann so als Existenz eines Rydbergniveaus interpretiert werden, und bei bekannten Laserfrequenzen auf dessen Energie geschlossen werden. Die minimal erreichbare Breite des Transparenzfensters ist durch die Lebensdauer von $|r_1\rangle$, die Dekohärenzraten γ_i im System, die u.a. durch Laser-Phasenrauschen verursacht werden können, sowie die Laserintensitäten limitiert, bzw. genauer den daraus resultierenden Rabifrequenzen Ω_p und Ω_c (wobei der Index „p“ für den Testlaser, engl. *probe*, und „c“ für den Kopplungslaser, engl. *coupling* steht). Das EIT-Messschema ist auch mit bewegten Atomen, wie sie in einer Rubidium-Dampfzelle bei Raumtemperatur vorliegen, einsetzbar, mit resultierenden Linienbreiten die bei gegenläufiger Einstrahlung beider Laser im Idealfall kleiner sind als die des $|g\rangle$ - $|e\rangle$ -Übergangs mit $\Gamma_{e,g} \approx 2\pi \cdot 6 \text{ MHz}$ [42].

Um die Energieniveaus der Rydbergzustände optisch messen zu können, wurde für die verwendeten Laser eine absolute Frequenzreferenz benötigt. Dazu bot sich die Verwendung eines Frequenzkamms an (Physik-Nobelpreis 2005 für Theodor Hänsch [43], der diesen zusammen mit Roy Glauber und John Hall erhielt), der die Übertragung von hochgenauen Radiofrequenzen in den optischen Bereich und zurück ermöglicht. Die Kombination beider Techniken erlaubte es nun, durch Abtasten großer Frequenzbereiche zunächst nach EIT-Resonanzen zu suchen, und für jede gefundene Resonanz mithilfe des Frequenzkamms die Frequenz zu bestimmen. Die erreichte absolute Genauigkeit war dabei besser als 1 MHz für jeden individuell gemessenen Zustand. Aus der Vielzahl der gemessenen Zustände ($n = 19$ bis 65 für nS -Zustände, nD -Zustände im Bereich $n = 19$ bis 57) konnten daraus die Parameter für die Quantendefekte nach Gl. 2.9 für ^{87}Rb mit einer vergleichbaren Genauigkeit wie beim ^{85}Rb -Isotop in Li u. a. [39] bestimmt werden, siehe Tabelle 2.1.

Für höher werdende n wird der Einfluss des ionischen Rumpfs immer geringer, und die Näherung in Gl. 2.9 immer genauer, was eine Extrapolation der Energie bis zum Grenzwert der Ionisierungsenergie für $n \rightarrow \infty$ erlaubt. Der daraus bestimmte Wert von 1010,029 164 6(3) THz für die Bindungsenergie des $5S_{1/2}(F=1)$ -Grundzustands von ^{87}Rb ist dabei zwei Größenordnungen genauer als bisherige Messungen und hauptsächlich durch

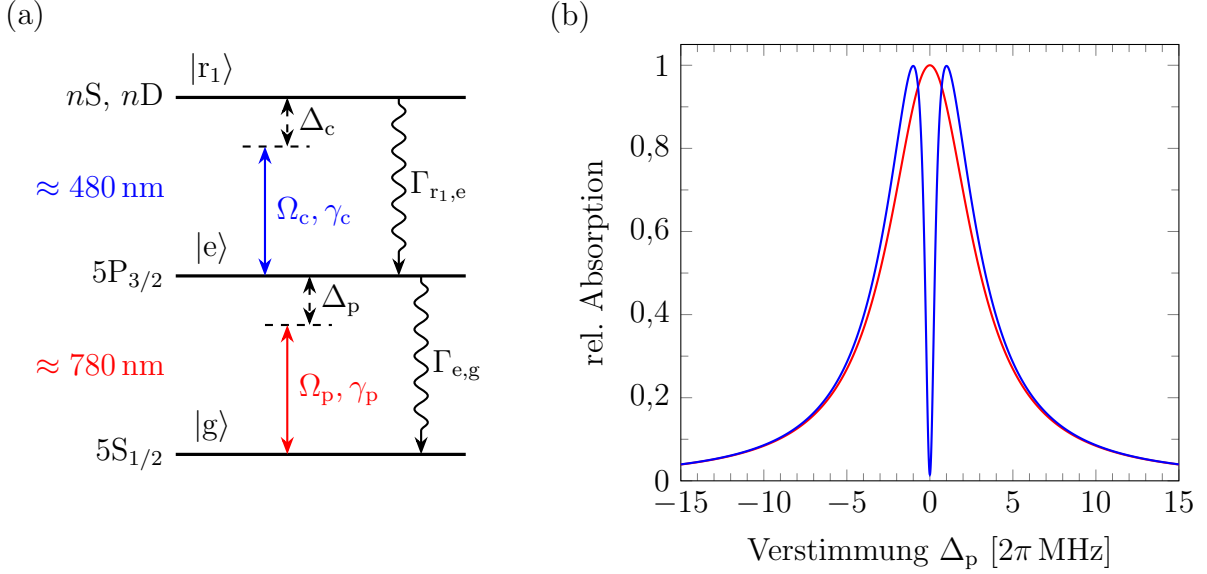


Abbildung 2.3: (a): Dreineveausystem der in dieser Arbeit für elektromagnetisch induzierte Transparenz (EIT) verwendeten atomaren Energieniveaus von ^{87}Rb . Es wird der Testlaser mit Verstimmung Δ_p zur atomaren Resonanz zwischen dem Grundzustand $|g\rangle$ und dem angeregten Zustand $|e\rangle$ (engl. *excited state*), mit der Rabi-Frequenz Ω_p und einer durch das Phasenrauschen des Lasers endlichen effektiven Dekohärenzrate γ_p eingestrahlt, sowie der Kopplungslaser mit Ω_c , γ_c und der Verstimmung Δ_c zur Resonanz zwischen $|e\rangle$ und dem Rydbergzustand $|r_1\rangle$. Weiterhin sind die in diesem System relevanten Zerfallsraten von $|e\rangle$ und $|r_1\rangle$ eingezeichnet ($\Gamma_{e,g}$ und $\Gamma_{r_1,e}$), welche die natürliche Linienbreite des unteren Übergangs bzw. die minimal mögliche Breite der EIT-Resonanz definieren. (b): Absorptionsprofil des Testlasers für ein ruhendes Atom in Abhängigkeit von der Verstimmung Δ_p zur atomaren Resonanz, in Abwesenheit des Kopplungslasers ($\Omega_c = 0$) (rot) sowie mit einem resonanten Kopplungslaser ($\Delta_c = 0$), mit einer Rabi-Frequenz von $\Omega_c = 2\pi \cdot 2\text{ MHz}$ (blau). Die starke Reduktion der Absorption im Resonanzfall ist das namensgebende Merkmal von EIT.

		^{85}Rb (Li u. a. [39])	^{87}Rb (diese Arbeit)
$nS_{1/2}$	δ_0	3,131 180 4(10)	3,131 180 7(8)
	δ_2	0,1784(6)	0,1787(2)
$nD_{3/2}$	δ_0	1,348 091 7(4)	1,348 094 8(11)
	δ_2	-0,6029(3)	-0,6054(4)
$nD_{5/2}$	δ_0	1,346 465 7(3)	1,346 462 2(11)
	δ_2	-0,5960(2)	-0,5940(4)

Tabelle 2.1: Modifizierte Rydberg-Ritz-Parameter δ_0 und δ_2 für Gl. 2.9 der nS und nD -Zustände von ^{85}Rb aus Li u. a. [39] und von ^{87}Rb aus dieser Arbeit (basierend auf Tab. I aus Mack u. a. [1]).

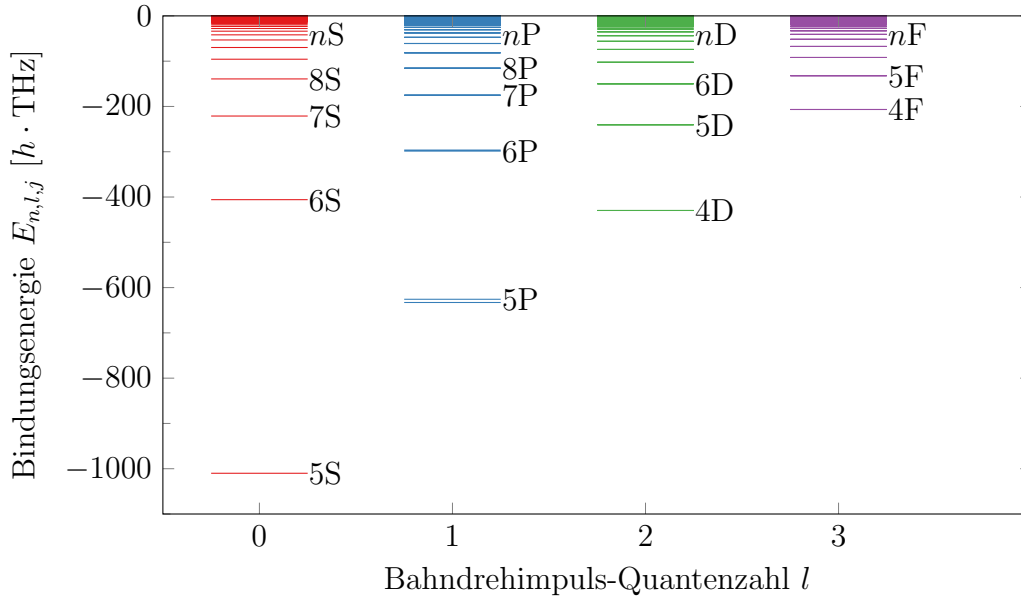


Abbildung 2.4: Absolute Energien der Niveaus des Valenzelektrons von Rubidium für die Bahndrehimpuls-Quantenzahlen $l = 0$ bis $l = 3$. Neben den Quantendefekten für nS und nD -Rydbergzuständen mit $n \geq 19$ für ^{87}Rb konnte in dieser Arbeit insbesondere die Lage der Ionisierungsenergie ($E_{n,l,j} = 0$) im Bezug auf den $5P_{3/2}$ -Zustand (und zusammen mit Ye u. a. [45] auch den $5S_{1/2}$ -Grundzustand) mit bisher höchster Genauigkeit bestimmt werden. Genaue Werte siehe: [1, 38, 39, 45–47].

den systematischen Fehler der Laser-Frequenzstabilisierung sowie dichteabhängige Effekte limitiert. Die Ergebnisse wurden in Mack u. a. [1] veröffentlicht (Abdruck in Anhang A). Aus den gewonnenen Werten, zusammen mit Quantendefekten auch für weitere Drehimpuls-Quantenzahlen l , lässt sich das Termschema von Rubidium mit korrekten absoluten Skalierungen konstruieren (siehe Abb. 2.4). Die verbesserten Werte für die Bindungsenergie von ^{87}Rb wurden von anderen Forschungsgruppen wiederum verwendet, um die Isotopverschiebung zwischen ^{85}Rb und ^{87}Rb genauer zu bestimmen [44].

2.3 Effektives Einelektronenpotential

Die Wellenfunktionen der Rydbergzustände von Alkaliatomen lassen sich mithilfe eines effektiven Einelektronenpotentials und der Schrödingergleichung bestimmen. Für ein kugelsymmetrisches Potential ist eine Separation in Winkel- und Radialanteile möglich, wobei die Winkelanteile durch Kugelflächenfunktionen darstellbar sind. Die radiale stationäre Schrödingergleichung lässt sich als

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2m_e} \left(\frac{\partial^2}{\partial r^2} - \frac{l(l+1)}{r^2} \right) + V(r) \right] \psi_{n,l}(r) = E_{n,l} \psi_{n,l}(r) \quad (2.10)$$

schreiben [48], mit dem Potential $V(r)$, den radialen Wellenfunktionen $\psi_{n,l}(r)$ und Energieeigenwerten $E_{n,l}$, sowie den Quantenzahlen n und l und der (reduzierten) Elektronenmasse

m_e . Im einfachsten Fall wird auf Grund der Wasserstoffähnlichkeit das Coulombpotential $V(r) = -\frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{e^2}{r}$ gewählt, mit dem die Lösungen der Schrödingergleichung die Wasserstoffwellenfunktionen mit Energien ohne Quantendefekt wären. Sind die tatsächlichen Quantendefekte bekannt (z.B. aus den Messungen aus Kapitel 2.2), lässt sich Gl. 2.10 aber durch Einsetzen der dazugehörigen Energien numerisch lösen, indem die Differentialgleichung beginnend mit einem Wert von Null bei einem großen Wert für die Radialkoordinate r (deutlich größer als die erwartete Ausdehnung der Wellenfunktion) nach innen integriert wird. Da die eingesetzten Energien keine mathematisch exakten Lösungen des Eigenwertproblems der Schrödingergleichung des Potentials sind, beginnt die numerische Lösung für die Wellenfunktion für $r \rightarrow 0$ zu divergieren. Als pragmatischer Ansatz, um dies zu verhindern, wird die Wellenfunktion nur bis zu einem geeignet gewählten r_{\min} berechnet und für $r < r_{\min}$ auf null gesetzt [49]. Der dadurch entstehende Fehler ist vor allem beim Berechnen von Überlappintegralen mit Zuständen relevant, die eine signifikante Aufenthaltswahrscheinlichkeit innerhalb des ionischen Rumpfs besitzen, also vor allem dem Grundzustand und niedrig angeregten Zuständen. Bei ungeeigneter Wahl von r_{\min} kann außerdem die Normierung des Zustands fehlerhaft werden, was einen direkten Einfluss auf die Überlappintegrale zwischen Rydbergzuständen haben würde. Eine experimentelle Überprüfung der Ergebnisse für die Überlappintegrale ist von daher unerlässlich und wurde in dieser Arbeit durchgeführt (siehe Kapitel 3).

Die empirische Bestimmung des Quantendefekts liefert Informationen über den inneren Teil des Atoms, so dass mit ihrer Hilfe wiederum semi-empirische Modelle eines vom Coulombpotential abweichenden effektiven Potentials für das Valenzelektron optimiert werden können, wie z.B. das parametrische Potential aus Marinescu u. a. [50]. Durch das Lösen des vollen Eigenwertproblems der Schrödingergleichung eines solchen angepassten Potentials lassen sich Werte für das Energiespektrum zurückgewinnen [51]. Diese zeigen allerdings trotz einer hohen Genauigkeit der Berechnungsmethode teilweise große Diskrepanzen zu den empirischen Daten, insbesondere im Bezug auf die Feinstrukturaufspaltung (teilweise über 200% Abweichung), so dass von weiterhin vorhandenen Ungenauigkeiten im verwendeten Potential ausgegangen werden muss.

Betrachtet man den zugrundeliegenden Breit-Pauli-Hamiltonoperator [52], so enthält dieser für Mehrelektronenatome neben nichtrelativistischen und relativistischen Korrekturen, die lediglich zu Linienverschiebungen führen, auch den Feinstrukturterm. Dieser besteht aus der Spin-Bahn-Kopplung sowie Elektron-Elektron-Wechselwirkungen, welche die Rotationssymmetrie brechen und damit im Grunde genommen nicht durch ein effektives radiales Einelektronenpotential beschrieben werden können. Inspiriert vom oben genannten pragmatischen Ansatz eines radialen Abschneidekriteriums, wurde von Prof. Dr. Schopohl ein Abschneiden des Feinstrukturanteils des Potentials unterhalb einer geeignet gewählten kritischen Distanz r_{so} vorgeschlagen und zusätzlich eine Anpassung der Parameter des Potentials aus Marinescu u. a. [50] an die aktuellen Quantendefekt-Daten vorgenommen. r_{so} hängt dabei lediglich vom Bahndrehimpuls l und nicht von n ab. Die Lösungen für die

Eigenwerte der Schrödingergleichung dieses optimierten Potentials erreichen eine um teilweise mehr als zwei Größenordnungen verbesserte relative Abweichung der Werte für die Feinstrukturaufspaltung von ^{87}Rb nP und nD -Zuständen von den spektroskopischen Daten. Die Ergebnisse wurden in Zusammenarbeit mit unserer Arbeitsgruppe in Sanayei u. a. [3] veröffentlicht (Abdruck in Anhang A).

3 Stark-Effekt

Rydbergatome zeichnen sich insbesondere durch ihre besondere Sensitivität gegenüber elektrischen Feldern aus, ihre Polarisierbarkeit skaliert im Allgemeinen mit n^7 [38]. Elektrische Felder führen dabei zu Linienverschiebungen und -aufspaltungen (Stark-Effekt). Neben dem Einsatz von Rydbergatomen zur Messung von elektrischen Feldern [53], kann der Stark-Effekt auch dazu verwendet werden, eine atomare Mikrowellen-Resonanz mit der eines Resonators abzustimmen (vgl. Kapitel 1) oder aber andere Wechselwirkungen wie z.B. Försterresonanzen der Dipol-Dipol-Wechselwirkung zu kontrollieren [24]. Die hohe Sensitivität bringt allerdings auch den Nachteil mit sich, dass Störfelder, wie sie z.B. in der Nähe von Festkörper-Oberflächen aufgrund von Oberflächenladungen und/oder -adsorbaten entstehen, zu unerwünschten Linienverschiebungen führen (siehe das nachfolgende Kapitel 3.2). Ungeachtet dessen, ob elektrische Felder gewollt oder ungewollt vorhanden sind, ist eine möglichst genaue Quantifizierung ihres Einflusses notwendig.

3.1 Berechnung und experimentelle Verifizierung

Der Hamiltonoperator \hat{H} für ein Atom in einem (in z -Richtung gewählten) elektrischen Feld lässt sich als Summe aus dem ungestörten Anteil \hat{H}_0 des Atoms, sowie dem Wechselwirkungsanteil durch das elektrische Feld mit Feldstärke F mal der z -Komponente des Dipoloperators \hat{d} beschreiben:

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + F\hat{d}_z \quad (3.1)$$

Für Wasserstoff ist das Eigenwertproblem der Schrödingergleichung für diesen Hamiltonoperator in parabolischen Koordinaten separabel [54] und liefert für gegebene Feldstärke F Resonanzen als Lösung, die sich als Stark-Verschiebungen mit endlichen Linienbreiten (aufgrund der Kopplung an das Kontinuum) beschreiben lassen. Ein möglicher Berechnungsweg wurde in Damburg und Kolosov [55] vorgestellt. Aufgrund des Quantendefekts ist bei Alkalimetallen das Separieren des dreidimensionalen Problems nicht mehr möglich, weshalb hier üblicherweise die (ungestörte) sphärische atomare Basis beibehalten wird. Die Stark-verschobenen Zustände werden dann durch Diagonalisierung der Matrixdarstellung von \hat{H} in dieser Basis berechnet [49] und setzen sich damit aus Linearkombinationen von Nullfeld-Zuständen zusammen. Für die praktische Berechnung muss dazu zunächst eine endliche Teilmenge aller Nullfeld-Zustände gewählt werden. Aufgrund der im Nullfeld vorhandenen Entartung aller Zustände mit demselben n und $l > 4$ findet bereits bei kleinen Feldstärken

eine signifikante Mischung von l -Zuständen statt, so dass l nur in einem sehr eingeschränkten Feldbereich für Zustände mit signifikantem Quantendefekt (Bahndrehimpuls $l \leq 4$) eine „gute“ Quantenzahl bleibt. Dies wiederum hat zur Folge, dass für eine präzise Berechnung der Linienverschiebung eines Rydbergzustands *alle* möglichen l -Zustände, die energetisch in dessen Nähe liegen, berücksichtigt werden müssen, und eine volle Diagonalisierung anstelle von störungstheoretischen Berechnungen notwendig ist. Die jeweiligen Gewichtungen aller Nullfeld-Komponenten eines Zustands im elektrischen Feld lassen sich aus den bei der Diagonalisierung gewonnenen Eigenvektoren berechnen. Dies ist einerseits für die Berechnung von Übergangsstärken in den Rydbergzustand relevant, und andererseits auch für dessen Lebensdauer, da diese nun von den Zerfallsraten aller gemischten Nullfeldzustände mit ihren jeweiligen Gewichtungen abhängig ist. Ein zusätzlicher Mechanismus, der im elektrischen Feld die Lebensdauer verkürzt, ist eine durch das Beimischen von Kontinuumszuständen hervorgerufene Ionisierungswahrscheinlichkeit, bzw. anschaulich das Tunneln des Valenzelektrons durch die in Feldrichtung abgesenkte Potentialbarriere. Die Diagonalisierungsmethode unter Einbeziehung von ausschließlich gebundenen Zuständen liefert hierüber allerdings direkt keine Information.

Neben den in den vorherigen Kapiteln bereits angesprochenen Unsicherheiten im Potential, den Wellenfunktionen und damit auch den Dipolmatrixelementen stellt sich die Frage, inwieweit die Vernachlässigung von Kontinuumswellenfunktionen zu einem systematischen Fehler der Berechnungen führt. Zur Verifizierung der Berechnungen wurde von daher ein Experiment aufgebaut, in dem ähnlich wie in [1] mittels EIT Rydberg-Spektroskopie mit einer Genauigkeit im MHz-Bereich durchgeführt wurde, diesmal allerdings mit einem in die Rubidium-Dampfzelle integrierten Plattenkondensator, mit dem am Ort der Atome homogene elektrische Felder bis zu 500 V cm^{-1} angelegt werden konnten. Damit wurde in der Nähe des $35\text{S}_{1/2}$ -Zustands eine Messung aller Zustände mit $n\text{S}$ und $n\text{D}$ -Komponenten bis zu Feldstärken über der klassischen Ionisierungsgrenze (Feldstärke, bei der das Valenzelektron in Feldrichtung nicht mehr gebunden ist) durchgeführt (siehe „Stark-Map“ in Abb. 3.1). Im Rahmen der Messgenauigkeit gab es dabei über den gesamten Bereich keine signifikante Abweichung zu den mit ca. 1600 gebundenen Basiszuständen berechneten Stark-Verschiebungen, auch nicht bei einer exemplarisch in der Nähe des deutlich empfindlicheren $70\text{S}_{1/2}$ -Zustands durchgeführten Messung (4000 Basiszustände in der Rechnung). Die Ergebnisse stellen eine deutliche Erweiterung des experimentell verifizierten Bereichs von Hauptquantenzahlen n der Methode aus Zimmerman u. a. [49] dar und wurden in Grimm u. a. [5] veröffentlicht (siehe Anhang A).

3.2 Elektrische Felder an Oberflächen

Sollen, wie in Kapitel 1 angesprochen, Rydbergübergänge mit einem koplanaren Resonator in Resonanz gebracht werden, müssen aufgrund des zu Beginn von Kapitel 3 vorgestellten Stark-Effekts alle elektrischen Felder gut kontrolliert werden. Aufgrund des räumlich

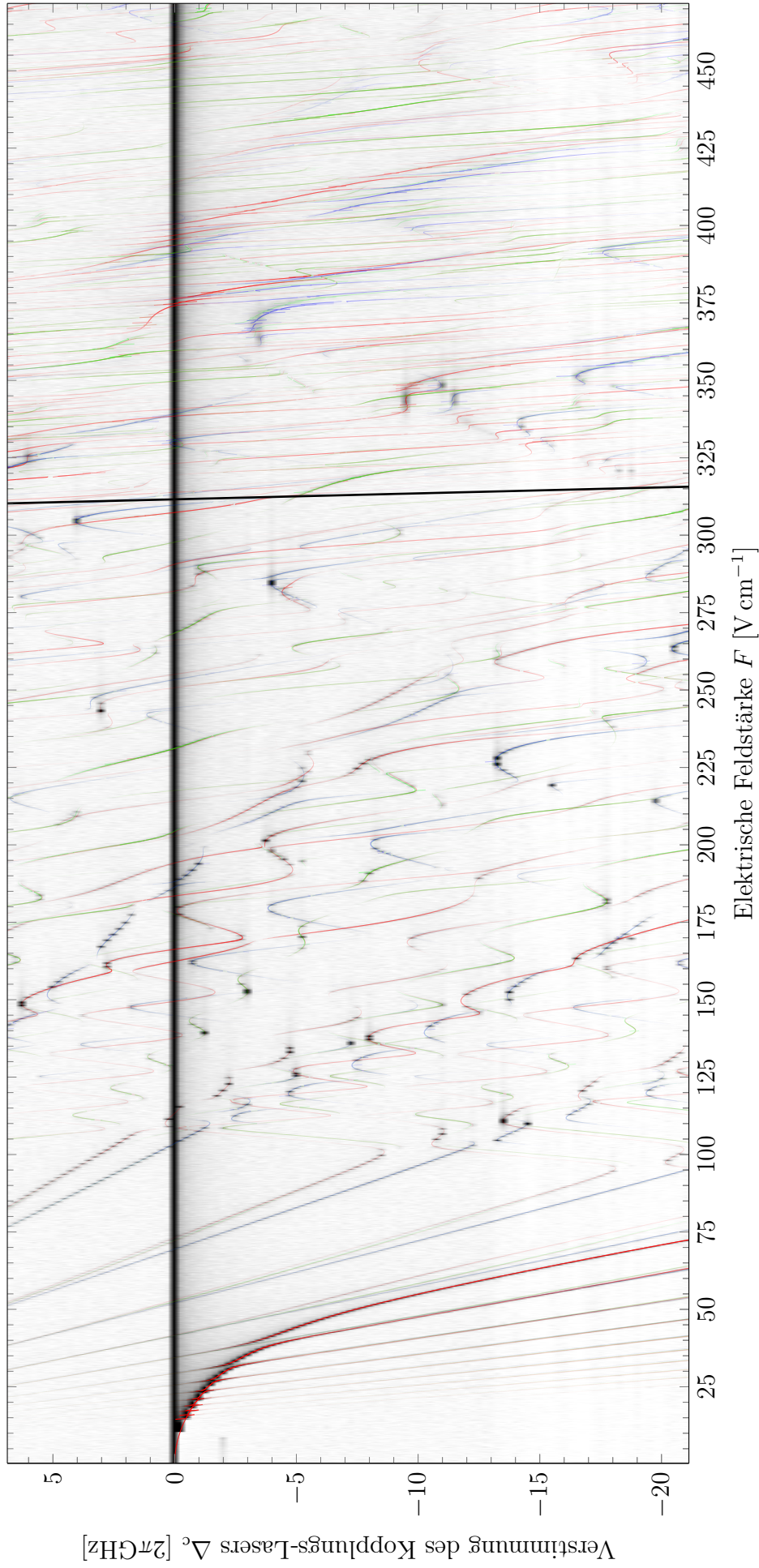


Abbildung 3.1: „Stark-Map“ in der Nähe des $35S_{1/2}$ -Zustands (Energie-Nullpunkt, im Nullfeld). Graustufenbild: Messung des EIT-Signals in Schritten von 250 MHz der Verstimmung des Kopplungslasers mit einer jeweiligen Genauigkeit von < 2 MHz. Farbige Linien: Berechnete Linienverschiebungen und Übergangsstärken (entsprechend Position und Deckkraft) für $|m_j| = 1/2, |m_j| = 3/2$ und $|m_j| = 5/2$ in jeweils rot, grün und blau. Die durchgezogene Linie bei ca. 320 V cm^{-1} stellt die klassische Ionisierungsgrenze dar.

(Abbildung basierend auf Fig. 4 (a, b) und Fig. 5 (a, b) aus Grimmel u. a. [5].)

begrenzten Modenvolumens eines solchen Resonators müssen die Atome im Allgemeinen bis auf unter hundert μm an die Oberfläche herangebracht werden. Dabei wird bereits im Fall einer idealen metallischen Oberfläche bei einer endlichen Temperatur vorhergesagt, dass aufgrund der Casimir-Polder-Wechselwirkung abstandsabhängige Linienverschiebungen verursacht werden [56, 57]. Weiterhin ist zu erwarten, dass durch evtl. vorhandene Verunreinigungen der Oberfläche weitere Linienverschiebungen durch statische Felder auftreten, welche die Casimir-Polder-Wechselwirkung überlagern können. Hier stellen sich unter anderem die Fragen, in welcher Größenordnung solche Felder auftreten, und ob die Linienverschiebungen konstant oder veränderlich sind.

Um diesen Fragen nachzugehen, wurde ein Experiment (ähnlich dem in Tauschinsky u. a. [53]) durchgeführt, in dem zunächst eine Wolke von Rubidiumatomen in einer magnetooptischen Falle (engl. *magneto optical trap*, kurz MOT) gekühlt und gefangen, und nach Übertragung in eine rein magnetische Falle mittels einer verschiebbaren optischen Dipolfalle (Chu u. a. [58], *optische Pinzette*) über eine Kupferoberfläche gebracht wurde. Die Oberfläche ist dabei durch einen Helium-Kryostaten kühlbar, wurde zunächst allerdings auf Raumtemperatur belassen. Die Absorption der Atome nach einer definierten Flugzeit (5 ms) wurde dann mit resonantem Laserlicht auf einen Kamerasensor abgebildet, wie in Abb. 3.2 (a) gezeigt. Eine genauere Beschreibung des experimentellen Aufbaus findet sich in Cano u. a. [59]. Als Detektionstechnik für Rydbergniveaus und deren Linienverschiebungen wurde, wie bei den Experimenten mit Rubidium-Dampfzellen aus den vorherigen Kapiteln 2.2 und 3.1, EIT eingesetzt. Aufgrund der Inhomogenität der elektrischen Felder in der Nähe der Oberfläche werden dabei für eine gegebene Verstimmung der Frequenz des Kopplungslasers genau an den Stellen in der Wolke transparent, wo die lokale Feldstärke eine zur Verstimmung passende Linienverschiebung verursacht. Sofern die Feldstärke nur vom Abstand der Oberfläche, und nicht von der Position entlang der Oberfläche abhängt, ergeben sich somit in der Absorptionsabbildung transparente Streifen in der Wolke parallel zur Oberfläche (wie in Abb. 3.2 (a)), die sich mit der Laserverstimmung verschieben bzw. je nach Zustand auch aufspalten. Solche Absorptionsabbildungen wurden im Experiment unter anderem für den $35\text{D}_{5/2}$ -Zustand für eine Serie von Verstimmungen durchgeführt, und an einer festen Position entlang der Oberfläche ausgewertet. Das daraus zusammengesetzte Bild für die durch EIT veränderte optische Dichte der Atome in Abhängigkeit von der Laserverstimmung und dem Oberflächenabstand ist in Abb. 3.2 (b) gezeigt. Die gemessene Aufspaltung in die $|m_j| = \frac{1}{2}, \frac{3}{2}$ und $\frac{5}{2}$ -Komponenten für kleiner werdende Oberflächenabstände entspricht dabei im Rahmen der Messgenauigkeit exakt den berechneten Linienverschiebungen des Stark-Effekts (Berechnung wie in Kapitel 3). Mithilfe der Berechnungen lässt sich durch Anfitzen der Messdaten der Betrag der elektrischen Feldstärke in Abhängigkeit des Oberflächenabstands bestimmen, der einen näherungsweise exponentiell abfallenden Verlauf zeigt (Abb. 3.2 (c)).

Das Auftreten einer solchen Feldverteilung lässt sich durch an die Kupferoberfläche adsorbierte Rubidiumatome erklären, die im Lauf der Messungen an die Oberfläche transportiert wurden. Die Atome können ihr Valenzelektron teilweise an das Leitungsband des Festkör-

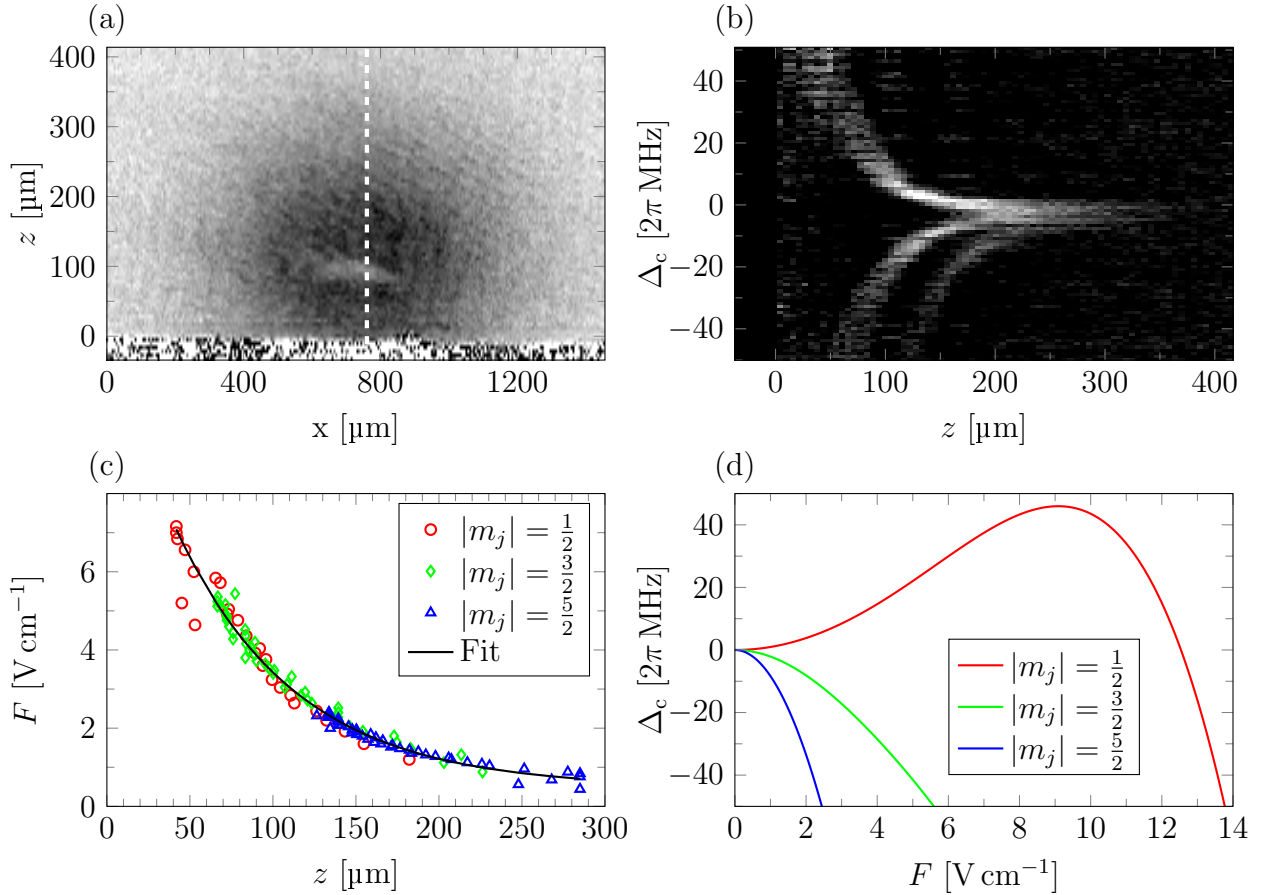


Abbildung 3.2: (a): Absorptionsabbildung einer Rubidium-Atomwolke nach 5 ms Flugzeit aus der optischen Dipolfalle über einer Kupferoberfläche bei $z = 0$. Durch zeitgleiches Einstrahlen des Kopplungslasers mit einer Verstimmung von $\Delta = 10$ MHz zum $35D_{5/2}$ -Zustand erscheint aufgrund von EIT ein Streifen mit einem Abstand von $z \approx 100 \mu\text{m}$ zur Oberfläche transparent, da dort die von der Oberfläche ausgehenden elektrischen Felder eine zur Laserverstimmung äquivalente Linienverschiebung bewirken und die Rydbergübergänge zum Kopplungslaser resonant werden.

(b): Auswertung der Transparenz aus (a) entlang der z -Richtung senkrecht zur Oberfläche (gestrichelte weiße Linie in (a) bei fester x -Position), für verschiedene Verstimmungen Δ des Kopplungslasers. Es ist, beginnend bei großen Abständen z ohne Linienverschiebungen eine Aufspaltung in drei Linien in Richtung der Oberfläche bei $z = 0$ beobachtbar, die der Aufspaltung der $|m_j|$ -Komponenten aufgrund des Stark-Effekts (d) entspricht.

(c): Umrechnung der in (b) gemessenen Linienverschiebungen in elektrische Feldstärken, anhand der „Stark-Map“ in (d). Der Verlauf der Datenpunkte aller $|m_j|$ lässt sich im Rahmen der Messgenauigkeit näherungsweise durch einen exponentiellen Zerfall beschreiben (durchgezogene Linie).

(d): Der hier relevante Bereich einer wie in Kapitel 3.1 berechneten „Stark-Map“ für ein ^{87}Rb -Atom in der Nähe des $35D_{5/2}$ -Zustands (bei $F = 0$, $\Delta_c = 0$), in einem statischen elektrischen Feld mit Betrag F .

(Abbildungen (a)-(c) basierend auf Fig. 2 aus Hattermann u. a. [2])

pers abgeben, sodass sich ein elektrischer Dipol ausbildet. Sind die adsorbierten Atome über eine gewisse räumliche Ausdehnung auf der Oberfläche verteilt, resultiert ein Feld mit dem beobachteten exponentiellen Verlauf.

Die eben beschriebenen Messungen und Auswertungen wurden vielfach wiederholt, und beobachtet, inwiefern sich die Feldstärke aufgrund von immer weiteren hinzugefügten Rubidiumatomen verändert. Dabei konnte zunächst eine Zunahme der Feldstärke, dann aber ein Sättigungsverhalten beobachtet werden, so dass nach ca. 5000 transferierten Wolken mit zusammen ca. $5 \cdot 10^9$ Atomen ein Feld von $\approx 6 \text{ V cm}^{-1}$ in 80 μm Abstand von der Oberfläche vorherrschte. Die Ergebnisse wurden in Hattermann u. a. [2] veröffentlicht (Abdruck in Anhang A).

Die Ergebnisse legen nahe, dass unter ähnlichen experimentellen Bedingungen, wie sie hier vorlagen, ein zeitlich hinreichend konstantes elektrisches Feld in der Nähe der Oberfläche erreicht werden kann, um an eine Mode eines Resonators zu koppeln (vgl. Kapitel 1). Eventuelle Schwierigkeiten sind allerdings aufgrund der absoluten Feldstärke (Zustandsmischung) und der räumlichen Inhomogenität des Felds (positionsabhängige Linienverschiebung, Beschleunigung der Atome durch den Feldgradient) zu erwarten.

In einer späteren Arbeit in der Arbeitsgruppe von Prof. Dumke (Singapur) wurde beim Abkühlen auf eine Temperatur von 83 K beobachtet, dass sich das Verhalten der Feldstärke mit dem Abstand zu einer Hochtemperatur-Supraleiter-Oberfläche qualitativ ändert [60]. Bei dieser kryogenen Temperatur wurde auch in großen Abständen von der Oberfläche noch ein konstantes endliches Feld beobachtet, das auf eine deutlich vergrößerte Adsorbatschicht hindeutet und sich durch eine Bindung der Adsorbate aufgrund von Van-der-Waals-Kräften (Physisorption), im Gegensatz zu der sonst beobachteten chemischen Bindung, erklären lassen würde.

Um zu überprüfen, ob sich diese Ergebnisse auch in dem hier verwendeten Aufbau ohne Hochtemperatur-Supraleiter reproduzieren lassen, wurden im oben beschriebenen Experiment Feldmessungen in Abhängigkeit sowohl des Oberflächenabstands als auch der Oberflächentemperatur durchgeführt. Damit eine möglichst gute Kühlung der Oberfläche erreicht werden konnte, wurden für diese Experimente die Atome für die Messungen in die Nähe des Zentrums eines thermischen Strahlungsschilds gebracht, siehe Abb. 3.3. Für die Messungen wurde zunächst mit dem Kryostaten eine wählbare Temperatur T_{Kryo} eingestellt. Mithilfe einer optischen Abbildung, die mit dem Testlaser, der den Raum zwischen den Oberflächen vollständig ausleuchtete, durchgeführt wurde, wurden Positionsmessungen der Oberflächen und Atome durchgeführt und damit die Abstände zwischen diesen bestimmt. Dabei wurden nach jeder Änderung der Kryostatentemperatur zunächst geometrische Drifts der Oberflächenpositionen festgestellt, die auf die Wärmeausdehnung der mechanischen Komponenten des Aufbaus zurückführbar waren. Der Abstand zwischen der oberen, direkt gekühlten Oberfläche (Atomchip aus Niob und Saphir), und unteren Oberfläche des Strahlungsschilds (Silizium) betrug 2720(60) μm abhängig von der Wärmeausdehnung des Strahlungsschilds. Nach einer hinreichend langen Thermalisierungszeit von einigen Stunden (abhängig von

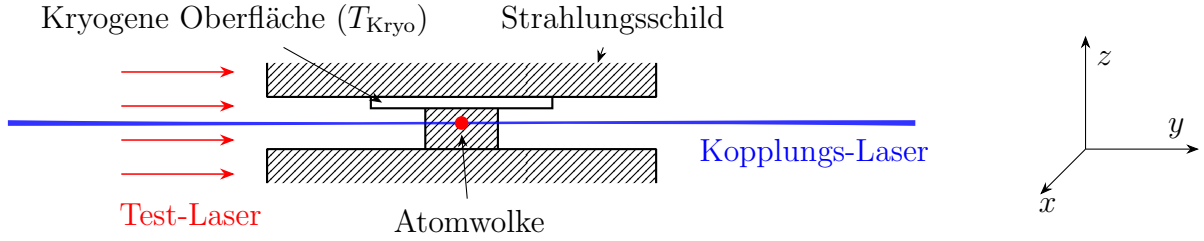


Abbildung 3.3: Schnitt durch die Anordnung des experimentellen Aufbaus mit ultrakalten Atomen nahe einer kühlbaren Oberfläche sowie der für die Rydberganregung und -detektion verwendeten Laser. Der Strahlungsschild bildet einen geschlitzten Zylinder, wobei die Atome in diesen Schlitz transportiert wurden. (Abbildung basierend auf Fig. 1 in Mack u. a. [6]).

der Größe der Temperaturänderung) konnten dann Feldmessungen wie im oben beschriebenen Experiment [2] durchgeführt werden. Dazu wurde bei einer unveränderten Justage der optischen Pinzette (Position unterhalb der oberen Oberfläche) die Flugzeit zwischen ca. 4 ms und 22 ms variiert, mit jeweiligem nachjustieren des Fokus des Kopplungslasers für jede vertikale Position z mit konstanter horizontaler Position (x und y). Hier wurde anstelle des $35D_{5/2}$ -Zustands der Zustand $30S_{1/2}$ verwendet, der keine Aufspaltung, sondern lediglich eine im betrachteten Feldbereich monoton mit dem Betrag der Feldstärke steigende Linienverschiebung zeigt. Stichprobenhaft wurde verifiziert, dass das in [2] beobachtete Langzeit-Sättigungsverhalten auf der Zeitskala von einigen Stunden keine signifikanten Drifts verursacht, d.h. jede Einzelmessung reproduzierbare Werte der Feldstärke ergab, solange die Kryostatentemperatur konstant blieb. Dies galt auch für Temperaturen hinunter bis zu 6 K.

