

学校代码: 10246
学号: 18110190036

復旦大學

博士学位论文

(学术学位)

皮秒组合脉冲驱动高保真原子态调控

**Driving high fidelity atomic state control
with picosecond composite pulses**

院 系: 物理学系

专 业: 光 学

姓 名: 马 昱 迪

指导教师: 吴赛骏 教授

完成日期: 2023 年 05 月 20 日

指导小组成员名单

吴赛骏 教授

目录

中文摘要	I
英文摘要	III
第一章 引言	1
1.1 本文的研究背景	1
1.1.1 研究动机：光学电偶极跃迁的精密操控	1
1.1.2 光学电偶极跃迁操控技术的当前局限	4
1.1.3 NMR 的启示：基于组合脉冲的容错调控	4
1.1.4 皮秒组合脉冲容错调控	5
1.2 本论文工作研究内容及成果	6
1.3 本文的结构安排	7
第二章 理论基础	9
2.1 本章概述	9
2.2 近共振光驱动下的二能级原子	9
2.2.1 二能级原子态操控及布洛赫球模型	9
2.2.2 布居翻转的 \mathcal{A} 非均匀展宽误差	13
2.2.3 啁啾脉冲绝热容错方案	15
2.2.4 组合脉冲容错调控方案	16
2.3 多能级原子的二能级调控	20
2.3.1 多能级原子和光场相互作用	21
2.3.2 超精细结构及塞曼子能级	21
2.3.3 短皮秒脉冲极限下的 D 谱线二能级调控	23
2.3.4 展望：多能级电子态的二能级相继操控	25
2.4 引入自发辐射的原子体系计算理论	26
2.4.1 引入自发辐射后的二能级原子态演化	26
2.4.2 原子散射率和光吸收	28

2.4.3	光力和激光冷却	30
2.5	本章小结	32
第三章	可编程皮秒相干脉冲序列产生技术	33
3.1	本章概述	33
3.2	光学相干脉冲序列产生技术	33
3.2.1	连续光高速波形调制技术	33
3.2.2	脉冲光整形技术	34
3.2.3	新思路：“倒空间-时间”直接转换脉冲整形技术	36
3.3	“第一代”皮秒组合脉冲生成系统	37
3.3.1	主系统设计及实验实现	37
3.3.2	脉冲序列后选取系统	39
3.3.3	调制带宽及延时极限	41
3.3.4	脉冲调制的系统效率	42
3.3.5	第一代系统的主要问题	43
3.4	“第二代”皮秒组合脉冲生成系统	44
3.4.1	主系统升级——组合声光调制	44
3.4.2	脉冲后选取系统升级——干涉预降频	47
3.4.3	脉冲输出“参数库”构成	49
3.5	皮秒脉冲序列特性测量	52
3.5.1	脉冲序列的时域波形	52
3.5.2	脉冲序列的频域特性	54
3.6	冷原子俘获损失“超分辨”光谱研究	55
3.6.1	实验设计	55
3.6.2	光谱测量结果	57
3.6.3	光谱“超分辨”现象及分析	60
3.7	本章小结	62
第四章	纳米光纤-原子界面的组合脉冲调控	65
4.1	本章概述	65

4.2	纳米光纤-光与原子相互作用界面	65
4.2.1	纳米光学界面原子态调控的挑战和机遇	65
4.2.2	纳米光纤界面	66
4.3	纳米光纤界面原子态近完美调控	69
4.4	实验设计及系统介绍	71
4.4.1	泵浦探测实验设计	71
4.4.2	真空系统	73
4.4.3	光学系统	74
4.4.4	时序设计及信号处理系统	75
4.5	实验结果	77
4.5.1	瞬态光学响应	77
4.5.2	N=1,2 皮秒脉冲调控	78
4.5.3	N=3 组合脉冲容错调控	82
4.6	纳米光纤界面的泵浦探测数值模拟方案	85
4.6.1	D1 线皮秒相互作用全能级数值模拟	86
4.6.2	D2 线运动探测响应: 蒙特卡洛方法	88
4.6.3	D2 线运动探测响应: 扩散平均近似	91
4.6.4	实验测量和数值模拟数据的匹配	94
4.7	本章小结	95
第五章	原子偶极加速的组合脉冲编程优化	97
5.1	本章概述	97
5.2	组合脉冲冷原子偶极加速实验	98
5.3	偶极加速效果的闭环反馈优化	100
5.3.1	优化算法需求	100
5.3.2	贝叶斯优化算法简介	100
5.3.3	反馈闭环实验设计	102
5.4	实验结果	103
5.4.1	N=1 单脉冲加速基准测量	103
5.4.2	偶极加速的贝叶斯优化	104

5.4.3	N=5 优化组合脉冲容错加速结果	106
5.4.4	N=3 组合脉冲布居翻转的全局模型	108
5.5	偶极加速实验中的“超分辨”现象	108
5.5.1	超精细基态再泵浦	108
5.5.2	N=2,3 偶极加速实验“超分辨”结构	109
5.5.3	基态布居转移的数值模拟	109
5.6	本章小结	111
第六章	总结与展望	113
6.1	本文总结	113
6.2	对本文工作的一些展望	114
	参考文献	117
	攻读学位期间研究成果	131
	致 谢	133
	论文声明	135

摘要

光学波段的电偶极跃迁（强光学跃迁）是中性原子与光相互作用最重要的形式。基于强光学跃迁激发的高保真原子态操控在诸多基础和应用物理领域存在重要技术应用。然而传统非线性光学超快调控技术易受多能级动力学干扰，而基于连续光调制的原子亚稳态调控技术由于带宽有限，难以克服强光学跃迁中的纳秒级自发辐射。皮秒时间尺度的光学脉冲是对强光学跃迁实现非微扰量子调控的最优选择。此外，借鉴磁共振领域日渐成熟的组合脉冲几何调控技术，皮秒组合脉冲可全面克服强光学跃迁量子调控过程中难以避免的各类非均匀展宽，在百皮秒时间内实现接近完美的原子态电偶极任意调控。

本文工作旨在通过探索发展高带宽皮秒脉冲任意整形技术，将广泛应用于磁共振等领域的组合脉冲调控方案运用于光学波段，实现对强光学电偶极跃迁的“参数容错”精密控制。相比微波磁共振，光学调控更易于受到光强/偏振不均，多普勒频移等不完全可控因素影响，因此组合脉冲赋予的容错能力尤为重要。本论文工作系统论证了皮秒组合脉冲运用于强光学跃迁，实现原子态精密“超快”操控的可行性。实验上原创发展了皮秒脉冲序列生成技术，并在光场高度聚焦的纳米光纤-热原子界面及自由空间冷原子体系中，初步实现了原子态容错调控的组合脉冲编程优化。

本工作的主要研究成果概述如下：

一、针对激光波形任意调制前沿皮秒-纳秒时段的技术空白，原创发展了一种基于“倒空间-时间”直接转换方法的脉冲整形技术，对入射锁模皮秒脉冲进行相干分束，经多路延迟，相干堆叠，生成子脉冲数、振幅、相位及延时任意可编程控制的皮秒脉冲波形。在论文工作期间，结合声光调制技术创新，研制出百皮秒延时，峰值功率近 10W，子脉冲数 $N = 5$ 的组合脉冲序列生成及单模输出（10 个振幅/相位自由度近任意可调）系统。我们用“频谱超分辨”冷原子光谱技术验证和展示了该脉冲生成系统优秀的波形稳定性和可编程性。

二、运用上述可编程皮秒脉冲序列发生系统生成的毫瓦级组合脉冲，我们对纳米光纤消逝场中的热运动原子实现了高效和参数容错的原子态调控。通过优化 $N = 3$ 导波皮秒脉冲序列的相对相位，在光强/偏振分布极其不均的纳米光纤近场驱动 ^{85}Rb 原子 D1 布居均匀翻转，由导波 D2 共振光探测近场翻转效率，发现瞬态透射增强可高达 70%。我们通过第一原理建模比对实验测量，证明该组合脉冲几何容错性已经接近理论极限。该原创工作为下一步在冷原子-纳米光纤界面局部获得 $f > 99\%$ 保真度原子态，实现多原子电偶极自旋波精密操控奠定了基础。低功率皮秒组合脉冲原子态调控技术可为一类纳光界面原子光谱及非线性

性量子光学技术创新提供关键支持。

三、运用上述可编程皮秒脉冲序列发生系统生成的 10 瓦级组合脉冲，我们对自由空间冷原子实现了光强容错的布居翻转和偶极加速。实验通过优化 $N = 5$ 皮秒脉冲序列的相对相位，结合贝叶斯算法，实现了实验优化反馈闭环。在光强变化 $\pm 50\%$ 下使原子样品均实现近完美布居翻转 ($f > 90\%$)，在大原子样品中获得远高于单脉冲激发的单向加速效率。该进展首次以锁模激光对冷原子实现了近完美组合操控。实验方案的直接改进即可用于实现超冷原子集体辐射精密调控，并有潜力推动激光冷却、原子干涉、离子阱量子信息处理等领域的技术创新。

从激光冷却到拉曼原子干涉，冷原子领域对原子内外态操控多局限于基态附近的微扰。而对强光学跃迁的操控传统上是非线性光学的研究范畴，在调控幅度上极少有保真度要求。作者希望本博士论文工作可启发或推动超越基态微扰、基于强光学跃迁全面和高精度操控的原子物理和量子光学发展。

关键词：电偶极跃迁，组合脉冲量子调控方案，容错量子调控，皮秒组合光脉冲产生，纳米光纤

Abstract

The electric dipole transition in the optical domain (strong optical transition) is arguably the most important form of interaction between light and atom. Techniques for high fidelity atomic state control through the strong transition excitation can potentially impact widely across fundamental and applicational research fields. In traditional nonlinear optics, ultrafast control technology is prone to complications from multi-level dynamics. On the other hand, for techniques based on continuous-wave modulation for fine control of atomic metastable states, the control bandwidth is too narrow to overcome nanosecond level spontaneous emission during the strong transition control. The picosecond scale is the ideal choice of time-scale for non-perturbative quantum control of strong optical transitions. Furthermore, combining composite pulse geometric control techniques developed in the field of magnetic resonance research (NMR), picosecond composite control technique can manage and suppress various inhomogeneous broadening effects during the optical quantum control, for perfecting arbitrary control of atomic electric dipole within hundreds of picoseconds.

This PhD thesis work aims to develop methods for high bandwidth arbitrary shaping of picosecond lasers, with which, to implement composite pulse control techniques from the NMR research to the optical domain for achieving "error-resilient" precise control of strong optical transitions. Compare with microwave control of magnetic resonances, optical control is far more prone to intensity/polarization inhomogeneity, as well as Doppler shifts and other uncontrolled effects, simply due to the much shorter wavelength. Therefore, the error-resilience offered by composite control technique is even more important in the optical domain. This thesis discusses in depth the feasibility of applying picosecond composite technique to control strong optical transitions for achieving highly precise, "ultrafast" atomic state control. Experimentally, we develop original techniques for generating composite picosecond pulses, and apply the programmable pulse to highly confined nanofiber-thermal atom interface as well as free-space cold atomic samples. We take a first step and succeed in achieving atomic state error-resilient control with composite picosecond pulses through pulse programming and optimization.

The major achievements in this thesis work are summarized as following:

First, to help filling the technological gap for optical waveform arbitrary

modulation at the picosecond-nanosecond time-scale, we develop an original pulse shaping scheme based on "Direct reciprocal-space to time pulse shaping" (DRSTPS). The method coherently splits incoming picosecond pulses from a mode-locked laser. After multi-path delay and coherent stacking, composite picosecond pulses with programmable pulse number, amplitude, phase, and relative delays are generated. Multiple technical inventions on acousto-optical diffractions are made during the completion of this thesis work, with which we construct a composite picosecond array generator with 100ps level full delay, 10W-level peak power, with up to $N = 5$ sub-pulse and nearly full programmability for the 10 amplitude/phase degrees of freedom. We use "spectrum super-resolution" cold atom spectroscopy to confirm and demonstrate the excellent waveform stability and programmability of this pulse array generator.

Second, we apply milli-watt level composite pulses from our picosecond array generator to a nanofiber, for achieving highly efficient, error-resilient atomic state control of thermal atoms in the evanescent field. By optimizing the relative phases of an $N = 3$ guided picosecond pulse array, we uniformly drive D1 population inversion of ^{85}Rb atoms in the highly inhomogeneous near field. The inversion efficiency is monitored by a co-guided D2 probe light, with which we find a transient reduction of absorption as high as 70%. We develop first-principle model to compare with the measurements, with which we confirm the composite geometric control performs near theoretical limits. Our work paves a practical pathway toward achieving $f > 99\%$ high fidelity atomic state control locally at nanofiber-cold atom interfaces. The low-power picosecond composite atomic state control techniques may provide critical technical supports for novel developments in atomic spectroscopy and nonlinear quantum optics.

Third, we apply 10-watt level composite pulses from our picosecond array generator to free-space cold atomic samples for achieving intensity-error resilient population inversion and optical dipole acceleration. Experimentally we optimize the relative phases of an $N = 5$ pulse array, with an Bayesian optimization algorithm, with repeated measurements in a close-loop fashion. We achieve close-to-perfect atomic state population inversion (estimated at $f > 90\%$) even when the laser intensity varies by $\pm 50\%$. The efficiency for unidirectional optical acceleration of large samples is far better than those achieved with single-pulse control. This work represents the first successful composite picosecond control of cold atoms. Our method can be modified in a straightforward manner for achieving precise control of collective emission in cold atoms. The method has the potential to drive technical innovations in laser cooling, atom interferometry and ion-trap based quantum information processing.

From laser cooling to Raman atom interferometry, atomic state controls in cold

atom research are largely limited to ground-state scenarios where strong transition excitations act as perturbations. Control of strong optical transitions is a topic traditionally within nonlinear optics researches, where one hardly require high-fidelity arbitrary control. The author of this PhD thesis work hopes his efforts to go beyond the traditional scenarios can inspire more research toward novel atomic physics and quantum optics research featuring high fidelity, full control of strong optical transitions.

Key words: electric optical transition, composite pulse quantum control scheme, error-resilient quantum control, picosecond optical pulse sequence generation, optical nano-fiber

第一章 引言

1.1 本文的研究背景

光学波段电偶极跃迁（强光学跃迁）是光和中性原子相互作用的最重要形式。在物理学发展史上，强光学跃迁原子光谱的实验测量和理论比对是推动当代物理大厦建设的最重要研究手段之一^[1]。在当今科技前沿，强光学跃迁原子光谱精密测量更是探测核物理^[2-4]，验证多体量子理论^[2,5]，实现基本常数测量^[4]，甚至是同位素地质年代测量^[6]的重要手段。在原子态调控方面，从激光冷却^[7]到离子阱自旋态操控^[8]，实现原子内/外态可控变化的“最有效”方式是运用光场驱动电偶极跃迁。传统原子光谱和原子态调控技术大多局限于对基态原子的微扰，对态操控的任意性和相应操控保真度并没有特别要求。事实上（以下将解释），当前原子物理实验技术在强光学跃迁上的 SU(2) 操控能力并未形成。

本博士论文工作旨在将在磁共振领域成熟发展的组合脉冲方案^[9-10]引入至原子光学电偶极跃迁调控中，以相干皮秒脉冲^[11-12]在非均匀光场中实现原子态高保真度操控。在介绍论文工作的研究技术路线以前，我们以激光冷却、原子光谱技术为例，讨论发展原子电偶极跃迁高精度操控技术的必要性及主要困难来源。

1.1.1 研究动机：光学电偶极跃迁的精密操控

· 新型激光冷却发展技术需求

在光和原子相互作用过程中，光学波段光子携带的动量足够改变原子外态运动。对原子近共振激发形成“光力”，实现对原子外态的操控，是激光冷却等冷原子物理技术的基础。普通激光冷却效率受到自发辐射力 (spontaneous scattering force) 限制。如图 1.1(a) 中所示，原子样品每个激发-自发辐射循环的平均光子动量传递仅 $1\hbar k$ ，这里 $k = \omega/c$ 是光场的波数。因此，基于自发辐射循环的光力存在上限 $F = \hbar k \Gamma / 2$ (Γ 是激发态线宽)。对于铷 (Rb)、铯 (Cs) 等碱金属来说，将原子样品从室温降至毫开级低温常需要 $N_r \sim 10^4 \sim 10^5$ 次自发辐射循环。即使在理想情况下，也需要 $t = N_r / \Gamma$ 近 10 毫秒的冷却时间。从宏观物理经验上来看，这个时间内原子的 10^5 m/s^2 级加速度是极高的。然而在此时间内原子运动距离仍会高达数米 – 正是塞曼减速仪^[13]等原子减速技术的工作距离。传统激光冷却技术虽然获得了巨大的成功，但由于自发辐射力限制，传统激光冷却实验需要权衡激光冷却体积、原子装载效率、背景气压等一系列因素，在一定程度上限制了小型化冷原子系统^[14-15]等新技术的发展。

此外，传统激光冷却技术需要再泵浦机制以避免原子布居聚集于基态的其他亚稳态（暗态），离开冷却循环。例如图 1.1(a) 所示，对于存在基态超精细结构的原子来说，需要以再泵浦激光将原子回泵至冷却循环。这一再泵浦方案却难以适用于分子冷却中^[16-19]。因为分子基态具有大量转动振动能级，从而需要大量对应各个跃迁频率的再泵浦光，不仅技术复杂，不同频率光场还可能存在互扰，降低冷却品质。受到这一限制，近年来取得相当进展的“直接激光冷却”分子技术也仅限于少数特别选择的双原子分子对象^[18-21]。

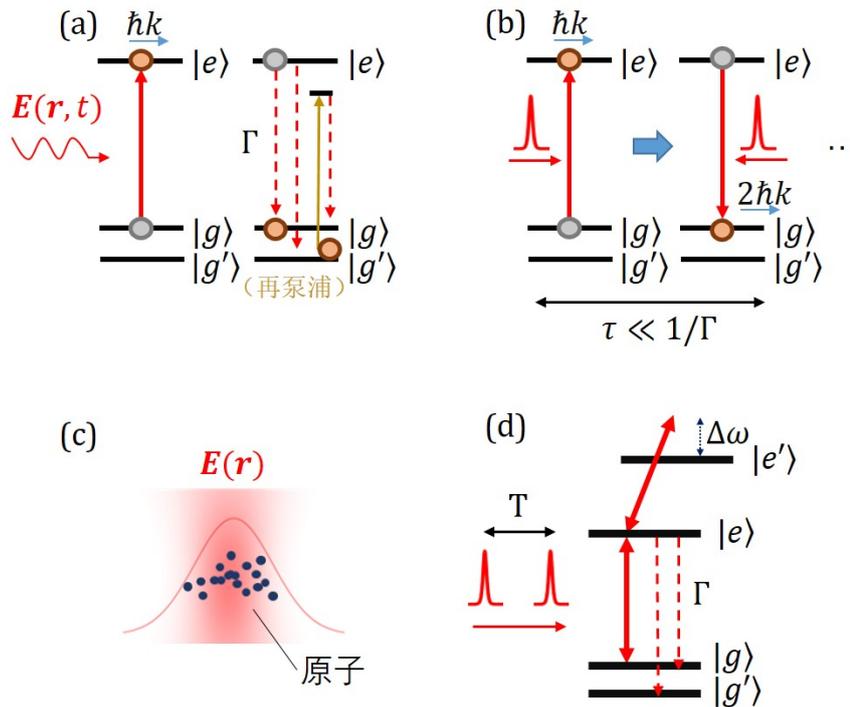


图 1.1 (a) 基于光吸收和自发辐射的光力形成过程示意图。(b) 基于双向“ π ”脉冲激发的二能级原子受激偶极力形成过程示意图。(c) 典型冷原子实验样品光强分布存在空间不均，因此简单“ π ”激发无法均匀实现，需要以组合脉冲的方法实现^[9-10] (详见正文讨论)。(d) 对于真实的多能级原子来说，光场的共振电偶极跃迁二能级调控同时受自发辐射和多能级耦合干扰，仅在 $1/\Delta\omega \ll \tau \ll 1/\Gamma$ 的时间尺度上可以被近似认为是孤立的二能级原子。即使如此，多能级耦合的扰动也可能在 Ramsey 方法等光谱方法中^[22] 产生系统误差，需要由多脉冲组合光谱技术加以抑制^[23-24] (详见正文讨论)。

突破上述自发辐射光力限制的一个重要方案是运用受激偶极光力^[25]。如图 1.1(b) 所示，此方案相继以 $\pm k$ 波矢的共振脉冲驱动二能级“ π ”布居翻转跃迁（见章节 2.2.1），原子在这一过程中，先吸收光子损失 $\hbar k$ ，而后受激辐射放出

光子获得 $-\hbar k$ 动量，总计动量变化为 $2\hbar k$ ，且该原子将回到原来的基态上。多次打入这样成对脉冲可在抑制自发辐射的同时实现多光子 ($2n\hbar k$) 动量传递。即使是 n 在 $2 \sim 3$ 的级别，也会对上述原子激光冷却效率的提高及分子再泵浦需求的降低提供关键支持。

然而图 1.1(b) 的受激光力方案对原子态调控提出了一个极高要求：每个脉冲驱动的二能级布居反转必须精确才能保证光偶极力的定向累加。由于激光束大小的限制，宏观原子样品在激光场中感受到的光强必然分布不均（图 1.1(c)），在章节 2.2 中我们会更加直观地发现，这种光强误差导致的二能级操控误差会导致原子态布居远离预期，因此会破坏光力的方向性，降低光学加速效率，并对原子样品形成不必要的加热。事实上，自上个世纪末此类方案提出^[26]以来，实验进展较少^[27-30]。在分子冷却方面，美国加州大学的 Campbell 组于 2014 年理论论证了啁啾脉冲的分子减速和冷却^[31]，尚没有实验跟进。

在本章第 1.1.3 节我们将介绍，克服上述光强展宽的一个潜在和重要的方法，是多年来从磁共振微波调控领域发展出来的组合脉冲方案^[9-10]。该方案的另一个重要特点，是可以较容易的和锁模脉冲激光技术结合^[11]。

· 新型原子光谱及光偶极调控发展技术需求

上述激光冷却相关技术中受激偶极光力的实现依赖于二能级原子的高精度布居翻转。而从内态变化的角度来看，对 $|g\rangle - |e\rangle$ 能级的高保真 SU(2) 操控即是对原子的共振电偶极 $\langle d \rangle = \rho_{ge} d_{eg}$ 的强度和相位的任意操控 (d_{eg} 为电偶极跃迁矩阵元)。由于共振偶极矩决定了原子的光吸收和辐射性质，因此，对光偶极的任意操控在量子光学^[32] 和原子光谱^[3] 等领域可能会有重要的创新应用^[2,5,23-24,29-30,33-34]。以下仅以一种新型原子光谱技术的可能发展加以说明。

我们考虑对如图 1.1(d) 中的 $|g\rangle - |e\rangle$ 跃迁频率测量，最常见的线性光谱方法依赖于弱激发极限下的原子响应^[2]。而和光强相关的光学频移等效应可以通过将测量结果外推到零光强，获得修正。显而易见的是，由于必须维持强光学跃迁的弱激发，此类线性光谱方法必然效率较低。为提高激发效率，我们可以借鉴窄线宽跃迁光谱技术^[22,35] 中的分离振荡场 Ramsey 方法，对强光学跃迁相继实现 $\pi/2$ 脉冲激发，高效提取光谱信号。

然而不同于磁共振，电子运动态存在大量分立能级。用光场驱动特定强光学跃迁的同时，必然会同时驱动其他跃迁。为避免多能级耦合甚至连续态耦合的复杂性，并同时保证 Ramsey 方法中“ $\pi/2$ ”脉冲激发过程中的自发辐射可以忽略不计，需要脉冲时长 $1/\Delta\omega \ll \tau \ll 1/\Gamma$ 。此外，和图 1.1(c) 讨论类似，这样的“ $\pi/2$ ”原子态操控需要对原子样品不同位置光强误差容错。在本章第 1.1.3 节我们将介绍，组合脉冲方案可以克服上述光强展宽，实现精确的二能级“ $\pi/2$ ”操控。甚至结合“超级 Ramsey”等多脉冲技术^[23-24]，可以精确抵消多能级耦合造成的光谱移动。

1.1.2 光学电偶极跃迁操控技术的当前局限

需要强调的是，对光学波段电偶极跃迁的调控是非线性光学研究的核心内容^[36]。自上个世纪 80 年代以来，超快激光技术和超快物态调控技术、非线性光谱技术发展相辅相成。在原子光谱方面，多维相干光谱技术^[37-38]以多脉冲激发测量原子体系的时域和频域非线性响应，而基于精密光梳的光谱测量技术^[39-41]被用于实现极限精度的原子和分子光谱测量。然而此类非线性光学和光谱学均以光场对原子基态的微扰^[36]为出发点，且在超快时间尺度上，光学非线性响应系数常来源于超越图 1.1(d) 的多能级贡献。另一方面，当光场的电场强度可以和原子内部的电场强度比拟时，微扰图像失效，在强场物理和阿秒激光技术领域^[42-43]，原子中的电子甚至会被光场剥离。这些技术为各类光与物质相互作用的研究起到了巨大的推动作用。然而我们也注意到，无论是微扰或是强场操控，均没有对原子态操控振幅本身的高精度需求。事实上，超快激光对应的能谱展宽较大（10 THz 级），如图 1.1(d) 的多能级干扰难以被精确抑制，不利于实现接下来将要介绍的组合脉冲二能级操控。

最后，超快光学中的一个精确原子态调控案例，是基于超快啁啾脉冲的绝热布居转移^[44-46]。然而百飞秒级电偶极操控对光场强度的要求较大，相应脉冲放大技术比较复杂，且超快布居转移有一定概率会导致原子的光电离^[47-48]，难以在多次操控^[49]下保持高效。

1.1.3 NMR 的启示：基于组合脉冲的容错调控

如图 1.1(c)(d)，在实际原子的准二能级调控中，对控制场强的非均匀展宽及多能级耦合误差的消除技术是一类“容错”量子调控技术。其中组合脉冲方案 (Composite Pulse)^[51-52]是抑制各类调控误差的一个重要方案。该方案起源于核磁共振 (Nuclear Magnetic Resonance, NMR) 研究领域^[53]。我们以图 1.2 中的四脉冲“BB1”“ $\pi/2$ ”组合脉冲为例，简单介绍该方案对外场强度误差的容错机理。该组合脉冲使用特定强度比例及相对相位的控制脉冲组合，代替简单的单脉冲“ $\pi/2$ ”操作（见章节 2.2），通过驱动自旋体系态矢量沿非平庸优化路径进行大角度高速转动，补偿强度误差，将不同强度驱动下的量子态演化聚焦到目标叠加态上^[9,50,54-57]，实现场强容错的 $|g\rangle \rightarrow |O\rangle$ 状态操作。更加一般的， N 脉冲组合可以通过调节相对强度 $\{A_i\}$ 、相对相位 $\{\varphi_i\}$ 优化联合操作效果对各类误差的容错性，获得近完美操控。

除磁共振领域外^[58]，上述组合脉冲方法在超导量子技术^[59]，离子阱量子信息处理^[60-61]，原子干涉测量^[62-63]等前沿量子技术中被广泛应用于实现精确和容错的量子态操控。类似思想甚至被用于在光学领域实现精密偏振控制及光学隔离^[64]，以及实现高效的声光^[65]、电光^[66]调制。需要注意的是，除光学案例外，上述组合脉冲技术应用均针对量子体系“亚稳态”操作，脉冲时间常在微秒以上。

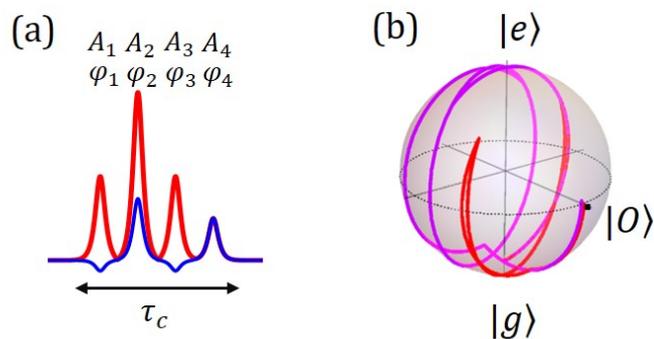


图 1.2 基于组合脉冲的二能级调控。(a) 组合脉冲波形示意图（以一种 $N=4$ 组合脉冲为例（该脉冲序列被称为 **BB1** 组合），脉冲参数 $\{A_i, \varphi_i\}$ 设置参考文献^[50]）。其中红线表示脉冲的电场强度，蓝线表示电场的实部分量。(b) 二能级体系量子态演化的布洛赫球表示（见章节2.2.1）。初态 $|g\rangle$ 的态矢量在“南极”，红色和紫色曲线演示了在驱动场强度偏差高达 -30% 及 $+30\%$ 时态矢量演化路径。可以看到，两者在图 (a) 组合脉冲驱动下均从“南极”抵达目标态“O”点。详见章节2.2.4介绍。

这些成功应用启发我们：是否可以将 **NMR** 组合脉冲技术用于光学波段，在皮秒时间尺度实现对电偶极跃迁的高保真度容错控制？

1.1.4 皮秒组合脉冲容错调控

以上我们介绍了源于 **NMR** 微波操控的组合脉冲容错调控方案。不同于核自旋，强光学跃迁对应的电子轨道运动是多能级系统。此外，原子激发态和真空场的相互作用还导致自发辐射，因此，强光学跃迁上的原子运动并非孤立体系，本质上无法被完美操控。幸运的是，自由原子强光学跃迁具有极高的“**Q**”值，即光学频率 ω_{eg} 远大于自发辐射率 Γ ($Q = \omega_{eg}/\Gamma$ 常在 10^8 量级)。而由于原子电场高度非简谐，不同跃迁的本征频率 ω_{eg} 的差别 $\Delta\omega$ 也常在 ω_{eg} 自身的大小，这样的非均匀分立能级结构为我们在光学跃迁上对如图 1.1(d) 的 $|g\rangle - |e\rangle$ 二能级系统实现准二能级操作提供了可能。相应组合脉冲容错调控方案的基本技术要求可总结为：

1. 光脉冲序列总时长须远小于原子激发态寿命，即 $\tau_c \ll 1/\Gamma$ 。
2. 脉冲序列频谱展宽须远小于原子多能级频谱间隔差，以驱动特定强光学跃迁调控。对应到时域则需满足 $\tau_c \gg 1/\Delta\omega$ （图 1.1(d)）。
3. 组合脉冲的子脉冲间相对强度和相位稳定、可精确编程调节。

4. 光脉冲序列需要有足够的能量，可以在样品体积内产生足够光强，多次驱动跃迁布居翻转。

对于本工作关心的碱金属原子来说，外层电子运动本身的时间尺度在飞秒量级，自发辐射在纳秒量级。因此，皮秒时间尺度自然成为强光学跃迁二能级调控的最佳时间尺度。在这一时间尺度上的光脉冲任意调制技术正处于当前激光技术的空白（参见第3.2介绍）。填补这一激光技术空白，以皮秒组合脉冲实现光学电偶极的高保真操控，正是本论文工作所面临的机遇与挑战。

1.2 本论文工作研究内容及成果

本文工作旨在将组合脉冲技术引入至原子电偶极跃迁调控，在皮秒时间尺度上相干驱动强光学跃迁，实现高保真度的原子态操控。

本论文工作及相应成果总结如下：

1. 发展新型可编程锁模皮秒光脉冲序列生成方案，部分填补皮秒-纳秒时间尺度光学任意波形调制技术空白。我们发明了一种基于“倒空间-时间”直接转换的脉冲整形方法，可对 N 个子脉冲实现延时、振幅及相位的任意编程调节。系统输出具有高度波形稳定性，可生成获得 $N = 5$ ，峰值功率近 10W 的组合脉冲序列。结合一系列声光调制技术创新，该工作为强光学跃迁的组合脉冲容错高保真操控给出了激光技术难题的解决办法。

2. 开展新型皮秒组合脉冲冷原子光谱研究。得益于皮秒组合脉冲生成系统输出波形的长时间高度稳定特性，我们发现了一类原子光谱响应分辨率远超组合脉冲自身频谱分辨的“超分辨”原子光谱结构。结合数值模拟，成功揭示此类超分辨现象背后的基态超精细布居转移机制。

3. 发展基于低功率皮秒组合脉冲的纳米光纤界面高保真原子态调控技术。纳米光纤是一种新型光-原子相互作用界面，以波导限制光场高效实现近场光-原子的消逝耦合。本工作以导波皮秒组合脉冲控制近场原子，大幅降低了光学电偶极操控对皮秒脉冲的功率需求。我们利用毫瓦级 $N = 3$ 皮秒组合脉冲驱动消逝场内 ^{85}Rb 原子 D1 布居均匀翻转，使得 D2 线探测脉冲瞬态吸获得高达 70% 的增强。这一效率经建模对比，已经接近理论容错极限。

在理论方面，从第一原理出发，建立纳米光纤-冷/热原子体系的光学调控和测量理论建模，发展纳米光纤界面全能级光-原子相互作用数值模拟方案。从数值上证实了皮秒组合脉冲方案可获得高达 $f=99\%$ 以上的消逝近场局部原子态调控精度。

该系列进展支持我们下一步以更复杂组合脉冲（更大 N ）在纳米光学体系对囚禁于近场的冷原子的光偶极自旋进行近完美操控。由于纳米光纤可提供近场原子间基于导波光子交换的“无限长”相互作用，本进展为下一步在纳米光纤-冷原子界面开展新型原子光谱和非线性量子光学前沿研究打下基础。

4. 发展基于编程优化的皮秒组合脉冲冷原子样品容错调控技术。利用技术升级后的皮秒组合脉冲生成系统,我们在实验上实现了对冷原子样品的容错偶极加速。该进展中运用的 $N = 5$ 组合脉冲参数空间“巨大”,参数优化无法由扫描遍历的方法展开。得益于皮秒脉冲序列生成系统稳定性,我们设计了基于贝叶斯优化算法的反馈闭环实验,以自动优化高效实现原子样品容错布居翻转,在驱动光强变化 $\pm 50\%$ 内均获得 90% 以上的加速效果(此结果在 1 小时优化时间内自动获得。预期在更加稳定系统中给与更长优化时间,或者通过更加精确的皮秒组合波形建模,该效率可提高至 99% 级)。本工作进展的简单改进可直接用于实现冷原子物质波的相干加速及电偶极集体辐射的相干操控。同时需要注意的是,超越布居翻转,本工作的 $N = 5$ 皮秒组合脉冲序列可拓展为强光学跃迁 $SU(2)$ 任意量子门操控,因此可支持基于高精度原子电偶极任意操控的新型原子物理和量子光学技术。

1.3 本文的结构安排

本论文由六章组成:

第一章(本章)是本文的引言部分。该章强调了光学电偶极高保真操控的需求及挑战,并给出了本论文的主要研究目标及本文研究内容的概括。

第二章是本论文的理论部分。这一章将首先介绍光与原子相互作用的二能级理论并进一步介绍组合脉冲方案的容错特性。之后,该章也将具体讨论在皮秒时间尺度下,将实际多能级体系准二能级化的合理性。最后,该章会介绍其余与实验相关的理论推导。

第三章将介绍本文发展的新型可编程皮秒任意光脉冲序列生成系统,其中包括初步实现任意高精度脉冲序列生成的“第一代”系统,以及经大量技术升级后输出功率大幅提升的“第二代”系统。最后该章还会介绍对皮秒脉冲序列的特性测量实验,其中在冷原子俘获损失光谱的测量中,还会介绍脉冲序列对光谱的“超分辨”现象。

第四章是皮秒组合光脉冲对电偶极容错布居翻转的首次实现,该实验基于纳米光纤-热原子蒸汽界面。该章将具体介绍纳米光纤界面的特性,并阐述在这一前沿界面实现高保真电偶极操控的必要性。在实验上,该章将对比简单的单脉冲以及 $N = 3$ 组合脉冲调控的布居翻转效率,验证皮秒组合脉冲的容错效果。而在理论上,该章还将介绍第一原理出发的数值建模方案。

第五章是本文皮秒组合脉冲在冷原子电偶极容错调控中的应用。该章将介绍基于优化算法的反馈闭环冷原子偶极加速实验设计,并展示 $N = 5$ 组合脉冲的容错加速效果。

第六章为本论文的总结与展望部分。该章将对本文工作及成果做出总结,同时提出未来的研究及应用方向。

第二章 理论基础

2.1 本章概述

在本章中，我们将介绍光与原子电偶极相互作用的基本理论，并进一步论述组合脉冲方案在这一领域中应用的优势及可行性。我们也会结合后续实验需求，介绍更加一般的光和原子相互作用理论。

本章的内容总结如下：

我们将首先从最简单的二能级原子模型出发，在章节2.2.1中介绍光与原子相互作用的布洛赫球模型。该模型将在2.2.2节中被用于说明光场对原子态调控的主要误差来源，并在2.2.3节用于介绍绝热脉冲方案。在章节2.2.4中，我们将总体介绍二能级原子的组合脉冲调控方案，并讨论其参数容错性的几何调控来源。在章节2.3中，我们将解释将真实的多能级原子约化为二能级原子的时间尺度。包括避免飞秒时间尺度的多能级耦合及纳秒时间的自发辐射。其中我们将具体讨论组合脉冲应用于光强及偏振非均匀分布的光场中对塞曼子能级原子态的调控能力。最后，在章节2.4，我们将自发辐射引入光和原子相互作用，介绍主方程和随机波函数方法，光力，及原子对光场的反作用（光吸收）。为这些方法和概念在后续实验结果分析中的应用作出铺垫。

2.2 近共振光驱动下的二能级原子

2.2.1 二能级原子态操控及布洛赫球模型

· 二能级相互作用模型

我们考虑光场驱动的二能级原子，并忽略自发辐射。设原子基态 $|g\rangle$ 和激发态 $|e\rangle$ 之间能量差为 $\hbar\omega_{eg}$ 。光和原子电偶极相互作用哈密顿量（Hamiltonian）可以表示为：

$$\begin{aligned}\hat{H} &= \hat{H}_0 + \hat{H}' \\ &= \hbar\omega_{eg}|e\rangle\langle e| + 0|g\rangle\langle g| - \hat{\mathbf{d}} \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r}, t).\end{aligned}\tag{2.1}$$

在二能级空间，电偶极矩 $\hat{\mathbf{d}}$ 可进一步展开为 $\hat{\mathbf{d}} = \mathbf{d}_{eg}|e\rangle\langle g| + \mathbf{d}_{ge}|g\rangle\langle e|$ ，其中 $\mathbf{d}_{eg} = \langle e|\hat{\mathbf{d}}|g\rangle$ 。

我们考虑波矢 \mathbf{k} 、圆频率 ω 、振动相位 φ 的光场，其电场分量可以表达为

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{2}(\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)e^{-i(\omega t - \mathbf{k} \cdot \mathbf{r} + \varphi)} + \mathbf{E}^*(\mathbf{r}, t)e^{i(\omega t - \mathbf{k} \cdot \mathbf{r} + \varphi)}).\tag{2.2}$$

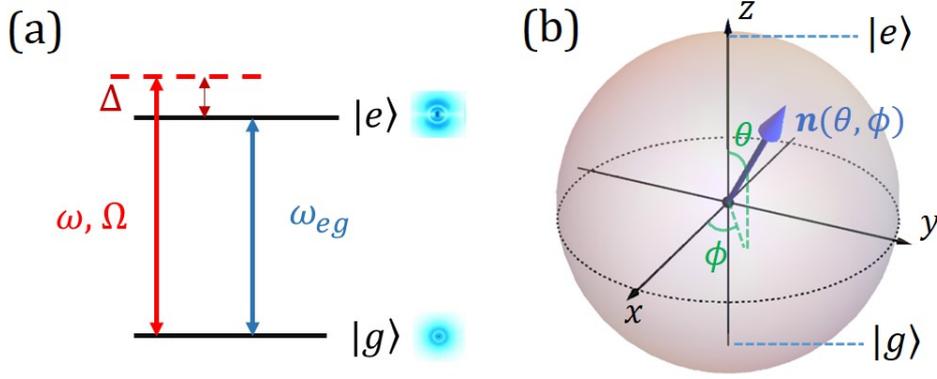


图 2.1 (a) 二能级原子与外部电场相互作用示意图。激发态 $|e\rangle$ 与基态 $|g\rangle$ 能量差为 $\hbar\omega_{eg}$ 。频率为 ω 的外部电场与原子能级频率的失谐为 $\Delta = \omega - \omega_{eg}$ ，对应拉比频率为 Ω ，忽略激发态自发辐射。(b) 二能级系统的布洛赫球模型表示，详见正文。

其中， $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$ 为慢变振幅，满足 $|\partial_t \mathbf{E}(\mathbf{r}, t)| \ll \omega |\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)|$ ， $|\nabla \mathbf{E}(\mathbf{r}, t)| \ll k |\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)|$ 。考虑位于 \mathbf{r} 的静止原子，式 (2.1) 可写为

$$\hat{H} = \hbar\omega_{eg}|e\rangle\langle e| - \frac{\hbar}{2}[(\Omega(t)e^{-i\omega t} + \Omega^*(t)e^{i\omega t})|e\rangle\langle g| + h.c.] \quad (2.3)$$

其中定义拉比 (Rabi) 频率 $\Omega(t) \equiv \mathbf{d}_{eg} \cdot \mathbf{E}(t)e^{-i(\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} + \varphi)}/\hbar$ 。

· 旋转波变换和旋转波近似

该二能级原子的波函数 $|\psi\rangle = c_e|e\rangle + c_g|g\rangle$ 演化满足薛定谔方程

$$i\hbar \frac{d}{dt}|\psi(t)\rangle = \hat{H}|\psi(t)\rangle. \quad (2.4)$$

由于式 (2.3) 含时，直接带入薛定谔方程计算常常并不方便。我们做旋转波变换： $\{|\tilde{e}\rangle, |\tilde{g}\rangle\} \rightarrow \{e^{-i\omega_{eg}t}|e\rangle, |g\rangle\}$ （在后文中，为记号简洁性，我们均直接使用 $\{|e\rangle, |g\rangle\}$ 代表变换后的基矢）。式 (2.4) 相应改写为（仍用 \hat{H} 表示）

$$\hat{H} = -\hbar\Delta|e\rangle\langle e| - \frac{\hbar}{2}[(\Omega(t) + \Omega^*(t)e^{2i\omega t})|e\rangle\langle g| + h.c.], \quad (2.5)$$

其中 $\Delta \equiv \omega - \omega_{eg}$ 定义为光场频率相对于原子跃迁的失谐量。

旋转波近似是指忽略上述哈密顿量中的高频项 ($\Omega^*(t)e^{2i\omega t}$ 及其共轭项), 其物理基础是该高频振荡项对于波函数演化的影响, 在我们关心的时间尺度上 ($\Delta t \gg 1/\omega_{eg}$) 趋于平均抵消。因此, 式 (2.5) 可以简化为不含时哈密顿量

$$\hat{H} = -\hbar\Delta|e\rangle\langle e| - \left(\frac{\hbar}{2}\Omega(t)|e\rangle\langle g| + h.c.\right). \quad (2.6)$$

这个哈密顿量和磁共振 (NMR) 领域著名的自旋进动哈密顿量完全相同。和 NMR 的磁场调控类似, 我们可以通过改变光场的强度和相位, 进而改变复拉比频率 Ω 及失谐量 Δ , 实现二能级原子态的操控。

· 拉比振荡

拉比振荡是一个最简单且重要的二能级动力学现象。我们考察恒定光场 ($\Omega, \Delta = \text{const.}$) 下式 (2.4) 的演化:

$$\begin{aligned} i\dot{c}_e(t) &= -\Delta c_e(t) - \frac{\Omega}{2}c_g, \\ i\dot{c}_g(t) &= -\frac{\Omega^*}{2}c_e. \end{aligned} \quad (2.7)$$

设原子初态 $|c_g(t=0)|^2 = 1$, 可得

$$\begin{aligned} c_e(t) &= \left[i\frac{\Omega}{\tilde{\Omega}}\sin\left(\frac{\tilde{\Omega}t}{2}\right)\right]e^{i\Delta t/2}, \\ c_g(t) &= \left[\cos\left(\frac{\tilde{\Omega}t}{2}\right) - i\frac{\Delta}{\tilde{\Omega}}\sin\left(\frac{\tilde{\Omega}t}{2}\right)\right]e^{i\Delta t/2}. \end{aligned} \quad (2.8)$$

可见, 二能级原子的布居 $\rho_{ee} = |c_e|^2, \rho_{gg} = |c_g|^2$ 产生含时振荡, 周期为广义拉比频率, 定义为:

$$\tilde{\Omega} \equiv \sqrt{\Omega^2 + \Delta^2}. \quad (2.9)$$

特别的, 当失谐 $\Delta = 0$ 时, 我们有

$$\begin{aligned} c_e(t) &= i\sin\left(\frac{\Omega t}{2}\right), \\ c_g(t) &= \cos\left(\frac{\Omega t}{2}\right). \end{aligned} \quad (2.10)$$

在图 2.2 中, 我们绘制了此单模光场与二能级原子作用下的布居振荡。若考虑弱激发情况 ($|\Omega t| \ll \pi$), ρ_{ee} 的平均值可被近似为:

$$\rho_{ee}(t) = |c_e(t)|^2 \approx \frac{(\Omega t)^2}{4}. \quad (2.11)$$

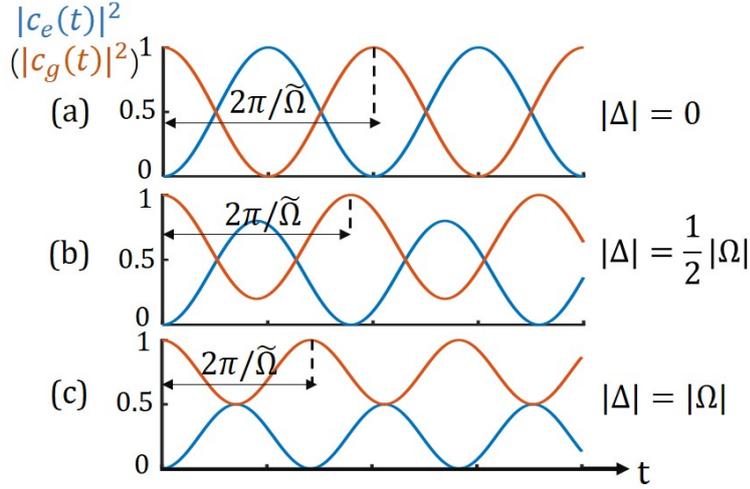


图 2.2 二能级原子拉比振荡示意图，其中 (a)(b)(c) 分别对应失谐量 $|\Delta| = 0, 1/2 |\Omega|, |\Omega|$ 的情况。

· 布洛赫球模型

布洛赫球模型是二能级系统演化的一个重要直观模型。为引入该模型，我们将二能级波函数参数化为

$$|\psi(t)\rangle = \cos\left(\frac{\theta}{2}\right)|e\rangle + \sin\left(\frac{\theta}{2}\right)e^{i\phi}|g\rangle. \quad (2.12)$$

其中 $\theta \in (0, \pi)$, $\phi \in (0, 2\pi)$ 。可以看出，去除不重要的整体相位，参数 $\{\theta, \phi\}$ 完全决定波函数 $|\psi\rangle$ ，而单位球面上的方向矢量 $\mathbf{n} = \{\sin\theta\cos\phi, \sin\theta\sin\phi, \cos\theta\}$ 形成和二能级原子任意量子态的一一对应，如图 2.1(b) 中所示，我们将之称为态矢量。单位球面被称为布洛赫球。

为更加直观的布洛赫球上表示外场作用下态矢量演化，我们可对式 (2.6) 做变换，

$$\hat{H} = -\frac{\hbar}{2}\Delta(|e\rangle\langle e| - |g\rangle\langle g|) - \left(\frac{\hbar}{2}\Omega(t)|e\rangle\langle g| + h.c.\right). \quad (2.13)$$

定义拉比矢量 $\boldsymbol{\Omega}(t) = \{\text{Re}(\Omega(t)), \text{Im}(\Omega^*(t)), -\Delta\}$, $\boldsymbol{\sigma} = \{\sigma_x, \sigma_y, \sigma_z\}$ ($\sigma_x, \sigma_y, \sigma_z$ 为泡利矩阵)，则可将上式表示为

$$\hat{H} = \frac{\hbar}{2}\boldsymbol{\Omega}(t) \cdot \boldsymbol{\sigma}. \quad (2.14)$$

引入态密度矩阵

$$\hat{\rho}(t) = |\psi(t)\rangle\langle\psi(t)|, \quad (2.15)$$

该厄米矩阵一定可以分解为:

$$\hat{\rho}(t) = \frac{1}{2}(\mathbf{I} + \mathbf{n} \cdot \boldsymbol{\sigma}). \quad (2.16)$$

带入薛定谔方程, 可得:

$$\dot{\mathbf{n}}(t) = \boldsymbol{\Omega}(t) \times \mathbf{n}(t). \quad (2.17)$$

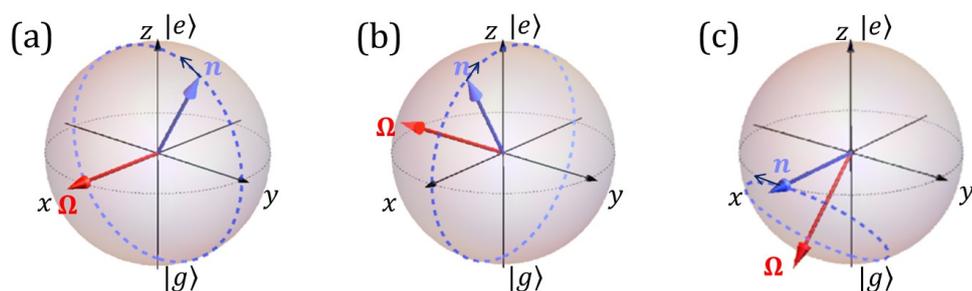


图 2.3 几种典型情况下, 二能级波函数演化过程在布洛赫球上的表示。在图 (a)(b) 中, 失谐量 $\Delta = 0$, 且外电场相位 $\varphi_a - \varphi_b = \pi/2$; 在图 (c) 中, 失谐量 $\Delta = \Omega$ 。图中, 红色箭头代表拉比矢量 $\boldsymbol{\Omega}$, 蓝色箭头代表态矢量 \mathbf{n} , 蓝色虚线为态矢量演化路径。

由式 (2.17), 我们在图 2.3 布洛赫球面上绘制上述拉比振荡的演化过程。其中 (a)(b) 中的路径 (蓝色虚线) 对应图 2.2(a), (c) 中的路径对应图 2.2(c)。显然, 对于 $\Delta = 0$ 的共振情况, 二能级系统量子态的演化路径与 $\boldsymbol{\Omega}(t)$ 的具体形式无关, 态矢量的转动角度仅由“脉冲面积”

$$\mathcal{A} = \int \Omega(t) dt \quad (2.18)$$

决定。

对于初态为 $|g\rangle$ 的量子态来说, 经历 \mathcal{A} -脉冲的激发效率 $\rho_{ee}(t) = |c_e(t)|^2 = \sin^2(\frac{\mathcal{A}}{2})$ 。因此, $\mathcal{A} = \pi$ 的脉冲可驱动原子布居翻转, 我们称之为“ π ”脉冲。

2.2.2 布居翻转的 \mathcal{A} 非均匀展宽误差

我们考虑共振 $\Delta = 0$ 情况下 \mathcal{A} -脉冲驱动的原子的跃迁概率 $\rho_{ee} = \sin^2(\mathcal{A}/2)$ 。当 $\mathcal{A} = \pi$ 时发生完美布居翻转。然而这种完美翻转对脉冲面积的变化很敏感。当