Die Feldmessungen wurden (chronologisch) mit $T_{\text{Kryo}} = 215$ K, 15 K, 125 K, 6 K und 120 K durchgeführt. Die Ergebnisse sind in Abb. 3.4 dargestellt und zeigen signifikante Änderungen der Feldstärken nach den jeweiligen Temperaturänderungen. Obwohl die Messung mit der höchsten Temperatur bei $T_{\text{Kryo}} = 215$ K auch durchgehend die niedrigste Feldstärke aufweist, ist prinzipiell kein monotoner Zusammenhang zwischen der Feldstärke und der Oberflächentemperatur feststellbar. Ein Fit an die Datenpunkte war dabei im Rahmen der Messgenauigkeit bei allen Temperaturen mit der Summe zweier Exponentialfunktionen,

$$F(z) = A \cdot e^{\frac{z}{\zeta_A}} + B \cdot e^{\frac{z_{\max} - z}{\zeta_B}}, \quad (3.2)$$

mit dem Abstand z von der unteren Oberfläche, dem Abstand z_{\max} beider Oberflächen zueinander und den Fitparametern A , B , ζ_A und ζ_B , möglich. Insbesondere konnte durch Hinzuaddieren eines weiteren Fitparameters für einen abstandsunabhängigen Feldoffset kein signifikant besserer Fit erreicht werden. In der gegebenen geometrischen Anordnung war also an der gewählten x - und y -Position die minimal erreichbare Feldstärke von ca. 3 V cm^{-1} stets durch die Nähe zu den Oberflächen begrenzt. Eine qualitative Veränderung des Feldverlaufs aufgrund der Temperatur, und damit des Bindungsmechanismus der Adsorbate, konnte in den hier durchgeführten Messungen nicht beobachtet werden. Trotz der Reprodu-

zierbarkeit der Einzelmessungen fällt bei der Messung mit $T_{\text{Kryo}} = 125 \text{ K}$ und der später bei einer beinahe identischen Temperatur von 120 K durchgeführten Messung auf, dass sich die Feldverläufe signifikant unterscheiden, und die Unterschiede mindestens so groß wie die zu den Messungen bei deutlich anderen Temperaturen ausfallen. Dies gilt insbesondere auch für die räumlichen Zerfallsterme ζ_A und ζ_B . Mögliche Ursachen sind Veränderungen der Verteilung der Oberflächenadsorbate, die nicht nur von der Oberflächentemperatur, sondern dem genauen Temperaturverlauf abhängen. Als weitere Ursache kommen durch thermische Ausdehnung bedingte Verschiebungen der mechanischen Komponenten des Aufbaus relativ zur Atomposition in Frage, die in die Richtung der Laserstrahlen (y -Richtung) nicht direkt kontrolliert werden konnte, und aufgrund von möglicherweise auch in diese Richtung vorhandenen Feldgradienten somit Änderungen in der gemessenen Feldstärke verursacht haben könnten. Diese Verschiebungen müssten allerdings deutlich größer als einige $100 \mu\text{m}$ gewesen sein oder die Feldgradienten deutlich größer als die in der Abbildung sichtbaren x -Richtung (siehe Abb. 3.3) sein um die Unterschiede zu erklären, da über die Ausdehnung des Fokus des Kopplungslasers von ca. $100 \mu\text{m}$ keine signifikanten Feldänderungen in x -Richtung auflösbar waren. Weiterhin wurden im Verlauf der Messungen eventuell wie in Hattermann u. a. [2] Rubidium-Atome an die Oberflächen adsorbiert. Speziell im Fall der oberen Oberfläche erscheint hier dieser Mechanismus allerdings nicht plausibel, da die Position der Dipolfalle stets einen Abstand von einigen hundert Mikrometern zu dieser Oberfläche hatte. Da für die großen gemessenen Feldänderungen unter eigentlich beinahe identischen Bedingungen sowohl diese physikalischen als auch technischen Ursachen in Frage kommen, wurde bisher von einer Veröffentlichung der Daten abgesehen. Um die technischen Ursachen einzugrenzen, ist eine verbesserte Kontrolle der Oberflächenposition in allen Raumrichtungen notwendig. Alternativ könnten auch zusätzliche Messungen aus anderen Raumrichtungen (z.B. Laser und Abbildung in x -Richtung) durchgeführt werden, um alle Feldgradienten messen zu können. Für die direkte Untersuchung der Verteilung von Oberflächenadsorbaten in Abhängigkeit von Temperaturänderungen wäre ein experimenteller Aufbau notwendig, in dem trotz dieser Temperaturänderungen der Abstand zwischen den Atomen und der Oberfläche konstant gehalten werden kann, was aufgrund der Wärmeausdehnung im vorliegenden Experiment nicht ohne Weiteres möglich war.

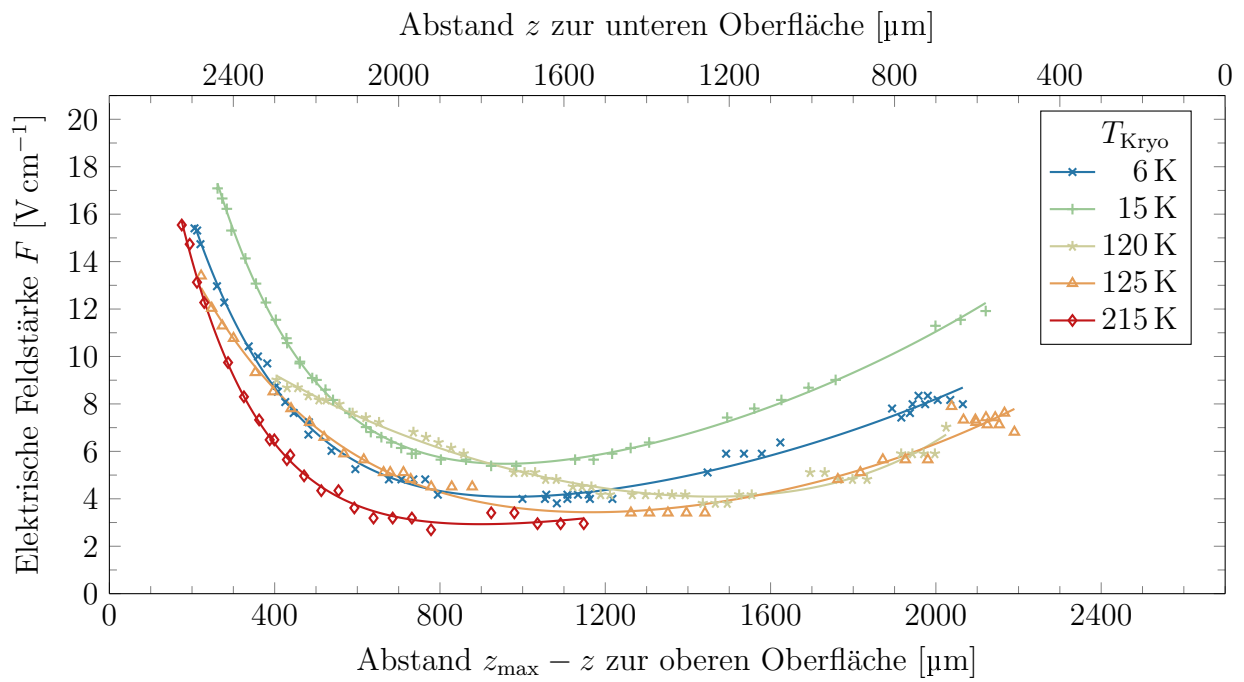


Abbildung 3.4: Durch Beobachtung von EIT mit Rydbergatomen im $30S_{1/2}$ -Zustand analog zum Schema in Abb. 3.2 gemessene elektrische Feldstärken, in Abhängigkeit zu den Abständen zu einer kryogenen kühlbaren oberen (Niob und Saphir) und unteren (Silizium) Oberfläche, nach jeweiligen Änderungen der Kryostatentemperatur T_{Kryo} auf die angegebenen Werte. Die durchgezogenen Linien stellen Fits nach Gl. 3.2 dar.

4 Detektion von Rydbergatomen

In den bisher beschriebenen Messungen wurde der EIT-Effekt als Instrument zur Messung von zeitlich konstanten Linienverschiebungen verwendet. In einer im Bezug auf Signalstärke und Auflösung idealen Messung würde man dabei mit verschwindend geringer Intensität des Testlasers arbeiten, wodurch keine tatsächliche Anregung von Rydbergatomen stattfinden würde [41]. Auch im Fall endlicher Intensität des Testlasers bildet sich ein Gleichgewicht der Populationen der Zustände. Das EIT-Messsignal hängt somit in Gleichgewichtssituationen alleine vom Spektrum, nicht aber der Besetzung der Rydbergzustände ab. Sollen dagegen tatsächlich Rydbergatome angeregt und die Population gemessen werden, kommt üblicherweise die Technik der hauptsächlich in den 1970er-Jahren entwickelten *selektiven Feldionisierung* (SFI) zum Einsatz [38, 61, 81]. Dabei wird ausgenutzt, dass aufgrund ihrer immer geringeren Bindungstiefe höhere Rydbergzustände bei immer niedrigeren Feldstärken ionisieren. Durch Anlegen eines zeitlich ansteigenden elektrischen Feldes auf einer Mikrosekunden-Zeitskala ionisieren die besetzten Zustände nacheinander, zunächst die energetisch höchsten und zuletzt die niedrigsten. Wie in Kapitel 3 bereits angemerkt, ist eine quantitative Berechnung der tatsächlichen Ionisierungsraten von Rydbergzuständen von Alkaliatomen im elektrischen Feld schwierig und die Unterschiede in den jeweils notwendigen Ionisierungsfeldstärken zwischen gegebenen Zuständen müssen abhängig von der Steilheit der angelegten Feldrampe empirisch bestimmt werden. Eine saubere Trennung von energetisch zueinander nahe liegenden Zuständen ist in vielen Fällen nicht direkt möglich, außerdem werden durch die Feldrampe alle höher liegenden Populationen mit ionisiert, so dass einzelne Zustände nicht ohne Beeinflussung der anderen gemessen werden können. Abhilfe schafft in solchen Situationen ein gezielter Transfer der zu messenden Population mittels eines resonanten Mikrowellenpulses in einen bisher unbesetzten Zustand, der deutlich höher als alle anderen liegt, und anschließende Feldionisierung dieses Zustands [62].

Prinzipiell stellt sich die Frage, ob mit der inzwischen verfügbaren, auf EIT basierenden hochaufgelösten Laserspektroskopie nicht auch direkte optische Messungen der Besetzungen von Rydbergzuständen durchgeführt werden können. Während die Empfindlichkeit optischer Methoden in der Regel nicht an die von Detektoren von einzelnen Elektronen oder Ionen heranreicht, bestehen die Vorteile der direkten Adressierbarkeit aller im Rahmen der optischen Auswahlregeln erreichbaren Zustände mit spektroskopischer Auflösung (wie in Kap. 2.2 demonstriert), der einfacheren räumlichen Trennung (vgl. Kapitel 3.2) und der Vermeidung von Hochspannungsbauteilen im Vakuum für den Detektor. Ein weiterer Vorteil von optischen Methoden liegt im Erhalt der kalten Atome, die mit der SFI-Technik

zur Detektion zerstört (ionisiert) werden müssen – ein Aspekt, der im Zusammenhang mit Wolken aus einer endlichen Anzahl ultrakalter Atome und eventuell benötigten mehrfachen Messungen innerhalb einer Wolke relevant werden kann.

In stark wechselwirkenden Systemen lässt sich durch Ausnutzung des Effekts der Dipolblockade die Präsenz von Rydbergatomen mit EIT nachweisen und bei geeigneter räumlicher Anordnung von Rydbergatomen diese sogar effektiv abbilden [63, 64]. Im Rahmen dieser Dissertation wurden zwei ebenfalls rein optischen Ansätze entwickelt und untersucht, um die Populationen von Rydbergzuständen weitestgehend unabhängig von der räumlichen Anordnung auch in nicht oder lediglich schwach wechselwirkenden Systemen zu messen: Der eine Ansatz beruht auf der zeitaufgelösten Messung von EIT, wobei neben den Populationen auch Aussagen über die Kohärenz von angeregten Überlagerungszuständen sowie Dekohärenzeffekte durch z.B. die Dipol-Dipol-Wechselwirkung gewonnen werden können. Im zweiten Ansatz werden in einer reinen Absorptionsmessung zeitabhängige Änderungen der Rydbergpopulationen und damit die Lebensdauern gemessen, sowie deren Abhängigkeit von der Schwarzkörperstrahlung und lebensdauerverkürzenden Kollisionen. Der erste Ansatz soll im Folgenden vorgestellt werden, die Messung der Lebensdauern daraufhin im nächsten Kapitel.

4.1 Kohärente optische Detektion

Die Dynamik der Dichtematrix $\hat{\rho}(t)$ eines atomaren Ensembles lässt sich mithilfe der Mastergleichung beschreiben:

$$i\hbar\dot{\hat{\rho}} = [\hat{\mathcal{H}}, \hat{\rho}] + \hat{\mathcal{U}}[\hat{\rho}]. \quad (4.1)$$

Der Hamiltonoperator $\hat{\mathcal{H}}$ beschreibt hier die Wechselwirkung eines Atoms mit dem (klassischen) Lichtfeld des Test- und Kopplungslasers der hier betrachteten EIT-Konfiguration 2.3, und lässt sich im Fall resonanter Laser als

$$\hat{\mathcal{H}} = -\frac{\hbar}{2} (\Omega_p |e\rangle\langle g| + \Omega_c |r_1\rangle\langle e| + \text{h.c.}) \quad (4.2)$$

schreiben. Ω_p und Ω_c sind dabei die jeweiligen Rabi-Frequenzen in Abhängigkeit der Feldamplituden E des Laserlichts und der Dipolmatrixelemente, $\Omega_p = (E_p d_{g,e})/\hbar$ sowie $\Omega_c = (E_c d_{e,r_1})/\hbar$. Der (nicht-hermitesche) Term $\hat{\mathcal{U}}[\hat{\rho}]$ ist eine Summe aus Zerfalls- und Dekohärenztermen,

$$\hat{\mathcal{U}}[\hat{\rho}] = \sum_{i,j} \frac{\Gamma_{i,j}}{2} (2|j\rangle\langle i| \hat{\rho} |i\rangle\langle j| - |i\rangle\langle i| \hat{\rho} - \hat{\rho} |i\rangle\langle i|). \quad (4.3)$$

Für $i \neq j$ sind dabei die $\Gamma_{i,j}$ die Übergangsraten durch spontanen Zerfall und Schwarzkörperstrahlung (siehe Kapitel 2.1). Mit $\gamma_p = \Gamma_{g,g}$ und $\gamma_c = \Gamma_{r_1,r_1}$ können energieerhaltende Dekohärenzraten eingesetzt werden, die vornehmlich durch das Phasenrauschen von Test- und Kopplungslaser verursacht werden [41].

Die Mastergleichung (Gl. 4.1) lässt sich im Rahmen einer *Rotating Wave*-Näherung lösen und die Zeitentwicklung der Dichtematrix $\hat{\rho}(t)$ in Abhängigkeit von der Startsituation $\hat{\rho}(t=0)$ bestimmen. Die Matrixelemente von $\hat{\rho}(t)$ sind dabei die Besetzungen $\rho_{i,i}$ und Kohärenzen $\rho_{i,j}|_{j \neq i}$ der beteiligten Zustände. Außerdem ist der Imaginärteil des Dichtematrix-Elements $\rho_{g,e}(t) = \rho_{e,g}^*(t)$ bei den hier betrachteten Zeitskalen proportional zur Absorption des Testlasers [41]. Das hier betrachtete System stellt genau genommen eine Erweiterung des Ratengleichungssystems aus Kapitel 2.1 dar, die außer den spontanen Zerfällen und Schwarzkörperübergängen die kohärente Dynamik der Zustände, ggf. unter dem Einfluss von Laserlicht, mit berücksichtigt. Die Lösung konvergiert für die Besetzungen $\rho_{i,i}$ im Fall von zeitlich konstanten Rabifrequenzen aufgrund der endlichen, reellen Zerfallsterme $\Gamma_{i,j}$ für $t \rightarrow \infty$. Für ein Dreiniveausystem und $\Omega_p \rightarrow 0$ entspricht die Situation dann genau dem üblicherweise betrachteten (statischen) EIT-Fall aus [41] (vgl. Kapitel 2.2).

Sind alle Raten $\Gamma_{i,j}$ bekannt, sowie die Rabifrequenzen $\Omega_p(t)$ und $\Omega_c(t)$ vorgegeben, lassen sich aus einer Messung dieser (zeitabhängigen) Absorption nun die Startbedingungen $\hat{\rho}(t=0)$ bestimmen, wie sie tatsächlich im Experiment vorlagen. Damit lässt sich insbesondere auf die ursprüngliche Population des Rydbergzustands $|r_1\rangle$ zurückschließen ($\rho_{r_1,r_1}(t=0)$), selbst wenn zum Zeitpunkt der Absorptionsmessung bereits Umverteilungen u.a. durch Schwarzkörperstrahlung stattgefunden haben. Darüber hinaus ist es so möglich, Information über weitere Umverteilungs- und Dekohärenzmechanismen wie Superradianz und Dipol-Dipol-Wechselwirkungen zu gewinnen, die einen direkten Einfluss auf die Lebensdauern der Rydbergatome haben können.

4.2 Experimentelle Bestimmung der Rydbergpopulation

Um das Prinzip und die Genauigkeit der auf der zeitaufgelösten Beobachtung von elektromagnetisch induzierter Transparenz basierenden Messtechnik zu demonstrieren, wurde ein Experiment zur Erzeugung und Manipulation von Rydbergatomen aufgebaut. In diesem Experiment werden zunächst im Ultrahochvakuum Rubidium-Atome aus einem Dispenser verdampft, die des Isotops ^{87}Rb in einer magnetooptischen Falle (MOT) gefangen und gekühlt, und zuletzt in eine rein magnetische Quadrupol-Falle am Ort der MOT umgeladen. Die Wolke bestand zu diesem Zeitpunkt aus ca. $2 \cdot 10^7$ Atomen mit einer Temperatur von ca. $150 \mu\text{K}$. Nach dem Abschalten der Spulenströme für die Magnetfalle wurden nun zum vollständigen Abklingen der Magnetfelder zunächst 3 ms Flugzeit (engl. *time of flight*) abgewartet und in der darauffolgenden Zeitspanne von einigen zehn Mikrosekunden exemplarische Rydberganregungen und -detektionen durchgeführt. Abbildung 4.1 (a) zeigt die verwendete Pulsfolge des resonanten Test- und Kopplungslasers: Zunächst wurden mit einem wenige Mikrosekunden langen Puls beider Laser Rydbergatome im $35\text{S}_{1/2}$ -Zustand angeregt („Präparation“). Die Zeitentwicklung der Populationen sollte nun durch Mess-Pulse charakterisiert werden. Dazu wurde zunächst nur der Testlaser eingeschaltet (A), danach zusätzlich der Kopplungslaser (B), und dieser daraufhin wieder ausgeschaltet (C). Wäh-

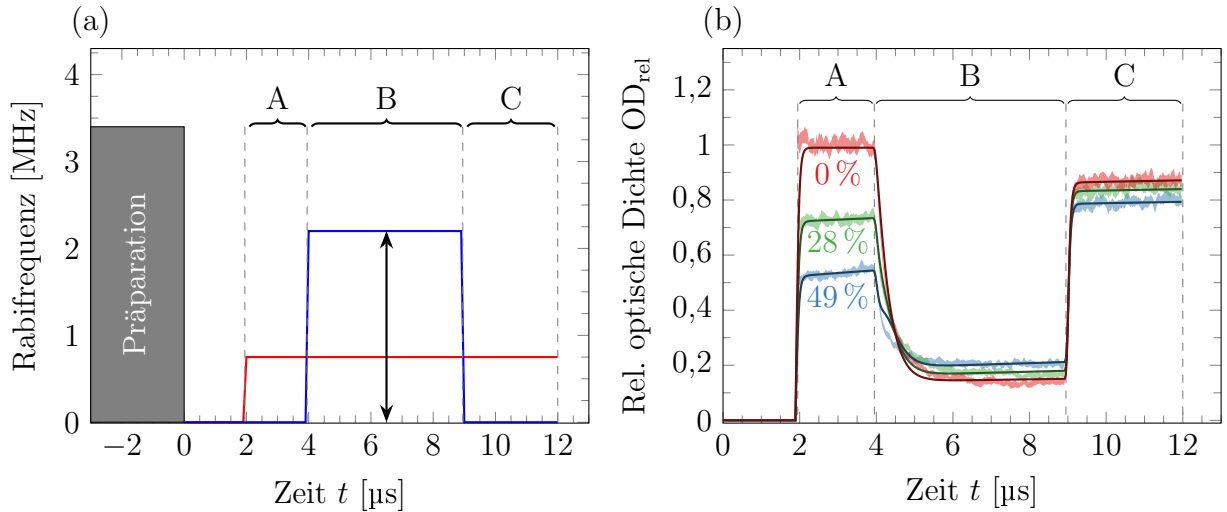


Abbildung 4.1: (a): Pulsfolge des Test- (rot) und Kopplungslasers (blau) für die optische Populationsmessung. Nach der Präparation der Atome und eventueller Anregung von Rydbergatomen zum Zeitpunkt $t = 0$ folgt zunächst eine reine Absorptionsmessung mit dem Testlaser (Bereich A), gefolgt von einem EIT-Bereich mit dem Kopplungslaser (B) und zuletzt wieder einer reinen Absorptionsmessung (C). Dargestellt sind Rabifrequenzen Ω_p und Ω_c proportional zur Quadratwurzel der Laserintensitäten.

(b): Messergebnisse für die mit dem Testlaser gemessene optische Dichte in den Bereichen A, B und C für drei unterschiedlich gewählte Anregungen in der Präparationsphase. Die optische Dichte wurde auf den konstanten Bereich A der Messung ohne Anregung („0%“), proportional zur Gesamtzahl der Atome im Detektionsvolumen, normiert.

(Abbildung basierend auf Fig. 2 und Fig. 6 in Karlewski u. a. [4]).

rend der Zeitintervalle A, B und C wurde die Transmission des Testlasers durch die Wolke mit einer schnellen Photodiode (Zeitauflösung 20 ns) gemessen, woraus sich die Absorption durch die Atome bestimmen ließ.

In Abhängigkeit von der Länge des Präparationspulses wurden so die drei Messkurven in Abbildung 4.1 (b) (schattierte Bereiche) aufgenommen. Die erste Messung („0 %“) wurde dabei ohne Rydberganregung in der Präparationsphase durchgeführt und die optischen Dichten aller Messkurven auf den Zeitbereich A dieser Messung normiert, woraus sich relative optische Dichten OD_{rel} ergeben, die in der Abbildung dargestellt sind. Der starke Einbruch der optischen Dichte im Bereich B zeigt den Aufbau und die Gleichgewichtsphase des EIT-Effekts. Die nach dem wieder Ausschalten des Kopplungslasers im Vergleich zum Zeitintervall A verringerte optische Dichte in Bereich C ist darauf zurückzuführen, dass während des EIT-Intervalls B aufgrund der endlichen Leistung des Testlasers Rydbergatome angeregt wurden. Wird Intervall C auf die Länge einiger $|r_1\rangle$ -Lebensdauern verlängert, erreicht die relative optische Dichte wieder einen Wert von 1, d.h. alle Atome fallen auf dieser Zeitskala zurück in den Grundzustand. In den beiden weiteren Messkurven („28 %“ und „49 %“) wurde in der Präparationsphase ein jeweils unterschiedlich langer Anregungspuls durchgeführt. Im Intervall A ist der Anteil der zu diesem Zeitpunkt aus dem Grundzustand fehlenden Atome ablesbar (verringerte optische Dichte). Diese Atome müssen sich entweder im ursprünglich angeregten Zustand $|r_1\rangle = |35S_{1/2}\rangle$ befinden, oder wurden bereits durch Schwarzkörperstrahlung oder weitere Wechselwirkungen umverteilt. Im EIT-Intervall B erscheint im Gleichgewicht die Messung mit der höchsten Rydberganregung als die mit der höchsten optischen Dichte, im Bereich C nach Ausschalten des Kopplungslasers aber wieder als die mit der niedrigsten. Da das EIT-Gleichgewicht aber in einem reinen drei-Niveau-Modell unabhängig von der Startsituation sein muss, müssten in diesem Fall alle Kurven ab diesem Zeitpunkt aufeinander fallen. Auch die Simulation mit dem vollen N -Niveau-Modell einschließlich Zerfällen und BBR-Übergängen kann den Effekt quantitativ nicht erklären, wohl aber, wenn im realen System mit vielen Atomen in der Wolke eine beschleunigte Umverteilung aufgrund von Superradianz [65] im Millimeter-Wellenlängenbereich angenommen wird. Das Auftreten von Superradianz, angestoßen durch BBR-Photonen, ist aufgrund der großen Wellenlänge der Photonen zwischen direkt benachbarten Rydbergniveaus (z.B. $35S \leftrightarrow 34P$, $\lambda = 2,8 \text{ mm}$) und der Größe der Atomwolke von $D_{\text{Wolke}} \lesssim 1 \text{ mm} < \lambda/2$ plausibel (vgl. Wang u. a. [66]). Eine elegante Möglichkeit, die wichtigsten Auswirkungen der Superradianz in ein effektives ein-Atom- N -Niveau-Modell zu integrieren, wurde in Day u. a. [67] vorgestellt und lässt sich, angepasst auf das hier vorgestellte Modell, durch eine populations- und damit auch zeitabhängige Modifikation der Zerfallsraten erreichen:

$$\tilde{\Gamma}_{i,j}(t) = \Gamma_{i,j,\text{sp}} \cdot [\rho_{j,j}(t) \cdot p_{i,j,\text{sup}} + 1] + \Gamma_{i,j,\text{BBR}} \quad (4.4)$$

Der Superradianz-Parameter $p_{i,j,\text{sup}}$ besteht dabei aus der Gesamt-Atomzahl in der Wolke sowie der Wellenlänge des jeweiligen Übergangs im Verhältnis zu den Dimensionen

der Atomwolke (*cooperativity parameter* aus Day u. a. [67]). Für optische Wellenlängen verschwindet er im hier betrachteten System. Die (nichtlinear) erhöhte Produktion von nP -Rydbergatomen, die nicht zur EIT-Gleichgewichtssituation beitragen, kann so in der Messung die fehlende optische Dichte im Intervall C erklären. Eine Wechselwirkung über Superradianz legt außerdem auch eine direkte Dipol-Dipol-Wechselwirkung zwischen den nP und $35S$ -Atomen nahe [65]: Diese bewirkt vom interatomaren Abstand r abhängige Linienverschiebungen (i.d.R. $\propto r^{-6}$, Berechnung in Störungstheorie siehe z.B. Reinhard u. a. [68]), die wiederum aufgrund der statistischen Verteilung dieser Abstände zwischen den jeweiligen Atomen in der Wolke zu einer inhomogenen Dephasierung bzw. Verbreiterung der beteiligten Rydbergniveaus führen, wie bereits in Anderson u. a. [69] beobachtet wurde. Der Effekt lässt sich erneut durch eine populationsabhängige Modifikation, diesmal aber des Dekohärenz-Parameters γ_c , beschreiben,

$$\tilde{\gamma}_c(t) = \gamma_c + \sum_j \gamma_{r_1,j,dd} \rho_{j,j}(t), \quad (4.5)$$

wobei die zustandsabhängigen Dekohärenz-Faktoren $\gamma_{r_1,j,dd}$ von der Stärke der Dipol-Dipol-Wechselwirkung zwischen $|r_1\rangle$ und dem jeweiligen Zustand j abhängen müssen. Aufgrund der Nichtlinearität der Superradianz wird im hier betrachteten System allerdings in der Praxis hauptsächlich der $34P$ -Zustand makroskopisch besetzt werden, so dass näherungsweise alle $\gamma_{r_1,j \neq 34P,dd} = 0$ angenommen werden können. Dies erscheint auch aufgrund der Tatsache, dass die gesamte Summe lediglich eine Korrektur zur durch die Laserlinienbreite dominierten Dekohärenzrate γ_c darstellt, gerechtfertigt, und genügt, um die durch die Rydberganregung verursachte verringerte Transparenz (d.h. höhere optische Dichte) im EIT-Intervall B zu erklären. Mit dieser Vereinfachung lässt sich das ganze System auf ein effektives Vier-Niveau-System reduzieren, wobei neben den für die EIT-Konfiguration essentiellen drei Zuständen $|g\rangle$, $|e\rangle$ und $|r_1\rangle$ der vierte Zustand eine Zusammenfassung aller weiteren (Rydberg-) Niveaus ist und es ermöglicht, Superradianz und Dekohärenz durch Dipol-Dipol-Wechselwirkungen zu integrieren. Im Rahmen dieser Näherung konnte, wie in Karlewski u. a. [4] veröffentlicht (Abdruck in Anhang A), bereits eine zufriedenstellende Anpassung des Modells an die Messdaten erreicht und eine Genauigkeit von $\pm 1\%$ der Populationsbestimmung erreicht werden. Weiterhin wurde gezeigt, dass mit dieser Methode direkt auch statistische Zustandsgemische von angeregten Überlagerungszuständen unterschieden werden können, da sich, hiervon abhängig, in der Simulation deutliche Unterschiede im Absorptionssignal zu Beginn des EIT-Intervalls B ergeben.

5 Messung der Lebensdauern

Die Messung von Lebensdauern von Rydbergatomen lässt sich als eine zeitaufgelöste Messung der Population des zu untersuchenden Rydbergzustands durchführen. Dies ist im einfachsten Fall durch Messung der Fluoreszenz möglich, erlaubt dann aber in der Regel keine hinreichende Zustandsselektivität und ist von daher in der Praxis nicht dazu geeignet, um Umverteilungen z.B. aufgrund der Schwarzkörperstrahlung vollständig zu erfassen. Von daher kam bisher auch für die Lebensdauerermessung üblicherweise die SFI-Technik zum Einsatz (vgl. Kapitel 4), wobei der Zeitpunkt der ionisierenden Feldrampe variiert und so der Zerfall des Rydbergzustands abgetastet wird. Speziell für Rubidium wurden in Oliveira u. a. [70] sowie Nascimento u. a. [71] in einer Raumtemperatur-Umgebung die Lebensdauern von nS und nD -Zuständen mit $n = 27 - 44$ gemessen. Ob die sorgfältige Auswertung der Ionisierungssignale ausreicht, um den jeweiligen Rydbergzustand klar von durch Schwarzkörperstrahlung besetzten Zuständen zu unterscheiden, wurde in Tate [72] und Caliri und Marcassa [73] detailliert diskutiert. Das Problem konnte daraufhin durch Erweiterung der Technik um einen resonanten Mikrowellen-Zustandstransfer in ein höheres Rydbergniveau, das separat ionisierbar ist, umgangen werden, wie in Branden u. a. [62] mit Messungen der Lebensdauern der Zustände nS , nP , und nD im Bereich $28 \leq n \leq 45$ demonstriert wurde.

Um aus der Messung bei Raumtemperatur, also einschließlich des Effekts der Schwarzkörperstrahlung, die natürlichen Lebensdauern $\tau_{i,sp}$ ohne diesen Einfluss zu bestimmen, müssen die kumulierten Raten $\sum_j \Gamma_{i,j,BBR}$ bekannt sein (vgl. Gl. 2.6). Für die Alkalimetalle liegen hierfür aktuell die berechneten Werte aus Beterov u. a. [74] vor, sowie die im Rahmen dieser Arbeit berechneten Werte, die speziell für Rubidium durch die Messung des Stark-Effekts experimentell verifiziert wurden (siehe Kapitel 2 und 3). Eine direkte Messung der natürlichen Lebensdauern (und damit wiederum auch der kumulierten BBR-Übergangsraten) lässt sich nur in einer hinreichend gekühlten (kryogenen) Umgebung erreichen. Solche Messungen wurden für Natrium in Spencer u. a. [75, 76] durchgeführt, bisher jedoch noch nicht für Rubidium.

Aufgrund der Schwierigkeit, mit der SFI-Technik präzise Lebensdauerermessungen von Rydbergzuständen unter dem Einfluss der Schwarzkörperstrahlung durchzuführen, wurde im Rahmen dieser Arbeit auch zu diesem Zweck eine optische Messmethode entwickelt und zur Anwendung gebracht. Wie zu Beginn von Kapitel 4 bereits ausgeführt, steht hier u.a. direkt die volle spektroskopische Auflösung zur Verfügung, so dass auch ohne Hinzunahme eines zusätzlichen Mikrowellentransfers trotz BBR zustandsselektiv gemessen werden kann. Die möglichst einfache Durchführbarkeit von Lebensdauerermessungen ist insbesondere des-

halb wünschenswert, weil in einem realen Experiment neben der natürlichen Lebensdauer und Schwarzkörperstrahlung auch weitere Wechselwirkungen eine stark von der jeweiligen experimentellen Situation (u.a. Dichte und Geometrie der Wolke) abhängige Beeinflussung der Lebensdauer möglich ist. Die Literaturwerte sind also oft lediglich im Grenzfall vernachlässigbarer Wechselwirkungen anwendbar, und die tatsächlichen Lebensdauern müssen im jeweiligen System unter den gegebenen Bedingungen konkret bestimmt werden.

5.1 Optische Lebensdauerermessung

Die Messungen der Lebensdauern von Rydbergatome wurden in demselben experimentellen Aufbau durchgeführt, in dem auch die Untersuchung der Stark-Verschiebungen an Oberflächen aus Kapitel 3.2 stattgefunden hatte, nun allerdings möglichst weit entfernt von allen Oberflächen, mit $4 \cdot 10^5$ bis $8 \cdot 10^5$ ^{87}Rb -Atomen, einer Temperatur der Atome von ca. $1,5 \mu\text{K}$, einer Dichte von $1,5(5) \cdot 10^9 \text{ cm}^{-3}$ nach einer Flugzeit von $20,5 \text{ ms}$ und an einer räumlichen Position mit deutlich verringerten Oberflächenadsorbaten, so dass keine Verfälschungen der Lebensdauern durch Zustandsmischung zu erwarten waren. Da der Aufbau die Absenkung der Umgebungstemperatur um die Atome durch die kryogen gekühlte Oberfläche und den Strahlungsschild ermöglichte, wie in Abb. 3.3 illustriert, konnte hier der Einfluss der Schwarzkörperstrahlung untersucht werden.

Zunächst sollte anhand des $30\text{S}_{1/2}$ -Zustands bei $T_{\text{Kryo}} = 300 \text{ K}$ überprüft werden, ob eine rein optische Messmethode überhaupt vergleichbare Ergebnisse liefert wie die etablierte SFI-Technik. Wie beim EIT-Schema (Abb. 2.3 (a)) wurde für die Lebensdauerermessung ein zu einem geschlossenen „unteren“ Übergang resonanter Testlaser, sowie ein zum „oberen“ Rydbergübergang resonanter Kopplungslaser eingesetzt. Der Kopplungslaser wurde hier allerdings nicht gleichzeitig mit dem Testlaser zur Messung verwendet, weshalb auch keine Transparenz auftrat. Für eine initiale Anregung des Rydbergzustands können, wie in den hier durchgeführten Experimenten, beide Laser zeitgleich für eine inkohärente Anregung verwendet werden, oder alternativ in einer STIRAP-Folge (*Stimulated Rapid Adiabatic Passage* [77, 78]). Dieselben Laser, die zur Anregung verwendet wurden, wurden auch für die Messung eingesetzt. Die Messung bestand, wie in Abb. 5.1 dargestellt, aus mehreren Schritten (mit I bis IV bezeichnet), wobei für jeden Schritt eine Pulsfolge beider Laser auf die Atome eingestrahlt wurde.

Der Testpuls in den Schritten I und II, zunächst ohne und dann mit Atomen, diente der Kalibration der Empfindlichkeit des Photodetektors für das Licht des Teststrahls und dessen Intensität, sowie der optischen Dichte der Atome (OD). Für Schritt III wurde zusätzlich zum Testpuls zuvor die Rydberganregung durchgeführt und die dadurch verursachte Änderung der optischen Dichte (im Vergleich zu Schritt II ohne Anregung) im zeitlichen Verlauf bestimmt. Im Allgemeinen ist aufgrund der Anregung die optische Dichte für den Testlaser geringer, da sich Atome zunächst im Rydbergzustand $|r_1\rangle$, und daraufhin aufgrund von spontanem Zerfall, Schwarzkörperstrahlung und ggf. zusätzlichen Effekten wie z.B. Superra-

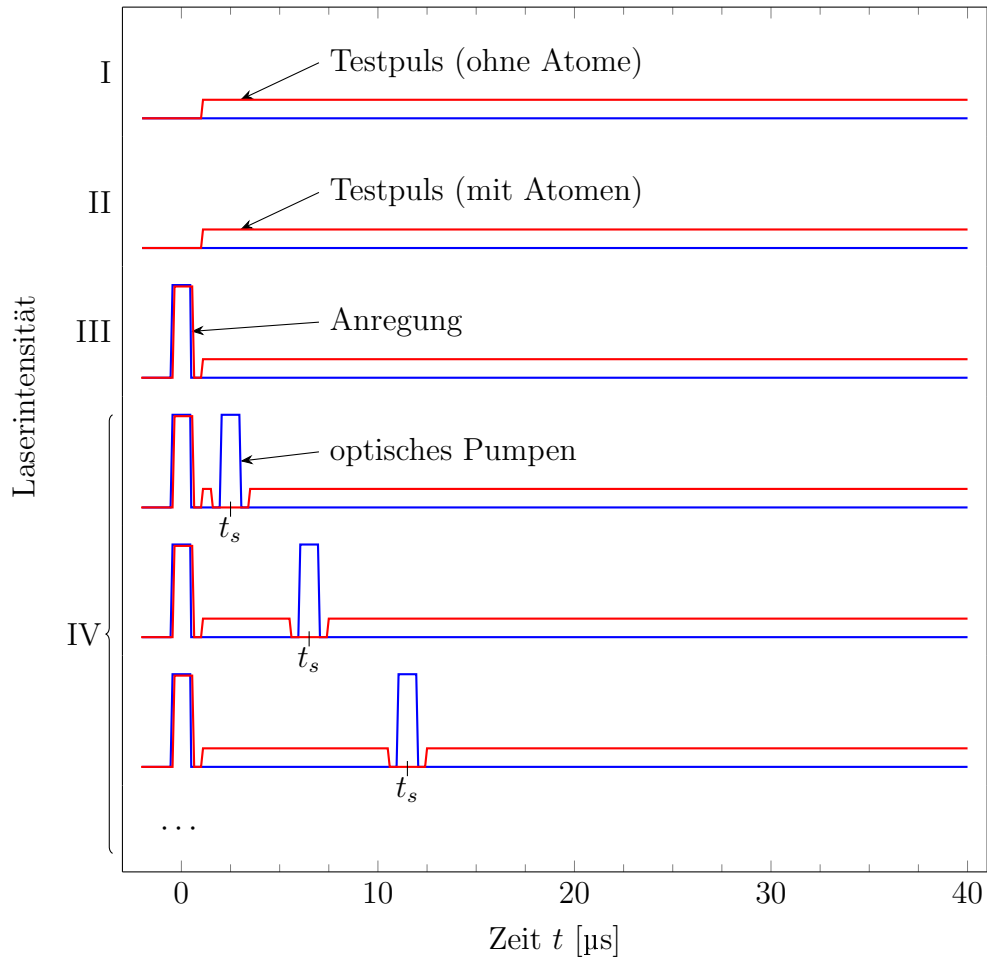


Abbildung 5.1: Pulsfolgen des Test- (rot) und Kopplungslasers (blau) für die optische Lebensdauerermessung für die Schritte I bis IV des Messschemas. Für die Messung des Lichtintensitäts- (Schritt I) und atomaren Absorptionssignals (ab Schritt II) erfolgte ein mehrere $100 \mu\text{s}$ langer Puls (nur Beginn dargestellt) mit niedriger Intensität des Testlasers, für die Anregung von Rydbergatomen ab Schritt III zum Zeitpunkt $t = 0$ kurze ($1 \mu\text{s}$) Pulse beider Laser zeitgleich mit hoher Intensität. In Schritt IV, der mehrfach wiederholt wurde, erfolgte nach variablen Zeiten t_s ein optisches Pumpen (Dauer ebenfalls $1 \mu\text{s}$) mit dem Kopplungslaser, während dessen der Testlaser-Puls unterbrochen wurde.

dianz auch in weiteren Zuständen befinden, die nicht zur optischen Dichte beitragen. Aus dem Verhältnis der optischen Dichten ohne und mit Anregung ließ sich damit die Größe

$$p_{\neq g}(t) = 1 - \frac{OD_{(\text{mit Anregung})}(t)}{OD_{(\text{ohne Anregung})}(t)} \quad (5.1)$$

bestimmen, die den Anteil der Atome angibt, die aufgrund der Anregung im Grundzustand $|g\rangle$ fehlten (vgl. die berechneten Kurven $|g\rangle$ in Abb. 2.1 für die Populationen $p_g(t)$). Der zeitliche Verlauf von $p_{\neq g}(t)$ zeigt den Zerfall der Atome zurück in den Grundzustand (siehe Kurve III in Abb. 5.2 (a)). Wie bereits in Kapitel 2.1 angemerkt entspricht dieser Zerfall allerdings nicht direkt der Lebensdauer von $|r_1\rangle$, sondern dem kumulativen Zerfall aller Zustände, die während dieser Zeit besetzt werden. Um nun die tatsächliche Lebensdauer von $|r_1\rangle$ zu bestimmen, wurde in Schritt IV, wie in Abb. 5.1 illustriert, zu einem Zeitpunkt t_s mittels eines kurzen Pulses des Kopplungslasers ein Anteil α der Rydbergatome, die sich zu diesem Zeitpunkt in $|r_1\rangle$ befinden, in den $|e\rangle$ -Zustand gepumpt, der auf einer schnellen Zeitskala (hier $\tau_e = 27$ ns) zurück in den Grundzustand $|g\rangle$ zerfällt. Um ein erneutes Besetzen von $|r_1\rangle$ zu verhindern, musste während dieses Pulses der Testlaser ausgeschaltet sein. Nach dem Puls wurde der Testlaser wieder eingeschaltet und analog zur Vorgehensweise in Schritt III die nun aus $|g\rangle$ fehlende Population bestimmt (im Folgenden als $p_{\neq g,s}(t)$ bezeichnet, siehe Kurven IV in Abb. 5.2 (a)). Die Differenz zum Ergebnis aus Schritt III zum Zeitpunkt t_s muss dabei ausschließlich auf Atome in $|r_1\rangle$ zurückzuführen sein, woraus sich die Population in diesem Zustand und zu diesem Zeitpunkt (bis auf den konstanten Faktor α) bestimmen ließ:

$$\alpha p_{r_1}(t_s) = p_{\neq g}(t_s) - p_{\neq g,s}(t_s) \quad (5.2)$$

Schritt IV wurde nun für eine Reihe verschiedener Werte von t_s wiederholt, und so aus den jeweils gewonnenen $\alpha p_{r_1}(t_s)$ der ursprünglich gesuchte Zerfall von $|r_1\rangle$ in diskreten Zeitschritten t_s gewonnen, woraus wiederum durch Annahme eines exponentiellen Zerfalls die tatsächliche Lebensdauer von $\tau_{30S_{1/2}} = 14,3(6)$ μs ($\pm 1,0$ μs syst. Fehler), bestimmt werden konnte (Kurve „300 K“ in Abb. 5.2 (c)). Dieser Wert stimmt im Rahmen der Messgenauigkeit mit dem bisher mit der SFI-Technik gemessenen Wert von $\tau_{30S_{1/2}} = 14,5(12)$ μs aus Nascimento u. a. [71] überein und zeigt zudem eine vergleichbare Genauigkeit.

5.2 Beobachtung von Lebensdauererlängerung und -verkürzung

Durch die Absenkung der Temperatur der die Atome umgebenden Oberflächen konnte der Einfluss der Schwarzkörperstrahlung untersucht werden. Die Geometrie dieser Oberflächen ist in Abb. 3.3 skizziert und deckt rechnerisch einen Raumwinkel von $4\pi \cdot 0,87$ ab. Der übrige Teil des vollen Raumwinkels muss als 300 K der weiter außen liegenden Kammerwände und -fenster angenommen werden. Weiterhin kann lediglich von der in der Abbildung weiß

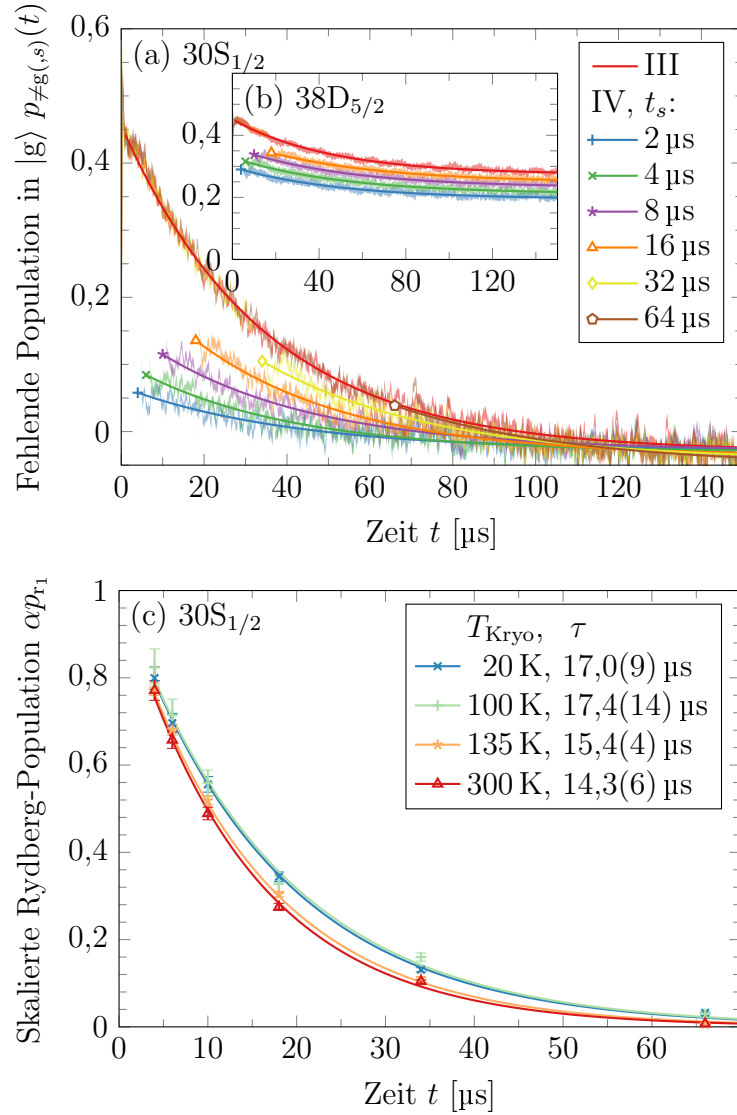


Abbildung 5.2: (a): Farbige Bereiche: Zeitabhängige Messung des Anteils der Atome bei $T_{\text{Kryo}} = 300\text{ K}$, die nach der Anregung in den $30S_{1/2}$ -Rydbergzustand aus dem Grundzustand $|g\rangle$ fehlen, $p_{\neq g}(t)$ (Schritt III) und mit optischem Pumpen zu verschiedenen Zeitpunkten t_s , $p_{\neq g,s}(t)$ (Schritt IV). Linien und Symbole: Fits von exponentiellen Zerfällen an die Messkurven und daraus bestimmte Punkte $p_{\neq g,s}(t_s)$. (b): (Inset) Wie in (a) für eine Anregung in den $38D_{5/2}$ -Zustand bei $T_{\text{Kryo}} = 160\text{ K}$. Ein großer Anteil der Atome kehrt auch nach langen Zeiten nicht wieder in den Grundzustand zurück, der fehlende Anteil wiederum ist abhängig von der Zeit des optischen Pumpens t_s . (c): Gemessene Populationen $p_{r_1}(t_s)$ des $30S_{1/2}$ -Zustands bei Kryostatentemperaturen im Bereich zwischen $T_{\text{Kryo}} = 20\text{ K}$ und 300 K , bestimmt aus Zwischenergebnissen wie in (a). Die Linien sind Anpassungen an exponentielle Zerfallskurven, deren Zerfallsparameter τ der Lebensdauer des $|r_1\rangle$ -Zustands entspricht. Zu den angegebenen Unsicherheiten aus der Anpassung muss ein alle Messungen gleichermaßen betreffender systematischer Fehler von $\pm 1\ \mu\text{s}$ addiert werden. (Aus: Fig. 3 in Mack u. a. [6])

markierten Oberfläche angenommen werden, dass sich diese tatsächlich bei der am Kryostaten eingestellten Temperatur T_{Kryo} befand. Die weiteren Oberflächen waren thermisch nicht perfekt angekoppelt und weisen erwartungsgemäß eine leicht höhere Temperatur auf. Für eine bessere Reduktion der Schwarzkörperstrahlung muss in einem speziell dafür entwickelten experimentellen Aufbau neben einer vollständigen räumlichen Abschirmung außerdem verhindert werden, dass sich durch die Anordnung von leitenden Oberflächen ein Mikrowellenresonator bildet. Das gilt insbesondere dann, wenn sich die Abmessungen der Hohlräume in der Größenordnung der Mikrowellenübergänge zwischen den relevanten Rydbergzuständen befinden, und damit die thermische Verteilungsfunktion aus Gl. 2.4 nicht mehr gültig ist [38].

Die Ergebnisse der Lebensdauermessung und -auswertung bei Temperaturen T_{Kryo} von 20 K bis 300 K sind in Abb. 5.2 dargestellt. Dabei konnte eine Verlängerung der Lebensdauer des $^{87}\text{Rb } 30\text{S}_{1/2}$ -Zustands von $\tau = 14,3(6) \mu\text{s}$ bei $T_{\text{Kryo}} = 300 \text{ K}$ auf $\tau = 17,0(9) \mu\text{s}$ bei $T_{\text{Kryo}} = 20 \text{ K}$ gemessen werden (zzgl. $\pm 1,0 \mu\text{s}$ systematischer Fehler, der alle Messungen gleichermaßen betrifft). Verglichen mit dem berechneten Literaturwert von $\tau = 26,6 \mu\text{s}$ bei $T = 0 \text{ K}$ aus Beterov u. a. [74] ist dieser Anstieg moderat, wenn auch plausibel aufgrund der unvollständigen Abschirmung im verwendeten Aufbau. Um eine Beeinflussung der gemessenen Lebensdauer aufgrund von dichteabhängigen (Vielteilchen-) Wechselwirkungen auszuschließen, wurden die Messungen mit einer verkürzten Flugzeit von 12 ms statt 20,5 ms, entsprechend mehr als einer Verdoppelung der atomaren Dichte, wiederholt, und im Rahmen der Messgenauigkeit keine Abweichungen festgestellt.

Dass solche Wechselwirkungen durchaus einen Einfluss zeigen können und dieser Einfluss mithilfe der optischen Lebensdauer-Messmethode quantitativ bestimmt werden kann, konnte anhand von Messungen des $38\text{D}_{5/2}$ -Zustands gezeigt werden. Die Zwischenergebnisse für $p_{\neq g(s)}(t_s)$ der Auswertung der Lebensdauermessung dieses Zustands sind in Abb. 5.2 (b) gezeigt. Hier fällt im Gegensatz zur Messung des S-Zustands auf, dass nicht alle Atome wieder zurück in den Grundzustand fallen, sondern von ca. 45 % ursprünglich angeregter Atome auch nach deutlich über 100 μs noch 20 % bis 30 % der Atome fehlen, und dabei umso weniger, je früher das optische Pumpen in Schritt IV stattgefunden hat. Dies lässt darauf zurück schließen, dass der Verlust der Atome mit der Zeitdauer, die diese sich im Rydbergzustand befinden, skaliert. Weitere Messungen haben gezeigt, dass die Verluste mit zunehmender Hauptquantenzahl im Bereich zwischen $n = 38$ und $n = 44$, bei jeweils derselben Dichte, zunehmen. Dasselbe gilt bei konstantem n mit zunehmender Dichte. Dieser Umstand, sowie die Tatsache, dass bei derselben Dichte für S-Zustände der Verlust nicht beobachtet werden konnte, legen es nahe, dass der Effekt auf eine attraktive Dipol-Dipol-Wechselwirkungen zurückzuführen ist, die zu Kollisionen und damit zu Ionisierung der Rydbergatome führt [79]. Um diese Hypothese zu prüfen, wurden Simulationen der Dipol-Dipol-Wechselwirkung für die angesprochenen Zustände sowie ein in der Messung vorliegendes elektrisches Restfeld von $0,5 \text{ V cm}^{-1}$ durchgeführt, die eine zunehmende Stärke der attraktiven Wechselwirkung für die $n\text{D}$ -Zustände, sowie eine schwache repulsive Wechselwirkung für den 30S -Zustand

zeigen, im Einklang mit den gemessenen Ergebnissen.

Für den $38D_{5/2}$ -Zustand einschließlich der Verluste beträgt die gemessene Lebensdauer $13(4) \mu\text{s}$ bei $T_{\text{Kryo}} = 160 \text{ K}$, was trotz kälterer Umgebungstemperatur eine deutliche Verkürzung gegenüber des Literaturwerts bei Raumtemperatur von $\tau = 30(2) \mu\text{s}$ (aus Abb. 2 in Nascimento u. a. [71]) bedeutet. Es kann davon ausgegangen werden, dass hierfür auch die oben erwähnten Kollisionen verantwortlich sind, wobei zusätzliche Effekte wie Superradianz nicht ausgeschlossen sind.

Das in diesem Kapitel vorgestellte Messschema sowie die damit durchgeführten Beobachtungen von Einflüssen auf die der Lebensdauern wurden in Mack u. a. [6] veröffentlicht (Abdruck in Anhang A).

6 Fazit und Ausblick

In dieser Arbeit konnte die Genauigkeit, mit der grundlegende Eigenschaften der Struktur von Rubidium-Rydbergatomen bekannt sind, teils deutlich verbessert werden. Durch die hohe Sensitivität des Valenzelektrons im Rydbergzustand ist es möglich, über den sonst schwer zugänglichen Bereich des Atomrumpfs Information zu gewinnen, was mit den vorgestellten neuen Werten für die Bindungsenergie und dem verbesserten effektiven Einelektronenpotential in Kapitel 2 gezeigt wurde. Das in Kapitel 2.3 vorgestellte Potential spiegelt die Fortschritte der empirischen Daten seit Marinescu u. a. [50] (1994) wieder, das bisher in den Fällen, in denen eine möglichst hohe Genauigkeit benötigt wurde, zum Einsatz kam [24, 51, 81]. Da die Genauigkeit der Messungen unter anderem durch die Frequenzstabilität des verwendeten Lasersystems begrenzt waren, sollten weitere Verbesserungen möglich sein. Von zukünftigem Interesse ist dabei insbesondere ein direkter Vergleich z.B. zwischen den Rubidium-Isotopen ^{85}Rb und ^{87}Rb , der vor allem über den Teil des Potentials in der Nähe des Atomrumpfs neue Erkenntnisse liefern kann. Die nun mit hoher Genauigkeit bekannten absoluten Laserfrequenzen, die für Rydberganregungen von ^{87}Rb -Atomen notwendig sind, in Kombination mit der Verfügbarkeit von präzisen Wellenlängenmessgeräten, vereinfachen die Adressierung von Rydbergzuständen im Labor. Über die elektrischen Dipolmatrixelemente gehen die verbesserten Werte in praktisch alle Berechnungen der relevanten Wechselwirkungen von Rydbergatomen ein. Die Qualität der Berechnungen ist u.a. durch die Genauigkeit der eingehenden empirischen Daten begrenzt, da für Alkalimetall-Atome keine *Ab-initio*-Berechnung möglich ist (siehe Kapitel 2). Die Berechnung der Dipolmatrixelemente zwischen energetisch naheliegenden Rydbergniveaus konnte in dieser Arbeit durch genaue Messungen des Stark-Effekts experimentell verifiziert werden (Kap. 3). Diese gehen mit identischen Zahlenwerten auch in Berechnungen der Schwarzkörperstrahlung ein, welche die Lebensdauern verkürzt. Aber auch beispielsweise die dem Effekt der Dipolblockade zugrundeliegende Dipol-Dipol-Wechselwirkung, deren Berechnung [68, 82, 83] und Messung [84–86] ebenfalls Gegenstand aktueller Forschung sind, einschließlich höherer Terme der Multipolentwicklung wie Quadrupol-Anteile, hängen direkt von diesen Werten bzw. den zugrundeliegenden Wellenfunktionen ab, so dass dadurch in Zukunft ggf. präzisere Vorhersagen des Blockadeeffekts ermöglicht werden können.

Weiterhin wurde in dieser Arbeit demonstriert, dass auch die Lebensdauern und Populationen auch auf rein optischem Wege gemessen werden können (Kap. 4 und 5). Damit steht nun eine Alternative für einen großen Teil der für die Charakterisierung eines Systems mit Rydbergatomen fundamentalen Messungen, die bisher mit SFI durchgeführt wurden,

bereit. Ebenfalls demonstriert werden konnte die Quantifizierung der Einflüsse von Wechselwirkungen auf die Lebensdauern, wie die Effekte der Schwarzkörperstrahlung und der Kollisionen, die durch die Dipol-Dipol-Wechselwirkung verursacht werden. Die optischen Techniken öffnen Perspektiven in Richtung einer Miniaturisierung der Systeme (mit inhärent vereinfachter Skalierbarkeit), die bisher aufgrund der für Ionendetektion notwendigen Hochspannungen nicht in Frage gekommen wären, und z.B. auf Basis von Atomchips realisiert werden können [35]. Kombiniert man die optischen Messtechniken mit den berechneten bzw. gemessenen Werten für die Lebensdauern, einschließlich durch Schwarzkörperstrahlung und andere Wechselwirkungen verursachte Übergangsraten, sind durch diese Arbeit realitätsgetreue Simulationen der Dynamik schwach wechselwirkender Rydberg-Systeme auf dem höchsten zur Zeit erreichbaren Level durchführbar geworden. Mithilfe der EIT-basierten Messmethode aus Kapitel 4 sind prinzipiell auch direkt kohärente Überlagerungszustände von statistischen Gemischen unterscheidbar [4] und mit Simulationen der Dynamik der Kohärenz vergleichbar. Der experimentelle Nachweis dazu steht allerdings noch aus. Für die Umsetzung von Protokollen der Quanteninformationsverarbeitung, wie z.B. dem vorgeschlagenen Quantengatter von Petrosyan und Fleischhauer [37], spielen benachbarte, über einen Mikrowellen-Resonator gekoppelte Rydbergniveaus eine Rolle, welche mit den optischen Detektionstechniken direkt aufgelöst werden können. Auch für komplexe Systeme, z.B. in einem Millikelvin-Kryostaten [80], in denen in Zukunft die Übertragung von Quanteninformation von Festkörper-Qubits auf Rydbergatome und zurück realisiert werden könnte, sind die hier entwickelten optischen Techniken einsetzbar und stellen eine möglicherweise entscheidende technische Vereinfachung dar. Von großer Relevanz ist dabei als einer der ersten Schritte die Charakterisierung der Rydbergzustände des Atoms in Abhängigkeit von ihrer Kopplung an den Resonator, also konkret die Messung ihrer Lebensdauern und eventueller Linienverschiebungen. Eine Möglichkeit zur Erweiterung der optischen Detektionstechniken besteht in der Kombination mit zusätzlichen resonanten Mikrowellen-Zustandstransfers, wodurch die Populationsdynamik von beiden gekoppelten Zuständen im selben System zeitgleich gemessen werden kann. Diese Erweiterung ist auch für eine genauere Untersuchung der Populationstransfers z.B. durch Superradianz von Interesse, um diese deutlicher von anderen Effekten wie der Schwarzkörperstrahlung unterscheiden und auf dieser Grundlage die Modelle für die Simulationen der Populationsdynamik im wechselwirkenden System weiter verfeinern zu können.

Die in dieser und anderen Arbeiten durchgeführten Experimente an Oberflächen (Kap. 3) haben gezeigt, dass Oberflächenadsorbate signifikante elektrische Dipolfelder [87] und daraus resultierende Linienverschiebungen von Rydberg-Spektrallinien verursachen [2, 53, 60]. In den Messungen aus Kap. 3.2 wurde gezeigt, dass dies durch die zeitlichen Veränderungen der Feldstärken ein ernsthaftes Hindernis für die Realisierung von Systemen wie dem aus Petrosyan und Fleischhauer [37], in denen Atome in das Modenvolumen eines Streifenleiter-Resonators gebracht werden sollen, darstellen kann, solange sich kein Gleichgewicht durch Sättigung der Oberflächendipole einstellt. Dass eine kohärente Manipulation von Atomen

in der Nähe kryogen gekühlter metallischer Oberflächen prinzipiell möglich ist, wurde mit einem Strahl von Heliumatomen vor Kurzem demonstriert [88]. Zum Umgang mit dem Problem der Oberflächenadsorbate wurden neben der Kontrolle der Zahl von adsorbierbaren Atomen und Beeinflussung der Adsorption durch Wahl einer geeigneten Oberflächentemperatur mehrere Möglichkeiten vorgeschlagen, wie z.B. die Reduzierung der Empfindlichkeit auf elektrische Felder mithilfe von nichtresonanter Mikrowellenstrahlung [89] oder die Beschichtung der Oberflächen mit einer dünnen Rubidiumsicht [90], um den Einfluss von adsorbierten Rubidiumatomen praktisch vollständig zu eliminieren.

Ob sich mithilfe von Rydbergatomen letztendlich ein praktisch einsetzbares System zur Durchführung von Quantensimulationen oder -berechnungen realisieren lassen wird, ist noch nicht absehbar. Die Voraussetzungen dafür erscheinen allerdings mehr und mehr gegeben, insbesondere im Hinblick auf die immer besser werdende Kenntnis und Kontrollierbarkeit der relevanten Wechselwirkungen und der zugrundeliegenden quantenmechanischen Eigenschaften, wie sie unter anderem in dieser Arbeit vorangetrieben wurden.

Literatur

- [1] M. Mack, F. Karlewski, H. Hattermann, S. Höckh, F. Jessen, D. Cano und J. Fortágh, „Measurement of absolute transition frequencies of ^{87}Rb to nS and nD Rydberg states by means of electromagnetically induced transparency“, *Phys. Rev. A* **83**, 052515 (2011).
- [2] H. Hattermann, M. Mack, F. Karlewski, F. Jessen, D. Cano und J. Fortágh, „Detrimental adsorbate fields in experiments with cold Rydberg gases near surfaces“, *Phys. Rev. A* **86**, 022511 (2012).
- [3] A. Sanayei, N. Schopohl, J. Grimmel, M. Mack, F. Karlewski und J. Fortágh, „Quasi-classical quantum defect theory and the spectrum of highly excited rubidium atoms“, *Phys. Rev. A* **91**, 032509 (2015).
- [4] F. Karlewski, M. Mack, J. Grimmel, N. Sándor und J. Fortágh, „State-selective all-optical detection of Rydberg atoms“, *Phys. Rev. A* **91**, 043422 (2015).
- [5] J. Grimmel, M. Mack, F. Karlewski, F. Jessen, M. Reinschmidt, N. Sándor und J. Fortágh, „Measurement and numerical calculation of Rubidium Rydberg Stark spectra“, *New J. Phys.* **17**, 053005 (2015).
- [6] M. Mack, J. Grimmel, F. Karlewski, L. Sárkány, H. Hattermann und J. Fortágh, „All-optical measurement of Rydberg-state lifetimes“, *Phys. Rev. A* **92**, 012517 (2015).
- [7] R. P. Feynman, „Simulating physics with computers“, *Int. J. Theor. Phys.* **21**, 467–488 (1982).
- [8] P. Shor, „Algorithms for quantum computation: discrete logarithms and factoring“, *Proc. Annu. Symp. Found. Comput. Sci.* 124–134 (1994).
- [9] M. A. Nielsen und I. L. Chuang, *Quantum computation and quantum information*, 10th anniversary ed, Cambridge University Press, 2010, Online–Ressource (1 v. p.)
- [10] D. P. DiVincenzo, „The Physical Implementation of Quantum Computation“, *Fortschr. Phys.* **48**, 771–783 (2000).
- [11] N. A. Gershenfeld und I. L. Chuang, „Bulk Spin-Resonance Quantum Computation“, *Science* **275**, 350–356 (1997).
- [12] I. L. Chuang, L. M. K. Vandersypen, X. Zhou, D. W. Leung und S. Lloyd, „Experimental realization of a quantum algorithm“, *Nature* **393**, 143 (1998).
- [13] E. Biolatti, R. C. Iotti, P. Zanardi und F. Rossi, „Quantum Information Processing with Semiconductor Macroatoms“, *Phys. Rev. Lett.* **85**, 5647 (2000).
- [14] X. Li, Y. Wu, D. Steel, D. Gammon, T. H. Stievater, D. S. Katzer, D. Park, C. Piermarocchi und L. J. Sham, „An All-Optical Quantum Gate in a Semiconductor Quantum Dot“, *Science* **301**, 809–811 (2003).
- [15] Y. Makhlin, G. Schön und A. Shnirman, „Quantum-state engineering with Josephson-junction devices“, *Rev. Mod. Phys.* **73**, 357–400 (2001).
- [16] J. Clarke und F. K. Wilhelm, „Superconducting quantum bits“, *Nature* **453**, 1031 (2008).

- [17] L. DiCarlo, J. M. Chow, J. M. Gambetta, L. S. Bishop, B. R. Johnson, D. I. Schuster, J. Majer, A. Blais, L. Frunzio, S. M. Girvin und R. J. Schoelkopf, „Demonstration of two-qubit algorithms with a superconducting quantum processor“, *Nature* **460**, 240 (2009).
- [18] E. Knill, R. Laflamme und G. J. Milburn, „A scheme for efficient quantum computation with linear optics“, *Nature* **409**, 46 (2001).
- [19] R. Blatt und D. Wineland, „Entangled states of trapped atomic ions“, *Nature* **453**, 1008 (2008).
- [20] D. J. Wineland, „Nobel Lecture: Superposition, entanglement, and raising Schrödinger’s cat“, *Rev. Mod. Phys.* **85**, 1103–1114 (2013).
- [21] S. Haroche, „Nobel Lecture: Controlling photons in a box and exploring the quantum to classical boundary“, *Rev. Mod. Phys.* **85**, 1083–1102 (2013).
- [22] J. M. Raimond, M. Brune und S. Haroche, „Manipulating quantum entanglement with atoms and photons in a cavity“, *Rev. Mod. Phys.* **73**, 565–582 (2001).
- [23] D. Jaksch, J. I. Cirac, P. Zoller, S. L. Rolston, R. Côté und M. D. Lukin, „Fast Quantum Gates for Neutral Atoms“, *Phys. Rev. Lett.* **85**, 2208–2211 (2000).
- [24] M. Saffman, T. G. Walker und K. Mølmer, „Quantum information with Rydberg atoms“, *Rev. Mod. Phys.* **82**, 2313–2363 (2010).
- [25] D. Comparat und P. Pillet, „Dipole blockade in a cold Rydberg atomic sample (Invited)“, *J. Opt. Soc. Am. B* **27**, A208–A232 (2010).
- [26] L. Isenhower, E. Urban, X. L. Zhang, A. T. Gill, T. Henage, T. A. Johnson, T. G. Walker und M. Saffman, „Demonstration of a Neutral Atom Controlled-NOT Quantum Gate“, *Phys. Rev. Lett.* **104**, 010503 (2010).
- [27] T. Wilk, A. Gaëtan, C. Evellin, J. Wolters, Y. Miroshnychenko, P. Grangier und A. Browaeys, „Entanglement of Two Individual Neutral Atoms Using Rydberg Blockade“, *Phys. Rev. Lett.* **104**, 010502 (2010).
- [28] K. Singer, M. Reetz-Lamour, T. Amthor, L. G. Marcassa und M. Weidemüller, „Suppression of Excitation and Spectral Broadening Induced by Interactions in a Cold Gas of Rydberg Atoms“, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 163001 (2004).
- [29] D. Tong, S. M. Farooqi, E. G. M. van Kempen, Z. Pavlovic, J. Stanojevic, R. Côté, E. E. Eyler und P. L. Gould, „Observation of electric quadrupole transitions to Rydberg nd states of ultracold rubidium atoms“, *Phys. Rev. A* **79**, 052509 (2009).
- [30] M. D. Lukin, M. Fleischhauer, R. Cote, L. M. Duan, D. Jaksch, J. I. Cirac und P. Zoller, „Dipole Blockade and Quantum Information Processing in Mesoscopic Atomic Ensembles“, *Phys. Rev. Lett.* **87**, 037901 (2001).
- [31] Y. O. Dudin, L. Li, F. Bariani und A. Kuzmich, „Observation of coherent many-body Rabi oscillations“, *Nat. Phys.* **8**, 790–794 (2012).
- [32] D. Petrosyan, G. Bensky, G. Kurizki, I. Mazets, J. Majer und J. Schmiedmayer, „Reversible state transfer between superconducting qubits and atomic ensembles“, *Phys. Rev. A* **79**, 040304 (2009).
- [33] M. Wallquist, K. Hammerer, P. Rabl, M. Lukin und P. Zoller, „Hybrid quantum devices and quantum engineering“, *Physica Scripta* **2009**, 014001 (2009).
- [34] J. D. Pritchard, J. A. Isaacs, M. A. Beck, R. McDermott und M. Saffman, „Hybrid atom-photon quantum gate in a superconducting microwave resonator“, *Phys. Rev. A* **89**, 010301 (2014).

- [35] J. Fortágh und C. Zimmermann, „Magnetic microtraps for ultracold atoms“, *Rev. Mod. Phys.* **79**, 235 (2007).
- [36] S. Bernon, H. Hattermann, D. Bothner, M. Knufinke, P. Weiss, F. Jessen, D. Cano, M. Kemmler, R. Kleiner, D. Koelle und J. Fortágh, „Manipulation and coherence of ultra-cold atoms on a superconducting atom chip“, *Nat. Commun.* **4**, 2380 (2013).
- [37] D. Petrosyan und M. Fleischhauer, „Quantum Information Processing with Single Photons and Atomic Ensembles in Microwave Coplanar Waveguide Resonators“, *Phys. Rev. Lett.* **100**, 170501 (2008).
- [38] T. F. Gallagher, *Rydberg atoms*, 1. publ., Cambridge Univ. Press, 1994, XIV, 495 S.
- [39] W. Li, I. Mourachko, M. W. Noel und T. F. Gallagher, „Millimeter-wave spectroscopy of cold Rb Rydberg atoms in a magneto-optical trap: Quantum defects of the ns , np , and nd series“, *Phys. Rev. A* **67**, 052502 (2003).
- [40] A. Tauschinsky, R. Newell, H. B. van Linden van den Heuvell und R. J. C. Spreeuw, „Measurement of ^{87}Rb Rydberg-state hyperfine splitting in a room-temperature vapor cell“, *Phys. Rev. A* **87**, 042522 (2013).
- [41] M. Fleischhauer, A. Imamoglu und J. Marangos, „Electromagnetically induced transparency: Optics in coherent media“, *Rev. Mod. Phys.* **77**, 633 (2005).
- [42] A. K. Mohapatra, T. R. Jackson und C. S. Adams, „Coherent Optical Detection of Highly Excited Rydberg States Using Electromagnetically Induced Transparency“, *Phys. Rev. Lett.* **98**, 113003 (2007).
- [43] T. W. Hänsch, „Nobel Lecture: Passion for precision“, *Rev. Mod. Phys.* **78**, 1297–1309 (2006).
- [44] L. Aldridge, P. L. Gould und E. E. Eyler, „Experimental isotope shifts of the $5^2S_{1/2}$ state and low-lying excited states of Rb“, *Phys. Rev. A* **84**, 034501 (2011).
- [45] J. Ye, S. Swartz, P. Jungner und J. L. Hall, „Hyperfine structure and absolute frequency of the $87\text{Rb } 5P_{3/2}$ state“, *Opt. Lett.* **21**, 1280–1282 (1996).
- [46] J. Han, Y. Jamil, D. V. L. Norum, P. J. Tanner und T. F. Gallagher, „Rb nf quantum defects from millimeter-wave spectroscopy of cold ^{85}Rb Rydberg atoms“, *Phys. Rev. A* **74**, 054502 (2006).
- [47] J. E. Sansonetti, „Wavelengths, Transition Probabilities, and Energy Levels for the Spectra of Rubidium“, *J. Phys. Chem. Ref. Data* **35**, 301 (2006).
- [48] T. Mayer-Kuckuk, *Atomphysik: eine Einführung; mit 7 Tab. und 1 Spektraltafel*, 4., durchges. und erw. Aufl., Teubner, 1994, 272 S.
- [49] M. L. Zimmerman, M. G. Littman, M. M. Kash und D. Kleppner, „Stark structure of the Rydberg states of alkali-metal atoms“, *Phys. Rev. A* **20**, 2251 (1979).
- [50] M. Marinescu, H. R. Sadeghpour und A. Dalgarno, „Dispersion coefficients for alkali-metal dimers“, *Phys. Rev. A* **49**, 982 (1994).
- [51] M. Pawlak, N. Moiseyev und H. R. Sadeghpour, „Highly excited Rydberg states of a rubidium atom: Theory versus experiments“, *Phys. Rev. A* **89**, 042506 (2014).
- [52] C. Froese Fischer, T. Brage und P. Jönsson, *Computational atomic structure: An MCHF approach*, Institute of Physics Publishing, 1997.
- [53] A. Tauschinsky, R. M. T. Thijssen, S. Whitlock, H. B. van Linden van den Heuvell und R. J. C. Spreeuw, „Spatially resolved excitation of Rydberg atoms and surface effects on an atom chip“, *Phys. Rev. A* **81**, 063411 (2010).

- [54] H. A. Bethe und E. E. Salpeter, *Quantum mechanics of one- and two-electron atoms*, Springer, 1957, VIII, 368 S.
- [55] R. J. Damburg und V. V. Kolosov, „A hydrogen atom in a uniform electric field“, *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* **9**, 3149 (1976).
- [56] J. A. Crosse, S. Å. Ellingsen, K. Clements, S. Y. Buhmann und S. Scheel, „Thermal Casimir-Polder shifts in Rydberg atoms near metallic surfaces“, *Phys. Rev. A* **82**, 010901 (2010).
- [57] J. A. Crosse, S. Å. Ellingsen, K. Clements, S. Y. Buhmann und S. Scheel, „Erratum: Thermal Casimir-Polder shifts in Rydberg atoms near metallic surfaces [Phys. Rev. A **82**, 010901(R) (2010)]“, *Phys. Rev. A* **82**, 029902 (2010).
- [58] S. Chu, J. E. Bjorkholm, A. Ashkin und A. Cable, „Experimental Observation of Optically Trapped Atoms“, *Phys. Rev. Lett.* **57**, 314–317 (1986).
- [59] D. Cano, H. Hattermann, B. Kasch, C. Zimmermann, R. Kleiner, D. Koelle und J. Fortágh, „Experimental system for research on ultracold atomic gases near superconducting microstructures“, *Eur. Phys. J. D* **63**, 17 (2011).
- [60] K. S. Chan, M. Siercke, C. Hufnagel und R. Dumke, „Adsorbate Electric Fields on a Cryogenic Atom Chip“, *Phys. Rev. Lett.* **112**, 026101 (2014).
- [61] R. F. Stebbings, Hrsg., *Rydberg states of atoms and molecules*, Cambridge Univ. Pr., 1983, IX, 515 S.
- [62] D. B. Branden, T. Juhasz, T. Mahlokozera, C. Vesa, R. O. Wilson, M. Zheng, A. Kortyna und D. A. Tate, „Radiative lifetime measurements of rubidium Rydberg states“, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **43**, 015002 (2010).
- [63] G. Günter, M. Robert-de-Saint-Vincent, H. Schempp, C. S. Hofmann, S. Whitlock und M. Weidemüller, „Interaction Enhanced Imaging of Individual Rydberg Atoms in Dense Gases“, *Phys. Rev. Lett.* **108**, 013002 (2012).
- [64] G. Günter, H. Schempp, M. Robert-de-Saint-Vincent, V. Gavryusev, S. Helmrich, C. S. Hofmann, S. Whitlock und M. Weidemüller, „Observing the Dynamics of Dipole-Mediated Energy Transport by Interaction-Enhanced Imaging“, *Science* **342**, 954–956 (2013).
- [65] M. Gross und S. Haroche, „Superradiance: An essay on the theory of collective spontaneous emission“, *Physics Reports* **93**, 301 (1982).
- [66] T. Wang, S. F. Yelin, R. Côté, E. E. Eyler, S. M. Farooqi, P. L. Gould, M. Koštrun, D. Tong und D. Vrinceanu, „Superradiance in ultracold Rydberg gases“, *Phys. Rev. A* **75**, 033802 (2007).
- [67] J. O. Day, E. Brekke und T. G. Walker, „Dynamics of low-density ultracold Rydberg gases“, *Phys. Rev. A* **77**, 052712 (2008).
- [68] A. Reinhard, T. C. Liebisch, B. Knuffman und G. Raithel, „Level shifts of rubidium Rydberg states due to binary interactions“, *Phys. Rev. A* **75**, 032712 (2007).
- [69] W. R. Anderson, M. P. Robinson, J. D. D. Martin und T. F. Gallagher, „Dephasing of resonant energy transfer in a cold Rydberg gas“, *Phys. Rev. A* **65**, 063404 (2002).
- [70] A. L. de Oliveira, M. W. Mancini, V. S. Bagnato und L. G. Marcassa, „Measurement of Rydberg-state lifetimes using cold trapped atoms“, *Phys. Rev. A* **65**, 031401 (2002).
- [71] V. A. Nascimento, L. L. Caliri, A. L. de Oliveira, V. S. Bagnato und L. G. Marcassa, „Measurement of the lifetimes of S and D states below $n = 31$ using cold Rydberg gas“, *Phys. Rev. A* **74**, 054501 (2006).

- [72] D. A. Tate, „Comment on “Measurement of the lifetimes of S and D states below $n = 31$ using cold Rydberg gas”“, *Phys. Rev. A* **75**, 066502 (2007).
- [73] L. L. Caliri und L. G. Marcassa, „Reply to “Comment on ‘Measurement of the lifetimes of S and D states below $n = 31$ using cold Rydberg gas’”“, *Phys. Rev. A* **75**, 066503 (2007).
- [74] I. I. Beterov, I. I. Ryabtsev, D. B. Tretyakov und V. M. Entin, „Quasiclassical calculations of blackbody-radiation-induced depopulation rates and effective lifetimes of Rydberg nS , nP , and nD alkali-metal atoms with $n \leq 80$ “, *Phys. Rev. A* **79**, 052504 (2009).
- [75] W. P. Spencer, A. G. Vaidyanathan, D. Kleppner und T. W. Ducas, „Measurements of lifetimes of sodium Rydberg states in a cooled environment“, *Phys. Rev. A* **24**, 2513 (1981).
- [76] W. P. Spencer, A. G. Vaidyanathan, D. Kleppner und T. W. Ducas, „Temperature dependence of blackbody-radiation-induced transfer among highly excited states of sodium“, *Phys. Rev. A* **25**, 380 (1982).
- [77] K. Bergmann, H. Theuer und B. W. Shore, „Coherent population transfer among quantum states of atoms and molecules“, *Rev. Mod. Phys.* **70**, 1003–1025 (1998).
- [78] T. Cubel, B. K. Teo, V. S. Malinovsky, J. R. Guest, A. Reinhard, B. Knuffman, P. R. Berman und G. Raithel, „Coherent population transfer of ground-state atoms into Rydberg states“, *Phys. Rev. A* **72**, 023405 (2005).
- [79] W. Li, P. J. Tanner und T. F. Gallagher, „Dipole-Dipole Excitation and Ionization in an Ultracold Gas of Rydberg Atoms“, *Phys. Rev. Lett.* **94**, 173001 (2005).
- [80] F. Jessen, M. Knufinke, S. Bell, P. Vergien, H. Hattermann, P. Weiss, M. Rudolph, M. Reinschmidt, K. Meyer, T. Gaber, D. Cano, A. Günther, S. Bernon, D. Koelle, R. Kleiner und J. Fortágh, „Trapping of ultracold atoms in a $^3\text{He}/^4\text{He}$ dilution refrigerator“, *Appl. Phys. B* **116**, 665 (2014).
- [81] R. Löw, H. Weimer, J. Nipper, J. B. Balewski, B. Butscher, H. P. Büchler und T. Pfau, „An experimental and theoretical guide to strongly interacting Rydberg gases“, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **45**, 113001 (2012).
- [82] K. Singer, J. Stanojevic, M. Weidemüller und R. Côté, „Long-range interactions between alkali Rydberg atom pairs correlated to the ns - ns , np - np and nd - nd asymptotes“, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **38**, S295 (2005).
- [83] T. G. Walker und M. Saffman, „Consequences of Zeeman degeneracy for the van der Waals blockade between Rydberg atoms“, *Phys. Rev. A* **77**, 032723 (2008).
- [84] L. Béguin, A. Vernier, R. Chicireanu, T. Lahaye und A. Browaeys, „Direct Measurement of the van der Waals Interaction between Two Rydberg Atoms“, *Phys. Rev. Lett.* **110**, 263201 (2013).
- [85] J. Deiglmayr, H. Saßmannshausen, P. Pillet und F. Merkt, „Observation of Dipole-Quadrupole Interaction in an Ultracold Gas of Rydberg Atoms“, *Phys. Rev. Lett.* **113**, 193001 (2014).
- [86] S. Ravets, H. Labuhn, D. Barredo, T. Lahaye und A. Browaeys, „Measurement of the angular dependence of the dipole-dipole interaction between two individual Rydberg atoms at a Förster resonance“, *Phys. Rev. A* **92**, 020701 (2015).

- [87] J. M. McGuirk, D. M. Harber, J. M. Obrecht und E. A. Cornell, „Alkali-metal adsorbate polarization on conducting and insulating surfaces probed with Bose-Einstein condensates“, *Phys. Rev. A* **69**, 062905 (2004).
- [88] T. Thiele, S. Filipp, J. A. Agner, H. Schmutz, J. Deiglmayr, M. Stammeier, P. Allmendinger, F. Merkt und A. Wallraff, „Manipulating Rydberg atoms close to surfaces at cryogenic temperatures“, *Phys. Rev. A* **90**, 013414 (2014).
- [89] L. A. Jones, J. D. Carter und J. D. D. Martin, „Rydberg atoms with a reduced sensitivity to dc and low-frequency electric fields“, *Phys. Rev. A* **87**, 023423 (2013).
- [90] C. Hermann-Avigliano, R. C. Teixeira, T. L. Nguyen, T. Cantat-Moltrecht, G. Nogues, I. Dotsenko, S. Gleyzes, J. M. Raimond, S. Haroche und M. Brune, „Long coherence times for Rydberg qubits on a superconducting atom chip“, *Phys. Rev. A* **90**, 040502 (2014).

Anhang A

Publikationen

Publikation [1]

Measurement of absolute transition frequencies of ^{87}Rb to nS and nD Rydberg states by means of electromagnetically induced transparency

M. Mack, F. Karlewski, H. Hattermann, S. Höckh, F. Jessen, D. Cano, and J. Fortágh
Physical Review A **83**, 052515 (2011).