$\mathcal{A} = (1 + \epsilon)\pi$ 时，我们有：

$$\rho_{ee} = 1 - \pi^2 \epsilon^2 / 4 + \mathcal{O}(\epsilon^4). \quad (2.19)$$

注意到对于光场来说，这种脉冲面积 \mathcal{A} 误差是难以避免的。例如实验中常用透镜实现高斯光束聚焦实现光强 $I = \frac{1}{2}\epsilon|\mathbf{E}|^2 c$ 的增强，相应焦点附近的光强起伏会很大。对于超出光斑大小的原子样品来说，不同位置处的原子将会被不同强度电场驱动调制。在图 2.4 示例中，我们考察 $\Delta = 0$ 脉冲对基态 $|g\rangle$ 原子样品的调控。对于图 (a) 中光强满足高斯分布的光束，如果光强被优化到驱动特定位置 B 处原子实现 $\mathcal{A} = \pi$ 翻转（图 (b)），则光强更小（更大）的 A（C）位置原子布居翻转会产生式 (2.19) 类型的控制误差。对于整个原子样品而言，调控平均保真度（定义见下一章）就会下降。

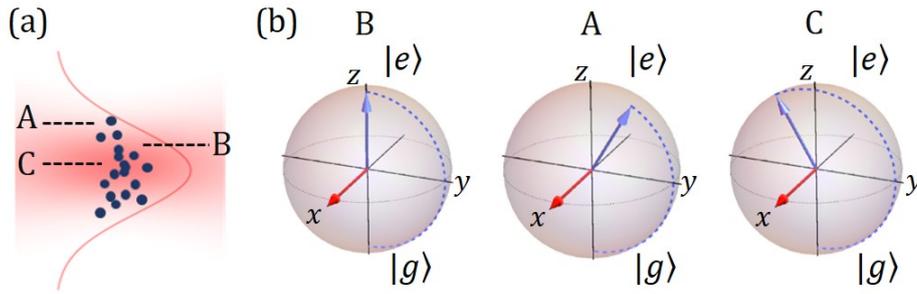


图 2.4 单脉冲高斯光场对大尺度原子样品的调控。(a) 高斯光场中的原子样品示意图，原子样品尺寸大于高斯光束束腰直径 ($D > 2w$)。 (b) 对应于 (a) 中光场中各位置原子的布洛赫球调控模型（以目标 $\mathcal{A} = \pi$ 为例），其中箭头标记与图 2.3 中一致。

上述聚焦光场内原子态布居翻转案例可以推广到更加一般的情况。事实上，对于宏观原子样品 ($D \gg \lambda$) 来说，即使不是聚焦激光，一般光场也很难做到光强绝对均匀。因此 \mathcal{A} 误差总会存在，并在高保真度要求的操控实验中，特别是需要进行多次操控的实验中^[28,67] 体现出来。

事实上，此类脉冲调控误差并不仅仅来源于光场的强度误差，而脉冲具体波形、频率偏差等都有可能影响调控的保真度。因此，在高保真原子态调控类科研中，我们期望寻求一种对各类参数误差均可以容错的量子调控方案。

2.2.3 啁啾脉冲绝热容错方案

上述原子态调控中的脉冲面积 \mathcal{A} 误差常来源于光强不均，而失谐量 Δ 的误差可来源于激光频率偏差或者原子运动造成的多普勒效应。一类可克服此类误差的容错操控著名案例是绝热布居转移技术^[44-46]，以下予以介绍。

我们不妨先回顾章节 2.2.1 中介绍的恒定光场下 ($\Omega, \Delta = \text{const.}$) 的二能级原子。其中拉比振荡也可以从“缀饰”态来考虑。该“缀饰”态即式 (2.6) 哈密顿量的本征态，满足 $H|\psi_{\pm}\rangle = \hbar v_{d\pm}|\psi_{\pm}\rangle$ ，有

$$\begin{aligned} |\psi_{+}\rangle &= \cos(\theta_d)e^{i\varphi}|e\rangle + \sin(\theta_d)|g\rangle, \\ |\psi_{-}\rangle &= -\sin(\theta_d)e^{i\varphi}|e\rangle + \cos(\theta_d)|g\rangle. \end{aligned} \quad (2.20)$$

其中，混合角 (θ_d) 满足 $\tan(2\theta_d) = |\Omega|/\Delta$ 。系统波函数也可由此表示为

$$|\psi(t)\rangle = c_1(t)e^{i\gamma_{d+}(t)}|\psi_{+}\rangle + c_2(t)e^{i\gamma_{d-}(t)}|\psi_{-}\rangle. \quad (2.21)$$

从而拉比振荡实际是两个缀饰态之间的相位变化。这里，动态相位

$$\gamma_{d\pm} = -\frac{1}{\hbar} \int_0^t dt' \langle \psi_{\pm}(t') | \hat{H}(t') | \psi_{\pm}(t') \rangle \quad (2.22)$$

即是哈密顿量本征态的相位差积累。

对于含时变化的哈密顿量 $\hat{H}(t)$ ，我们将式 (2.21) 代入薛定谔方程可以得到：

$$\begin{aligned} \dot{c}_{1,2}(t) &= -c_{1,2} \langle \psi_{\pm} | \dot{\psi}_{\pm} \rangle - c_{2,1} \frac{\langle \psi_{\pm}(t) | \dot{\hat{H}} | \psi_{\pm}(t) \rangle}{\hbar(v_{d\mp} - v_{d\pm})} e^{i(\gamma_{d\pm} - \gamma_{d\mp})} \\ &\approx -c_{1,2} \langle \psi_{\pm} | \dot{\psi}_{\pm} \rangle \end{aligned} \quad (2.23)$$

上式中，当哈密顿量变化足够缓慢，而缀饰态能量差 $\hbar(v_{d+} - v_{d-})$ 又足够大时，我们可以忽略等号后的第二项，得到

$$c_{1,2}(t) = c_{1,2}(0)e^{i\gamma_{g1,2}}. \quad (2.24)$$

其中几何相位^[68]：

$$\gamma_{g1,2} = i \int_0^t dt' \langle \psi_{\pm}(t') | \dot{\psi}_{\pm}(t') \rangle \quad (2.25)$$

是纯实数。而上述对缀饰态间跃迁的忽略，正是量子绝热定律^[69]的体现。

我们可以设计哈密顿量，使基态 $|g\rangle$ 在 $t = 0$ 时刻和缀饰基态 $|\psi_{-}\rangle$ 重合，并缓慢改变哈密顿量，使得原子态绝热跟随至激发态 $|e\rangle$ 。具体实验中，我们可将时长为 τ 的脉冲光场从远红失谐 ($-\Delta(0) \gg \Omega(0)$) 缓慢扫描到远蓝失谐光

($\Delta(\tau) \gg \Omega(\tau)$), 形成 $|g\rangle - |e\rangle$ 翻转。这样频率变化的光脉冲被称为啁啾脉冲, 布居转移方法被称为快速绝热转移。重要的是, 由于该布居转移过程仅要求量子态演化接近绝热, 因此对脉冲参数的缓慢变化 (或者误差) 都不敏感。这是绝热过程对光强 I 和失谐量 Δ 参数容错的物理根源。

注意到绝热近似需要调控缓变, 而理想的绝热过程需要无穷长的调控时间, 实际过程中无法达到。近年来, 量子调控的前沿发展的绝热捷径技术 (Shortcut to Adiabaticity)^[70] 正是针对此类困难发展的变通方案。通过对哈密顿量的设计, 能够在更快时间尺度上准绝热的高保真布居翻转^[27,71-72]。

此外, 上述啁啾脉冲操控仅针对原子布居翻转。以下我们将介绍, 原子态操控方法的集合是任意量子门 (quantum gate)^[10], 并不能由简单的啁啾脉冲来实现。

2.2.4 组合脉冲容错调控方案

上述啁啾脉冲的 (准) 绝热布居翻转技术, 实际上已经可以从本小节将要介绍的组合脉冲角度来理解: 我们可以将 $0 < t < \tau$ 的啁啾脉冲分解为 N 个子脉冲, 拉比频率和相位记为 $\{\Omega_i, \varphi_i\}$, 其中 $\varphi_i = i^2 \delta\varphi$, 而 $\delta\varphi = (\Delta(\tau) - \Delta(0))\tau/N^2$ 。可以证明, 这个“组合脉冲”对原子态的调控效果, 在 N 足够大时和绝热脉冲是一样的^[47,73-74]。

更加一般的, 我们可以将一个简单脉冲分解为 N 个 \mathcal{A} 脉冲, 并进一步调制各自脉冲面积, 赋予独立相位, 形成 $\{\mathcal{A}_i, \varphi_i\}$ 组合脉冲。一个奇妙的现象是, 这样的脉冲序列形成的联合量子操控可对包括光强和失谐量误差在内的各类哈密顿量参数误差容错。

以下我们首先形式化写出时长 τ_1 共振脉冲驱动的二能级系统演化。引入演化矩阵 $\hat{U}_1(\mathcal{A}_1, \varphi_1)$ 。我们定义

$$\hat{U}_1(\mathcal{A}_1, \varphi_1) = e^{-\frac{i}{\hbar} \int_0^{\tau_1} \hat{H}(t) dt}. \quad (2.26)$$

基于薛定谔方程 (2.4), 可以具体得到,

$$\hat{U}_1(\mathcal{A}_1, \varphi_1) = \begin{pmatrix} \cos(\mathcal{A}_1/2) & i\sin(\mathcal{A}_1/2)e^{i\varphi_1} \\ i\sin(\mathcal{A}_1/2)e^{-i\varphi_1} & \cos(\mathcal{A}_1/2) \end{pmatrix}, \quad (2.27)$$

而演化后的末态波函数满足 $|\psi(\tau_1)\rangle = \hat{U}_1(\mathcal{A}_1, \varphi_1)|\psi(0)\rangle$ 。

对于以 $\{\mathcal{A}_i, \varphi_i\}$ 标记的 N 脉冲时序 (假设脉冲形状相同), 总演化矩阵可由 $\hat{U}_i(\mathcal{A}_i, \varphi_i)$ 相乘而得:

$$\hat{U}^{(N)} = \mathcal{T} \prod_{i=1}^N \hat{U}_i(\mathcal{A}_i, \varphi_i). \quad (2.28)$$

上式中， \mathcal{T} 为连乘的时间排序算符。

我们考虑运用 $\hat{U}^{(N)}(\{\epsilon_j\})$ 组合脉冲，用于实现特定转动操作

$$\hat{U}_{\text{target}} = \begin{pmatrix} \cos(\Theta/2) & i\sin(\Theta/2)e^{i\Phi} \\ i\sin(\Theta/2)e^{-i\Phi} & \cos(\Theta/2) \end{pmatrix} \quad (2.29)$$

这儿误差参数 $\{\epsilon_j\}$ 描述来源于外场强度误差、频率误差、脉冲形状等导致的哈密顿量参数误差（即和理想值的偏离）。

· 组合脉冲容错布居翻转

接下来，我们首先考虑 \hat{U}_{target} 是布居翻转操作， $|(\hat{U}_{\text{target}})_{12}|^2 = 1$ ，由奇数 N 个 $\mathcal{A}_{0,i} = \pi$ 子脉冲实现（因为 $(2N+1)\pi$ 转动即 π 转动），而 $\hat{U}^{(N)}(\epsilon_a)$ 代表该组合脉冲中子脉冲的实际面积为 $\mathcal{A}_i = (1 + \epsilon_a)\pi$ 。以下我们以此类布居翻转对脉冲面积脉冲误差的容错优化为例，说明组合脉冲技术的核心思想。

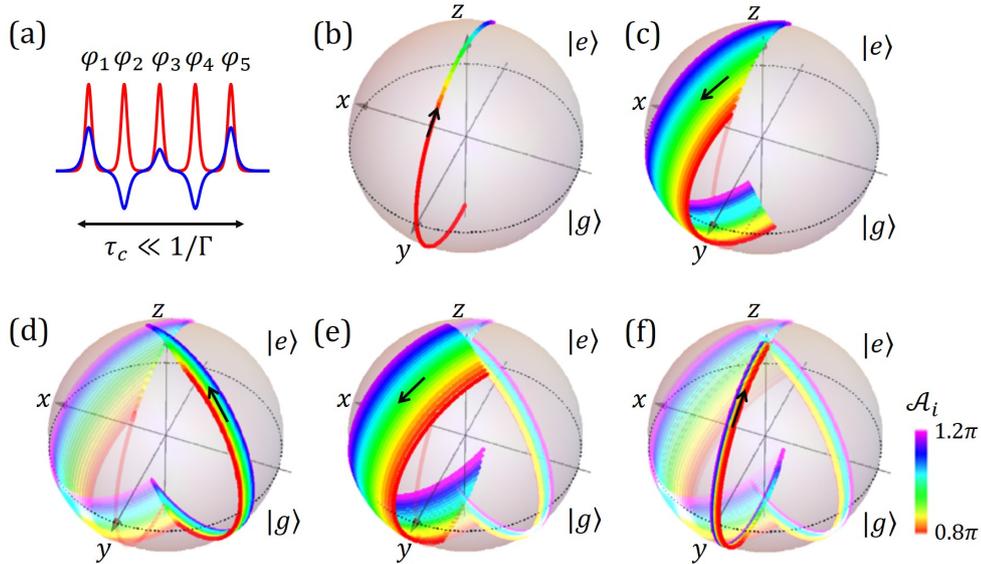


图 2.5 特定参数^[9]的 $N = 5$ 组合脉冲对态矢量的调制过程示意图，脉冲参数对应图 2.6(c)。图 (a) 为时域上 $N = 5$ 组合脉冲示意图，红线和蓝线分别表示光强及电场的实部，脉冲作用时长远小于退相干时间 ($\tau \ll 1/\Gamma$)。在图 (b)~(f) 中，我们分别绘制了原子量子态在第 i 个脉冲作用下的演化过程 ($\Delta = 0$)，其中颜色轴对应外场实际脉冲面积 $\mathcal{A}_i = 0.8\pi \sim 1.2\pi$ 。可以看到，不同外场面积 \mathcal{A}_i 调制下的原子量子态最终都在目标态 $|e\rangle$ 附近 ($f \sim 99.99\%$)。

考虑二能级原子处于特定初态 $|\psi(0)\rangle$ 。可定义

$$f \equiv |\langle \psi(0) | \hat{U}_{\text{target}}^\dagger \hat{U}^{(N)}(\epsilon_a) | \psi(0) \rangle|^2 \quad (2.30)$$

为该操作的“通道保真度”^[75]。具体到布居翻转， $|(U_{\text{target}})_{12}|^2 = 1$ ，该通道保真度即翻转效率

$$\begin{aligned} f &= |\langle g | \hat{U}_{\text{target}}^\dagger \hat{U}^{(N)}(\epsilon_a) | g \rangle|^2 \\ &= |U_{12}^{(N)}(\epsilon_a)|^2 \\ &= 1 - \sum_{k=1}^{\infty} a_k \epsilon_a^{2k}. \end{aligned} \quad (2.31)$$

在上式最后一行中，我们将组合脉冲的翻转误差以脉冲面积误差 ϵ_a 做泰勒展开，其中展开系数 $a_k(\{\varphi_i\})$ 是子脉冲相位的 N 元函数。在这个组合脉冲布居翻转案例中，可通过优化设计相位参数 $\{\varphi_i\}$ 来抑制脉冲面积误差 ϵ_a 带来的操控效果失真。基本思路包括消除低阶误差系数 a_k ^[9]，及在特定 ϵ_a 范围内对误差函数 $\sum_{k=1}^{\infty} a_k \epsilon_a^{2k}$ 最小化^[10]。

上述组合脉冲的脉冲面积误差容错技术可由图 2.5 中的布洛赫球模型直观描述。其中 $N = 5$ 组合脉冲对应于一类容错布居翻转组合脉冲解^[9]（图 2.6(c)）。可以看到，经不同脉冲面积 $\mathcal{A}_i = 0.8 \sim 1.2 \mathcal{A}_{0,i} = 0.8\pi \sim 1.2\pi$ 的 $N = 5$ 组合脉冲调制后的态矢量最终都集中于激发态 $|e\rangle$ 附近（如图 (f) 所示），对比单脉冲误差调制（如图 (b) 所示）有极大提升。

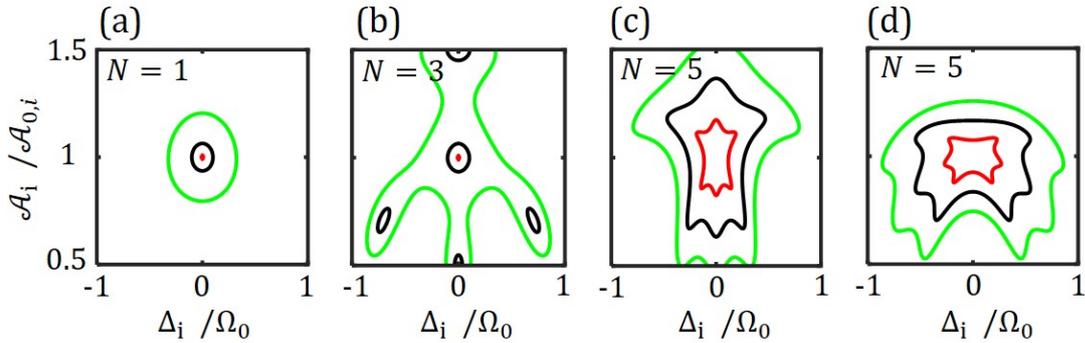


图 2.6 特定相位组合下， N 脉冲序列在实际脉冲面积 \mathcal{A}_i 及失谐 Δ_i 下调控保真度（也即翻转效率） f 的数值模拟（脉冲面积由完美操控下的脉冲面积 $\mathcal{A}_{0,i}$ 归一化；失谐拉比频率 Ω_0 归一化，其中 Ω_0 定义为 $\Omega_0 \tau = \pi$ ）。图中等高线分别表示误差级别 $m = \log_{10}(|1 - f|) = -1$ （绿线）， -2 （黑线）， -4 （红线）。参考文献^[9]中的组合脉冲参数，此时 $\mathcal{A}_{0,i} = \pi$ ；(a) $N = 1$ 单脉冲调制。(b) $N = 3$ 组合脉冲调制，脉冲相位分别为 $\varphi_i = (0, 1/2, 0)\pi$ 。(c)(d) $N = 5$ 组合脉冲调制，脉冲相位分别为 $\varphi_i = (0, 5, 2, 5, 0)\pi/6$ 及 $\varphi_i = (0, 11, 2, 11, 0)\pi/6$ 。

上述案例中组合脉冲对脉冲强度误差 ϵ_a 的容错性，可以推广到其他参数误差 $\{\epsilon_j\}$ 。另一种常见的误差是激光场失谐量误差 $\epsilon_d = \pi\Delta/\Omega_0$ 。在图 2.6 中，我们绘制了调控误差级别 $m = \log_{10}(|1 - f|)$ 关于 N 脉冲强度误差（以实际脉冲面积 $\mathcal{A}_i = (1 + \epsilon_a)\mathcal{A}_{0,i}$ 表示）及失谐误差 $\Delta_i = \epsilon_d\Omega_0/\pi$ ($i = 1, \dots, N$) 分布下的关系图。可以看到，文献^[9]提供的 Genov 参数组合下的 $N = 3, 5$ 脉冲序列（图 (b)(c)(d)）相比于 $N = 1$ 脉冲的简单调制（图 (a)），对外场强度及失谐均具有一定容错性。

· 组合脉冲容错量子门操作

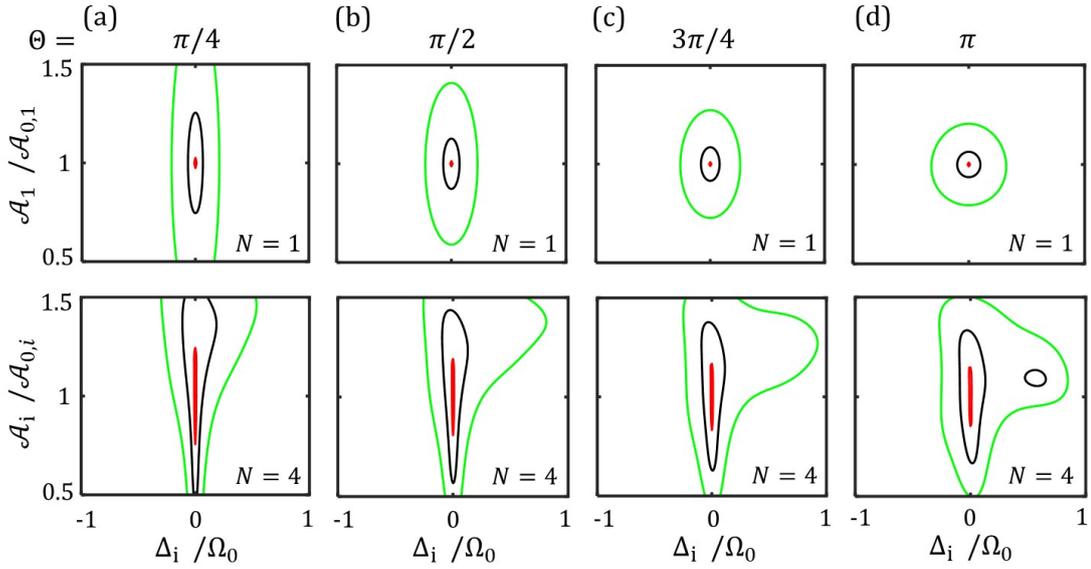


图 2.7 $N = 4$ 的 BB1 组合脉冲序列^[50] 下对不同量子门的容错调控效果（与 $N = 1$ 单脉冲调控对比）。图中标记定义与图 2.6 中一致。等高线分别表示误差级别 $\tilde{m} = \log_{10}(|1 - \mathcal{F}|) = -1$ （绿线）， -2 （黑线）， -4 （红线），量子门保真度 \mathcal{F} 的计算基于式 (2.33)。图 (a) 中，目标调控为 $\Theta = \pi/4$ ，对应单脉冲 $\mathcal{A}_{0,1} = \pi/4$ ；组合脉冲 $\{\mathcal{A}_{0,i} = \pi, 2\pi, \pi, \pi/4, \varphi_i = 93.6^\circ, 280.7^\circ, 93.6^\circ, 0\}$ 。(b) 中目标调控为 $\Theta = \pi/2$ ，对应单脉冲 $\mathcal{A}_{0,1} = \pi/2$ ；组合脉冲 $\{\mathcal{A}_{0,i} = \pi, 2\pi, \pi, \pi/2, \varphi_i = 97.2^\circ, 291.5^\circ, 97.2^\circ, 0\}$ 。(c) 中目标调控为 $\Theta = 3\pi/4$ ，对应单脉冲 $\mathcal{A}_{0,1} = 3\pi/4$ ；组合脉冲 $\{\mathcal{A}_{0,i} = \pi, 2\pi, \pi, 3\pi/4, \varphi_i = 100.8^\circ, 302.4^\circ, 100.8^\circ, 0\}$ 。(d) 中目标调控为 $\Theta = \pi$ ，对应单脉冲 $\mathcal{A}_{0,1} = \pi$ ；组合脉冲 $\{\mathcal{A}_{0,i} = \pi, 2\pi, \pi, 3\pi/4, \varphi_i = 104.5^\circ, 313.4^\circ, 104.5^\circ, 0\}$ 。

以上介绍中，我们讨论的均是通道保真度，即对应特定初态到末态的调控，并特别以 $|g\rangle$ 到目标态 $|e\rangle$ 的布居翻转作为举例。在我们后续章节的实验中，我们也将主要以原子电偶极布居翻转效率作为组合脉冲优化调控的验证。然而正如前文所述，组合脉冲方案不可忽略的一大优势在于，其还可以实现任意量子门^[10,76] 的高保真度容错操控，其原理及实现与上述布居翻转过程完全一致。对

于量子门操作，量子门保真度 \mathcal{F} 需由态空间内所有态求出

$$\mathcal{F} \equiv \int d\psi |\langle \psi | \hat{U}_{\text{target}}^\dagger \hat{U}^{(N)}(\{\epsilon_j\}) | \psi \rangle|^2. \quad (2.32)$$

在二维态矢量空间，量子门保真度还可以表示为^[77]

$$\mathcal{F} = |\frac{1}{2} \text{Tr}(\hat{U}_{\text{target}}^\dagger \hat{U}^{(N)}(\{\epsilon_j\}))|^2. \quad (2.33)$$

作为举例，在图2.7中我们参考文献^[50]，我们分别绘制了 $N = 4$ 的 BB1 (BroadBand NO.1) 组合脉冲参数下对不同量子门的容错调控效果（对比 $N = 1$ 单脉冲调制）。我们以态矢量绕轴旋转的目标角度 Θ 进行分类，在图 (a)~(d) 中，分别绘制了 $\Theta = \pi/4, \pi/2, 3\pi/4, \pi$ 的量子门。从图中可以看到，这些 $N = 4$ 的组合脉冲参数设计对外场（尤其是外场强度）具有明显的容错效果。

· 组合脉冲容错性的几何背景

不同于经典力学控制技术，组合脉冲对量子力学系统提供了经典力学难以解释的参数容错性。从基本数学的角度，这种容错性很容易从式 (2.31) 中的泰勒展开来理解：由于组合脉冲本身的可调参数众多，而误差函数的个数有限（对于布居翻转仅有一个，而对于一般量子门操作，也由 2×2 演化矩阵元决定），我们总可以在一定误差范围内降低联合演化算符对误差的依赖性，实现参数容错。可见，组合脉冲量子调控容错性和被调控量子系统的维度较低相关。

事实上，这样的低维度系统高度鲁棒的调控性质还是量子系统几何特性的体现。这一点的论证可见诸多文献，例如文献^[55]。也因此，我们将容错组合脉冲操控归为一类几何操控。

2.3 多能级原子的二能级调控

正如我们在章节1.1.4中所阐述，实际原子强光学跃迁对应的电子运动轨道是一个多能级系统。而电子的自旋轨道耦合（精细结构），电子和原子核的多级相互作用（超精细结构），都将进一步导致更加复杂的原子态描述。以下我们首先从电偶极相互作用的多能级原子表达开始，阐述皮秒时间尺度强光学跃迁二能级近似的合理性。然后，我们考虑光和原子电偶极相互作用的偏振依赖性，及偏振光场对超精细结构原子的准二能级操控。在回顾本论文实验工作相关重要近似的合理性后，我们对多能级原子的二能级相继操控前景作出展望。

2.3.1 多能级原子和光场相互作用

在章节2.2.1中，我们将电偶极相互作用在二能级原子的基矢下展开，获得了式(2.1)哈密顿量。对于拥有 $\{|n\rangle\}$ 能级的真实原子来说，同样方法展开下的哈密顿量可以表示为

$$\begin{aligned}\hat{H} &= \hat{H}_0 + \hat{H}' \\ &= \sum_n \hbar\omega_n |n\rangle\langle n| + \sum_{m,n} (\Omega_{mn} e^{-i\omega t} + c.c.) |m\rangle\langle n| + h.c.\end{aligned}\quad (2.34)$$

其中 $\Omega_{mn} = \mathbf{E} \cdot \mathbf{d}_{mn}/\hbar$ 是光场驱动 $|m\rangle - |n\rangle$ 跃迁的拉比频率。

我们将上式写在相互作用表象：

$$\hat{H}_I = \sum_{m,n} (\Omega_{mn} e^{-i(\omega - \omega_{mn})t} + \Omega_{mn} e^{i(\omega + \omega_{mn})t}) |m\rangle\langle n| + h.c.\quad (2.35)$$

接下来，对 $e^{i(\omega + \omega_{mn})t}$ “反旋转波项”的忽略即“旋转波近似”，在2.2.1节已经论述。对于 $|g\rangle - |e\rangle$ 强光学跃迁的近共振脉冲光激发： $\omega \approx \omega_{eg}$ ，且慢变化振幅 $\mathbf{E}(t)$ 的频谱展宽 $\sim 1/\tau$ 较小，我们可以运用类似逻辑，忽略所有非共振 Ω_{mn} 项，获得准二能级哈密顿量：

$$\hat{H}_I = \sum_{e,g} \Omega_{eg} e^{-i(\omega - \omega_{eg})t} |e\rangle\langle g| + h.c.\quad (2.36)$$

对于一般的碱金属原子，其多能级间隔（包括精细结构）之差常在 $10 \sim 100$ THz 级，皮秒脉冲的准单色性足以保证上述旋转波近似条件，形成 $|g\rangle - |e\rangle$ 间准二能级调控图像。另一方面，此类原子的基态超精细结构劈裂仅在 $1 \sim 10$ GHz 级，其中单个超精细跃迁在皮秒尺度，特别是本论文工作关注的组合皮秒技术中，不见得能被孤立。因此我们将相应超精细结构和塞曼子能级写入上述哈密顿量的表达。这里我们暂且用 e, g 简化表达这些量子数（和式(2.1)不同）。

2.3.2 超精细结构及塞曼子能级

从式(2.36)出发，我们考虑碱金属原子超精细结构上的强光学跃迁。例如一个著名的例子是 $S_{1/2} \leftrightarrow P_{1/2,3/2}$ 的 D 谱线跃迁。一般来说，在电子总角动量 J 和原子核角动量 I 的耦合下，原子能级分裂为超精细结构，能级由原子的总角动量量子数 $F = |J - I|, \dots, |J + I|$ 标记。例如图 2.8(a) 中 ^{85}Rb 原子的 D1 线，有 $I = 5/2$ ，从而有原子总角动量 $F = |J - I| = 2$ 或 $F = |J + I| = 3$ （同理有 $F' = 2$ 或 3 ）。这些超精细结构分裂在基态在 $1 \sim 10$ GHz 量级，激发态也可以达到 GHz 的级别。

由于角动量的量子化，每个超精细 F 能级包含 $2F + 1$ 个塞曼子能级，由磁

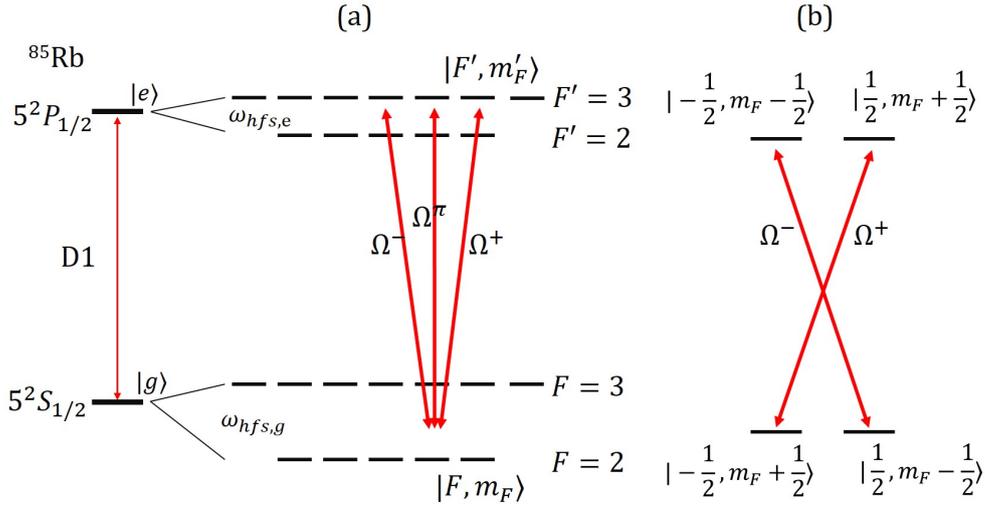


图 2.8 (a) 碱金属原子多能级结构及与各光偏振分量相互作用示意图(以 ^{85}Rb 原子 D1 线为例)。其中 Ω^- , Ω^+ , Ω^π 分别对应左旋、右旋圆偏振及线偏振光分量的拉比频率。(b) 我们取外部光场手性方向 $\mathbf{e}_h = \mathbf{E}^* \times \mathbf{E} / |\mathbf{E}|^2$ 为原子量子化轴, 此时可将光场拉比频率分为 Ω^- 及 Ω^+ 两个分量。对于光脉冲总时长 $\tau \ll 1/\omega_{\text{hfs},g}, 1/\omega_{\text{hfs},e}$ 的相互作用, 更方便的, 我们在 $|m_J = \pm 1/2, m_I = m_F \mp 1/2\rangle$ 基下表示原子能级。这样的表示能够将 σ^- , σ^+ 光场分量对原子能级的作用解耦, 更直观的演示原子布居的变化。

量子数 m_F 表示 ($m_F = -F, -F + 1, \dots, F - 1, F$)。在零磁场条件下, 塞曼子能级是简并的。由于磁量子数决定了电子波函数的角度分布, 因此, 塞曼子能级间的光学跃迁具有对驱动光场的偏振依赖性。

我们在超精细结构基矢下写出超精细 $|F, m_F\rangle \leftrightarrow |F', m'_F\rangle$ 激发的拉比频率:

$$\Omega_{F', m'_F, F, m_F}^l(t) = \langle F', m'_F | \mathbf{E}(t) \cdot \mathbf{d}_l | F, m_F \rangle / \hbar. \quad (2.37)$$

记 $l = -1, 0, 1$ 分别对应左旋圆偏振光 σ^- 、线偏振光 σ^π 和右旋圆偏振 σ^+ 跃迁分量, \mathbf{d}_l 分别为原子沿三个偏振方向的电偶极矩。有跃迁选择定则 $m'_F = m_F + l$ 。更一般的, 上式的磁量子数依赖性可以用 Clebsh-Gordan (CG) 系数 $c^{[78]}$ 表述:

$$\Omega_{F', m'_F, F, m_F}^l(t) = \sqrt{3} \Omega(t) c_{F' m'_F, F m_F}^l. \quad (2.38)$$

其中, $\Omega(t) = \frac{|\mathbf{E}(t)|}{\hbar} \frac{1}{\sqrt{3}} \langle J_g || \mathbf{d} || J_a \rangle$ 。

最后，超精细结构下的哈密顿量可以表示为：

$$\begin{aligned}\hat{H}_{\text{hfs}}(t) = & \hbar \sum_{F'} (\omega_{F'} - \omega_{F',0}) \sigma^{F'm'_F, F'm'_F} + \\ & \hbar \sum_F (\omega_F - \omega_{F,0}) \sigma^{Fm_F, Fm_F} + \\ & \frac{\hbar}{2} \sum_F \sum_l \Omega_{F', m'_F, F, m_F}^l(t) \sigma^{F'm'_F, Fm_F} + \text{h.c.}\end{aligned}\quad (2.39)$$

上式中隐含了对 m'_F 和 m_F 的遍历求和。其中，泡利矩阵定义为 $\sigma^{F'm'_F, Fm_F} = |F', m'_F\rangle\langle F, m_F|$ ($\sigma^{F'm'_F, F'm'_F}$ 和 σ^{Fm_F, Fm_F} 同理)； $\omega_{F',0}$ 和 $\omega_{F,0}$ 分别对应 $|a\rangle$ 和 $|g\rangle$ 超精细结构的能量参考零点。

2.3.3 短皮秒脉冲极限下的 D 谱线二能级调控

以下我们结合数值模拟，首先论述在短脉冲 $\tau \ll 1/\omega_{\text{hfs},g}, 1/\omega_{\text{hfs},e}$ 极限下，如图 2.8 的超精细跃迁可以约化为二能级跃迁，从而支持该强光学跃迁的组合脉冲容错精密操控。注意到，这里的“短脉冲”同时必须满足本章开头所述的时间条件，因此需要仍然在皮秒尺度。

我们不妨先考虑没有超精细结构（核自旋 $I = 0$ ）的虚拟原子 D 谱线能级分布，以 $J_g = J_a = 1/2$ 的 D1 线为例，如图 2.9(b) 中所示。调制光场的偏振状态可由光场的手性矢量

$$\mathbf{e}_h = \mathbf{E}^* \times \mathbf{E} / |\mathbf{E}|^2 \quad (2.40)$$

表征。在此我们将 \mathbf{e}_h 方向作为光和原子相互作用的量子化轴。沿该轴，调制光场可分解为 σ^- 和 σ^+ 两部分驱动相应 D1 跃迁，各自拉比频率为

$$\begin{aligned}\Omega^-(t) &= \sqrt{2} \sin(\theta_E/2) \Omega(t). \\ \Omega^+(t) &= \sqrt{2} \cos(\theta_E/2) \Omega(t)\end{aligned}\quad (2.41)$$

这里 $\theta_E \in [0, \pi/2]$ 由光场椭圆度

$$\begin{aligned}\varepsilon &= |\mathbf{e}_h| \\ &= \cos(\theta_E)\end{aligned}\quad (2.42)$$

决定。需要注意的是，按上述定义计算相互作用时，线偏振光的量子化轴需要选择垂直于偏振矢量本身。

现假设待调控原子的初始布居是 $\rho(0) = \frac{1}{2}(|g_+\rangle\langle g_+| + |g_-\rangle\langle g_-|)$ 均匀分布。我们通过数值模拟，计算不同偏振光场 ε 下 $N = 1, 3, 5$ 脉冲演化后的原子布居翻转效率。如图 2.9(c) 中所示， $N = 1, 3, 5$ 的组合脉冲序列参数与图 2.6 中一致^[9]，其相应的翻转效率 $f = \rho_{e_+e_+} + \rho_{e_-e_-}$ 随脉冲面积 \mathcal{A}_i 的变化在图 (d) 中给出。可以

看到，对于 $\varepsilon = 0$ 的线偏振入射，翻转效率 f 的随外场脉冲面积的变化形式与二能级完全相同（图2.6），且组合脉冲方案具有明显的强度容错效果。对于一般的椭圆偏振（例如 $\varepsilon = 0.5$ ）， $N = 1$ 的单脉冲翻转效率 f 不可能达到 1，而组合脉冲方案能够在一定强度误差范围内使得 f 均接近于 1。只有对于 $\varepsilon = 1$ 的圆偏振光场极端情况，才出现只有 50% 基态布居翻转的情况。

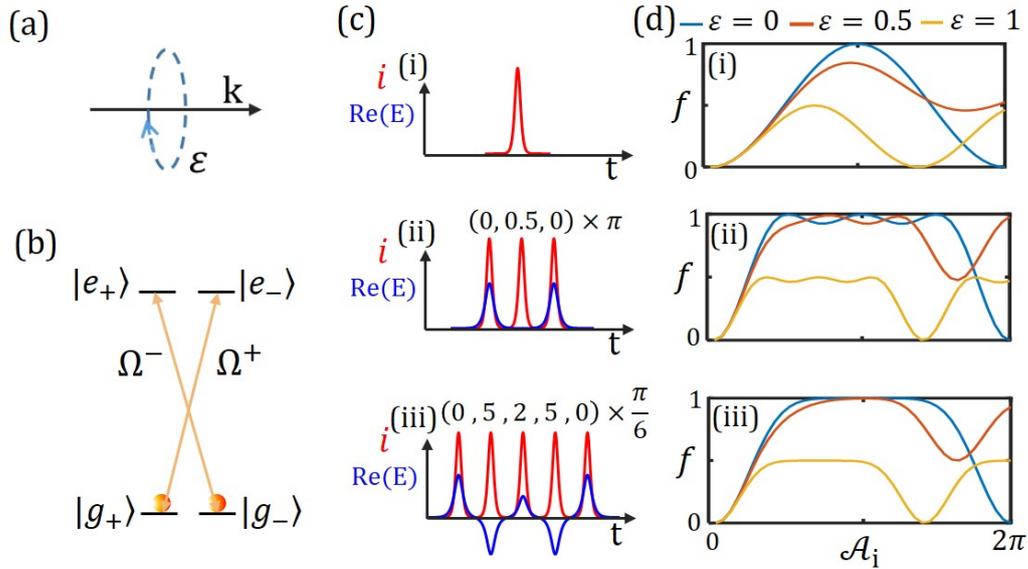


图 2.9 组合脉冲对 D1 跃迁的调制效果示意图（不考虑超精细结构 $I = 0$ ）。量子化轴选取为光场的手性矢量方向 $\mathbf{e}_h = \mathbf{E}^* \times \mathbf{E} / |\mathbf{E}|^2$ ，在自由空间中其平行于光场 \mathbf{k} 矢量，如图 (a) 中所示。椭圆度定义为 $\varepsilon = |\mathbf{e}_h|$ 。在图 (b) 中，我们给出了原子 D1 跃迁的简并能级示意图。在图 (d) 中，我们给出了对不同的光场 ε ， $N = 1, 3, 5$ 组合脉冲在具有误差的单脉冲面积 \mathcal{A}_i 下的翻转效率 f 。对应组合脉冲波形在图 (c) 中给出，其中红线表示光强含时分布，蓝线表示电场实部的含时分布。组合脉冲参数参考于文献^[9]。图片参考文献^[12]。

如图 2.9(b) 所示，在没有超精细结构的原子中，原子和光的相互作用可以在适当的量子化轴下约化成两个二能级系统，支持组合脉冲的二能级调控。该 $I = 0$ 的 D1 原子的容错操控可以方便的推广到 D2 谱线，且对于具有超精细结构的原子能级 ($I \neq 0$) 也可以适用，前提是光脉冲总时长满足 $\tau \ll 1/\omega_{\text{hfs},g}, \omega_{\text{hfs},e}$ 。

具体来说，在极短的 τ 时间内，我们可将原子态在电子-原子核直积基矢

$|m_J, m_I\rangle$ 下展开。如图 2.8(b) 所示以 ^{85}Rb 原子 D1 能级为例，可以作基变换

$$\begin{aligned} |F = I \pm 1/2, |m_F| < F\rangle &= \frac{1}{\sqrt{2}}(|m_J = -1/2, m_I = m_F + 1/2\rangle \\ &\quad \pm |m_J = 1/2, m_I = m_F - 1/2\rangle) \\ |F = I \pm 1/2, m_F = \pm F\rangle &= |m_J = \pm 1/2, m_I = \pm m_I\rangle \end{aligned} \quad (2.43)$$

由于 $\tau \ll \omega_{\text{hfs},g}, \omega_{\text{hfs},e}$ ，对于 $|m_J, m_I\rangle$ 态在调控时间内的超精细耦合可以忽略，因此其和光场的相互作用和 $I = 0$ 结构（图 2.9(b)）一致。

从而，对于 $\varepsilon = 0$ 的线偏振光场， Ω_- 与 Ω_+ 分量强度相等，这时系统等同于两个独立的简并二能级系统相互作用，因此容错效果与二能级条件下得出的模型一致。对于圆偏振光场 $\varepsilon = 1$ ， $\Omega_- = 0$ （或 $\Omega_+ = 0$ ），则仅 1/2 的原子基态布居被操控（对应于原 $|F, m_F\rangle$ 基下的特定叠加态）。对于更一般的椭圆偏振 $\varepsilon \in (0, 1)$ ，短 τ 的组合脉冲方案可以使椭圆偏振光也获得近似线偏振调制的更高的翻转效率 f ，对光场偏振也具有容错效果，这是因为组合脉冲方案对 Ω_{\pm} 分量的相对强度偏差也具有容错性。

另一方面，对于存在较大超精细劈裂的重碱金属（如 Cs），如果脉冲时长 $\tau \ll 1/\omega_{\text{hfs},g}, \tau \ll 1/\omega_{\text{hfs},e}$ 并未获得满足，则光场中原子演化会存在各类双光子拉曼跃迁^[79-80]，其动力学不能再由二能级原子描述。虽然这样的情形不在本论文工作范围，但作者相信，这种情况下的组合脉冲多能级容错调控仍然是可能的（例如文献^[80]初步工作）。

最后我们强调一个脉冲时长的中间极限： $\tau \sim 1/\omega_{\text{hfs},g} \ll 1/\omega_{\text{hfs},e}$ 。由于碱金属原子基态超精细劈裂远大于激发态，这样的情况在皮秒组合脉冲调控中会时常遇到。可以证明，当控制光线偏振时，对于碱金属来说，其基态双光子拉曼耦合可以相互抵消^[81]，组合脉冲对原子电偶极的操控仍将恢复至二能级图像，支持精密容错调控。

2.3.4 展望：多能级电子态的二能级相继操控

对于真实的多能级原子，以上我们论证了组合皮秒脉冲可驱动特定 $|g\rangle - |e\rangle$ 能级间强光学跃迁，实现容错原子态调控。这一调控技术是本文工作的重点，我们将从皮秒激光技术创新出发，在冷原子系统和纳米光学界面探索这一准二能级调控技术的实现。在本小节，我们超越本论文工作，就基于皮秒组合脉冲对电偶极跃迁调控的精密容错特性，讨论多能级原子量子态的高精度任意操控的可能性。

我们发现，由于原子跃迁频率高度分立，利用皮秒脉冲实现电子态的多次相继高保真操控是完全可行的。以图 2.10 的四能级系统为例。对于初始位于基态 $|g\rangle$ 的原子，我们可以依次打入与 $|g\rangle - |a\rangle$ 跃迁近共振， $|a\rangle - |b\rangle$ 跃迁近共振， $|b\rangle - |c\rangle$

跃迁近共振的皮秒组合脉冲, 实现子系统的任意量子门操作 (式 (2.29))。组合脉冲的应用可以保证此类操作对光场参数的容错性, 抑制不同能级间 Stark 效应^[78]的互扰。通过这种方式, 我们可以在 $\{|g\rangle, |a\rangle, |b\rangle, |c\rangle\}$ 多原子能级支持的希尔伯特空间中实现原子态及相应电子运动的高精度任意操作。

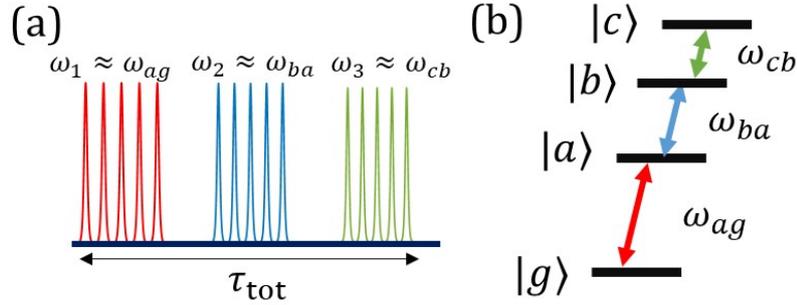


图 2.10 电子态相继操控示意图。(a) 三次相继调控脉冲光强示意图, 每次调控脉冲均可由组合脉冲序列代替, 实现外场误差的容错。总操控时长须满足 $\tau_{\text{tot}} \ll 1/\Gamma$ 避免自发辐射效应, 单次操控时长需满足 $1/\tau_i \ll (|\omega_i - \omega_{m'n'}|)$ 以避免多能级耦合 (这里 m', n' 表示该次操控以外的能级)。(b) 多能级相继操控过程示意, 箭头颜色对应于图 (a) 中脉冲。

2.4 引入自发辐射的原子体系计算理论

本章节最后, 我们将自发辐射引入光场中的原子态演化, 同时结合后续实验物理图像理解的实际需求, 介绍相关观测量及计算方法。

2.4.1 引入自发辐射后的二能级原子态演化

· 光学布洛赫方程

处于激发态的原子, 即便没有经典外场作用, 也会与真空电磁场作用“自发”回到基态并辐射出光子。此即激发态原子的自发辐射。引入自发辐射后, 原子系统成为和环境相互作用的开放体系。我们记原子系统为 S , 其和环境 R 耦合的总哈密顿量可写为

$$\hat{H} = \hat{H}_S + \hat{H}_R + \hat{H}_{SR}. \quad (2.44)$$

类似于式 (2.15) 的纯态密度矩阵表示, 我们写出更一般的密度矩阵表达

$$\hat{\rho} = \sum_k \rho_{kk} |\psi_k\rangle \langle \psi_k|. \quad (2.45)$$

其中 ρ_{kk} 为原子处于某纯态 $|\psi_k\rangle$ 的概率。和孤立系统类似, 总系统的密度矩阵

$\rho(t)$ 满足

$$\dot{\rho} = \frac{1}{i\hbar} [\hat{H}_S + \hat{H}_R + \hat{H}_{SR}, \rho] \quad (2.46)$$

接下来，基于 Born-Markov 近似，我们对原子在环境中的各种状态求期待值，得到约化密度矩阵 $\hat{\rho}_S = \text{Tr}_R(\hat{\rho})$ ，有（以二能级原子为例）

$$\begin{aligned} \dot{\hat{\rho}}_S &= \text{Tr}_R(\dot{\hat{\rho}}) \\ &= \frac{1}{i\hbar} [\hat{H}_S, \hat{\rho}_S] - \frac{1}{2} (\hat{C}^\dagger \hat{C} \hat{\rho}_S + \hat{\rho}_S \hat{C}^\dagger \hat{C}) + \hat{C} \hat{\rho}_S \hat{C}^\dagger, \end{aligned} \quad (2.47)$$

其中量子坍缩算符 $\hat{C} = \sqrt{\Gamma}|g\rangle\langle e|$ ， Γ 为原子自然线宽^[82]。

为接下来表述方便，我们重新定义原子密度矩阵算符 $\hat{\rho}_S \rightarrow \hat{\rho}$ ，上式可进一步写为

$$\dot{\hat{\rho}} = \frac{1}{i\hbar} [\hat{H}_{eff}, \hat{\rho}] + \hat{C} \hat{\rho} \hat{C}^\dagger. \quad (2.48)$$

其中，等效哈密顿量 $\hat{H}_{eff} = \hat{H} - \frac{i\hbar}{2} \hat{C}^\dagger \hat{C}$ 包涵 $i\hbar\Gamma_e/2|e\rangle\langle e|$ 的非厄米部分。

将原子哈密顿量式 (2.6) 带入，可得 $\dot{\hat{\rho}}$ 每个矩阵元的微分方程组

$$\begin{cases} \dot{\rho}_{ee} = -\dot{\rho}_{gg} = -\Gamma\rho_{ee} + \frac{i}{2}(\Omega^*\rho_{eg} - \Omega\rho_{ge}), \\ \dot{\rho}_{eg} = -\dot{\rho}_{eg}^* = (i\Delta - \Gamma/2)\rho_{eg} + \frac{i}{2}\Omega(\rho_{ee} - \rho_{gg}). \end{cases} \quad (2.49)$$

式 (2.49) 称为光学布洛赫方程组 (Optical-Bloch Equation, OBE)^[32]。利用该式，我们可以求得开放系统原子演化的过程。

我们考察系统长时间演化后到达稳态，由 $\dot{\hat{\rho}} = 0$ 可得：

$$\begin{cases} \rho_{ee,s} = 1 - \rho_{gg,s} = \frac{s}{2(1+s)}, \\ \rho_{eg,s} = \rho_{ge,s}^* = \frac{\Omega}{2(1+s)(\Delta + i\Gamma/2)}. \end{cases} \quad (2.50)$$

其中

$$s = \frac{s_0}{1 + (2\Delta/\Gamma)^2}, \quad s_0 = 2\left(\frac{\Omega}{\Gamma}\right)^2. \quad (2.51)$$

另一方面，当自发辐射时间尺度 $1/\Gamma$ 远大于我们所关心的系统时间尺度时，系统回归到前述小节中的无辐射二能级模型。另外值得注意的是，在前面章节中我们介绍的布洛赫球模型在考虑自发辐射引起的退相干效应后依旧有效，此时态矢量为 $\mathbf{r} = \{\text{Tr}(\rho\sigma_x), \text{Tr}(\rho\sigma_y), \text{Tr}(\rho\sigma_z)\}$ 。其包含布洛赫球面 ($|\mathbf{r}| = 1$) 上的纯态及球体内部 ($|\mathbf{r}| < 1$) 的混合态。

式 (2.48) 及其多能级推广 (见章节4.6.2) 可以用来计算光场驱动下真空中原子的演化。然而, 如果希尔伯特空间由 n 个子能级构成, 对应密度矩阵需要 n^2 个基矢表达。式 (2.49) 的光学布洛赫方程在高维情况下的求解计算量常远大于使用式 (2.4) 的薛定谔方程。本文工作中的数值模拟运用随机波函数方法 (stochastic wavefunction method)^[83-85] 实现对光学布洛赫方程的模拟。该方法以非厄米等效哈密顿量演化薛定谔方程, 并引入量子坍缩 (quantum jump) 模型。通过大量取样随机波函数 $|\psi_s\rangle$, 获得密度矩阵解

$$\rho(t) = \frac{1}{N_s} \sum_{s=1}^{N_s} |\psi_s\rangle\langle\psi_s| \quad (2.52)$$

可以证明, 上述表达式在 $N_s \rightarrow \infty$ 的极限下和光学布洛赫方程的 $\rho(t)$ 解一致。

以下我们以二能级原子为例说明随机波函数计算方法。由于 $\hat{H}_{eff} \neq \hat{H}_{eff}^\dagger$ 非厄米, 因此被其演化的波函数 $|\psi_s\rangle$ 不再保持归一, 我们考虑原子在微小时间元 δt 内的演化:

$$|\psi(t + \delta t)\rangle = e^{-iH_{eff}\delta t}|\psi(t)\rangle. \quad (2.53)$$

存在两种可能: (1) 原子发生量子坍缩, 波函数坍缩到 $|g\rangle$, 概率即为 $P_J(t + \delta t) = \langle\psi(t)|\hat{C}^\dagger\hat{C}|\psi(t)\rangle$; (2) 原子未发生量子坍缩, 波函数按照非厄米有效哈密顿量相干演化, 概率为 $P_{NJ}(t + \delta t) = 1 - P_J(t + \delta t)$ 。在每一步微小时间元 δt 计算后, 我们均对波函数进行归一化, 多次重复后, 可获得波函数在关心时间尺度 T 内的“随机量子轨迹” $|\psi(t)\rangle$ 。而在具体的数值模拟中, 我们通常可取随机数 $n_j \in (0, 1)$ 。当 $n_j > P_J(t)$ 时, 不发生量子坍缩; 当 $n_j < P_J(t)$ 时, 波函数量子坍缩到 $|g\rangle$ 。

2.4.2 原子散射率和光吸收

以上我们一直在讨论光场中的原子运动。事实上, 原子的存在当然也会改变光的传播。通过光场测量, 可以反推原子态的演化规律。例如, 由原子荧光或吸收光谱来推测原子的性质和状态。

通常, 实验中较多使用的是探测激光通过稳态原子体系时的透射率变化, 即此时原子对探测光的散射已经稳定, 例如后续章节中我们会介绍利用原子的吸收成像计算变化的原子数。另一方面, 短脉冲 ($\tau \ll 1/\Gamma$) 经过非稳态原子系统的透射率变化在实验中也具有重要意义, 例如后文中我们用短探测脉冲, 来探测和表征纳米光纤周围局域场内的原子经过调制后的瞬态布居。本节中, 我们将讨论对稳态和非稳态原子体系均适用的光透射率一般计算方法。

考虑近共振光和原子体系的能量交换。由电偶极相互作用能量交换率基本

公式 $P = \langle \mathbf{E} \cdot \dot{\mathbf{d}} \rangle$ ，我们可以获得原子体系光耗散功率表达式：

$$\begin{aligned} P(t) &= -\omega \text{Im} \langle \mathbf{E}^*(t) \cdot \mathbf{d}(t) \rangle \\ &= -\omega \text{Im} (\mathbf{E}^*(t) \cdot \mathbf{d}_{eg}(t) \rho_{eg}(t)). \end{aligned} \quad (2.54)$$

由此我们也可定义任意时刻原子对光子的散射率 $R_{sc}(t)$ 为（取近似 $\omega \approx \omega_{eg}$ ）

$$\begin{aligned} R_{sc}(t) &= P(t) / (\hbar \omega) \\ &= -\frac{1}{\hbar} \text{Im} (\mathbf{E}^*(t) \cdot \mathbf{d}_{eg}(t) \rho_{eg}(t)). \end{aligned} \quad (2.55)$$

式 (2.54) 能量耗散率对任意时长 τ 的光脉冲均适用。这里我们首先考虑一种特殊情况 $\tau \rightarrow \infty$ ，取光学布洛赫方程（式 (2.49)）稳态 $\dot{\rho} = 0$ 解（式 (2.50)），可得

$$R_{sc,s} = \frac{1}{\hbar} \frac{\Gamma |d_{eg}|^2}{(1+s)(4\Delta^2 + \Gamma^2)} |\mathbf{E}|^2. \quad (2.56)$$

进一步，可求解稳态原子对光子的散射截面

$$\begin{aligned} \sigma &= \hbar \omega R_{sc,s} / I \\ &= \frac{\sigma_0 \Gamma^2}{\Gamma^2 + 4\Delta^2 + 2\Omega^2}. \end{aligned} \quad (2.57)$$

其中，弱光共振散射截面 $\sigma_0 = \frac{2\omega |d_{eg}|^2}{\hbar \Gamma c \varepsilon_0} = \frac{3\lambda^2}{2\pi}$ 。这里我们直接引入了 Γ 的表达式 $\Gamma = \frac{\omega^3 |d_{eg}|^2}{3\pi \varepsilon_0 \hbar c^3}$ （相关推导可参见 Wigner-Weisskopf 自发辐射理论^[82,86]）。

对于一定厚度 L ，密度为 μ 的原子样品，根据朗伯-比尔定律（Lambert-Beer Law）^[87]，可以得到激光入射原子样品后的能量相对变化，即稳态透射率

$$T \equiv e^{-\text{OD}} = e^{-\mu \sigma L}. \quad (2.58)$$

其中 OD 定义为光学厚度（optical depth）。

基于式 (2.58) 中稳态 $\tau \rightarrow \infty$ 的透射率形式，实验中我们常使用长曝光时间后的近共振光透射率 T 来表征原子样品的密度 μ ，也即吸收成像的原理。而另一方面，正如前文所述，我们也关心短脉冲（ $\tau \ll 1/\Gamma$ ）的透射率变化，对应于原子系统非稳态时候的能量变化。特别的，对于我们后续提到的纳米光纤周围衰逝场原子的探测，我们关心的局域尺度也小于 σ_0 对应的散射截面，因此稳态解并不适用。此时，我们可基于对式 (2.54) 的积分来算出短脉冲透射时的能量损耗。

2.4.3 光力和激光冷却

以上我们讨论的均是原子“内态”的演化。另一方面，由于光子携带动量，光场对原子内态的调控必然伴随着对原子质心运动的影响。在半经典近似下，光场和原子间的动量转移过程可以由光学力来描述。光力算符由哈密顿量空间梯度求得^[7]：

$$\hat{\mathbf{F}} = -\nabla H \quad (2.59)$$

对于二能级原子来说，光力的期待值是

$$\begin{aligned} \langle \hat{\mathbf{F}} \rangle &= -\text{Tr}(\hat{\rho} \nabla \hat{H}) \\ &= \hbar q_r (\Omega \rho_{eg}^* + \Omega^* \rho_{eg}) + i \hbar q_i (\Omega \rho_{eg}^* - \Omega^* \rho_{eg}). \end{aligned} \quad (2.60)$$

其中， q_r, q_i 满足 $\nabla \Omega = (q_r + i q_i) \Omega$ ，分别表示 $\nabla \Omega$ 的实数和虚数部分。我们将上式中第一项记为偶极力 \mathbf{F}_{dip} ，该光力和原子与光相互作用的色散作用紧密相连；而第二项记为自发辐射力 \mathbf{F}_{sp} ，对应于与原子对光的吸收。

在系统达到稳态时，上式可进一步写为

$$\langle \hat{\mathbf{F}} \rangle = \frac{\hbar s}{1+s} (-\Delta q_r + \frac{\Gamma}{2} q_i). \quad (2.61)$$

以下我们考虑两种情况：

(a) 当外界电场形式为平面波时，有 $q_r = 0$ 而 $q_i = k$ ，从而此时只有自发辐射力存在，且带入可得

$$\mathbf{F}_{\text{sp}} = \hbar k \Gamma \rho_{ee,s}. \quad (2.62)$$

结合我们在上一章节2.4.2中的介绍，稳态时自发辐射力的物理来源可以解释为：基态原子跃迁至激发态，这一过程受到定向的力作用，而激发态原子自发辐射的光子各向同性，这一过程平均作用力为0。原子系统的在整个过程中动量变化 $\hbar k \rho_{ee,s}$ 。

(b) 当外界电场形式为驻波时，此时电场为纯实数， $q_i = 0$ ，因而从而此时只有偶极力存在，

$$\mathbf{F}_{\text{dip}} = -\frac{\hbar s \Delta}{1+s} \nabla \ln |\Omega|. \quad (2.63)$$

偶极力是由电场的空间梯度引起的，且力的方向与失谐相关。例如对于红失谐光 $\Delta < 0$ ，则力的方向指向电场更强的位置；对于蓝失谐光 $\Delta > 0$ ，则力的方向指向电场更弱的位置。我们也可以结合章节 2.2.3 的介绍缀饰态本征能级来理解。不难发现，当外场为红失谐光 $\Delta < 0$ 时，激发态能级将上移，而基态能级将下移，且这一能级偏移量（即 Stark 偏移）与光强相关，从而原子将受到指向只能更低位置处的力。类似的，蓝失谐 $\Delta > 0$ 情况，则可得到势能梯度相反。偶极力与自

发辐射无关，是一种保守力。

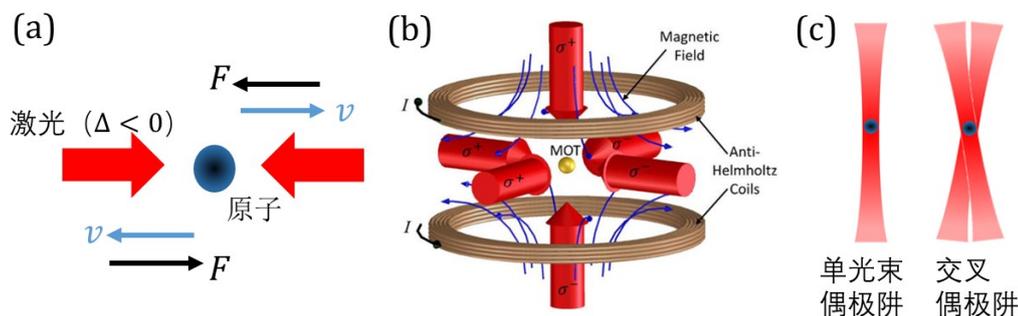


图 2.11 光力在激光冷却中的典型应用示意图 (a) 一维多普勒冷却方案示意图。(b) 典型的三维磁光阱示意图，图片源自参考文献^[88]。(c) 单光束偶极阱和交叉偶极阱示意图。

自发辐射力 F_{sp} 和偶极力 F_{dip} 在激光冷却和冷原子样品制备中均极为重要 (F_{sp} 在章节1.1.1中已经提到)。在图2.11中我们简单列举了这两种力的应用。图 (a) 给出了在一维情况下，典型的多普勒冷却方案示意图。我们分别沿两个方向相向入射与原子能级红失谐的激光 ($\Delta < 0$)。由于多普勒效应的存在，对于原子体系而言，与激光入射方向相向运动的原子，其受到的激光失谐量会相对减小，因而受到总作用反向与速度相反的阻尼力。最终原子体系会被减速形成“光学粘胶”。实际实验中，对于原子气体的激光冷却一般需要在三维情况下由六束激光组成。同时，由于多普勒效应与原子的速度相关，为获得对原子团的持续冷却，还需要辅以空间梯度磁场。在图 (b) 中我们给出了典型的三维磁光阱 (Magneto-Optical Trap, MOT)^[89] 构成。磁光阱通过优化磁场梯度，并利用磁场的塞曼效应，使原子额外获得随空间梯度变化的能级间隔。因而可以等效修正因速度下降而减小的多普勒频移，获得持续的减速效果，从而初步制备冷原子样品。这种与光自发辐射力相关的冷却方案，最终也受到自然线宽 Γ 的限制，一般可以将原子样品冷却至 $100 \mu\text{K}$ 级别。

另一方面，基态多能级原子的态相关偶极力和自发辐射（光学泵浦）的结合可导致偏振梯度冷却 (Polarization Gradient Cooling, PGC)^[90]，该机制常可将磁光阱中原子的温度降低至数微开。此外，偶极力 F_{dip} 在实验上可用于形成偶极阱^[91-92]，以储备和装载冷却的原子团并用于进一步蒸发冷却^[93] 及后续研究。例如在图 (c) 中，我们给出了典型的交叉偶极阱和单光束偶极阱示意图，利用红失谐光的偶极力指向光强更强处的特点，原子团可以被囚禁到光腰附近。交叉偶极阱相比于单光束偶极阱，更易于束缚和控制原子空间分布形状。实际实验中，稳定的保守偶极阱需要满足远失谐条件和较大功率注入。

2.5 本章小结

在本章中，我们从二能级原子的相互作用理论及模型出发，介绍了在原子态调控中无法避免的外场误差问题。相比于绝热容错技术，皮秒级的组合脉冲容错方案不仅能够实现高保真度的布居翻转操作，也同样可以实现任意高精度的量子门操作，具有更广泛的应用前景。在以上二能级操控理论的基础上，我们论述了皮秒时间尺度的脉冲操控可有效避免原子多能级的耦合，而短时极限下的皮秒脉冲可进一步实现超精细结构下的准二能级操控。同时，这一时间下的皮秒组合脉冲可以对光场的偏振特性也可以起到容错效果。而在最后，我们结合实验的实际需求，进一步介绍了在考虑自发辐射后的一般原子电偶极调控计算方案。本章内容为我们研究目标的进一步细化，将为后续的实验介绍作下铺垫。

第三章 可编程皮秒相干脉冲序列产生技术

3.1 本章概述

在上一章我们已经详细论证，对光学跃迁的精密二能级操控可以在皮秒时间尺度展开，并借鉴 NMR 领域的组合脉冲技术实现对哈密顿量参数误差容错的几何操控。这一皮秒组合脉冲操控图像对新型光场调控提出了技术需求。具体来说，我们需要一台可以对子脉冲的强度和相位 $\{A_i, \varphi_i\}$ 进行任意编程的皮秒脉冲序列产生器，并将其输出耦合到碱金属原子系统以实现原子内外态的调控。然而，在第一章已经提到，激光调制技术在皮秒-纳秒时间尺度上存在技术断层。为实现本论文工作的顺利展开，我们必须从头发展此类激光调制技术。本章将详细介绍我的博士工作期间发展的一种基于皮秒锁模激光器及声光衍射调制原理的新型任意皮秒组合脉冲序列产生系统。

本章节分为如下几个部分：

在章节3.2中，我们首先回顾脉冲和连续激光调制技术领域的主要光学脉冲产生技术，并讨论其在皮秒-纳秒时间尺度实现强光学跃迁组合脉冲调控的局限性。在章节3.3和章节3.4中，我们将详细讨论本论文工作发展的任意皮秒脉冲序列产生系统的“第一代”和“第二代”技术。在章节3.5及章节3.6中，我们将介绍输出脉冲特性的时域及频域测量，并介绍一种冷原子俘获损失光谱技术。该光谱技术验证了脉冲序列生成系统的高度稳定性和任意可编程性，同时该研究过程中我们还发现一种皮秒脉冲光谱的“超分辨”现象。最后，在章节3.7，我们将就新型皮秒脉冲序列产生系统的技术指标作出总结。

3.2 光学相干脉冲序列产生技术

从高速光通讯到强激光表面加工，光学脉冲序列产生技术实际上有各个方面的应用。本章的技术讨论聚焦强光学跃迁容错操控这一基础物理应用，讨论可实现皮秒-纳秒时间尺度光脉冲序列的光学调制技术。这样的技术可以分为基于连续光的波形调制，及基于锁模激光的脉冲整形。

3.2.1 连续光高速波形调制技术

高带宽脉冲激光可以由连续激光经过高速调制器产生，包括机械调制器，声光调制器，和电光调制器。

- 声光调制和电光调制

声光调制器 (Acousto-optical modulators, AOM)^[94] 是将连续光实现强度、相位、频率、传播方向调制的常见方式。然而这类技术受限于声波在晶体中传播时间, 难以产生纳秒级的脉冲波形。

另一大类脉冲调制技术是电光调制 (Electro-optic modulator, EOM)^[95]。电光效应源于电子运动的非线性光学效应。调制速度原则上可达亚纳秒。然而在实际应用中, 受限于高电压驱动下的耗散, 该技术难以产生 10 MHz 以上重频的脉冲波形。

因此, 这两类常用的连续光调制技术均难以直接实现本文所关心的皮秒组合脉冲序列的可编程生成。

· 光纤电光调制

值得一提的是, 我们在前期工作中运用光纤电光调制 (fEOM) 技术, 在该技术方向上已有初步探索, 获得了调制带宽 δf_M 高达 13 GHz 的光学任意波形脉冲, 并运用到 Rb 原子的电偶极调控中^[29-30]。然而该方案输出功率最终受限于光纤电光调制器的光学损伤阈值, 仅在数十毫瓦级别。此外, 要获得类似 NMR 的调控效率, 调制带宽仍需要成倍提高, 在光纤电光调制技术中实现难度较大。

3.2.2 脉冲光整形技术

基于连续光调制的脉冲产生技术不仅有带宽上的限制, 且峰值功率受连续光功率及调制效率的限制, 常常在瓦级以下。而基于 Kerr-透镜光学孤子等非线性光学原理的锁模激光^[96] 拥有连续激光无法获得的巨大瞬时功率及内禀脉冲带宽, 为实现高带宽任意波形脉冲激光提供了强大的基础。注意到锁模激光的原理决定了脉冲重复周期为:

$$T_{\text{rep}}^{(0)} = L/c \quad (3.1)$$

其中 L 为激光器中激光光路的等效全长, c 是光速。这里记号 $T_{\text{rep}}^{(0)}$ 的写法是为了区分后续章节中经过脉冲选频后的重频周期 T_{rep} 。

除非是芯片上的锁模激光^[97] (其任意波形调控可能也是一个技术挑战), 一般激光的重频 $f_{\text{rep}}^{(0)} = 1/T_{\text{rep}}^{(0)}$ 仅在 100 MHz 级。为实现 $\tau_c \ll 1/\Gamma$ 的亚纳秒复合脉冲, 只能通过单个脉冲的整形实现。以下我们按照物理原理, 列举主要单脉冲整形方法, 如图 3.1 中所示。

(a) 干涉法^[100-103]: 该方案利用多个光学分束棱镜 (beam splitter) 将入射光脉冲进行分束, 子脉冲序列通过不同延迟线分别进行强度和相位调制, 最后相干合束形成任意编程多脉冲输出。该方案在非线性光谱学等领域获得了大量应用^[102]。

在本论文聚焦的原子物理应用中, 这一方案的最大局限在于延迟线及分离的最大子脉冲个数在搭建光路时就已经决定, 只能以机械化的方式进行调节, 调节速度慢, 灵活性较差; 同时, 分离的延迟线会导致稳定性问题, 即延时线间的相对振动会引发叠加后脉冲序列相对相位的急剧抖动, 必须额外增加反馈系统。

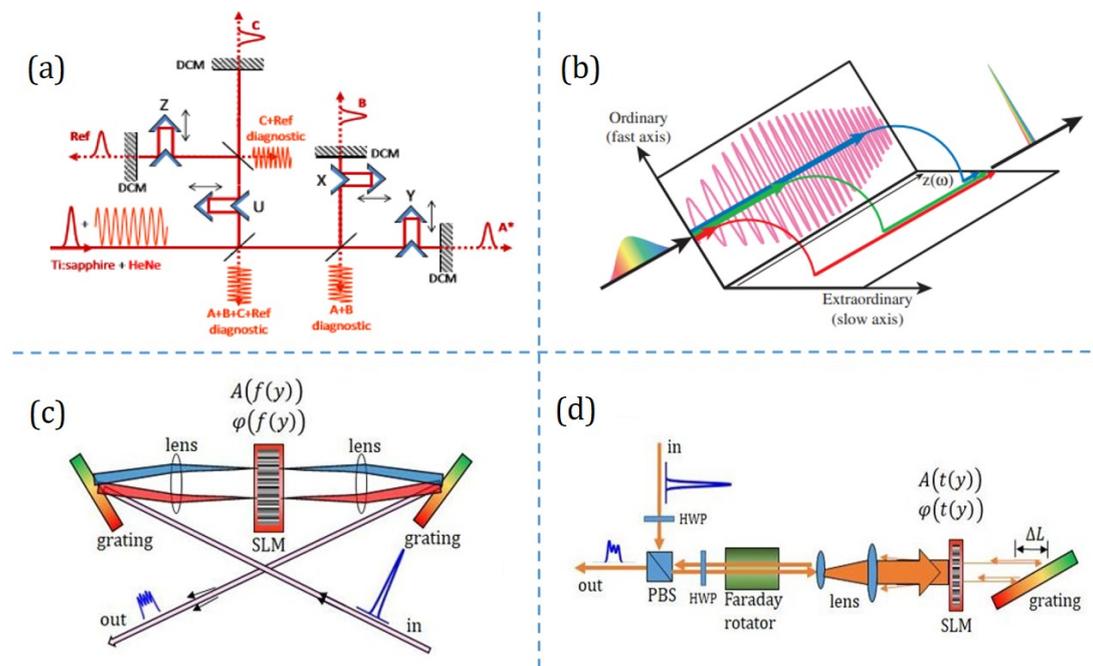


图 3.1 皮秒时间尺度上, 现有超快光脉冲整形系统示意图。(a) 干涉法脉冲序列生成方案 (Interferometry), 图片参考文献^[98]。(b) 声光可编程色散滤波器 (AOPDF), 图片参考文献^[99]。(c) 傅里叶变换脉冲整形方案 (FTFS), 图片参考文献^[11]。(d) 直接空间时间脉冲整形方案 (DSTPS), 图片参考文献^[11]。

(b) 声光可编程色散滤波器 (AOPDF)^[104-105]: 该方案通过声光相互作用在晶体上形成声光栅, 基于衍射效应的波长选择性, 使得入射脉冲的不同的光谱分量可以在晶体中的不同位置, 即不同延迟下分别衍射, 起到将入射脉冲分割为多个子脉冲的效果。自上世纪 90 年代发明以来, AOPDF 技术被广泛应用于超快光学探测物质的超快响应。

然而, 对于强光学跃迁操控来说, AOPDF 能提供的延时 (10ps 级) 有一定局限。这个局限来源于声光晶体长度, 难以在保证高效衍射的同时克服。

(c) 傅里叶变换脉冲整形技术 (FTFS)^[106-109]: 该方案将脉冲激光入射到光栅等色散元件上, 使得不同频谱 f 成分沿不同角度衍射进入不同延迟线, 形成 $f-y$ 映射; 之后利用空间光调制器 (SLM) 等元件在不同空间位置 y 处分别调制分离后的子光束, 这一频率-空间调制函数可表示为 $A(f(y))e^{i\varphi(f(y))} \mathbf{E}(f(y))$; 在完成调制后, 再利用另一个相同色散元件将不同延迟线光束相干合束, 单模输出。这一方案由普渡大学 Andrew .M .Weiner 教授提出, 在目前的超快光学领域中最广泛使用, 尤其被应用于最优控制^[110-111] 及多维光谱^[112] 等研究中。

和 AOPDF 方案类似, FTFS 在对长延时、窄带宽的脉冲调制时有相当的局限。具体来说, 基于色散分束的该方案, 需要入射脉冲具有极高的频谱展宽, 因而目前仅对于飞秒尺度脉冲比较适用, 在皮秒时间尺度上的分束并不稳定。另一

方面，调制函数 $A(f(y))e^{i\varphi(f(y))}E(f(y))$ 需要在空间 y 上形成快速变化，而这一需求通常会引入时间-空间耦合效应^[113-114]，引起额外衍射损耗，降低单模输出质量。当输出的整形脉冲在频谱上为稳定且稀疏的梳状时，可以减轻这种时空耦合效应。近年来有许多新工作使用 FTFS 方案调制高重复频率梳，来实现完全受控的光学任意波形生成 (OAWG)^[115-116]。然而从现有的 OAWG 中，在时域上分离出孤立形状的脉冲似乎仍然很困难，因而还难以运用到例如量子控制（如态制备和检测）等方面。

(d) 直接空间时间脉冲整形技术 (DSTPS)^[117-120]：该方案首先对入射脉冲光束进行扩束，之后在实空间对扩束后大光斑波前进行分割（例如，加入遮挡元件），并对不同空间位置 y 的光束进行调制；利用如光栅等元件的反向衍射，使得不同光束具有不同的光学延时线，并在合束后叠加输出。即该方案的子脉冲由光学延迟 t 分离，形成 $t-y$ 映射。在时域上进行分割的这一方案，调制元件中的调制函数 $A(t(y))e^{i\varphi(t(y))}$ 可以平缓变化。因而相比于 FSTPS，DSTPS 更适合将单个窄带脉冲扩展为更长的相位可编程脉冲，同时不受时空耦合损耗的严重影响。然而，这一方案的最大问题在于，空间波前的分割难以避免的会影响单模质量。同时该方案还限制了整形效率，特别是对于生成稀疏和孤立的子脉冲，此时大多数入射波前分量将被阻挡。

3.2.3 新思路：“倒空间-时间”直接转换脉冲整形技术

在前一节介绍 DSTPS 脉冲整形方案中的 $t-y$ 映射时，我们提到该方案在脉冲调制及波前稳定性要求等方面的局限。我们发现，这些局限可以非常方便的通过衍射光束分束解决。如图 3.2 所示，入射光脉冲可以由密度光栅实现多路衍射，其出射经透镜准直，然后在不同衍射后原路回射，可以实现不同衍射脉冲的相干合束，形成多脉冲输出。

相对于 DSTPS 技术的波前分割，衍射分束至少有三个重要优势。其（一），由于高斯光束的 \mathbf{k} 矢量在自由空间是守恒量，因此，基于波矢平移的衍射分束，在抗振性等方面具有比波前分割更好的稳定性。其（二）， \mathbf{k} 空间平移前后的实空间波前可以均为完美的高斯型，有利于实现分束前后的单模输入输出高效耦合。其（三），基于衍射的分束方法拥有内置的分束强度，分束相位，甚至是分束光束个数的可编程性，对于接下来我们要介绍的声光分束，仅需调节射频强度，相位，及边带个数即可。这一优势可直接为多脉冲发生技术的可编程性提供支持。

具体到接下来我们要介绍的这个方案，其他优势包括：（四）基于多路衍射线短间距平行传播的共模噪声抑制能力。（五）声光边带调制可支持由声波传播速度决定的 MHz 级实时反馈带宽。即光学波形可在亚微秒时间变更，而误差也可通过更新声波波形获得纠正。

和“实空间-时间直接转换法” (DSTPS) 相应，我们将本论文工作发明的这

种脉冲整形技术称为“倒空间-时间直接转换”法 (DRSTPS), 对应 $t - k$ 映射。

3.3 “第一代”皮秒组合脉冲生成系统

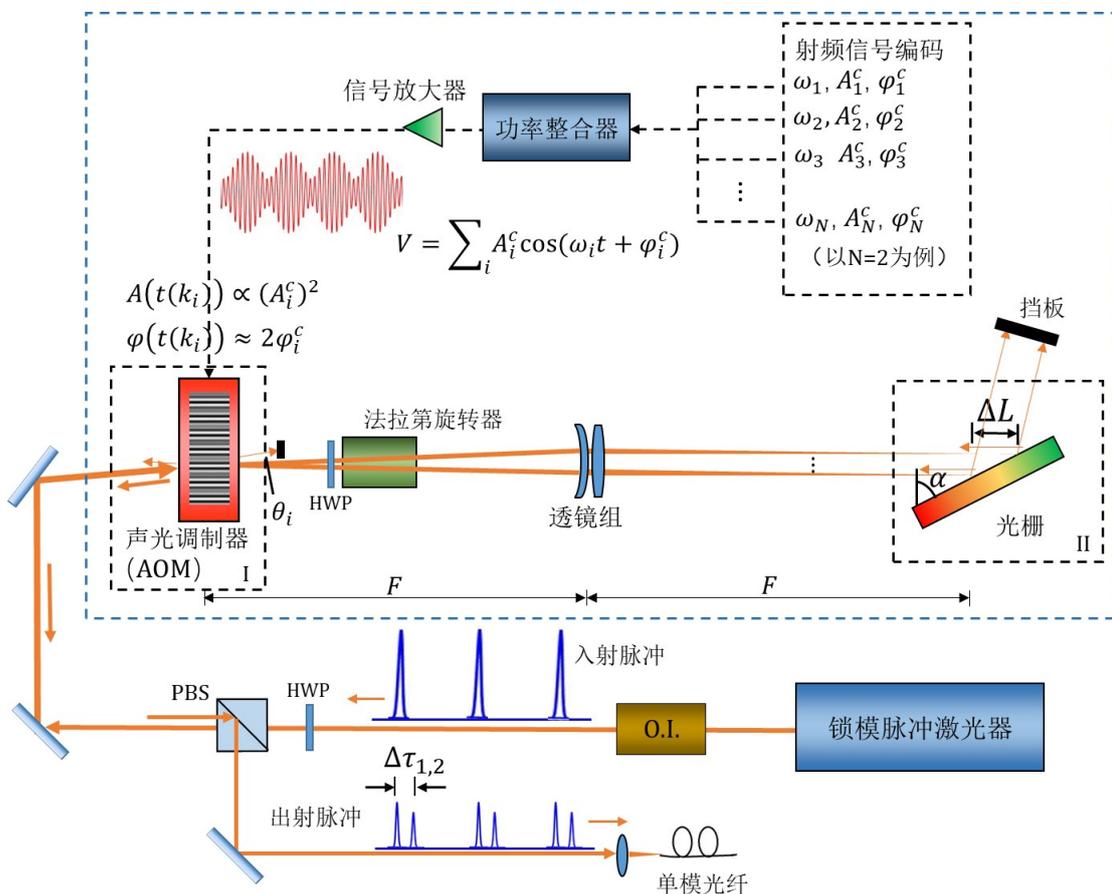


图 3.2 基于多重声光调制的任意皮秒脉冲序列生成系统示意图。入射锁模光脉冲经由该系统调制, 理论上可整形为具有任意振幅、相位、及延时的子脉冲序列, 且相关参数均有射频信号编程控制 (图中以 $N = 2$ 子脉冲为例, 脉冲时域波形比例仅作示意)。详见正文介绍。O.I.: 光学隔离器。PBS: 偏振分束棱镜。HWP: 1/2 波片。图片参考文献^[11,121-122]。

3.3.1 主系统设计及实验实现

如图 3.2 所示, 我们考虑中心激光频率为 ω_L 的皮秒光学脉冲输入, 其光谱带宽为 δf_{in}^L , 时间持续为 τ_0 , 电场的正频率部分表示为 $\mathbf{E}_{in}(t)$ 。在空间上, 该输入光为高斯型, 具有准直腰宽 w 和波矢量 \mathbf{k}_{in} 。如图 3.2 中所示, 入射脉冲首先被一声光调制器 (AOM) 衍射 (I)。该 AOM 受多个射频 (rf) 频率 $\omega_i (i = 1, \dots, N)$ 驱动。在驱动功率较小的线性区域, 对于每个射频频率 ω_i , AOM 晶体中会产生

对应频率的声波，并以此形成疏密相间的“声波光栅”对入射光产生衍射。与布拉格衍射原理相一致，此声光衍射效应将在衍射角 $\theta_i = \omega_i / |\mathbf{k}_{\text{in}}| v_s$ (v_s 为 AOM 晶体中的声波传输速率) 上产生 $\mathbf{E}_i^{(1)} = A_i e^{i\varphi_i^c} \mathbf{E}_{\text{in}}$ 的衍射子脉冲，且子脉冲振幅相位均由相应 ω_i 的射频振幅 $A_i \propto A_i^c$ 及相位 φ_i^c 决定。

在声光衍射之后，子脉冲 $\mathbf{E}_i^{(1)}$ 将由透镜系统聚焦，并在有效焦距 F 之后会聚至高斯腰宽 $w_G = \lambda F / \pi w$ 。其中 $\lambda = 2\pi / |\mathbf{k}_{\text{in}}|$ 为入射脉冲中心波长。为产生可调节的光学延迟，我们将一大面积光栅的中心位置置于此聚焦平面，并调节光栅角度使得子脉冲光束“反向衍射”，沿原路返回。由于光栅衍射带宽 $\delta f_G \gg \delta f_{\text{in}}^L$ (详见章节 3.3.5)，反向衍射并原路返回的光束将具有近乎时间反演的波前。通过将 AOM 对准透镜系统的输入焦点，可以使子脉冲获得与 ω_i 无关的光栅入射角 $\alpha = \text{asin}(\lambda/2d)$ (d 为光栅常数)。该衍射利用了光栅的“Littrow”结构^[123] 以获取最大的反向衍射效率。我们考虑另一束 ω_i 相关的子脉冲光路，两束子脉冲光路将在光栅不同位置处反向衍射，且反射位置的距离轴向可以表示为 $\Delta L_i = \theta_i \tan(\alpha) F$ 。从而原路返回的光路将会获得两倍于此距离的光程差，并产生相应光学延迟：

$$\tau_i = \frac{\omega_i \lambda}{v_s} \frac{F}{\pi c \sqrt{4d^2/\lambda^2 - 1}}, \quad (3.2)$$

且不引入延迟相关的相移。

基于时间反演的对称性，反向衍射的 $\mathbf{E}_i^{(1)}$ 通过焦距 F 的透镜组后，将再次在 AOM 处发生对应于 ω_i 的声波频率的衍射，并且其衍射效率与第一次衍射基本一致。二次衍射后的子脉冲电场可表示为 $\mathbf{E}_{i,\text{out}} = A_i e^{i(\varphi_i^c + \delta\varphi_i^c)} \mathbf{E}_i^{(1)}$ 。这里 $\delta\varphi_i^c = \delta\varphi_i^c(\omega_i)$ 为子脉冲在不同的传播光路中，相位随不同延时 τ_i 而导致的变化。出射光的波矢满足 $\mathbf{k}_{\text{out}} = -\mathbf{k}_{\text{in}}$ ，因此依旧保持单模性质，可被单模光纤收集。考虑系统整体光路损失系数为 κ (包括光栅衍射损失、单模光纤耦合损失、元件透射损失)，则整形后输出的光脉冲序列可表示为：

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_{\text{out}}(t) &= \kappa \sum_i^N \mathbf{E}_{i,\text{out}}(t), \\ &= \kappa \sum_i^N A_i^2 e^{i\varphi_i} \mathbf{E}_{\text{in}}(t + \tau_i). \end{aligned} \quad (3.3)$$

式 (3.3) 忽略了衍射导致的对皮秒脉冲的频移 (更精确的，该式可写为 $\mathbf{E}_{\text{out}}(t) = \kappa \sum_i^N A_i^2 e^{i\varphi_i} \mathbf{E}_{\text{in}}(t + \tau_i) e^{-2\omega_i t}$ ，但是不同于连续激光，声光频移对单个皮秒脉冲 (频谱展宽 ~ 30 GHz) 几乎没有影响，因而由 $e^{-2\omega_i t}$ 积累的相位可被安全忽略)。由式 (3.2) 及 (3.3)，我们可得到关系 $\tau_i \propto \omega_i$ 、 $A_i \propto A_i^c$ 以及 $\varphi_i = 2\varphi_i^c + \delta\varphi_i^c$ (由于对原子电偶极组合脉冲调控实验，我们更关心脉冲间的相对相位，为直观表示我们均默认初始相位偏移为 0)。因此子脉冲数量为 N 的出射脉冲序列参数 $\{A_i, \varphi_i, \tau_i\}$ 均可由相应射频参数 $\{A_i^c, \varphi_i^c, \omega_i\}$ 直接编程性一一控制，切换时间 $\sim 1\mu\text{s}$ 由 AOM 中的声速决定。基于这样的编程性质，此新型皮秒脉冲序列产生系统具有极高的

快捷及灵活性；同时，由于各子脉冲延迟线均经过相同的光学元件，该系统对元件相对振动导致的相位抖动也具有极高的免疫性。

在实验上，为实现图 3.2 所展示的系统，我们使用频谱变换极限下 $\tau_0 \approx 12$ ps 的皮秒锁模脉冲激光器 (Spectro-Physics Tsunami) 作为光源，其输出脉冲的电场含时形式为 $E_{\text{in}}(t) \sim \text{sech}(1.76t/\tau_0)^{[124]}$ 。脉冲中心波长 $\lambda = 795$ nm，重频 $f_{\text{rep}}^{(0)} = 80$ MHz，脉冲峰值功率 $P \approx 1$ kW。光斑以腰宽 $w \approx 1.5$ mm 入射脉冲序列生成系统，并由中心调制频率为 80 MHz，调制带宽 20 MHz 的 AOM (AA, MT110-B50A1.5-IR, 图中 I 部分) 衍射。为在 MHz 速率上重复实现整形，AOM 的射频驱动频率设置为 $\omega_i = 2\pi \times (f_{\text{rep}}^{(0)} + n_i \Delta f)$ ，其中 n_i 及 $\Delta f/\text{MHz}$ 为整数。射频信号 ω_i 由与激光器时钟同步后的射频信号源 (NOVATech 409B) 给出，且各信号输出通道由射频功率整合器 (Minicircuits 15542 ZFSC-24-1) 合并。在实验中，我们一般使用固定的 ω_i 组合，而射频振幅 A_i^c 及射频相位 φ_i^c 均可以极快的速度进行编程性的改变，并经过射频放大器放大后更新 AOM 中的声波。实验使用的 AOM 晶体 (TeO₂) 中声波速率 $v_s = 4260$ m/s。我们在接近带宽极限下驱动 AOM，其一级衍射的衍射夹角约有 $\Delta\theta_i \sim 5$ mrad 变化范围。基于式 (3.2) 中的相关介绍，这一系统设计的衍射夹角范围会通过光栅处的衍射位置而进一步限制延时范围，因而这里也可以通过使用声速 v_s 更小的声光偏转器 (AOD)^[125]，来实现更大的 ~ 30 mrad 的衍射夹角范围。

对于本工作中较小的 $\Delta\theta_i$ 范围，我们使用直径 $D = 50.4$ mm，焦距 $F = 750$ mm 的消色差透镜对衍射光束进行聚焦，使其以腰宽 $w_G = 130$ μm 会聚至光栅界面处。我们使用 2400 线/mm 的全息光栅 (图中 III 部分)，光栅常数 $d = 0.42$ μm 。通过 1/2 波片调节入射光的偏振，反向衍射的效率可以达到约 70%。在法拉第旋转器的作用下，两次通过 AOM 的光束偏振方向旋转 90°，可通过偏振分束棱镜 (PBS) 与输入光分离，随后耦合到单模保偏光纤作为输出。光纤耦合的效率约 $\sim 60\%$ ，与 ω_i 基本无关 (不同 ω_i 对应子脉冲的输出耦合效率差 $< 5\%$)。考虑光纤耦合、光栅衍射及元件反射等效率的损失，上述系统整体实际耦合效率 $|\kappa|^2 \sim 0.3$ (式 (3.3))。基于 $\Delta\theta_i$ 的变换范围，我们在实验上可以获得 $(\tau_d)_{\text{max}} \sim 100$ ps 的最大延时。而在实验实际所用的这一“较短”的延时范围内，式 (3.3) 中的相位关系 $\varphi_i = 2\varphi_i^c + \delta\varphi_i^c$ 可进一步简化为 $\varphi_i \approx 2\varphi_i^c$ ，其中，忽略量 $\delta\varphi_i^c = \omega\tau_i$ 造成的相位偏移约为 $\sim 1\%$ 。

3.3.2 脉冲序列后选取系统

由于入射脉冲重频 $f_{\text{rep}}^{(0)}$ 与 AOM 射频频率 $\omega_i/2\pi$ 具有频率差 $n_i \Delta f$ ，因而不同入射脉冲进入 AOM 时的声波相位将不一致，第 j 个入射脉冲产生的对应子脉冲序列之间会有额外的相对相位 $\delta\varphi^{(j)}(\omega_i) = 2\pi j(n_i \Delta f)/f_{\text{rep}}^{(0)}$ ，如图 3.3(a) 中所示。而以原子电偶极操控实验为目标，这些子脉冲序列时间间隔 $1/f_{\text{rep}}^{(0)} = 12.5$ ns 小

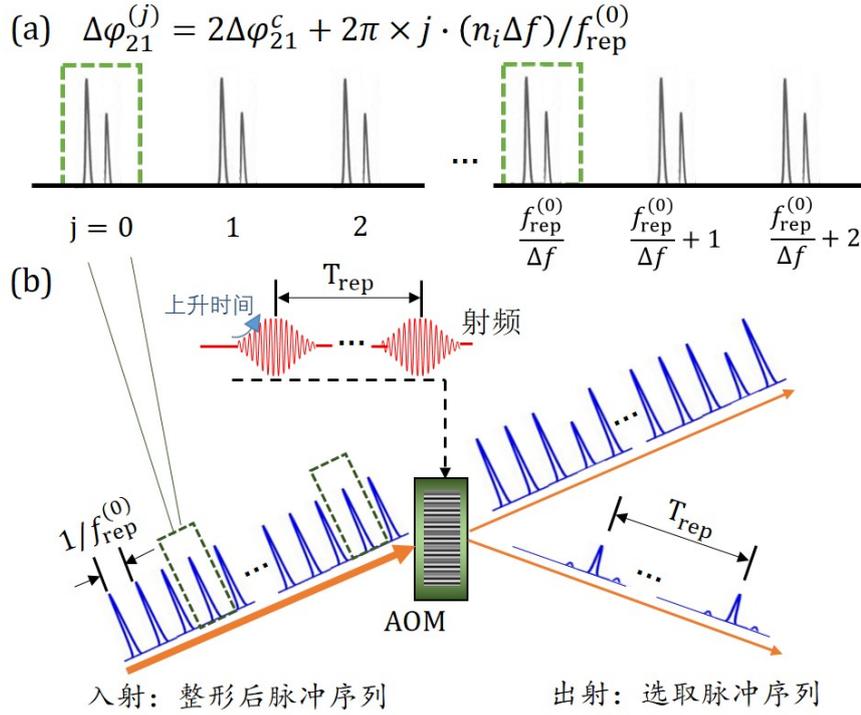


图 3.3 脉冲序列后选取示意图。(a) 以 $N = 2$ 的输出整形脉冲序列为例，由于脉冲重频 $f_{\text{rep}}^{(0)}$ 与射频频率 $\omega_i/2\pi$ 的频率差 $n_i\Delta f$ ，第 j 组整形脉冲序列的相对相位会有额外项 $\delta\varphi^{(j)}(\omega_i) = 2\pi j(n_i\Delta f)/f_{\text{rep}}^{(0)}$ 。因而仅当相差组数为 $f_{\text{rep}}^{(0)}/(\Delta f)$ 或其整数倍时（取 n_i 最小值 = 1），这些组的脉冲序列才具有相同的相对相位。因而选取的重复时间为 $T_{\text{rep}} = 1/\Delta f$ 或其整数倍。(b) 脉冲后选择系统示意图。为直观表示，图中光脉冲（蓝色）均代表整形后的一组任意子脉冲序列（如图 (a) 中所示）。在图 (b) 中我们还图示了脉冲选择效率 η_p ，及相邻脉冲抑制比 ϵ_p ，虽然理想参数为 $\eta_p = 1$ ， $\epsilon_p = 0$ ，实际操作中，对 10 ns 级重频周期脉冲，这些指标均受限于 AOM 带宽，常在有 $\eta_p \sim 60\%$ ， $\epsilon_p = 0.01$ 级别。本工作中的自制脉冲选择器这些指标稍差，为 $\eta_p \sim 20\%$ ， $\epsilon_p \sim 1/6$ ，受当时实验室射频元件带宽限制。

于实验所用原子的自发辐射半衰期 $1/\Gamma \approx 26\text{ns}$ （以 Rb 原子 D 线为例），从而会对原子态的操控产生相干影响，导致电偶极操控的复杂性。因而为获得特定相对相位组合 φ_i^c 的输出脉冲序列 \mathbf{E}_{out} ，还需要进一步对整形后脉冲序列进行后选择——即选出 $\delta\varphi^{(j)}$ 为 2π 周期的子脉冲序列。

在实验上，对于上述生成的脉冲序列，我们使用另一 AOM（AA，MT350-0.12-800，工作射频频率 330MHz），在时域上以周期性衍射的方式来实现这一脉冲序列选取，该系统如图 3.3(b) 中所示。这一后选择过程需以周期 $T_{\text{rep}} = 1/\Delta f$ （或整数倍）进行，以保证选出子脉冲序列具有相同的相对相位。例如在主整形系统中，我们通常以 $\omega_i = 2\pi \times (64, 72, 80, 88, 96, 104)$ MHz（对应 $\Delta f = 8$ MHz）的多重射频进行脉冲整形实现 $N = 6$ 子脉冲序列，则此时后选择须以 $T_{\text{rep}} = 125$ ns

或其整数倍进行。

3.3.3 调制带宽及延时极限

以上我们介绍了基于“倒空间-时间直接转换”皮秒脉冲整形方案的“第一代”多皮秒脉冲产生技术。该方案和传统 FTPS, AOPDF, DSTPS 等方案的对比已经在第3.2小节讨论。接下来, 我们首先就该方案在皮秒脉冲整形应用中的技术极限予以讨论。

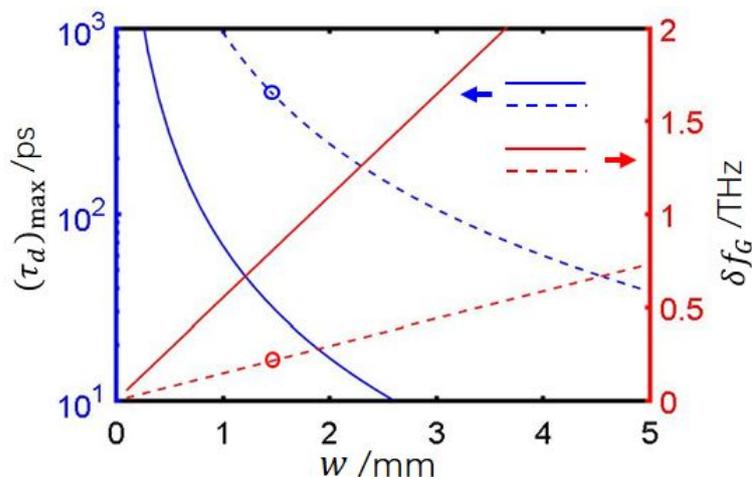


图 3.4 对于具有不同透镜焦距 F ($F = 200$ mm, 实线; $F = 750$ mm, 虚线) 的脉冲序列生成系统, 最大延时 $(\tau_d)_{\max}$ (基于瑞利长度 $z_{R,G} = \lambda F^2 / \pi w^2$) 和 δf_G (基于光栅处光斑 $w_G = \lambda F / \pi w$) 与 AOM 处输入激光的高斯腰宽 w 的对比。图中激光输入波长 $\lambda = 0.8 \mu\text{m}$, 光栅为 2400 line/mm, 其光栅常数 $d = 0.42 \mu\text{m}$ 。红色及蓝色圆圈表示了本文上述所用系统的极限。通过 δf_G 我们可以推算延时分辨率 $(\tau_d)_{\min} = \pi / (2\delta f_G)$ 。图片参考文献^[11]。

对于光束在光栅位置 (图 3.2 II 部分) 处的反向衍射的延迟生成, 我们考虑系统所在的“宽带区”下的单模光栅衍射输出, 此时光栅衍射带宽 $\delta f_G = \sqrt{4d^2/\lambda^2 - 1}c / (\pi w_G)$ 远大于入射脉冲光谱展宽 δf_{in}^L 。这里 δf_G 由每个子脉冲与光栅相互作用的持续时间决定, 且子脉冲在光栅处的高斯束腰 $w_G = \lambda F / \pi w$ 。与图 3.2 一致, 我们标记 w 为入射脉冲序列生成系统的光斑高斯束腰, F 为透镜系统有效焦距, d 为光栅常数, λ 为入射激光波长。在 $\delta f_G \gg \delta f_{\text{in}}^L$ 的范围中, 光栅的反向衍射仅仅贡献于功率损失系数 κ (参考式 (3.3)), 而不引起色散影响 $E_{i,\text{out}}$ 的光谱相位。因此, 最大延时 $(\tau_d)_{\max}$ 只受到这一反向衍射的效率限制, 即由聚焦高斯光束在光栅位置处的瑞利长度 $z_{R,G} = \pi w_G^2 / \lambda$ 所决定, 此时最大延时 $(\tau_d)_{\max} = 2z_{R,G} / c = 2F^2 \lambda / (\pi w^2 c)$ 。

每两个子脉冲之间的最小延时 $(\tau_d)_{\min}$ 由 AOM 衍射夹角与入射光发散角决

定, 即由 AOM 频率分辨率 $\Delta\omega = 2v_s/w$ 决定。基于式 (3.2) 的表达, 最小延时可以写为 $(\tau_d)_{\min} = 2\lambda F/(\pi w c \sqrt{4d^2/\lambda^2 - 1})$ 。从而有 $(\tau_d)_{\min} = \pi/(2\delta f_G)$ 。对于频谱变换极限下的 sech^2 形式脉冲, 脉冲脉宽 τ_0 和频谱展宽 δf_{in}^L 满足 $\delta f_{\text{in}}^L \approx 0.315/\tau_0$ 。由于上述关系 $\delta f_G \gg \delta f_{\text{in}}^L$, 从而本系统中最小延时 $(\tau_d)_{\min} \ll \tau_0$ 。这说明本系统也可以输出非孤立的脉冲序列, 实现任意的脉冲波形整形。因此, 本系统输出的任意脉冲序列特写可归结为: 持续时间 $\tau_c \leq (\tau_d)_{\max} + \tau$, 调制带宽 $\delta f_M = \delta f_{\text{in}}^L$, 由入射脉冲带宽决定。

具体举例, 在图 3.4 中我们绘制了在不同条件下, 由 w_G 限制的 δf_G 及由 $z_{R,G}$ 限制的 $(\tau_d)_{\max}$ 与入射脉冲高斯高宽 w 的关系曲线。我们用圆圈标记了在本实验条件下 ($F = 750 \text{ mm}$, $w = 1.5 \text{ mm}$) 的 $(\tau_d)_{\max}$ 与 δf_G 参数, 得到最大延时 $(\tau_d)_{\max}$ 达到 10^2 ps 皮秒级别 (实际还需考虑元件尺寸), 最小延时 $(\tau_d)_{\min} \approx 6 \text{ ps}$, 且具有 $\delta f_M = \delta f_{\text{in}}^L \approx 30 \text{ GHz}$ 的调制带宽。通过提高 F/w 比率, 适度减少 δf_G , 本系统设计也可以将最大延时 $(\tau_d)_{\max}$ 提升至纳秒级别。