Publikation [2]

Detrimental adsorbate fields in experiments with cold Rydberg gases near surfaces

H. Hattermann, M. Mack, F. Karlewski, F. Jessen, D. Cano, and J. Fortágh
Physical Review A **86**, 022511 (2012).

Publikation [3]

Quasiclassical quantum defect theory and the spectrum of highly excited rubidium atoms

A. Sanayei and N. Schopohl,
J. Grimm, M. Mack, F. Karlewski, and J. Fortágh
Physical Review A **91**, 032509 (2015).

Publikation [4]

State-selective all-optical detection of Rydberg atoms

F. Karlewski, M. Mack, J. Grimm, N. Sándor, and J. Fortágh
Physical Review A **91**, 043422 (2015).

Publikation [5]

Measurement and numerical calculation of Rubidium Rydberg Stark spectra

J. Grimm, M. Mack, F. Karlewski, F. Jessen, M. Reinschmidt, N. Sándor, and J. Fortágh
New Journal of Physics **17**, 053005 (2015).

Publikation [6]

All-optical measurement of Rydberg-state lifetimes

M. Mack, J. Grimm, F. Karlewski, L. Sárkány, H. Hattermann and J. Fortágh
Physical Review A **92**, 012517 (2015).

Die Nachdrucke auf den folgenden Seiten erfolgen mit Genehmigungen der *American Physical Society* ([1–4, 6]) und von *IOP Publishing Ltd* und *Deutsche Physikalische Gesellschaft* ([5]).

Measurement of absolute transition frequencies of ^{87}Rb to nS and nD Rydberg states by means of electromagnetically induced transparency

Markus Mack,^{*} Florian Karlewski, Helge Hattermann, Simone Höckh, Florian Jessen, Daniel Cano, and József Fortágh[†]
*CQ Center for Collective Quantum Phenomena and their Applications, Physikalisches Institut, Eberhard-Karls-Universität Tübingen,
 Auf der Morgenstelle 14, D-72076 Tübingen, Germany*

(Received 23 February 2011; published 23 May 2011)

We report the measurement of absolute excitation frequencies of ^{87}Rb to nS and nD Rydberg states. The Rydberg transition frequencies are obtained by observing electromagnetically induced transparency on a rubidium vapor cell. The accuracy of the measurement of each state is $\lesssim 1$ MHz, which is achieved by frequency stabilizing the two diode lasers employed for the spectroscopy to a frequency comb and a frequency comb calibrated wavelength meter, respectively. Based on the spectroscopic data we determine the quantum defects of ^{87}Rb , and compare it with previous measurements on ^{85}Rb . We determine the ionization frequency from the $5S_{1/2}(F=1)$ ground state of ^{87}Rb to 1010.029 164 6(3) THz, providing the binding energy of the ground state with an accuracy improved by two orders of magnitude.

DOI: [10.1103/PhysRevA.83.052515](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.83.052515)

PACS number(s): 32.30.-r, 32.80.Rm, 32.80.Ee

I. INTRODUCTION

Rydberg atoms are attracting large research interest as their quantum state can be prepared and controlled with high precision and flexibility by means of electromagnetic fields [1]. Actual research subjects include cavity quantum electrodynamics [2], Rydberg-Rydberg interactions [3] with possible applications in quantum information processing [4], ultracold chemistry [5–7], and sensing dispersion forces between atoms and surfaces [8–10]. Due to their large polarizability, Rydberg atoms respond to static and dynamic electric fields with level shifts and are therefore sensitive to interactions with microscopic and macroscopic objects. For precision measurements of such interactions and accurate quantum state control, it is beneficial to know the unperturbed Rydberg energy levels that we quantify in the present paper for the ^{87}Rb atom, which is widely used in experiments.

In alkali-metal atoms, the deviation from the hydrogen energy structure can be expressed in terms of quantum defects δ [1]. If the quantum defects are known, the energy of Rydberg levels can be calculated with respect to the ionization limit. The quantum defects of the nS and nD lines of ^{85}Rb have been measured by Li *et al.* [11] using microwave excitation between Rydberg states. This method provides superior frequency resolution on the order of ~ 10 kHz; however, it does not serve as an absolute frequency reference. If, in addition, absolute transition frequencies between the ground and Rydberg states are known, the binding energy of the ground state can be determined.

Absolute measurements of the nS and nD lines of ^{85}Rb as well as the isotope shift for ^{87}Rb have been done by Stoicheff and Weinberger [12] using two-photon spectroscopy with an accuracy of 100 MHz. Higher accuracy measurements include the nF states of the ^{85}Rb isotope with an accuracy of 8 MHz [13] and on the nS levels of ^{85}Rb with an uncertainty greater than 6 MHz [14]. In the present work, we measure Rydberg transition frequencies of ^{87}Rb with an absolute

accuracy of $\lesssim 1$ MHz, which results from frequency stabilizing the lasers employed for the spectroscopy to absolute frequency references.

High-resolution spectroscopy of Rydberg states is possible by observing electromagnetically induced transparency (EIT) [15]. The detection of Rydberg states by means of EIT, and the measurement of the fine structure splitting of ^{85}Rb have been reported by Mohapatra *et al.* [16]. In the present work, we implement EIT for measuring the absolute frequency of Rydberg excitations of ^{87}Rb , from which we determine the quantum defects of the nS and nD levels and the ground-state ionization energy of this isotope.

II. EIT LEVEL SCHEME AND EXPERIMENTAL SETUP

The energy-level diagram of ^{87}Rb relevant for this work is shown in Fig. 1. The three-level system consists of the ^{87}Rb $5S_{1/2}(F=2)$ ground state, the $5P_{3/2}(F=3)$ intermediate state, and nS or nD Rydberg states with a high principal quantum number n . We observe EIT spectra on a rubidium vapor cell using two counterpropagating laser beams. The frequency of the “probe laser” is fixed at the $5S_{1/2}(F=2) \leftrightarrow 5P_{3/2}(F=3)$ transition, which is known to be 384.228 115 2 THz [17] ($\hat{=}$ 780.246 020 9 nm), while the “coupling laser” (≈ 480 nm) is scanned across the Rydberg resonance. We record EIT spectra by monitoring the probe laser transmission as a function of the coupling laser frequency.

The experimental setup is illustrated in Fig. 2. Absolute frequency measurements are achieved by referencing the probe and coupling laser frequencies to a frequency comb (Menlo Systems, FC 1500).

The source of the probe beam is a grating stabilized diode laser of ~ 500 kHz linewidth. The laser is stabilized to 780.246 020 9 nm by superimposing it with the beam of the frequency comb on a fast photodiode and locking the corresponding radio frequency beat signal with the nearest comb mode. The beat signal deviation, and thus the accuracy of the probe laser frequency, was maintained within 500 kHz.

^{*}mack@pit.physik.uni-tuebingen.de

[†]fortagh@uni-tuebingen.de

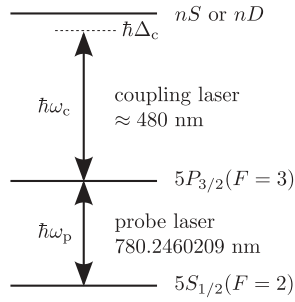


FIG. 1. Energy-level diagram of ^{87}Rb and corresponding laser wavelengths for observation of electromagnetically induced transparency using a Rydberg state. The probe laser is stabilized to the lower atomic resonance, while the coupling laser, with a variable detuning $\hbar\Delta_c$, is scanned across the Rydberg resonance.

The coupling beam at 480 nm is sourced from a frequency-doubled, grating-stabilized diode laser (Toptica, TA SHG Pro) at 960 nm of ~ 500 kHz linewidth. In order to access any desired coupling frequency, we stabilize the 960-nm laser to a Fizeau interferometer-based wavelength meter (HighFinesse, WS Ultimate-2). The wavelength meter with a built-in servo feedback unit measures frequency and controls the frequency scans of the coupling laser.

In order to assure the absolute accuracy of the wavelength meter, we perform an automated calibration procedure. A beat signal between the 960-nm laser and a known frequency comb mode is recorded with a digital spectrum analyzer. The beat frequency is determined by software peak recognition and the corresponding laser frequency is used to calibrate the wavelength meter. The resulting accuracy of frequency control by the calibrated wavelength meter was characterized with the frequency comb by exemplary measurements of the frequency offset with respect to the set frequency. We found the frequency offset after calibration approximately to be normally distributed with a standard deviation of 400 kHz.

The experimental sequence for recording EIT spectra on Rydberg levels is as follows. First, the wavelength meter is calibrated using the method described above. Second, a trigger is sent to the wavelength meter, that starts sweeping the coupling laser frequency (at most 12 MHz/s sweeping

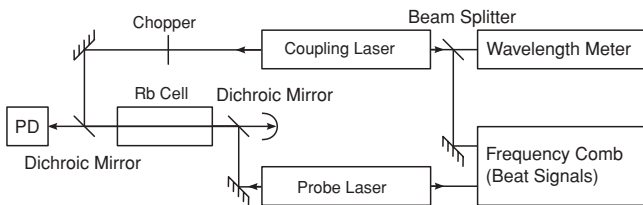


FIG. 2. Optical setup (schematic) for the observation of EIT in a rubidium vapor cell. The probe and coupling beams are counterpropagating in the rubidium vapor cell (heated to $\sim 45^\circ\text{C}$) and the probe laser intensity is monitored with a photodiode (PD). A chopper in the coupling laser beam provides a reference signal for lock-in detection of the photodiode signal. The probe laser is frequency stabilized to a frequency comb. The coupling beam at 480 nm comes from a frequency-doubled 960-nm laser that is stabilized and scanned by a wavelength meter. The wavelength meter is calibrated with the help of a frequency comb beat signal at 960 nm.

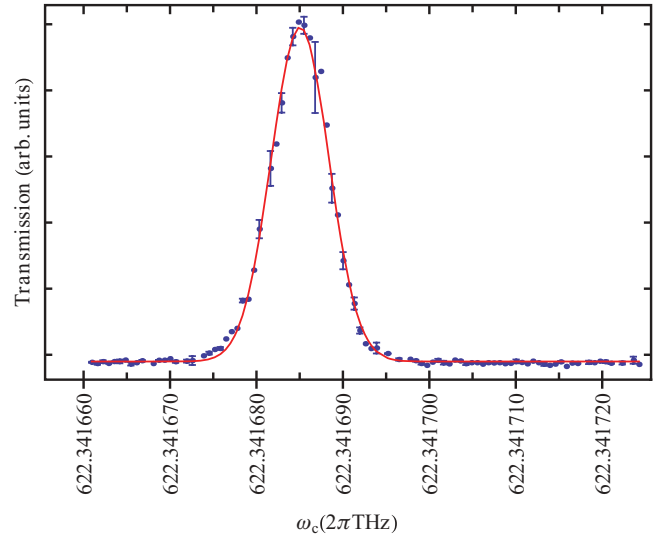


FIG. 3. (Color online) EIT resonance for the $34S_{1/2}$ Rydberg state (exemplary) as recorded by the photodiode, against the coupling laser frequency measured simultaneously by the wavelength meter. A Gaussian shape is fitted for peak frequency determination (solid line).

rate, 30 MHz span at ~ 960 nm), while recording the measured coupling laser frequency. The photodiode signal of the probe beam is recorded by a digital storage oscilloscope. If the scan range covers an EIT resonance, a sharp transmission peak is recorded. In order to detect weak EIT signals of high n states, the coupling laser beam is periodically blocked by a chopper wheel at a frequency of about 1 kHz, and the photodiode signal of the probe beam is recorded using a lock-in amplifier synchronized to the chopper. As both the laser frequency and the photodiode signal are recorded simultaneously, we obtain the probe laser transmission as a function of the coupling laser frequency as shown in Fig. 3. The measurement at each EIT resonance is fitted by a Gaussian function to determine the peak position. In order to reduce the statistical error, the measurement sequence is performed five times for each Rydberg level.

III. RYDBERG TRANSITION FREQUENCIES AND MEASUREMENT ACCURACY

Absolute frequencies of transitions $5P_{3/2}(F=3) \rightarrow nS_{1/2}(F=2)$, $5P_{3/2}(F=3) \rightarrow nD_{3/2}$, and $5P_{3/2}(F=3) \rightarrow nD_{5/2}$ of ^{87}Rb were observed for principal quantum numbers n in the range 19–65 (nS states) and 19–57 (nD states). The results are listed in Tables III, IV, and V (Appendix). We note that we were able to observe Rydberg states up to $n = 180$ with the help of the lock-in amplifier. Such highly excited Rydberg states, however, exhibit large linewidths and partially irregular line shapes, thus these are not analyzed in the present manuscript. For quantum defect calculations, we use only the data given in Tables III, IV, and V.

The uncertainty of the frequency data comprise several known error sources of physical and technical nature. The main error source arises from the frequency stabilization of the probe laser with an uncertainty of 500 kHz (see Sec. II).

A frequency deviation Δ_p from the atomic resonance ω_p leads to the excitation of atoms with a velocity of $v = c \frac{\Delta_p}{\omega_p}$. If Δ_p is small compared to the Doppler broadening, the EIT transmission peak appears at a coupling laser frequency shifted by $\Delta_c = \frac{v}{c} \omega_c = (\omega_c / \omega_p) \Delta_p$ with respect to the resonance frequency ω_c . Consequently, the uncertainty of the probe laser frequency translates into an uncertainty of $(780 \text{ nm}/480 \text{ nm}) \times 500 \text{ kHz} \approx 800 \text{ kHz}$ of the EIT peak position measured with the coupling laser.

The uncertainty of the coupling laser frequency enters the EIT peak determination with 200 kHz. This is less than the uncertainty of the frequency stabilization of this laser (400 kHz) because of the fivefold repetition of the frequency measurement (including calibration).

In our setup, the frequency of the comb modes can be determined with an absolute accuracy on the order of 10 kHz. This uncertainty is negligible with respect to other sources of error. The high accuracy of the frequency comb is achieved by a 10 MHz GPS disciplined rubidium frequency reference (Precision Test Systems, GPS10RBN) with a specified Allan deviation of 2×10^{-11} at 1 s observation time. The accuracy of the transfer of the rf reference frequency to optical frequencies was determined by Kubina *et al.* [18], who compared two similar frequency combs referenced to one common rf frequency standard, finding the optical frequencies that were measured with both combs to agree to a level of 6×10^{-16} .

The width of the observed EIT resonances is typically $\lesssim 10$ MHz. The linewidth of the lasers, technical noise, triggering precision, and physical deviations from the Gaussian line shape that has been used for finding the peak position contribute to the uncertainty of the measured resonance frequency as well. The overall uncertainty resulting from these effects was determined independently for each transition and was typically less than 300 kHz.

Despite the strong n^7 dependence of the polarizability [1], line shifts due to stray electric fields are not present in the vapor cell due to screening by ions and electrons on the inner surface of the glass cell [16]. We verified the screening in our setup for field strengths up to 470 V/cm and on Rydberg states up to $n = 150$. We observed line broadening due to external magnetic fields, which are in our setup on the order of the earth magnetic field, but no significant line shift or asymmetry of the resonance peak. Pressure shifts at a cell temperature of $\lesssim 45^\circ\text{C}$ are calculated to be less than 200 kHz [19].

IV. QUANTUM DEFECTS AND IONIZATION ENERGY

The energies of Rydberg levels [1] are given by

$$E_{n,l,j} = E_i - \frac{\mathcal{R}^*}{[n - \delta(n,l,j)]^2}, \quad (1)$$

where E_i is the ionization energy threshold and

$$\mathcal{R}^* = \frac{1}{1 + \frac{m_e}{m_{^{87}\text{Rb}}}} \mathcal{R}_\infty = h \cdot 3289.821\,194\,66(2) \text{ THz}$$

is the Rydberg constant, corrected for the reduced electron mass in ^{87}Rb .

For sufficiently large principal quantum numbers n , the quantum defects $\delta(n,l,j)$ depend only little on n and can be approximated by the modified Rydberg-Ritz parameters

$$\delta(n,l,j) \approx \delta_0 + \frac{\delta_2}{(n - \delta_0)^2}. \quad (2)$$

Within the accuracy of our measurements on $n \geq 19$ Rydberg states, the inclusion of higher-order terms in the approximation did not lead to improved results.

A precise measurement of the modified Rydberg-Ritz parameters for the nS , nP , and nD series of ^{85}Rb was performed by Li *et al.* [11]. By exciting microwave transitions between Rydberg levels ($n = 32$ up to 37) and subsequent detection by field ionization, the transition frequencies were determined with a resolution of up to 10 kHz. The ‘‘average’’ quantum defects $\delta(n, n+1)$ determined by this measurement were used to improve the value of quantum defects previously obtained by Lorenzen and Niemax [20].

Traditionally, the quantum defects are determined for the fine structure levels. The hyperfine splitting is negligible for nD states but not for nS states because of a nonzero probability amplitude at the position of the nucleus. In our measurements of nS states, only transitions to $F = 2$ states were observed because of selection rules. In order to obtain quantum defects for the fine structure, we need to consider the hyperfine shifts in the evaluation of our data.

The hyperfine splitting of states between $n = 28$ and 33 of both ^{85}Rb and ^{87}Rb was determined by Li *et al.* [11]. Using their data, we extrapolate the hyperfine splitting between the $nS_{1/2}(F = 1)$ and $(F = 2)$ states of ^{87}Rb according to a n^{*-3} law $n^* := n - \delta(n,l,j)$ as

$$\Delta_{\text{HFS}, F=2} - \Delta_{\text{HFS}, F=1} = 33.5(9) \text{ GHz} \times n^{*-3}.$$

In general, the hyperfine shift is given by $\Delta_{\text{HFS}, F} = \frac{A}{2} [F(F+1) - I(I+1) - J(J+1)]$, which, compared with the measurement, yields the value of the hyperfine constant A . For the $J = 1/2$ states of ^{87}Rb (nuclear spin $I = 3/2$), the hyperfine splitting is $\Delta_{\text{HFS}, F=2} - \Delta_{\text{HFS}, F=1} = 2A$.

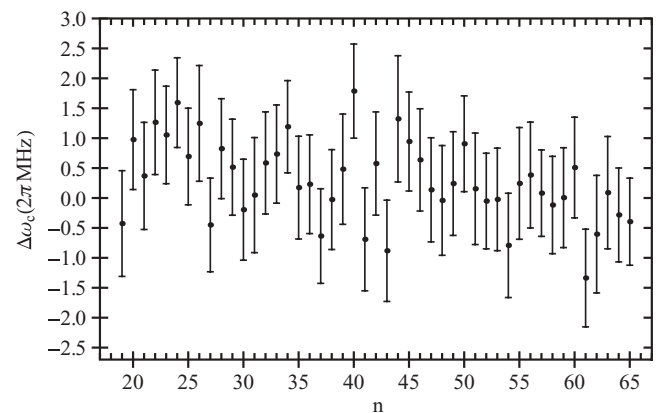


FIG. 4. Difference between measured transition frequencies to $nS_{1/2}$ Rydberg states (see Table III) and the transition frequencies calculated with Eq. (1) based on the Rydberg-Ritz parameters and ionization frequency specified in Tables I and II.

Extending the extrapolation with the n^{*-3} law for the states $n \geq 28$ to $n = 19$ leads to a systematical error in the determination of A . In order to quantify this error we extrapolate further down to $n = 11$, for which the hyperfine splitting is known from a measurement by Farley *et al.* [21]. We find 10% deviation between the calculated ($A_{11S_{1/2}} = 34.5$ MHz) and the measured $A_{11S_{1/2}} = 37.4(3)$ MHz value, which gives an upper limit of the systematic error for $n > 11$ states.

We now can compute the hyperfine shift of the $nS_{1/2}(F = 2)$ states that have been measured in this work,

$$\Delta_{\text{HFS}, F=2} = \frac{3}{4}A = \frac{3}{2 \times 4} \times 34(3) \text{ GHz} \times n^{*-3},$$

and subtract these frequency shifts from the measured transition frequencies to the $nS_{1/2}(F = 2)$ states to find the quantum defects with respect to the fine structure levels. For the lowest nS state measured in this work, $n = 19$, the hyperfine shift is $\Delta_{\text{HFS}, F=2} = 3.2(3)$ MHz.

In order to determine the modified Rydberg-Ritz parameters, Eq. (1) is simultaneously fitted to all three data series ($nS_{1/2}$, $nD_{3/2}$, and $nD_{5/2}$), with the ionization frequency $\omega_i = E_i/\hbar$ as a common fit parameter. The difference between the measured frequencies and the corresponding values obtained by the fit (residuals) are shown in Fig. 4 exemplary for the measurement series on the $nS_{1/2}$ lines. The residuals vary around zero with an rms deviation of $\lesssim 0.75$ MHz, which applies to all three data series, consistent with the expected overall precision of the experimental setup.

The resulting values for the modified Rydberg-Ritz parameters are shown in Table I along the values determined by Li *et al.* [11] for ^{85}Rb . The parameters for the nS series of ^{85}Rb [11] and ^{87}Rb (this work) match each other with comparable uncertainties. Omitting the hyperfine structure correction, the fit of our data returns a slightly different value of $\delta_0 = 3.131\,178\,8(8)$ (with no difference in δ_2) that gives the value of the quantum defect of the $nS_{1/2}(F = 2)$ hyperfine levels.

The values of δ_0 of the nD series show a deviation from the values of Li *et al.* of about 3 times the stated uncertainty. Nonetheless, comparing the frequency differences measured in this work ($\omega_{c,n+1} - \omega_{c,n}$) with the Rydberg-Rydberg transition frequencies $\omega_{n,n+1}$ measured by Li *et al.*, we find that the values available in both data sets are well within one standard

TABLE I. Modified Rydberg-Ritz parameters δ_0 and δ_2 of the nS and nD lines of ^{85}Rb following [11] and of ^{87}Rb as determined in this work. nS quantum defects refer to the fine structure levels, corrected for shifts due to hyperfine structure.

		^{85}Rb (Li <i>et al.</i> [11])	^{87}Rb (this work)
$nS_{1/2}$	δ_0	3.131 180 4(10)	3.131 180 7(8)
	δ_2	0.178 4(6)	0.178 7(2)
$nD_{3/2}$	δ_0	1.348 091 7(4)	1.348 094 8(11)
	δ_2	-0.602 9(3)	-0.605 4(4)
$nD_{5/2}$	δ_0	1.346 465 7(3)	1.346 462 2(11)
	δ_2	-0.596 0(2)	-0.594 0(4)

TABLE II. Ionization frequency from the $5P_{3/2}(F = 3)$ state (fit result including systematic error) and the $5S_{1/2}(F = 1)$ ground state (calculated on basis of the fit result) of ^{87}Rb as determined in this work and compared with the value given by Stoicheff and Weinberger [12].

	Stoicheff and Weinberger [12]	This work
$E_{i,5P_{3/2}(F=3)}/h$	—	625.794 214 8(3) THz
$E_{i,5S_{1/2}(F=1)}/(hc)$	33 690.945 5(15) cm^{-1}	33 690.946 44(1) cm^{-1}
$E_{i,5S_{1/2}(F=1)}/h$	1 010.029 14(5) THz	1 010.029 164 6(3) THz

deviation ($nS_{1/2}$ and $nD_{5/2}$) or at most just outside one standard deviation ($nD_{3/2}$). We therefore suspect differences in the analysis as well as the range of included n values to be the reason for the discrepancy.

The value of the ground-state ionization energy (i.e., the binding energy of the ground state), as obtained by fitting Eq. (1) to the experimental data, is given in Table II. Because all measured Rydberg transition frequencies enter into this value, its statistical error is small (90 kHz) and systematic uncertainties like pressure shifts become significant. We estimate systematic shifts to be on the order of 200 kHz, resulting in $\lesssim 300$ kHz uncertainty of the ground-state ionization energy. The ground-state ionization energy found in this work is within the uncertainty stated by Stoicheff and Weinberger [12] and is two orders of magnitude more accurate.

V. CONCLUSIONS

In summary, we performed precision spectroscopy of Rydberg states of ^{87}Rb using diode lasers, frequency stabilized to a frequency comb and a calibrated wavelength meter. This allows for absolute frequency measurements with an uncertainty of $\lesssim 1$ MHz. The system presented in this work combines the ease of use of the wavelength meter with the accuracy of the frequency comb, enabling absolute frequency measurements over a wide frequency range, not limited by the availability of atomic lines to serve as an absolute reference.

We determined quantum defects and the ionization energy of ^{87}Rb with an uncertainty of $\lesssim 300$ kHz. In the future, the precision of such measurements can be improved further by reducing the laser linewidths and increasing the bandwidth of the frequency locks.

ACKNOWLEDGMENTS

The authors acknowledge financial support by the BMBF (NanoFutur 03X5506), the European Research Council (ERC Advanced Research Grant ‘‘SOCATHES’’), and the Strukturfonds of the University of Tübingen. The authors thank the company HighFinesse for technical support.

APPENDIX: RYDBERG TRANSITION FREQUENCIES

1. $nS_{1/2}$

TABLE III. Measured absolute transition frequencies (ω_c) between the $5P_{3/2}(F=3)$ state and $nS_{1/2}(F=2)$ Rydberg states of ^{87}Rb . The quantum defects δ include the correction for hyperfine structure. $\Delta\omega_c$ is the difference between the measured transition frequency and the frequency calculated with Eq. (1) using the quantum defects and ionization energy determined in this work.

n	ω_c (2π THz)	δ	$\Delta\omega_c$ (2π MHz)
19	612.7288381(8)	3.1318908(5)	-0.8
20	614.2321542(8)	3.1318083(6)	0.5
21	615.4901687(8)	3.1317405(7)	-0.2
22	616.5534925(8)	3.1316819(8)	0.7
23	617.4603214(8)	3.1316328(10)	0.5
24	618.2399264(8)	3.1315896(11)	1.0
25	618.9150382(8)	3.1315541(13)	0.2
26	619.5035327(8)	3.131521(2)	0.7
27	620.0196148(8)	3.131496(2)	-1.0
28	620.4746999(8)	3.131469(2)	0.3
29	620.8780318(8)	3.131448(2)	0.0
30	621.2371711(8)	3.131430(2)	-0.6
31	621.5583473(8)	3.131412(3)	-0.4
32	621.8467280(8)	3.131395(3)	0.2
33	622.1066304(8)	3.131380(3)	0.3
34	622.3416850(8)	3.131365(4)	0.8
35	622.5549595(8)	3.131358(4)	-0.2
36	622.7490663(8)	3.131347(4)	-0.1
37	622.9262334(8)	3.131342(5)	-1.0
38	623.0883784(8)	3.131330(5)	-0.4
39	623.2371515(8)	3.131319(6)	0.1
40	623.3739846(8)	3.131301(6)	1.4
41	623.5001176(8)	3.131314(7)	-1.0
42	623.6166445(8)	3.131297(7)	0.3
43	623.7245107(8)	3.131305(8)	-1.2
44	623.8245598(9)	3.131277(9)	1.0
45	623.9175235(8)	3.131275(9)	0.6
46	624.0040577(8)	3.131274(10)	0.3
47	624.0847416(8)	3.131276(11)	-0.2
48	624.1600915(8)	3.131274(11)	-0.3
49	624.2305675(8)	3.131266(12)	-0.0
50	624.2965811(8)	3.131252(13)	0.6
51	624.3584995(8)	3.131261(14)	-0.1
52	624.4166563(8)	3.131261(14)	-0.3
53	624.4713499(8)	3.13126(2)	-0.3
54	624.5228490(8)	3.13127(2)	-1.1
55	624.5714000(8)	3.13125(2)	-0.0
56	624.6172212(8)	3.13124(2)	0.1
57	624.6605140(8)	3.13125(2)	-0.2
58	624.7014614(8)	3.13125(2)	-0.4
59	624.7402301(8)	3.13124(2)	-0.3
60	624.7769720(8)	3.13123(2)	0.3
61	624.8118234(8)	3.13128(2)	-1.6
62	624.8449163(8)	3.13126(3)	-0.9
63	624.8763648(8)	3.13124(3)	-0.2
64	624.9062750(8)	3.13125(3)	-0.5
65	624.9347470(8)	3.13125(3)	-0.6

2. $nD_{3/2}$ TABLE IV: Measured Rydberg transition frequencies $5P_{3/2}(F=3) \rightarrow nD_{3/2}$ of ^{87}Rb . See description of Table III.

n	ω_c (2π THz)	δ	$\Delta\omega_c$ (2π MHz)
19	615.2383571(8)	1.3461520(7)	-0.1
20	616.3395780(8)	1.3463543(8)	0.3
21	617.2770769(8)	1.3465269(10)	0.3
22	618.0817641(8)	1.3466765(11)	-0.9
23	618.7775900(8)	1.3468033(13)	0.1
24	619.3833361(8)	1.3469144(14)	0.3
25	619.9139034(8)	1.347013(2)	-0.4
26	620.3812369(8)	1.347100(2)	-0.4
27	620.7949991(8)	1.347174(2)	0.2
28	621.1630743(8)	1.347241(2)	0.5
29	621.4919489(8)	1.347301(3)	0.6
30	621.7869975(8)	1.347356(3)	0.3
31	622.0527045(8)	1.347407(3)	-0.2
32	622.2928357(8)	1.347452(4)	-0.3
33	622.5105718(8)	1.347488(4)	0.6
34	622.7086101(8)	1.347533(4)	-1.1
35	622.8892621(8)	1.347556(5)	0.8
37	623.2060305(8)	1.347618(6)	0.1
38	623.3453297(8)	1.347640(6)	0.6
39	623.4736776(8)	1.347668(7)	-0.0
40	623.5921942(8)	1.347689(7)	0.1
41	623.7018578(8)	1.347711(8)	-0.1
42	623.8035293(8)	1.347727(8)	0.1
43	623.8979667(8)	1.347740(9)	0.5
44	623.9858378(8)	1.347778(10)	-1.4
45	624.0677426(8)	1.347778(10)	-0.1
46	624.1442056(8)	1.347789(11)	0.2
47	624.2156986(8)	1.347808(12)	-0.3
48	624.2826438(8)	1.347827(13)	-0.7
51	624.4597844(8)	1.34784(2)	0.7
53	624.5611212(8)	1.34788(2)	-0.7
54	624.6075157(8)	1.34788(2)	-0.2
55	624.6513410(8)	1.34786(2)	0.9
57	624.7320082(8)	1.34789(2)	0.4

3. $nD_{5/2}$ TABLE V: Measured Rydberg transition frequencies $5P_{3/2}(F=3) \rightarrow nD_{5/2}$ of ^{87}Rb . See description of Table III.

n	ω_c (2π THz)	δ	$\Delta\omega_c$ (2π MHz)
19	615.2402660(8)	1.3445555(7)	0.6
20	616.3411990(8)	1.3447550(8)	-0.1
21	617.2784664(8)	1.3449236(9)	0.6
22	618.0829639(8)	1.3450698(11)	-0.2
23	618.7786314(8)	1.3451963(13)	-0.7
24	619.3842463(8)	1.3453060(15)	-0.8
25	619.9147046(8)	1.345402(2)	-0.7
26	620.3819464(8)	1.345484(2)	0.5
27	620.7956283(8)	1.345560(2)	-0.2
28	621.1636344(8)	1.345629(2)	-1.1
29	621.4924518(8)	1.345685(3)	0.2
30	621.7874500(8)	1.345738(3)	0.1
31	622.0531143(8)	1.345783(3)	1.0
32	622.2932066(8)	1.345828(4)	0.4
33	622.5109082(8)	1.345866(4)	0.6
34	622.7089185(8)	1.345901(4)	0.8
35	622.8895425(8)	1.345931(5)	1.2
37	623.2062666(8)	1.345992(6)	0.5
38	623.3455461(8)	1.346020(6)	-0.0
39	623.4738779(8)	1.346042(7)	0.1
40	623.5923802(8)	1.346057(7)	0.9
41	623.7020295(8)	1.346084(8)	0.0
42	623.8036883(8)	1.346104(8)	-0.1
43	623.8981149(8)	1.346112(9)	0.7
44	623.9859786(8)	1.346118(10)	1.5
45	624.0678704(8)	1.346162(10)	-0.9
46	624.1443264(8)	1.346155(11)	0.7
48	624.2827502(8)	1.346185(13)	0.3
51	624.4598714(8)	1.34622(2)	0.3
53	624.5611995(8)	1.34624(2)	-0.2
54	624.6075890(8)	1.34626(2)	-0.4
55	624.6514104(8)	1.34623(2)	0.9
57	624.7320704(8)	1.34626(2)	0.5

- [1] T. F. Gallagher, *Rydberg Atoms* (Cambridge University Press, Cambridge, UK, 1994).
- [2] J. M. Raimond, M. Brune, and S. Haroche, *Rev. Mod. Phys.* **73**, 565 (2001).
- [3] D. Comparat and P. Pillet, *J. Opt. Soc. Am. B* **27**, A208 (2010).
- [4] M. Saffman, T. G. Walker, and K. Mølmer, *Rev. Mod. Phys.* **82**, 2313 (2010).
- [5] C. H. Greene, A. S. Dickinson, and H. R. Sadeghpour, *Phys. Rev. Lett.* **85**, 2458 (2000).
- [6] C. Boisseau, I. Simbotin, and R. Côté, *Phys. Rev. Lett.* **88**, 133004 (2002).
- [7] V. Bendkowsky, B. Butscher, J. Nipper, J. P. Shaffer, R. Löw, and T. Pfau, *Nature (London)* **458**, 1005 (2009).
- [8] H. Kübler, J. Shaffer, T. Baluktian, R. Löw, and T. Pfau, *Nat. Photon.* **4**, 112 (2010).
- [9] J. A. Crosse, S. A. Ellingsen, K. Clements, S. Y. Buhmann, and S. Scheel, *Phys. Rev. A* **82**, 010901 (2010).
- [10] A. Tauschinsky, R. M. T. Thijssen, S. Whitlock, H. B. van Linden van den Heuvell, and R. J. C. Spreeuw, *Phys. Rev. A* **81**, 063411 (2010).
- [11] W. Li, I. Mourachko, M. W. Noel, and T. Gallagher, *Phys. Rev. A* **67**, 052502 (2003).
- [12] B. P. Stoicheff and E. Weinberger, *Can. J. Phys.* **57**, 2143 (1979).
- [13] L. A. M. Johnson, H. O. Majeed, B. Sanguinetti, T. Becker, and B. T. H. Varcoe, *New J. Phys.* **12**, 063028 (2010).
- [14] C. Sansonetti and K. Weber, *J. Opt. Soc. Am. B* **2**, 1385 (1985).
- [15] M. Fleischhauer, A. Imamoglu, and J. P. Marangos, *Rev. Mod. Phys.* **77**, 633 (2005).
- [16] A. K. Mohapatra, T. R. Jackson, and C. S. Adams, *Phys. Rev. Lett.* **98**, 113003 (2007).

- [17] J. Ye, S. Swartz, P. Jungner, and J. Hall, [Opt. Lett.](#) **21**, 1280 (1996).
- [18] P. Kubina, P. Adel, F. Adler, G. Grosche, T. Hänsch, R. Holzwarth, A. Leitenstorfer, B. Lipphardt, and H. Schnatz, [Opt. Express](#) **13**, 904 (2005).
- [19] D. C. Thompson, E. Weinberger, G.-X. Xu, and B. P. Stoicheff, [Phys. Rev. A](#) **35**, 690 (1987).
- [20] C. J. Lorenzen and K. Niemax, [Phys. Scr.](#) **27**, 300 (1983).
- [21] J. Farley, P. Tsekeris, and R. Gupta, [Phys. Rev. A](#) **15**, 1530 (1977).

Detrimental adsorbate fields in experiments with cold Rydberg gases near surfacesH. Hattermann,^{*} M. Mack, F. Karlewski, F. Jessen, D. Cano, and J. Fortágh[†]*CQ Center for Collective Quantum Phenomena and their Applications, Physikalisches Institut, Eberhard-Karls-Universität Tübingen, Auf der Morgenstelle 14, D-72076 Tübingen, Germany*

(Received 4 June 2012; published 17 August 2012)

We observe the shift of Rydberg levels of rubidium close to a copper surface when atomic clouds are repeatedly deposited on it. We measure transition frequencies of rubidium to S and D Rydberg states with principal quantum numbers n between 31 and 48 using the technique of electromagnetically induced transparency. The spectroscopic measurement shows a strong increase of electric fields towards the surface that evolves with the deposition of atoms. Starting with a clean surface, we measure the evolution of electrostatic fields in the range between 30 and 300 μm from the surface. We find that after the deposition of a few hundred atomic clouds, each containing $\sim 10^6$ atoms, the field of adsorbates reaches 1 V/cm for a distance of 30 μm from the surface. This evolution of the electrostatic field sets serious limitations on cavity QED experiments proposed for Rydberg atoms on atom chips.

DOI: [10.1103/PhysRevA.86.022511](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.86.022511)

PACS number(s): 32.30.-r, 32.80.Rm, 68.43.-h

I. RYDBERG ATOMS AT SURFACES

The large electric polarizability of Rydberg atoms leads to a large response to electric fields [1]. This property is an enormous advantage for applications that require fast coupling between atoms and photons, such as the entanglement of Rydberg atoms via the electromagnetic modes of radio-frequency and microwave cavities [2]. Several quantum computation schemes have been proposed based on Rydberg atoms coupled to superconducting coplanar cavities [3–5]. In the proposed scenarios, cold atomic gases are first positioned near a coplanar resonator. The atoms are subsequently laser excited into Rydberg states which interact with the electromagnetic modes of the resonator. Recent progress with coupling such cavities to superconducting qubits [6,7] and the coupling of Rydberg atoms to a microwave stripline [8] outline good perspectives.

However, the technical realization faces challenges. One significant problem is the detrimental effect of the electrostatic fields generated by adsorbed atoms on the chip surface. Because of the high electronegativity of metals, atoms deposited on the chip surface partially donate their valence electron to the metal. The result is a permanent electric dipole layer on the surface that produces inhomogeneous electrostatic fields and alters both the energy and the orbital structure of nearby Rydberg atoms. The fields can be strong enough to shift Rydberg states out of the cavity resonance.

New chips are initially free of adsorbates, but experiments progressively accumulate adatoms on the surface. An important question is how long it takes until the accumulation of atoms on the surface becomes detrimental. Two research groups reported previously on this subject. First, McGuirk *et al.* [9] and Obrecht *et al.* [10] studied the electrostatic field of adsorbed atoms on both conducting and insulating surfaces. Second, Tauschinsky *et al.* [11] measured electrostatic fields of adsorbates using electromagnetically induced transparency (EIT) on Rydberg states. The results presented in this article complement the data published by these two groups. We

measure the evolution of electrostatic fields at distances of 30–300 μm to the surface during a series of consecutive experiments. Starting with a clean copper surface we deposit clouds of ^{87}Rb atoms onto the surface and measure the inhomogeneous electrostatic field of polarized adatoms by spectroscopy on Rydberg states. We find that the electrostatic fields are already significant after about a few hundred experimental cycles. This corresponds to only a few hours of operation for a typical cold atom experiment.

II. MEASUREMENT OF THE ELECTROSTATIC FIELDS OF ADSORBATES BY RYDBERG EIT

We measure the electrostatic field of adsorbed and polarized adatoms through the energy shift (dc Stark shift) induced on highly excited Rydberg states of rubidium. We start our experiments with a clean copper surface which is horizontally aligned inside a vacuum chamber [Fig. 1(a)] at a base pressure of 10^{-11} mbar. We transport ultracold clouds of ^{87}Rb ($T = 1.5 \mu\text{K}$) with optical tweezers to a position 200 μm above the surface and release the atomic cloud. About $\sim 10^6$ atoms are dropped in each experimental cycle onto the surface. While the atomic cloud is falling towards the surface, we measure its EIT spectra.

The ladder-type excitation scheme used for the EIT measurements [13,14] is shown in Fig. 1(b). We probe the absorption on the $5S-5P$ transition with a weak probe laser. The $5P$ state is strongly coupled to a highly excited nS or nD Rydberg state by means of a 480-nm laser. While the frequency of the probe laser is stabilized to the $5S-5P$ transition, the coupling laser can be continuously scanned within a wide range of frequencies (± 50 MHz). Whenever the coupling laser is on resonance with a Rydberg state, the conditions for EIT are satisfied and the atomic ensemble becomes transparent for the probe laser [15]. The presence of adsorbed atoms on the surface perturbs the Rydberg states and the resonance conditions for the coupling laser. We observe pronounced energy shifts towards the surface which increase with the deposition of atomic clouds. For the measurements we use S and D Rydberg states with principal quantum numbers n between 31 and 48.

^{*}hattermann@pit.physik.uni-tuebingen.de[†]fortagh@uni-tuebingen.de

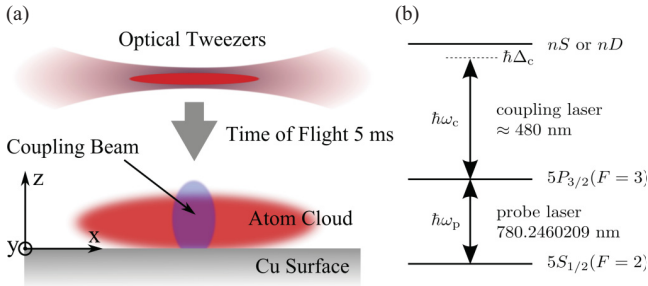


FIG. 1. (Color online) (a) An atomic cloud (10^6 ^{87}Rb atoms in the $5S_{1/2} (F=2, m_F=2)$ ground state at temperature $1.5 \mu\text{K}$) is released from an optical dipole trap to free fall and expand. The cloud hits a Cu surface $200 \mu\text{m}$ below the trap. The electric field of polarized adatoms is tested by means of Rydberg EIT. While the probe beam illuminates the full area, the coupling beam has a smaller, elliptical spot size, illustrated in blue. (b) Ladder configuration for EIT signals. The probe beam couples the $5S_{1/2} (F=2, m_F=2)$ and the $5P_{3/2} (F=3, m_F=3)$ levels. Simultaneously, a counterpropagating coupling beam focused onto a part of the cloud (blue spot) is switched on. The lasers are referenced to a frequency comb. In Ref. [12] we describe the details of the locking method.

For our experiments we prepare clouds of ^{87}Rb atoms in the $5S_{1/2} (F=2, m_F=2)$ state in a setup described in Ref. [16]. The atomic cloud is loaded from a magneto-optical trap (MOT) into a Ioffe-Pritchard type magnetic trap and cooled by forced radio-frequency evaporation to a temperature of $1.5 \mu\text{K}$. The cloud with about 10^6 atoms is then loaded into an optical dipole potential of a focused 1064-nm laser beam. By moving the focusing lens with an air bearing translation stage, the optical tweezers transport the atoms from the preparation zone over a distance of 35 mm to a position above a copper surface. The tweezers are micropositioned $200 \mu\text{m}$ above the surface and the atomic cloud is released by instantly ramping down the laser power. After 5 ms of free fall and expansion, the atomic cloud is imaged by absorption imaging. As the cloud falls, EIT spectra of the atoms are taken. The imaging beam (probe beam for the EIT) has a Gaussian profile of 7.5 mm full width at half maximum (FWHM) and $\sim 100 \mu\text{W}$ power. The counterpropagating coupling beam is simultaneously focused onto the cloud. It has an elliptical profile with ~ 200 and $300 \mu\text{m}$ FWHM, respectively. The frequency stabilization of the lasers with an absolute accuracy of better than ± 1.5 MHz is described in Ref. [12].

The measurements are illustrated in Fig. 2(a). The absorption image of an atomic cloud during free fall shows a “transparency window” at the positions where the coupling laser is resonant with the transition, in this case the $35D_{5/2} (m_J=1/2)$ state. The image shows that the resonance condition is satisfied only in a small window revealing a spatial inhomogeneity of the energy shift. In this window the shift of the Rydberg level equals the detuning Δ_C of the coupling laser, in this example $+10$ MHz with respect to the unperturbed transition frequency. If the detuning of the coupling laser is changed, the transparency window appears at a different distance from the surface.

We take a series of absorption images as a function of the detuning Δ_C . The laser frequency is varied in steps

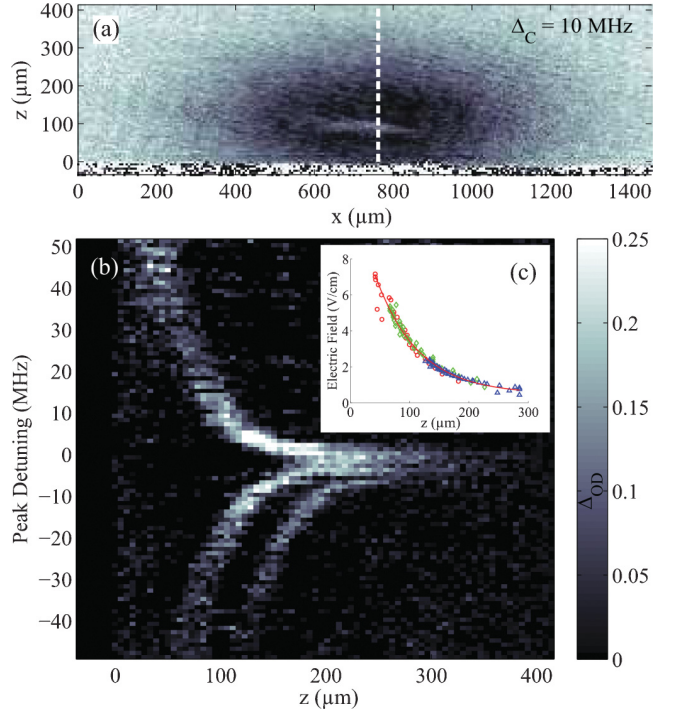


FIG. 2. (Color online) (a) Absorption image of an atomic cloud during free fall onto the surface taken with the probe beam. The stronger the absorption, the darker the pixel in the image. In this example, the coupling laser is blue detuned by 10 MHz from the $35D_{5/2}$ state of ^{87}Rb and produces a transparency window. The lateral extension of the window is given here by the width of the coupling laser beam. For the data analysis we take the z position of the transparency window along the vertical dashed line. Similar images have been taken for detunings ranging from -50 to $+50$ MHz, allowing the measurement of electrostatic fields as a function of z . (b) Map of the relative optical density as a function of distance to the surface (horizontal axis) and detuning of the coupling laser from the unperturbed transition frequency $5P_{3/2} (F=3, m_F=3) \rightarrow 35D_{5/2}$ (vertical axis). Each horizontal line shows a single measurement. (c) Calculated electrostatic field as function of z using the EIT measurements on the $35D_{5/2}$ state. The different colors are the field strengths obtained using the $|m_J|=1/2$ (red circles), $3/2$ (green diamonds), and $5/2$ states (blue triangles). The data of the three states follow the same curve, which is well approximated by an exponential decay.

of 1 MHz between consecutive measurements. The results are summarized in Fig. 2(b), which shows the Stark shift of Rydberg states as a function of the distance z to the surface. Each horizontal line of Fig. 2(b) is obtained from the vertical column of absorption images, as indicated by the vertical dashed line in Fig. 2(a). Thus it shows the position of the transparency window for different detunings. The three branches in Fig. 2(b) correspond to the projections of the total angular momentum J of the $35D_{5/2}$ Rydberg state: $|m_J|=1/2, 3/2,$ and $5/2$.

We now determine the electrostatic field above the copper surface by using the measured Stark shifts and comparing them with the theoretically calculated shift of Rydberg levels in electrostatic fields. We calculate the Stark maps with the numerical method of Ref. [17]. For our evaluation, we use

an algorithm which identifies the electrostatic fields that best fit the measured data. As shown in Fig. 2(c), the results for the three different $|m_j\rangle$ states lie on the same curve, confirming the validity of our procedure. The shifts of the Rydberg states are thus explained by static electric fields alone. The decay of the electrostatic field is modeled here with an exponential function: $E(z) = E_0 \exp(-z/\sigma) + E_{\text{res}}$, where z is the distance to the surface, σ is the decay length, and E_{res} is a residual, homogeneous electrostatic field that accounts for possible external field sources. Figure 2(c) shows the best-fit fields calculated with the three experimental curves of Fig. 2(b). We repeated our measurements on S and D Rydberg states with principal quantum numbers n between 31 and 48 that reproduce the same behavior. For distances smaller than $30 \mu\text{m}$, the electrostatic field cannot be determined reliably, as high field gradients over the size of one pixel of the camera ($5.6 \mu\text{m}$ in the object plane) lead to blurring of the measured line shifts. We note that the electric field is also inhomogeneous along the x axis. This is a result of the Gaussian distribution of the atomic clouds dropped onto the surface and of the residual roughness of the copper. In order to facilitate the evaluation of the changes of the field with time, all the measurements have been evaluated along the same line, as indicated in Fig. 2(a).

III. TEMPORAL EVOLUTION OF THE ELECTROSTATIC FIELDS OF DEPOSITED ADATOMS

We evaluate the evolution of the electrostatic field close to the surface as atom clouds are repeatedly deposited on it. Figure 3 summarizes the results. The diagram shows the electric field as a function of the distance from the surface and the number of deposited atomic clouds. Different colors correspond to different strengths of the electric field. The red (solid) lines are exponential fits that we use for determining the electric field as in Sec. II. The inset shows the increase of the measured electric field with the number of deposited atoms

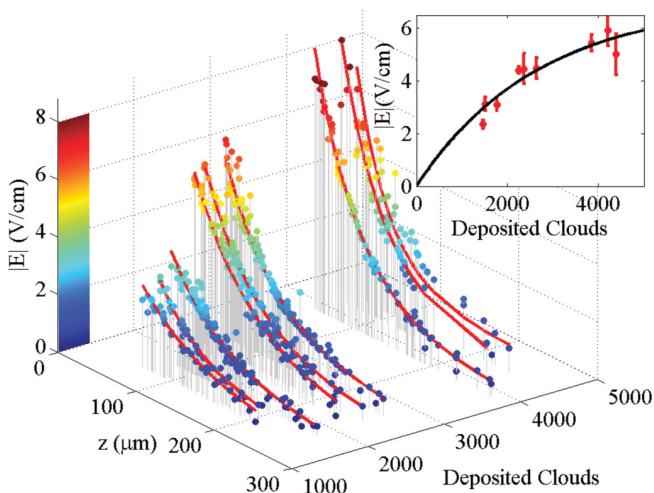


FIG. 3. (Color online) Measured electrostatic field as a function of z and the number of experimental cycles carried out. Inset: Measured electrostatic field at a distance of $80 \mu\text{m}$ from the surface. We observe an increase of the electric field due to adsorption of rubidium onto the copper surface. The saturation builds up after the deposition of few thousand atomic clouds.

for a distance of $80 \mu\text{m}$ from the surface. The magnitude of the field increases with the number of experimental runs. However, we observe a saturation after about ten days of experiments during which we released approximately 5×10^9 atoms on the copper surface. Based on our measurements, we estimate that it takes as little as few hundred experimental runs to produce an electric field of 1 V/cm at a distance of $30 \mu\text{m}$, assuming a zero-field at the beginning of the experiments. This field produces a level shift of -2 MHz on the $35S_{1/2}$ state and of -49 MHz on the $55S_{1/2}$ state. This is much larger than the linewidth of a high- Q stripline resonator, making cavity QED experiments problematic by shifting the atoms out of the cavity resonance.

IV. CONCLUSION

Our measurements show that neutral atoms adsorbed on a metal surface cause electrostatic fields on the order of 1 V/cm after as little as 100 repetitions of a cold atom experimental cycle. Adsorbate fields have also been observed on dielectric surfaces [18]. This sets serious limitations on the feasibility of cavity QED experiments with Rydberg atoms and coplanar cavities. Also dispersion forces between Rydberg atoms and planar surfaces [19] are masked by the strong electric fields of adsorbates. A search for strategies to correct for this problem is therefore very important for atom chips. A possible solution could be the cleaning of the surface whenever the electrostatic fields due to adsorbates become harmful. For example, regular heating of the surface cause adsorbed atoms to diffuse. Another possibility would be photodissorption of the adsorbed atoms, but given the work function of metals, this would require light in the far ultraviolet range. Given the fast appearance of detrimental adsorbate fields, an open question is still if there are cleaning techniques which can be applied quickly between experimental cycles. A workaround for this problem would be the development of experimental techniques that avoid deposition of atoms onto the surface or using surface coatings with materials on which no adsorbate fields have been observed [14]. While atoms on surfaces have undesired effects on cold atom experiments, it is worth mentioning that adatoms may be useful to control electric properties of surface layers. For example, alkali-metal adsorbates have been used to engineer the electronic structure of graphene [20,21].

Rydberg EIT can be used for a sensitive measurement of electric fields. In combination with micropositioning of atomic clouds by optical tweezers or magnetic conveyor belts in a scanning probe configuration [22] three-dimensional imaging of the electric field distribution is feasible. However, the measurement technique contaminates the surface, which must be taken into account.

ACKNOWLEDGMENTS

The authors would like to thank Thomas Judd for useful discussions. This work was supported by the European Research Council (Socathes) and the Deutsche Forschungsgemeinschaft (SFB TRR21). The authors acknowledge additional support from the Evangelisches Studienwerk Villigst e.V. and the Baden-Württemberg-Stiftung through the ‘‘Kompetenznetz Funktionelle Nanostrukturen.’’

- [1] T. F. Gallagher, *Rydberg Atoms* (Cambridge University Press, Cambridge, UK, 1994).
- [2] J. M. Raimond, M. Brune, and S. Haroche, *Rev. Mod. Phys.* **73**, 565 (2001).
- [3] D. Petrosyan and M. Fleischhauer, *Phys. Rev. Lett.* **100**, 170501 (2008).
- [4] D. Petrosyan, G. Bentsky, G. Kurizki, I. Mazets, J. Majer, and J. Schmiedmayer, *Phys. Rev. A* **79**, 040304 (2009).
- [5] M. Saffman, T. G. Walker, and K. Mølmer, *Rev. Mod. Phys.* **82**, 2313 (2010).
- [6] L. DiCarlo, J. M. Chow, J. M. Gambetta, L. S. Bishop, B. R. Johnson, D. I. Schuster, J. Majer, A. Blais, L. Frunzio, S. M. Girvin, and R. J. Schoelkopf, *Nature (London)* **460**, 240 (2009).
- [7] A. Wallraff, D. Schuster, A. Blais, L. Frunzio, R. Huang, J. Majer, S. Kumar, S. Girvin, and R. Schoelkopf, *Nature (London)* **431**, 162 (2004).
- [8] S. D. Hogan, J. A. Agner, F. Merkt, T. Thiele, S. Filipp, and A. Wallraff, *Phys. Rev. Lett.* **108**, 063004 (2012).
- [9] J. M. McGuirk, D. M. Harber, J. M. Obrecht, and E. A. Cornell, *Phys. Rev. A* **69**, 062905 (2004).
- [10] J. M. Obrecht, R. J. Wild, and E. A. Cornell, *Phys. Rev. A* **75**, 062903 (2007).
- [11] A. Tauschinsky, R. M. T. Thijssen, S. Whitlock, H. B. van Linden van den Heuvell, and R. J. C. Spreeuw, *Phys. Rev. A* **81**, 063411 (2010).
- [12] M. Mack, F. Karlewski, H. Hattermann, S. Höckh, F. Jessen, D. Cano, and J. Fortágh, *Phys. Rev. A* **83**, 052515 (2011).
- [13] A. K. Mohapatra, T. R. Jackson, and C. S. Adams, *Phys. Rev. Lett.* **98**, 113003 (2007).
- [14] H. Kübler, J. P. Shaffer, T. Baluktsian, R. Löw, and T. Pfau, *Nat. Photonics* **4**, 112 (2010).
- [15] M. Fleischhauer, A. Imamoglu, and J. P. Marangos, *Rev. Mod. Phys.* **77**, 633 (2005).
- [16] D. Cano, H. Hattermann, B. Kasch, C. Zimmermann, R. Kleiner, D. Koelle, and J. Fortágh, *Eur. Phys. J. D* **63**, 17 (2011).
- [17] M. L. Zimmerman, M. G. Littman, M. M. Kash, and D. Kleppner, *Phys. Rev. A* **20**, 2251 (1979).
- [18] R. P. Abel, C. Carr, U. Krohn, and C. S. Adams, *Phys. Rev. A* **84**, 023408 (2011).
- [19] J. A. Crosse, S. A. Ellingsen, K. Clements, S. Y. Buhmann, and S. Scheel, *Phys. Rev. A* **82**, 010901 (2010).
- [20] T. Ohta, A. Bostwick, T. Seyller, K. Horn, and E. Rotenberg, *Science* **313**, 951 (2006).
- [21] K.-H. Jin, S.-M. Choi, and S.-H. Jhi, *Phys. Rev. B* **82**, 033414 (2010).
- [22] M. Gierling, P. Schneeweiss, G. Visanescu, P. Federsel, M. Häffner, D. P. Kern, T. E. Judd, A. Günther, and J. Fortágh, *Nat. Nanotechnol.* **6**, 446 (2011).

Quasiclassical quantum defect theory and the spectrum of highly excited rubidium atoms

Ali Sanayei and Nils Schopohl*

*Institut für Theoretische Physik and CQ Center for Collective Quantum Phenomena and their Applications in LISA⁺,
Eberhard-Karls-Universität Tübingen, Auf der Morgenstelle 14, D-72076 Tübingen, Germany*

Jens Grimm, Markus Mack, Florian Karlewski, and József Fortágh[†]

*Physikalisches Institut and CQ Center for Collective Quantum Phenomena and their Applications in LISA⁺,
Eberhard-Karls-Universität Tübingen, Auf der Morgenstelle 14, D-72076 Tübingen, Germany*

(Received 28 January 2015; published 23 March 2015)

We report on a significant discrepancy between recently published, highly accurate variational calculations and precise measurements of the spectrum of Rydberg states in ⁸⁷Rb on the energy scale of fine splitting. Introducing a modified effective single-electron potential, we determine the spectrum of the outermost bound electron from a standard WKB approach. Overall very good agreement with precise spectroscopic data is obtained.

DOI: [10.1103/PhysRevA.91.032509](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.91.032509)

PACS number(s): 31.10.+z, 32.80.Ee

I. INTRODUCTION

The spectrum of the outermost bound electron of an alkali atom such as ⁸⁷Rb is hydrogenlike but lacks the n^2 degeneracy of the eigenstates labeled by the principal quantum number n of the pure Coulomb potential [1,2]:

$$E_{n,l} = -\frac{1}{(n - \delta_l)^2}. \quad (1)$$

This effect is the well-known quantum defect δ_l , resulting from the interaction of the outermost electron with the ionic core of the atom and the nucleus. In a refined version of the statistical Thomas-Fermi theory [3], an effective potential determining the interaction between the outermost electron and the nucleus can be modeled accurately by a spherically symmetric potential $V_{\text{eff}}(r; l)$ depending on the distance r from the center and depending on the orbital angular momentum $l \in \{0, 1, 2, \dots, n-1\}$ [2,4,5]:

$$V_{\text{eff}}(r; l) = -2 \left[\frac{Z_{\text{eff}}(r; l)}{r} + V_{\text{pol}}(r; l) \right]. \quad (2)$$

Here the function $Z_{\text{eff}}(r; l)$ represents a position-dependent weight function that interpolates the value of the charge between unity for large r and charge number Z near to the nucleus for $r \rightarrow 0$, and $V_{\text{pol}}(r; l)$ represents a short-range interaction taking into account the static electric polarizability of the ionic core [1,6].

Overall good agreement with spectroscopic data of alkali atoms (but discarding the fine splitting) has been reported in [5], choosing

$$Z_{\text{eff}}(r; l) = 1 + (Z - 1)e^{-ra_1(l)} - re^{-ra_2(l)} [a_3(l) + ra_4(l)] \quad (3)$$

and

$$V_{\text{pol}}(r; l) = \frac{\alpha_c}{2} \frac{1 - \exp\left[-\left(\frac{r}{r_c(l)}\right)^6\right]}{r^4}. \quad (4)$$

A table of the parameters $a_1(l)$, $a_2(l)$, $a_3(l)$, $a_4(l)$, α_c , and $r_c(l)$ can be found in [5].

In an attempt to also describe the fine splitting of the excitation spectrum of the outermost electron of ⁸⁷Rb, it has been suggested [4] to superimpose *a posteriori* a spin-orbit term

$$\tilde{V}_{\text{SO}}(r; j, l) = \frac{V_{\text{SO}}(r; j, l)}{[1 - \alpha^2 V_{\text{eff}}(r; l)]^2} \quad (5)$$

on the potential $V_{\text{eff}}(r; l)$, which then influences the spectrum $E_{n,j,l}$ on the scale of fine splitting and the orbitals $\psi_{n,j,l}(r)$ accessible to the outermost electron. Here

$$V_{\text{SO}}(r; j, l) = \alpha^2 \frac{1}{r} \frac{\partial V_{\text{eff}}(r; l)}{\partial r} g(j, l), \quad (6)$$

and $\alpha = \frac{\lambda c}{a_B} \simeq \frac{1}{137.036}$ denotes the fine-structure constant, and

$$g(j, l) = \begin{cases} 0 & \text{if } l = 0, \\ \frac{j(j+1) - l(l+1) - \frac{3}{4}}{2} & \text{if } l \geq 1, \end{cases} \quad (7)$$

where $j \in \{l - \frac{1}{2}, l + \frac{1}{2}\}$. To determine those orbitals (with principal quantum number $n = n_r + l + 1$ and radial quantum number $n_r \in \mathbb{N}_0$), a normalizable solution to the Schrödinger eigenvalue problem for the radial wave function $U_{n,j,l}(r) = r R_{n,j,l}(r)$ and associated eigenvalues $E_{n,j,l} < 0$ is required:

$$\left[-\frac{d^2}{dr^2} + \frac{l(l+1)}{r^2} + \tilde{V}(r; j, l) - E_{n,j,l} \right] U_{n,j,l}(r) = 0, \quad (8)$$

where

$$\tilde{V}(r; j, l) = V_{\text{eff}}(r; l) + \tilde{V}_{\text{SO}}(r; j, l) \quad (9)$$

denotes the effective single-electron potential.

A highly accurate variational calculation of the excitation spectrum of the outermost electron of ⁸⁷Rb has been carried out recently [7], in which the authors expand the radial wave function of the Schrödinger eigenvalue problem (8) in a basis spanned by 500 Slater-type orbitals (STOs). On the other hand, modern high-precision spectroscopy of Rydberg levels of ⁸⁷Rb has been conducted recently. Millimeter-wave spectroscopy employing selective field ionization allows for precise measurements of the energy differences between Rydberg

* nils.schopohl@uni-tuebingen.de

† fortagh@uni-tuebingen.de

TABLE I. Fine splitting $\Delta E_{n,l=1}$ for P states in megahertz.

State $ n, l = 1\rangle$	Expt. [11]	Expt. [8]	Theory [7]	Theory (this work)
8P	$565.1(4) \times 10^3$	NA	602.04×10^3	567.75×10^3
10P	$219.1(4) \times 10^3$	NA	231.87×10^3	218.77×10^3
30P	NA	4246.30(5)	4500.50	4246.46
35P	NA	2566.41(32)	2717.41	2566.28
45P	NA	1144.09(13)	1217.24	1143.95
55P	NA	605.77(7)	644.81	605.68
60P	NA	460.76(5)	480.32	460.68

levels [8]. An independent approach is to perform purely optical measurements on absolute Rydberg level energies by observing electromagnetically induced transparency (EIT) [9,10]. However, there is a systematic discrepancy between variational calculations and the spectroscopic measurements of the fine splitting,

$$\Delta E_{n,l} = E_{n,l+\frac{1}{2},l} - E_{n,l-\frac{1}{2},l}, \quad (10)$$

as shown in Tables I and II. Given the fact that the error bars of the independent experiments [8,10] are below 1.1 MHz down to 20 kHz, and on the other hand considering the high accuracy of the numerical calculations presented in [7], such a discrepancy between experiment and theory is indeed significant.

So, what could be the reason for the reported discrepancies? First, it should be pointed out that in the variational calculations [7] a slightly different potential was used, that is,

$$V(r; j, l) = V_{\text{eff}}(r; l) + V_{\text{SO}}(r; j, l). \quad (11)$$

Certainly, within the first-order perturbation theory there exists no noticeable discrepancy in the spectrum of the outermost electron on the fine-splitting scale, when taking into account the spin-orbit forces with $V_{\text{SO}}(r; j, l)$ instead of working with $\tilde{V}_{\text{SO}}(r; j, l)$. This is due to the differences being negligible for $r > Z\alpha^2$. However, since $V_{\text{SO}}(r; j, l)$ eventually dominates even the contribution of the centrifugal barrier term $\frac{l(l+1)}{r^2}$ within the tiny region $0 < r \lesssim \alpha^2 Z$, a subtle problem with a non-normalizable radial wave function $U_{n,j,l}(r)$ emerges when attempting to solve the Schrödinger eigenvalue problem for any $l > 0$ with the potential $\tilde{V}_{\text{SO}}(r; j, l)$. Such a problem is absent when one works with $\tilde{V}_{\text{SO}}(r; j, l)$ [4].

A variational calculation with the potential (11) employing $N = 500$ normalizable STOs as basis functions thus engenders a systematic (small) error of the matrix elements calculated in [7] on the fine-splitting scale. When employing substantially more STOs this error would certainly become larger. With $N =$

500 STOs the discrepancy of these theoretical results with the high-precision spectroscopic data, as shown in Tables I and II, is far too large to be corrected by simply replacing $V_{\text{SO}}(r; j, l)$ with $\tilde{V}_{\text{SO}}(r; j, l)$. Hence another explanation is required.

II. QUASICLASSICAL APPROACH AND FINE SPLITTING OF THE HIGHLY EXCITED ^{87}Rb

In 1941 alkali atoms had already been studied in the context of modern quantum mechanics in the seminal work by Mayer [3], who emphasized the exceptional role of the $l = 1$ and $l = 2$ orbitals. According to Mayer, the outermost electron of an alkali atom is governed by an effective r -dependent charge term

$$Z_{\text{eff}}(r) = 1 + (Z - 1)F(r), \quad (12)$$

where the function $F(r)$ has been determined by employing the semiclassical statistical Thomas-Fermi approach to the many-electron-atom problem, posing the boundary conditions as $\lim_{r \rightarrow 0} F(r) = 1$ and $\lim_{r \rightarrow \infty} F(r) = 0$. As discussed by Schwinger [12], this approach ceases to be valid in the inner-shell region $Z^{-1} < r < Z^{-\frac{1}{3}}$ of the atom. Therefore, taking into account the fine splitting in the spectrum of the outermost electron of alkali atoms *a posteriori* by simply adding the phenomenological spin-orbit term (5) to (2), resulting in the effective single-electron potential (9), seems to be questionable on general grounds in that inner-shell region.

On a more fundamental level, the treatment of relativistic effects in multi-electron-atom spectra requires an *a priori* microscopic description based on the well-known Breit-Pauli Hamiltonian [13,14]:

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_{\text{nr}} + \mathcal{H}_{\text{rs}} + \mathcal{H}_{\text{fs}}. \quad (13)$$

Here \mathcal{H}_{nr} is the ordinary *nonrelativistic* many-electron Hamiltonian, while the *relativistic corrections* are represented by the perturbation operators \mathcal{H}_{rs} and \mathcal{H}_{fs} . The perturbation term \mathcal{H}_{rs}

TABLE II. Fine splitting $\Delta E_{n,l=2}$ for D states in megahertz.

State $ n, l = 2\rangle$	Expt. [11]	Expt. [8]	Expt. [10]	Theory [7]	Theory (this work)
8D	$30.4(4) \times 10^3$	NA	NA	113.17×10^3	36.42×10^3
10D	$14.9(2) \times 10^3$	NA	NA	52.05×10^3	16.56×10^3
30D	NA	452.42(18)	452.5(11)	1447.53	456.13
35D	NA	279.65(10)	280.4(11)	894.84	281.52
45D	NA	128.33(4)	127.8(11)	407.64	128.98
55D	NA	69.17(2)	69.4(11)	223.71	69.47
57D	NA	61.98(2)	62.2(11)	197.39	62.24

contains all the relativistic perturbations like *mass correction*, one- and two-body *Darwin terms*, and further the *spin-spin contact* and *orbit-orbit* terms, which all commute with the total angular momentum \mathbf{L} and total spin \mathbf{S} , thus effectuating only small *shifts* of the spectrum of the nonrelativistic Hamiltonian \mathcal{H}_{nr} . The perturbation operator \mathcal{H}_{fs} , on the other hand, breaks the rotational symmetry. It consists of the standard *nuclear spin-orbit*, the *spin-other-orbit*, and the *spin-spin dipole* interaction terms, which all commute with $\mathbf{J} = \mathbf{L} + \mathbf{S}$, but not with \mathbf{L} or with \mathbf{S} separately, thus inducing the fine splitting of the nonrelativistic spectrum.

Although the proposed functional form of the potential (11) is highly plausible on physical grounds outside the inner-core region $r > Z^{-\frac{1}{3}}$, *prima facie* it appears to be inconsistent to lump the aforementioned relativistic many-body forces, spin-other-orbit and spin-spin dipole interaction, into an effective single-electron potential of the functional form (11), so that it provides an accurate description also for small distances $Z^{-1} < r < Z^{-\frac{1}{3}}$.

In the absence of a better microscopic theory for an effective single-electron potential $V_{\text{eff}}(r; j, l)$ describing the fine splitting of the spectrum of the outermost electron in the alkali atoms, we introduce a *cutoff* at a distance $r_{\text{so}}(l)$ with $Z^{-1} < r_{\text{so}}(l) < Z^{-\frac{1}{3}}$ so that the effective single-electron potential is now described by the following modified potential:

$$\tilde{V}_{\text{mod}}(r; j, l) = \begin{cases} V_{\text{eff}}(r; l) & \text{if } 0 \leq r \leq r_{\text{so}}(l), \\ V_{\text{eff}}(r; l) + V_{\text{SO}}(r; j, l) & \text{if } r > r_{\text{so}}(l). \end{cases} \quad (14)$$

The choice [2]

$$\begin{aligned} r_{\text{so}}(l=1) &= 0.029483 \times r_c(l=1) = 0.0442825, \\ r_{\text{so}}(l=2) &= 0.051262 \times r_c(l=2) = 0.2495720, \end{aligned} \quad (15)$$

gives a surprisingly accurate description of the fine splitting in the spectroscopic data for *all* principal quantum numbers n (see Fig. 1, Tables I and II). By choosing larger values for $r_{\text{so}}(l)$ than stated in (15), the calculated fine splitting is too small compared to experiment, and vice versa, by choosing smaller values for $r_{\text{so}}(l)$ we find the calculated fine splitting is too large compared to experiment.

The calculation of the spectrum of the outermost bound electron is then reduced to solving the radial Schrödinger equation (8) with the modified potential $\tilde{V}_{\text{mod}}(r; j, l)$. The resulting spectrum is actually hydrogenlike, that is,

$$E_{n,j,l} = -\frac{1}{(n - \Delta_{j,l})^2}, \quad (16)$$

where $\Delta_{j,l}$ denotes a quantum defect also comprising the fine splitting. In actual fact the quantum defect describes a reduction of the number of nodes n_r of the radial wave function for $l = 0, 1, 2$ as a result of the short-range interaction of the outermost electron with the ionic core of the atom. Because the higher the orbital angular momentum quantum number l , the lower the probability of the electron being located near to the center, it is clear that the quantum defect decreases

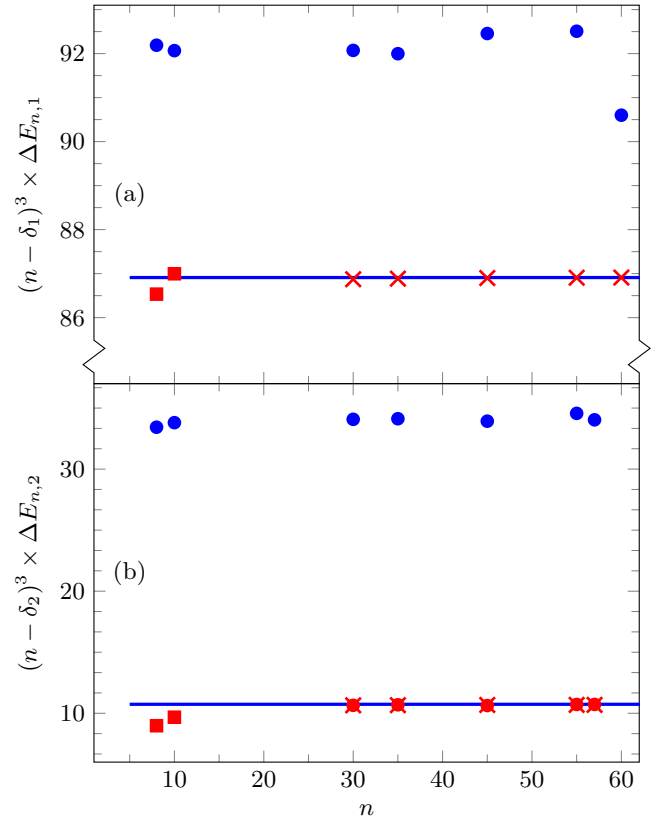


FIG. 1. (Color online) Reduced fine splitting in THz (a) for P states (cf. Table I) and (b) for D states (cf. Table II). The blue line corresponds to the theory from this work [see Eq. (17)]. The blue circles show the recent numerically calculated results from [7]. The red symbols denote experimental data from Refs. [11] (squares), [8] (crosses), and [10] (circles). The error bars for the experimental data are given in Tables I and II.

rapidly with increasing orbital angular momentum l . Therefore $\Delta_{j,l}$ is only notably different from zero for $l = 0, 1, 2$.

Writing $\Delta_{j,l} = \delta_l + \eta_{j,l}$ with $\eta_{j,l} \ll \delta_l$, the fine splitting to leading order in α^2 is

$$\Delta E_{n,l} = 2 \frac{\eta_{l-\frac{1}{2},l} - \eta_{l+\frac{1}{2},l}}{(n - \delta_l)^3}. \quad (17)$$

The quasiclassical momentum $p \equiv \sqrt{-Q}$ of the bound electron depending on energy $E < 0$ with orbital angular momentum $l > 0$, total angular momentum $j = l \pm \frac{1}{2}$, and taking into account the Langer shift $l(l+1) \rightarrow (l + \frac{1}{2})^2$ in the centrifugal barrier [15,16] is then given by

$$Q(r; j, l, E) = \frac{(l + \frac{1}{2})^2}{r^2} + \tilde{V}_{\text{mod}}(r; j, l) - E. \quad (18)$$

For $l = 0$ the centrifugal barrier term and the spin-orbit potential are absent.

Considering high excitation energies $E < 0$ of the bound outermost electron, i.e., a principal quantum number $n \gg 1$, the respective positions of the turning points $r^{(\pm)}$ are given

approximately by

$$r^{(-)} = \frac{(l + \frac{1}{2})^2}{1 + \sqrt{1 + (l + \frac{1}{2})^2 E}} \quad \text{if } l \geq 3, \quad (19)$$

$$r^{(+)} \simeq \frac{1}{-E} \left[1 + \sqrt{1 + (l + \frac{1}{2})^2 E} \right] \quad \text{if } l \geq 1,$$

where $0 < l \ll \frac{1}{\sqrt{-E}}$. Of course, for $l = 0$ only a single (large) turning point $r^{(+)} = \frac{2}{-E}$ exists due to the absence of the centrifugal barrier. However, the lower turning points $r^{(-)}$ are strongly modified for $l = 1, 2$ compared to the pure Coulomb potential case, taking into account the core polarization. For $l = 1, 2$ the relation $r^{(-)}(l) \simeq 0.02 \times r_c(l)$ holds; that is, $r^{(-)}(l = 1) \simeq 0.03472$ and $r^{(-)}(l = 2) \simeq 0.12827$ [2]. While the analytic formula for the lower turning points $r^{(-)}(l)$ in (19), being valid for $3 \leq l \ll n$, depends only weakly on the principal quantum number n , we find from numerical calculations with the potential (14) that this also applies for $l = 1, 2$ and $n \geq 8$. Since the cutoff $r_{so}(l)$ in (15) is substantially above those values of the lower turning points $r^{(-)}(l)$, a quasiclassical calculation of the fine-split spectrum of the bound outermost electron is reliable.

For a chosen radial quantum number n_r , the associated eigenvalues $E = E_{n,j,l} < 0$ of the outermost electron moving in the potential (14) now follow from the WKB patching condition [17–19]:

$$v(j, l, E) \stackrel{!}{=} \begin{cases} n_r + 1 & \text{if } l = 0, \\ n_r + \frac{1}{2} & \text{if } l > 0, \end{cases} \quad (20)$$

where $v(j, l, E)$ denotes the action integral

$$v(j, l, E) = \frac{1}{\pi} \int_{r^{(-)}}^{r^{(+)}} dr \sqrt{-Q(r; j, l, E)} \\ = \frac{1}{2\pi} \oint dr p(r; j, l, E). \quad (21)$$

Plotting the function $v(j, l, E)$ versus $\frac{1}{\sqrt{-E}}$ for $l = 0, 1, 2$ clearly reveals a linear dependence of the form $v(j, l, E) = \frac{1}{\sqrt{-E}} + c(j, l)$ (see Fig. 2).

According to [6], for $A, B, C, D \in \mathbb{R}$, with $A > 0$, $B > 0$, $C > 0$, and $|D| \ll C$, the following equality holds:

$$\frac{1}{2\pi} \oint dr \sqrt{-A + \frac{2B}{r} - \frac{C}{r^2} + \frac{D}{r^3}} = \frac{B}{\sqrt{A}} - \sqrt{C} + \frac{BD}{2C\sqrt{C}}. \quad (22)$$

For a pure Coulomb potential $A \equiv -E$, $B \equiv 1$, $C \equiv (l + \frac{1}{2})^2$, and $D \equiv \alpha^2 g(j, l)$. The corresponding action integral then reads

$$v^{(C)}(j, l, E) = \begin{cases} \frac{1}{\sqrt{-E}} & \text{if } l = 0, \\ \frac{1}{\sqrt{-E}} - (l + \frac{1}{2}) + \frac{\alpha^2 g(j, l)}{2(l + \frac{1}{2})^3} & \text{if } l > 0. \end{cases} \quad (23)$$

It is thus found from WKB theory that the quantum defect associated with the single-electron potential $\tilde{V}_{\text{mod}}(r; j, l)$ is

$$\Delta_{j,l} = \lim_{E \rightarrow 0^-} [v(j, l, E) - v^{(C)}(j, l, E)]. \quad (24)$$

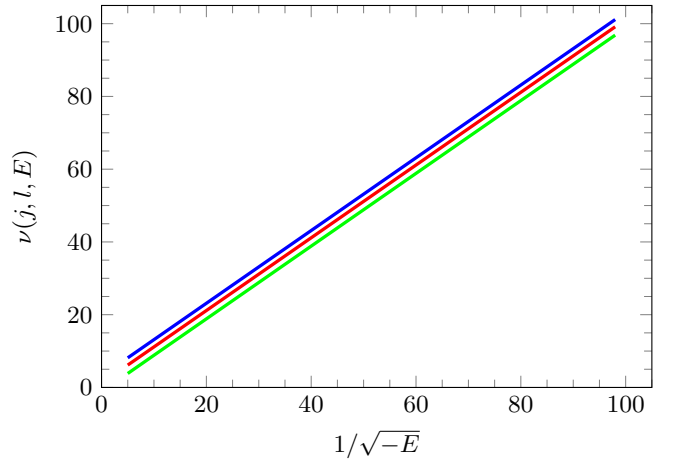


FIG. 2. (Color online) The action integral $v(j, l, E)$ associated with the effective single-electron potential $\tilde{V}_{\text{mod}}(r; j, l)$ vs scaled energy $\frac{1}{\sqrt{-E}}$ for $l = 0$ (blue line), $l = 1$ (red line), $l = 2$ (green line), all for $j = l + \frac{1}{2}$. The curves for $j = l - \frac{1}{2}$ differ only by a tiny shift proportional to α^2 .

Ignoring spin-orbit coupling, i.e., for $\alpha = 0$, one has $\Delta_{j,l} \equiv \delta_l$, the standard quantum defect. For $l = 0$ the centrifugal barrier and the spin-orbit coupling term (6) are zero, so $\Delta_{j,l} \rightarrow \Delta_{\frac{1}{2},0} \equiv \delta_0$.

The dependence of the quasiclassical momentum $\sqrt{-Q}(r; j, l, E)$ on the scaled distance $\frac{r}{r_c(l)}$ is shown for $l = 0, 1, 2$ in Fig. 3. Clearly, it is the inner-core region $r^{(-)}(l) < r < r_c(l)$ that provides the main contribution to the quantum defect values. We find, for $l = 0, 2$, that changing the fitting parameter $a_3(l)$ in (3) from its tabulated value in [5] according to the scaling prescription $a_3(l = 0) \rightarrow 0.814 \times a_3(l = 0)$ and $a_3(l = 2) \rightarrow 0.914 \times a_3(l = 2)$ leads to a slight downward

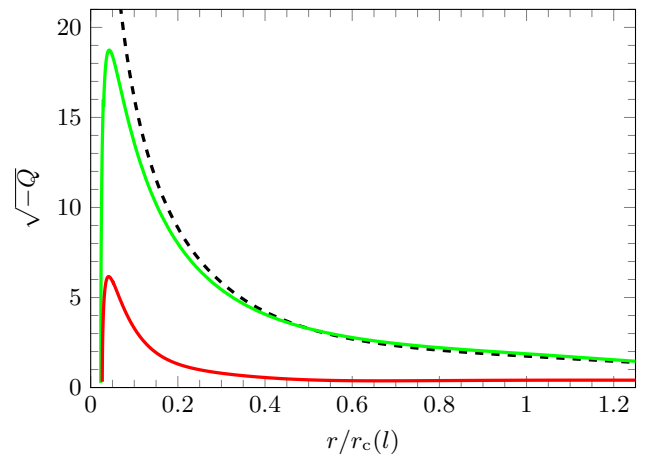


FIG. 3. (Color online) The quasiclassical momentum $\sqrt{-Q}(r; j, l, E)$ vs scaled distance $\frac{r}{r_c(l)}$ for $l = 0$ (dashed black), $l = 1$ (green), and $l = 2$ (red) for $E = E_{n,j,l}$, corresponding to principal quantum number $n = 57$ and $j = l + \frac{1}{2}$. The lower turning points $r^{(-)}(l)$ for the case of a pure Coulomb potential, for $l > 0$ all being greater than $0.6 \times r_c(l)$, are located well outside the core region. The main contribution to the quantum defect values in (24) thus originates from the inner-core region $r < r_c(l)$.

TABLE III. The values of quantum defect $\Delta_{j,l}$ associated with the Rydberg level $n = 57$ for $l = 0, 1, 2$.

Quantum defect $\Delta_{j,l}$	Expt. [8]	Expt. [10]	Theory [7]	Theory (this work)
$\Delta_{\frac{1}{2},0}$	3.1312419(10)	3.13125(2)	3.12791	3.13095
$\Delta_{\frac{1}{2},1}$	2.6549831(10)	NA	2.65795	2.65197
$\Delta_{\frac{3}{2},1}$	2.6417735(10)	NA	2.64399	2.63876
$\Delta_{\frac{1}{2},1} - \Delta_{\frac{3}{2},1}$	0.0132096(14)	NA	0.01396	0.01321
$\Delta_{\frac{3}{2},2}$	1.3478971(4)	1.34789(2)	1.35145	1.34851
$\Delta_{\frac{5}{2},2}$	1.3462733(3)	1.34626(2)	1.34628	1.34688
$\Delta_{\frac{3}{2},2} - \Delta_{\frac{5}{2},2}$	0.0016238(5)	0.00163(3)	0.00517	0.00163

constant shift of the WKB-quantum defect. As a result of this change, the calculated WKB-quantum defect $\Delta_{l\pm\frac{1}{2},l}$ then agrees well with the spectroscopic data (see Table III). Such a change of $a_3(l)$ does not affect the fine-splitting values $\Delta E_{n,l}$ though. We also find that the dependence of the fine splitting $\Delta E_{n,l}$ on the principal quantum number n is well described by (17) for all $n \geq 8$ (see Tables I and II).