3.3.4 脉冲调制的系统效率

类似于所有频域上的线性光学滤波器, 本系统设计的 N 个相同振幅的单模输出子脉冲序列具有理论效率极限——总能量 $\eta_E \sim |\kappa|^2 \sum |A_i|^4 \sim 1/N$ 。对于峰值功率相同的 N 个脉冲, 其峰值功率极限则为 $\eta_P = |\kappa|^2 \langle |A_i|^4 \rangle \sim 1/N^2$ 。我们可以从光谱层面对这一极限进行简单理解——在恒定的脉冲光谱密度下, N 个相位一致的子脉冲序列展宽会变为原单个脉冲展宽的 $1/N$, 因此总能量也相应降为 $1/N$ 。具体到本系统光路中, 对 N 个子脉冲序列的衍射, 此时 AOM 上的射频频率为 ω_i ($i=1,2,\dots,N$)。以 \mathbf{k}_{in} 入射的光束在每次衍射时均以相应角度 θ_i 等效率衍射。原路返回的子光束在第二次衍射时, 仅有两次衍射均以角度 θ_i 衍射的组分沿 $-\mathbf{k}_{\text{in}}$ 方向出射, 其余组分 (即两次衍射分别以 θ_i 、 θ_j , 且 $i \neq j$) 将无法被单模光纤收集。因此, 沿 $-\mathbf{k}_{\text{in}}$ 方向的出射脉冲序列能量占比为 $\sim 1/N$, 各子脉冲峰值功率 $\sim 1/N^2$ 。

由章节 2.2.1 讨论, 组合脉冲的脉冲面积 $\mathcal{A} \sim E d_{\text{eg}} \tau \propto \sqrt{I}$ 。激发原子的光强 I 足够强, 是高效容错操控的基础。对于 N -脉冲调控, 由上述讨论, $I \leq P/N^2 w_a^2$, 这里 P 是入射锁模脉冲光功率, 而 w_a 是可以照明原子样品的应用光斑大小。显而易见的是, 虽然组合脉冲理论预期量子调控能力随 N 增强, 实际操作中调控所需的激光功率 P 随 N 快速增长, 而相同功率 P 下所能控制样品体积也会迅速减小。例如, 对于 $N > 10$ 的 Rb 原子 D 线调控来说, $P = 10^3 \text{ W}$ 级锁模激光仅能支持 $w_a \sim 5 \mu\text{m}$ 的应用光斑大小, 而更加复杂的脉冲原则上可以在本论文第四章纳光界面实现。如章节 4.3, 这里希望强调的是, 即使是 $N = 5$ 操控, 已经可以获得非常好的容错效果。

3.3.5 第一代系统的主要问题

· 多频声光调制中的非线性耦合

在上述介绍中，式 (3.3) 所表示的射频 $\{A_i^c, \varphi_i^c\}$ 与输出脉冲序列 $\{A_i, \varphi_i\}$ 映射关系仅对应于线性工作区域，即系统须以小射频信号驱动。此时，在信号源-射频信号功率整合器-信号放大器-AOM（射频信号转变为声波信号）这一系列信号传输过程中（图 3.2），各频率成分信号线性叠加，满足 $V = \sum_i A_i^c \cos(\omega_i t + \varphi_i^c)$ ，从而使得 AOM 中的声波振幅与所对应的 ω_i 的射频振幅 A_i^c 呈线性对应关系。然而当射频信号振幅增加，又或者频率数量增加时（对应于更多的子脉冲数 N ），总信号强度增加，此时会产生两种非线性耦合：

其一，受入射光束总功率限制，衍射脉冲振幅 A_i 随 A_i^c 的上升会趋于饱和，衍射效率与其他频率射频驱动的衍射光耦合，我们称此种非线性耦合为“第一类非线性耦合”；

其二，叠加后的大射频信号波形在经过放大器、AOM 等元件时受器件功率上限限制而发生形变，导致振幅、相位偏离，同时在频谱上产生额外边带，称为“第二类非线性耦合”。

这两种非线性耦合将导致生成的光脉冲参数 $\{A_i, \varphi_i\}$ 不再满足式 (3.3) 关系，难以用数学函数形式准确表达。实验上，我们通过对不同射频振幅下光束衍射效率的测量发现，在 AOM 单次总衍射效率小于 20% 时，式 (3.3) 的映射关系可以完全满足，此时系统处于线性的“小信号区域”。

非线性耦合是我们这一代系统的主要不足之处之一。但另一方面，非线性耦合并不改变 $\{A_i^c, \varphi_i^c\}$ 与 $\{A_i, \varphi_i\}$ 的一一映射关系。由于本系统设计所有子光路共享相同的光学元件从而具有的极高稳定性，我们也可以通过算法建模或实验预测测量的方法，基于实测构建出这一映射，从而实现在非线性区域的精确控制。这也是我们后续对这一系统进行改进的思路之一。

· 多频衍射效率

规避上述非线性声光耦合的最简单方法，是将图 3.2 中的声光衍射元件工作区间限制于小信号射频驱动。例如，接下来我们要介绍的在“第一代”系统的相关实验中（第 3.6 小节，第四章），根据脉冲数 N 需求，单次 AOM 衍射效率 $|A_i|^2$ 常设置在 1% ~ 5%。但这样的设置显然导致了实际输出效率远低于理论脉冲调制效率。

· 脉冲选择效率和相邻脉冲抑制比

此外，如上述脉冲序列后选择系统的介绍，在对锁模激光重频降频的过程中我们也选择运用声光调制。然而 $f_{\text{rep}}^{(0)} = 80 \text{ MHz}$ 的高速运转已经接近商用 AOM 脉冲选择能力的极限。而我们自制的脉冲选择器效率更低，仅达到 $\eta_p = 20\%$ （受

射频元件限制, 理论极限在 $\eta_p = 60\%$ 左右)。同时, 射频信号的切换时间也进一步导致了相邻脉冲序列的抑制比难以降低, 使得 $\epsilon_p \approx 1/6$ 。

· 其他效率问题

同时, 考虑到光栅衍射、光纤耦合、元件透射率等因素综合影响, 本系统最终的脉冲输出效率约为 $\eta_p \sim 10^{-5}$ 。对于实验上峰值功率 $P \approx 1 \text{ kW}$ 的脉冲入射, 在生成 $N = 5$ 脉冲序列时, 各脉冲峰值功率 $\sim 10 \text{ mW}$ 。

3.4 “第二代”皮秒组合脉冲生成系统

针对上述“第一代”系统在多脉冲独立编程, 脉冲整形效率等方面的局限, 我们重新设计并替换了主整形系统的衍射部分光路, 形成了“第二代”皮秒组合脉冲生成系统。经过系列技术更新, 该系统目前在 $N \leq 5$ 组合脉冲生成方面的可编程性及功率利用率接近理论极限。同时, 该系统运用基于 4-F 成像的组合声光调制方案^[65,126-127], 拥有优异的相邻脉冲序列抑制比。

3.4.1 主系统升级——组合声光调制

我们首先考虑提高主整形系统 (图 3.2) 中 AOM 的衍射效率, 其因受限于非线性耦合而只能工作在小信号区域下, 升级方案如图 3.5(a) 中所示。我们借鉴 4-F 成像系统, 将多个 AOM 在空间上级联。后续 AOM 在 4-F 透镜系统的作用下, 精确成像于第一个 AOM 的轴向位置处。我们通过调整每个 AOM 上的工作频率 ω_i 及 AOM 对入射光的角度, 使得所有 AOM 仅对 0 级光 (即入射光, 图中红线光束) 进行衍射, 相互不具有光路耦合效应。

这里的光路耦合效应指的是前项 AOM 的一级衍射分离处出子脉冲在后续 AOM 中发生多次衍射。在上文的 AOM 衍射中, 我们均考虑的是近接于波矢匹配的布拉格衍射——即设入射光波矢为 \mathbf{k}_a , 出射光波矢为 \mathbf{k}_b , AOM 晶体中声波波矢为 \mathbf{k}_s , 则满足 $\mathbf{k}_a - \mathbf{k}_b \approx \pm \mathbf{k}_s$ 。在这一代设计中, 通过对每个 AOM 上的工作频率 ω_i 及光束入射角度的设计, 我们可以使得前项 AOM 的衍射光在入射后续 AOM 时的角度远偏离其布拉格衍射匹配条件 ($|\mathbf{k}_a - \mathbf{k}_b \mp \mathbf{k}_s| \gg \frac{2\pi}{L_s}$, L_s 为声光晶体有效长度), 因而这些衍射光在后续 AOM 上的衍射效率将被抑制。

我们将这些由 4-F 透镜系统级联起来的组合声光调制系统替换“第一代”整形系统中的单个 AOM (图 3.2 中 I 部分)。同时, 每个 AOM 由各自独立的射频线路驱动。相比于“第一代”系统中 N 个不同频率的射频工作集中在单个 AOM 上的设计, 这一升级方案将射频分量分散于多个 AOM 上, 使得每个 AOM 驱动路线上的射频总功率降低, 抑制了章节 3.3.5 中所述的“第二类非线性耦合”。在这一方案基础上, 我们可以提高相应射频振幅 $\{A_i^c\}$ 来提高 AOM 衍射效率。

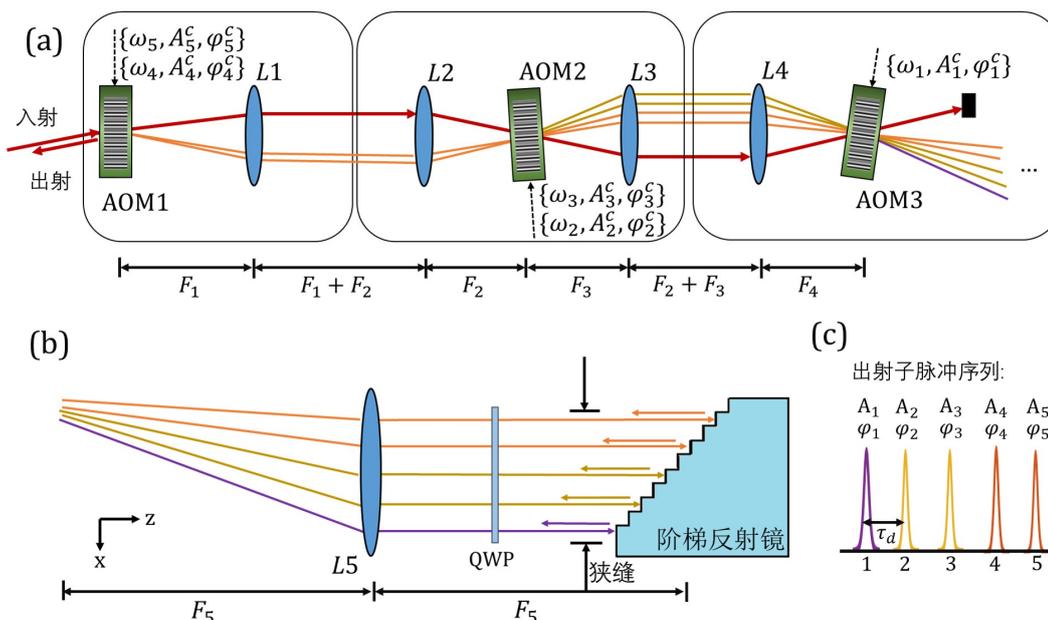


图 3.5 “第二代”整形系统升级光路示意图（以 $N = 5$ 光路为例）。(a) 基于 4-F 透镜成像的组合 AOM 声光调制示意图。其中，在 AOM1、AOM2、AOM3 的上射频率分别为 $\omega_{4,5}/2\pi = 80, 96\text{MHz}$ ， $\omega_{2,3}/2\pi = 96, 128\text{MHz}$ ， $\omega_1/2\pi = 64\text{MHz}$ ；L1、L2、L3、L4 分别为焦距 $F_{1,2,3,4} = 100, 50, 50, 50\text{ mm}$ 的消色差透镜。红色光束为入射 0 级光束，其余颜色光束为对应 AOM 产生的一级衍射。(b) 阶梯反射镜结构俯视示意图。每阶镜面宽度 $\sim 0.55 - 0.6\text{ mm}$ ，阶梯步距 $\delta L \approx 0.3\text{ mm}$ ，对应每阶上的反射脉冲延时 $\sim 20\text{ ps}$ ，反射率 $> 99\%$ 。透镜 L5 焦距 $F_5 = 200\text{ mm}$ 。QWP: 1/4 波片。(c) $N = 5$ 子脉冲序列输出示意图，子脉冲颜色对应于 (a)(b) 中的光路。

在这一代系统中，我们还将用于反向衍射的光栅（图 3.2 II 部分）替换为定制的阶梯型反射镜，如图 3.5(b) 中所示。阶梯镜整体倾角与光栅倾斜角度 α 一致，因此本系统仍满足式 (3.2) 的各子脉冲延时 τ_i -射频频率 ω_i 对应关系，区别在于， ω_i 须以特定的离散值输入，使得子光路光斑均位于反射镜各阶梯中心附近。通过用阶梯反射镜（反射率 $> 99\%$ ）替换光栅，可以降低由光栅衍射（ $\sim 70\%$ ）带来的功率损失。同时，反射镜不对光束偏振有选择性，“第一代”系统光路中的法拉第偏转器（实验中发现该元件表面存在反射会降低系统整体效率）也可换为 1/4 波片，用于后续出射光与入射光的偏振分束。考虑到实际组合脉冲容错调控实验中，我们更关心的是子脉冲序列的输出功率，及振幅和相位 $\{A_i, \varphi_i\}$ 的灵活调整，无需对延时 τ_d 进行连续性调整，因此这一升级更契合我们实验需求。

我们以 $N = 5$ 光路为例，具体介绍实际实验构建。在实验上，我们使用 3 组 AOM 进行 4-F 成像级联（图 3.5(a)）。其中 AOM1（AA, MT110-B50A1,5-IR）上工作射频频率 $\omega_{4,5}/2\pi = 80, 96\text{ MHz}$ ，AOM2（清津, Z-780-120-L-D1-T-A-K）上

射频频率 $\omega_{2,3}/2\pi = 96, 128 \text{ MHz}$, AOM3 (清津, Z-795-80-L-D2-T-A-K) 上射频频率 $\omega_1/2\pi = 64 \text{ MHz}$ 。使用透镜均为直径 25.4 mm 的消色差透镜, 其中 L1 焦距 $F_1 = 100 \text{ mm}$, 透镜 L2、L3、L4 焦距 $F_{2,3,4} = 50 \text{ mm}$ 。如章节 3.3.1 中所述, 注意到 AOM 衍射角 $\theta_i = \omega_i/|\mathbf{k}_{\text{in}}|v_s$, 又 $F_1 = 2F_{2,3,4}$, 从几何关系我们可以得到 AOM1 的衍射角在后续成像时会被放大两倍。为直观考虑, 我们可以认为在等焦距的系统下, AOM1 上的等效射频频率为 $\tilde{\omega}_{4,5} = 2 \times \omega_{4,5}/2\pi = 160, 192 \text{ MHz}$ (在实验上我们如此设计的原因是考虑到实验室已有 AOM 元件, 及射频源 $\leq 170 \text{ MHz}$ 的信号频率范围)。与章节 3.3.1 中的“第一代”系统一致, 我们使用 $\tau_0 \approx 12 \text{ ps}$ 的皮秒锁模脉冲入射, 其中心波长 $\lambda = 795 \text{ nm}$, 脉冲重频 $f_{\text{rep}}^{(0)} = 80 \text{ MHz}$, 光斑腰宽 $w = 1.5 \text{ mm}$ 。我们调节各 AOM 相对 0 级入射光的夹角, 使 AOM 1,2,3 分别在 $\omega/2\pi = 80$ (等效 160), 120, 60 MHz 时具有最优布拉格衍射相位匹配条件。此时由任意 AOM 衍射的光束在其余两个 AOM 中的入射波矢方向将远偏离其布拉格匹配条件, 衍射光再次被衍射的效率 $< 1\%$, $N = 5$ 的子脉冲均由 0 级光衍射分出。

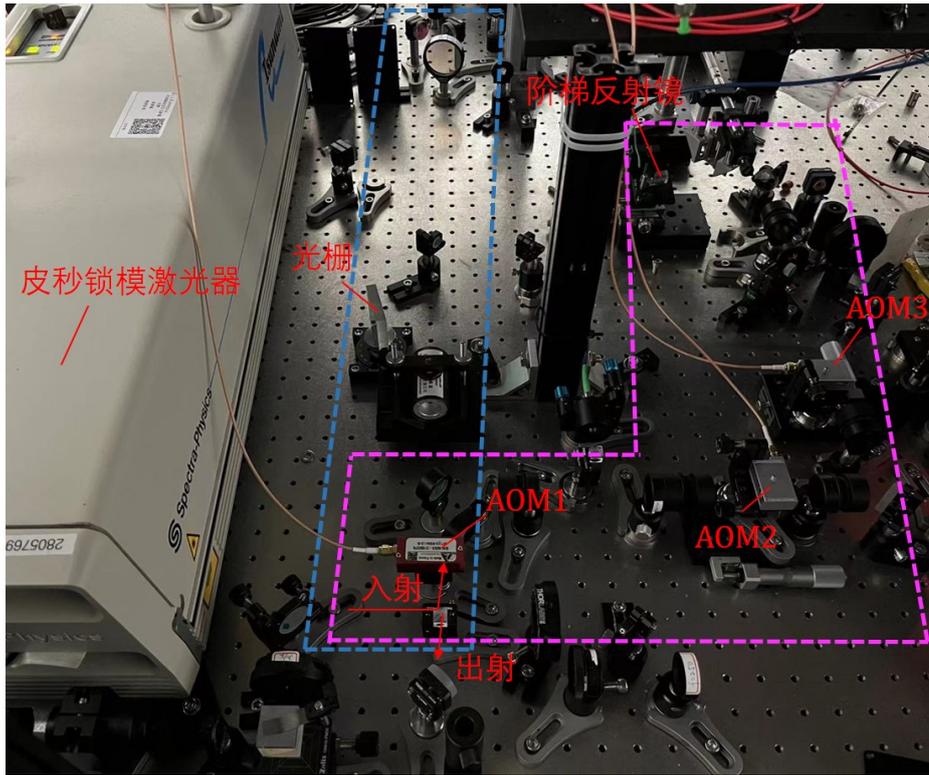


图 3.6 “第一代”与“第二代”皮秒脉冲序列任意生成系统实物图。其中, 蓝色和紫色虚线区域分别标记“第一代”和“第二代”系统, 两者共享了其中一 AOM (图中 AOM1), 并可由一翻转反射镜进行切换。

所有衍射子脉冲经由直径 50.4 mm , 焦距 $F_5 = 200 \text{ mm}$ 的消色差透镜聚焦, 会聚在相距 F_5 后的阶梯型反射镜上 (反射镜轴向长度小于光束的瑞利长度), 经

反射后原路返回。与“第一代”系统设计同理，各子脉冲经 AOM 各自发生二次衍射合束，以波矢 $\mathbf{k}_{\text{out}} = -\mathbf{k}_{\text{in}}$ 输出到单模光纤中。整形后脉冲序列波形如图 3.5(c) 所示。在上述频率 ω_i 及透镜焦距 F_5 设置下，我们可调整子脉冲光斑中心均基本位于反射镜各阶梯镜面中心，且相邻光束反射面相距两个阶梯，对应延时 $\tau_d = 40$ ps。特别的，该阶梯反射镜还被置于一绕 z 方向可转动的位移台上，以精确调节和匹配各子光路中心位置。在图 3.6 中，我们展示了“第一代”与“第二代”皮秒脉冲整形方案的实际光学系统，两者可通过一可翻转反射镜进行切换。

本代系统输出脉冲序列的相对相位依旧满足 $\varphi_i = 2\varphi_i^c$ (式 (3.3))；但受限于衍射光总功率及各 AOM 衍射的先后关系，脉冲振幅 A_i 将不仅受各自 A_i^c 控制，即章节 3.3.5 中所描述的“第一类非线性耦合”仍旧存在。我们将在本章后续章节 3.4.3 中阐述对这一映射关系的实验控制方案。

3.4.2 脉冲后选取系统升级——干涉预降频

在章节 3.3.2 中 (图 3.3)，我们介绍了一种利用 AOM 声光衍射选取特定脉冲序列的方法。然而在实际实验中，对于重频高达 $f_{\text{rep}}^{(0)} = 80$ MHz 的入射脉冲序列，受限于射频信号开关的上升时间 (~ 10 ns)，这一方式仅能在 $\sim 20\%$ 的效率下以 $\sim 1/6$ 的抑制比实现对整形后脉冲序列的选取。此不理想的实际选取方案一方面影响整体脉冲整形输出效率，另一方面未完全关闭的前后子脉冲序列也会对部分实验造成干扰。

在这一章节中，我们将介绍一种对入射脉冲重频 $f_{\text{rep}}^{(0)}$ 进行降频的系统升级方案。这一方案能够在选取之前先将脉冲序列重频 $f_{\text{rep}}^{(0)}$ 降为 $f_{\text{rep}}^{(0)''} = f_{\text{rep}}^{(0)}/4$ ，使得其周期大于图 3.3 所示的脉冲序列后选取系统中的射频上升时间。从而可以在保证脉冲抑制比的条件下，让选取系统以更大的射频振幅进行衍射，而实现更效率的选取。

该方案主要借鉴了我们实验室相关工作中的双路声光干涉技术^[65,127]来实现脉冲重频的高速预分频，其光路基本构成如图 3.7(a) 中所示。需要特别指出的是，这一方案本身也是基于组合脉冲的思想^[65]。

同样基于声光衍射原理，我们利用 AOM 对入射脉冲序列实现衍射。通过调整射频振幅，我们使一级衍射光功率与 0 级透射光功率一致 (即衍射效率 $R = 50\%$)。衍射后，一级衍射光附加射频相关光学相位 $\varphi_1(t) = \omega_s t + \varphi_1(0)$ 。透射光与衍射光同时经透镜聚焦于同一垂直光轴的反射镜上，反射后光束沿原路反回并再次于 AOM 中发生二次衍射。我们考虑出射端“B”，此单模输出光路包含等功率的两部分脉冲序列：即两次衍射过程中均 0 级透射，或发生两次一级衍射。因此这两部分的相位差可表示为：

$$\Delta\varphi_{1,0}(t) = 2\omega_s t + \Delta\varphi_{1,0}(0). \quad (3.4)$$

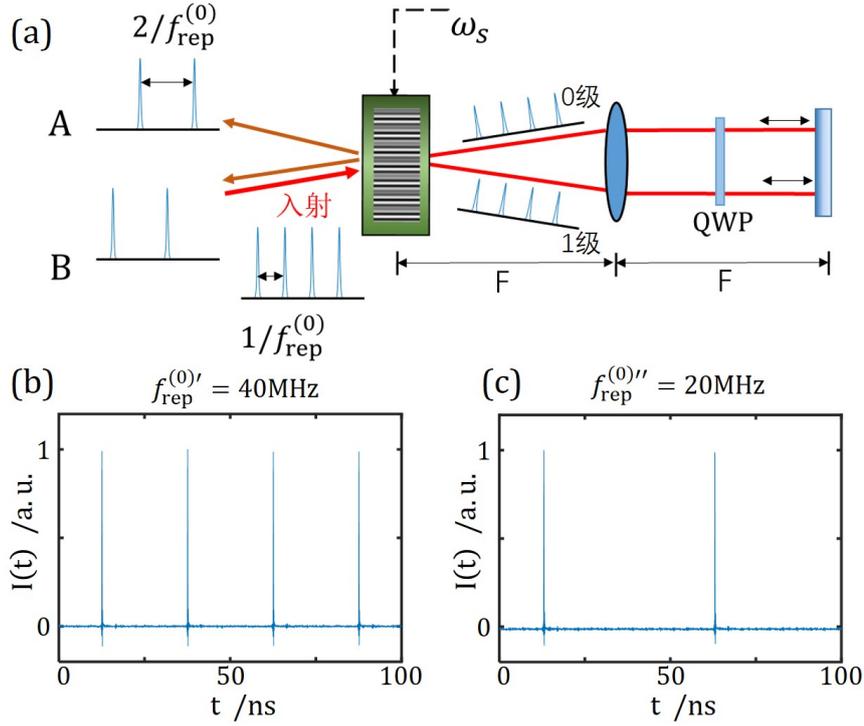


图 3.7 (a) 脉冲重频分频系统示意图。对输入重频为 $f_{\text{rep}}^{(0)}$ 的脉冲，该系统可将重频降为 $f_{\text{rep}}^{(0)'} = f_{\text{rep}}^{(0)}/2$ 并分为两路分别输出。其中 AOM 射频频率需满足关系 $\omega_s = \pi f_{\text{rep}}^{(0)}(2n + 1)/2$ (n 为正整数)。实验上我们将两套此系统串联使用（第一套系统的出射 A 作为第二套系统输入），实现 $f_{\text{rep}}^{(0)''} = f_{\text{rep}}^{(0)}/4$ 的降频。所用透镜为直径 25.4 mm，焦距 $F = 100$ mm 的消色差透镜。图中单个脉冲均可同理替换为整形后的组合子脉冲序列。QWP: 1/4 波片。在图 (b) 和 (c) 中，我们分别绘制了降频后 $f_{\text{rep}}^{(0)'} = 40$ MHz 及 $f_{\text{rep}}^{(0)''} = 20$ MHz 的脉冲光强时域波形。我们使用带宽 12GHz 的光电探测器对通道 A 的输出脉冲进行探测，并在 40GHz 采样率下用示波器进行采集，图片波形取自 10 μ s 数据平均。

我们设置射频频率满足关系

$$\omega_s = \pi f_{\text{rep}}^{(0)}(2n + 1)/2, \quad (3.5)$$

其中 n 为正整数，并通过射频相位调整初始相位差 $\Delta\varphi_{1,0}(0)$ ，可以使得对脉冲间隔 $\Delta t = 1/f_{\text{rep}}^{(0)}$ 的两个相邻脉冲分别实现干涉相长及干涉相消（对应相位差为 $0, \pi$ ）。从而在输出端“B”的实现脉冲序列的重频分频 $f_{\text{rep}}^{(0)'} = f_{\text{rep}}^{(0)}/2$ 。通过调节光路中的 1/4 波片，可以使出射光偏振将与入射光垂直，因而可再通过 PBS（图中未画出）等偏振元件将“B”端口出射光分离。同理，我们若考虑出射端“A”（此单模输出光路包含的两部分则为：两次衍射过程中，分别发生一级衍射、透射，以及分别发生透射、负一级衍射），同样也可以得到与式 (3.4) 一致的相位差关系。

出射端 A、B 将分别输出互补的分频后脉冲序列，且输出脉冲峰值功率理论上与输入脉冲一致 $P_{peak}^{A,B} = \eta_r P_{peak}$ ，平均功率则为输入脉冲的一半 $P_{avg}^{A,B} = 0.5\eta_r P_{avg}$ （其中 $\eta_r \approx 1$ ）。由于这一系统设计中出射光依旧保持单模性质，因而理论上这样的系统设计可以进一步串联使用。而另一方面，这种设计也可反方向输入实现脉冲序列的重频倍频。

实验上，对于入射 $f_{rep}^{(0)} = 80$ MHz 的脉冲，我们利用工作频率 $\omega_{s,1} = 2\pi \times 100$ MHz 的 AOM (AA, MT110-B50A1,5-IR) 进行衍射分频。初次分频后，我们将 $f_{rep}^{(0)'} = 40$ MHz 的出射端 A 脉冲再次入射到另一套相同系统中，此时 AOM 射频频率设置为 $\omega_{s,2} = 2\pi \times 110$ MHz 的，二次分频后的出射端“A”的脉冲序列重频进一步下降为 $f_{rep}^{(0)''} = 20$ MHz。通过对出射及入射脉冲平均功率的测量，我们得到两次分频操作的实际效率均为 $\eta_r \approx 85 \sim 90\%$ 。在图 3.7(b)(c) 中，我们利用 12GHz 带宽高速光电探测器 (Thorlabs, DXM12DF) 对脉冲时域波形进行探测，在 13GHz 带宽高速示波器 (Agilent, DSA91304A) 40GHz 的采样率下，我们测得相邻脉冲的光强最佳抑制比均可达到 1/1000。在一般实验条件下，这一抑制比通常能保持 3~5 小时，之后会逐渐漂移至约 1/100 级别，主要原因来自于图 3.7(a) 中末端反射镜与光路间的微小相对位移。

经过两次分频操作后，我们再将 $f_{rep}^{(0)''} = 20$ MHz 的整形后脉冲序列入射到后脉冲选择系统中。由于选取系统及预分频系统对前后脉冲的共同抑制，与所需脉冲序列相差 ± 50 ns 内其余脉冲序列光强均可被抑制至 1/10000 以下。在这样的抑制比下，我们对比选取前后的脉冲峰值功率，出射脉冲约为入射脉冲峰值功率的 $\sim 60\%$ ，接近实验用 AOM 的一级衍射效率极限。

3.4.3 脉冲输出“参数库”构成

基于上述“第二代”系统的全方面光学升级，其相比于“第一代”系统在输出效率方面——即便在线性区域的小信号条件下，也已有较大提升。但这一系统中，“第一类非线性耦合”依旧无法避免。这一节中，我们进一步给出在非线性区域（即不满足式 (3.3)）的射频参数 $\{A_i^c, \varphi_i^c\}$ -脉冲序列参数 $\{A_i, \varphi_i\}$ 的映射构成方案。

这一映射构成方案基于实验对部分参数点的测量以及对其余参数点的估测。具体的说，我们将首先在所需射频参数维度下均匀散布采样点，对这些特定参数下的光脉冲参数进行实验测量，之后通过插值的方法，对未测量点处的脉冲参数进行估计，由此建立“参数库”构成映射关系并应用于后续实验中。“参数库”的构成建立在整形系统可长达数天的相对稳定性上。

“参数库”构成的一个要点就是我们如何快速高效的测量光脉冲参数 $\{A_i, \varphi_i\}$ 。我们仍以上述 $N = 5$ ， $\tau_d = 40$ ps 的出射脉冲序列为例，首先考虑对于脉冲相位的测量。由于实际原子实验中造成影响的是脉冲间的相对相位，因此

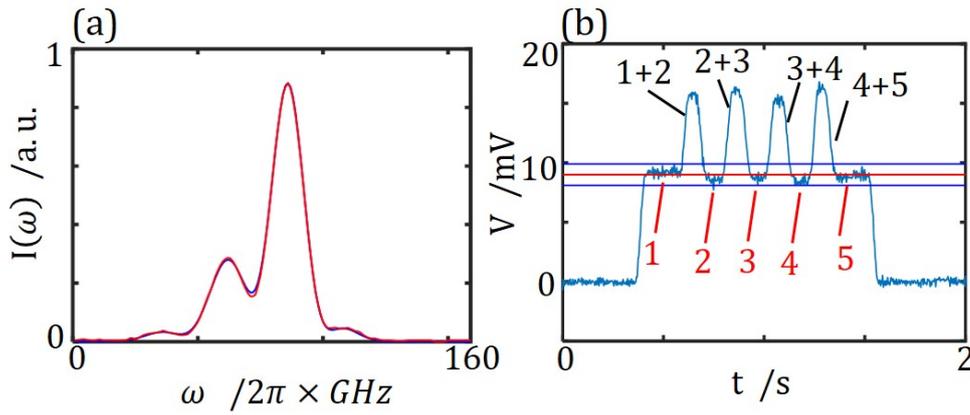


图 3.8 (a) 自制光栅光谱仪相机测得的光脉冲频域波形一维曲线（蓝色）及拟合曲线（红色）典型图，以间隔 $\tau_d = 40$ ps 的两子脉冲为例。这一过程中，我们首先对单脉冲的频域光强曲线拟合（图中未画出），获得实际脉冲修正形状。两个脉冲间的相对光强直接由后续图 (b) 中介绍的方法读取，通过拟合我们可以获得特定频率基准下的两脉冲的相对相位（相位拟合误差小于 0.1π ）。(b) 在 $N = 5$ 脉冲序列光路中，阶梯反射镜前的狭缝（缝宽允许两束子光路通过）移动一次所形成的光强变化图。这里我们绘制的是脉冲峰值光强连线形成的波形包络。图中“平台”即对应单个脉冲（由相应数字标记）的峰值光强，可直接读出。另外我们通过自动调节射频振幅，将各子脉冲强度控制在图中蓝色-红色-蓝色直线标记的电压范围内。

我们将这一过程简化为测量 $\Delta\varphi_{i,j}^c$ 到 $\Delta\varphi_{i,j}$ ($i \neq j$) 的映射关系。为测量皮秒级超高速脉冲间的相对相位，我们利用频谱分辨率约为 $7 \sim 8$ GHz 的自制光栅光谱仪^[128]对选取后子脉冲序列频谱信号进行测量，并通过拟合光谱仪相机上的频域光强分布，还原脉冲相对相位差（相关脉冲序列的频谱性质可见后续3.5章中的测量及分析）。由于所用光谱仪分辨率限制，间隔 80 ps 及以上的两个次相邻脉冲在光谱仪相机上的图像偏离真实。因此，实验上对于 $N = 5$ 脉冲序列，我们采取对相邻子脉冲（即 $j = i + 1$ ）两两分别测量的方法，并通过累加得到任意两子脉冲相位差。这里我们利用了图 3.5(b) 中的狭缝设计（狭缝被置于阶梯型反射镜前）。狭缝的缝宽被调整到允许两路子光束穿过，而挡住其余三束光。我们将该狭缝置于一 x 方向（垂直光轴）运动的电动位移台上，通过编控制位移台，我们可以在不对整形脉冲输出造成额外影响的情况下，对任意两相邻脉冲进行快速测量。在图 3.8(a) 中，我们以 $N = 5$ 整形脉冲序列中的第 1、2 个脉冲光谱为例，展示典型情况下的光谱相位拟合还原。

在电动位移台沿 x 方向往返移动期间，我们还可以利用上述高速光电探测器及高速示波器记录峰值光强变化，其典型信号如图 3.8(b) 中所示。由于狭缝宽度

的限制，移动过程中采集到的光强信号有两种情况：单脉冲光强或相邻两脉冲叠加。在图中我们直接用第 i 个脉冲标记了信号的来源。由此我们可以直接读取当前参数下，每个子脉冲的峰值功率（这里我们省略了从信号电压幅值到实际光脉冲功率的转换过程）。狭缝每完成一次阶梯型反射镜面范围的移动扫描，我们就完成了这样的一次子脉冲相位信息和光强信息的同时读取，之后通过编程切换为下一组射频参数。每次测量过程最多耗时 ~ 10 s，与电动位移台移动速度相关。

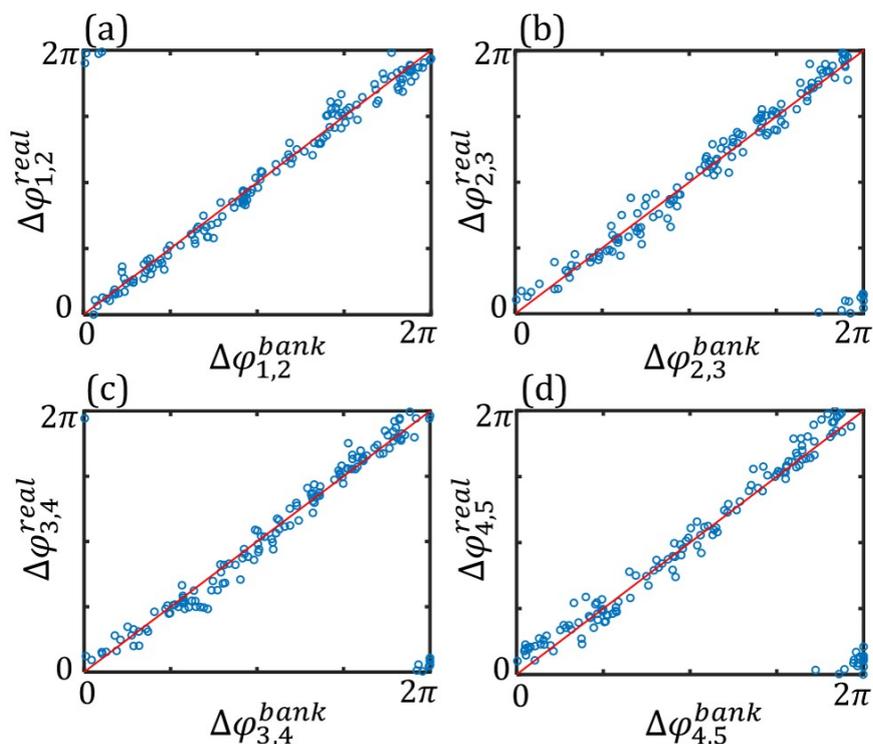


图 3.9 参数库预估脉冲序列相对相位 $\Delta\varphi^{bank}$ 与实测脉冲相对相位 $\Delta\varphi^{real}$ 比较。图中我们随机从参数库中抽取 150 组射频参数设置，并对实际输出脉冲序列相位进行测量（图中蓝色圆圈），相位测量方案与图 3.8 中相同。图中斜率为 1 的红线用于作为测量相位与参数库预估相位完全一致时的参考。图 (a)~(d) 分别表示脉冲 i 及 $i+1$ ($i = 1, 2, 3, 4$) 的相位差关系。可以看到大部分脉冲相对相位与预估值的偏差约 0.1π 。

基于上述快速探测过程，我们可以在短时间内完成对大量射频参数设置（即采样点）下光脉冲信号的探测和记录。特别的，由于在我们目前的实验中，所需的各个子脉冲光强基本一致，所以在上述探测过程中，我们还加入了光强的自动化平衡过程——根据记录到的脉冲相对光强信息自动反馈射频振幅参数 $\{A_i^e\}$ 进行调节。例如在图 3.8(b) 中，我们控制了各个子脉冲信号均自动调整到目标强度的 $\pm 10\%$ 附近（对应电压信号 9 ± 0.9 mv，图中红线及蓝线区域）。在这一基础上我们改变 $N = 5$ 脉冲对应的相位设置 $\{\varphi_i^e\}$ ，在每一个特定相位组合下进行上

述调节后作为参数库中的样品进行测量采样。

具体到实验中，我们设定 $\varphi_1^{c,(s)}$ 保持不变，并在 $[0, 2\pi)$ 范围中等间隔设置 $\varphi_{2,3,4,5}^{c,(s)}$ （我们用上角标 (s) 表示采样点），共计 256 个采样点，在这些点上， $\{A_i^{c,(s)}\}$ 由程序自动化反馈调整并记录。之后，我们沿射频相位参数 $\{\varphi_i^{c,(s)}\}$ 对射频振幅参数 $\{A_i^{c,(s)}\}$ 进行插值，获得所有相位设置下使脉冲强度基本一致所需设置的 $\{A_i^c\}$ 。同时，我们对采到的脉冲参数 $\{A_i^{(s)}, \varphi_i^{(s)}\}$ 也进行插值，从而估计并得到参数空间内所有射频参数 $\{A_i^c, \varphi_i^c\}$ 对应的脉冲序列参数 $\{A_i, \varphi_i\}$ ，形成“参数库”。在实验上，我们由此获得了在任意相位设置下，脉冲强度均基本保持一致的大功率 $N = 5$ 子脉冲序列。此时，对应 AOM 系统单向所有一级衍射光束的总效率约有 $\sim 70\%$ 。正如本章开头所述，“参数库”的构成让本系统非线性区域也能有效进行参数控制和脉冲序列整形输出，为我们后续所需大功率皮秒脉冲序列的实验（例如后续章节五中将要介绍的冷原子偶极加速实验）奠定了技术基础。

最后在图 3.9 中，我们比较了参数库预估脉冲相对相位与实际脉冲相对相位的差别。这里我们随机从参数库中抽取了 150 组参数设置，并由上述光谱仪方案测量和还原实际脉冲序列两两之间的相位差。我们从 2 维角度展示了由参数库预估的 4 维子脉冲序列相对相位值，从图中可以看到，两者的差距（蓝色圆圈与红线）大部分在 $\sim 0.1\pi$ 范围中，已达到我们一般实验所需精度。需要注意的是，图 3.9 展示的相位偏差是参数库预估脉冲建模误差导致，并非随机误差。事实上，本系统组合脉冲输出的强度和相位具有优秀的短期和长期稳定性及可编程性。例如，上述随机采样检测是在参数库建立后第 4 天进行，可以佐证在一般实验室条件下，本系统的稳定性能够长时间支持参数库对脉冲参数的预估方案。

3.5 皮秒脉冲序列特性测量

在前面章节中，我们主要论述了两代可编程任意皮秒脉冲序列生成系统的性能。本章节中，我们将分别利用自相关仪^[129]和自制光谱仪^[128]，从时域和频域两个方面对输出的脉冲序列进行测量及分析。而在下一章节，我们将采用冷原子俘获损失光谱来对脉冲的频域特性进行进一步测量。这些光谱的测量结果将证明由上述系统生成的皮秒脉冲序列具有极高的被动稳定性。

3.5.1 脉冲序列的时域波形

在时域上对脉冲序列的最直观检验手段是直接探测脉冲光强波形。然而对于皮秒级的脉冲序列而言，一般的高速光电探测器（约 10GHz 带宽）难以准确测量。因此我们利用了自相关仪（APE PulseCheck 150），对基于相位匹配的二次谐波产生的脉冲自相关波形^[129]进行探测，并通过拟合的方式反解出原脉冲序列时域波形，以此验证式 (3.2) 中脉冲延时 τ_i 与 ω_i 的关系。受限于自相关仪可扫描

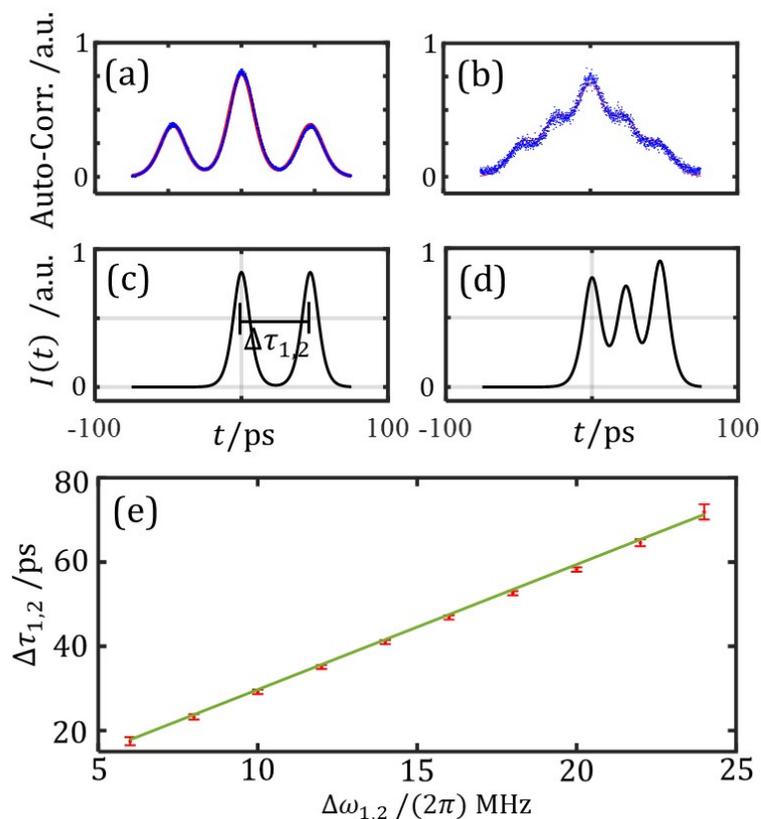


图 3.10 $N = 2$ 子脉冲 (AOM 射频频率 $\omega_{1,2} = 2\pi \times 76, 92$ MHz) 以及 $N = 3$ 子脉冲 (AOM 射频频率 $\omega_{1,2,3} = 2\pi \times 76, 84, 92$ MHz) 的自相关测量。图 (a)(b) 中, 我们分别用蓝色点状记号展示了相应的典型自相关信号, 并由红色曲线拟合。图 (c)(d) 为对应的脉冲光强 $I(t)$, 由拟合反解得到。基于对类似于图 (a)(b) 中数据的反解, 在图 (e) 中我们展示了 10 组 $\Delta\tau_{1,2}$ 与 $\Delta\omega_{1,2}$ 的测量数据 (红色点状)。其中误差条代表了拟合的误差。对数据线性拟合后, 我们绘制了绿线 $\Delta\tau_{1,2}/\text{ps} \approx 3.0 \Delta\omega_{1,2}/(2\pi \times \text{MHz})$, 这一结果与式 (3.2) 高度吻合。图片参考文献^[11]。

的延时范围, 我们仅对 $N = 2$ 及 $N = 3$ 的子脉冲序列进行了测量。同时在这一实验中, 我们保持脉冲后选取系统全部打开来提高信号强度。

典型的 $N = 2, 3$ 的自相关仪测量结果分别如图 3.10(a)(b) 中所示。基于单个锁模脉冲 sech^2 形式的时域光强形式^[124], 我们拟合并反解自相关波形, 并得到了相位 φ_i 平均后的脉冲光强 $I(t)$, 如图 3.10(c)(d) 中所示。我们通过改变不同射频频率差 $\Delta\omega_{1,2} = \omega_2 - \omega_1$, 在不同的 AOM 衍射角 $\Delta\theta_{1,2}$ 下重复对 $N = 2$ 子脉冲的进行测量。图 3.10(e) 展示了测量及拟合获得的相对延时 $\Delta\tau_{1,2} = \tau_2 - \tau_1$ 随 $\Delta\omega_{1,2}$ 的变化。测量得到的 $\Delta\tau_{1,2} - \Delta\omega_{1,2}$ 关系与式 (3.2) 高度吻合, 两者的斜率仅有 0.5% 的差别。同时, 基于此系统时间控制的简单性, 此高质量的 $\omega_i - \tau_i$ 控制可简单的从 $N = 2, 3$ 有效推演至 $N > 3$ 的子脉冲序列。

3.5.2 脉冲序列的频域特性

从频域上, 对于 $\mathbf{E}_{\text{in}}(\omega)$ 入射脉冲, 式 (3.3) 中的时域表达可被改写为 $\mathbf{E}_{\text{out}}(\omega) = s(\omega)\mathbf{E}_{\text{in}}(\omega)$, 其中

$$s(\omega) = \kappa \sum_i^N A_i^2 e^{i\varphi_i} e^{-i\omega\tau_i}. \quad (3.6)$$

将上式以光强形式表示, 则有

$$I(\omega) = S(\omega)I_0(\omega), \quad (3.7)$$

其中 $S(\omega) = |s(\omega)|^2 / (|s(\omega)|^2)_{\text{max}}$ 是归一化的脉冲序列频谱因子。如前文介绍, 对于 sech^2 脉冲形式的入射脉冲 (或 $N = 1$ 单脉冲出射), 其频域光强形式 $I_0(\omega)$ 在频谱变换极限下满足脉冲脉宽 τ_0 和频谱展宽 δf_{in}^L 的关系 $\delta f_{\text{in}}^L \approx 0.315/\tau_0$ 。在图 3.11(a) 中, 我们以红线绘制了这一单脉冲的频域光强 $I_0(\omega)$ 示意图。对于出射多脉冲序列, 其光强频谱波形由单脉冲波形 $I_0(\omega)$ 与干涉波形 $S(\omega)$ 组成。在该图中, 我们以蓝线绘制了 $N = 2$ 的相同强度组合脉冲序列的光强频谱分布 $I(\omega)$ 示意图。此时有干涉项满足形式 $S(\omega) = \cos^2((\omega\Delta\tau_{1,2} + \Delta\varphi_{1,2})/2)$ 。结合图 3.11(a), 我们也可以直观描述由 $\Delta\tau_{1,2}$ 与 $\Delta\varphi_{1,2}$ 变化引起的频域光强分布变化: $\Delta\tau_{1,2}$ 对应频域干涉“条纹”间距, 且间距正比于 $1/\Delta\tau_{1,2}$; 而 $\Delta\varphi_{1,2}$ 变化会引起条纹在频域的横向移动。

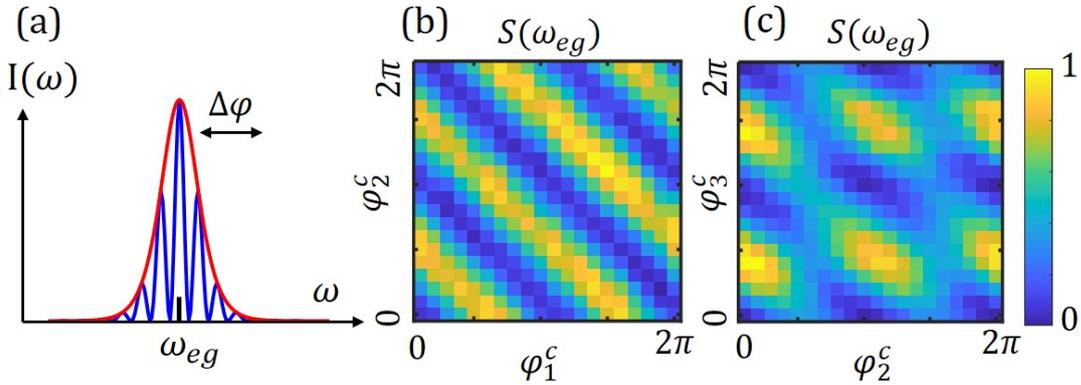


图 3.11 (a) 组合脉冲序列的频域光强分布示意图 $I(\omega)$ (蓝线), 其中红线表示入射脉冲的频域强度分布 $I_0(\omega)$ 。(b)(c) 对于特定频率 ω_{eg} , 其光强随脉冲相位变化的关系示意图, 其中 (b) 和 (c) 分别对应 $N = 2, 3$ 脉冲序列。

现在不妨考虑对特定频率 ω_{eg} (为后文说明方便, 这里直接以原子跃迁共振频率为例) 上的光强 $I(\omega_{eg}) \propto S(\omega_{eg})$ 随相位的变化关系。在图 3.11(b) 中, 我们利用自制光谱仪^[128] 测量并绘制了在射频相位 φ_i^c 变化 2π 期间 (由

式 (3.3) 相关讨论, 脉冲相位 $\varphi_i = 2\varphi_i^c$ 的 $S(\omega_{eg})$ 的变化, 此时 $S(\omega_{eg})$ 满足形式 $S(\omega_{eg}) = \cos^2(\Delta\varphi_{1,2}^c)$ (这里, 对于射频初始相位差, 我们一般不特别指出)。同理在图 3.11(c) 中, 我们也测量并绘制了 $N = 3$ 组合脉冲序列的频谱光强变化, 此时有 $S(\omega_{eg}) = \cos^2(\Delta\varphi_{1,2}^c) + \cos^2(\Delta\varphi_{2,3}^c) + \cos^2(\Delta\varphi_{3,1}^c)$ 。

3.6 冷原子俘获损失“超分辨”光谱研究

3.6.1 实验设计

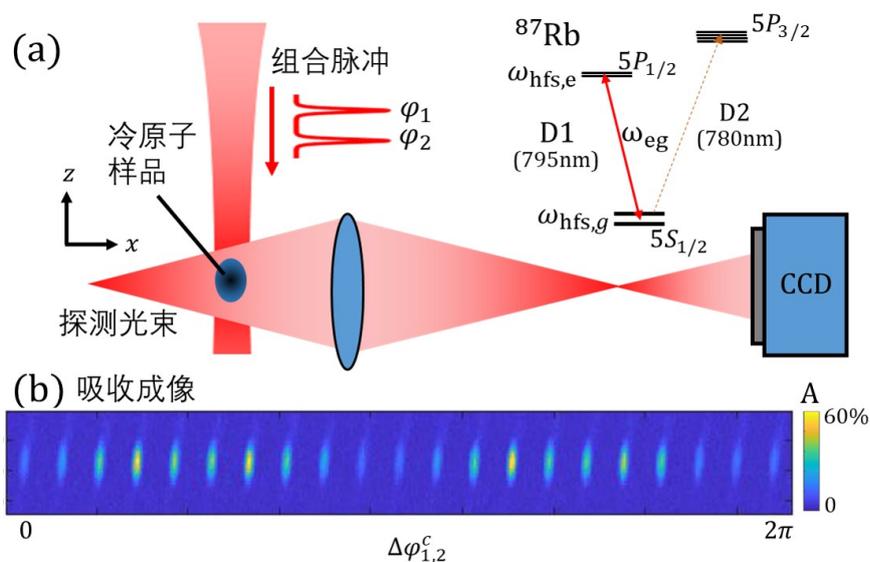


图 3.12 皮秒整形脉冲序列的原子俘获损失光谱实验示意图。(a) 对 ^{87}Rb D1 线的整形后脉冲序列激发及吸收成像实验装置的示意图。这里原子超精细结构 $\omega_{\text{hfs},g} = 2\pi \times 6.8 \text{ GHz}$, $\omega_{\text{hfs},e} = 2\pi \times 0.8 \text{ GHz}$ 。在图 (b) 中, 我们给出了在 4π 范围上对 $\Delta\varphi_{1,2} = \varphi_2 - \varphi_1$ 扫描期间 (即 $\Delta\varphi_{1,2}^c$ 扫描 2π 范围) 原子俘获损失光谱的代表性吸收图像。相关数据节选自图 3.13(b) 中对应的测量。

由激光冷却捕获的冷原子体系温度极低 (例如我们实验中降至 μK 级别), 热运动效应显著下降。因此, 这样的体系降低了多普勒效应引起的频域展宽等影响, 其能够提供稳定的特定频率基准, 具有远高于一般光学光谱仪的频谱分辨率。我们利用这一特性, 通过冷原子俘获损失高精度光谱实验来探测频域中的脉冲序列波形。

该实验的基本设计如图 3.12 所示。我们首先对冷原子的制备过程作简单的叙述: 本文所使用的冷原子实验系统可在不到 1 秒的时间内, 将多达 10^7 的 ^{87}Rb 原子装载至磁光阱^[89] 中。在偏振梯度冷却^[90] 的辅助下, 10^5 以上的 Rb 原子随后被加载到初始深度为 $\sim 0.5 \text{ mK}$ 的 1064-nm 交叉偶极阱中, 随后再被转移到由这一交叉偶极阱和 840nm 单光束偶极阱组成的混合阱中^[91-92]。在这项工作中,

我们通过轻微蒸发冷却^[93]来减少混合阱深度，从而产生了具有高达 $N_a = 10^4$ 的 $\sim 10 \mu\text{K}$ 原子样品。并且我们调整两种偶极阱的功率比，使原子样品近似球形且高斯半径约为 $w_a \approx 10 \mu\text{m}$ 。此时偶极阱深度 $U \approx k_B \times 60 \mu\text{K}$ (k_B 为玻尔兹曼常数)。

在皮秒脉冲序列方面，我们调整 $\tau_0 \approx 12 \text{ ps}$ 的皮秒锁模激光输入，使其中心频率 ω_L (频谱展宽 $\delta f_{\text{lin}}^L \approx 30 \text{ GHz}$) 覆盖 $^{87}\text{Rb } 5S_{1/2} - 5P_{1/2}\text{D1}$ 线 (795nm) (其中心位于 $\omega_{eg} = 2\pi \times 377107 \text{ GHz}$)^[130]。如前文所述，这些脉冲经皮秒脉冲整形系统调制后，以频谱上 $I(\omega) = S(\omega)I_0(\omega)$ 的形式输出。我们将上述脉冲序列通过光学聚焦至 $\sim 50 \mu\text{m}$ 直径的光斑，沿-z 方向照射至上述系统捕获的 ^{87}Rb 原子样品。此时有脉冲峰值功率 $\sim 5 \text{ mW}$ ，对应电场峰值强度 $(\mathbf{E}_{\text{out}})_{\text{peak}} \approx 40 \text{ kV/m}$ ，参考章节2.2.1中介绍，峰值拉比频率为 $\Omega_{\text{peak}} = (\mathbf{E}_{\text{out}})_{\text{peak}} \cdot \mathbf{d}_{eg}/\hbar \approx 2\pi \times 1 \text{ GHz}$ 。其中 $|\mathbf{d}_{eg}| = 1.46 \times 10^{-29} \text{ C}\cdot\text{m}$ 是 D1 线 π 跃迁的跃迁矩阵元^[130]。在本章中，我们用 $|g\rangle, |e\rangle$ 分别表示 $5S_{1/2}$ 及 $5P_{1/2}$ 的基态/激发态。这一较弱的电场 \mathbf{E}_{out} 确保激发概率 $\rho_{ee} = |\int \mathbf{E}_{\text{out}}(t) \cdot \mathbf{d}_{eg} e^{i\omega_{eg}t} dt / 2\hbar|^2 \ll 1$ ，为弱激发。在二能级模型下，我们也可以将上式其改写为： $\rho_{ee} = \mathcal{A}_0^2 S(\omega)/4$ ，这里 $\mathcal{A}_0 \sim (\mathbf{E}_{\text{out}})_{\text{peak}} \cdot \mathbf{d}_{eg} \tau_c / \hbar$ 为整形脉冲序列的最大脉冲面积 (参考章节2.2.1)。

我们使皮秒脉冲序列持续照射原子样品，总时长为 T_{total} ，相应脉冲序列组数为 $N_{\text{total}} = T_{\text{total}}/T_{\text{rep}}$ ， T_{rep} 为脉冲序列重复周期。对于长间隔周期 $T_{\text{rep}} \gg 1/\Gamma$ ($\Gamma = 2\pi \times 5.7 \text{ MHz}$ 是 D1 自然线宽) 的弱激发，原子每个周期均会获得光子反冲动量而加速，从而导致温度变化 $\Delta T = \frac{\hbar^2 k^2}{mk_B} = 700 \text{ nK}$ ^[130] (m 为 ^{87}Rb 原子质量)。而这一过程与上述激发概率 ρ_{ee} 相关，由脉冲序列具体形式决定。原子团被逐渐加热后，动能超过偶极阱深度 U 的最热原子将有概率溢出，从而形成俘获损失。

我们通过 ^{87}Rb 的 D2 线 (780nm, $F = 2 - F' = 3$) 的吸收成像 (x 方向) 方法来探测俘获的原子团数量，其原理可参考章节2.4.2，这里用到了稳态时的原子吸收截面 σ ：在光束通过原子样品后，其透射率会下降，其在 CCD 上的光强图像记为 I_1 ；我们对比没有原子样品时的 D2 光强图像 I_2 ，可以获得绝对透射率 $T = I_1/I_2$ 。利用式 (2.58) 中对 OD 的定义，可以进一步计算得到原子团柱密度 $\rho_L = -\frac{1}{\sigma} \ln(I_1/I_2)$ ，从而有相应原子数 $N_a = \int \rho_L dx dy$ 。在图 3.12(b) 中我们展示了一系列处理后的原子团吸收成像典型图样，这里 $A = 1 - T$ ，其可以用于描述原子团形状、大小及密度。同理，在 D1 线的皮秒脉冲序列加热原子团后，我们也可以获得剩余原子数 N_r 。从而原子损失数 $\Delta N_a = N_a - N_r$ ，原子俘获损失率为 $l = \Delta N_a/N_a$ 。这个过程中，阱中的原子在加热后被额外保持了 30 ms，并且自由飞行了 100 μs (使原子样品尺寸 $\sigma \sim 10 \mu\text{m}$ 扩大为 20 μm ，提高测量信噪比) 再被进行吸收测量。另外在上述过程中，我们持续注入了一与 $5S_{1/2}$ 基态下能级 ($F = 1$) 共振的再泵浦光，使其与 D2 线激发态连接以同时探测基态下能级的原子数。

在实验上，为在子脉冲相位扫描期间使原子充分加热并获得较高对比度的 l ，

我们按照经验设置 $T_{\text{total}} = 20 \sim 50 \text{ ms}$ ($T_{\text{rep}} = 250 \text{ ns}$, $N_{\text{total}} = 8 \sim 20 \times 10^4$)。原子俘获损失率 l 基于 D1 皮秒脉冲序列对俘获原子的激发，因而表现为 ρ_{ee} 的函数，并且在弱激发区域随 ρ_{ee} 增加而增长。从而在这一实验中，我们可以用观测到的原子 l 的相对变化来表征整形后不同脉冲序列的 ρ_{ee} 变化规律。

3.6.2 光谱测量结果

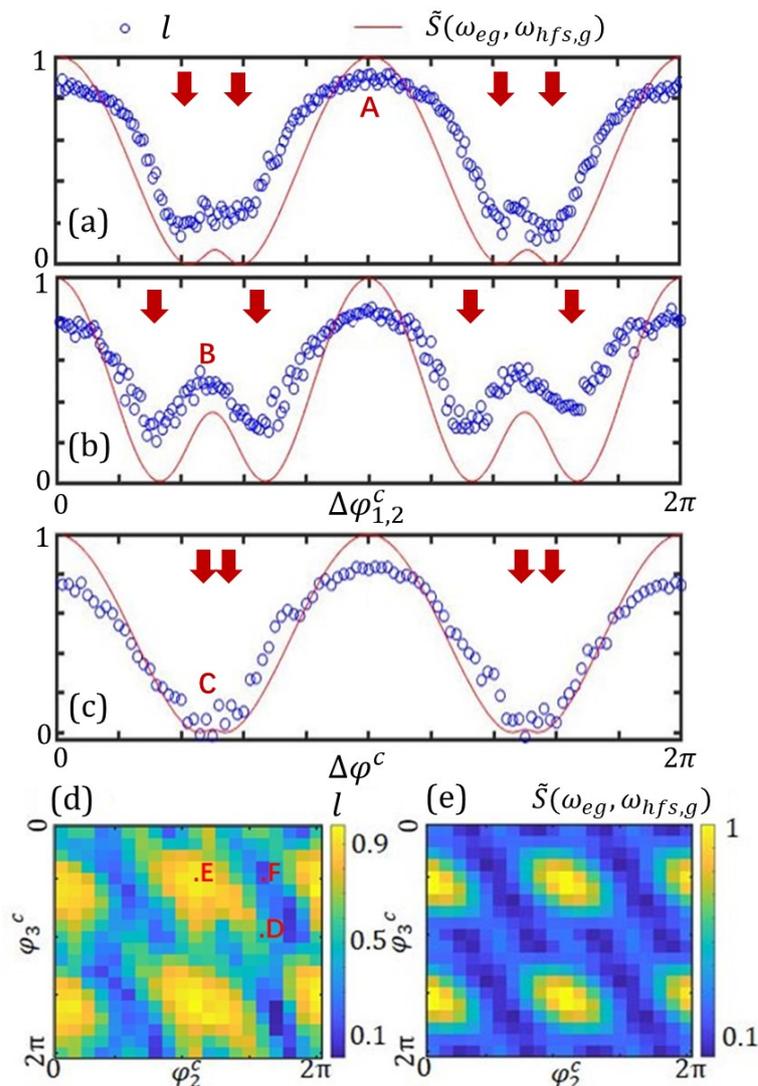


图 3.13 对 $N = 2$ (a,b)、 $N = 6$ (c) 及 $N = 3$ (d) 整形后脉冲序列的相位扫描俘获损失谱。从 (a) 到 (d)，子脉冲间延迟分别为 $\Delta\tau_{1,2} = 24 \text{ ps}$ 、 96 ps 、 12 ps 和 24 ps 。原子俘获损失率 $l = \Delta N_a / N_a$ ， $\tilde{S}(\omega, \delta\omega)$ 为三能级光谱响应函数，均在图中以纵轴表示，详细说明参见正文。图片参考文献^[11]。

在这一实验中，我们将分别在 $N = 2$ 、 $N = 3$ 及 $N = 6$ 子脉冲序列下，利用原子俘获损失光谱进行测量，并由光谱结果反解出生成的脉冲序列相位关系。同

时，我们还会在这一测量过程中观察到“超分辨”现象——即对光谱的分辨率超过了光脉冲本身频谱变换极限下的频域分辨率，而这一更高精度的频谱分辨现象也更加证实了系统所产生的脉冲序列的相位稳定性。

我们先从 $N = 2$ 的不同延时 $\Delta\tau_{1,2}$ 下的子脉冲序列开始测量。这里，我们通过调节脉冲序列生成系统中的 AOM 射频振幅，使得两个皮秒脉冲振幅基本相同 $A_1 \approx A_2$ ，之后我们对射频相对相位 $\Delta\varphi_{1,2}^c = \varphi_1^c - \varphi_2^c$ 进行扫描，在此过程中记录相应俘获损失，并多次重复测量。如上节中所介绍，对于简单二能级模型 $|g\rangle, |e\rangle$ ，这两个弱激发下的共振皮秒脉冲可以以激发率 $\rho_{ee} \propto S(\omega_{eg}) = \cos^2((\omega_{eg}\Delta\tau_{1,2} + \Delta\varphi_{1,2})/2)$ 的形式来造成俘获损失。由于光脉冲相对相位 $\Delta\varphi_{1,2} = 2\Delta\varphi_{1,2}^c$ 加上一固定相位偏移，实验上我们可以通过调整这一初始相位偏移，使激发率 ρ_{ee} 与射频相对相位 $\Delta\varphi_{1,2}^c$ 同相。从而有俘获损失与射频相位关系 $l = \Delta N_a/N_a \sim \rho_{ee} \sim \cos^2(\Delta\varphi_{1,2}^c)$ 。

图 3.13(a)(b) 分别对延时 $\Delta\tau_{1,2} = 24$ ps 及 $\Delta\tau_{1,2} = 96$ ps 下的脉冲进行了相位扫描，并测量俘获损失 l 。我们期待 l 会表现出与 $S(\omega_{eg})$ 相同的结构。然而实际实验中，我们观察到 l 的实验数据在大尺度上遵循二能级模型预测给出的余弦平方形式变化，但在最小的损失值附近， l 存在“分裂”的结构，且这一现象在图 (b) ($\Delta\tau_{1,2} = 96$ ps) 中更为明显。

因而我们考虑在二能级模型的基础上，引入三能级原子模型进行修正，即引入基态 $5S_{1/2}$ 的超精细结构 $\omega_{\text{hfs},g} = 2\pi \times 6.8$ GHz（我们忽略相对较小的激发态 $5P_{1/2}$ 超精细分裂 $\omega_{\text{hfs},e} = 2\pi \times 0.8$ GHz）。在这一模型下，实验过程中会引入光学抽运效应^[131]，使得 $\rho_{ee} = \mathcal{A}_0^2 \tilde{S}(\omega_{eg}, \omega_{\text{hfs},g})/4$ 。其中 $\tilde{S}(\omega, \delta\omega) = \frac{2S(\omega+\delta\omega/2)S(\omega-\delta\omega/2)}{S(\omega+\delta\omega/2)+S(\omega-\delta\omega/2)}$ ，其在 $\delta\omega = \omega_{\text{hfs},g}$ 范围上具有很高的变化率（详细推导分析可见下一小节）。

在这一小节中，我们先考虑引入 $\tilde{S}(\omega_{eg}, \omega_{\text{hfs},g})$ 后的实验模型。对于 $N = 2$ 子脉冲下的实验（图 3.13(a)(b)），在两种延时下，我们绘制 $\tilde{S}(\omega_{eg}, \omega_{\text{hfs},g})$ 随相位的变化曲线（图中红线）。可以看到，实验观测得到的原子俘获损失 l 实际最小值（图中红色箭头位置）接近 $(\Delta\varphi_{1,2})_m = 2\pi \pm \omega_{\text{hfs},g}\Delta\tau_{1,2}/4$ ，而此时脉冲频谱因子 $S(\omega)$ 在 $\omega = \omega_{eg} \pm \omega_{\text{hfs},g}/2$ 与超精细结构共振时也变为零，两者相互吻合。因此，图 3.13(a)(b) 中观测到的“分裂”现象源于 $\omega_{\text{hfs},g}$ 的超精细结构。注意到此时，光脉冲相应的频谱变化极限下的频域分辨率为 $1/2\tau_c$ （脉冲持续时间 $\tau_c \approx (N-1)\tau_d + 2\tau_0$ ），大于原子超精细结构分裂 $\omega_{\text{hfs},g}/(2\pi)$ 。我们将这种现象称为“超分辨”现象，在下一小节中，我们将会对这一现象的产生进行详细分析。

相似的俘获损失光谱“分裂”现象也同样在 $N = 3$ 的光谱实验中被观测到。这里我们依旧调节整形系统射频振幅，是 $N = 3$ 个子脉冲具有近似相等的振幅 $A_{1,2,3}$ 。每两个相邻脉冲之间的延时为 $\Delta\tau_{1,2} = \Delta\tau_{2,3} = 24$ ps，总持续时间 $\tau_c \approx \Delta\tau_{1,3} + \tau = 60$ ps。我们固定 φ_1^c ，并二维扫描相位 $\varphi_{2,3}^c$ 进行多次重复实验。对比图 3.11(c) 中结构，二维相位变化下的原子实际俘获损失 $l = \Delta N_a/N_a$ 的特征依旧呈现出与简单二能级模型预测 $\rho_{ee} \propto S(\omega_{eg})$ 略不相符的现象：在较小的 l

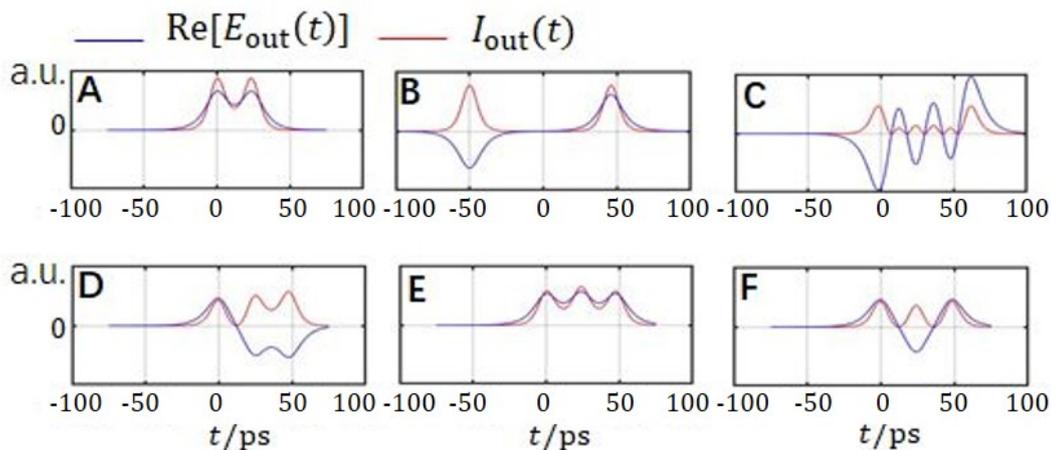


图 3.14 对于特定相位组合 $\{\varphi_i\}$ 下（对应于图 3.13 中相应标记）的子脉冲序列，我们根据式 (3.3)，考虑相同光脉冲振幅 A_i ，重建了整形后该脉冲波形的强度 $I_{\text{out}}(t)$ 和电场实部 $\text{Re}[E_{\text{out}}(t)]$ 时域波形（以归一化形式表示于图中纵轴）。图片源自文献^[11]。

附近，呈现出“分裂”。而这与图 3.13(e) 中 $\tilde{S}(\omega_{eg}, \omega_{\text{hfs},g})$ 的三能级模型相吻合。

我们最后考虑 $N = 6$ 子脉冲序列下的原子俘获损失实验（图 3.13(c)）。我们调节六个子脉冲具有近似相同的振幅 A_i ，并设置每两个相邻脉冲的时间间隔为 $\Delta\tau_{i,i+1} = 12$ ps，脉冲总时长 $\tau_c \approx 72$ ps。我们使 $\varphi_{1,3,5}^c = \varphi_{2,4,6}^c + \Delta\varphi^c$ ，并均匀扫描 $\Delta\varphi^c$ 。这里 $\varphi_{1,3,5}^c$ 设置在图 3.13(d) 的“E”标记处对应相位，此时三个脉冲对原子激发为相长干涉。在 $\varphi_{1,3,5}^c$ 与 $\varphi_{2,4,6}^c$ 相位相反时，我们可以观察到原子俘获损失 l 在 $\Delta\varphi^c = \pi/2, 3\pi/2$ 附近显著减小。对比图 3.13(a)(b)，“超分辨”的光谱“分裂”特征几乎消失，这是因为较小的脉冲时间间隔 $\Delta\tau_{i+1,i} = 12$ ps 下，光谱因子 $S(\omega)$ 在该范围内变化十分缓慢，因而在 $\omega_{\text{hfs},g}$ 内的差异难以被观测到（可见下一节讨论）。因而相应的，光谱响应函数 $\tilde{S}(\omega_{eg}, \omega_{\text{hfs},g})$ 在大范围上整体表现为 $S(\omega_{eg})$ 的余弦平方形式。需要注意的是，在 $\Delta\varphi^c = \pi/2, 3\pi/2$ 附近，光谱“分裂”特征依旧存在（图中红色箭头标记），只是这一特征在我们实验的信噪比下较难观测到。

在上述实验中（图 3.13(a)~(d)），相位变化期间测得的 $l = \Delta N_a/N_a$ 对比度小于 100%。这可能是由实际光脉冲间振幅不均匀导致的，这会同样导致 $S(\omega)$ 的对比度下降。相位扫描数据来自 ~ 6 小时的测量，其中冷原子序列每 1.5 秒循环一次。我们没有观察到陷阱损失数据的随相位的波动，这表明了在测量重复期间皮秒光脉冲整形系统的相位高度稳定性。通过对实验室的温度稳定控制，这一相稳定性能够维持几天。

模拟绘制的 $\tilde{S}(\omega_{eg}, \omega_{\text{hfs},g})$ 与实验 l 随相位变化的一致性，也验证了整形系统输出关系中的射频相位 $\{\varphi_i^c\}$ 与脉冲相位 $\{\varphi_i\}$ 的映射关系（式 (3.3)）。为进一步

说明整形系统获得的实际光学波形，从原子俘获损失光谱出发，我们还还原了复电场 $\mathbf{E}_{\text{out}}(t)$ 的时域波形。典型的重建波形如图 3.14 所示（对应于图 3.13 中相应标记处的相位设置）。

3.6.3 光谱“超分辨”现象及分析

如图 3.12 中所示， ^{87}Rb 的 D1 线在超精细结构 $\omega_{\text{hfs},g} = 2\pi \times 6.8 \text{ GHz}$ 及 $\omega_{\text{hfs},e} = 2\pi \times 0.8 \text{ GHz}$ 的作用下分为 4 个子能级。我们不妨忽略激发态分裂 $\omega_{\text{hfs},e}$ ，并考虑其中较大的基态分裂 $\omega_{\text{hfs},g}$ ，用一个简单的三能级模型来说明基本物理。

我们考虑 $\tau_0 \approx 12 \text{ ps}$ 的线偏振脉冲序列 $\mathbf{E}_{\text{out}}(t)$ ，总持续时长可达到 $\tau_c = 100 \text{ ps}$ ，中心频率覆盖 ^{87}Rb 的 D1 线。参考章节 2.3.2 中介绍，在旋转波近似下，光与原子相互作用的哈密顿量可写为

$$\begin{aligned} \hat{H}_{\text{eff}} = & \frac{\hbar\omega_{\text{hfs},g}}{2}(|b\rangle\langle b| - |a\rangle\langle a|) + \hbar(\Delta_e - i\Gamma/2)|e\rangle\langle e| + \\ & \frac{\hbar\Omega_a(t)}{2}|e\rangle\langle a| + \frac{\hbar\Omega_b(t)}{2}|e\rangle\langle b| + h.c. \end{aligned} \quad (3.8)$$

其中 $|a\rangle, |b\rangle, |e\rangle$ 分别表示两个基态 $5S_{1/2}F = 1, 5S_{1/2}F = 2$ 及激发态 $5P_{1/2}F' = 1, 2$ 能级。并且 $\Delta_e = \omega_{eg} - \omega_L$ ， ω_{eg} 表示这四个超精细结构的平均跃迁频率。由于实验上我们调节锁模激光器中心频率 $\omega_L = \omega_{eg}$ ，我们等效认为中心频率失谐量 $\Delta_e = 0$ 。激光耦合拉比频率为 $\Omega_a(t) = \mathbf{E}_{\text{out}}(t) \cdot \mathbf{d}_{ae}e^{i\omega_{eg}t}/\hbar$ ，及 $\Omega_b(t) = \mathbf{E}_{\text{out}}(t) \cdot \mathbf{d}_{be}e^{i\omega_{eg}t}/\hbar$ 。原子态演化的动力学过程可以用单原子密度矩阵 $\hat{\rho}(t)$ 来表示，即可由主方程给出：

$$\dot{\hat{\rho}} = \frac{1}{i\hbar}(\hat{H}_{\text{eff}}\hat{\rho} - \hat{\rho}\hat{H}_{\text{eff}}^\dagger) + \hat{C}_a\hat{\rho}\hat{C}_a^\dagger + \hat{C}_b\hat{\rho}\hat{C}_b^\dagger. \quad (3.9)$$

这里 $\hat{C}_a = \sqrt{\Gamma_a}|a\rangle\langle e|$ 和 $\hat{C}_b = \sqrt{\Gamma_b}|b\rangle\langle e|$ 为三能级模型下的量子坍塌算符。我们因此可以将总自发辐射率写为 $\Gamma = \Gamma_a + \Gamma_b$ 。又由于 $\Gamma\tau_c \ll 1$ ^[130]，在皮秒脉冲激发期间的自发辐射是可以忽略不计的。但在每一个实验周期内，有 $T_{\text{rep}} = 250 \text{ ns} \gg 1/\Gamma$ ，我们可以认为所有原子均发生自发辐射，在下一次激发之前，原子布居将重置回基态。

另外基于线偏振激发的“ π -跃迁”的对称性，对应于 $\Omega_a\Omega_b^*$ 的超精细拉曼耦合的双光子跃迁可被忽略，即我们考虑 $\rho_{ab} = 0$ 。因而对于 $j = 1, \dots, N_{\text{total}}$ 组整形脉冲序列的重复激发，原子态的动力学过程可以由式 (3.9) 中 $\rho_{aa}^{(j)}$ 、 $\rho_{bb}^{(j)}$ 的动力学过程来描述。这里 $\rho_{aa}^{(j)}$ 、 $\rho_{bb}^{(j)}$ 表示第 j^{th} 组脉冲序列激发前的 $|a\rangle, |b\rangle$ 基态初始布居。为简化考虑，我们假设对于脉冲序列中的每一个持续时间仅为 τ_0 的脉冲，其在频谱上对于 $|a\rangle - |e\rangle, |b\rangle - |e\rangle$ 的激发具有相同的频谱强度。同时，我们简化取 $\mathbf{d}_{eg} = \mathbf{d}_{ea} = \mathbf{d}_{eb}$ ，从而有脉冲面积计算 $\mathcal{A}_0 = \sum_{i=1}^N |\int \kappa \mathbf{E}_{i,\text{out}}(t) \cdot \mathbf{d}_{eg} e^{i\omega_{eg}t} dt / \hbar|$ 。

由此，我们可以将第 j 组的脉冲序列激发率写为：

$$\rho_{ee}^{(j)} = \frac{|\mathcal{A}_0|^2}{4} (\rho_{aa}^{(j)} S(\omega_{eg} + \omega_{\text{hfs},g}/2) + \rho_{bb}^{(j)} S(\omega_{eg} - \omega_{\text{hfs},g}/2)). \quad (3.10)$$

在这一定性模型中，不失一般性，我们假设了 $\Omega_a = \Omega_b$ 。考虑 $T_{\text{rep}}\Gamma_{a,b} \gg 1$ ，自发辐射后原子布居的基态重分布 $\Delta\rho_{aa}^{(j+1)} = \rho_{aa}^{(j+1)} - \rho_{aa}^{(j)}$ 可表示为

$$\Delta\rho_{aa}^{(j+1)} = \frac{|\mathcal{A}_0|^2}{4} \left(-S(\omega_{eg} + \omega_{\text{hfs},g}/2) \rho_{aa}^{(j)} \frac{\Gamma_b}{\Gamma_a + \Gamma_b} + S(\omega_{eg} - \omega_{\text{hfs},g}/2) \rho_{bb}^{(j)} \frac{\Gamma_a}{\Gamma_a + \Gamma_b} \right). \quad (3.11)$$

在 N_{total} 足够大，即大量脉冲序列的重复作用后，我们考虑原子系统的稳态情况（参考章节2.4.1）。此时式 (3.11) 中 $\rho_{aa}^{(j)}, \rho_{bb}^{(j)}$ 不再变化。相应的，在式 (3.10) 中，我们用 $\rho_{aa}^{(ss)}, \rho_{bb}^{(ss)}$ 代替 $\rho_{aa}^{(j)}, \rho_{bb}^{(j)}$ ，得到稳态激发概率 $\rho_{ee}^{(ss)}$ （进一步简化模型，我们假设 $\Gamma_a = \Gamma_b$ ）：

$$\rho_{ee}^{(ss)} = \frac{|\mathcal{A}_0|^2}{4} \tilde{S}(\omega_{eg}, \omega_{\text{hfs},g}), \quad (3.12)$$

其中，频谱响应函数 $\tilde{S}(\omega, \delta\omega)$ 取决于整形脉冲序列的频谱因子 $S(\omega)$ ：

$$\tilde{S}(\omega, \delta\omega) = \frac{2S(\omega - \delta\omega/2)S(\omega + \delta\omega/2)}{S(\omega - \delta\omega/2) + S(\omega + \delta\omega/2)}. \quad (3.13)$$

可以注意的是，对于小 $\delta\omega$ 的极限下，在式 (3.12) 中 $\tilde{S}(\omega, \delta\omega)$ 会简化为 $S(\omega)$ 而变为前文中的二能级模型。

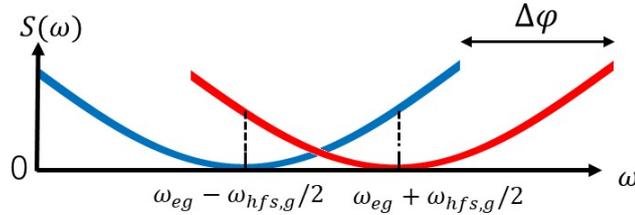


图 3.15 三能级模型下的脉冲序列频谱因子 $S(\omega)$ 变化示意。在简化模型下（详见正文）， $S(\omega_{eg} + \omega_{\text{hfs},g}/2) = 0$ 且 $S(\omega_{eg} - \omega_{\text{hfs},g}/2)$ 为不可忽略的值（图中红线）；同理，在改变脉冲相对相位后，可以使得 $S(\omega_{eg} - \omega_{\text{hfs},g}/2) = 0$ 且 $S(\omega_{eg} + \omega_{\text{hfs},g}/2)$ 为不可忽略的值（图中蓝线）。

为解释为何 $\tilde{S}(\omega, \delta\omega)$ 会引起频谱“超分辨”现象，类似于章节3.5.2中图 3.11(a)，在图 3.15中我们绘制三能级模型下的频谱响应特性局域图（以 $N = 2$ 脉冲序列为例，特别考虑 $S(\omega) \sim 0$ 附近）。在相位变化过程中，会出现 $S(\omega = \omega_{eg} + \omega_{\text{hfs},g}/2) = 0$ 而 $S(\omega_{eg} - \omega_{\text{hfs},g}/2)$ 具有不可忽略的值（图中红线）的情况。基于式 (3.13) 可以看到， $\tilde{S}(\omega_{eg}, \omega_{\text{hfs},g})$ 将下降至零，即原子对光完全没

有响应。从物理上进行解释，此时整形后脉冲序列可以使得 $|b\rangle - |e\rangle$ 跃迁有效，而同时没有频谱成分驱动 $|a\rangle - |e\rangle$ 跃迁，处于基态 $|a\rangle$ 上的原子布居不会减少，表现为“暗”态。因而在长时间多次的激发和衰减过程后，原子基态布居将被全部转移到 $\rho_{aa}^{(ss)} = 1$ ，从而 ρ_{ee} 也会不断减小至零。同理，在改变脉冲序列相对相位后，这一现象也会表现为 $S(\omega_{eg} - \omega_{\text{hfs},g}/2) = 0$ 且 $S(\omega_{eg} + \omega_{\text{hfs},g}/2)$ 为不可忽略的值（图中蓝线），对应于原子布居全部转移至 $\rho_{bb}^{(ss)} = 1$ 。我们因此可以在 $S(\omega)$ 于 $\omega_{eg} \pm \omega_{\text{hfs},g}/2$ 的范围中扫描时，观察两个 $\rho_{ee}^{(ss)}$ 的零点。而这一下效应的出现与 $S(\omega)$ 的频谱宽度无关，只是越尖锐的 $S(\omega)$ （对应于越长的脉冲持续时长 τ_c ）的效应越明显，参考图 3.13(a)(b) 对比。这种原子布居的重新分布即导致了上述“超分辨”现象。这些特征显示了本工作中 GHz 级可编程脉冲整形系统的高分辨率，且输出波形拥有长时间的被动稳定性。

3.7 本章小结

表 3.1 皮秒脉冲序列生成系统性能总结

	“第一代”皮秒脉冲序列生成系统	“第二代”皮秒脉冲序列生成系统
系统结构差异	单 AOM 声光调制 光栅衍射 直接对脉冲序列后选取	三个 AOM 组合声光调制 阶梯型反射镜 预先干涉分频
可调制参数	子脉冲序列数量 N 、振幅 A_i 、相位 φ_i 、延时 τ_i	
调制带宽 δf_M	~ 30 GHz	
参数切换时间	编程控制， ~ 1 μs	
最大延时 $(\tau_d)_{\text{max}}$	10^2 ps 级别	
最小延时 $(\tau_d)_{\text{min}}$	~ 6 ps	20 ps（反射镜阶梯步距）
射频驱动范围	仅小信号线性区域	可工作于非线性区域 小信号区域衍射效率大幅提升
后选取系统性能	抑制比 $\sim 1/6$ 出射效率 20%	抑制比 $\sim 1/10000$ 出射效率 60%
输出理论极限	平均功率 $\eta_E \sim 1/N$ ，峰值功率 $\eta_P \sim 1/N^2$	
$N = 5$ 子脉冲实际最大峰值 (输入峰值 1 kW)	$P_i \sim 10$ mW	$P_i \sim 10$ W

本论文工作试图推进的皮秒组合脉冲原子态调控技术，对皮秒时间尺度的激光波形调制技术提出了全新的挑战。在本章节中，我们首先介绍了当前的常规激光脉冲整形技术，包括干涉法、声光可编程色散滤波器、傅里叶变换脉冲整形技术、直接空间时间脉冲整形技术在内的一系列常用激光脉冲整形方案。这些传统方案在实现皮秒尺度的任意光脉冲序列生成时，均可能面临可编程性、延时范围、输出波形稳定性、空间单模性等技术问题。

在本章，我们提出了一种“倒空间-时间”直接转换脉冲整形方法，运用频谱变换极限的锁模脉冲输入，可形成任意编程且波形稳定的皮秒脉冲相干序列输出。在表格 3.7 中，我们对本论文工作发展过程中的两代皮秒任意脉冲序列生成系统输出性能作一个简单的汇总。正如我们在前文中的介绍，通过“第二代”系统对多频声光调制和脉冲后选取技术的升级，子脉冲序列的调制效率较“第一代”系统获得大幅提升，对于 $N = 5$ 脉冲序列来说，峰值功率接近理论极限（章节 3.3.4）。这允许该系统产生带宽 ~ 30 GHz，峰值功率近 10W 的任意可编程脉冲 $N = 5$ 脉冲序列，足以支持后续将要在第五章中介绍的自由空间冷原子团偶极加速实验。此外，工作在小信号区域的“第一代”系统也可以实现精确的脉冲序列生成，其输出功率足以支持在下一章将介绍的纳米光纤界面原子态操控。

在本章最后部分，我们测量并介绍了输出脉冲序列的时域与频域特性。同时利用冷原子俘获损失光谱，对 $N = 2, 3, 6$ 的输出脉冲序列的相位关系进行了高精度的测量，观察到了基于 ^{87}Rb 原子超精细基态光学泵浦的 GHz 级“超分辨”现象，并成功运用超精细基态布居转移解释了该现象。这些结果验证了上述皮秒任意脉冲序列生成系统具有极高的长时间稳定性。而类似的“超分辨”现象在章节 5.5 中更大面积脉冲激发下还会遇到，我们会更加详细的运用多能级数值模拟来定量研究超精细布居转移效应。

第四章 纳米光纤-原子界面的组合脉冲调控

4.1 本章概述

在上一章中，我们详细论述了一种基于皮秒锁模脉冲激光的可编程组合脉冲生成方法，用于产生 $\{A_i, \varphi_i\}$ 任意可控的 N 皮秒脉冲序列。这样的脉冲序列可以用于驱动原子的强光学跃迁。在足够的光强 $I = \frac{1}{2}\epsilon|\mathbf{E}|^2c$ 下，可在数十皮秒时间内实现 $f > 99\%$ 的高保真原子态操控。我们也讨论了该脉冲整形方案的一个重要局限，即基于线性滤波的脉冲整形，其输出峰值功率 $P \sim P_0/N^2$ 随着脉冲复杂度迅速下降。因此，实际应用中，我们通过聚焦获得 $\Omega \sim 2\pi \times 100 \text{ GHz}$ 的拉比频率，用于调控介观尺度冷原子样品（半高全宽 $20 \mu\text{m}$ ），这个实验进展会在下一章会介绍。

在本章，我们寻求低功率皮秒组合脉冲的一个高效和全新应用：在纳米光学界面的原子态调控。在章节4.2中，我们首先给出纳米光学结构-原子蒸汽界面的精密原子态调控技术的科研动机和基本思路。然后对本工作的实验平台：纳米光纤-热原子蒸汽体系的物理性质做详细介绍。在章节4.3中，我们通过数值计算，给出基于消逝场耦合的组合脉冲原子态调控方案的保真度预期，并论证在近场相当大的体积内，通过克服光强和偏振不均，实现 $f > 99\%$ 原子态调控的可行性。在章节4.4, 4.5中，我们介绍本工作的泵浦探测实验方案及实验结果。最后，我们在本章第4.6节介绍纳米光学界面的物理建模。通过理论计算和实验测量的对比，估计皮秒组合脉冲的原子态调控效率。

本章工作同时牵涉到 ^{85}Rb 原子的 D1 及 D2 谱线。在原子态记号上，我们将 D1 激发态记为 $|a\rangle$ ，将 D2 激发态记为 $|e\rangle$ ，和前两章中有所区别。

4.2 纳米光纤-光与原子相互作用界面

4.2.1 纳米光学界面原子态调控的挑战和机遇

光学技术依赖于光学元件。随着当代微纳加工技术的迅速发展，人们可以通过纳米级的加工手段，以微观结构变化来改变光学器件的宏观响应。微纳光学技术的一个核心思想是通过光场的亚波长限制来提高光和物质相互作用强度。这一核心思想在表面增强非线性光谱学^[132]，纳米激光技术^[133]，及其它非线性光子学技术领域存在大量应用。在原子物理方面，自由原子和微纳结构近场光的强耦合可支持单光子级别的非线性调制^[134]，而同时囚禁于近场的多原子也可以通过消逝光场实现基于导波光子交换的多体长程作用，可支持一大类新型非线性

量子光学技术发展^[135]。

为推进纳光结构-原子界面的非线性量子光学研究，一个关键技术是对界面冷原子或者热原子的原子态实现精密操控。例如，在本章工作中会重点介绍的纳米光纤结构中，波导消逝场为近场原子提供了原子间“无限长”距离相互作用^[136-139]。同样的相互作用也导致了多原子光激发的高效导波自发辐射。正如文献^[29-30]所述，如果对多原子的电偶极跃迁实现空间分辨的“几何相位门”，则可以将自发辐射和多体相互作用分开，让纳米光纤冷原子体系进入相干的多体物理相互作用状态。这样的奇特量子光学场景正受到非线性量子光学及超冷原子物理研究前沿的关注^[140-143]。此外，对近场原子态的精密调控可以用来帮助提高纳米光学环境中原子光谱的鲁棒性。具体来说，通过对原子态的大范围动态调节，可以选择性抑制环境噪声对原子光谱的影响^[144-145]，进而提高原子光谱的精度。

然而，注意到原子系统和纳米光学体系的消逝波光耦合必然伴随着强烈的强度和偏振起伏，简单脉冲（章节2.2.2）无法用于精密原子态调控。在本章，我们将论证运用皮秒组合脉冲实现纳光体系原子态精密操控的可行性。事实上，纳米光学结构对光场模式的聚焦效应为近完美皮秒组合脉冲调控的低功率运行提供了极佳条件。我们希望基于皮秒组合脉冲的纳光界面原子态调控，可以在非线性量子光学及纳米结构原子光谱、量子传感等领域^[146-150]产生重要应用。

4.2.2 纳米光纤界面

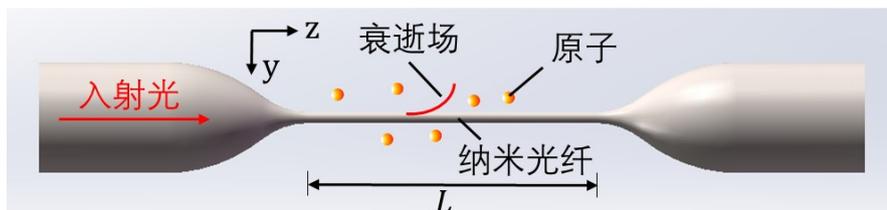


图 4.1 纳米光纤与原子相互作用界面结构示意图（未按真实比例）。

本章节将结合数值模型，具体介绍纳米光纤结构特点及光纤周围的光场分布。如图4.1中所示，纳米光纤一般由普通单模光纤（纤芯直径约 $\sim 5 \mu\text{m}$ ）通过火焰来回烧制拉伸的方法制作^[151-152]。典型的纳米光纤直径仅在 $D \sim 500 \text{ nm}$ 左右，而均匀的纳米部分长度可达到 $L \sim 3 \text{ mm}$ 以上，经过缓变锥区（ $\sim 2 \text{ mrad}$ ）连接到正常光纤部分。在 10^{-1} Pa 级别的真空中，这样的纳米光纤可以支持 $\sim 30 \text{ mW}$ 的激光通过，且透射率高达 99.5% ^[153-154]。光在这种具有小于波长尺度直径的纳米光纤时，会有相当一部分能量将以消逝波形式沿光纤外表面传播。将纳米光纤置于原子蒸汽中，不仅可以实现原子对导波光场的消逝耦合吸收，也可以运用导波光脉冲实现原子态的消逝耦合调控。我们将这样的界面称为纳米光纤-原子蒸汽界面。

为精确模拟和计算原子与纳米光纤消逝场相互作用，我们需要知道消逝场的电场分布。文献^[155-157]对基于均匀介质亥姆霍兹方程及表面边界条件的电场分布求解过程进行了详细介绍。本文中，我们利用参考文献^[156-157]中的数学推导结果，在任意入射波长 λ 及光纤直径 D 下，计算纳米光纤周围的 HE_{11} 单模电场分布。在图 4.2 中，我们给出并对比了几种不同参数下的典型的归一化光强 i 分布。可以看到，消逝场部分的能量占比随光纤直径 D 减小、入射光波长 λ 增大而增长。

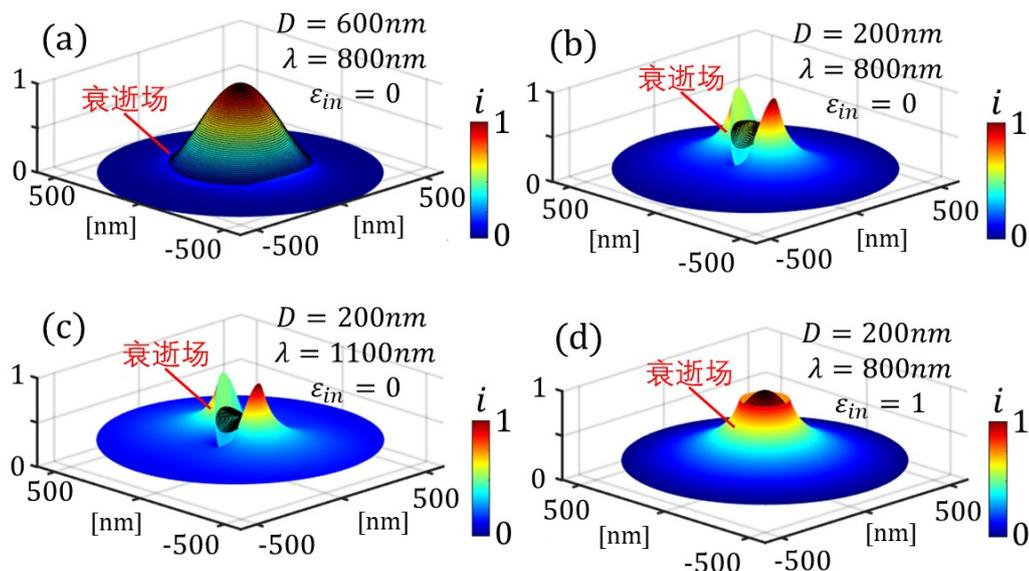


图 4.2 几种典型入射光及纳米光纤参数下的归一化光强 i 在光纤截面上的分布。其中阴影部分代表光纤内部。

对于基于电偶极相互作用的原子态调控来说，我们不仅关心消逝光场的电场强度分布，电场的偏振性质也极为重要。从线性入射偏振出发，我们知道圆偏振入射光的电场分布为 $\mathbf{E}_{\text{HE}_{11}^+} = \mathbf{E}_{\text{HE}_{11}^x} + i\mathbf{E}_{\text{HE}_{11}^y}$ 。这里， $\mathbf{E}_{\text{HE}_{11}^x}$ 和 $\mathbf{E}_{\text{HE}_{11}^y}$ 分别对应沿 x, y 方向的线偏振入射光 ($\epsilon_{\text{in}} = 0$) 的电场分布。

更一般的，按照激光椭圆偏度定义 $\epsilon \equiv |\mathbf{E}^* \times \mathbf{E}|/|\mathbf{E}|^2$ (参考章节 2.3.2)，对于任意椭圆偏振入射 $\epsilon_{\text{in}} = \cos(\Theta_p) \in [0, 1]$ ，纳米光纤中的复电场分布总可以由 HE_{11}^+ 及 HE_{11}^- 的电场模式的叠加形式给出

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}) = \cos\left(\frac{\Theta_p}{2}\right)e^{i\frac{\phi}{2}}\mathbf{E}_{\text{HE}_{11}^+} + \sin\left(\frac{\Theta_p}{2}\right)e^{-i\frac{\phi}{2}}\mathbf{E}_{\text{HE}_{11}^-}. \quad (4.1)$$

这里 ϕ 表示椭圆轴与 x 轴的夹角。

本文实验所采用的纳米光纤直径为 $D = 500 \text{ nm}$ ，长度 $L = 3 \text{ mm}$ 。我们特别关注波长 $\lambda_c = 795 \text{ nm}$ 及波长 $\lambda_p = 780 \text{ nm}$ 的激光注入（分别与 ^{85}Rb 原子 D1, D2 线共振，参见本章后续内容）。在图 4.3(a) 中，我们利用上述计算方法，对沿

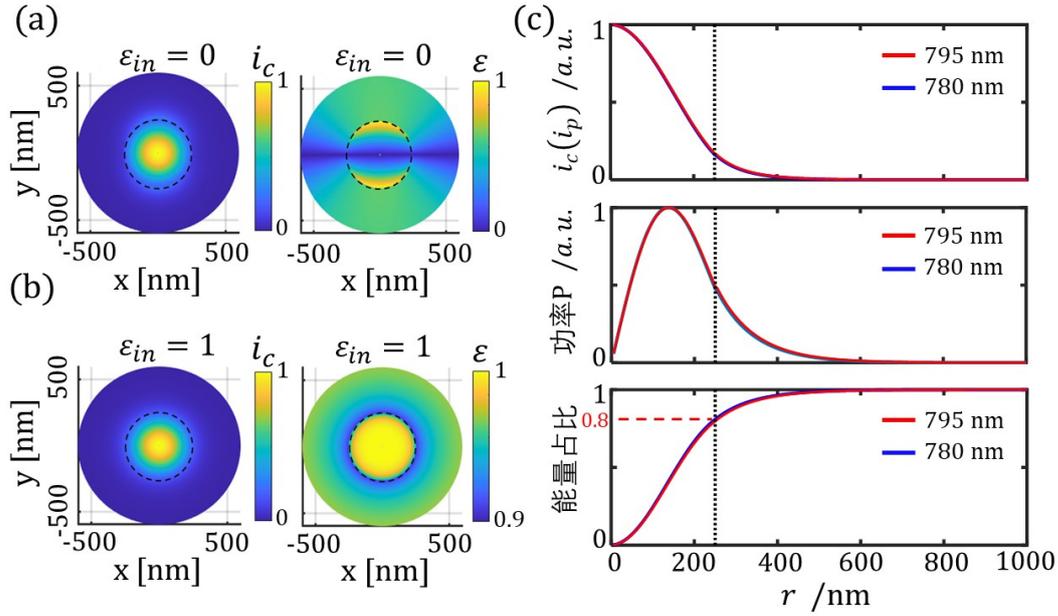


图 4.3 在图 (a) 和 (b) 中，我们分别绘制了在线偏振 $\varepsilon_{in} = 0$ （偏振轴沿 y 方向）及圆偏振 $\varepsilon_{in} = 1$ 入射下， $\lambda_c = 795$ nm 激光在纳米光纤截面上的光强 $i_c(x, y)$ 及椭圆度 $\varepsilon(x, y)$ 分布。图 (c) 中，我们对比较了波长为 $\lambda_c = 795$ nm（红线）及 $\lambda_p = 780$ nm（蓝线）两种激光沿径向 r 的光强及功率分布，同时计算了其从内到外的能量占比变化（以上计算中，均先对沿纳米光纤角向的分布求和）。图中黑色虚线用以表示光纤表面 $r = D/2 = 250$ nm。

y 方向线偏振 $\varepsilon_{in} = 0$ 入射的 $\lambda_c = 795$ nm 激光，绘制了其纳米光纤截面的光强分布 $i_c(x, y)$ 及电场椭圆度 $\varepsilon(x, y)$ 分布。可以看到，实际消逝场中的电场椭圆度最大可达到 ~ 0.3 ，仅有 $y = 0$ 位置处电场仍保持 $\varepsilon = 0$ 。同理，我们在图 (b) 中给出了圆偏振 $\varepsilon_{in} = 1$ 入射光的截面光强 $i_c(x, y)$ 及椭圆度 $\varepsilon(x, y)$ 分布。注意到颜色轴的区别，此时纳米光纤周围大部分位置的电场椭圆度 $\varepsilon \approx 0.95$ 。

对于 $\lambda_p = 780$ nm 的激光注入，其光强和椭圆度分布于 $\lambda_c = 795$ nm 激光没有明显差异。在图 4.3(c) 中，我们分别绘制了两者光强、功率、及能量占比沿光纤径向 r 从内到外的变化规律（对角向分布求平均，设光纤中心 $r = 0$ ）。为做区分，这里用红线表示 $\lambda_c = 795$ nm 激光，蓝线表示 $\lambda_p = 780$ nm 激光，两者的变化规律基本一致。图中黑色虚线用于表示纳米光纤表面位置（ $r = D/2 = 250$ nm）。我们可以看到，该光纤直径和波长下，消逝场电场强度衰减长度（降至表面 $1/e$ 时的距离） $\xi \approx 1/\sqrt{\beta_c^2 - k_c^2}$ 约为 200 nm，这里 $\beta_c \approx 1.2k_c$ 为 HE_{11} 模式的传播常数（ $k_c = 2\pi/\lambda_c$ ，对 λ_p 同理）。另外，正如前文所介绍，我们可以看到在这样的结构下，两种波长的光均约有 $\sim 20\%$ 的电场能量是以消逝波形式在光纤外传播的。该消逝场分量对脉冲光的原子态调控核测量都是非常有效的。