In actual fact, for $r^{(+)} \gg r^{(-)}$, which is a criterion that is always met for high excitation energies $\sqrt{-E} \simeq 0$ of the outermost electron, the uniform Langer-WKB wave function $U_{n,j,l}^{(\text{WKB})}(r)$ [19,20], with $r^{(+)}$ considered as the only turning point, describes the numerical solution $U_{n,j,l}(r)$ to the radial differential equation (8) under the influence of the effective modified single-electron potential (14) rather accurately [21]. Only very near to the second turning point $r^{(-)}$, at a distance smaller than $r_{\text{so}}(l)$, does the Langer-WKB wave function $U_{n,j,l}^{(\text{WKB})}(r)$ cease to be a good approximation to the numerical solution $U_{n,j,l}(r)$ of the radial Schrödinger equation (8) [21].

III. CONCLUSIONS

In this work we reported a significant discrepancy between experiment [8,10] and highly accurate variational calculations

[7] of the spectrum of Rydberg states of ^{87}Rb on the energy scale of the fine splitting. We discussed that the usual *a posteriori* adding of the relativistic spin-orbit potential to the effective single-electron potential governing the outermost electron of alkali atoms is indeed inconsistent inside the inner atomic core region. In the absence of a full microscopic theory that lumps all many-body interactions together with the relativistic corrections into an effective single-electron potential in a consistent manner, we suggested a modified effective single-electron potential, cf. (14), that enables a correct description of the spectrum of Rydberg states on the fine-splitting scale in terms of a simple WKB-action integral for all principal quantum numbers $n \geq 8$. Modern precision spectroscopy of highly excited Rydberg states thus enables the probing of the multielectron correlation problem of the ionic core of alkali atoms. This is certainly a fascinating perspective for further experiments and theoretical studies.

ACKNOWLEDGMENTS

This work was financially supported by the EU FET-Open Xtrack Project HAIRS and the Carl Zeiss Stiftung Foundation.

-
- [1] T. F. Gallagher, *Rydberg Atoms*, 1st ed. (Cambridge University Press, Cambridge, UK, 1994).
- [2] We use scaled variables so that length is measured in units of the Bohr radius $a_B = \frac{\hbar^2}{m_e} \frac{4\pi\epsilon_0}{|e|^2} \simeq 5.2918 \times 10^{-11}$ m and energy is measured in units of Rydberg, $\text{Ry} = \frac{m_e |e|^4}{8\epsilon_0^2 \hbar^2} \simeq 13.605$ eV.
- [3] M. Goepfert Mayer, *Phys. Rev.* **60**, 184 (1941).
- [4] C. H. Greene and M. Aymar, *Phys. Rev. A* **44**, 1773 (1991).
- [5] M. Marinescu, H. R. Sadeghpour, and A. Dalgarno, *Phys. Rev. A* **49**, 982 (1994).
- [6] M. Born, *Vorlesungen über Atommechanik* (Springer, Berlin, 1925), §27, §28, and II. Anhang.
- [7] M. Pawlak, N. Moiseyev, and H. R. Sadeghpour, *Phys. Rev. A* **89**, 042506 (2014).
- [8] W. Li, I. Mourachko, M. W. Noel, and T. F. Gallagher, *Phys. Rev. A* **67**, 052502 (2003).
- [9] A. K. Mohapatra, T. R. Jackson, and C. S. Adams, *Phys. Rev. Lett.* **98**, 113003 (2007).
- [10] M. Mack, F. Karlewski, H. Hattermann, S. Höckh, F. Jessen, D. Cano, and J. Fortágh, *Phys. Rev. A* **83**, 052515 (2011).
- [11] J. E. Sansonetti, *J. Phys. Chem. Ref. Data* **35**, 301 (2006).
- [12] J. Schwinger, *Quantum Mechanics: Symbolism of Atomic Measurements*, 1st ed. (Springer, Berlin, 2001).
- [13] H. A. Bethe and E. E. Salpeter, *Quantum Mechanics of One- and Two-Electron Atoms* (Springer, Berlin, 1957).
- [14] C. Froese-Fischer, T. Brage, and P. Jönsson, *Computational Atomic Structure: An MCHF Approach* (IOP Physics, Bristol, 1997).
- [15] R. E. Langer, *Phys. Rev.* **51**, 669 (1937).
- [16] M. V. Berry and K. E. Mount, *Rep. Prog. Phys.* **35**, 315 (1972).
- [17] A. B. Migdal, *Qualitative Methods in Quantum Theory* (Addison-Wesley, Reading, MA, 1977).
- [18] B. M. Karnakov and V. P. Krainov, *WKB Approximation in Atomic Physics* (Springer, Berlin, 2013).
- [19] C. M. Bender and S. A. Orszag, *Advanced Mathematical Methods for Scientists and Engineers* (McGraw-Hill, Singapore, 1978).
- [20] R. E. Langer, *Bull. Am. Math. Soc.* **40**, 545 (1934).
- [21] A. Sanayei and N. Schopohl (unpublished).

State-selective all-optical detection of Rydberg atoms

Florian Karlewski,^{1,*} Markus Mack,¹ Jens Grimmel,¹ Nóra Sándor,^{1,2,†} and József Fortágh^{1,‡}

¹*CQ Center for Collective Quantum Phenomena and their Applications, Physikalisches Institut, Eberhard-Karls-Universität Tübingen, Auf der Morgenstelle 14, D-72076 Tübingen, Germany*

²*Institute for Solid State Physics and Optics, Wigner Research Centre for Physics, Hungarian Academy of Sciences, H-1525 Budapest P.O. Box 49, Hungary*

(Received 13 February 2015; published 29 April 2015)

We present an all-optical protocol for detecting population in a selected Rydberg state of alkali-metal atoms. The detection scheme is based on the interaction of an ensemble of ultracold atoms with two laser pulses: one weak probe pulse which is resonant with the transition between the ground state and the first excited state, and a pulse with high intensity which couples the first excited state to the selected Rydberg state. We show that by monitoring the absorption signal of the probe laser over time, one can deduce the initial population of the Rydberg state. Furthermore, it is shown that—for suitable experimental conditions—the dynamical absorption curve contains information on the initial coherence between the ground state and the selected Rydberg state. We present the results of a proof-of-principle measurement performed on a cold gas of ⁸⁷Rb atoms. The method is expected to find application in quantum computing protocols based on Rydberg atoms.

DOI: [10.1103/PhysRevA.91.043422](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.91.043422)

PACS number(s): 32.80.Ee, 32.80.Qk, 32.80.Rm

I. INTRODUCTION

Rydberg atoms coupled to electromagnetic fields form a promising system for the physical realization of quantum information protocols [1] and quantum simulations [2]. In these protocols qubits are realized by a set of atomic states, which includes one or potentially more Rydberg levels. One requirement of these schemes is the ability to measure the Rydberg states' population in order to read out the results of the quantum operations. For accomplishing this task, most experiments with ultracold Rydberg gases use methods including field ionization and subsequent detection of electrons or ions on multichannel plates or channeltrons [3]. These techniques offer high sensitivity and—for carefully chosen experimental conditions [4,5]—selectivity among the Rydberg levels [6–8].

Selective field ionization (SFI) techniques are based on the fact that the ionization threshold is different for each atomic state, increasing from higher to lower lying levels. Hence, by slowly ramping up the electric field and monitoring the electrons or ions over time it is possible to deduce the initial populations in each level. However, the population of a lower lying Rydberg level cannot be probed without destroying the population of any higher lying Rydberg state. Therefore this method is not applicable in protocols which require independent probing of multiple Rydberg states [9]. Another inherent property of methods based on ionization is that the detected atoms are removed from the system and cannot be reused. Although this atomic loss is negligible in most cases [3], it might be a serious limitation in experiments working with only one or a few atoms [10].

One alternative to ionization detection methods is all-optical probing based on electromagnetically induced transparency (EIT) [11]. This approach has been successfully

applied in order to nondestructively probe the Rydberg level structure in noninteracting [12,13] and weakly interacting [14] Rydberg gases, as well as in the presence of electric fields [15–19]. These experiments, however, did not access the population of the Rydberg state. On the other hand, an EIT-based scheme for the optical detection of the Rydberg population [20,21] has been proposed and demonstrated in dense atomic clouds where the Rydberg blockade allows the spatially resolved detection of Rydberg atoms.

Here we propose an all-optical scheme for detecting the population in a selected Rydberg state in dilute gases. By using a series of laser pulses in EIT configuration this technique also allows for distinction between coherent superpositions and statistical mixtures of the ground and Rydberg states of the atoms. Since this scheme is based on time-resolved observation of the optical response of individual atoms it may, in principle, be used down to the single atom level. Our method is state selective and applicable for testing the population not only in the highest Rydberg level of interest (cf. SFI) but any lower lying or intermediate Rydberg state.

We present our theoretical model along with numerical simulations and demonstrate the scheme in a proof-of-principle experiment with a dilute gas of ⁸⁷Rb atoms showing the detection of the population in an initially prepared Rydberg state. Our analysis includes characteristic effects of Rydberg experiments such as blackbody-induced depopulation [22,23], superradiance [24], and dipole-dipole interaction [25].

II. THEORETICAL MODEL

Let us consider a cold atomic gas interacting with two laser pulses in an EIT-like configuration [11]. One of the pulses, resonant with the atomic transition between the ground state $|1\rangle$ and the first excited state $|2\rangle$, is a weak probe pulse well below the saturation intensity, while the other one is a relatively strong coupling pulse which is resonant with the atomic transition between the first excited state $|2\rangle$ and a selected (arbitrary) Rydberg $nS_{1/2}$ state $|3\rangle$ (see Fig. 1). A

*florian.karlewski@uni-tuebingen.de

†Present address: IPCMS (UMR 7504) and ISIS (UMR 7006), Université de Strasbourg and CNRS, Strasbourg, France.

‡fortag@uni-tuebingen.de

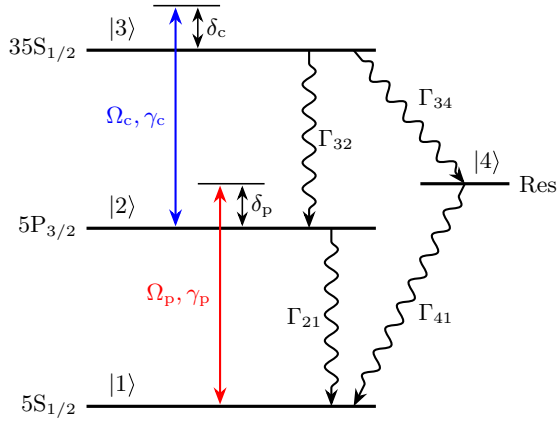


FIG. 1. (Color online) Illustration of the atom-laser interaction as used for the model of time-resolved EIT. States $|1\rangle$, $|2\rangle$, and $|3\rangle$ denote the ground state, the first excited state, and a Rydberg state of the atom, respectively. In our experimental setup, these states correspond to the $5S_{1/2}(F=2)$, $5P_{3/2}(F=3)$, and $35S_{1/2}(F=2)$ states of ^{87}Rb . The atomic transition $|1\rangle \leftrightarrow |2\rangle$ is driven by a weak probe laser with the Rabi frequency Ω_p (red), while the transition $|2\rangle \leftrightarrow |3\rangle$ is driven by a stronger coupling laser with the Rabi frequency Ω_c (blue). γ_p and γ_c denote coherence decay terms. δ_p and δ_c are the detunings of each laser to the corresponding atomic resonance. The radiative decay from the selected Rydberg state $|3\rangle$ to the neighboring states is accounted for by including a reservoir state $|4\rangle$. Γ_{ij} denote the respective incoherent decays, consisting of spontaneous emission as well as transitions induced by blackbody radiation.

single “reservoir” state $|4\rangle$ is used to model the neighboring Rydberg states [14].

We use a semiclassical approach for describing the dynamics of the system and the laser pulses are taken into account through their classical electric field. The atomic gas is modeled by a motionless ensemble of atoms. The state of the atoms is described by the density matrix $\rho = \sum_{i,j=1}^4 \rho_{i,j} |i\rangle \langle j|$, where the states $|2\rangle$ and $|3\rangle$ rotate with the atomic transition frequencies ω_{21} and ω_{23} , respectively.

The time evolution of $\rho(t)$ is described by the master equation

$$i\hbar\dot{\rho} = [\mathcal{H}, \rho] + \mathcal{U}[\rho]. \quad (1)$$

Here the Hamiltonian \mathcal{H} accounts for the interactions between the atoms and the laser pulses. The effects due to interatomic interactions are considered through dynamic effective rates in $\mathcal{U}[\rho]$ along with radiative losses occurring in the system. The Hamiltonian \mathcal{H} is written as

$$\begin{aligned} \mathcal{H} = & -\frac{\hbar}{2}(\Omega_p |2\rangle \langle 1| + \Omega_c |3\rangle \langle 2| + \text{H.c.}) \\ & -\hbar(\delta_p |2\rangle \langle 2| + \delta_c |3\rangle \langle 3|), \end{aligned} \quad (2)$$

where $\Omega_p = (E_p d_{12})/\hbar$ and $\Omega_c = (E_c d_{23})/\hbar$ are the Rabi frequencies of the probe and coupling lasers, with E_p and E_c being the electric fields, and d_{12} and d_{23} the dipole matrix elements of the corresponding transitions, whereas δ_p and δ_c are the detunings of the probe and coupling laser from the corresponding transitions, respectively (see Fig. 1). Although we consider a situation where both the coupling and the probe laser are resonant with the atomic transitions they drive (i.e.,

$\delta_p = \delta_c = 0$), by including these detunings one can account for potentially uncompensated electric and/or magnetic fields in a specific experimental realization. The operator \mathcal{U} which governs the non-Hamiltonian part of the dynamics reads as

$$\begin{aligned} \mathcal{U}[\rho] = & \frac{\Gamma_{32}}{2}(2\sigma_{13}\rho\sigma_{31} - \sigma_{33}\rho - \rho\sigma_{33}) \\ & + \frac{\Gamma_{21}}{2}(2\sigma_{12}\rho\sigma_{21} - \sigma_{22}\rho - \rho\sigma_{22}) \\ & + \frac{\Gamma_{34}}{2}(2\sigma_{43}\rho\sigma_{34} - \sigma_{33}\rho - \rho\sigma_{33}) \\ & + \frac{\Gamma_{41}}{2}(2\sigma_{14}\rho\sigma_{41} - \sigma_{44}\rho - \rho\sigma_{44}) \\ & + \frac{\gamma_p}{2}(2\sigma_{11}\rho\sigma_{11} - \rho_{11}\rho - \rho\sigma_{11}) \\ & + \frac{\gamma_c}{2}(2\sigma_{33}\rho\sigma_{33} - \rho_{33}\rho - \rho\sigma_{33}), \end{aligned} \quad (3)$$

where $\sigma_{kj} = |k\rangle \langle j|$ are the atomic projection operators ($k, j \in \{1, 2, 3, 4\}$).

There are multiple sources of nonunitary dynamics in the system. One of them is the spontaneous emission from the first excited state $|2\rangle$ and the Rydberg state $|3\rangle$ which we take into account by introducing radiative decay rates Γ_{21} and Γ_{32} . Another source, if present, is a depopulation of the Rydberg state $|3\rangle$ towards the neighboring Rydberg states. The depopulation may occur due to several phenomena depending on the actual realization of the system, such as amplified spontaneous emission and/or superradiance [24,26] as well as induced emission and absorption due to the blackbody radiation of the environment [22,23]. Following [26], we take these effects into account by modifying the third term in Eq. (3) to the dynamic effective decay rate

$$\tilde{\Gamma}_{34}(t) = \Gamma_{34,\text{sp}}[\rho_{44}(t)p_{\text{sup}} + 1] + \Gamma_{34,\text{bb}}, \quad (4)$$

with p_{sup} a superradiance parameter, and $\Gamma_{34,\text{sp}}$ and $\Gamma_{34,\text{bb}}$ the effective decay rates caused by spontaneous emission and blackbody radiation, respectively. In our model we assume that the entire population eventually ends up in the ground state $|1\rangle$. This assumption is valid provided the ionization from all involved states is negligible.

The above-mentioned phenomena cause population transfer between the atomic states. In contrast, there is a group of processes which do not result in a significant energy decay in the system but leads to a relevant coherence loss. One such process is the phase noise of the driving lasers, which is included into the model through the coherence decay rates γ_p and γ_c . Due to the redistribution of population from $|3\rangle$ to $|4\rangle$, atoms in Rydberg nP_j states are present in the cloud at various distances. As observed by [25], the dipole-dipole interaction with these nP_j state atoms results in an inhomogeneous broadening of the Rydberg $nS_{1/2}$ state. We take this into account by adding an effective dephasing term in Eq. (3) to γ_c ,

$$\check{\gamma}_c(t) = \gamma_c + \gamma_{3,\text{dd}}\rho_{44}(t). \quad (5)$$

The optical response of the cloud under the effect of the two laser pulses is given by the macroscopic polarization $\vec{P} = \mathcal{N} \text{Tr}[\rho \vec{d}]$ where $\vec{d} = \sum_{i \neq j} (d_{ij} |i\rangle \langle j| + \text{H.c.})$ is the atomic dipole operator. The absorption α of the probe laser is then

given by the imaginary part of the electric susceptibility χ ,

$$\alpha(t) = \text{Im}[\chi(t)] = \frac{\mathcal{N}d_{12}^2}{\epsilon_0\hbar\Omega_p} \text{Im}[\rho_{21}(t)], \quad (6)$$

where \mathcal{N} is the atom density of the cloud. Note that here we make the approximation that the cloud is homogeneously irradiated and the propagation effects of the laser pulses can be neglected. The time-dependent absorption signal is thus given by the master equation, which, using the operators given in Eqs. (2) and (3), reads as

$$\dot{\rho}_{11} = \frac{i}{2}(\Omega_p^*\rho_{21} - \Omega_p\rho_{12}) + \Gamma_{21}\rho_{22} + \Gamma_{41}\rho_{44}, \quad (7a)$$

$$\dot{\rho}_{22} = \frac{i}{2}(\Omega_p\rho_{12} - \Omega_p^*\rho_{21} - \Omega_c\rho_{23} + \Omega_c^*\rho_{32}) - \Gamma_{21}\rho_{22} + \Gamma_{32}\rho_{33}, \quad (7b)$$

$$\dot{\rho}_{33} = \frac{i}{2}(\Omega_c\rho_{23} - \Omega_c^*\rho_{32}) - (\Gamma_{32} + \tilde{\Gamma}_{34})\rho_{33}, \quad (7c)$$

$$\dot{\rho}_{21} = \frac{i}{2}[\Omega_c^*\rho_{31} - \Omega_p(\rho_{22} - \rho_{11}) + 2\delta_p\rho_{21}] - \frac{1}{2}(\Gamma_{21} + \gamma_p)\rho_{21}, \quad (7d)$$

$$\dot{\rho}_{31} = \frac{i}{2}[\Omega_c\rho_{21} - \Omega_p\rho_{32} + 2(\delta_p + \delta_c)\rho_{31}] - \frac{1}{2}(\gamma_p + \tilde{\gamma}_c + \Gamma_{32} + \tilde{\Gamma}_{34})\rho_{31}, \quad (7e)$$

$$\dot{\rho}_{32} = \frac{i}{2}[-\Omega_p^*\rho_{31} - \Omega_c(\rho_{33} - \rho_{22}) - 2\delta_c\rho_{32}] - \frac{1}{2}(\tilde{\gamma}_c + \Gamma_{21} + \Gamma_{32})\rho_{32}, \quad (7f)$$

$$\dot{\rho}_{44} = \tilde{\Gamma}_{34}\rho_{33} - \Gamma_{41}\rho_{44}, \quad (7g)$$

$$\dot{\rho}_{41} = \frac{i}{2}(-\Omega_p\rho_{42} + 2\delta_p\rho_{41}) - \frac{1}{2}(\Gamma_{41} + \gamma_p)\rho_{41}, \quad (7h)$$

$$\dot{\rho}_{42} = -\frac{i}{2}(\Omega_p^*\rho_{41} + \Omega_c\rho_{43}) - \frac{1}{2}(\Gamma_{21} + \Gamma_{41})\rho_{42}, \quad (7i)$$

$$\dot{\rho}_{43} = \frac{i}{2}(\Omega_c^*\rho_{42} + 2\delta_c\rho_{43}) - \frac{1}{2}(\Gamma_{32} + \tilde{\Gamma}_{34} + \Gamma_{41} + \tilde{\gamma}_c). \quad (7j)$$

When there is no coupling to the Rydberg state ($\Omega_c = 0$), an analytical steady state solution for α can be obtained, which will be used for normalization:

$$\alpha_0 = \frac{\mathcal{N}d_{12}^2}{\epsilon_0\hbar} \Gamma_{21}(\gamma_p + \Gamma_{21}) \times [\gamma_p^2\Gamma_{21} + 2\gamma_p(\Omega_p^2 + \Gamma_{21}^2) + \Gamma_{21}(4\delta_p^2 + 2\Omega_p^2 + \Gamma_{21}^2)]^{-1}. \quad (8)$$

III. DETECTION OF THE RYDBERG POPULATION: RESULTS OF THE NUMERICAL SIMULATION

We numerically solve the equation system (7) with the pulse sequence of the lasers given by $\Omega_p(t)$ and $\Omega_c(t)$ (see the sequence A, B, C in Fig. 2). The solution provides a

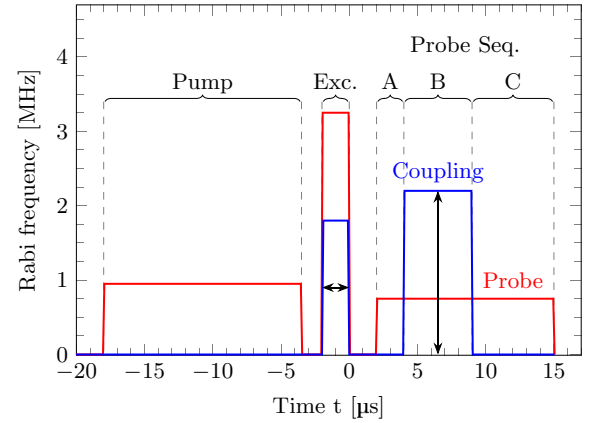


FIG. 2. (Color online) Pulse sequence for the coupling (blue) and probe (red) lasers. At $t = 0$ a fraction of the atomic population is prepared in the Rydberg state. In the simulations this fraction is an input value, while in the experiment it is determined by the length of the excitation pulse (Exc.). Before this, an optical pumping pulse (Pump) is used to pump the atoms to the correct polarization. The time evolution of the optical density is monitored after the excitation pulse with the probe laser (A, B, C). The coupling laser is added in time interval B (EIT pulse). The Rabi frequencies are taken from the experimental values in Sec. IV.

description of the population dynamics while the atom is being probed by the weak laser on the $|1\rangle \leftrightarrow |2\rangle$ transition along with a time-dependent coupling between states $|2\rangle$ and $|3\rangle$. Furthermore, through Eq. (6) it describes the absorption of the probe laser, which we give relative to α_0 [see Eq. (8)]:

$$\alpha_{\text{rel}}(t) = \frac{\alpha(t)}{\alpha_0}. \quad (9)$$

In Fig. 3 we show results for the cases where the entire population is initially (a) in the ground state [$\rho_0 \equiv \rho(t=0) = |1\rangle\langle 1|$] or (b) in the selected Rydberg state ($\rho_0 = |3\rangle\langle 3|$). In (c) the population is split between the Rydberg state and the reservoir state ($\rho_0 = 0.7|3\rangle\langle 3| + 0.3|4\rangle\langle 4|$).

Following the pulse sequence, the time evolution of the system can be separated into three major parts. When the atoms are initially prepared in the ground state, only small changes in the populations are visible [see Fig. 3(a)]. However, the reasons for these changes are not the same in the different parts of the time evolution. In part A, when the atoms are only irradiated by the relatively weak probe laser ($\Omega_p \ll \Gamma_{21}$), a small fraction of the population is transferred to the first excited state $|2\rangle$ by the absorbed light. In part B, the population transfer to state $|2\rangle$ is prevented by the strong coupling laser applied on the transition between states $|2\rangle$ and $|3\rangle$ and the absorption is reduced, which is the well-known effect of EIT. The time scale for the transparency to build up is defined by the Rabi frequency Ω_c of the coupling laser. If the requirement $\Omega_p \ll \Omega_c$ is not fulfilled, the transparency is only partial. In this case, the two laser fields cause two-photon transitions to state $|3\rangle$, and the absorption of the probe pulse is nonzero. This absorption level (in the case of $\delta_p = \delta_c = 0$) depends on Ω_p/Ω_c and the decoherences γ_p and γ_c . A consequence of this effect is that different initial populations of Rydberg states cause a different absorption level in the equilibrium of part B

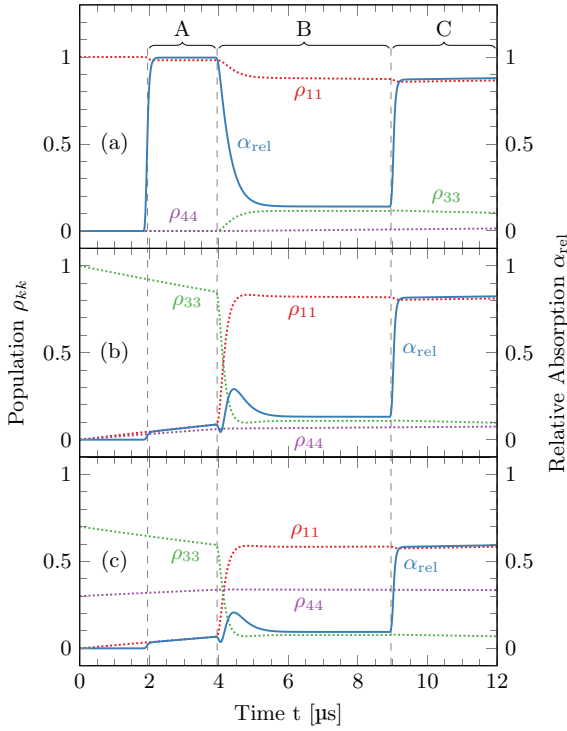


FIG. 3. (Color online) Dynamics of the populations $\rho_{kk}(t)$ of the atomic states (dotted lines) and the relative absorption $\alpha_{\text{rel}}(t)$ (solid lines) of the probe laser induced by the pulse sequence A, B, C (see Fig. 2) for atoms initially prepared in the ground state (a), the selected Rydberg state (b), and the reservoir state (c). Since the population ρ_{22} is almost zero at all times, except for a transient population in the first 100 ns of B, it is not shown here.

due to the dependence of γ_c on ρ_{44} . In part C, where the atom cloud is again only irradiated by the weak probe laser, the process is very similar to what happens in part A with the exception that there is a small fraction of population in state |3⟩. Consequently, the absorption level of the probe laser is smaller, because atoms are missing from the ground state.

In the case of initial population in the selected Rydberg state |3⟩, the dynamics of the system only differ in parts A and B, provided B is long enough to reach steady state EIT. In part A, the absorption of the probe laser is close to zero, and slowly increases while a small fraction of the population decays from the Rydberg state |3⟩. Since the lifetime of the Rydberg states is much longer than 10 μs, the amount of population transferred by spontaneous decay is small although not negligible on the microsecond time scale of the pulse sequence. At the beginning of part B the population in the selected Rydberg state is transferred to the ground state |1⟩ through a resonant transfer from state |3⟩ to |2⟩ induced by the coupling laser with Rabi frequency Ω_c and the consecutive spontaneous emission from |2⟩ to |1⟩. For $\Omega_c < \Gamma_{21}$, this process results in only a small increase in ρ_{22} , because a half Rabi cycle induced by Ω_c between states |2⟩ and |3⟩ would take longer than the lifetime of state |2⟩ [see Fig. 3(b)]. Hence, assuming the initial population is either in the ground state |1⟩ or the selected Rydberg state |3⟩, we can determine the fractions by monitoring the absorption of the probe laser in part A of the time evolution. If there is a way to ensure that all the population missing from the ground

state |1⟩ is in the selected Rydberg state |3⟩, then this is indeed sufficient. However, if the probability that a fraction of the population is in another state (for example, the interaction scheme to be realized contains more than one Rydberg state), the absorption level in part A of the time evolution is not enough in itself to give information about the population of the selected Rydberg state |3⟩.

As illustrated in Figs. 3(b) and 3(c), the absorption of the probe laser in part A is the same for different initial states of the atoms as long as the population in the ground state is the same. In contrast, the dynamics and the equilibrium become significantly different in part B. Since only the population in the selected Rydberg state is transferred back to the ground state by the coupling field, the absorption level in part C also changes with the initial population in |3⟩.

Another result of the simulations is the possibility to obtain information on the initial coherence of the system. The time evolution of the relative absorption in the beginning of part B for three different initial preparations of the atoms is shown in Fig. 4. These initial preparations consist of the same fraction of population in the ground state |1⟩ and the selected Rydberg state |3⟩, but the coherence between these two states is different. One of the initial preparations is the mixed state $\rho_m(t=0) = \frac{1}{2}(|1\rangle\langle 1| + |3\rangle\langle 3|)$, while the other two preparations are $\rho_{\pm}(t=0) = \frac{1}{4}(|1\rangle \pm |3\rangle)(\langle 1| \pm \langle 3|)$. Comparing numerical calculations for these three cases, we find significant changes in the beginning of part B, where the EIT did not yet reach equilibrium. The absorption level during the rest of the pulse sequence is not sensitive to the initial coherence. If the Rabi frequency Ω_c of the coupling laser is on the order of Γ_{23} or higher, oscillations of the absorption signal can be observed.

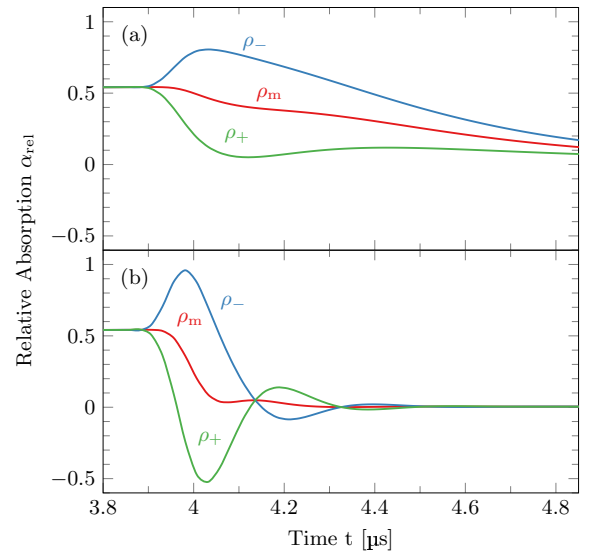


FIG. 4. (Color online) Numerically calculated relative absorption α_{rel} of the probe laser in the beginning of part B for atoms prepared in states $\rho_m(t=0) = \frac{1}{2}(|1\rangle\langle 1| + |3\rangle\langle 3|)$ and $\rho_{\pm}(t=0) = \frac{1}{4}(|1\rangle \pm |3\rangle)(\langle 1| \pm \langle 3|)$. The parameters used for the calculation are the same as for Fig. 3 with $\Omega_c < \Gamma_{21}$ in (a) and $\Omega_c \approx \Gamma_{21}$ in (b). This distinct signature of coherent states is expected to be experimentally observable and even more pronounced if Ω_c is larger.

IV. EXPERIMENTAL SETUP

For demonstrating the detection of Rydberg population with time-resolved EIT, we have conducted an experiment on a cloud of $\approx 2 \times 10^7$ ^{87}Rb atoms at a temperature of ≈ 150 μK . In this experiment the atoms are trapped in a magneto-optical trap, loaded to a magnetic quadrupole trap and then released. The time-resolved measurements are started after 3 ms of time of flight, in order to ensure that all magnetic fields have fully decayed while the effects of atomic motion are still negligible. The measurements are performed within 30 μs (excitation pulse and probe sequence, cf. Fig. 2). The density and optical density at the center of the cloud, measured by absorption imaging, are 5×10^9 cm^{-3} and 1.7, respectively.

The transitions from the ground state $|5S_{1/2}, F=2\rangle$ to the first excited state $|5P_{3/2}, F=3\rangle$ and from there to the selected Rydberg state $|35S_{1/2}\rangle$ are driven by two lasers with wavelengths of ≈ 780 nm (red, probe) and ≈ 480 nm (blue, coupling), respectively (see Fig. 1). Additionally, we use a repumper to pump atoms from $|5S_{1/2}, F=1\rangle$ back to $|5S_{1/2}, F=2\rangle$ via $|5P_{3/2}, F=2\rangle$ during the whole pulse sequence. The frequencies of both lasers used in the experiment are referenced to a frequency comb and controlled with slow servo loops (<100 Hz bandwidth). The linewidths of both lasers are narrowed to less than $2\pi \times 20$ kHz with fast locks (>1 MHz bandwidth) to scanning Fabry-Pérot interferometers. As the Fabry-Pérot cavities are sensitive to acoustic noise, the effective linewidth for the experiment can be larger. The red and the blue lasers are aligned in a counterpropagating configuration (see Fig. 5). We use an acousto-optic modulator (AOM) in each beam to create the intensity envelopes of the pulses. The switching time of the AOMs is 50 ns (20%–80% light intensity). The time-dependent intensity of

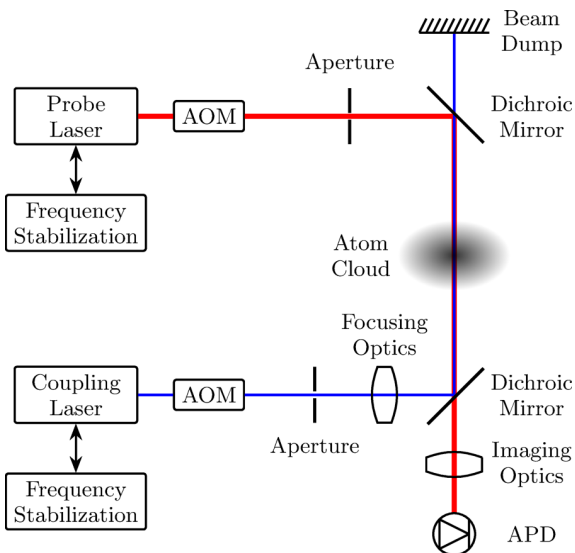


FIG. 5. (Color online) Experimental setup for time-resolved EIT measurements. The counterpropagating coupling (blue) and probe (red) beams are superimposed on the atom cloud and separated with dichroic mirrors. The transmission of the probe laser is detected by an avalanche photo diode (APD). The intensities of the lasers are controlled with acousto-optic modulators (AOM). Both laser frequencies are stabilized using a frequency comb.

the red laser (probe signal) is measured with an avalanche photodetector (Thorlabs APD120A/M) and recorded with a digital oscilloscope. The time resolution of the setup is 20 ns.

As shown in Fig. 2, our measurement consists of three main parts. First we put all the atomic population into the Zeeman-sublevel of the ground state matching the polarization of the red laser by optically pumping for 14.5 μs . This pulse is also long enough that any transient effects due to the switching of the AOM wear off before the next pulse. Next, we prepare the initial state of the atomic cloud with an excitation pulse. We always apply the red laser for 2 μs with a Rabi frequency of $2\pi \times 3.3$ MHz. If we want no population to be transferred to the Rydberg state, the blue laser remains switched off and due to the very short lifetime of the first excited state, practically the entire population remains in the ground state. Applying the blue laser with a Rabi frequency of $2\pi \times 1.8$ MHz for up to 2 μs causes a fraction of the population to be transferred to the Rydberg state, with the most atoms being excited in the case of the full 2 μs pulse. Due to the high Rabi frequency of the red laser there is no coherent excitation of Rydberg atoms. In the third part (probe sequence in Fig. 2), we use the red laser at a low intensity as the probe laser during time intervals A, B, and C together with the blue laser as the coupling laser during time interval B (EIT pulse).

As a reference, we always add one experimental cycle without atoms in order to measure the intensity $I_{\text{ref}}(t)$ of the red laser with the photodetector and another one with atoms but no excitation pulse and no coupling pulse to normalize the data later on. The parameters are then varied from cycle to cycle and the transmitted intensity $I_{\text{T}}(t)$ of the probe light after passing through the cloud is measured. The experiment is repeated several times for each set of parameters to reduce photodiode noise. The optical density (OD) is calculated as follows:

$$\text{OD}(t) = -\ln\left(\frac{I_{\text{T}}(t)}{I_{\text{ref}}(t)}\right). \quad (10)$$

The resulting OD datasets are then normalized by dividing them by the OD dataset that had no excitation pulse and no EIT pulse [$\text{OD}_0(t)$]:

$$\text{OD}_{\text{rel}}(t) = \frac{\text{OD}(t)}{\text{OD}_0(t)} \triangleq \frac{\alpha(t)}{\alpha_0}. \quad (11)$$

This relative optical density OD_{rel} is comparable to the relative absorption $\alpha(t)/\alpha_0$ that is calculated in the numerical simulation. To reduce the effect of the acoustic noise on our Fabry-Pérot cavities, we selected the 30 datasets where the mean transparency in the EIT pulse between 7 and 9 μs was maximal. We observe that in all measurements the relative optical density eventually returns to the level before the excitation pulse, ensuring that ionization effects are negligible.

In general this scheme is applicable in situations where the optical density can be precisely measured. The resolution is limited by technical noise from the photodiode and the digital resolution of the subsequent data acquisition system. For low optical densities it is necessary to detect not only the absorption of the atoms, but to resolve the EIT signal as well. At high optical densities the constant resolution of the intensity measurement additionally leads to a lower

resolution of the optical density due to the logarithmic scaling in Eq. (10). For sufficient averaging, we estimate the presented scheme to be applicable in the range of optical densities between ≈ 0.1 and ≈ 4 . In principal, the optical density can be lowered by detuning the probe laser while maintaining the two-photon resonance for the EIT condition, which on the other hand decreases the contrast for the EIT signal and therefore only allows for a limited extension of the range.

V. DETECTION OF THE INITIAL POPULATION: EXPERIMENTAL RESULTS

We demonstrate the optical detection of population for three different initial Rydberg excitation pulses. The experimental results for the optical density are shown in Fig. 6. In order to compare these results to the model we calculate values for the decay rates matching the chosen combination of states in our experiment (see Fig. 1). We calculate the spontaneous emission rates using the wave functions calculated in [19]. Γ_{32} is approximated by summing the spontaneous decay rates from $|35S_{1/2}\rangle$ to all nP_j states, which results in

$$\Gamma_{32} = \sum_{n>5} \Gamma_{\text{sp},35S \rightarrow nP} = 2\pi \times 3.9 \text{ kHz}. \quad (12)$$

The main contribution comes from $|5P_{3/2}\rangle$ ($\Gamma_{\text{sp},35S \rightarrow 5P} = 2\pi \times 1.2 \text{ kHz}$) and other low-lying, fast-decaying states. The spontaneous decay rate $\Gamma_{34,\text{sp}}$ is given by the rate $\Gamma_{\text{sp},35S \rightarrow 34P} = 2\pi \times 16.8 \text{ Hz}$. Here we take only the strongest superradiant transition into account. The transition rate $\Gamma_{34,\text{bb}}$ is approximated by a sum over all transition rates induced by blackbody radiation from $|35S_{1/2}\rangle$ to all nP_j states

$$\Gamma_{34,\text{bb}} = \sum_{n>5} \Gamma_{\text{bb},35S \rightarrow nP} = 2\pi \times 2.7 \text{ kHz}, \quad (13)$$

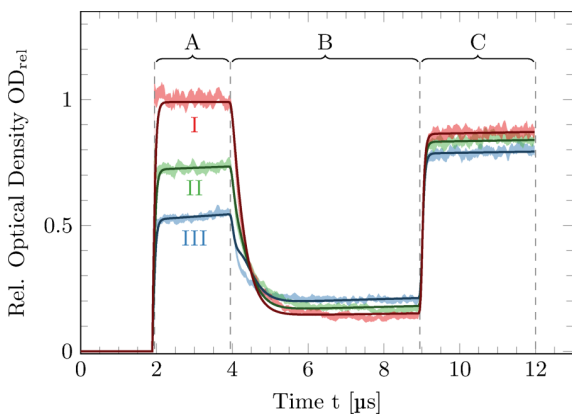


FIG. 6. (Color online) Measured optical density for the dynamics during the probe sequence. The shaded areas are 95% confidence intervals for the relative optical densities $\text{OD}_{\text{rel}}(t)$ obtained from the measurements by applying Eqs. (10) and (11) for three durations of the excitation pulse ($0 \mu\text{s}$ for I, $0.5 \mu\text{s}$ for II, and $2 \mu\text{s}$ for III). Solid lines represent fit results for the simulated relative absorption $\alpha(t)/\alpha_0$. The reversed order of the absorption signals in part B can be explained by dipole-dipole interactions.

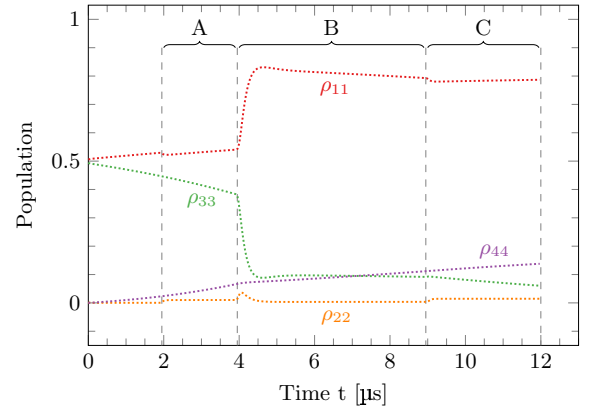


FIG. 7. (Color online) Dynamics of the population of the four states ($\rho_{11} \hat{=} 5S_{1/2}$, $\rho_{22} \hat{=} 5P_{3/2}$, $\rho_{33} \hat{=} 35S_{1/2}$, $\rho_{44} \hat{=} \text{Reservoir}$) retrieved from the fit to the dataset with high excitation (see Fig. 6). The colors match those of the states in Fig. 3. The population of the Rydberg state ($35S_{1/2}$) starts to decay immediately after excitation at $t = 0$.

in which the rates $\Gamma_{\text{bb},35S \rightarrow nP}$ are calculated as in [22,23]. The main contribution to $\Gamma_{34,\text{bb}}$ comes from neighboring Rydberg states. For the transitions induced by blackbody radiation a temperature of 300 K is assumed. The preceding approximations for the decay rates ensure that the total decay out of the state $|35S_{1/2}\rangle$ is modeled correctly. Similar to the calculation of Γ_{32} we obtain

$$\Gamma_{41} = \sum_{n>5} \Gamma_{\text{sp},34P \rightarrow nS} = 2\pi \times 0.8 \text{ kHz}. \quad (14)$$

The Rabi frequencies of the two lasers $\Omega_p = 2\pi \times 0.83 \text{ MHz}$ and $\Omega_c = 2\pi \times 2.10 \text{ MHz}$ and the coherence decay $\gamma_c = 2\pi \times 112 \text{ kHz}$ are fitted to the dataset without Rydberg excitation (see curve ‘‘I’’ in Fig. 6). The Rabi frequencies are consistent with estimates based on beam power and geometry. The noise γ_c is mainly caused by the acoustic noise on the Fabry-Pérot cavities. As the fit is only sensitive to $\gamma_p + \gamma_c$ and not to the single values, we choose $\gamma_p = 2\pi \times 20 \text{ kHz}$.