从上述介绍我们不难发现，尽管纳米光纤具有沿光纤 z 方向近乎“无限长”

的相互作用距离，但是其 $x - y$ 截面光场分布是极度不均匀的（包括光强及偏振）。在脉冲光原子态调控过程中，相比于自由空间高斯光场，外场的误差被进一步放大。因此，基于章节2.2、2.3中的讨论，简单的光脉冲调控难以实现对原子电偶极的高保真度操控，而引入皮秒组合脉冲方案尤为重要。

4.3 纳米光纤界面原子态近完美调控

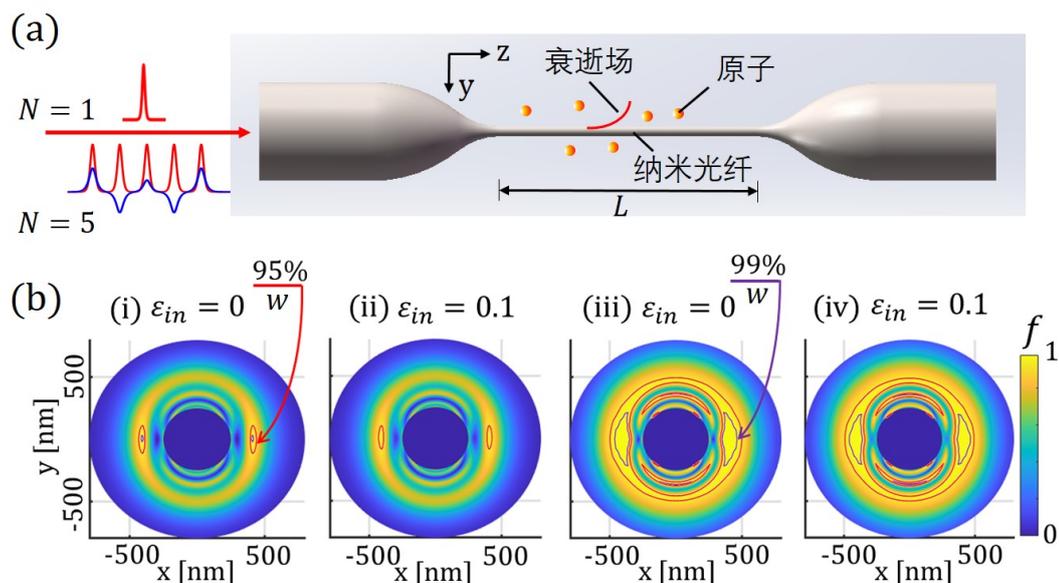


图 4.4 (a): 纳米光纤界面原子态组合脉冲调控示意图。入射脉冲序列包括单脉冲（上）及组合 5 脉冲（下^[9]）。波形曲线中红线代表脉冲光强，蓝线为电场实部。(b): 我们分别绘制了 HE_{11}^y 下的 $N = 1$ (i,ii) 及 $N = 5$ (iii,iv) 组合脉冲控制光引起的局域布居翻转效率分布的数值模拟结果。对于静止原子，特定相位组合 $\{\varphi_i\}$ ^[9] 下的组合脉冲可以达到 $f = \rho_{aa}(\tau_c) > 99\%$ 的翻转效率，参考图 (b,iii) 中等高线，有 $f = 95\%$ （红色曲线）， $f = 99\%$ （紫色曲线，宽度约为 $w \approx 110$ nm）。这种布居翻转的容错效果同样对入射光偏振性 ε_{in} 的偏移有效（图 (b,iv)）。作为对比，我们在图 (b,i) 中绘制了 $N = 1$ 的单个“ π ”脉冲激发。可以看到即便是 $f = 95\%$ 的等高线也只有约 $w \approx 40$ nm 宽度，而 $f = 99\%$ 难以看见，并且在 $\varepsilon_{in} = 0.1$ 时完全消失（图 (b,ii)）。上述数值模拟中，对于 sech^2 光强形式的锁模脉冲^[124]，我们取单脉冲脉冲时域脉宽 $\tau_0 = 3$ ps，从而有单脉冲相互作用时间 $\tau_c = \tau = 2\tau_0$ ，本章中我们用 τ 表示单个脉冲最大的时域宽度。对于 $N = 5$ 脉冲序列，我们取脉冲间两两间隔 $\tau_d = 15$ ps，从而有 $\tau_c = (N - 1)\tau_d + \tau = 66$ ps。并假设原子初始布居平均分布于 $F = 3$ 基态 $|g\rangle$ 。

我们考察图 4.4 的纳米光纤界面。皮秒组合脉冲通过消逝波耦合，实现近场

的原子态调控。以 ^{85}Rb 原子 D1 谱线为例（参加下文图4.5(c)），对于足够短的脉冲作用时间 $\tau_c \ll 1/\omega_{\text{hfs},g}, 1/\omega_{\text{hfs},a}$ ，基于章节2.3.2中的讨论，衰逝场中的 D1 线相互作用退化为一 $J_g = 1/2 \leftrightarrow J_a = 1/2$ 的跃迁，完全由左右旋偏振分量 σ^\pm 决定。我们不妨先考虑简单的 $N = 1$ 单脉冲入射。在图 4.4(b,i) 中，我们绘制了偏振长轴沿 y 方向的 $\varepsilon_{\text{in}} = 0$ 线偏振共振 $N = 1$ 脉冲入射所造成的布居翻转效率 $f = \rho_{aa}(\tau_c)/\rho^{(0)}$ 的分布。由于近场光强分布，近完美翻转仅在特定位置有接近脉冲面积 $\mathcal{A}_1 = (2n+1, 2n-1, \dots, 1)\pi$ ，形成类似于章节2.2.1中介绍拉比振荡（近环状结构）。注意到虽然这个案例是线偏振入射（ $\varepsilon_{\text{in}} = 0$ ），衰逝光场的偏振大多拥有椭圆分量。完全线偏光场仅在 $y = 0$ 平面出现（见图 4.3(a)）。我们以等高线形式标注翻转效率 f 。其中 $f > 95\%$ 等高线的宽度在 $w \approx 40 \text{ nm}$ 左右，而 $f > 99\%$ 等高线几乎看不到（宽度在 $w \approx 5 \text{ nm}$ 以下）。显然，在这样的衰逝场光强及偏振的不均分布下，即使是对于光晶格中的超冷原子^[158]， $N = 1$ 单脉冲调控也难以获得完美效果。事实上，如果入射光的偏振状态发生改变，例如产生 $\varepsilon_{\text{in}} = 0.1$ 的椭圆偏振性，则 $f > 99\%$ 的位置将完全消失（图 4.4(b,ii)）。注意 $\varepsilon_{\text{in}} = 0.1$ 级别的偏振变化在单模光纤中很容易在应力不均等条件下出现。

现考虑 $N = 5$ 组合皮秒脉冲序列输入。参考章节2.4.1中介绍，这里我们按照光强容错优化，设置相等振幅 $\{\mathcal{A}_i\}$ ，相位参数优化为 $\{\varphi_i = (0, 5, 2, 5, 0)\pi/6\}$ 的组合脉冲^[9]。在脉冲功率上，取纳米光纤表面 $r \approx 100 \text{ nm}$ 处的线偏振光匹配 $\{\mathcal{A}_i = \pi\}$ ，对于模拟实验（见章节4.6.1）中的 $\tau_0 = 3 \text{ ps}$ 的 sech 脉冲来说，相应脉冲能量为 $\{\mathcal{E}_i \approx 0.5\} \text{ pJ}$ 。在图 4.4(b,iii) 中，我们绘制了 $\varepsilon_{\text{in}} = 0$ 线偏振入射时的原子布居翻转效率 $f(\mathbf{r})$ 近场分布。可以看到，纳米光纤近场中很大面积内的原子均有高翻转效率，其中 $f > 99\%$ 在沿 x 方向上宽度达 $w \approx 100 \text{ nm}$ 。同时，在图 (b,iv) 中我们也可以看到， $N = 5$ 的组合脉冲对入射偏振的变化也具有容错性。我们相信，这样的容错能力有望用于实现被晶格囚禁于近场的超冷原子^[158] 高精度原子态调控。

注意到上述接近完美的布居翻转操控可用于实现原子电偶极跃迁的几何相位门^[29,33]。进一步，通过相向传播的双 D1 翻转脉冲，可对近场原子的电偶极振荡实现亚波长分辨的几何相位调制，在非线性量子光学前沿研究中有潜在的重要应用^[34]。更加一般的，基于章节2.2.4的讨论，组合脉冲可用于在光学跃迁上驱动任意量子门^[10]。注意到纳米光纤界面对光场的长距离聚焦效应极大的降低了此类组合脉冲调控的光功率需求。对于时长为 τ 的皮秒脉冲，单脉冲能量 $\mathcal{E}_1(\pi) \sim 1 \text{ pJ} \cdot \text{ps}/\tau$ 足以驱动纳米光纤表面附近的原子发生 π 布居翻转。而多次 π 脉冲作所需入射脉冲能量遵循 $\mathcal{E}_0 \sim N^2 \mathcal{E}_1(\pi)$ 的标度（章节3.3.4）。因此，即使是需要产生 $N = 10^2$ 子脉冲构成的高度复杂操控^[10]，进入皮秒脉冲调制器（图 3.2）前的入射脉冲能量仍可低于 100 nJ ，完全可以由未经光放大的锁模激光振荡器实现。

本节的纳米光纤-冷原子界面建模及数值计算方法会在章节4.6中予以介绍。

4.4 实验设计及系统介绍

上一节介绍的皮秒组合脉冲近场调控技术可以被用于冷原子，特别是被近场囚禁的超冷原子^[158]实现超快和高精度原子态调控。此外，由于皮秒级相互作用时间 τ_c 超短，即便是对于衰逝场中的热原子（室温下速度 $v_T \sim 100$ m/s），其在脉冲时间内的位移也同时远小于衰逝场长度 ξ 及光场周期 $1/\beta$ ，因此原子可以被认为是静止的。在本节中，我们介绍将皮秒组合脉冲运用于纳米光纤-热原子蒸汽界面的一系列工作。其主要目的，是结合泵浦-探测实验测量及数值建模，推测组合脉冲驱动原子态调控动力学过程及对热原子的量子态调控效率。

4.4.1 泵浦探测实验设计

图 4.5(a) 展示了实验系统基本结构。上述 $D = 500$ nm、 $L = 3$ mm 的纳米光纤被置于真空系统内，充满 Rb 原子蒸汽（见后续章节 4.4.2 介绍）。和 ^{85}Rb 原子 D1 线（见图 4.5(c)）共振的皮秒组合脉冲序列（ $\lambda_c = 795$ nm）被耦合进纳米光纤。该皮秒组合脉冲由“第一代”脉冲序列系统生成（章节 3.3）。

和图 4.4 模拟实验类似，本章实验中我们以原子基态 $|g\rangle$ 到 D1 激发态 $|a\rangle$ 的布居翻转效率 f 作为调控目标。由于布居翻转导致原子 D2 散射截面减小， f 可以由 D2 探测光的透射来监控。为此，我们将与 D2 线 $|g\rangle-|e\rangle$ 共振的弱探测脉冲（ $\lambda_p = 780$ nm）与 D1 控制光合束，并在延时 Δt 后注入纳米光纤。同时，注意到被皮秒激光激发后布居翻转的近场原子很快会被微观热运动下的其他基态原子取代，我们将探测脉冲时长选为 $\tau_p = 2$ ns，以匹配该瞬态吸收信号的衰减时间（见章节 4.5.1）。

在图 4.5(b) 和 (d) 中，我们展示了这一泵浦探测实验设计的原理：在没有 D1 控制脉冲时，弱探测脉冲（与 $|g\rangle-|e\rangle$ 共振）注入纳米光纤后，由于衰逝场中位于基态 $|g\rangle$ 的原子对探测光的吸收（参考章节 2.4.2 中相关介绍），探测光透射率下降 ΔT （图中蓝色阴影部分）。打入 D1 控制脉冲序列后，原子基态布居 ρ_{gg} 减少，从而原子引起的吸收相应减少 δT （红色阴影部分）。值得注意的是，参考图 4.3(c) 中 $\lambda_c = 795$ nm 及 $\lambda_p = 780$ nm 衰逝场径向分布，两者的衰减距离几乎一致，因此用此波长探测光探测控制光的衰逝场调制效果是十分有效的。实验中，出射的探测光脉冲将由后续光栅滤波光路系统从控制光中分离，并由一雪崩光电二极管（APD）进行收集（相关系统参见后续章节 4.4.3 中介绍）。

我们将 δT 由 ΔT 归一化，得到

$$\overline{\delta T} \equiv \delta T / \Delta T. \quad (4.2)$$

$\overline{\delta T}$ 表示的是由控制光引起的原子对探测光吸收率的相对变化。而这一变化由皮秒控制脉冲导致的原子基态布居 ρ_{gg} 的相对减少决定（本章章节 4.6.3 会详细给出

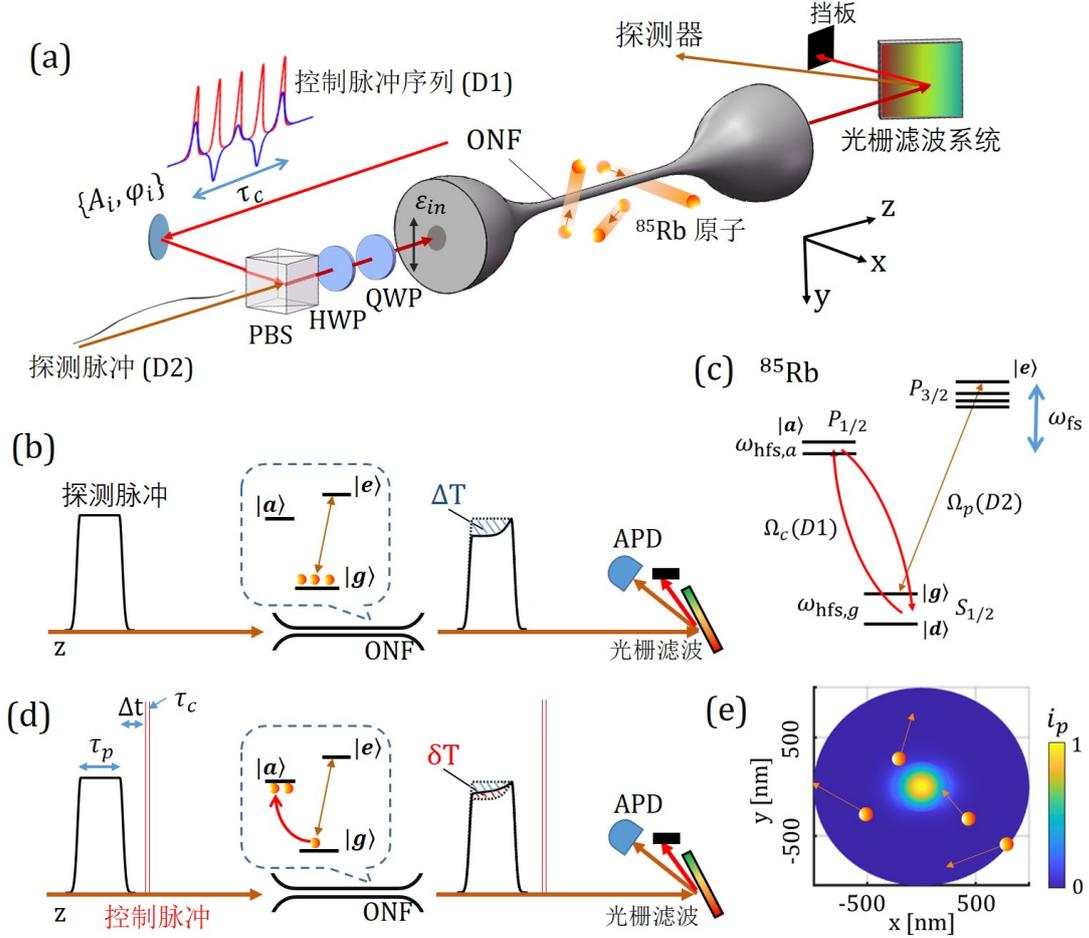


图 4.5 (a) 纳米光纤界面的原子态组合脉冲电偶极调控实验示意图。(b) 一个 $\tau_p = 2 \text{ ns}$ 的 D2 共振探测脉冲经过纳米光纤后，经消逝场原子吸收，透射率下降 ΔT (图中蓝色阴影)。(d) 在 D2 探测脉冲前打入 D1 线组合控制脉冲，可减少基态原子布居 ρ_{gg} 。探测光透射率相应增加 δT (图中红色阴影)。(c) ^{85}Rb 原子 D1 及 D2 能级结构示意图。其中超精细结构分裂 $\omega_{\text{hfs},g} \approx 2\pi \times 3.04 \text{ GHz}$ ， $\omega_{\text{hfs},a} \approx 2\pi \times 0.36 \text{ GHz}$ 。(e) 运动原子穿越纳米光纤消逝场示意图。PBS: 偏振分束棱镜，HWP: 1/2 波片，QWP: 1/4 波片。图片参考文献^[12]。

这一定性结论的数学推导)，结合数值模拟，可以反推出皮秒脉冲控制调制结束瞬间的原子基态 $|g\rangle$ 布居减少率在纳米光纤消逝场界面中的分布，即

$$f_g(\mathbf{r}) \equiv \Delta\rho_{gg}(\mathbf{r}, \tau_c)/\rho_{gg}^{(0)}, \quad (4.3)$$

这里 $\rho_{gg}^{(0)}$ 是纳米光纤周围空间均匀气体在 $t = 0$ 时的基态布居。皮秒组合脉冲控制发生在 $0 \leq t \leq \tau_c$ 内。

需要注意的是，我们所关心的 $|g\rangle - |a\rangle$ 的布居翻转效率分布

$$f(\mathbf{r}) \equiv \rho_{aa}(\mathbf{r}, \tau_c) / \rho_{gg}^{(0)}. \quad (4.4)$$

在实际情况下并不等于 $f_g(\mathbf{r})$ 。这是因为原子能级并不是 $|g\rangle$ 和 $|a\rangle$ 组成的简单二能级体系。如图 4.5(c) 所示，实际原子的基态具有超精细多能级结构 $|g\rangle$ 和 $|d\rangle$ ($\omega_{\text{hfs},g} \approx 2\pi \times 3.04 \text{ GHz}$)。为精确分析调控效果，相应拉曼耦合效应^[62,79-80] 导致的基态间布居转移需要计入到数值建模中。

4.4.2 真空系统

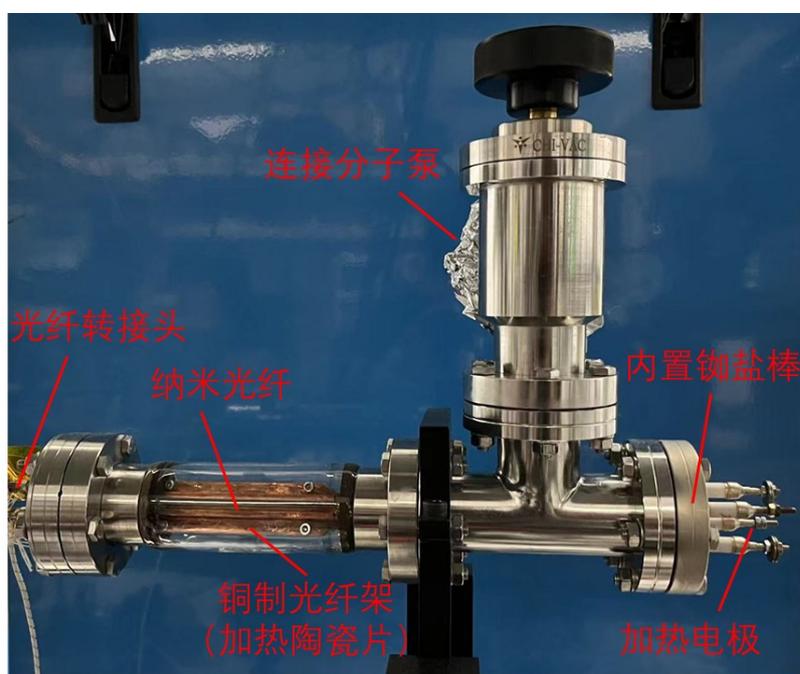


图 4.6 纳米光纤-热原子蒸汽相互作用实验平台装置图。

图 4.6 展示了实验真空装置。纳米光纤 ($D = 500 \text{ nm}$, $L = 3 \text{ mm}$, 肉眼难以看到) 由真空紫外胶固定于铜制光纤架, 进而固定于真空法兰上。金属架上方贴有加热陶瓷片及温度传感器。通过电流控制加热, 可调节光学架整体温度^[159]。光纤通过特氟龙结构^[160] 连接出真空装置并与普通 APC 接口光纤焊接。在距离光纤架 $\sim 30 \text{ cm}$ 处安装有含有铷盐的释放器 (Alkali Metal Dispenser), 由电流控制加热功率可调节 Rb 蒸汽释放率。整套系统由分子泵 (Agilent, Turbo-V 81-AG) - 机械泵 (Agilent, SH-110) 联合系统保持真空, 并由冷阴极电离真空计 (ZHAC, ZDV-I-LED) 进行实时监控。

实验中, 调整铷盐释放器处的电流到 $6 \sim 8 \text{ A}$, 同时加热整个由铝箔包裹的装置至 90°C 附近并保持光纤架温度稍高 $2 \sim 3^\circ\text{C}$, Rb 原子局部分压可达 10^{-3} Pa , 维持波导纳米光纤弱探测光 $\Delta T \approx 10 \sim 20\%$ 的吸收率。该吸收条件在每次实验测

量过程中基本保持不变，而光纤架和环境的温度差保证了 Rb 原子不会在光纤表面凝结。

4.4.3 光学系统

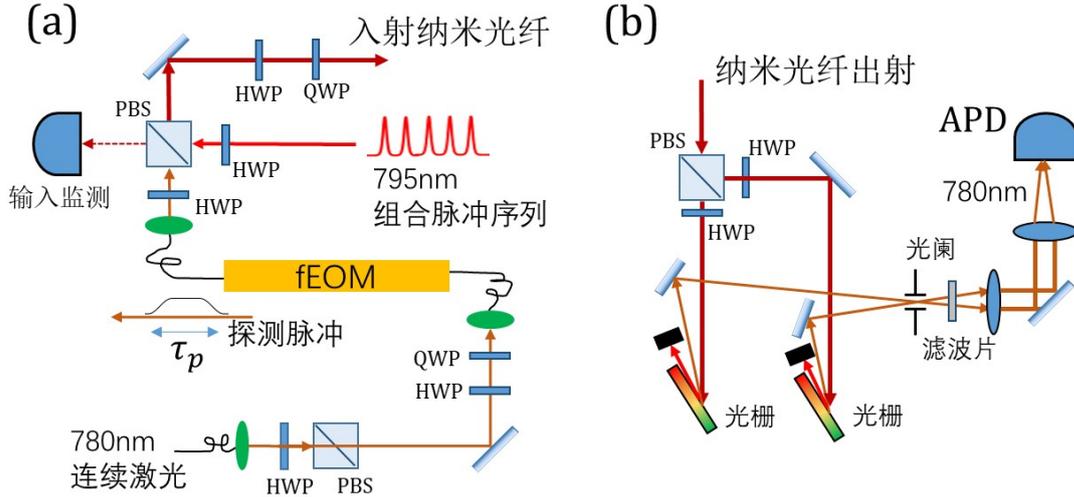


图 4.7 (a) 纳米光纤入射光路示意图。我们通过光纤电光调制器 (fEOM) 将入射波长为 780 nm 的共振连续光调制为 $\tau_p = 2$ ns 的探测脉冲；与皮秒脉冲生成系统出射的组合脉冲实现偏振合束，依次通过电控 1/2 及 1/4 波片，进入纳米光纤。(b) 纳米光纤出射端滤波及信号采集光路。D2 透射脉冲依次经由光栅及 780 nm 滤波片，由雪崩光电二极管 (APD) 收集。我们使用了双光栅系统保证波长选择几乎不依赖于偏振。PBS: 偏振分束棱镜, HWP: 1/2 波片, QWP: 1/4 波片。

皮秒光脉冲序列生成系统已经在章节 3.3 介绍。本实验所用的光学系统还包括纳秒探测脉冲的产生，合束，滤波，及收集部分。其中纳米光纤入射端的光路如图 4.7(a) 所示，包括 τ_p 探测脉冲产生及后续与控制组合脉冲的合束。这里我们使用振幅型光纤电光调制器 (fEOM, EOSPACE, 20 GHz 带宽) 对入射 780 nm 的连续激光进行强度调制。 $\tau_p = 2$ ns 的探测脉冲由任意波形发生器 (AWG, 国仪量子 AWG4100) 输出 2ns 时长电压方波驱动 fEOM 产生。光场频率由饱和吸收光谱 (图中未画出) 锁定到 ^{85}Rb 原子 D2 线 $F = 3$ 到 $F' = 4$ 跃迁。下一步，探测脉冲与皮秒控制脉冲序列通过 PBS 偏振合束，并依次通过由电动旋转台控制的 1/2 及 1/4 波片，再入射纳米光纤。这里光纤耦合效率约为 $\eta_{c,p} \approx 50\%$ 。电控 1/2, 1/4 波片被程控化用来调节输入控制和探测光的任意入射偏振 ε_{in} 。

实验中需要调节并估计纳米光纤传输的皮秒脉冲及纳秒脉冲功率。对于纳秒级弱探测脉冲，我们直接通过换算探测器 (Hamamatsu C5658, 1 GHz, 图中未画出) 上的脉冲峰值信号估计其输入功率。

皮秒组合脉冲功率的测量精度要求更高，测量方法如下：对于相同强度的 N 个孤立皮秒组合脉冲，我们考虑其单个脉冲的能量 \mathcal{E}_i 。使用经定标的功率计（Thorlabs PM160）测量入射纳米光纤前皮秒脉冲序列的平均功率 P ，对于重频为 f_{rep} （由章节3.3.2中脉冲后选取系统选取）的组合脉冲序列，则有 $\mathcal{E}_i = \eta_c P / (N f_{\text{rep}})$ 。

我们也在上述合束系统所用的 PBS 另一端放置一探测器（Hamamatsu C5460, DC-10MHz），用于在实验之前通过比较电压信号峰值快速调节控制脉冲功率，以及在实验期间实时监测入射控制和探测脉冲功率的漂移。

纳米光纤出射端的光学系统如图 4.7(b) 所示。为将 $\lambda_p = 780 \text{ nm}$ 的探测光从 $\lambda_c = 795 \text{ nm}$ 的控制脉冲背景中实现偏振无关分离，我们使用了如图所示的双光栅（ $d = 1/2400 \text{ mm}$ ）滤波系统。纳米光纤出射光由 PBS 按偏振分为两束，并均被 $1/2$ 波片调整成“p”线偏振，分别由两光栅以相同 $\sim 70\%$ 效率衍射（两光栅衍射光路的收集效率以及光程均调至一致）。衍射后的光依次由光阑和 780 nm 滤波片（Thorlabs FL780-10）进一步滤波后，再由雪崩光电探测器（APD, Hamamatsu C5658, 1 GHz）同时收集。收集后的光脉冲转换为电信号被进一步放大处理，详见下一小节。通过上述滤波过程，我们可以完全去除背景中的 795 nm 控制脉冲信号，及可能存在的原子 D1 线荧光信号。

4.4.4 时序设计及信号处理系统

纳米光纤对控制光场的空间限制允许我们在极低的 795 nm 激光峰值功率下完成对原子电偶极的高效操控。如前文所提及， $\mathcal{E}_1(\pi) \sim 1 \text{ pJ} \cdot \text{ps}/\tau$ 级单脉冲能量就能使纳米光纤表面原子发生 $|g\rangle \rightarrow |a\rangle$ 布居翻转。然而与此对应的是原子蒸汽的吸收极易被探测光饱和。为避免相关信号衰减，我们保持注入的探测光脉冲在纳米光纤中的峰值功率约为 $P_p \approx 10 \text{ nW}$ 级别。这一微弱的探测信号级别已非常接近我们信号收集的 APD 模块的噪声极限。

然而，通过重频高达 4 MHz 的高速切换对比来平均差分吸收信号，我们仍可在约 2 s 时间内以 0.1% 的灵敏度探测 δT 变化。物理上，这样的高速切换重复实验是基于纳米光纤-热原子相互作用平台的纳秒级高速恢复特性（参见后续章节4.5.1中的原子运动效应测量）。

图 4.8总结了上述纳米光纤体系控制-探测光脉冲时序以及（实验室自制的）信号差分-平均-放大电路系统。我们以 $t_{\text{rep}} = 250 \text{ ns}$ 的重复频率生成 $\tau_p = 2 \text{ ns}$ 的探测脉冲。每间隔一个探测脉冲，我们在该探测脉冲之前立即输入一个同步的皮秒级控制脉冲序列，从而形成以一对纳秒探测脉冲为周期的 δT 测量。滤去背景控制脉冲后的一对探测脉冲信号被 APD 收集转为电信号，之后被射频放大器（Mini-Circuits ZFL-500+）两次放大，并依次在两个乘法器（AD834）中实现时域波形滤波及选定脉冲符号反转。这里，乘法器时域滤波信号由同步的任意序列发

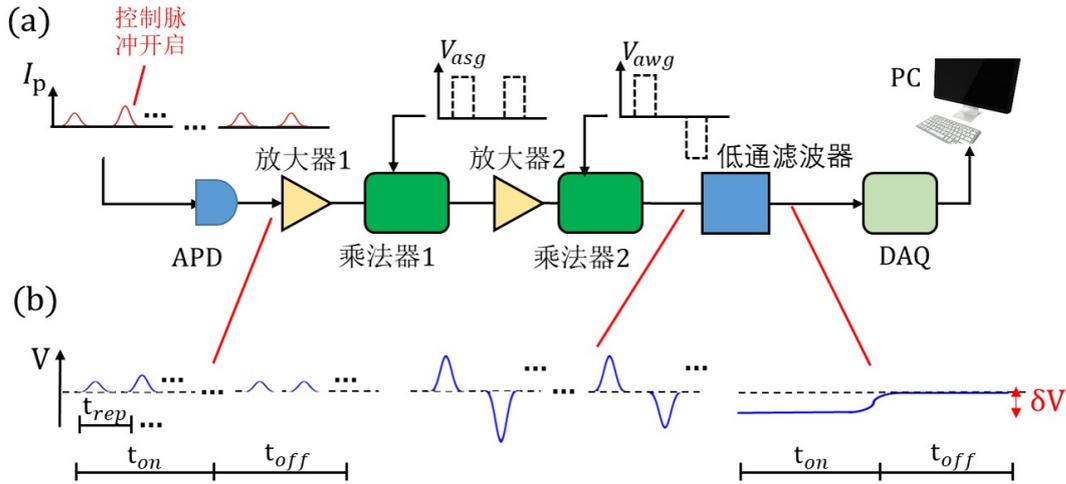


图 4.8 高速信号采集及处理系统示意图。(a) 信号处理电路示意图，APD 采集到的纳秒级探测光电脉冲经此系统差分，放大和平均，转变为缓变的电压信号并最终由数字采集 (DAQ) 卡收集。我们将该过程特征信号波形绘制在图 (b) 中。时序上，在 $t_{on} = 1.25 \text{ ms}$ 期间，我们使控制脉冲以间隔的周期方式与每两个探测脉冲合束，而在另一 $t_{off} = 1.25 \text{ ms}$ 期间，控制脉冲关闭，输出信号的电压幅值差异 δV 正比于瞬态吸收信号 δT 。详见正文介绍。图片参考文献^[12]。

生器 (国仪量子, ASG8000) 给出, 符号反转信号由任意波形发生器 (国仪量子, AWG4100) 给出。然后我们通过 10kHz 带宽低通滤波器对上述处理后的信号进行平均, 低通信号通过数据采集 (DAQ) 卡 (NI USB-6363) 以 100 kHz 采样率发送至计算机。

由低通滤波器积分平均后的信号电平偏移, 可以反映皮秒控制脉冲引起的纳秒探测脉冲透射能量的差异。为测得这一信号偏移量 δV , 在上述 t_{rep} 周期基础上, 我们进一步引入 $t_{on/off}$ 周期, 其中包含: $t_{on} = 1.25 \text{ ms}$, 此时控制光以 $2t_{rep}$ 周期同步打入; $t_{off} = 1.25 \text{ ms}$, 此时控制光完全关闭, 如图 4.8(b) 中信号波形所示。而另一方面, 为了将 δV (对应探测脉冲变化的能量) 与探测信号电平本身 V_0 (对应探测脉冲本身能量) 进行比较, 得到透射率的变化值 δT , 在上述切换周期中, 我们每隔 $t_{int} = 200 \text{ ms}$, 取出 $t_{ref} = 20 \text{ ms}$, 在此 t_{ref} 期间移除探测脉冲对中的第二个脉冲, 以记录 V_0 (图中未画出)。使用此方法, 我们在 2 秒内集成了 $\sim 10^7$ 次差分测量值, 并获得了具有 0.1% 灵敏度的 $\delta T = \delta V/V_0$ 。这样的交替的测量和校准周期确保消除了任何缓慢变化的电子偏移。

最后, 为获得归一化的 $\overline{\delta T} \equiv \delta T/\Delta T$, 无皮秒控制脉冲时的探测光透射率 ΔT 由一慢光电倍增管 (PMT, Hamamatsu CR131) 在实验开始之前以激光频率扫描光谱测出。需要注意的是, 这种毫秒级连续光频率扫描的测量方法对应的是稳态原子对光的吸收 ΔT_{ss} , 对于 $\tau_p = 2 \text{ ns}$ 探测脉冲的瞬时吸收, 我们对比全能级蒙特卡诺模拟 (将于后续章节 4.6.2 中介绍), 得到修正后的 $\Delta T \approx 0.82\Delta T_{ss}$ 。

4.5 实验结果

本章节具体介绍纳米光纤界面皮秒组合脉冲对热原子电偶极调控的实验结果。我们首先介绍热原子纳光界面泵浦-探测信号的纳秒级衰减测量；在接下来的第二、第三部分，分别讨论 $N = 1, 2$ 及 $N = 3$ 组合脉冲驱动的组合脉冲驱动的泵浦-探测信号，并结合数值模拟，定量探讨皮秒组合脉冲衰减场原子布居翻转的调控效率。

4.5.1 瞬态光学响应

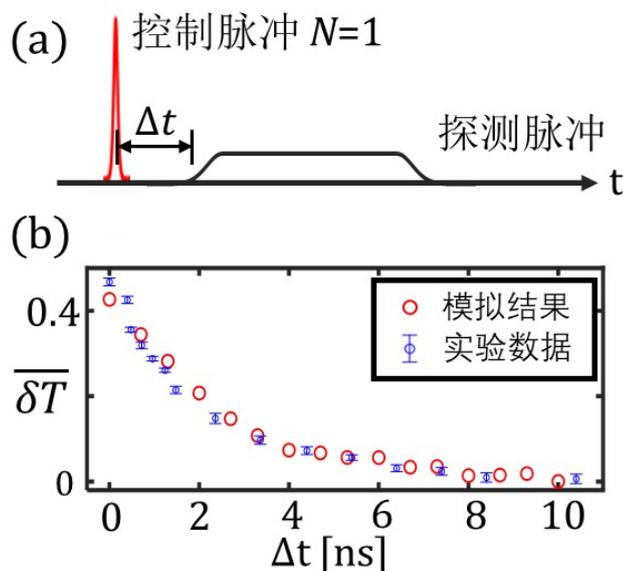


图 4.9 (a) 泵浦-探测时序示意图。(b) 不同延时 Δt 下，控制光引起的探测脉冲透射率相对变化（瞬态吸收） $\overline{\delta T}$ 测量，及蒙特卡洛数值模拟结果。测量数据误差条表示 10 次重复测量的统计不确定性。

在章节 4.4.1 已经提到，经皮秒级 D1 线脉冲激发，纳米光纤衰减场内原子无论是转移到 $|a\rangle$ 激发态或是 $|d\rangle$ 基态，对 D2 线探测脉冲的散射能力均降为零。探测脉冲的透射率因此会上升。然而这些原子会由于热运动效应远离光纤，同时被远处及光纤表面释放的“新”基态原子取代（参考图 4.5(e)）。取代时间可以由 $\tau_T = \xi/v_T^{(r\perp)} \sim 2$ ns 估计。这里 ξ 是衰减波场的衰减长度， $v_T^{(r\perp)} = \sqrt{2k_B T/m}$ 是原子的热运动平均速度（ $T = 360$ K，二维热运动速度 $v_T^{(r\perp)} \approx 270$ m/s）。我们预期探测脉冲透射率会在 τ_T 时间尺度上逐渐下降，于纳秒时间内迅速回归于 ΔT 。

如图 4.9(a) 所示，我们通过改变探测脉冲相对于 $N = 1$ 单皮秒脉冲的延时 Δt 来测量这一瞬态响应。对于 Δt 的调节，我们直接通过延长 fEOM（图 4.7(a)）上信号传输 BNC 线的方式实现，对应的延时 Δt 数值由示波器采集的电信号延时读取，精度约 ~ 0.2 ns。

在图 4.9(b) 中, 我们测量了随 Δt 变化的 $\overline{\delta T}$ 。我们使用 $\varepsilon_{\text{in}} = 0$ 线偏振入射单控制脉冲 ($\tau_c = 2\tau_0 = 24 \text{ ps}$), 并将控制脉冲能量设置为约 $\mathcal{E}_1 \approx 0.5 \text{ pJ}$, 该能量脉冲足以显著减少原子对 D2 探测脉冲的吸收。通过多次重复测量, 获得 $\overline{\delta T} - \Delta t$ 曲线。我们发现在零延时情况下, 瞬态吸收 $\overline{\delta T}$ 可高达 45%, 并有 2 ns 左右的 $1/e$ 衰减时间常数。显而易见的是, 这一时间常数代表的是原子穿越消逝场范围的有效“渡越时间”。该纳秒级瞬态响应是我们上述高速切换测量实验设计的基础。

为佐证上述瞬态吸收图像, 我们对热原子皮秒脉冲激发-纳秒脉冲探测的微观过程进行了全能级蒙特卡洛数值模拟, 结果呈现为图 4.9(b) 中的红色圆圈, 详细模拟过程见章节 4.6.2, 可以看到模拟曲线与实验数据基本吻合。在数值模拟中, 我们发现控制脉冲的能量大小会略微影响 $\overline{\delta T}$ 随 Δt 的衰减速度 (对数级 $\log(\mathcal{E}_1)$ 变化): 已经提到, “新”基态原子向近场的补充由两种通道进行——即纳米光纤表面解吸附及远处原子飞入。当控制光能量 \mathcal{E}_1 增强时, 更远处的原子会被激发, 导致第二种补充效应变慢, 降低瞬态光谱变化速度。

4.5.2 N=1,2 皮秒脉冲调控

· N=1 单脉冲调控及饱和效应

我们首先讨论 $N = 1$ 单皮秒脉冲泵浦-探测实验。我们将实验证明在亚皮焦耳脉冲能量下单脉冲的原子态激发效应可达到完全饱和^[140-143]。在该测量过程中, 我们还发现了瞬态原子响应的偏振依赖性。

在章节 4.3 中, 我们已经介绍, 由于消逝场存在高度不均匀的光强和椭圆度分布, 单控制脉冲激发下原子基态布居损失 $f_g(\mathbf{r})$ 在近场出现 0 和 1 之间振荡 (空间拉比振荡)。可以预期, 在足够强的皮秒脉冲激发下, 探测光感知到的近场原子基态布居减半, 因此有探测脉冲衰减减半, 瞬态吸收 $\overline{\delta T}$ 接近 50%。这一结果已经在图 4.9(b) 中体现。

在本节中, 我们通过对与 \mathcal{E}_1 相关的 $\overline{\delta T}$ 的测量来证实这一图像。我们将探测脉冲延迟调整为 $\Delta t = 0 \text{ ps}$ 以获得最佳的非线性透射变化信号。图 4.10(b) 绘制了 $\overline{\delta T}$ 随 \mathcal{E}_1 变化的两组数据, 分别设控制光脉冲的偏振状态为线偏振 ($\varepsilon_{\text{in}} = 0$, 蓝色方形) 和圆偏振 ($\varepsilon_{\text{in}} = 1$, 红色圆圈)。注意探测光的偏振和控制光垂直。可以看到, 在这两种情况下, $\overline{\delta T}$ 均随 \mathcal{E}_1 增加, 在不到 0.5 pJ 的 \mathcal{E}_1 处 $\overline{\delta T} \approx 0.45$ 就几乎达到完全饱和。

得益于 δT 的高灵敏度探测, 在 $\mathcal{E}_1 = 0.2 \text{ pJ}$ 附近, 实验探测到了圆偏振和线偏振入射控制光所造成的 $\overline{\delta T}$ 微小差异。事实上, 在实际实验中我们正是运用这一差异标定上述入射纳米光纤中的脉冲偏振性质。方法如图 4.11 中所示, 我们通过扫描纳米光纤入射端的 HWP 及 QWP (均位于电动转台上, 图 4.5(a), 图 4.7(a)) 角度来调整入射脉冲偏振 ε_{in} 。在 $\mathcal{E}_1 = 0.2 \text{ pJ}$ 条件下, 测得 $\overline{\delta T}$ 随两波片旋转角度变化的结果。我们取图中“L”和“C”标记处的波片角度组合, 分别对应 $\varepsilon_{\text{in}} = 0$

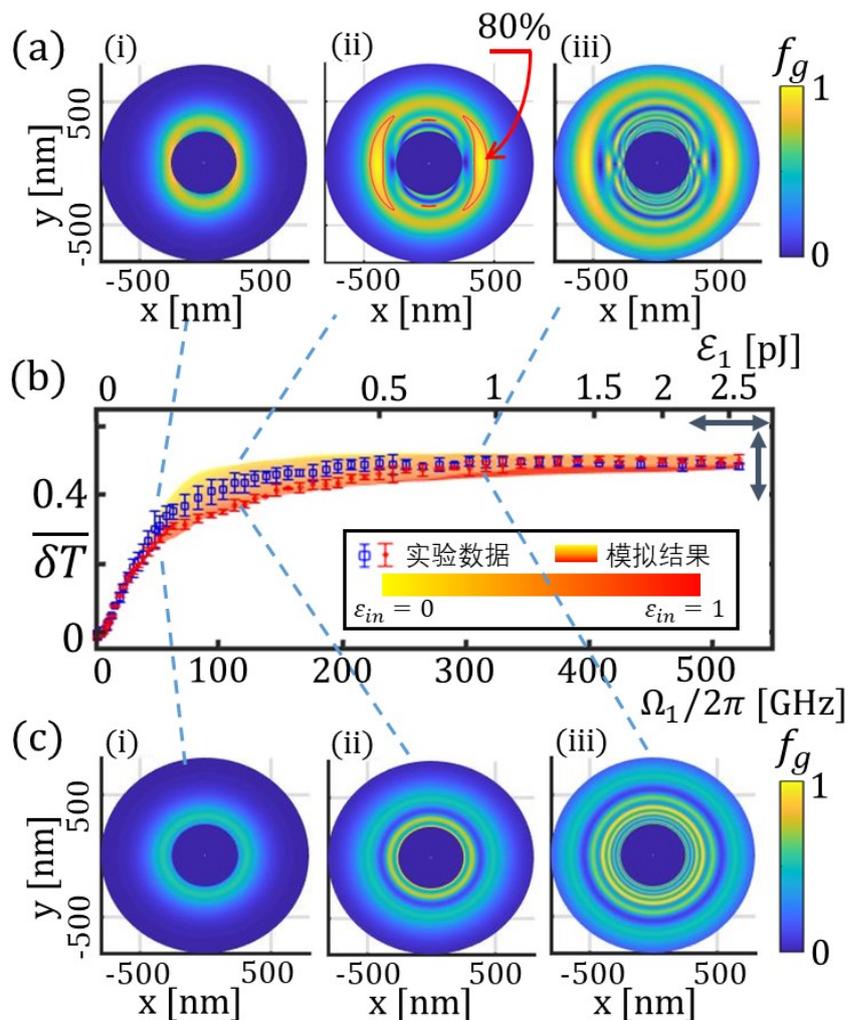


图 4.10 纳米光纤界面 $N = 1$ 皮秒脉冲激发布居转移的饱和效应。在图 (a)(c), 我们给出能量为 ϵ_1 单脉冲激发下的基态布居转移率 $f_g(\mathbf{r})$ 空间分布。图 (a) 和 (c) 分别对应入射 HE_{11} 模式为 $\epsilon_{in} = 0$ 线偏振和 $\epsilon_{in} = 1$ 圆偏振。为和后续 $N = 3$ 调控对比, 图 (a,ii) 强调了 $f_g = 80\%$ 的等高线。图 (b) 给出各种入射椭圆偏振参数 ϵ_{in} 下数值模拟的瞬态吸收 $\overline{\delta T}$, 颜色由 ϵ_{in} 编码。光纤表面峰值拉比频率 Ω_1 轴适用于线性偏振入射情况。实验测量 $\overline{\delta T}$ 及 Ω_1 数据点用方形 ($\epsilon_{in} = 0$) 和圆形 ($\epsilon_{in} = 1$) 符号绘制, 误差条代表三次重复测量估计。图中实验条件参数 Ω_i 和 ΔT 整体进行了缩放, 相关幅度在图 (b) 右上角以箭头表示 (参见章节 4.6.4)。图片参考文献^[12]。

的线偏振和 $\epsilon_{in} = 1$ 的圆偏振入射。

我们对图 4.10(b) 的实验结果进行了数值模拟。不同于图 4.9 中的蒙特卡洛方法, 这里我们使用了一种计算速度更快的扩散平均模型 (详见后续章节 4.6.3), 通过对脉冲能量 ϵ_1 及瞬态吸收 $\overline{\delta T}$ 的小幅度全局调整, 实验测量和理论模拟获得了相当精确的吻合 ($\epsilon_1 \approx 0.2$ pJ 附近线偏振数据实验和理论的偏离, 可能源于

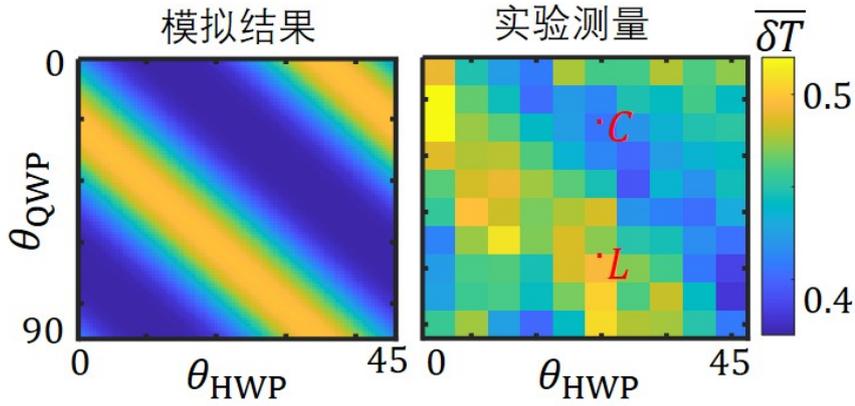


图 4.11 瞬态吸收 $\overline{\delta T}$ 随 HWP 和 QWP 玻片扫描角度变化的实验测量 (b) 和数值模拟 (a)。测量在 $\mathcal{E}_1 = 0.2 \text{ pJ}$ 入射脉冲能量上展开。在 (b) 实验数据中，用于实现线偏振 $\varepsilon_{\text{in}} = 0$ 和圆偏振 $\varepsilon_{\text{in}} = 1$ 的两种对应波片组合用“L”和“C”标记。图片参考文献^[12]。

偏振控制的不精确)。

以下，我们对两种皮秒控制光入射偏振状态下的 $\overline{\delta T} - \mathcal{E}_1$ 曲线稍作分析。注意到入射偏振 $\varepsilon_{\text{in}} = 0$ 及 $\varepsilon_{\text{in}} = 1$ 对应不同衰减近场光强和偏振分布 (图 4.3(a)(b))。在入射脉冲能量较小时 ($\mathcal{E}_1 < 0.1 \text{ pJ}$)，两种偏振入射光的 $\overline{\delta T}$ 变化趋势几乎一致 (图 4.10(b))，这是因为对于基态布居平均分布的原子来说，对于超快的皮秒激发，塞曼子能级的平均激发效率在线性区间并不随激发光偏振变化 (见图 (2.9))。然而，当 $\mathcal{E}_1 \approx 0.2 \text{ pJ}$ 时，圆偏振激发由于更大的拉比频率提前接近饱和，而线偏振光激发效率继续提高。这种饱和效应的差异引起了 $f_g(\mathbf{r})$ 分布的差异 (图 4.10(a,ii)(c,ii))，造成 $\overline{\delta T}$ 差异。值得一提的是，实际上这一差异由于热运动原子的平均效应已被大幅减弱。而对于固定原子 (例如冷原子体系) 来说，数值模拟预测在 $\varepsilon_{\text{in}} = 0$ 的线偏振入射条件下 $\mathcal{E}_1 = 0.2 \text{ pJ}$ 附近会出现 $\overline{\delta T}$ 极大至 $\overline{\delta T} = 0.6$ 左右，而相同 \mathcal{E}_1 下 $\varepsilon_{\text{in}} = 1$ 下仅有 $\overline{\delta T} = 0.35$ 。

最后，当 $\mathcal{E}_1 > 0.4 \text{ pJ}$ 时，两种入射偏振下的 $\overline{\delta T}$ 又将趋于一致。已经提及，这种饱和是探测光探测范围内 $f_g(\mathbf{r})$ 在 0-1 间振荡的平均效果。两种偏振注入控制光激发导致的 $f_g(\mathbf{r})$ 分布 (图 (a,iii)(c,iii)) 在高脉冲功率时仅有高频变化差异，平均后与探测光的耦合效果类似。这里需要注意的是，在图 4.10(c,iii) 案例中，如果近场原子感受到纯圆偏振 $\varepsilon(\mathbf{r}) = 1$ ，则由图 2.9，由于一半的原子失耦 (对应 $f_{g,\text{max}} = 0.5$)，基态转移率 f_g 平均值仅会趋于 0.25。实际实验中，由于纳米光纤近场光场的手征特性^[161]，衰减场 $\varepsilon(\mathbf{r}) \approx 0.95$ (图 4.3(b)) 无法达到纯圆。该手性机制在这个实验中保证了所有基态原子均被饱和激发。

在上述及后续讨论中，我们将脉冲能量 \mathcal{E}_i 和线偏振脉冲光的拉比频率 Ω_i 对应。这里 Ω_i 定义为脉冲在纳米光纤表面位置处，经角向平均后的峰值拉比频率，

即

$$\Omega_i \equiv \langle (\Omega_c(\mathbf{r}))_{r=D/2} \rangle_\phi. \quad (4.5)$$

而场强 $\mathbf{E}_c(\mathbf{r}, t)$ 和脉冲能量 \mathcal{E}_i 关系为:

$$\frac{1}{2} \int \varepsilon_0 c k_c \mathcal{N}^2 |\mathbf{E}_c(\mathbf{r}, t)|^2 / \beta_c d^2 \mathbf{r}_\perp dt = N \mathcal{E}_i, \quad (4.6)$$

其中 $\mathcal{N}(\mathbf{r}_\perp)$ 描述纳米光纤界面的折射率分布。我们取 $\mathcal{N} = 1.5(|\mathbf{r}_\perp| \leq D/2)$, $\mathcal{N} = 1(|\mathbf{r}_\perp| > D/2)$ 。

· N=2 双脉冲调控

图 4.12 展示了 $N = 2$ 脉冲序列的瞬态吸收 $\overline{\delta T}$ 控制效果。实验中，子脉冲间隔设置为 $\tau_d = 24$ ps 并设置相等振幅 $\{A_i\}$ 。我们在由式 (4.5) 定义的不同拉比频率 Ω_i 下，扫描脉冲相对相位 $\Delta\varphi_{1,2} = \varphi_1 - \varphi_2$ ，探测 $\overline{\delta T}$ 变化。注意本实验入射脉冲的偏振态 ε_{in} 没有进行特别控制。

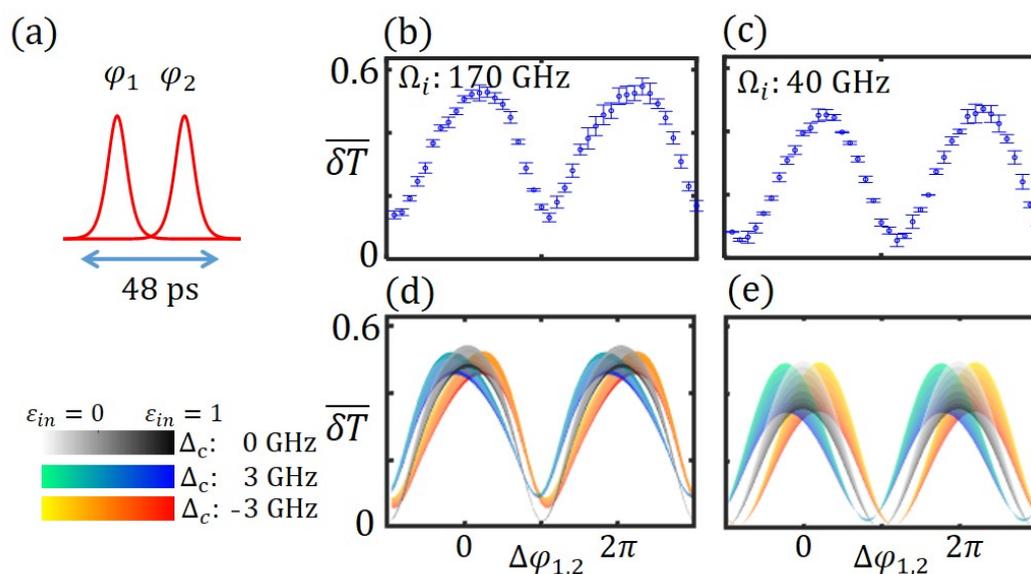


图 4.12 $N = 2$ 双脉冲调控实验。图 (a) 给出脉冲序列的时域光强波形示意。图 (b) 和 (c) 是 $\Omega_i = 2\pi \times 170, 40$ GHz 拉比频率下测量的 $\overline{\delta T}$ 随相位 $\Delta\varphi_{1,2} = \varphi_1 - \varphi_2$ 变化曲线。图 (d) 和 (e) 给出对应基于扩散平均模型的数值模拟结果。误差条源于 3 次实验统计。实验条件参数 Ω_i 和 ΔT 进行了整体缩放（参见章节 4.6.4）。

在小功率脉冲实验中（图 4.12(c)）， $\overline{\delta T}$ 随相位的正弦变化规律与我们在章节 3.5.2 中展示的光谱强度变化预期一致（图 3.11）。与此相反，图 4.12(b) 的大功率脉冲结果表现为 $\overline{\delta T}$ 相对正弦曲线的非线性扭曲。结合扩散平均模型数值模拟，我们发现这种扭曲和皮秒脉冲的载波频率 ω_c 失谐于原子共振 ω_{ag} ，即存在 GHz

级 Δ_c 相关。

4.5.3 $N=3$ 组合脉冲容错调控

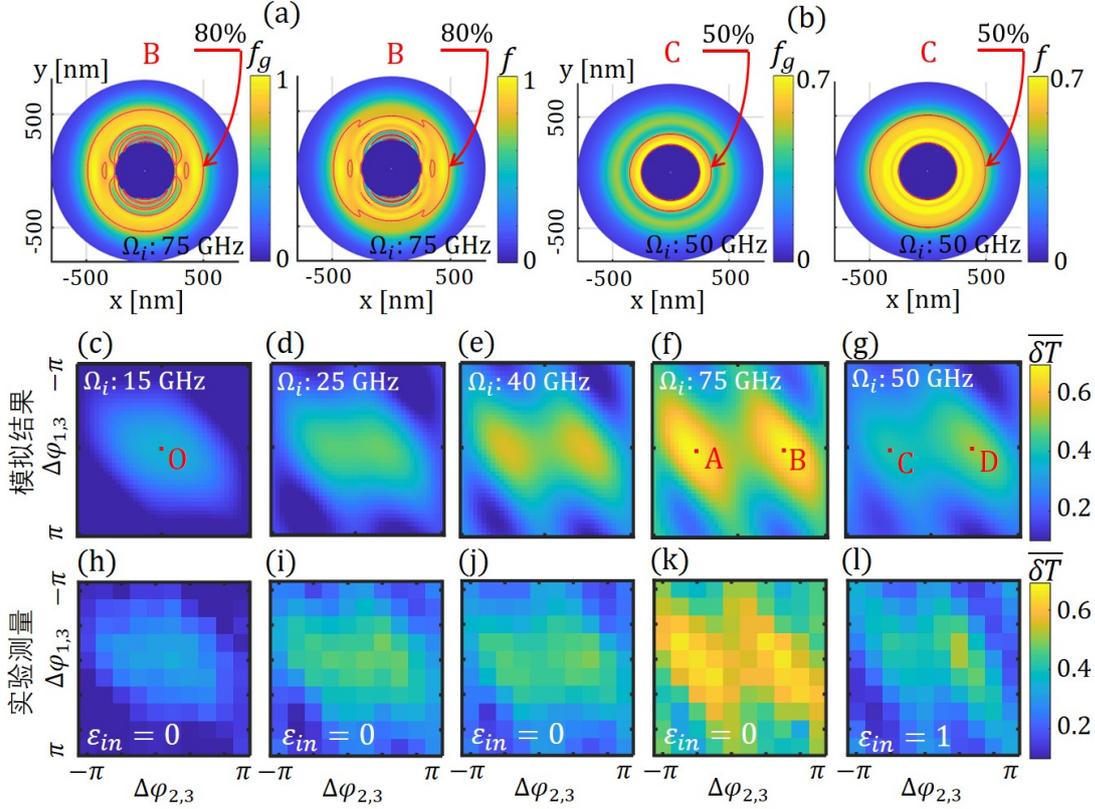


图 4.13 $N = 3$ 皮秒组合脉冲调控实验。在图 (c-g) 中，我们分别在不同 Ω_i 下，展示了由数值模拟给出的 $\overline{\delta T}$ 随脉冲相位 $\Delta\varphi_{1,3}$, $\Delta\varphi_{2,3}$ 变化关系图。其中 (c-f) 的入射脉冲为 HE_{11}^y 模式的线偏振 $\varepsilon_{\text{in}} = 0$ ，(g) 中为 HE_{11}^x 模式的圆偏振 $\varepsilon_{\text{in}} = 1$ 。在图 (a) 和 (b) 中，我们分别对图中标记“B”和“C”的相位组合脉冲调控绘制了相应的 $f_g(\mathbf{r})$, $f(\mathbf{r})$ 分布。在 (a) 中，我们用红色等高线标记了 $f_g = 80\%$ 和 $f = 80\%$ 的范围，用于和图 4.10(a,ii) 中的 $N = 1$ 单脉冲调控比较。类似的，在 (b) 中我们也标记了 $f_g = 50\%$ 和 $f = 50\%$ 的范围。在图 (h-l) 中，我们分别展示了实验测量得到的 $\overline{\delta T}$ （对应于图 (c-g) 条件）。我们基于实验条件的不确定度，整体性的对实验条件参数 Ω_i 和 ΔT 进行了缩放（参见章节 4.6.4）。模拟和实验两者整体上吻合良好。图片参考文献^[12]。

本节通过皮秒组合脉冲序列激发的泵浦-探测实验测量演示纳米光纤界面容错布居翻转。由于“第一代”皮秒脉冲序列发生装置的技术限制（参考章节 3.3），我们将组合脉冲的最大子脉冲数限制为 $N = 3$ 。

和上述 $N = 2$ 脉冲序列一样，我们设置三子脉冲相对延时 $\tau_d = 24$ ps，振幅 $\{A_i\}$ 一致，泵浦探测延时 $\Delta t = 0$ ，在由式 (4.5) 定义的特定拉比频率 Ω_i 下，二

维扫描子脉冲相对相位 $\Delta\varphi_{1,3} = \varphi_1 - \varphi_3$, $\Delta\varphi_{2,3} = \varphi_2 - \varphi_3$, 并记录瞬态吸收 $\overline{\delta T}$ 。其典型结果如图 4.13 中所示。

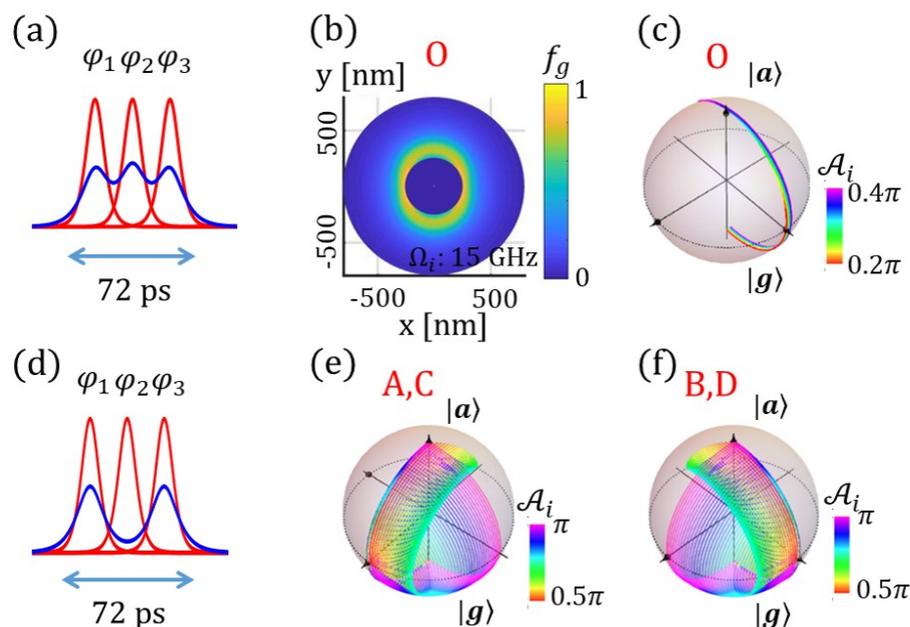


图 4.14 纳米光纤衰逝场中 $N = 3$ 组合脉冲对原子电偶极的驱动模型，联合图 4.13。对于单脉冲脉宽 $\tau_0 = 12$ ，等时间间隔 $\tau_0 = 12$ ps 的皮秒控制脉冲序列，在图 (a) 和 (d) 中，我们分别绘制了 $\varphi_{1,2,3} = 0$ 及 $\varphi_{1,2,3} = \{0, \pm\pi/2, 0\}$ 所对应的脉冲序列时域波形。其中红色曲线为光强，蓝色曲线为电场实部。图 (b) 给出了 $\varphi_{1,2,3} = 0$ 下（对应图 4.13 中“O”标记）的衰逝场 $f_g(\mathbf{r})$ 分布，其等效于图 4.10(a) 中所对应的 $N = 1$ 单脉冲调控。在图 (c)(e)(f) 中，我们分别展示了相应条件下，不同脉冲面积 \mathcal{A}_i 的脉冲序列对布洛赫球上态矢量调控的动力学过程。

我们结合图 4.14 布洛赫球图像，就图 4.13 实验结果给出相关物理解释。

首先，需要说明的是，由于实验中仅有 $\tau_d \approx 2\tau_0$ ，时域子脉冲波形有小部分的重叠（图 4.14(a)(d)）。在以下分析中，我们简化模型，认为三个子脉冲是相互孤立的。数值模拟计算表明这一简化分析对物理图像没有实质影响。

我们首先考虑 $\varepsilon_{in} = 0$ 的线偏振入射脉冲。在低脉冲能量 $\{\mathcal{E}_i\}$ 时，我们期望线性原子态激发的效率正比于组合脉冲在共振频率 ω_{ag} 上的频谱强度。因此， $\Delta\varphi_{1,3} = \Delta\varphi_{2,3} = 0$ 时控制最有效。在图 4.13(c) 中我们用“O”来标记这个相位组合，相应波形绘制于图 4.14(a)。我们发现，图 4.13(c) 和 (e) 的模拟及实验测量结果有很好的吻合。

对应于该弱激发区间，在图 4.13(b) 中我们绘制了“O”点相位组合脉冲序列激发下原子基态转移率分布 $f_g(\mathbf{r})$ 。可以发现，这一“长脉冲”数值结果和

图 4.10(a.i) “短脉冲” 结果非常相似。我们以布洛赫球模型描述此时的组合脉冲调控过程。如图 4.14(c) 所示, 该 $N = 3$ 同相位脉冲序列等效于 $N = 1$ 单脉冲调控, 因此调控效果对消逝场光强 (或偏振) 误差都并不具有容错性。

然而, 随着子脉冲能量 $\{\mathcal{E}_i\}$ 的增加, 当单脉冲面积达到约 $\mathcal{A}_i \approx \pi/3$ ($\mathcal{A}_i = \int \Omega_i dt$) 时, 我们发现最优 $\overline{\delta T}$ 所对应的相位组合逐渐偏离上述 $\Delta\varphi_{1,3} = \Delta\varphi_{2,3} = 0$, 而是逐渐分裂成两种相位组合, 并在 \mathcal{A}_i 接近于 π 时为 $\{0, \pm\pi/2, 0\}$ (图 4.13(f),(k))。在图 4.13(c)~(f) 中, 我们绘制了对应的 $\overline{\delta T}$ 模拟结果 (扩散平均模型), 再次验证了实验和理论的良好吻合。需要着重强调的是, 在 $\Omega_i \approx 2\pi \times 75$ GHz 且纳米光纤入射脉冲为线偏振时 (图 4.13(f)(k)), 我们在该最优相位组合附近发现 $\overline{\delta T} \sim 0.7$, 明显超过单脉冲饱和值 0.45。

对于 $\{\varphi_i\} = \{0, \pi/2, 0\}$ 相位组合 (由 “B” 标记), 我们由全能级数值模拟还原了组合脉冲激发导致的原子基态布居转移率 $f_g(\mathbf{r})$ 。可以看到, $\overline{\delta T}$ 的优化源自于消逝场内大面积范围且相互连接的 $f_g(\mathbf{r}) > 80\%$ (沿任意径向均有宽度 $w \approx 200$ nm, 见图 4.13(a)), 远大于 $N = 1$ 单脉冲的效果 (仅沿 x 方向, 在相应位置附近有宽度 $w \approx 100$ nm, 见图 4.10(a,ii))。这一现象即反映了 $N = 3$ 组合脉冲对消逝场强度和偏振分布的容错调制效果。我们还绘制了相同条件下的 $f(\mathbf{r})$ 分布, 可以看到 $f(\mathbf{r}) > 80\%$ 与 $f_g(\mathbf{r}) > 80\%$ 的等高线基本一致, 仅具有微小区域的差别。这说明, 由泵浦探测实验设计 $\overline{\delta T}$ 测量反映的 ρ_{gg} 瞬态变化主要由 $|g\rangle - |a\rangle$ 布居翻转导致。

我们试图用布洛赫球模型直观理解上述 $N = 3$ 组合脉冲在 $\{\varphi_i\} = \{0, \pm\pi/2, 0\}$ 附近的光强容错能力。首先, 在图 4.14(d) 中, 我们绘制了该组合脉冲的时域波形示意。在图 4.14(e) 和 (f) 中, 我们分别绘制了 $\varphi_2 = -\pi/2$ (对应图 4.13 中标记 “A”、“C”) 及 $\varphi_2 = \pi/2$ (对应 “B”、“D”) 时, 态矢量在不同单个脉冲面积 $\mathcal{A}_i = 0.5\pi \sim \pi$ 下的随 $N = 3$ 控制脉冲旋转的全过程。可以看到在这两种情况下, 第二子脉冲的旋转自动抵消 (减少) 了第一和第三子脉冲的额外旋转。这种冗余旋转角度的自动抵消作用, 和章节 2.2.4 中 $N = 5$ 组合脉冲示例类似。

上述物理图像的讨论均基于二能级系统。另一方面, 在 $\tau_c \ll 1/\omega_{\text{hfs},g}, 1/\omega_{\text{hfs},e}$ 时, 组合脉冲对光场偏振的容错性和章节 2.3.3, 图 2.9 的讨论完全一致。然而, 从图 4.13(g)(l) 中, 一个有趣的发现是该二能级模型预言的 $\{0, \pm\pi/2, 0\}$ 相位组合对称性在圆偏振入射组合脉冲激发下被破坏。这是由于对于该 $N = 3$ 脉冲来说, 我们的组合脉冲持续时间 $\tau_c \approx 70$ ps $\approx 1/\omega_{\text{hfs},g}$ 已经可以和 ^{85}Rb 原子的基态劈裂比拟。在此时间尺度上, 圆偏振光可以驱动的双光子拉曼跃迁 ($|g\rangle - |d\rangle$), 而上述正负相位组合下的拉曼激发效率不同。

具体来说, 对应于实验情形, 我们考虑初始原子随机分布于基态 $|g\rangle$ 和 $|d\rangle$ 。如图 4.13(a) 中标记 “B” 所示, 相比于翻转效率 $f(\mathbf{r})$, 基态布居转移率 $f_g(\mathbf{r})$ 更大。这就是因为 $\varphi_2 = \pi/2$ 组合脉冲可驱动定向 $|g\rangle \rightarrow |d\rangle$ 跃迁。相似的, 对于

$\varphi_2 = -\pi/2$ (标记“A”), 相反的 $|d\rangle \rightarrow |g\rangle$ 拉曼跃迁被定向驱动, 导致 $f_g(\mathbf{r})$ 略小于 $f(\mathbf{r})$ (图中未画出)。然而在线偏振入射 $\varepsilon_{\text{in}} = 0$ 脉冲激发下, 无论上述那种情况, 拉曼跃迁的贡献都非常小, 不足以改变 $\overline{\delta T}$ 对于 $\varphi_2 \sim \pm\pi/2$ 的对称性, 例如图 4.13(c)~(f) 和 (h)~(k)。这是因为对于线偏振入射, 纳米光纤消逝场的光场局域偏振总接近于线性 (参考图4.3(a))。此时, 只要有 $\omega_{\text{hfs},a}\tau_c \ll 1$, 双光子拉曼跃迁很大程度上可以被抑制^[81]。

另一方面, 对于 $\varepsilon_{\text{in}} = 1$ 的圆偏振入射, 消逝场中光场的局域偏振接近圆偏 (参考图4.3(b))。因而在图 4.13(g) 和 (l) 中可以看到“C”点 (对应 $\varphi_2 = -\pi/2$) 处的 $\overline{\delta T}$ 明显小于“D”点 (对应 $\varphi_2 = \pi/2$)。在图 4.13(b) 中, 我们同样通过 D1 线全能级数值模拟, 还原了消逝场的 $f_g(\mathbf{r})$ 和 $f(\mathbf{r})$ 分布。这一 $f_g(\mathbf{r})$ 与 $f(\mathbf{r})$ 在近圆偏振下的明显差异, 验证了上述物理图像。

4.6 纳米光纤界面的泵浦探测数值模拟方案

在这一章节中, 我们在皮秒到纳秒的时间尺度上模拟纳米光纤界面上的光与原子相互作用动力学。这一模型不仅生成了皮秒组合脉冲控制的数值结果 (例如 图 4.4(b)), 还帮助我们对探测光 $\overline{\delta T}$ 的测量进行了建模, 从实验结果推断出皮秒脉冲控制的布居反转效率 f 。

在这一数值模型中, 我们首先利用了纳米光纤 HE_{11} 模式的消逝场电场分布, 这一部分已经在章节4.2中进行了介绍。同时, 由于纳米光纤消逝场沿传输方向 z 不变, 这一数值模拟也将在 z 固定的 (x, y) 截面上进行考虑。

对于时长足够短的皮秒控制脉冲 ($v_T\tau_c \ll \xi, \Gamma_a\tau_c \ll 1$), 我们忽略控制光作用时间内的原子位移以及自发辐射 ($1/\Gamma_a \approx 27 \text{ ns}$)。因此, 参考第二章中的理论介绍, 对于纳米光纤周围任意位置 \mathbf{r} 上的原子, 我们可以简单的通过对薛定谔方程积分, 计算由 $-\mathbf{E}_c(\mathbf{r}, t) \cdot \mathbf{d}$ 驱动的 D1 线原子态演化。下述章节4.6.1将详细介绍 D1 控制脉冲作用的全能级计算过程。

不同于皮秒级控制脉冲时间 τ_c , 对于 $\tau_p = 2 \text{ ns}$ 的纳秒级探测脉冲而言, 我们不能简单的忽略在这一过程中原子运动。事实上, $v_T^{(r\perp)}\tau_p \approx 540 \text{ nm} \gg \xi$, 我们预计纳米光纤-热原子蒸汽系统将处于介观状态^[162]。理论上, 为模拟这样的原子体系运动响应, 可以利用全能级演化的蒙特卡洛方案, 即对足够多的原子轨迹 $\mathbf{r}(t) = \mathbf{r}_0 + \mathbf{v}_0 t$ 采样, 并对每一轨迹逐步计算 $-\mathbf{E}_p(\mathbf{r}(t), t) \cdot \mathbf{d}$ 相互作用。我们将在章节4.6.2中介绍这一模拟方案。

然而, 对于我们多个参数维度下的实验而言, 这样“繁琐”的全能级蒙特卡洛方法所需的计算资源过于庞大。因此在章节4.6.3中, 鉴于原子的热运动倾向于减弱瞬态的光学响应, 我们将介绍另一种近似的扩散平均模型来有效的评估运动原子对探测脉冲吸收的变化。我们通过对上述全能级的蒙特卡洛模拟采样, 验证了这一近似方案的有效性。

这一数值模拟全部基于 Matlab 及相应程序包实现^[80]。在具体计算过程中，我们均基于小量时间元 δt 对相应物理量进行数值演化（ δt 值的具体选取与哈密顿量形式相关，与计算资源消耗均衡考虑，一般的，对于皮秒控制脉冲，取 $\delta t = 0.01$ ps，对于纳秒探测脉冲，取 $\delta t = 0.01$ ns），在后续介绍中将不再做特别说明。

4.6.1 D1 线皮秒相互作用全能级数值模拟

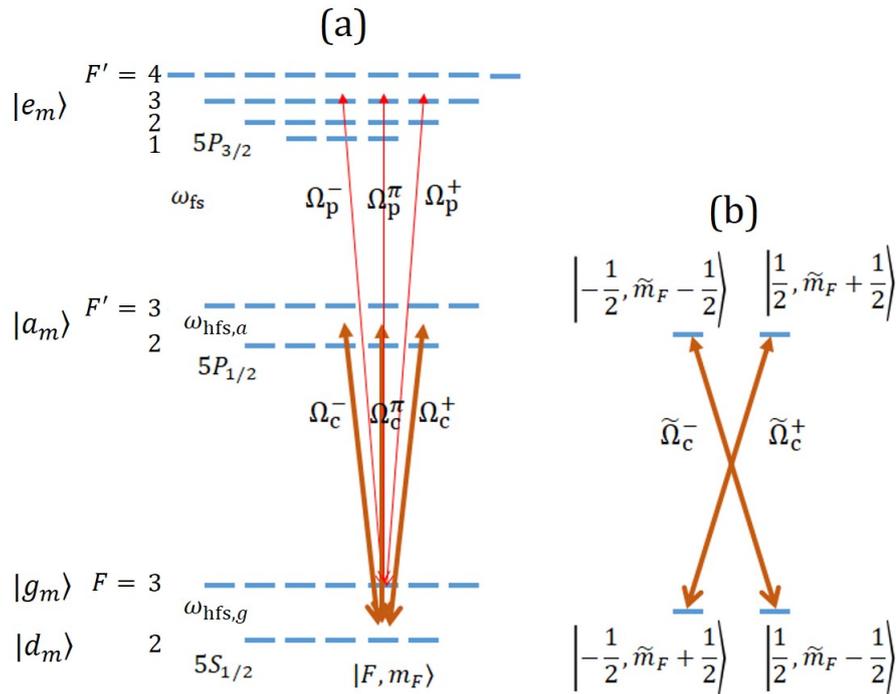


图 4.15 ^{85}Rb 原子的 D1/D2 能级结构及共振光耦合。(a) 量子化轴 z 方向（沿纳米光纤）。控制/探测光衰逝场任意位置的局域电场 $\mathbf{E}_{p,c}(\mathbf{r})$ 均可被分解为沿 $\mathbf{e}_{\pm,z}$ 方向的 $\Omega_{p,c}^{\pm,\pi}$ 耦合。由于双光子跃迁（图中未显示），该系统的动力学过程无法由二能级分解。(b) 对于皮秒级组合脉冲 $\tau_c \ll 1/\omega_{\text{hfs},g}, 1/\omega_{\text{hfs},a}$ ，D1 线的光耦合退化为类似图 2.9 的准二能级体系。为此，我们将原子能级由 $|F, m_F\rangle$ 基转换为 $|m_J, m_I\rangle$ 基表示（章节 2.3.2）并将局域电场沿手性矢量 \mathbf{e}_h 分为 $\tilde{\Omega}_c^{\pm}$ 圆偏振分量。 \sim 符号用于区别其与图 (a) 中量子化轴选择。图片参考文献^[12]。

图 4.15(a) 绘制了 ^{85}Rb 原子 D1/D2 电偶极相互作用的全能级示意图。为计算方便，我们取纳米光纤 z 方向为原子量子化轴，并且用 $|g_m\rangle$, $|d_m\rangle$ 来表示基态超精细结构的塞曼子能级，用 $|a_m\rangle$, $|e_m\rangle$ 分别表示相应激发态的塞曼子能级。这里，记号 a, e 包含了对应激发态的超精细结构的各总角动量 F 。

对于近似为“静止”的原子气体，皮秒控制脉冲的调控效果可以简单进行如下计算。考察章节3.3的皮秒脉冲序列，其中单皮秒脉冲是谱变化极限下的孤子脉冲，归一化振幅表示为 $\mathcal{P}(t) = \text{sech}(1.76t/\tau_0)^{[124]}$ 。在经过整形系统后，皮秒脉冲序列与纳米光纤消逝场中 \mathbf{r} 处原子相互作用光场由缓慢变化的包络函数描述

$$\mathbf{E}_c(\mathbf{r}, t) = \mathbf{E}(\mathbf{r})S_N(t), \quad (4.7)$$

其中电场的空间分布 $\mathbf{E}(\mathbf{r})$ 由式 (4.1) 给出。 N 脉冲序列波形可表示为

$$S_N(t) = \sum_{i=1}^N A_e^{i\varphi_i} \mathcal{P}(t - (i-1)\tau_d). \quad (4.8)$$

对应 $|g\rangle - |a\rangle$ 以及 $|d\rangle - |a\rangle$ 跃迁的拉比频率可以表示为

$$\Omega_{a_n c_m}^l(\mathbf{r}, t) = \langle a_n | \mathbf{E}_c(\mathbf{r}, t) \cdot \mathbf{d}_l | c_m \rangle / \hbar, \quad (4.9)$$

其中 $c = g, d$ 。类似于章节2.3.1中的多能级演化，这里我们用 \mathbf{d}_l ($l=-1, 0, 1$) 分别代表沿 $\{\mathbf{e}_-, \mathbf{e}_z, \mathbf{e}_+\}$ 的原子电偶极算符，因此需满足 $n = m + l$ 。参考式 (2.38) 及 (2.39)，我们可以结合 Clebsh-Gordan (CG) 系数写出旋转波近似下的 D1 电偶极相互作用哈密顿量：

$$\begin{aligned} \hat{H}_{\text{D1}}(\mathbf{r}, t) = & \hbar \sum_a (\omega_a - \omega_{a0}) \sigma^{a_n a_n} + \\ & \hbar \sum_{c=g,d} (\omega_c - \omega_{g0}) \sigma^{c_m c_m} + \\ & \frac{\hbar}{2} \sum_{c=g,d} \sum_i \Omega_{a_n c_m}^i(\mathbf{r}, t) \sigma^{a_n c_m} + \text{h.c.} \end{aligned} \quad (4.10)$$

上式隐含了对 n, m 的求和。 ω_{a0}, ω_{g0} 分别表示 $5P_{1/2}$ 及 $5S_{1/2}$ 最高超精细能级的能量。我们设激光频率 $\omega_c = \omega_{g0, a0}$ ，剩余失谐体现为 $\Omega_a(t)$ 的相位变化。

我们可以由这一哈密顿量给出演化矩阵 $\hat{U}_c(\mathbf{r}) = \mathcal{T} e^{-i \int_0^{\tau_c} H_{\text{D1}}(\mathbf{r}, t') dt' / \hbar}$ ，及对应原子态布居翻转效率 $f(\mathbf{r}) = \langle f_m(\mathbf{r}) \rangle_m$ (由各塞曼子能级平均)。这里各塞曼子能级局域翻转效率为

$$f_m(\mathbf{r}) = \langle g_m | \hat{U}_c^\dagger(\mathbf{r}) \mathbf{1}_a \hat{U}_c(\mathbf{r}) | g_m \rangle. \quad (4.11)$$

其中 $\mathbf{1}_a = \sum_{a,n} |a_n\rangle \langle a_n|$ 。这里我们假设了所有原子初始均匀的分布在基态 $|g\rangle$ 上，即 $\rho_{gg}^{(0)} = 1$ 。由此计算得到的布居翻转效率分布 $f(\mathbf{r})$ 分别绘制于图 4.4(b)、图 4.13(a)(b) 中。

基态 $|g\rangle$ 的布居转移率为 $f_g(\mathbf{r}) = (\rho_{gg}^{(0)} - \rho_{gg}(\mathbf{r})) / \rho_{gg}^{(0)}$ ，这里

$$\rho_{gg}(\mathbf{r}) = \text{Tr}(\hat{U}_c(\mathbf{r}) \rho^{(0)} \hat{U}_c^\dagger(\mathbf{r}) \mathbf{1}_g). \quad (4.12)$$

其中 $\rho^{(0)} = \frac{1}{12}(\mathbf{1}_g + \mathbf{1}_d)$ (类似的, $\mathbf{1}_g = \sum_m |g_m\rangle\langle g_m|$, $\mathbf{1}_d = \sum_m |d_m\rangle\langle d_m|$), 表示原子初始布居在十二个基态塞曼子能级均匀分布, 即 $\rho_{gg}^{(0)} = 7/12$ 及 $\rho_{dd}^{(0)} = 5/12$, 以模拟实验实际情况。由此计算得到的 $f_g(\mathbf{r})$ 绘制于图 4.10(a)(c)、4.13(a)(b)、4.14(b) 中。

4.6.2 D2 线运动探测响应：蒙特卡洛方法

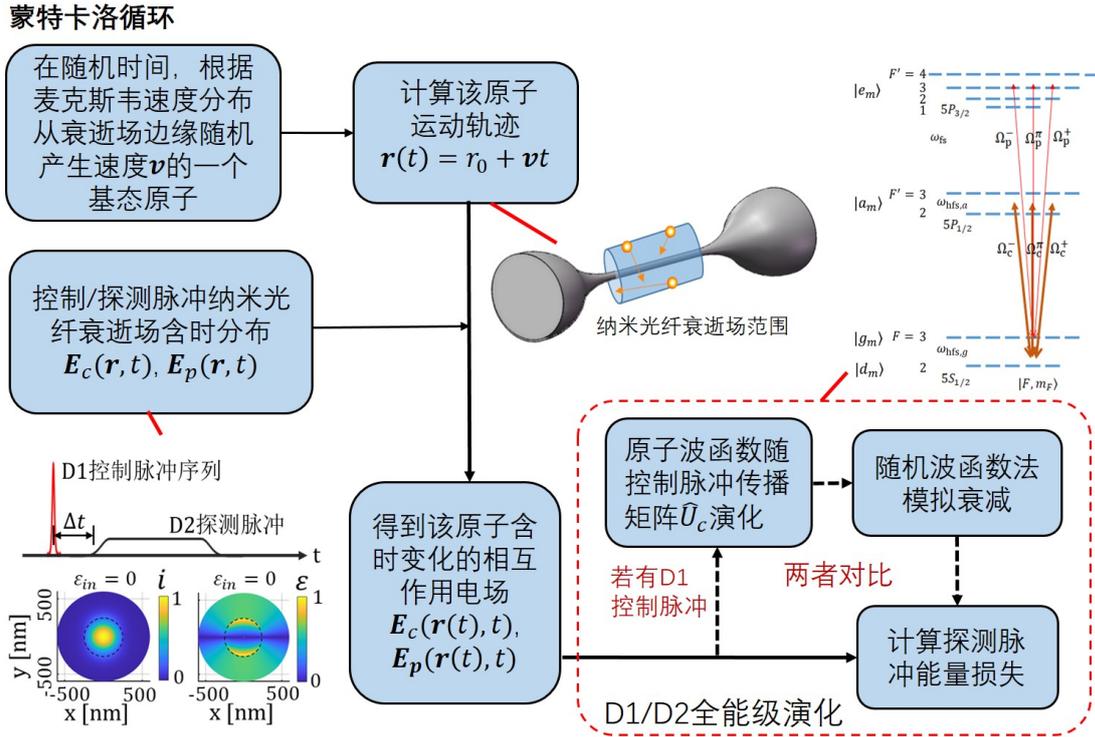


图 4.16 纳米光纤衰逝场原子 D1/D2 线泵浦探测实验的全能级蒙特卡洛模拟流程图。我们在纳米光纤周围衰逝场范围（一般为高 $L = 3 \text{ mm}$, 半径 $R = 1 \mu\text{m}$ 的圆（环）柱空间）的边界, 以随机时间随机速度生成基态原子入射, 计算其在衰逝场中的运动轨迹 $\mathbf{r}(t)$, 基于控制/探测脉冲 HE_{11} 模式, 得到该热运动轨迹下原子感受到的控制/探测光电场 $\mathbf{E}_c(\mathbf{r}(t), t)$, $\mathbf{E}_p(\mathbf{r}(t), t)$ 。由此计算原子随机波函数演化并计算探测脉冲能量损耗, 进而得到 $\overline{\delta T}$ 。

类似于 D1 控制光, 我们给出纳米光纤衰逝场中的探测光电场含时形式

$$\mathbf{E}_p(\mathbf{r}, t) = \mathbf{E}(\mathbf{r})S_p(t). \quad (4.13)$$

其中空间分布 $\mathbf{E}(\mathbf{r})$ 由式 (4.1) 给出。注意其与控制光为正交入射（由 PBS 偏振合束, 参考图 4.7(a)）。探测脉冲归一化波形 $|S_p(t)| \leq 1$ 为方波。

从而探测脉冲的拉比频率也可以表示为

$$\Omega_{e_n c_m}^l(\mathbf{r}, t) = \langle e_n | \mathbf{E}_p(\mathbf{r}, t) \cdot \mathbf{d}_l | c_m \rangle / \hbar. \quad (4.14)$$

类似于式 (4.10) 记号, D2 探测脉冲的哈密顿量可写为

$$\begin{aligned} \hat{H}_{D2}(\mathbf{r}, t) = & \hbar \sum_e (\omega_e - \omega_{e0}) \sigma^{e_n e_n} + \\ & \hbar \sum_{c=g,d} (\omega_s - \omega_{g0}) \sigma^{c_m c_m} + \\ & \frac{\hbar}{2} \sum_{c=g,d} \sum_l \Omega_{e_n c_m}^l(\mathbf{r}, t) \sigma^{e_n c_m} + \text{h.c.} \end{aligned} \quad (4.15)$$

需要注意的是, 对于纳秒级 τ_p 时长的探测脉冲, $\omega_{\text{hfs},g} \gg 1/\tau_p$, 因此 $|d\rangle$ 态对于 D2 探测光是“不可见”的。为节省计算资源, 我们等效的在计算中设置 $\Omega_{e_n d_m}^l = 0$ 。

参考章节 2.4.2, 我们基于式 (2.54) 计算出具有任意速度 \mathbf{v} 的原子, 在 t 时刻运动到位置 $\mathbf{r}(t) = \mathbf{r}_0 + \mathbf{v}t$ 时对 D2 探测光的能量耗散 (用光子散射率表示):

$$R_{sc}(\mathbf{r}, \mathbf{v}, t) = -\frac{1}{\hbar} \text{Im} \langle \mathbf{E}_p^*(\mathbf{r}(t), t) \cdot \mathbf{d}(t) \rangle. \quad (4.16)$$

对于热运动原子我们假设纳米光纤周围的原子蒸汽在相空间遵从

$$g(\mathbf{r}, \mathbf{v}) = \left(\frac{M}{2\pi k_B T} \right)^{3/2} \mu(\mathbf{r}) e^{-M|\mathbf{v}|^2/2k_B T} \quad (4.17)$$

分布, 其中温度取 $T = 360 \text{ K}$, M 为 ^{85}Rb 原子质量, k_B 为玻尔兹曼常数。我们考虑 $g(\mathbf{r}, \mathbf{v})$ 在纳米光纤周围通过微观细致平衡保持恒定。若运动过程中, 一个原子被纳米光纤表面吸附, 我们假设会有另一个原子从纳米光纤表面立刻释放, 且其将重置到随机的基态, 并具有随机的出射速度 (遵从 $T = 360 \text{ K}$ 下的麦克斯韦速度分布)。同时, 我们假设原子具有局域均匀的密度分布 $\mu = P/k_B T$, 实验条件下局域压强预计为 $P \approx 10^{-3} \text{ Pa}$ 。

由此, 系综平均后的探测光散射率可以表示为

$$R_{sc, \text{meso}}(t) = \int d^3 \mathbf{r} d^3 \mathbf{v} g(\mathbf{r}, \mathbf{v}) R_{sc}(\mathbf{r}, \mathbf{v}, t). \quad (4.18)$$

我们使用全能级蒙特卡洛方法对这一原子运动平均过程建模, 其基本流程绘制于图 4.16。考虑环绕纳米光纤的圆柱体积, 高度 $H = L = 3 \text{ mm}$, 半径 $R = 1 \mu\text{m}$, 足以涵盖实验条件下的光-原子有效相互作用体积。蒙特卡洛计算首先模拟满足热统规律的微观原子输运过程: 原子在随机初始时刻从 $r_{\perp} = R$ 表面进入这一区域。原子速度、入射角和通量密度服从 $T = 360 \text{ K}$ 时的麦克斯韦速度

分布。如前文所述，我们假设基态原子初态随机，即 $\rho^{(0)} = \frac{1}{12}(\mathbf{1}_g + \mathbf{1}_d)$ 。蒙特卡洛模拟的时间区间定为 $-t_w < t < \tau_c + \Delta t + \tau_p$ ，其中控制光将在 $0 < t < \tau_c$ 时开启，而相应探测光将在 $\Delta t < t < \Delta t + \tau_p$ 区间开启。我们选取 $t_w = 30 \text{ ns}$ ，这一时长足以在 $t = 0$ 时刻（控制光注入前），使所有在圆柱形范围边界生成的原子在这一体积内达到热平衡。对于 $\mathbf{r}(t)$ 横穿纳米光纤的原子轨迹，如上所述，我们假设原子立刻被“反弹”，速度遵循麦克斯韦速度分布，随机基态重置。

我们追踪原子在消逝场中的运动轨迹 $\mathbf{r}(t)$ ，并得到模拟时间内与其相互作用的控制光/探测光电场波形 $\mathbf{E}_c(\mathbf{r}(t), t)$ ， $\mathbf{E}_p(\mathbf{r}(t), t)$ 。参考上一节中 D1 控制光相互作用的计算，我们得到控制光调制后的原子波函数 $|\psi(\tau_c)\rangle$ 。之后，在 $\tau_c < t < \tau_c + \Delta t + \tau_p$ 期间，为计算原子对 D2 探测光的散射率 $R_{sc}(t)$ ，我们需要求解其密度矩阵。一般的，这一 D2 线的密度矩阵可以将式 (4.15) 中的探测光哈密顿量带入主方程进行演化：

$$i\hbar\dot{\rho} = [\hat{H}_{D2}, \rho] - \frac{i\hbar}{2}\{\hat{\Gamma}, \rho\} + \hbar \sum_l C_a^l \rho C_a^{l\dagger} + C_e^l \rho C_e^{l\dagger} \quad (4.19)$$

与前文一致，其中 $l = -1, 0, 1$ 表示各局域偏振分量，而

$$\hat{\Gamma} = \hat{\Gamma}_a + \hat{\Gamma}_e = \Gamma_a \sigma^{ama_m} + \Gamma_e \sigma^{enen}. \quad (4.20)$$

通过计算 $|\psi(\tau_c)\rangle$ 为初值，在 t_S^j 自发辐射到基态的随机波函数 $|\psi_S(t)\rangle$ ，式 (4.16) 中任意 t 时刻原子对探测光散射率 $R_{sc}(t)$ 可进一步写为

$$R_{sc}(t) = \theta(t, t_S^j) \text{Im} \left[\sum_{e,l} \langle \psi_S | e_m \rangle \langle g_n | \psi_S \rangle \Omega_{emg_n}^l \right]. \quad (4.21)$$

其中，在 $t > t_S^j$ 时阶梯型函数 $\theta(t, t_S^j) = 1$ ，其余时间 $\theta(t, t_S^j) = 0$ 。类似的，我们也可以得到无控制光注入下的原子对探测光散射率 $R_{sc,0}(t)$ 。

最后，通过对 $N_{MC} \sim 10^6$ 蒙特卡洛采样轨迹平均，可以得到系综平均后的消逝场中单原子平均散射率 $R_{sc,meso}(t) = \frac{1}{N_{MC}} \sum_1^{N_{MC}} R_{sc}(t)$ （以及类似的有 $R_{sc,meso,0}(t)$ ）。参照式 (4.6) 中对光脉冲入射能量的表达，我们将这一散射率对 τ_p 探测时间积分，并由因子 $\hbar\beta_p / \int \varepsilon_0 \mathcal{N}^2 |\mathbf{E}_p(\mathbf{r}, t)|^2 dx dy dt$ 归一化。同时，基于式 (2.58) 中对光学深度 OD 的定义，我们可由此得到原子对探测脉冲平均 OD_{meso}（“meso”强调介观响应）：

$$\text{OD}_{meso} = 2\mu \int_{\Delta t}^{\Delta t + \tau_p} \hbar\beta_p R_{sc,meso}(t) dt / \int_{\Delta t}^{\Delta t + \tau_p} \varepsilon_0 \mathcal{N}^2 |\mathbf{E}_p(\mathbf{r}, t)|^2 dx dy dt. \quad (4.22)$$

其中 β_p 为探测光 HE₁₁ 在纳米光纤中的传播常数；与前文一致， \mathcal{N} 用于描述纳米光纤界面的折射率分布。同理，我们也可以得到无控制光时对应的 OD_{meso,0}。

对于 $OD \ll 1$ ，透射率可近似为 $T = 1 - OD$ 。从而对应于实验测量，通过这一模拟可以计算得到 $\overline{\delta T}$ ：

$$\begin{aligned}\overline{\delta T} &\equiv \delta T / \Delta T = (OD_{\text{meso},0} - OD_{\text{meso}}) / OD_{\text{meso},0} \\ &= (\int_{\Delta t}^{\Delta t + \tau_p} R_{sc,\text{meso},0}(t) dt - \int_{\Delta t}^{\Delta t + \tau_p} R_{sc,\text{meso}}(t) dt) / \int_{\Delta t}^{\Delta t + \tau_p} R_{sc,\text{meso},0}(t) dt.\end{aligned}\quad (4.23)$$

我们在相应控制光功率下用此方法模拟了实验的 $\overline{\delta T}$ 随 Δt 衰减曲线，并在图 4.9 中以红圈表示。

上述简单模型并没有涵盖更复杂的纳米光纤表面的相互作用，例如光纤表面的范德瓦尔斯势^[147-148,162-163]，光诱导的表面解吸附效应^[14]等。我们认为这些效应在纳秒尺度对探测光的影响较小。对于后续冷原子实验，这些表面效应也可以被考虑在内。

4.6.3 D2 线运动探测响应：扩散平均近似

上述蒙特卡洛模拟方法需要我们对原子在实空间和相空间均进行大量采样，相应计算资源消耗十分庞大。例如，对图 4.9 实验的模拟，运用 Intel-i7 34 核多线程计算，在特定实验参数下单个数据点仍需消耗约 1 h 时间。在本节，我们将介绍一种近似的建模方案，并运用蒙特卡洛方法确认其有效性。

基于前文章节 2.4.2 中的介绍，我们首先计算衰逝场中多能级原子对探测光的衰减。对于衰逝场局域位置 \mathbf{r} 上的处于 $|g_m\rangle$ 的叠加态的“静止”原子，弱探测光电场 $\mathbf{E}_p(\mathbf{r}, t)$ 经过其后损失的能量也可以表示为 $\Delta W = -\hbar\omega\delta\rho_{ee}$ ，这里

$$\delta\rho_{ee} = \sum_{mm'} \rho_{g_m g_{m'}} f_{g_m g_{m'}}^e. \quad (4.24)$$

其中，探测光相互作用因子

$$f_{g_m g_{m'}}^e(\mathbf{r}) = |\Omega_p^{\max} S_p(\omega_{eg})|^2 \sum_{e,n,l,l'} \mathcal{E}_l^*(\mathbf{r}) \mathcal{E}_{l'}(\mathbf{r}) c_{e_n g_m}^l c_{e_n g_{m'}}^{l'}. \quad (4.25)$$

我们定义 $\mathbf{E}_{\max} = \mathbf{E}(x=0, y=0)$ 为 HE₁₁ 模式在纳米光纤中心的（最大）强度。相应的拉比频率可以写为 $\Omega_p^{\max} = |\mathbf{E}_{\max}| \langle J_g || \mathbf{d} || J_e \rangle / \hbar$ 。归一化的各电场分量定义为 $\mathcal{E}_l(x, y) = \mathbf{E}(x, y) \cdot \mathbf{e}_l / |\mathbf{E}_{\max}|$ ， c 表示对应 CG 系数。归一化的探测光脉冲频谱密度可以表示为 $S_p(\omega_{eg}) = \int S_p(t) e^{i(\omega_{eg} - \omega_L)t} dt$ 。这里 $\omega_L \approx \omega_{eg}$ 为探测光中心频率。而皮秒控制脉冲结束后的基态 $|g\rangle$ 超精细结构上的密度矩阵可以表示为：

$$\rho_{g_m g_{m'}}(\mathbf{r}) = \langle g_m | U(\mathbf{r}) \rho^{(0)} U^\dagger(\mathbf{r}) | g_{m'} \rangle. \quad (4.26)$$

类似于式 (4.22) 的表达，我们可以由损失的光脉冲能量对比入射光脉冲能量，得到位置 \mathbf{r} 上单个“静止”原子对探测光的线性衰减系数：

$$\eta_g(\mathbf{r}) = (2\hbar\beta_p \times \delta\rho_{ee}(\mathbf{r})) / (\int \varepsilon_0 \mathcal{N}^2 |\mathbf{E}_p(\mathbf{r}, t)|^2 dx dy dt) \quad (4.27)$$

从而，可以计算出静止原子对应的 $OD = \mu \int d^3\mathbf{r} \eta_g(\mathbf{r})$ 。

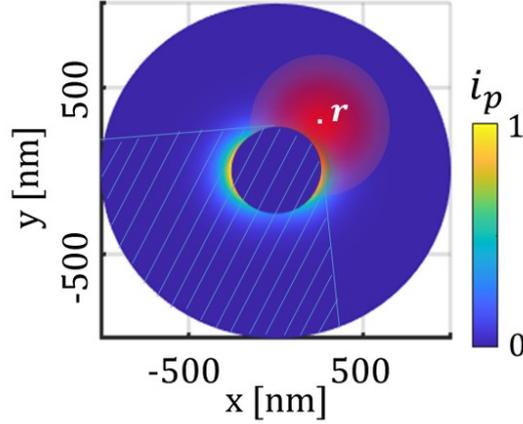


图 4.17 探测光对原子运动响应的扩散平均近似示意图。对于位置 \mathbf{r} 出的原子，我们假设其在 τ_p 时间内的概率运动范围为基于麦克斯韦速度分布的高斯型（图中红色范围）。我们将这一高斯型范围与探测光响应因子 $f_{g_m g_{m'}}^e(\mathbf{r})$ （进一步近似为光强因子 $i_p(\mathbf{r})$ ）卷积，作为该位置原子的对探测光的平均效应。由于纳米光纤的遮挡，对应于原子运动过程中撞到纳米光纤表面后被吸附，我们在上述卷积过程中假设图中阴影部分的贡献为零。

现在我们考虑运动效应平均后的 OD_{meso} ，其对应的是任意位置 \mathbf{r} 上的原子，在 τ_p 时间内的轨迹 $\mathbf{r}(t)$ 对探测光的散射的平均。不同于上述对蒙特卡洛模拟平均的复杂方案，如图 4.17 中所示我们建立一简化模型，用一基于麦克斯韦速度分布的高斯型来假设 \mathbf{r} 上原子的平均概率运动范围，将其与 $f_{g_m g_{m'}}^e$ 卷积，来获得该位置原子对探测光的平均响应，即：

$$\overline{f_{g_m g_{m'}}^e}(\mathbf{r}) \approx \int d^3\mathbf{r}' \left(\frac{1}{\xi_p^2 \pi} \right)^{3/2} e^{-r'^2 / \xi_p^2} f_{g_m g_{m'}}^e(\mathbf{r} - \mathbf{r}'). \quad (4.28)$$

因此有 $OD_{\text{meso}} \propto \int d^3\mathbf{r} \sum_{m, m'} \rho_{g_m g_{m'}}(\mathbf{r}) \overline{f_{g_m g_{m'}}^e}(\mathbf{r})$ 。这里 $\xi_p = v_T \tau_p / 2$ 为 τ_p 时间内原子气体的平均热扩散长度。在实际实验中，基于 z 方向对称性我们取二维 x, y 截面进行模拟，并有 $v_T^{(r_\perp)} = \sqrt{2k_B T / m} \approx 270 \text{ m/s}$ 。基于后续与全能级蒙特卡洛模拟的结果比较，这一近似模型进一步修正 $\xi_p' = 0.9\xi_p$ 。此外在这一模拟中，轨迹撞到纳米光纤表面的原子假设会被吸附。从而取光纤内部 $f_{g_m g_{m'}}^e(r_\perp < d/2) = 0$ ，以及对应轨迹被光纤阻挡部分的 $f_{g_m g_{m'}}^e = 0$ （如图 4.17 中阴影部分所示）。类似

于上一章节中式 (4.23) 的表达, 我们由这一卷积近似模型给出任意控制光参数下的 $\overline{\delta T}$:

$$\begin{aligned}\overline{\delta T} &= (\text{OD}_{\text{meso},0} - \text{OD}_{\text{meso}}) / \text{OD}_{\text{meso},0} \\ &= \left(\int d^3\mathbf{r} \overline{f_{g_m g_{m'}}^e}(\mathbf{r}) \sum_{m,m'} \rho_{g_m g_{m'}}^{(0)}(\mathbf{r}) - \int d^3\mathbf{r} \overline{f_{g_m g_{m'}}^e}(\mathbf{r}) \sum_{m,m'} \rho_{g_m g_{m'}}(\mathbf{r}) \right) \\ &\quad / \int d^3\mathbf{r} \overline{f_{g_m g_{m'}}^e}(\mathbf{r}) \sum_{m,m'} \rho_{g_m g_{m'}}^{(0)}(\mathbf{r}).\end{aligned}\quad (4.29)$$