An analysis of the datasets with the same conditions, but with Rydberg excitation, allows us to fit the fraction of atoms excited to a Rydberg state [0.494(8) and 0.284(10)] within interval A, where only the red laser is on. The superradiance parameter $p_{\text{sup}} = 7.9(8) \times 10^3$ is fitted to parts B and C and the dipole-dipole interaction parameter $\gamma_{3,\text{dd}}$ is adjusted in part B. The former scales with the absolute atom number, while the latter scales with the atomic density. From the model one can now derive the time-resolved populations of the participating states as can be seen in Fig. 7. The accuracy of these populations is within ± 0.01 compared with values calculated using a variation method.

VI. CONCLUSION

We have demonstrated the all-optical detection of Rydberg population in a dilute gas, which is an alternative to the methods based on field ionization. Our results show that Rydberg population fractions can be measured with an accuracy of 0.01. By comparing the dynamics of the measured optical densities to our numerical simulations we have quantified the

decoherence effects occurring in the system, namely, black-body radiation induced transitions, superradiant decay, and inhomogeneous broadening due to dipole-dipole interactions.

From our simulations we conclude that the detection scheme can also be used to obtain information on the coherence between the ground state and the Rydberg state. The numerical results predict that future studies using a coherent excitation method and experimental parameters similar to our experiment will be able to detect the initial and time-dependent coherence.

ACKNOWLEDGMENTS

The authors thank Daniel Cano and Florian Jessen for the design and setup of the experimental chamber and Claus Zimmermann for valuable discussions. This work was financially supported by the FET-Open Xtrack Project HAIRS and the Carl Zeiss Stiftung. N.S. acknowledges financial support from the framework of TÁMOP-4.2.4.A/2-11/1-2012-0001 “National Excellence Program.”

-
- [1] M. Saffman, T. G. Walker, and K. Mølmer, Quantum information with Rydberg atoms, *Rev. Mod. Phys.* **82**, 2313 (2010).
- [2] H. Weimer, M. Müller, I. Lesanovsky, P. Zoller, and H. P. Büchler, A Rydberg quantum simulator, *Nat. Phys.* **6**, 382 (2010).
- [3] R. Löw, H. Weimer, J. Nipper, J. B. Balewski, B. Butscher, H. P. Büchler, and T. Pfau, An experimental and theoretical guide to strongly interacting Rydberg gases, *J. Phys. B* **45**, 113001 (2012).
- [4] D. A. Tate, Comment on “measurement of the lifetimes of s and d states below $n = 31$ using cold Rydberg gas”, *Phys. Rev. A* **75**, 066502 (2007).
- [5] L. L. Caliri and L. G. Marcassa, Reply to “comment on ‘measurement of the lifetimes of s and d states below $n = 31$ using cold Rydberg gas’”, *Phys. Rev. A* **75**, 066503 (2007).
- [6] A. L. de Oliveira, M. W. Mancini, V. S. Bagnato, and L. G. Marcassa, Measurement of Rydberg-state lifetimes using cold trapped atoms, *Phys. Rev. A* **65**, 031401 (2002).
- [7] V. A. Nascimento, L. L. Caliri, A. L. de Oliveira, V. S. Bagnato, and L. G. Marcassa, Measurement of the lifetimes of s and d states below $n = 31$ using cold Rydberg gas, *Phys. Rev. A* **74**, 054501 (2006).
- [8] D. B. Branden, T. Juhasz, T. Mahlokozera, C. Vesa, R. O. Wilson, M. Zheng, A. Kortyna, and D. A. Tate, Radiative lifetime measurements of rubidium Rydberg states, *J. Phys. B* **43**, 015002 (2010).
- [9] D. Cano and J. Fortágh, Multiatom entanglement in cold Rydberg mixtures, *Phys. Rev. A* **89**, 043413 (2014).
- [10] H. Labuhn, S. Ravets, D. Barredo, L. Béguin, F. Nogrette, T. Lahaye, and A. Browaeys, Single-atom addressing in microtraps for quantum-state engineering using Rydberg atoms, *Phys. Rev. A* **90**, 023415 (2014).
- [11] M. Fleischhauer, A. Imamoglu, and J. P. Marangos, Electromagnetically induced transparency: Optics in coherent media, *Rev. Mod. Phys.* **77**, 633 (2005).
- [12] A. K. Mohapatra, T. R. Jackson, and C. S. Adams, Coherent optical detection of highly excited Rydberg states using electromagnetically induced transparency, *Phys. Rev. Lett.* **98**, 113003 (2007).
- [13] M. Mack, F. Karlewski, H. Hattermann, S. Höckh, F. Jessen, D. Cano, and J. Fortágh, Measurement of absolute transition frequencies of ^{87}Rb to nS and nD Rydberg states by means of electromagnetically induced transparency, *Phys. Rev. A* **83**, 052515 (2011).
- [14] K. J. Weatherill, J. D. Pritchard, R. P. Abel, M. G. Bason, A. K. Mohapatra, and C. S. Adams, Electromagnetically induced transparency of an interacting cold Rydberg ensemble, *J. Phys. B* **41**, 201002 (2008).
- [15] A. Tauschinsky, R. M. T. Thijssen, S. Whitlock, H. B. van Linden van den Heuvell, and R. J. C. Spreeuw, Spatially resolved excitation of Rydberg atoms and surface effects on an atom chip, *Phys. Rev. A* **81**, 063411 (2010).
- [16] M. G. Bason, M. Tanasittikosol, A. Sargsyan, A. K. Mohapatra, D. Sarkisyan, R. M. Potvliege, and C. S. Adams, Enhanced electric field sensitivity of rf-dressed Rydberg dark states, *New J. Phys.* **12**, 065015 (2010).
- [17] H. Hattermann, M. Mack, F. Karlewski, F. Jessen, D. Cano, and J. Fortágh, Detrimental adsorbate fields in experiments with cold Rydberg gases near surfaces, *Phys. Rev. A* **86**, 022511 (2012).
- [18] A. Tauschinsky, R. Newell, H. B. van Linden van den Heuvell, and R. J. C. Spreeuw, Measurement of ^{87}Rb Rydberg-state hyperfine splitting in a room-temperature vapor cell, *Phys. Rev. A* **87**, 042522 (2013).
- [19] J. Grimm, M. Mack, F. Karlewski, F. Jessen, M. Reinschmidt, N. Sándor, and J. Fortágh, Measurement and numerical calculation of rubidium Rydberg Stark spectra [New J. Phys. (to be published)], [arXiv:1503.08953](https://arxiv.org/abs/1503.08953).
- [20] G. Günter, M. Robert-de-Saint-Vincent, H. Schempp, C. S. Hofmann, S. Whitlock, and M. Weidemüller, Interaction enhanced imaging of individual Rydberg atoms in dense gases, *Phys. Rev. Lett.* **108**, 013002 (2012).
- [21] G. Günter, H. Schempp, M. Robert-de-Saint-Vincent, V. Gavryusev, S. Helmrich, C. S. Hofmann, S. Whitlock, and M. Weidemüller, Observing the dynamics of dipole-mediated energy transport by interaction-enhanced imaging, *Science* **342**, 954 (2013).
- [22] I. I. Beterov, I. I. Ryabtsev, D. B. Tretyakov, and V. M. Entin, Quasiclassical calculations of blackbody-radiation-induced depopulation rates and effective lifetimes of Rydberg ns , np , and nd alkali-metal atoms with $n \leq 80$, *Phys. Rev. A* **79**, 052504 (2009).
- [23] I. I. Beterov, I. I. Ryabtsev, D. B. Tretyakov, and V. M. Entin, Erratum: Quasiclassical calculations of blackbody-radiation-induced depopulation rates and effective lifetimes of Rydberg ns , np , and nd alkali-metal atoms with $n \leq 80$ [Phys. Rev. A **79**, 052504 (2009)], *Phys. Rev. A* **80**, 059902(E) (2009).
- [24] T. Wang, S. F. Yelin, R. Côté, E. E. Eyler, S. M. Farooqi, P. L. Gould, M. Koštrun, D. Tong, and D. Vranceanu, Superradiance in ultracold Rydberg gases, *Phys. Rev. A* **75**, 033802 (2007).
- [25] W. R. Anderson, M. P. Robinson, J. D. D. Martin, and T. F. Gallagher, Dephasing of resonant energy transfer in a cold Rydberg gas, *Phys. Rev. A* **65**, 063404 (2002).
- [26] J. O. Day, E. Brekke, and T. G. Walker, Dynamics of low-density ultracold Rydberg gases, *Phys. Rev. A* **77**, 052712 (2008).



PAPER

Measurement and numerical calculation of Rubidium Rydberg Stark spectra

OPEN ACCESS

RECEIVED

29 January 2015

REVISED

11 March 2015

ACCEPTED FOR PUBLICATION

31 March 2015

PUBLISHED

6 May 2015

Content from this work
may be used under the
terms of the [Creative
Commons Attribution 3.0
licence](#).

Any further distribution of
this work must maintain
attribution to the
author(s) and the title of
the work, journal citation
and DOI.

Jens Grimmel¹, Markus Mack¹, Florian Karlewski¹, Florian Jessen¹, Malte Reinschmidt¹, Nóra Sándor^{1,2} and József Fortágh¹¹ CQ Center for Collective Quantum Phenomena and their Applications, Physikalisches Institut, Eberhard-Karls-Universität Tübingen, Auf der Morgenstelle 14, D-72076 Tübingen, Germany² Wigner Research Center for Physics, Hungarian Academy of Sciences, Konkoly-Thege Miklós út 29-33, H-1121 Budapest, HungaryE-mail: jens.grimmel@uni-tuebingen.de and fortagh@uni-tuebingen.de**Keywords:** Rydberg states, Stark effect, electromagnetically induced transparency, precision spectroscopySupplementary material for this article is available [online](#)**Abstract**

We report on the measurement of Stark shifted energy levels of ⁸⁷Rb Rydberg atoms in static electric fields by means of electromagnetically induced transparency (EIT). Electric field strengths of up to 500 V cm⁻¹, ranging beyond the classical ionization threshold, were applied using electrodes inside a glass cell with rubidium vapour. Stark maps for principal quantum numbers $n = 35$ and $n = 70$ have been obtained with high signal-to-noise ratio for comparison with results from *ab initio* calculations following the method described in (Zimmerman *et al* 1979 *Phys. Rev. A* **20** 2251), which was originally only verified for states around $n = 15$. We also calculate the dipole matrix elements between low-lying states and Stark shifted Rydberg states to give a theoretical estimate of the relative strength of the EIT signal. The present work significantly extends the experimental verification of this numerical method in the range of both high principal quantum numbers and high electric fields with an accuracy of up to 2 MHz.

1. Introduction

The response of atoms to static electric fields (dc Stark effect) results in line shifts, state mixing and, for sufficiently large fields, ionization. The line shifts are conventionally summarized in Stark maps, displaying the energy levels as a function of the applied field. Stark maps of alkali atoms are routinely calculated by diagonalising the perturbed Hamiltonian [1], taking into account quantum defects and corresponding electronic wavefunctions [2]. A precise knowledge and control of Stark shifted Rydberg states is required for the application of Rydberg atoms as quantum probes [3], for controlling the interactions between Rydberg atoms [4], the production of circular Rydberg atoms [5], the structure and dynamics of Rydberg gases [6, 7], and possible applications in quantum information processing [8]. In the context of hybrid quantum systems based on atoms and solid state quantum circuits [9, 10], Stark shifts of Rydberg states [11–13] and their control [14] are of particular interest.

Stark maps of Rydberg excited alkali atoms were studied in the 1970s using pulsed laser excitations and subsequent pulsed-field ionization [1, 15]. For low-lying Rydberg states of sodium, lithium and caesium with principal quantum numbers $n < 20$, Stark maps have been recorded up to and beyond the classical ionization limit [1, 15]. Stark maps of ⁸⁵Rb for n up to 55 were studied in the 1980s for low electric fields using two-photon laser excitation and detecting ionization from thermal collisions [16]. In this regime of low electric fields the Stark maps do not show level crossings but quadratic dependence on the applied field with slight deviation from this for highly excited states ($n = 55$).

Many recent experiments on Stark shifts use electromagnetically induced transparency (EIT) [17–19]. This spectroscopic method provides a high resolution of the energy levels [18] and is suitable for the detection of states of high principal quantum numbers. However, the measurements so far only covered the range of low

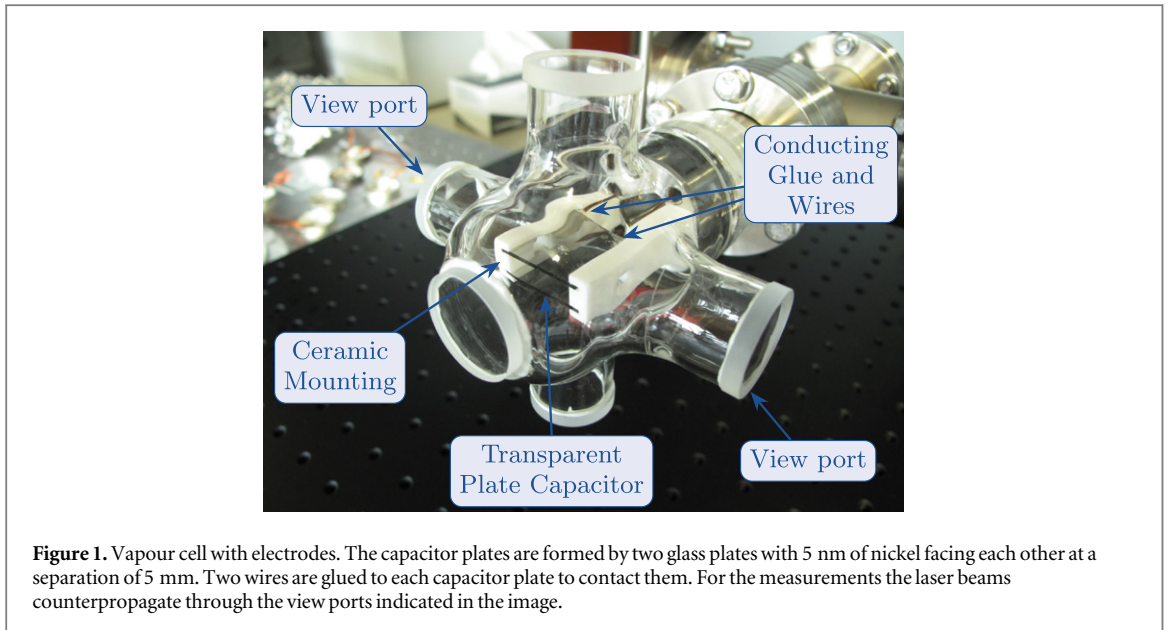


Figure 1. Vapour cell with electrodes. The capacitor plates are formed by two glass plates with 5 nm of nickel facing each other at a separation of 5 mm. Two wires are glued to each capacitor plate to contact them. For the measurements the laser beams counterpropagate through the view ports indicated in the image.

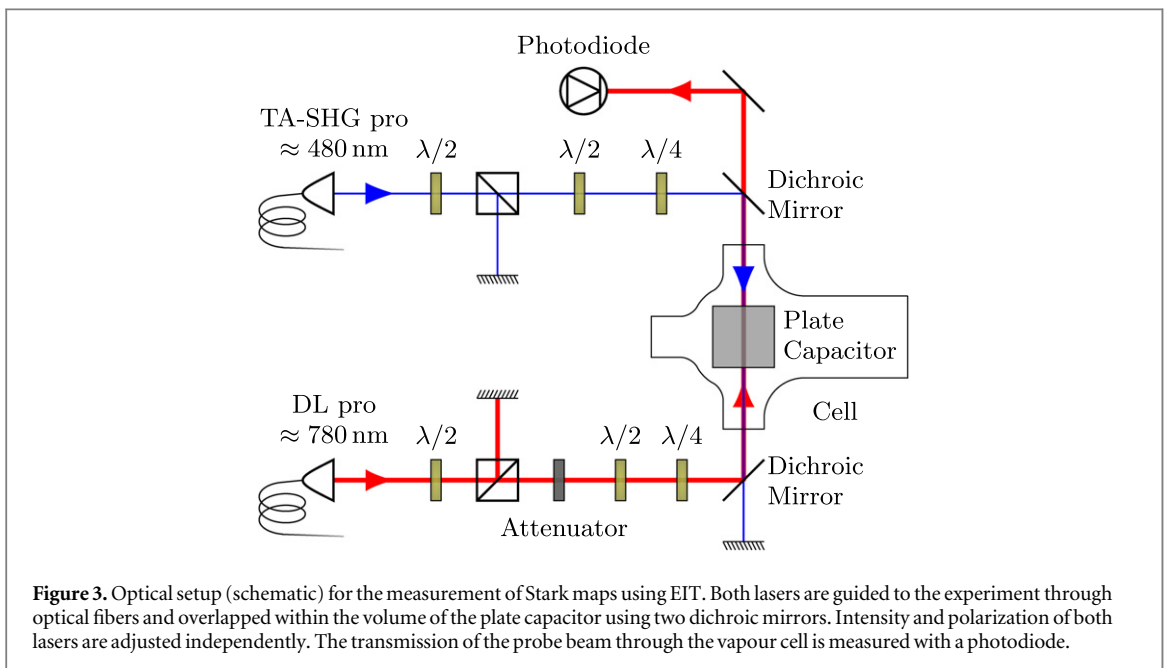
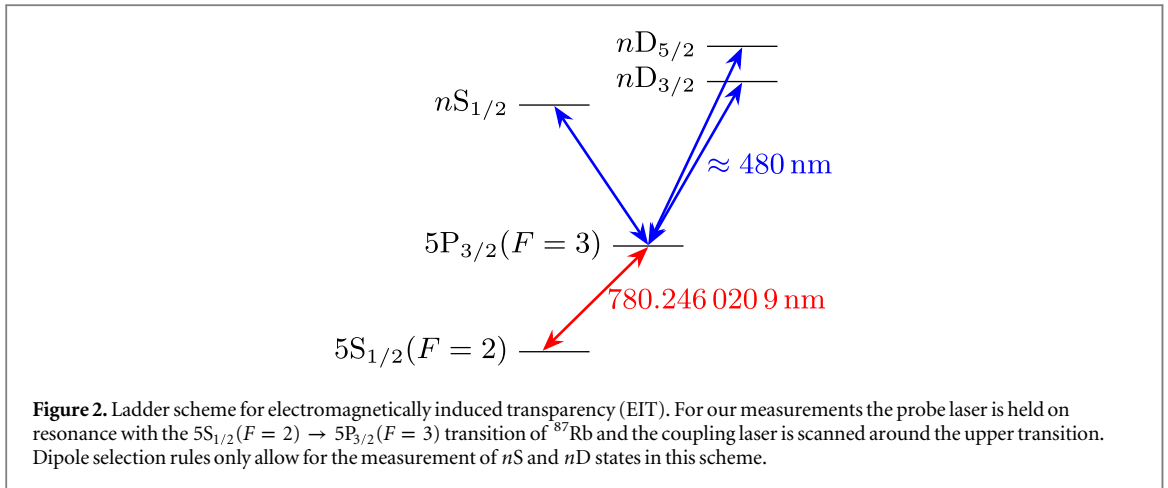
electric fields, in which just the first avoided crossings appear. Similarly, the detection of ions by micro-channel plates [20] and the technique of measuring the ionization currents from Stark-shifted Rydberg states [21] have only been used at low electric fields.

In this article, we report on the optical spectroscopy of Stark shifted Rydberg states with principal quantum numbers of $n = 35$ and $n = 70$ for electrostatic fields between 0 and 500 V cm^{-1} , ranging beyond the classical ionization limit. Our measurements go to higher principal quantum numbers and cover a three to four times larger range of electric fields relative to the classical ionization threshold than any of the aforementioned works using EIT. The observed Stark maps are compared with results from numerical calculations following the lines of the numerical method by [1], including the recently improved accuracy of the quantum defects [22]. In the original work this method was optimized for Rydberg states around $n = 15$ due to computational limitations as well as the accessible experimental data. The high accuracy of this method at low electric fields is always given by the accuracy of the unperturbed energy levels, which are used in the calculation. However, for strong electric fields and high principal quantum numbers, where a high accuracy of the calculated energy levels is desirable, this method becomes more susceptible to numerical errors [1]. In this article we show by direct comparison, that it is still applicable even in these regions of study. Furthermore, we calculate dipole matrix elements between $5P_{3/2}$ and the observed Stark shifted states, which are then used to give an estimate for the relative strength of the measured signals.

2. Measurement of Stark maps

For the measurement of Stark shifts of ^{87}Rb Rydberg atoms we use a vapour cell with a pair of plate electrodes for applying homogeneous electric fields. The electrodes are inside the cell (figure 1), trying to avoid the effect observed in previous works where static electric fields applied to a vapour cell with outside electrodes are compensated by ionized rubidium and electrons [23]. The rubidium vapour in the cell is at room temperature with an estimated pressure of $\approx 1 \cdot 10^{-7}$ mbar. The electrodes in the center of the glass cell (figure 1) are formed by two square glass plates coated with 5 nm of nickel. This gives the plates $\approx 60\%$ transparency, which allows for optical access on the axis perpendicular to them. However, this optical access was not used in the experiments presented in this work. The plates are mounted with 5 mm separation on insulating ceramics (Macor) and connected to a voltage source through metallic wires. Laser beams for the optical spectroscopy are introduced through view ports and pass through the cell between the plates.

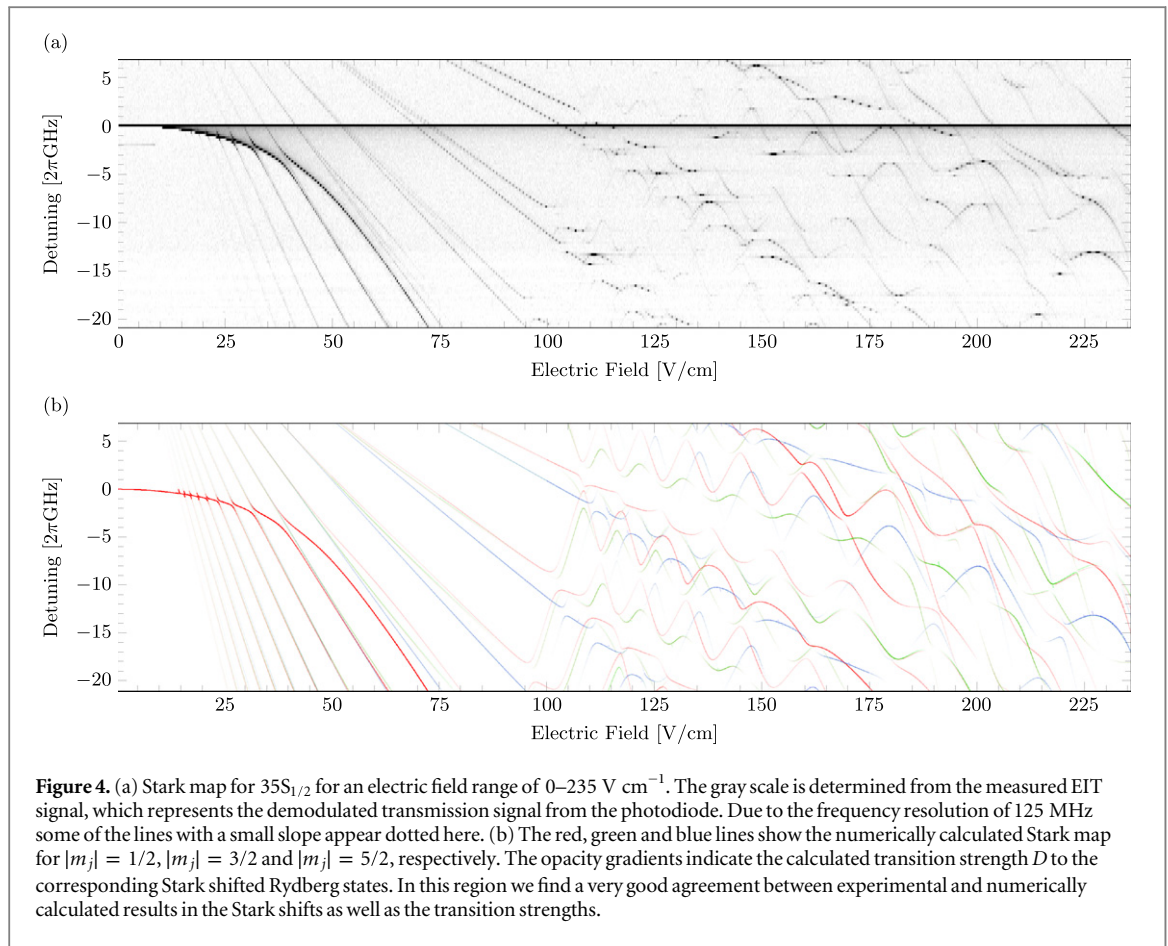
We measure the transition frequency from the rubidium ground state to Rydberg states by EIT. The EIT three level ladder scheme [23] consists of the ground state $5S_{1/2}(F = 2)$, the intermediate state $5P_{3/2}(F = 3)$ and a Rydberg state nS or nD (figure 2). However, it is important to keep in mind that l is not a good quantum number any more in the presence of an external electric field and that the Stark shifted states can be considered as a mix of all possible unperturbed l states. For the spectroscopy we use a *probe* laser that is locked to the $5S_{1/2}(F = 2) \rightarrow 5P_{3/2}(F = 3)$ transition (780 nm) and a *coupling* laser with a variable frequency close to the



transition between $5P_{3/2}(F = 3)$ and a Rydberg state (480 nm). When the coupling laser is resonant with this transition we detect a maximum in the transmission of the probe laser through the vapour.

We use a grating-stabilized diode laser (Toptica, DL pro) of ≈ 100 kHz linewidth as the probe laser and a frequency-doubled, grating-stabilized diode laser of ≈ 200 kHz linewidth (Toptica, TA-SHG pro) as the coupling laser. Both lasers are phase-locked to a frequency comb (Menlo Systems, FC 1500). For conveniently selecting the right modes of the frequency comb for both lasers we use a calibrated wavelength meter (HighFinesse, WS Ultimate 2) [22]. The power of the probe laser is $1 \mu\text{W}$ and the power of the coupling laser is 25 mW with $1/e^2$ diameters of 450 and $150 \mu\text{m}$ in the cell, respectively. The small diameter of the coupling beam results in a high intensity and therefore high Rabi frequency on the corresponding transition while the bigger diameter of the probe beam is chosen in order to ensure maximal overlap of the two beams within the cell. The laser powers and polarizations were adjusted to maximize the EIT signal in zero field (figure 3). A measurement of the polarizations after this adjustment revealed that this resulted in circular polarizations for both lasers. The frequency of the probe laser is kept on resonance with the $5S_{1/2}(F = 2) \rightarrow 5P_{3/2}(F = 3)$ transition (figure 2) and its transmission through the cell is measured using an avalanche photodiode.

In order to reach a high signal-to-noise ratio in the spectroscopy, we use the following lock-in measurement technique. We modulate the power of the coupling laser using an acousto-optic modulator and demodulate the signal from the photodiode on the carrier frequency. In addition we modulate the frequency of the intensity modulation and demodulate the photodiode signal on two of the sidebands that arise from this. We then average the demodulated signal from the carrier and both sidebands. The additional frequency modulation decreases the signal strength on the carrier frequency and creates an even lower signal strength on the sidebands, but averaging



the signal from three frequencies lowers the noise level at the same time. In total, the resulting signal-to-noise ratio is improved by a factor of ≈ 2 as compared to a simple lock-in measurement without frequency modulation. For every set frequency of the coupling laser we ramp up the voltage on the plate capacitor using an auxiliary output of the lock-in amplifier (Zurich Instruments, HF2LI). This is sufficient for electric fields up to $\approx 20\text{ V cm}^{-1}$. For even higher fields up to $\approx 500\text{ V cm}^{-1}$ we use an additional voltage amplifier.

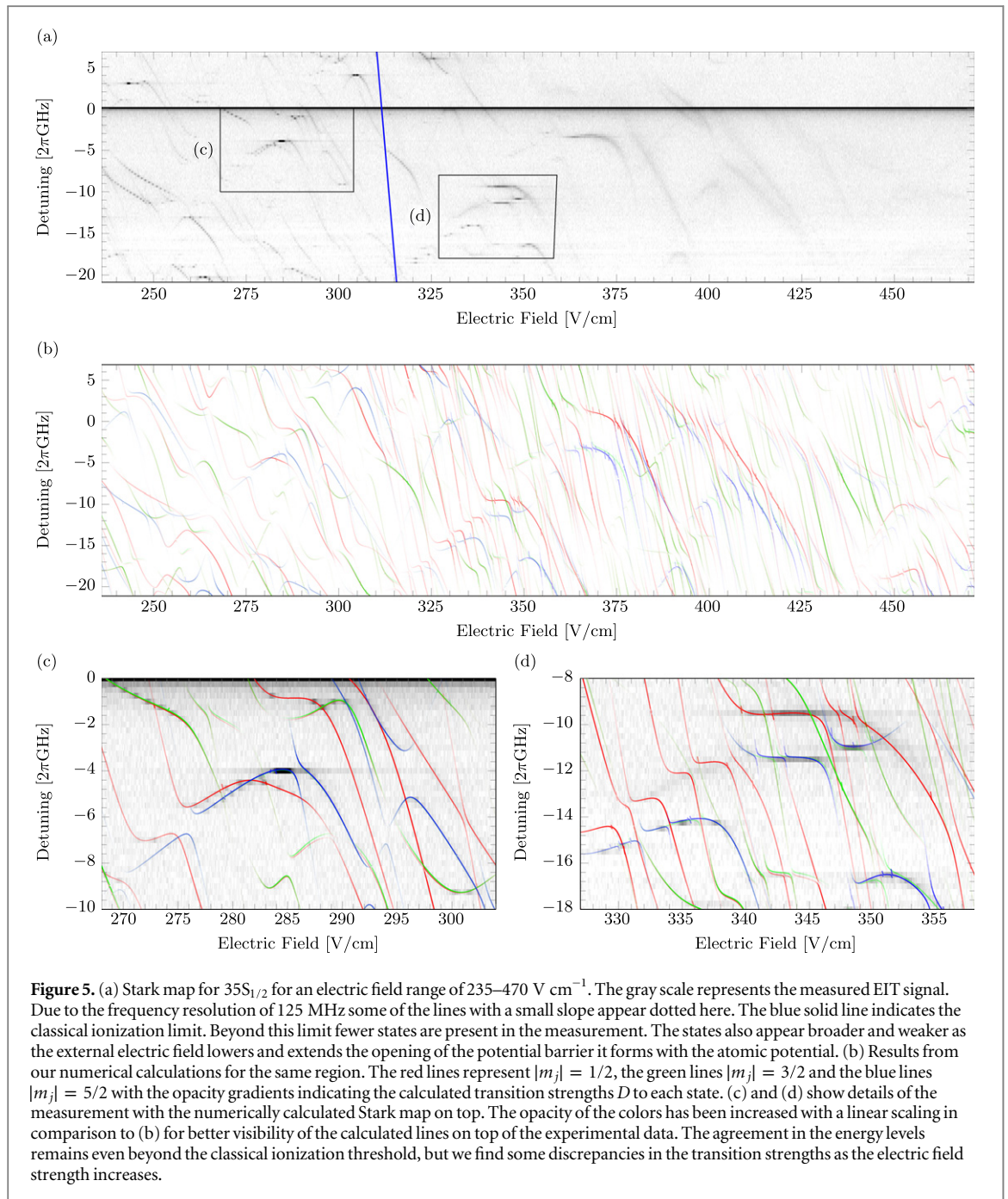
Measured data near the unperturbed $35S_{1/2}$ state is shown in figures 4 and 5. Near the unperturbed $70S_{1/2}$ state we conducted a preliminary measurement, which is not shown in this work, and then selected a smaller region for a more detailed measurement in order to test the frequency precision of the numerical calculations (figure 6). Each pixel in the gray scale images represents an average of the demodulated signal over 200 ms. Between every two pixels we add a waiting time of 50 ms to allow for the low-pass filter of the lock-in amplifier to settle. The gray scale was adjusted with a cutoff for better visibility of weaker signals. Our data shows states ranging up to and even beyond the classical ionization threshold that have not been measured by means of EIT before. The classical ionization threshold E_{ion} , i.e. the saddle point which is formed by a Coulomb potential with an external electric field F , is given by

$$E_{\text{ion}} = -2\sqrt{F} \quad (1)$$

in atomic units ([2]). This results in an electric field strength for the ionization threshold of $\approx 312\text{ V cm}^{-1}$ for $35S_{1/2}$ and $\approx 16\text{ V cm}^{-1}$ for $70S_{1/2}$. For a quantitative analysis we give a brief review of the numerical calculation of Stark maps in section 3.

We observe two background effects (figures 4 and 6) which are caused by the region of the cell that is not covered by the plate capacitor (figure 1). The first is the line of the unperturbed state, which remains visible for all applied voltages because we probe those outer regions of the cell as well. The second is a smearing of the lines to the right at low fields as visible in figure 4 at the avoided crossings up to $\approx 50\text{ V cm}^{-1}$ and in figure 6. For a certain electric field strength inside the plate capacitor one always finds lower electric field strengths in the inhomogeneous outside region, causing the asymmetry of the smearing to the right.

Inside the capacitor undesirable electric fields could also arise from the dipole which is formed between adsorbed rubidium and the nickel surface of the capacitor plates. In previous experiments the repeated deposition of cold atom clouds of rubidium onto a copper surface led to electric fields close to the surface which saturated as the number of deposited clouds increased [11]. Since the work functions of nickel and copper are



similar and the cell is filled with rubidium vapour at all times we may find a similar effect for the capacitor plates. This effect may play a role for Rydberg states higher than $n = 70$ at low electric fields, but is negligible for the measured data presented in this article, where the distance between the laser beams and the capacitor plates is ≈ 2 mm. Other stray fields could originate from outside of the cell, but should be compensated by electrons and ionized rubidium [23].

3. Calculation of Stark maps and dipole matrix elements

The Hamiltonian for the valence electron in an alkali atom with an external electric field in z -direction can be written as

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + E\hat{z} \quad (2)$$

in atomic units with \hat{H}_0 the Hamiltonian for the valence electron in absence of any perturbation, E the electric field strength and \hat{z} the position operator in z -direction. For the following calculations we include the fine structure splitting in \hat{H}_0 and neglect the hyperfine structure splitting as it is smaller than our frequency

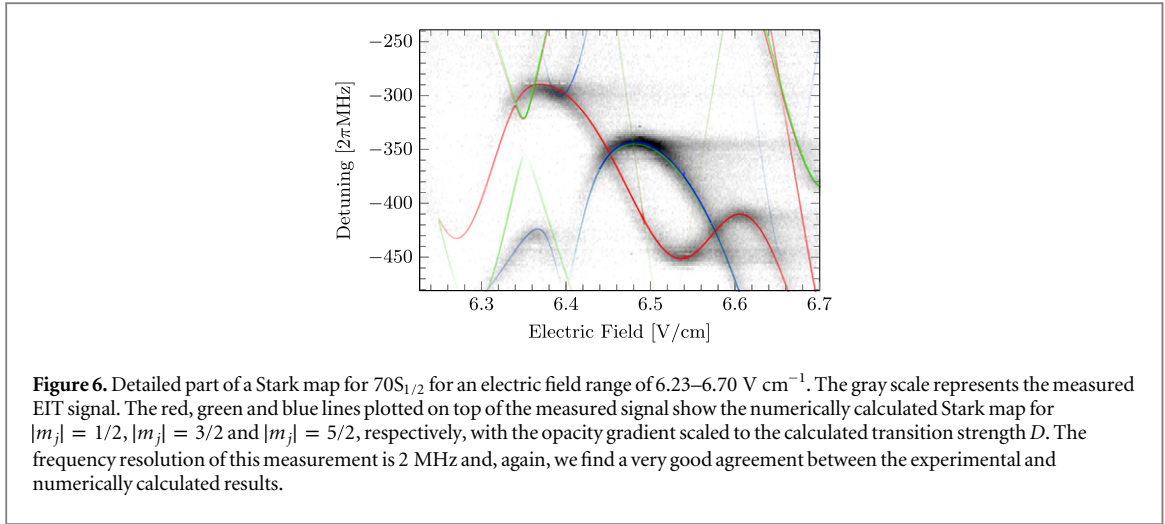


Figure 6. Detailed part of a Stark map for $70S_{1/2}$ for an electric field range of $6.23\text{--}6.70\text{ V cm}^{-1}$. The gray scale represents the measured EIT signal. The red, green and blue lines plotted on top of the measured signal show the numerically calculated Stark map for $|m_j| = 1/2$, $|m_j| = 3/2$ and $|m_j| = 5/2$, respectively, with the opacity gradient scaled to the calculated transition strength D . The frequency resolution of this measurement is 2 MHz and, again, we find a very good agreement between the experimental and numerically calculated results.

resolution in the experiment [1]. The Stark shifts of the $5S_{1/2}(F = 2)$ and $5P_{3/2}(F = 3)$ states from the EIT scheme are negligible as well, as they amount to less than 100 kHz for the region of the field strength up to 500 V cm^{-1} . We then create a matrix representation of \hat{H} in a subset of the basis given by \hat{H}_0 . This way \hat{H}_0 is represented by a diagonal matrix with the energy levels from [22] on its diagonal.

The matrix representation of \hat{z} is symmetric with only off-diagonal entries and in spherical coordinates we obtain from [1]

$$\begin{aligned} \langle n, l, j, m_j | \hat{z} | n', l', j', m_j' \rangle &= \delta_{m_j, m_j'} \delta_{l, l' \pm 1} \langle n, l, j | r | n', l', j' \rangle \sum_{m_l = m_j \pm \frac{1}{2}} \left\{ \left\langle l, \frac{1}{2}, m_l, m_j - m_l \middle| j, m_j \right\rangle \right. \\ &\quad \left. \times \left\langle l', \frac{1}{2}, m_l, m_j - m_l \middle| j', m_j' \right\rangle \langle l, m_l | \cos \theta | l', m_l \rangle \right\} \end{aligned} \quad (3)$$

with the radial overlap integral $\langle n, l, j | r | n', l', j' \rangle$ in the first line of the right hand side. From the Kronecker delta $\delta_{m_j, m_j'}$ we can see that the matrix representations of H for different values of m_j can be calculated separately. It is also evident that the Stark shifts for $\pm |m_j|$ are always equal. Therefore we only calculate matrix representations for positive values of m_j in this step. This reduces the computing time for diagonalizing the matrices, but we need to consider states with both signs for the calculation of transition strengths later on again.

For the calculation of the overlap integrals we tried two different methods to calculate the radial wavefunctions for all states in the chosen subset of the basis and also for $5S_{1/2}(F = 2)$ and $5P_{3/2}(F = 3)$, which will be used later on in the calculation of the measure for the transition strengths. One method was to further follow [1] using their atomic potential for ^{87}Rb and Numerov's method to solve the radial Schrödinger equation. We also tried using the parametric model potential from [24] with another solving algorithm³, which allowed us to obtain parts of the wavefunctions that are located further inside the ionic core. While the two methods lead to slightly different amplitudes of the wavefunctions due to normalization, the differences in the Stark shifts and transition strengths calculated from the two methods for the observed states lie below our experimental accuracy. All calculations presented in this work utilized the latter method.

We can then calculate the matrix representations of the perturbed Hamiltonians H using equation (3) and diagonalize them efficiently in parallel for different values of the electric field strength to obtain the energy eigenvalues. In this step we also calculate the eigenvector β corresponding to every eigenvalue. With this we can further follow the method from [1] to represent every Stark shifted Rydberg state ξ as a linear combination of unperturbed states, given by the eigenvectors, and calculate the dipole matrix elements

$$\langle \xi | \vec{r} | 5P_{3/2}, F = 3, m_F \rangle = \sum_{n, l, j, m_j} \beta_{n, l, j, |m_j|} \langle n, l, j, m_j | \vec{r} | 5P_{3/2}, F = 3, m_F \rangle \quad (4)$$

with $\beta_{n, l, j, |m_j|}$ the entry of β that corresponds to the states $|n, l, j, \pm |m_j|\rangle$. Here we sum over all states in the selected subset of the basis given by the unperturbed states and both signs for each value of m_j . For the calculation of the dipole matrix elements between the unperturbed Rydberg states and $|5P_{3/2}, F = 3, m_F\rangle$ we separate the radial and the angular parts of the wavefunctions. We use the radial overlap integrals from equation (3) and calculate the three components of the angular overlap integrals following [25].

³ MATLAB 2014a; Solver function: ode45.

We take into account the effect of the probe laser, which couples the different m_F substates of $|5S_{1/2}, F = 2\rangle$ and $|5P_{3/2}, F = 3\rangle$ by calculating the weighting factors

$$\eta_{m_F} = \sum_{m'_F} \left| \langle 5P_{3/2}, F = 3, m'_F | \vec{e}_p \vec{r} | 5S_{1/2}, F = 2, m_F \rangle \right|^2 \quad (5)$$

with \vec{e}_p the polarization of the probe laser. In this step we assume that all m_F substates of $|5S_{1/2}, F = 2\rangle$ are evenly occupied. The weighting factors are then used to calculate the measure for the transition strength

$$D = \sum_{m_F} \eta_{m_F} \left| \langle \xi | \vec{e}_c \vec{r} | 5P_{3/2}, F = 3, m_F \rangle \right|^2 \quad (6)$$

with \vec{e}_c the polarization of the coupling laser. In the experiment the two lasers are counterpropagating and perpendicular to the external electric field with circular polarizations. Therefore we use $\vec{e}_p = \vec{e}_c = (0, i, 1)$ here. The measure for the transition strength D is used to determine the opacity gradients for the lines in figures 4–6.

The Stark map for $35S_{1/2}$, which is shown in figures 4 and 5, was calculated from a subset of the basis of approximately 1600 states and for 2000 values of the electric field strength using MATLAB. For $70S_{1/2}$, shown in figure 6, the calculations run similarly with 4000 states and 500 values of the electric field strength. The number of states that was used for these calculations was adjusted so that a further increase only yields changes which lie below the accuracy of the experimental data. Calculated Stark maps for $|m_j| = 1/2$, $|m_j| = 3/2$ and $|m_j| = 5/2$ are included in the figures. The measurements were performed in frequency regions around S states, but since l is not a good quantum number any more in the presence of an electric field [1], we find that other states with $|m_j| = 3/2$ and $|m_j| = 5/2$ are shifted far enough by the Stark effect to appear within the measured frequency range.

4. Comparison of measurements and calculations

Figures 4 and 5 show comparisons of the measured and numerically calculated Stark maps for $35S_{1/2}$. The frequency axis shows the detuning of the coupling laser relative to the absolute value of the transition frequency from [22]. A linear scaling with an offset has been applied to the electric field axis of the measured data. Using only this scaling we achieve a match between calculated and measured energy levels for Stark states in the whole range of our measurement.

The lines in the calculated Stark maps are drawn with an opacity gradient, resulting in a color range between white and the respective color associated with the different values for $|m_j|$. The opacity gradient is scaled to D from equation (6) with an upper cutoff at 70% of its maximum for better visibility. We find a good agreement between this calculated measure for the transition strength and the experimental data in the range of electric fields shown in figure 4. The quality of the agreement deteriorates slightly approaching the classical ionization threshold, but there is still good agreement beyond this point, as can be seen in figure 5. The very weak signals we still find in the experimental data at electric fields around 400 V cm^{-1} all correspond to calculated states with a strong calculated transition strength. Considering this, we think that the method described here can be applied for these high electric field strengths, where only few states are still visible in the experimental data, as a way to select potentially interesting areas before a measurement.

One important cause for discrepancies between the experimental and numerically calculated data we present here is that no ionization effects were taken into account for the calculations. However, it is interesting to note that even though the calculated measure for the transition strength shows some differences at high electric fields, we still find a remarkable agreement of calculated and measured energy levels in this region of study. These differences could be related to the calculation of the radial wavefunctions. We calculate the radial wavefunctions for $|5S_{1/2}\rangle$ and $|5P_{3/2}\rangle$ using the same method as for Rydberg states. Evidently this works quite well here, but more accurate radial wavefunctions, especially for $|5P_{3/2}\rangle$ but also for Rydberg states with low l , could further improve the quality of the calculated transition strengths. This is further emphasized as the biggest discrepancies of the transition strengths at high electric fields can be found for states $|m_j| = 1/2$ while states with $|m_j| = 5/2$ show hardly any discrepancies on the whole range of electric fields. On the other hand, these discrepancies could also be explained by a stronger coupling of Rydberg states with low l to the continuum. Some disagreements on the whole range of our measurements can also be caused by the scaling of the EIT signal with the dipole matrix elements, which is only approximated by the squared scaling in D . Furthermore, lines with small slopes and especially local extrema may appear over-pronounced in the experimental data. Since these parts of the lines are broad in the electric field domain and the inhomogeneous electric field outside of the plate capacitor still lies within the volume of the cell, this results in an effective contribution of more atoms to the signal.

We find a match similar to the one presented for $35S_{1/2}$ in the energy levels and transition strengths for $70S_{1/2}$, which is shown in detail in figure 6. Discrepancies lie within the frequency resolution of 2 MHz for figure 6, which is the highest accuracy we present here. The opacity gradients were assigned the same way as for

$35S_{1/2}$. The calculated transition strengths match the experimental data equally well as for $35S_{1/2}$. The experimental data presented in figures 4–6 is provided as supplementary data to this article⁴. All results presented in this work were measured and calculated in the energy range near nS states. However, they intrinsically include contributions from all possible l states due to the mixing of states caused by the external electric field.

For a possible extension of our measurements to a wider range of principal quantum numbers n than the region between $n = 35$ and $n = 70$, the most important limiting factor is that the coupling of Rydberg states to the intermediate $5P_{3/2}(F = 3)$ grows weaker as n increases, which leads to a lower signal-to-noise ratio. Another factor influencing the signal-to-noise ratio is the density of the vapour, which on the other hand gives rise to collective effects which in turn cause undesired changes of the EIT signal [26].

5. Conclusion

In summary, we have demonstrated agreement between measured and calculated Stark maps of ^{87}Rb up to an accuracy of 2 MHz. This agreement holds for the range from zero field to beyond the classical ionization threshold and for principal quantum numbers $n = 35$ and $n = 70$. Such data and calculations may aid the accurate mapping of electric fields at surfaces [11]. Furthermore, we presented numerical calculations to estimate the transition strength from low-lying states to Stark shifted Rydberg states. The results from these calculations show a very good agreement with our experimental data on a high range of electric fields and even beyond the classical ionization threshold.

Altogether, the methods presented in this paper can be used to find experimentally accessible Stark shifted Rydberg states with an appropriate sensitivity to external electric fields for a wide range of applications. For example, the dependence of the transition strength to different Stark shifted Rydberg levels could be used to determine not only the strength of an external electric field in an experimental system but also the electric field axis.

Acknowledgments

This work was financially supported by the FET-Open Xtrack Project HAIRS and the Carl Zeiss Stiftung. Nóra Sándor acknowledges financial support from the framework of TÁMOP-4.2.4.A/2-11/1-2012-0001 'National Excellence Program'. We thank Nils Schopohl and Ali Sanayei for helpful discussions. We acknowledge support by Deutsche Forschungsgemeinschaft and Open Access Publishing Fund of University of Tübingen.

References

- [1] Zimmerman M L, Littman M G, Kash M M and Kleppner D 1979 *Phys. Rev. A* **20** 2251
- [2] Gallagher T F (ed) 1994 *Rydberg Atoms* 1st edn (Cambridge: Cambridge University Press)
- [3] Guerlin C, Bernu J, Deleglise S, Sayrin C, Gleyzes S, Kuhr S, Brune M, Raimond J-M and Haroche S 2007 *Nature* **448** 889
- [4] Daschner R, Ritter R, Kübler H, Frühauf N, Kurz E, Löw R and Pfau T 2012 *Opt. Lett.* **37** 2271
- [5] Anderson D A, Schwarzkopf A, Sapiro R E and Raithe G 2013 *Phys. Rev. A* **88** 031401
- [6] Comparat D and Pillet P 2010 *J. Opt. Soc. Am. B* **27** A208
- [7] Beterov I I, Ryabtsev I I, Tretyakov D B and Entin V M 2009 *Phys. Rev. A* **79** 052504
- [8] Paredes-Barato D and Adams C S 2014 *Phys. Rev. Lett.* **112** 040501
- [9] Petrosyan D and Fleischhauer M 2008 *Phys. Rev. Lett.* **100** 170501
- [10] Tauschinsky A, Thijssen R M T, Whitlock S, van Linden van den Heuvell H B and Spreeuw R J C 2010 *Phys. Rev. A* **81** 063411
- [11] Hattermann H, Mack M, Karlewski F, Jessen F, Cano D and Fortágh J 2012 *Phys. Rev. A* **86** 022511
- [12] Abel R P, Carr C, Krohn U and Adams C S 2011 *Phys. Rev. A* **84** 023408
- [13] Chan K S, Siercke M, Hufnagel C and Dumke R 2014 *Phys. Rev. Lett.* **112** 026101
- [14] Jones L A, Carter J D and Martin J D D 2013 *Phys. Rev. A* **87** 023423
- [15] Littman M G, Zimmerman M L, Ducas T W, Freeman R R and Kleppner D 1976 *Phys. Rev. Lett.* **36** 788
- [16] O'Sullivan M S and Stoicheff B P 1986 *Phys. Rev. A* **33** 1640
- [17] Fahey D P and Noel M W 2011 *Opt. Express* **19** 17002
- [18] Tauschinsky A, Newell R, Van Linden van den Heuvell H B and Spreeuw R J C 2013 *Phys. Rev. A* **87** 042522
- [19] Bason M G, Tanasittikosol M, Sargsyan A, Mohapatra A K, Sarkisyan D, Potvliege R M and Adams C S 2010 *New J. Phys.* **12** 065015
- [20] Grabowski A, Heidemann R, Lw R, Stuhler J and Pfau T 2006 *Fortschr. Phys.* **54** 765
- [21] Barredo D, Kübler H, Daschner R, Löw, and R and Pfau T 2013 *Phys. Rev. Lett.* **110** 123002
- [22] Mack M, Karlewski F, Hattermann H, Höckh S, Jessen F, Cano D and Fortágh J 2011 *Phys. Rev. A* **83** 052515
- [23] Mohapatra A K, Jackson T R and Adams C S 2007 *Phys. Rev. Lett.* **98** 113003
- [24] Marinescu M, Sadeghpour H R and Dalgarno A 1994 *Phys. Rev. A* **49** 982
- [25] Bethe H A and Salpeter E E 1957 *Quantum Mechanics of One- and Two-Electron Atoms* (Berlin: Springer) p 8, 368 S
- [26] Ates C, Sevinçli S and Pohl T 2011 *Phys. Rev. A* **83** 041802

⁴ See supplementary data available at stacks.iop.org/njp/17/053005/mmedia for the experimental data.

All-optical measurement of Rydberg-state lifetimes

Markus Mack,^{*} Jens Grimm, Florian Karlewski, Lőrinc Sárkány, Helge Hattermann, and József Fortágh[†]
*CQ Center for Collective Quantum Phenomena and Their Applications, Physikalisches Institut, Eberhard-Karls-Universität Tübingen,
 Auf der Morgenstelle 14, D-72076 Tübingen, Germany*

(Received 26 May 2015; published 24 July 2015)

We have developed an all-optical method for measuring the lifetimes of nS and nD Rydberg states and demonstrate its capabilities with measurements on a dilute cloud of ultracold ^{87}Rb atoms in a cryogenic environment. The method is based on the time-resolved observation of resonant light absorption by ground-state atoms and selective transfer of Rydberg atoms into the ground state at varying delay times in order to reconstruct Rydberg decay curves. Our measurements of the ^{87}Rb $30S_{1/2}$ state indicate an increase of the lifetime at lowered environment temperatures, as expected due to decreased blackbody radiation. For the $38D_{5/2}$ state with an attractive dipole-dipole interaction, ionization and lifetime reduction due to collisional effects are observed.

DOI: [10.1103/PhysRevA.92.012517](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.92.012517)

PACS number(s): 32.10.-f, 32.80.Ee, 32.80.Rm

I. LIFETIMES OF RYDBERG ATOMS

Rydberg atoms are promising for quantum information processing due to their strong and highly tunable interaction properties [1]. High-fidelity quantum gates and coherent-state transfer between Rydberg and long-living ground states have been proposed [2,3]. The fidelity of these operations is, however, fundamentally limited by the finite lifetime of Rydberg states [1]. Besides the natural decay of the Rydberg excitation, blackbody-radiation-induced transitions [4,5], collisions [6], and superradiance [7] may also limit the lifetime. The characterization of the Rydberg-state decay is thus of significant interest.

For individual Rydberg atoms at an environment temperature $T = 0$ the lifetime of an excited state is given by the inverse sum over all spontaneous decay rates into lower-lying states [8]. Due to the highest energy difference, the lowest-lying states contribute most to the decay. This is a limiting factor for calculations because the potentials for low-lying states cannot be described as accurately as those of higher states, which become more and more hydrogenlike with increasing n and l quantum numbers. In a finite-temperature environment, transitions induced by blackbody radiation (BBR) occur. The strongest transitions are those to nearby dipole-allowed Rydberg states both above and below in energy. For a perfect Planck photon distribution and well-known temperature the corresponding rates can be calculated with high accuracy [4,5]. The experimental verification of BBR-induced transition rates is possible not only through Rydberg lifetime measurements [9] but also indirectly by, e.g., measurements of Stark maps [10], which depend on the same dipole matrix elements. Any incoherent repopulation of the originally excited Rydberg state by multiple BBR transitions can be easily included in theoretical models but is usually negligible in magnitude. Also, blackbody-induced ionization by transitions to continuum states can be taken into account [11].

Direct lifetime measurements at lowered environment temperatures, as well as measurements of temperature-dependent

BBR transfer rates, have been conducted for Na atoms [9,12]. The most accurate values for Rb Rydberg lifetimes to date have been measured in a room-temperature environment, relying on the knowledge of BBR transition rates in order to extract zero-temperature natural lifetimes. Measurements of nS and nD states in the range of $n = 27$ to 44 were conducted by exciting Rydberg atoms from a cloud of ultracold atoms prepared in a magneto-optical trap (MOT), waiting some varying delay time, and then applying an electric-field pulse while monitoring the time-dependent ionization signals (selective field ionization, SFI) [13,14]. Due to the difficulty of accurately distinguishing between close-lying Rydberg states which are populated because of BBR (see discussion in [15,16]), the technique was improved in [17]. By adding a microwave transfer of the “target” Rydberg atoms to a higher-lying state which can be accurately discriminated, this potential source of systematic error was eliminated. The results of [17] generally agree with previous work and cover Rb nS , nP , and nD states in the range $28 \leq n \leq 45$. To our knowledge, neither lifetimes of Rb at lowered environment temperatures nor any BBR transition rates have yet been measured. Consequently, an experimental verification of the BBR rate calculations [4] for Rb is still required.

In general, the lifetime of Rydberg atoms in ultracold gases is altered by several effects. Any electric fields lead to state mixing and ionization [8]. Collisions between atoms, as well as dipole-dipole and higher-order interaction between Rydberg atoms, which may also lead to collisions [18], cause changes of the atomic states and ionization [6,19]. Furthermore, depending on atomic density and cloud geometry, microwave superradiance is likely to occur, which can be triggered by blackbody radiation [7,20]. Due to such effects, the lifetimes of Rydberg atoms can differ greatly from the undisturbed values, as well as from one experiment to another. Therefore, measuring Rydberg lifetimes under the given conditions is necessary.

While the SFI methods mentioned above can be used when an electron or ion detector is present, an increasing number of recent cold-atom experiments have relied solely on optical detection, mostly employing electromagnetically induced transparency (EIT) instead [21–24]. In order to enable the determination of Rydberg lifetimes in such systems, as well as in cases where a reduced complexity of the setup

^{*}markus.mack@uni-tuebingen.de

[†]fortagh@uni-tuebingen.de

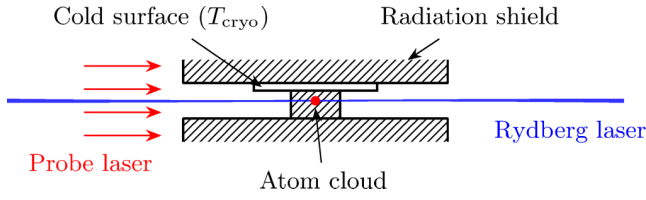


FIG. 1. (Color online) Cloud of ultracold ^{87}Rb atoms (center) inside the radiation shield of a cryostat (hatched). The radiation shield is cylindrical in shape with a 4.5-mm gap and 35-mm diameter. While the cold surface is at T_{cryo} , the temperature of the radiation shield is slightly higher. The outside temperature is assumed to be close to 300 K.

compared to that of the SFI approach with the additional microwave is desired, we developed a similarly powerful, all-optical method for measuring state-specific lifetimes. The approach is technologically simplified as the same lasers that are used for Rydberg excitation are employed for detection, requiring only an additional photodiode for the measurement of resonant absorption.

We describe the optical lifetime measurement of Rydberg states in Sec. II and demonstrate its application in a setup with cold ^{87}Rb atoms (see Fig. 1) at cryogenic environmental temperatures in Sec. III. Factors influencing the accuracy of the method are discussed in Sec. IV.

II. OPTICAL LIFETIME MEASUREMENT METHOD

The optical measurements presented in this article rely on time-resolved resonant absorption detection in an effective three-level ladder-type system, as shown in the inset of Fig. 2, similar to the scheme in [25]. The transmission of a *probe laser* pulse resonant to a closed cycling transition between a ground state $|g\rangle$ and a quickly decaying intermediate excited state $|e\rangle$ is monitored with a photodiode. The duration of this pulse should be several times the expected Rydberg lifetime. The lifetime of $|e\rangle$ must be shorter than the expected time resolution of the final Rydberg decay curves. For Rydberg excitation a *Rydberg laser* resonant to the transition between $|e\rangle$ and the target Rydberg state $|r_1\rangle$ is used simultaneously with the probe laser. In principle, this configuration allows excitation by means of a stimulated Raman adiabatic passage pulse [26]. The experimental sequence, aimed at measuring changes in the optical density due to the laser pulses, consists of several steps. In each step, a cloud of ultracold atoms is prepared and released from the trap, and after a given time of flight a series of laser pulses depending on the current step is applied, as shown in Fig. 2.

As a baseline calibration, the probe laser-light-intensity signals without any atoms [step I, signal $I_0(t)$] and with ground-state atoms [step II, $I_g(t)$] are recorded, giving the time-dependent optical density (Lambert-Beer law):

$$D_{\text{noexc.}}^{\text{opt}}(t) = -\ln[I_g(t)/I_0(t)], \quad (1)$$

In general, during the relevant time scales, the optical density is proportional to the number of atoms in the volume of the cloud “seen” by the probe laser beam.

In step III, the Rydberg excitation at $t = 0$ just before the start of the probe pulse is added. Due to excited atoms that

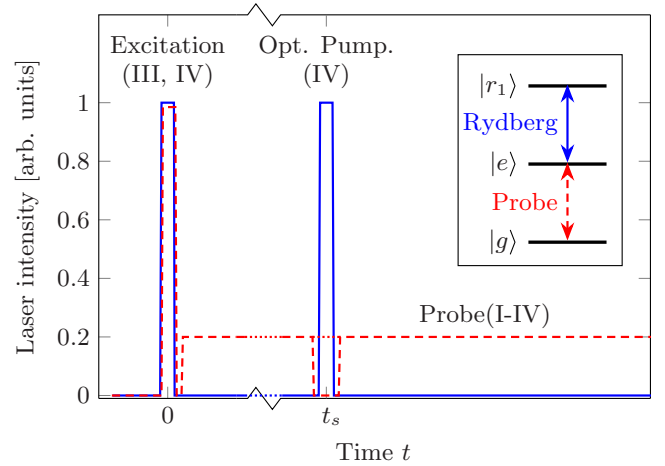


FIG. 2. (Color online) Illustration of the pulse sequence for steps I to IV used for the optical lifetime measurement for the probe (dashed red lines) and Rydberg (solid blue lines) lasers, resonant to the $|g\rangle \leftrightarrow |e\rangle$ and $|e\rangle \leftrightarrow |r_1\rangle$ transitions. For the calibration (step I without atoms and step II with atoms), only the probe laser is turned on after $t = 0$ for a duration of several hundred microseconds (much greater than the Rydberg lifetime; only the initial part is shown in the plot). Starting at step III, at $t = 0$ atoms are excited to the Rydberg state $|r_1\rangle$ (Excitation). For step IV, which is repeated several times, the long probe pulse is interrupted at time t_s for a short duration, during which an optical pumping pulse of the Rydberg laser is applied (Opt. Pump.). t_s is varied with each repetition of step IV.

are missing from the ground state, there will be increased transmission compared to that in step II. Again, the optical density of ground-state atoms $D_{\text{w/exc.}}^{\text{opt}}(t)$ can be calculated as in (1). In combination with the result from step II, an additional quantity

$$p_{\neq g}(t) = 1 - D_{\text{w/exc.}}^{\text{opt}}(t)/D_{\text{noexc.}}^{\text{opt}}(t) \quad (2)$$

can be determined, which gives the number of atoms *not* in the ground state due to the excitation pulse, normalized to the total number of atoms in the detection volume. The value of $p_{\neq g}$ in the beginning is the fraction of atoms that have been excited to the Rydberg state, except for transitions to other states that have already happened due to BBR and possible superradiance, as was noted in [25]. The whole $p_{\neq g}$ curve represents an effective decay of all directly and indirectly excited states, which is nearly, but generally not perfectly, exponential in shape because of the differing lifetimes of the constituent Rydberg states that become populated. Also, if ionizing effects played a role, the curve will not return to zero for long times but converge towards a finite value. The resulting $p_{\text{ion}} = p_{\neq g}(t \rightarrow \infty)$ is a measure for the strength of any ionizing effects if other mechanisms can be excluded that specifically remove Rydberg atoms, but not ground-state atoms, from the detection volume or, alternatively, transfer them into other stable states outside the probe transition. In general, the decay curve must consist of the (as yet unknown) parts

$$p_{\neq g}(t) = p_{r_1}(t) + p_{r_{\neq 1}}(t) + p_{\text{ion}}(t), \quad (3)$$

i.e., the population of the originally excited Rydberg state, other Rydberg states, and the number of ionized atoms.

In order to separate the decay of the originally excited Rydberg state $|r_1\rangle$ from others that become populated, a state transfer similar to the microwave transfer in [17] is employed in step IV. However, instead of the additional microwave, the same Rydberg laser which was used for the excitation is used for a short optical pumping pulse at various times t_s during the expected decay of $|r_1\rangle$. This pumps a fraction of atoms still in the $|r_1\rangle$ state down to the intermediate $|e\rangle$ state. During this pulse, the probe laser needs to be turned off to prevent any reexcitation of the Rydberg state. Because the lifetime of the intermediate state is short, the atoms pumped back in this fashion will reappear as ground-state atoms as soon as the probe laser is turned on again after the optical pumping pulse. Following the same evaluation procedure as for step III, using (1) and (2), decay curves $p_{\neq g,s}(t)$ can be obtained. These must consist of the same parts with equal values as (3), except for a change in $p_{r_1}(t)$ at $t \geq t_s$, which has been reduced by some fraction α by the optical pumping pulse due to the Rydberg population in $|r_1\rangle$ at time $t = t_s$, leaving

$$p_{r_1,s}(t_s) = (1 - \alpha)p_{r_1}(t_s). \quad (4)$$

Thus, by subtracting the decay curves $p_{\neq g,s}(t)$ from the curve without optical pumping $p_{\neq g}(t)$ of step III, information about the original $|r_1\rangle$ population at time $t = t_s$ can be obtained:

$$\alpha p_{r_1}(t_s) = p_{\neq g}(t_s) - p_{\neq g,s}(t_s). \quad (5)$$

As long as the optical density of the Rydberg atoms for the Rydberg laser is small or the optical pumping is fast enough to transfer all of the $|r_1\rangle$ atoms ($\alpha = 1$), α will be a constant fraction for each t_s . Repetition of step IV for different t_s and evaluation of $\alpha p_{r_1}(t_s)$ yields the decay of the population p_{r_1} , giving the lifetime of the Rydberg state $|r_1\rangle$. In the case only spontaneous decay and BBR contribute to the lifetime, this will be an exponential decay with a decay parameter τ independent of α .

III. CONDUCTED MEASUREMENTS AND RESULTS

We employed the method in a series of experiments in a setup where a cloud of 4×10^5 to 8×10^5 ^{87}Rb atoms with a temperature of $1.5 \mu\text{K}$ is transferred into a gap of the radiation shield of a tunable temperature cryostat by means of optical tweezers (detailed in [27]). Details of the geometry are shown in Fig. 1. For excitation and detection we used the ^{87}Rb $5S_{1/2}(F=2) \leftrightarrow 5P_{3/2}(F=3)$ transition and a circular polarization, which is commonly used for imaging purposes. A repumping laser resonant to $5S_{1/2}(F=1) \leftrightarrow 5P_{3/2}(F=2)$, which was needed for the MOT operation as well, was used to effectively keep the $F=1$ ground state unpopulated at all times. The Rydberg excitation to $|r_1\rangle$ is done by a pulse of the probe laser, with a higher intensity (approximately five times) than in actual probing, and, simultaneously, the Rydberg laser pulse resonant to the $5P_{3/2}(F=3) \leftrightarrow 30S_{1/2}$ or $38D_{5/2}$ state. The probe and Rydberg lasers are frequency stabilized to a frequency comb and arranged as described in [25]. The Rydberg laser was focused down to a size of $\approx 100 \mu\text{m}$ with a total power of $\approx 20 \text{ mW}$. The measurement sequence as described in Sec. II was conducted at times of flight (TOFs)

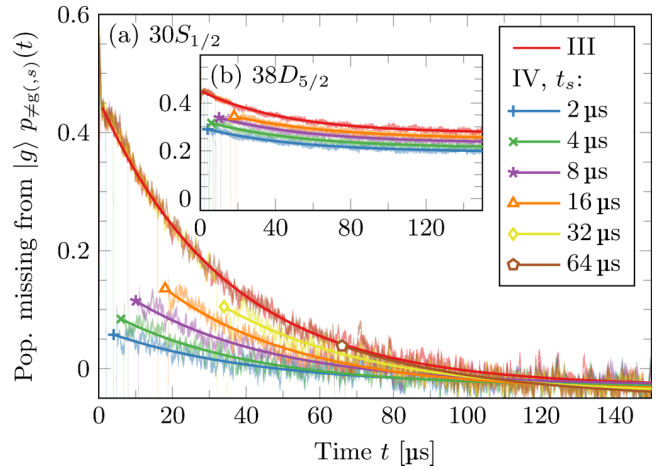


FIG. 3. (Color online) (a) Time-dependent populations of states not contributing to the probe transition, $p_{\neq g}$ (step III) and $p_{\neq g,s}(t)$ (step IV with repetition number s and corresponding optical pumping time t_s), representing an intermediate result of the evaluation of the measurement of the $30S_{1/2}$ state at $T_{\text{cryo}} = 300 \text{ K}$ and a TOF of 20.5 ms . Shaded areas show statistical errors of the signal at each instant of time. Solid lines show exponential fits corresponding to each measurement step. Markers show the values $p_{\neq g,s}(t_s)$ obtained from the fit. (b) $38D_{5/2}$ state at $T_{\text{cryo}} = 160 \text{ K}$, showing only a fraction of atoms returning to the ground state depending on the optical pumping time t_s , converging towards values up to $p_{\text{ion}} \approx 0.3$.

of 12.0 and 20.5 ms in order to reduce the atom density to $7(3) \times 10^9/\text{cm}^3$ and $1.5(5) \times 10^9/\text{cm}^3$, respectively. The setup did not allow for controlled compensation of stray electric fields (which have been investigated in detail elsewhere [28]), leaving residual fields of 6.6 V cm^{-1} for the $30S$ state measurements and, after optimizing the cloud position, 0.5 V/cm for those in the $38D$ state. Due to limited Rydberg laser power, pulse durations of $1 \mu\text{s}$ were chosen for both the excitation and optical pumping pulses. In order to reduce the statistical errors, mainly a result of photodiode and other technical noise, ≥ 30 shots per step were averaged. The time resolution of the photodiode signal of each shot was digitally reduced to $0.5 \mu\text{s}$ by temporal averaging. Furthermore, because of atom-number fluctuations, (1) and (2) were individually calculated for each single-shot measurement and corrected for atom-number drifts. In order to decrease statistical noise, the results of shots belonging to the same step (and repetition number s for step IV) were averaged.

Figure 3 shows exemplary results for the number of atoms missing from the ground state, $p_{\neq g}(t)$ and $p_{\neq g,s}(t)$, where up to six values of t_s have been used at increasing intervals. For both states, an approximation of the curves by exponential functions, which were used for fitting in order to determine the points $p_{\neq g,s}(t_s)$, was sufficient. While for $30S_{1/2}$ all atoms eventually return to the ground state, for the $38D_{5/2}$ state this is clearly not the case. This is most probably caused by ionizing collisions due to the known attractive dipole-dipole interaction for this state [29]. While more than half of the Rydberg atoms are apparently already lost at $t < 2 \mu\text{s}$, a small fraction was prevented from being ionized by the optical pumping pulses.

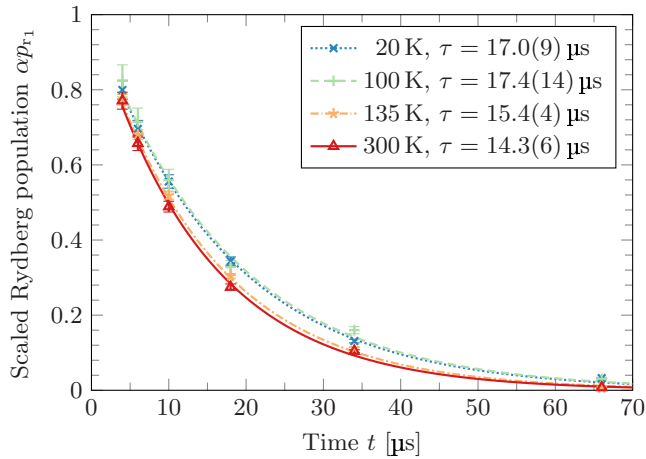


FIG. 4. (Color online) Measured populations $\alpha p_{r_1}(t_s)$ of the $30S_{1/2}$ state, proportional to the decays of $|r_1\rangle$, at several cryostat temperatures in the range 20 to 300 K. The lines are exponential fits to the data, giving the decay parameters τ and their estimated error based on the fit (add $\pm 1.0\mu\text{s}$ systematic error common to all measurements for absolute uncertainty).

The final evaluation step yielding $\alpha p_{r_1}(t_s)$ is shown in Fig. 4 for the state $|r_1\rangle = 30S_{1/2}$, measured at cryostat temperatures in the range of 20 to 300 K, at a TOF of 20.5 ms, resulting in values $\tau = 14.3(6)\mu\text{s}$ ($T_{\text{cryo}} = 300\text{ K}$) up to $\tau = 17.0(8)\mu\text{s}$ ($T_{\text{cryo}} = 20\text{ K}$) with an additional common systematic error of $\pm 1.0\mu\text{s}$. Compared with the established measured value $\tau = 14.5(12)\mu\text{s}$ ($30S_{1/2}$, $T = 300\text{ K}$, Fig. 2 in [14]), our result is very compatible.

However, while in our measurements there is a clear tendency for increased lifetimes at lowered temperatures, the effect is not as pronounced as expected from the calculated values from [4], giving $\tau = 26.6\mu\text{s}$ at $T = 0\text{ K}$. In order to check for any systematic dependencies on geometrical effects arising due to the falling and expanding cloud, as well as the presence of any density-dependent lifetime-reducing effects, the measurements for $30S_{1/2}$ were repeated with a time of flight of 12 ms. This resulted in an increase of the atom density and the optical density by roughly a factor of 2. The resulting lifetimes for $30S_{1/2}$ were $\tau = 14.1(14)\mu\text{s}$ ($T_{\text{cryo}} = 300\text{ K}$) up to $\tau = 16.0(7)\mu\text{s}$ ($T_{\text{cryo}} = 20\text{ K}$), i.e., no discernible difference compared to the measurements with TOF of 20.5 ms. Therefore, we suspect insufficient shielding from outside thermal radiation in our setup as the main cause for the discrepancy in comparison to theory at low temperatures. The geometry as shown in Fig. 1 leads to a solid angle of $4\pi \times 0.87$ covered by cold surfaces. Also, the lower part of the radiation shield is not ideally thermally coupled to the cryostat and is estimated to be at least 20 K warmer than the upper surface at temperatures near $T_{\text{cryo}} = 4.2\text{ K}$, causing the effective temperature relevant for BBR to be significantly higher than the cryostat temperature.

The lifetime of the $38D_{5/2}$ state, with a TOF of 20.5 ms, was measured to be $13(4)\mu\text{s}$ ($T_{\text{cryo}} = 160\text{ K}$) and $19(3)\mu\text{s}$ ($T_{\text{cryo}} = 20\text{ K}$), much lower than the reference value of $\tau = 30(2)\mu\text{s}$ ($T = 300\text{ K}$; Fig. 2 in [14]). This lifetime reduction

comes as no surprise due to the interaction-induced ionizing collisions already observed in Fig. 3.

IV. ACCURACY CONSIDERATIONS

The time resolution of the method presented in Sec. II is limited by the length and timing accuracy of the excitation and optical pumping pulses, effectively adding uncertainty to times $t = 0$ and t_s . For our $1\text{-}\mu\text{s}$ pulses with a timing accuracy of $< 10\text{ ns}$, this results in a systematic uncertainty of $\pm 1.0\mu\text{s}$ common to all measurements taken under the same excitation conditions, limiting their absolute, but not differential, accuracy. Higher laser intensities, particularly of the Rydberg laser, would allow for shorter pulses. When choosing the sizes for both laser beams, geometry effects need to be considered: If there is any significant atomic motion due to time of flight or atomic temperature, the excitation volume should be smaller than the detection volume in order to avoid any Rydberg atoms leaving the detection volume during the measurement time. However, the measured Rydberg signal will be lower for increased detection volumes, affecting the signal-to-noise ratio. Furthermore, prolonged acceleration of the atoms due to radiation pressure will lead to Doppler shifts which can lead to systematic errors, especially with regard to the narrow Rydberg transitions. This is particularly relevant for the probe laser, which must be well below the saturation intensity of the probe transition ($I_0 \lesssim 0.2I_{\text{sat}}$ in our experiments).

If, like in our experiments, the pulses are created using an acousto-optical modulator (AOM) in the laser-beam path, the probe pulse will have a certain switching time of $\approx 100\text{ ns}$ and will show intensity drifts resulting from polarization drifts during some device-dependent warm-up time. As long as the signal remains proportional to the light level seen by the atoms and the pulse shapes are well reproducible, these drifts cancel out when calculating the $D^{\text{opt}}(t)$ terms. The optical density itself will not be constant over the duration of the laser pulse since the atomic cloud is expanding, as well as being accelerated downwards by gravity; however, these effects cancel out as well in $p_{\neq g}(t)$.

The measured optical densities depend on the probe light polarization and Zeeman substates of the atoms. For low Rabi frequencies, optical pumping effects can become visible in the dynamic parts of the measured signals, particularly when turning the probe laser back on after the Rydberg laser pulses at times t_s , which in turn limits the accuracy of the determination of $p_{r_1,s}(t_s)$. These effects become especially pronounced when any stray magnetic fields split up the Zeeman sublevels, which would need to be compensated well below the magnitude of the earth's magnetic field for high accuracy. Stray electric fields, if sufficiently strong, would additionally lead to state mixing affecting the underlying physical lifetime of the measured state. According to our calculations (detailed in [10]), this would become relevant on a 1% (probability) level at 30 V/cm for the $30S_{1/2}(|m_j|=1/2)$ state and 2.2 V/cm for $38D_{5/2}(|m_j|=1/2)$, i.e., not leading to significant state mixing in our setup.

Regarding the measurements taken at a lowered environment temperature, mainly two sources of systematic error need to be taken into account: First, as mentioned before and discussed in [8], the effective temperature as seen by the atoms

will not be the temperature of the cryostat unless the full 4π solid angle is covered. Second, the geometry of conducting parts of the experimental setup, like the radiation shield of the cryostat, can form an effective microwave resonator altering the BBR spectrum. This becomes especially relevant if their dimensions are close to the strongest transition wavelengths (like the $30S \leftrightarrow 30P$ transition with a wavelength of 1.9 mm or $30S \leftrightarrow 29P$ with a wavelength of 1.7 mm).

V. CONCLUSION AND OUTLOOK

We have presented an optical method for the measurement of Rydberg atom lifetimes, providing information about how they are influenced by effects like blackbody radiation and interactions between Rydberg atoms. Because no detector parts or high voltages are needed inside the vacuum chamber of the experimental setup, this method might prove particularly useful in otherwise complex systems, including atom-chip

setups such as the one used here [27], or millikelvin systems [30], which might eventually lead to the realization of proposed quantum gate schemes such as those in [31,32].

While the use of an additional microwave population transfer such as the one in [17] is not necessary for state selectivity, it might be employed to measure the populations of neighboring Rydberg nP and nF states by generalizing the scheme to measure signal differences due to the microwave transfer. This way, both the populations of, e.g., a Rydberg nS and close-lying nP states could be monitored. This would, for example, allow for the distinction between superradiance, which highly depends on the population of such strongly coupled states, and other lifetime-reducing effects.

ACKNOWLEDGMENTS

This work was financially supported by the FET-Open Xtrack Project HAIRS and the Carl Zeiss Stiftung.

-
- [1] M. Saffman, T. G. Walker, and K. Mølmer, *Rev. Mod. Phys.* **82**, 2313 (2010).
- [2] D. Jaksch, J. I. Cirac, P. Zoller, S. L. Rolston, R. Côté, and M. D. Lukin, *Phys. Rev. Lett.* **85**, 2208 (2000).
- [3] M. M. Müller, M. Murphy, S. Montangero, T. Calarco, P. Grangier, and A. Browaeys, *Phys. Rev. A* **89**, 032334 (2014).
- [4] I. I. Beterov, I. I. Ryabtsev, D. B. Tretyakov, and V. M. Entin, *Phys. Rev. A* **79**, 052504 (2009).
- [5] I. I. Beterov, I. I. Ryabtsev, D. B. Tretyakov, and V. M. Entin, *Phys. Rev. A* **80**, 059902(E) (2009).
- [6] A. Walz-Flannigan, J. R. Guest, J.-H. Choi, and G. Raithel, *Phys. Rev. A* **69**, 063405 (2004).
- [7] T. Wang, S. F. Yelin, R. Côté, E. E. Eyler, S. M. Farooqi, P. L. Gould, M. Koštrun, D. Tong, and D. Vrinceanu, *Phys. Rev. A* **75**, 033802 (2007).
- [8] T. F. Gallagher, *Rydberg Atoms* (Cambridge University Press, Cambridge, 1994).
- [9] W. P. Spencer, A. G. Vaidyanathan, D. Kleppner, and T. W. Ducas, *Phys. Rev. A* **25**, 380 (1982).
- [10] J. Grimm, M. Mack, F. Karlewski, F. Jessen, M. Reinschmidt, N. Sándor, and J. Fortágh, *New J. Phys.* **17**, 053005 (2015).
- [11] I. I. Beterov, D. B. Tretyakov, I. I. Ryabtsev, V. M. Entin, A. Ekers, and N. N. Bezuglov, *New J. Phys.* **11**, 013052 (2009).
- [12] W. P. Spencer, A. G. Vaidyanathan, D. Kleppner, and T. W. Ducas, *Phys. Rev. A* **24**, 2513 (1981).
- [13] A. L. de Oliveira, M. W. Mancini, V. S. Bagnato, and L. G. Marcassa, *Phys. Rev. A* **65**, 031401 (2002).
- [14] V. A. Nascimento, L. L. Caliri, A. L. de Oliveira, V. S. Bagnato, and L. G. Marcassa, *Phys. Rev. A* **74**, 054501 (2006).
- [15] D. A. Tate, *Phys. Rev. A* **75**, 066502 (2007).
- [16] L. L. Caliri and L. G. Marcassa, *Phys. Rev. A* **75**, 066503 (2007).
- [17] D. B. Branden, T. Juhasz, T. Mahlokozera, C. Vesa, R. O. Wilson, M. Zheng, A. Kortyna, and D. A. Tate, *J. Phys. B* **43**, 015002 (2010).
- [18] W. Li, P. J. Tanner, and T. F. Gallagher, *Phys. Rev. Lett.* **94**, 173001 (2005).
- [19] R. A. D. S. Zanon, K. M. F. Magalhães, A. L. de Oliveira, and L. G. Marcassa, *Phys. Rev. A* **65**, 023405 (2002).
- [20] J. O. Day, E. Brekke, and T. G. Walker, *Phys. Rev. A* **77**, 052712 (2008).
- [21] A. Tauschinsky, R. M. T. Thijssen, S. Whitlock, H. B. van Linden van den Heuvell, and R. J. C. Spreeuw, *Phys. Rev. A* **81**, 063411 (2010).
- [22] G. Günter, H. Schempp, M. Robert-de Saint-Vincent, V. Gavryusev, S. Helmrich, C. S. Hofmann, S. Whitlock, and M. Weidemüller, *Science* **342**, 954 (2013).
- [23] D. Maxwell, D. J. Szwer, D. Paredes-Barato, H. Busche, J. D. Pritchard, A. Gauguet, M. P. A. Jones, and C. S. Adams, *Phys. Rev. A* **89**, 043827 (2014).
- [24] H. Gorniaczyk, C. Tresp, J. Schmidt, H. Fedder, and S. Hofferberth, *Phys. Rev. Lett.* **113**, 053601 (2014).
- [25] F. Karlewski, M. Mack, J. Grimm, N. Sándor, and J. Fortágh, *Phys. Rev. A* **91**, 043422 (2015).
- [26] T. Cubel, B. K. Teo, V. S. Malinovsky, J. R. Guest, A. Reinhard, B. Knuffman, P. R. Berman, and G. Raithel, *Phys. Rev. A* **72**, 023405 (2005).
- [27] D. Cano, H. Hattermann, B. Kasch, C. Zimmermann, R. Kleiner, D. Koelle, and J. Fortágh, *Eur. Phys. J. D* **63**, 17 (2011).
- [28] H. Hattermann, M. Mack, F. Karlewski, F. Jessen, D. Cano, and J. Fortágh, *Phys. Rev. A* **86**, 022511 (2012).
- [29] A. Reinhard, T. C. Liebisch, B. Knuffman, and G. Raithel, *Phys. Rev. A* **75**, 032712 (2007).
- [30] F. Jessen, M. Knufinke, S. Bell, P. Vergien, H. Hattermann, P. Weiss, M. Rudolph, M. Reinschmidt, K. Meyer, T. Gaber, D. Cano, A. Günther, S. Bernon, D. Koelle, R. Kleiner, and J. Fortágh, *Appl. Phys. B* **116**, 665 (2014).
- [31] D. Petrosyan and M. Fleischhauer, *Phys. Rev. Lett.* **100**, 170501 (2008).
- [32] J. D. Pritchard, J. A. Isaacs, M. A. Beck, R. McDermott, and M. Saffman, *Phys. Rev. A* **89**, 010301 (2014).