此式给出了近似模型下的 $\overline{\delta T}$ 表达。

而在实际模拟中, 对于式 (4.24) 中的全塞曼子能级表达, 我们可以还进一步作简化,

$$\begin{aligned}\delta\rho_{ee} &\approx \sum_m \rho_{g_m g_m} f_{g_m g_m}^e \\ &\approx f^e \sum_m \rho_{g_m g_m} = f^e \rho_{gg}.\end{aligned}\quad (4.30)$$

其中, 简化后的相互作用因子 f^e 满足 $f^e(\mathbf{r}) \propto |\mathbf{E}_p(\mathbf{r}, t)|^2$, 从而仅由探测光对应频率下的光强分布 $i_p(\mathbf{r})$ 决定。简化后的式 (4.29) 可以表示为

$$\overline{\delta T} = \int d^3\mathbf{r} \overline{f^e}(\mathbf{r}) \Delta\rho_{gg}(\mathbf{r}) / \int d^3\mathbf{r} \overline{f^e}(\mathbf{r}) \rho_{gg}^{(0)}.\quad (4.31)$$

因此, 我们可以定性的认为 $\overline{\delta T}$ 由控制光调控结束瞬间的基态布居减少 (与探测光空间权重因子相乘) 决定, 这也是我们在章节4.4.1中介绍的泵浦探测实验设计的核心。

在上述的进一步近似简化中, 我们首先忽略了原子塞曼子能级之间的相干效应, 其次忽略了探测光对不同子能级的响应差异。另一方面, 这一扩散平均近似模型均忽略了原子 z 方向运动引起的多普勒效应。然而, 对于均匀采样相空间轨迹的热运动原子, 我们期望这些简化引起的误差可以被有效的平均。我们基于数值模拟验证了这一猜想。

在图 4.18中, 我们比较验证了这一扩散平均近似模型的有效性。在图 (a-c) 和 (d-f) 中, 我们分别对应于实验 $\varepsilon_{\text{in}} = 0$ 和 $\varepsilon_{\text{in}} = 1$ 入射情况, 用基于式 (4.24) 的全塞曼子能级扩散平均 (图 (a)(d)) 和进一步近似后基于式 (4.30) 的仅依赖光强的扩散平均 (图 (b)(e)), 绘制了 $\overline{\delta T}$ 随控制光相位的变化图。可以看到, 两种近似的平均方法对于 $\overline{\delta T}$ 变化的特征结构仅具有细微差异, 其数值偏差不超过 5%。同时, 我们在 $\Delta\varphi_{1,3} = 0$ 相位参数上 (图 (a)(d) 蓝色虚线, 图 (b)(e) 红色虚线), 用前一章节介绍的全能级蒙特卡洛方法采样运算, 模拟结果分别绘制于图 (d) 和 (f) 中 (其中蓝/红色曲线表示扩散平均近似的模拟结果, 黑色圆圈为蒙特卡洛模拟结果)。近似模型给出的数值模拟结果与全能级蒙特卡洛结果基本一致。我们可以由此验证近似的扩散平均模型对实验建模的有效性。而同时我们也发现, 进一

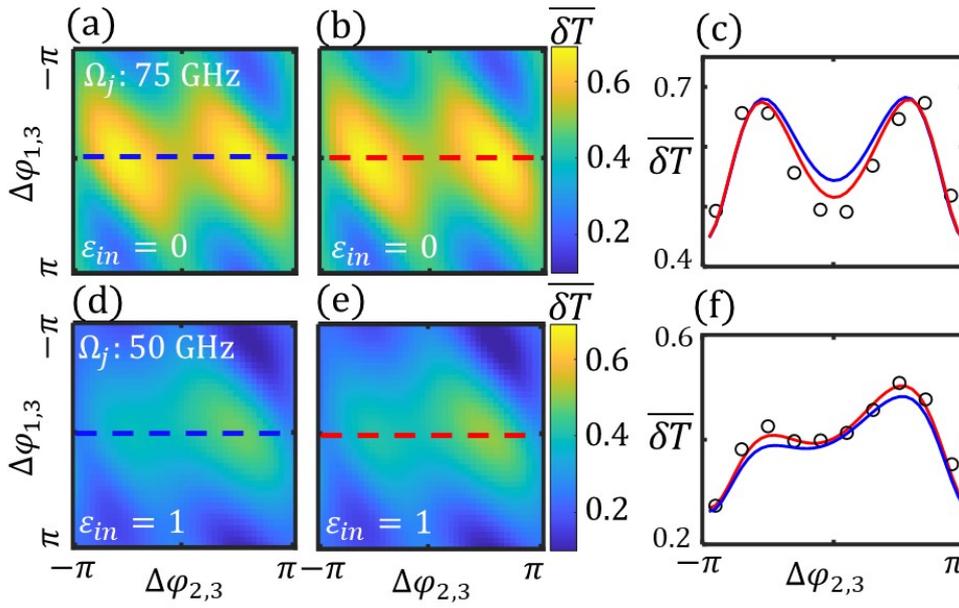


图 4.18 蒙特卡洛方法及扩散平均方法模拟方案对比。在图 (a-c) 和 (d-f) 中，我们分别比较 $\varepsilon_{in} = 0$ 和 $\varepsilon_{in} = 1$ 入射情况下， $\overline{\delta T}$ 模拟结果随皮秒组合脉冲相对相位的变化（参考图 4.13）。图 (a) 和 (d) 给出了全塞曼子能级的扩散平均近似结果。相应的，图 (b) 和 (e) 给出了进一步简化的扩散平均近似结果。两者数值差异不超过 5%。另一方面，在图 (c) 和 (f) 中，我们利用全能级蒙特卡洛方案对 $\Delta\varphi_{1,3}$ 参数进行采样，对比扩散平均近似方案（蓝色、红色曲线分别对应于图 (a)(d) 或 (b)(e) 中的虚线处数据）。可以看到，两种扩散平均的近似方案与全能级蒙特卡洛结果（黑色圆圈）均基本一致。本论文中其他扩散平均模型计算均基于第二种进一步简化方案（式 (4.31)）。

步简化的近似方案模拟结果（图中红色曲线）在细致结构上反而更接近于蒙特卡罗模拟，这意味着这种近似模型在细节上还存在着一一定的缺陷。最后，我们用这一简化后仅基于光强分布的扩散平均模型（式 (4.31)），绘制了前文中图 4.10(b)、图 4.11(a)、图 4.12(d)(e) 和图 4.13(c-g) 中的各控制光参数下 $\overline{\delta T}$ ，其与实验测量数据均基本吻合。

4.6.4 实验测量和数值模拟数据的匹配

在章节 4.4 中，我们介绍了实验上对单脉冲能量 \mathcal{E}_i 及探测光常态吸收率 ΔT 的测量，但我们也注意到，不同于 δT 的高速切换测量，这样的测量定标方式并不完全准确。因而在上述模拟与实验的比较中，我们基于数值模拟的结果对实验数据进行了整体的线性变换。其中 \mathcal{E}_i 的线性变换幅度为 $1.3 \sim 1.6$ ($1.45 \pm 10\%$ ，主要来源于功率计读数误差)， ΔT 的相对线性变换幅度为 $\pm 20\%$ （主要来源于长时间测量 Rb 原子蒸汽压飘动），我们在图 4.10(b) 用箭头表示了这一坐标重整的

范围。

4.7 本章小结

在本章节中，我们首先介绍了纳米光纤-光与原子相互作用界面，给出了消逝场中光场的强度和偏振分布特点。纳米波导对光场的空间限制和聚焦使得低功率皮秒组合脉冲有可能在近场实现高效的原子态调控。同时，这种消逝场的非均匀展宽对高保真调控带来了极大挑战。我们首先根据组合脉冲方案的容错性，结合容错布居翻转^[9]的数值模拟，提出纳米光学界面原子态调控可以以皮秒组合脉冲达到接近完美。接下来，我们用纳米光纤-热原子界面的泵浦-探测实验验证了该方案的可行性，并结合数值模拟结果比对，确认了 $N = 3$ 组合脉冲调控效率接近理想状态。这为我们下一步在冷原子体系运用“第二代”皮秒组合脉冲生成系统实现 $N \geq 5$ 高精度调控打下了基础。

本章工作的热原子实验装置相对简单，然而热原子介观运动使得实验结果较难量化。针对这个难点，我们发展了基于纳米光纤近场相互作用-光学布洛赫方程-热原子系综平均的数值模型。该模型本身并不局限于对本实验结果的验证，其对后续进一步深入探索纳米光纤界面的物理规律，例如表面势等均可能有应用价值。

第五章 原子偶极加速的组合脉冲编程优化

5.1 本章概述

在上一章工作中，我们在光强和偏振分布高度不均的纳米光纤热原子界面开展了皮秒组合脉冲原子态容错调控实验，并论证了纳米光纤系统高精度原子态调控的可行性。此类实验进展受益于纳米光纤界面对控制光场的限制及聚焦，允许我们运用“第一代”皮秒脉冲系统的较小输出功率（mW级）实现组合脉冲调控。与此同时我们发展了“第二代”皮秒脉冲序列产生系统，如章节3.7总结中所述，该系统输出功率大幅提升，可在 $N = 5$ 脉冲序列中获得高达近 10W 的峰值功率。这样高功率的皮秒脉冲已经足以支持我们对实验室经过激光冷却的 10 微米级冷原子样品进行容错电偶极跃迁精密操控。本章将对这一实验进展作出介绍，研究方案是观察冷原子的偶极加速。

章节2.4.3中已经提到，原子在受到外界光场调控时会受到光力的作用而改变动量。一个初始位于基态的原子在跃迁至激发态时，动量相应变化 $\hbar k$ 。在相同激光强度下，对本论文工作关注的强光学跃迁（强光学跃迁）驱动可以获得最大的加速 – 我们称之为偶极加速。对于整个原子样品来说，平均动量变化取决于布居翻转效率。我们通过观测原子质心速度的变化来判断组合脉冲的布居翻转效果，并通过编程优化组合脉冲实现偶极加速的反馈优化。

本章工作聚焦于皮秒组合脉冲驱动自由空间原子布居翻转，在偶极加速上仅限于单向激发（因此对应于式 (2.60) 第二部分）。本工作可以相对容易的拓展为双向相继激发，为基于多光子偶极力（见文献^[25,30]）的激光冷却等实验技术^[28]（参考章节1.1.1介绍）提供光力支持。此外，偶极加速还可被应用于自旋相关的动量转移研究中^[67,80]，增加旋量物质波相空间分离距离，提升精密测量精度。最后，对基态原子的相干偶极加速可以用于调控原子电偶极的空间相位，在非线性光学领域有重要的潜在应用^[29-30,34]。

本章将分为如下几个部分：在章节5.2中，我们将展示皮秒组合脉冲冷原子电偶极调控的关键测量技术：光偶极容错加速实验，并具体介绍这一实验设计。在章节5.3中，我们将引入一种基于贝叶斯建模优化算法的闭环反馈实验方案，这一方案可以用于在实验上实现对更大维度脉冲参数的优化调节。而在章节5.4中，我们将介绍这一实验的目前进展中获得的最佳容错加速实验效果。本工作中线偏振皮秒组合脉冲总时长远小于激发态超精细劈裂， $\tau_c \ll 1/\omega_{\text{hfs},e}$ ，因此满足章节2.3.3介绍的二能级调控条件。然而在脉冲参数扫描过程中，我们重新发现了类似于章节3.6弱激发原子俘获损失光谱中的超分辨现象，最后在章节5.5，我们运

用多能级严格理论对这一现象再次做定量讨论。

5.2 组合脉冲冷原子偶极加速实验

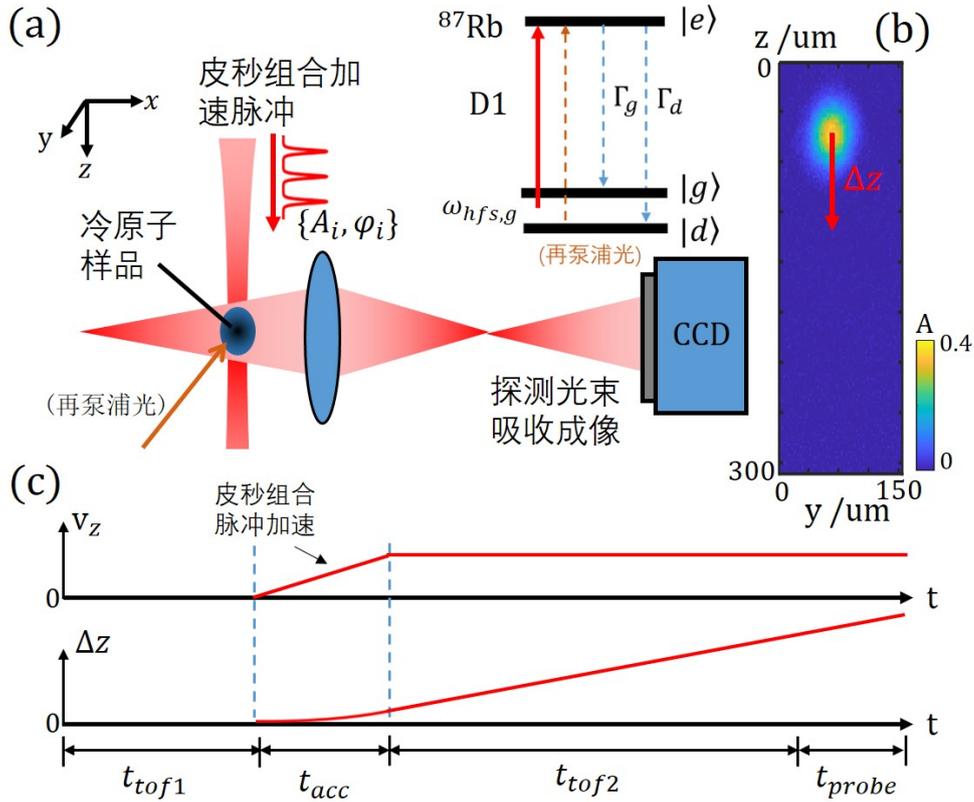


图 5.1 (a) 冷原子偶极加速实验系统示意图。从光偶极阱中释放到自由空间, 经 t_{tof1} 自由飞行后, 在 t_{acc} 时间内受 z 方向脉冲序列多次加速, 之后飞行 t_{tof2} 后由相机曝光 t_{probe} 时间沿 $+x$ 方向进行共振吸收探测。加速脉冲频率中心与 ^{87}Rb 原子 D1 线共振。原子基态具有较大的超精细分裂 $\omega_{\text{hfs},g} \approx 2\pi \times 6.8 \text{ GHz}$ 。为避免皮秒循环激发后超精细 $|d\rangle$ 态布居积累, 另有一束再泵浦光沿 $-y$ 方向注入。(b) 原子团吸收成像示意图 (以吸收率 A 表示), 加速后的原子团将向下位移 Δz 。(c) 原子偶极加速实验时序设计。

我们在实验室已有的冷原子系统基础上进行实验。和章节3.6中的原子俘获损失光谱测量类似, 我们首先通过三维磁光阱系统^[89]实现原子的初步冷却, 之后附加以偏振梯度冷却^[90], 并将原子装载至沿竖直方向 z 的 1064 nm 交叉偶极阱和沿 y 方向的 840 nm 单光束偶极阱组成的混合阱中^[91-92], 加以适当的蒸发冷却^[93], 其后通过调节两种偶极阱的功率比改变原子样品的形状, 并在释放到自由空间后调节 t_{tof1} 改变偶极加速初始样品的大小。

图5.1(a) 绘制了皮秒组合脉冲原子偶极加速实验设计。我们将由单模光纤引

入的皮秒组合脉冲沿 $+z$ 方向弱聚焦于样品，高斯半高全宽记为 w ，并在不同实验过程中调节原子样品在 $x-y$ 平面的大小 σ 来改变原子布居翻转的光强容错要求。

运用光谱测量，我们将皮秒脉冲的中心频率调至与 ^{87}Rb 原子 D1 线 ($|g\rangle, |d\rangle - |e\rangle$) 共振，以“第二代”皮秒脉冲调制系统（章节3.4）生成组合脉冲对原子团进行加速。在加速过程中，沿 $-y$ 方向打入与 $|d\rangle - |e\rangle$ 跃迁共振的再泵浦光（我们将在后续章节5.5中展示这一再泵浦光的作用）。通过沿 $+x$ 方向的 D2 线吸收成像（参考章节3.6中相关介绍）探测被加速及经过 t_{tof2} 飞行后的原子团形状及位置。

该实验的基本时序总结于图5.1(c)：在冷原子被俘获后，我们首先等待 t_{tof1} 时间，使原子团自由飞行而膨胀。之后在 t_{acc} 期间，皮秒组合脉冲序列将以重频 f_{rep} 被不断打入，对原子团实现加速，这里原子团的平均速度变化可以简单表示为

$$\overline{\Delta v_z} = N_{\text{tot}} f v_r. \quad (5.1)$$

其中， $N_{\text{tot}} = t_{\text{acc}} f_{\text{rep}}$ 为加速期间的脉冲序列数量； $v_r = \hbar k / m$ 为单原子从基态跃迁至激发态时获得的反冲速度；这里调控效率等于布居翻转效率 $f = \rho_{ee}$ 。需要注意的是，我们设置 $f_{\text{rep}} \ll \Gamma$ ，每组加速的组合脉冲结束后原子将有足够的时间通过自发辐射重新回到基态（稳态），因此 N_{tot} 次加速可以认为是相互独立的。原子团总的加速效果 $\overline{\Delta v_z}$ 可以认为是单次加速效果的简单累加，取决于单次加速的平均布居翻转效率 f 。我们通过 N_{tot} 来线性放大这一效应，以提高信噪比。需要注意的是，由于自发辐射时原子发出光子具有各向同性，因此这一过程导致的原子平均动量变化为 0 。加速后的原子团继续自由飞行 t_{tof2} 时间后，速度变化将转变为方便直接探测的位移变化。我们在 t_{probe} 中拍摄吸收成像图案（如图 (b) 中示意），从而获得当前的原子 z 方向位置变化 Δz （一般取原子团沿 z 方向的质心位置进行位移计算）。质心位移量可简单的由 $\overline{\Delta v_z}$ 给出

$$\Delta z \approx 1/2 \overline{\Delta v_z} t_{\text{acc}} + \overline{\Delta v_z} (t_{\text{tof2}} + 1/2 t_{\text{probe}}). \quad (5.2)$$

显然位移量将由布居翻转效率 f 决定。因此在实验中，我们通过 Δz 判断组合脉冲的容错调控效果。

上述组合脉冲调控效率的原子偶极加速测量假设了光和原子相互作用的单原子图像。本实验中的原子样品在 D1 线的光学深度较小 ($\text{OD} < 1$)，且高效加速对应于原子态布居完全翻转，相应（超）辐射对加速的影响非常有限，在本工作中被忽略。

5.3 偶极加速效果的闭环反馈优化

5.3.1 优化算法需求

优秀的容错效果需要脉冲序列具有特定的参数组合。尽管在理论上，我们已经可以给出一系列高保真度调控对应的 N 脉冲参数（例如，文献^[9-10]中所介绍），但对于实际实验，这些理论解会不可避免的受到各种因素的影响而发生一定的偏离。这种影响来自于两个方面：其一是原子系统的物理模型不确定性，包括冷原子体系的实际空间分布、与高斯光束束腰的相对位置等，各类误差对调控的综合影响难以直接用理论模型精准描述；其二来自于光脉冲参数本身，特别的，对于我们的光脉冲整形系统（参见章节3.4.3），子脉冲之间的光强可能与理论存在 $\sim \pm 10\%$ 的偏差，相对相位也有 $\sim 0.1\pi$ 的精度不确定性。基于以上两点，直接运用理论最优脉冲参数来获得最优调控效果是困难的。这样的困难在量子调控类实验中是一个常见问题。如果组合脉冲的参数较少，例如章节4.5.3，可以通过对参数的直接遍历扫描实现。如果参数较多，如本章5.4.3节的 $N = 5$ 脉冲实验，相应的解决方法通常是建立实验-调控参数的反馈闭环（closed loop），在有限步数内基于测量结果的实时反馈，以算法搜寻最优参数组合。这种反馈闭环实验设计在非线性光学^[164-165]、量子计算^[166]等领域均有不少应用。

实时闭环反馈实验设计存在两个难点：其一是循环反馈周期须远短于各种参数的漂移周期；其二是实验反馈值的涨落要小，否则对复杂参数空间的优化路径生成可能变得特别困难。这里优化路径指的是从某一初始参数出发，通过一定计算预测，不断搜寻新参数组合，最终寻找到最优参数组合的过程。一种比较常见的方案是梯度下降算法（Gradient Descent Optimization）^[167]，通过对当前位置参数的局部采样，寻找函数最陡下降方向作为下一次采样点，以此循环，直到找到反馈函数的极小值。这种优化算法对于较为“平滑”的反馈函数具有优秀的优化能力。然而当函数逐渐复杂，且每次的反馈值具有噪声涨落时，算法收敛较慢，并容易“陷落”于局域最小值。本工作的冷原子偶极加速测量受吸收像信噪比，原子形状变化等因素影响， Δz 测量存在一定和调控特性无关的涨落。因此，本工作运用下一小节将介绍的，对涨落噪音有一定免疫性的贝叶斯优化算法（Bayesian Optimization）实现组合脉冲调控的全局建模和闭环优化。

5.3.2 贝叶斯优化算法简介

贝叶斯优化（Bayesian Optimization）是一种对未知映射关系（黑盒）进行全局优化的普遍方法。在数值计算中，常在小于 20 维的连续域上适用^[168]。该优化算法的最基本思想，是以贝叶斯估计原理（Bayesian inference principle），运用高斯回归过程，对目标函数全局建模，进而实现全局预测和优化。

具体来说，对于未知函数 $\mathcal{F}(x)$ ，我们的目标是找到最优参数组合 x_M 使得

$\mathcal{F}(x)$ 最优（一般为最小值）。贝叶斯优化算法在 n 次对 \mathcal{F} 的采样过程中最小化如下累积差值

$$\min\{r_n\} = n\mathcal{F}(x_M) - \sum_{i=1}^n \mathcal{F}(x_i). \quad (5.3)$$

这种基于全局参数的优化寻找方法对于局域的极小值及涨落具有免疫性^[168]。

以下我们将简单介绍贝叶斯优化过程，详细讨论文献众多，例如见^[168-172]。贝叶斯方案包括两个要点：高斯回归过程（**Gaussian Regression Process**）及采集函数（**Acquisition Function**）。对于已有的采样点，该方案将首先基于高斯过程（**Gaussian Process**）生成一个预测的先验 $\mathcal{F}(x)$ 函数模型。其中高斯过程通常考虑已有采样点的均值 $\mu(x)$ 及协方差 $k(x, x')$ （**kernel**）。一个广泛使用的 $k(x, x')$ 形式为

$$k(x, x') = l \cdot \exp\left(-\frac{|x-x'|^2}{2\sigma^2}\right). \quad (5.4)$$

这里 l 和 σ 为正的参数。先验的 $\mathcal{F}(x)$ 模型可以表示为

$$\mathcal{F}(x) \sim GP(\mu(x), k(x, x')). \quad (5.5)$$

在已有先验的预测模型基础上，贝叶斯优化则将在这一模型下寻找下一个采样点。这一过程基于采集函数的设计，一般可以分为对最优值可能位置采样（**Expected improvement**），或对最不确定位置采样（**Lower confidence bound**）等。前者一般适用于涨落较小且不过于复杂的函数，能够更快的找到最优值；而后者则注重全局建模，但随参数维度增加找到最优值的相对速度会变慢。在新选取的位置上重新采样后，就会进入回归过程，即利用后续观测量对先验模型进行后验的修正，生成新的预测模型，以此不断循环。

在图 5.2 中，我们结合一个简单的二维优化示例作直观的介绍。这个案例中我们考察二维目标函数 $\mathcal{F}_t(x) = (x_1 - x_2)^2 + (x_1 - 30)^2$ ，并限制 $x_1, x_2 \in [0, 50]$ 。函数对优化算法而言是未知的，我们期望其通过采样搜寻出最优值（最小值）位置，即 $x_M = \{30, 30\}$ 。首先，如图 (a) 中所示，贝叶斯优化算法会随机采集几个初始点，通过上述高斯过程生成初步的 $\mathcal{F}(x)$ 模型；根据采集函数，这一优化算法会给出下一个采样点并修正生成的 $\mathcal{F}(x)$ 模型。在图 (b) 中，我们展示了 30 次循环采样后的 $\mathcal{F}(x)$ 预测模型，可以看到，其与 $\mathcal{F}_t(x)$ 的形式已基本一致，同时也给出了当前最优值 $x_M = \{30.2, 30.1\}$ 。

得益于全局建模特性，近年来贝叶斯算法作为实验反馈的实时优化手段越来越受到人们重视^[173-174]，尤其在最近开始被逐渐运用于各类量子优化控制中，例如在超冷原子实验中被用于实现特定多体量子态的优化制备^[175]，包括高质量玻色爱因斯坦凝聚（**BEC**）制备^[176]等。在本章介绍的实验中，我们应用开源程序包 **GpyOpt**^[177]，将贝叶斯优化算法作为皮秒组合脉冲参数调节手段。

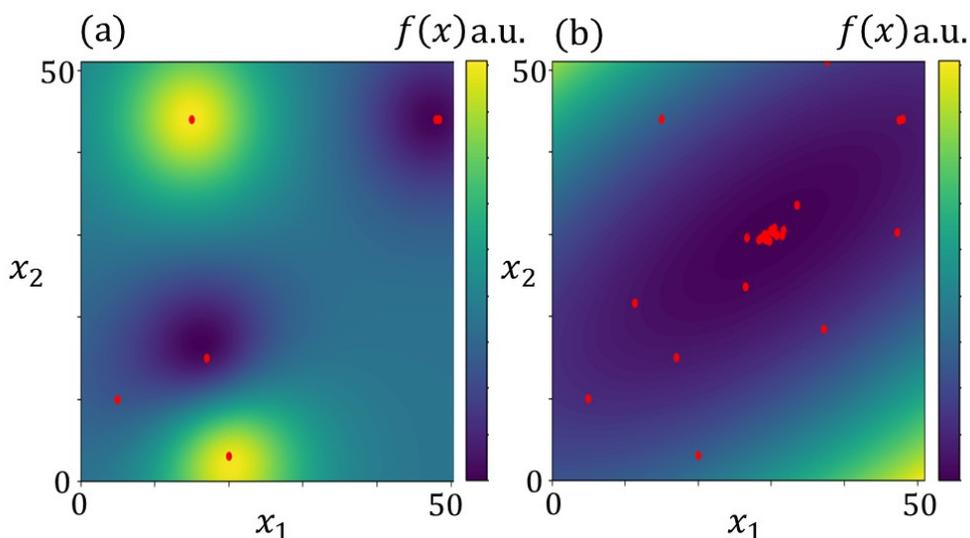


图 5.2 典型的贝叶斯优化结果示意图。这里我们假设了目标函数为 $\mathcal{F}_t(x) = (x_1 - x_2)^2 + (x_1 - 30)^2$ ，并且用红点表示每次采样点位置，用颜色图表示先验预测的 $\mathcal{F}(x)$ 模型。优化算法的目标即找到最优的参数组合 x_M (这里, $x_M = \{30, 30\}$), 使 $\mathcal{F}(x)$ 值最小 (颜色最深)。图 (a) 和 (b) 分别展示了贝叶斯优化在 5 次及 30 次采样后生成的 $\mathcal{F}(x)$ 模型, 可以看到图 (b) 中的预测模型与目标函数 $\mathcal{F}_t(x)$ 已基本一致。

5.3.3 反馈闭环实验设计

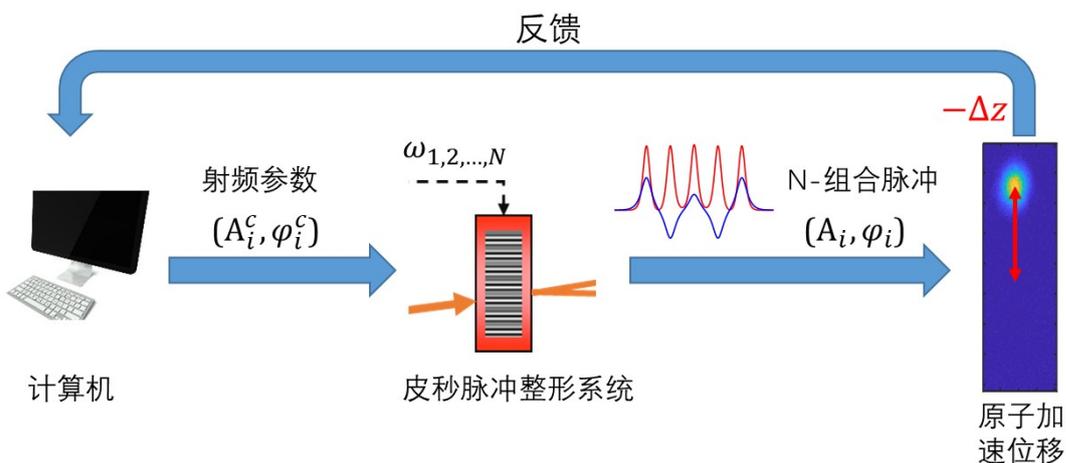


图 5.3 组合脉冲原子偶极加速的闭环反馈优化流程。

我们基于上述介绍的贝叶斯优化算法, 设计了原子偶极加速实验的反馈闭环方案, 流程如图 5.3 所示。我们通过处理吸收像获得原子团的 z 方向相对位移 $-\Delta z$ 作为反馈值 (即 $\mathcal{F}(x)$ 生成依据), 运用上述贝叶斯算法构造先验预测模型, 帮助决定下一个皮秒脉冲序列生成系统的射频控制参数 $\{A_i^c, \varphi_i^c\}$, 以驱动 N 脉

冲序列生成，进而注入原子系统进行下一轮加速和 $-\Delta z$ 采集。在我们目前实验中，每次循环总时长约为 $T_{\text{tot}} = N_{\text{avg}} \times 2 \text{ s}$ ，其中 $N_{\text{avg}} \approx 10$ 为对每个参数采样点下的平均测量次数，目前这一时间消耗主要来源于冷原子样品制备周期。

5.4 实验结果

5.4.1 $N=1$ 单脉冲加速基准测量

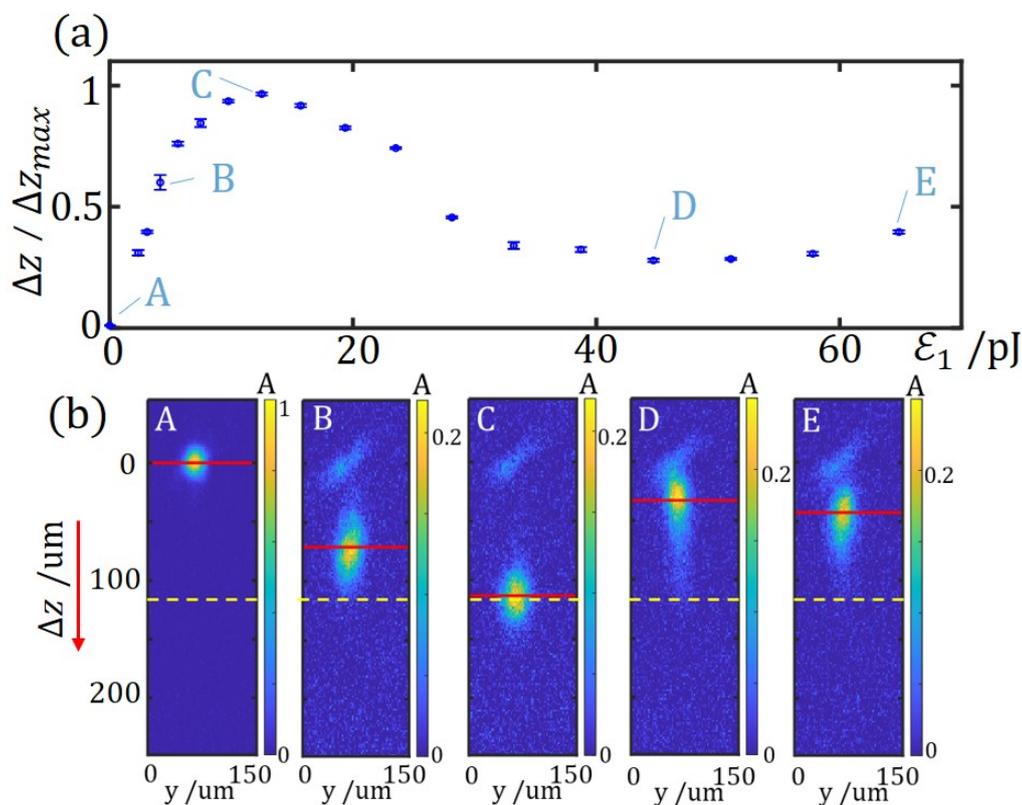


图 5.4 $N = 1$ 单脉冲偶极加速测量。图 (a) 给出原子团质心位移 Δz 随单皮秒脉冲能量 ϵ_1 的变化。图中误差条表示近 10 次吸收像数据统计不确定性。我们将“**A**” - “**E**” 标记处的原子团吸收像（以吸收率 A 表示）绘制于图 (b) 中。其中红线表示被加速分离部分原子团质心位置 Δz ，黄色虚线表示理论计算的最大质心位移 $\Delta z_{\text{max}} \approx 120 \mu\text{m}$ 。

我们将中心与 ^{87}Rb 原子 D1 线共振的加速脉冲序列通过光学聚焦至半高全宽约 $w \sim 20 \mu\text{m}$ 的光斑，沿 $+z$ 方向以线偏振照射至上述混合阱中所装载的冷原子样品上。制备后冷原子样品初始温度 $T \sim 10 \mu\text{K}$ ，装载原子数约为 $N_a \sim 10^5$ ，且在阱中近似为椭球形（由于 y 方向单光束阱作用，实际形状沿 y 方向拉长），此时原子团半高全宽约 $\sigma \sim 5 \mu\text{m}$ ($t = 0$)。

在实验中，我们对图 5.1 中的时间序列进行如下设置：加速时间设置为 $t_{\text{acc}} = 25 \mu\text{s}$ ，在此期间，我们通过脉冲序列后选取系统，将加速脉冲序列重频设置为 $f_{\text{rep}} = 4 \text{ MHz}$ ，因此原子会被重复加速 $N_{\text{tot}} = 100$ 次。原子加速后飞行时间设置为 $t_{\text{tof2}} = 185 \mu\text{s}$ ，并在 $t_{\text{probe}} = 20 \mu\text{s}$ 时间内多次曝光（一般为 10 次左右曝光取平均）用于吸收成像。基于上述式 (5.1) 及 (5.2)，我们可以计算这一时序下的理论原子团质心最大位移量 $\Delta z_{\text{max}} = 120 \mu\text{m}$ ，此时对应脉冲序列对所有原子的整体布居翻转效率 $f = 1$ 。

作为基准检测，在图 5.4(a)(b) 中，我们对制备结束瞬间的小原子样品（设置 $t_{\text{tof1}} = 0$ ）进行 $N = 1$ 单脉冲偶极加速，由于光束对小样品的照明基本均匀，因此布居翻转可以是“完美”的。在图 (b) 中，我们绘制了原子团的质心位移 Δz 随单脉冲能量 \mathcal{E}_1 增加时的变化（蓝色标记），并将标记“A”-“E”处的典型原子团吸收像绘制于图 (a)。这里，我们仅考虑被加速分离的原子团，并选取其作为质心计算（如图 (a) 中红线标记），由于 y 方向形状过长而基本未被受到加速光照射的原子团部分将不予考虑（例如，图 (a) 中始终留在 $\Delta z = 0$ 处的部分）。可以看到，原子团的质心位移 Δz 随翻转效率呈现拉比振荡形式，最佳值接近理论极限。

5.4.2 偶极加速的贝叶斯优化

本节的实验目标是优化 $N = 5$ 组合皮秒脉冲的容错原子态布居翻转调控。由二能级量子调控理论^[9]可知，组合脉冲的参数空间有 9 个连续维度，如不考虑优化函数的特征，仅计入特征参数分辨率要求，则参数空间可取样点数在 10^9 级别，不可能在实验中遍历。为确保我们的偶极加速实验可以在合理的时间内由闭环反馈找到优化参数组合，在开展实际实验以前，我们首先用数值模拟考察多参数闭环优化的实际可行性。具体来说，用贝叶斯算法对二能级原子调控进行“模拟数值实验”，将 $N = 5$ 脉冲序列的 4 个相位 $\{\varphi_{2,3,4,5}\} \in [0, 2\pi]$ （固定 $\varphi_1 = 0$ ）、5 个振幅（由脉冲面积 $\{\mathcal{A}_{0,i}\} \in [0.8, 1.2]\pi$ 表示）作为 9 维调节参数空间；反馈函数设置为实际脉冲面积 \mathcal{A}_i 变化 $\mathcal{A}_i/\mathcal{A}_{0,i} = 1 \pm 0.5$ 范围时的平均布居翻转效率 \bar{f} 。我们取 $-\log_{10}(\bar{f})$ 值进行反馈优化。在图 5.5 中，我们展示了 5 次典型的数值反馈实验过程（图 (b)），并给出了最优结果（图 (a)）及相应参数组合（图 (c)）。可以看到，仅通过 $\text{step} \sim 10^2$ 次迭代，这样的反馈优化就可以在脉冲面积变化 $\pm 50\%$ 范围时，给出平均翻转效率 $\bar{f} > 0.95$ 的 $N = 5$ 脉冲参数组合。同时，图 (c) 的各种参数组合也表明，在 $N = 5$ 组合脉冲的多维参数空间内，有多种可以实现明显容错效果的脉冲参数组合。实验上，基于本论文工作系统射频参数 $\{A_i^c, \varphi_i^c\}$ 到脉冲参数 $\{A_i, \varphi_i\}$ 的高度稳定性（章节 3.5），我们预期实验优化会获得类似于数值模拟的收敛效果。

在经过模拟验证后，我们开展 $N = 5$ 组合脉冲序列（ $\tau_d = 40 \text{ ps}$ ）原子偶极

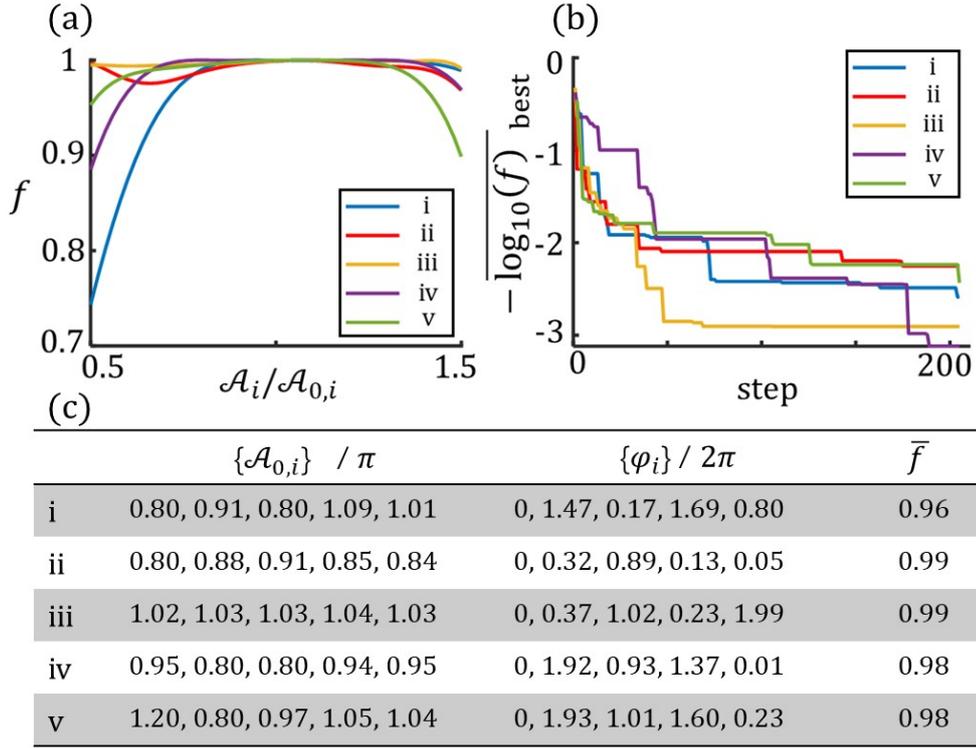


图 5.5 $N = 5$ 组合脉冲参数反馈闭环优化的数值模拟。我们在图 (b) 中展示了 5 组反馈优化实验的反馈值 $-\log_{10}(f)$ 迭代过程。图 (a) 展示了上述迭代约 200 次后的最佳结果，可以看到，在整体脉冲强度变化 $\pm 50\%$ 范围内，多组优化参数下的 $N = 5$ 组合脉冲均可保持极高的布居翻转效率（平均翻转效率 $\bar{f} > 0.95$ ）。在图 (c) 中，我们具体列出了这 5 组优化后得到的脉冲参数组合。

加速的闭环反馈优化。在目前阶段，由于我们脉冲生成系统“参数库”仅保证 $N = 5$ 脉冲功率均衡（参考章节 3.4），简单的强度调节需要避免。因此，我们仅以射频相位 $\varphi_i^c (i = 2, 3, 4, 5)$ 作为独立优化参数，相应射频强度由参数库决定。

基于大量前期探索的经验积累，我们在实验上将上述时间 t_{tof1} 设置为 $t_{\text{tof1}} = 80 \mu\text{s}$ ，确保冷原子团经由这一自由飞行时间后扩散至半高全宽约 $\sigma \sim 20 \mu\text{m}$ ，同时其形状沿 y 方向偏长。对于这样形状及尺寸的冷原子样品， $w \approx 20 \mu\text{m}$ 的加速光场具有显著的非均匀展宽。从而对于 $N = 1$ 单脉冲，又或者对应场强容错效果不佳的参数下的 $N = 5$ 组合脉冲，其原子团整体加速效果大大降低。我们以所有原子的整体平均质心位移 Δz_l 作为反馈参数对大样品平均偶极加速效果进行优化，这个方法等效于组合皮秒脉冲调控性能在不同光强下的“并行优化”。

图 5.6 展示了一次典型的 $N = 5$ 组合脉冲优化反馈实验。其中，我们在图 (b) 中绘制了在贝叶斯优化模型逐步采样期间，当前最优原子团整体质心位移 $-\Delta z_{l,\text{best}}$ 的下降（优化）过程。 Δz_l 如图 (a) 中的红色虚线所标记。我们同时在图 (a) 中展示了对应标记“A”-“D”参数下的原子团被加速后空间分布。可以看

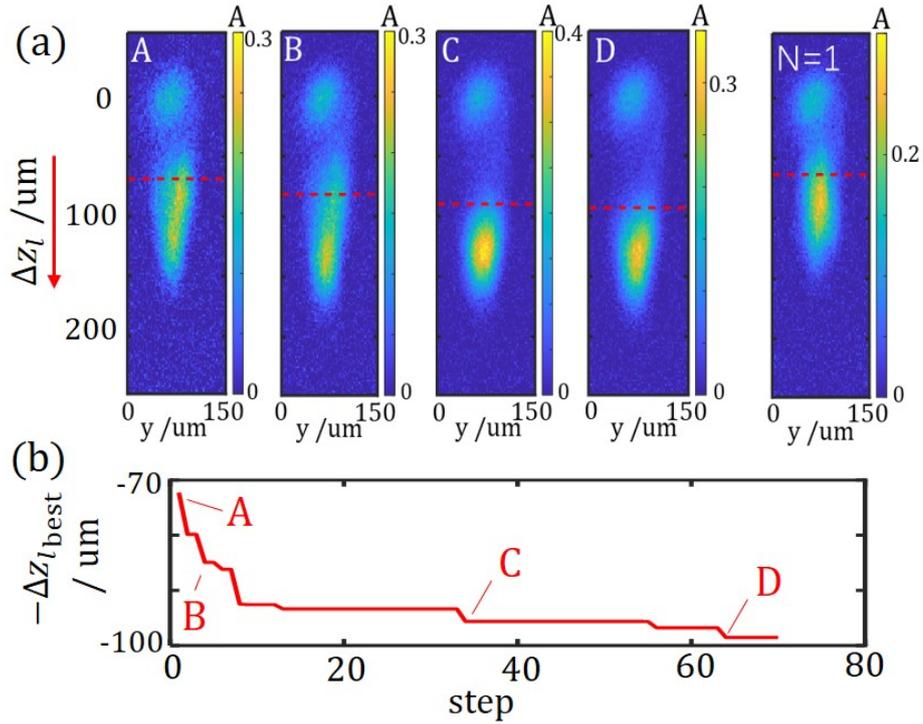


图 5.6 $N = 5$ 组合脉冲反馈闭环实验典型过程。图 (b) 绘制了当前最优原子团整体质心 $-\Delta z_{l,\text{best}}$ 随反馈次数不断优化过程。相应标记“A”-“D”中的原子团分布有吸收像给出，绘制于图 (a) 中。这里，我们用红色虚线标注了 Δz_l 的位置。作为对比，图 (a) 给出 $N = 1$ 脉冲不容错加速效果下的大原子团分布。

到，在未经有效参数优化的组合脉冲加速下（例如标记“A”、“B”），非均匀的光场照射将使得整个原子团形状沿 z 方向拉长，与高功率下 $N = 1$ 单脉冲对该样品的加速效果（图 (a) 最后一幅图）没有实质区别，因而最终平均后的 Δz_l 位移并不高。然而经过优化算法不断迭代脉冲参数，在约 50 次的优化步骤后， $N = 5$ 组合脉冲逐渐获得了对光强展宽的容错效果。在标记“C”、“D”处，我们可以看到原子团样品 z 方向拉伸明显变小，并有大量原子聚集于最大位移附近。这样的容错效果使得相对应的 Δz_l 位移也增大。

5.4.3 $N=5$ 优化组合脉冲容错加速结果

基于上述图 5.6 中的反馈优化过程，在约 70 步迭代后，我们在实验上获得了一组具有优秀容错加速效果的 $N = 5$ 脉冲相位组合 $\varphi_i \approx \{0, 1.92, 0.57, 1.78, 1.43\}\pi$ （这一光脉冲相位由参数库方案从优化后的射频设置 $\Delta\varphi_i^c$ 预测得到）。利用这一优化后的 $N = 5$ 组合脉冲，我们在图 5.7(a) 中测量了原子团质心位移 Δz 随脉冲总能量 \mathcal{E}_{tot} 的变化关系（红色标记）。类似的，我们将标记“A”-“E”所对应的典型原子团吸收像绘制于图 (b) 中。这一实验中，与上一章中介绍一致我们设置了

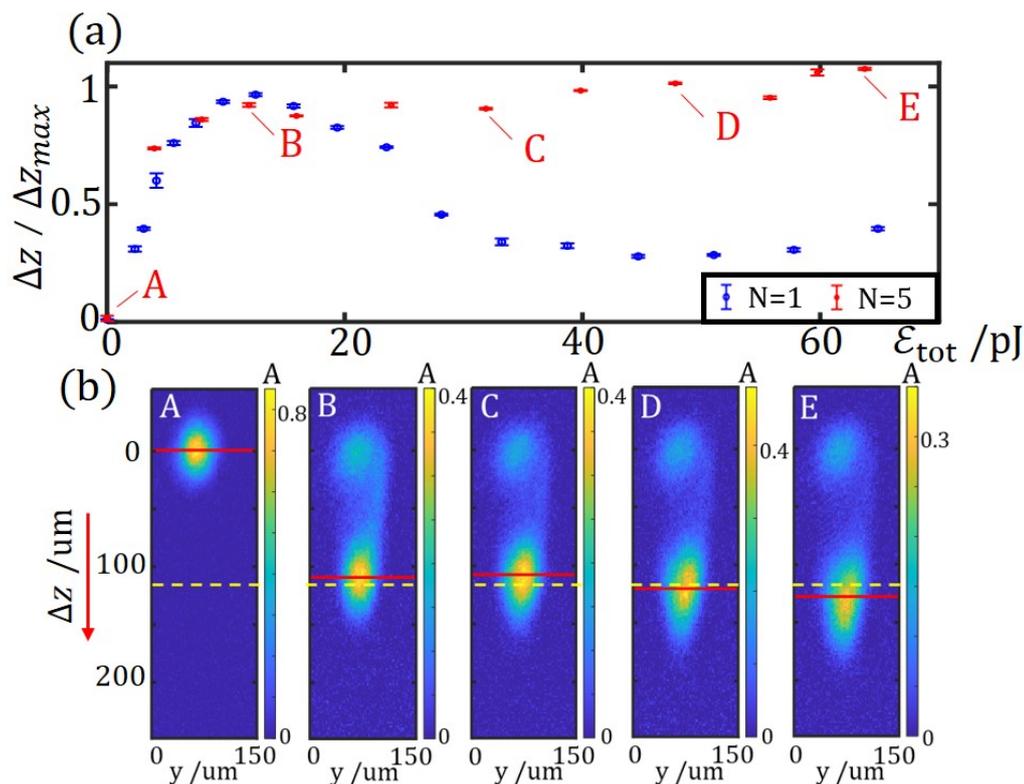


图 5.7 $N = 5$ 优化组合脉冲偶极加速测量结果。图 (a) 给出原子团质心位移 Δz 随脉冲总能量 ϵ_{tot} 的变化关系。可以看到，在该参数组合下的 $N = 5$ 组合脉冲加速后（红色数据），原子团在 $\epsilon_{\text{tot}} = 40 \pm 20$ pJ 的范围内均有质心位移 $\Delta z / \Delta z_{\max} > 0.9$ 。作为对比，我们也将图 5.4 中的单脉冲加速数据绘制其中（蓝色数据），误差条均表示 10 次左右吸收像采样数据统计不确定性。我们将对应“A”-“E”标记处的原子团吸收像（以吸收率 A 表示）绘制于图 (b) 中。与图 5.4 中一致，我们用红线表示被加速分离部分的原子团质心位置 Δz ，黄色虚线表示理论计算的最大质心位移 $\Delta z_{\max} \approx 120 \mu\text{m}$ 。

$t_{\text{tof1}} = 80 \mu\text{s}$ 。从图 (a) 可以看到，在入射脉冲总能量 $\epsilon_{\text{tot}} = 40 \pm 20$ pJ 的范围内，加速的原子团部分质心位移 Δz 基本无变化，且均对应于有 $f \approx \Delta z / \Delta z_{\max} > 0.9$ 的翻转效率。此即为皮秒组合脉冲对冷原子偶极加速的容错效果。作为对比，我们也将图 5.4(a) 中的 $N = 1$ 单脉冲加速结果绘制于图中。

图 5.7 中的 $N = 5$ 脉冲实验结果是本论文工作实现皮秒组合脉冲编程优化控制的核心结果。该结果证明了复杂皮秒组合脉冲对原子态实现精密容错操控的可行性。具体应用见章节 1.1.1 讨论。

在图 5.7 实验测量中，我们还注意到在部分情况下（例如标记“E”处），加速原子团质心位置超过了理论最大值 Δz_{\max} ，这是由于光路中存在锁模激光基础重频 $f_{\text{rep}}^{(0)}$ 相关的子脉冲。在章节 3.4.2 中我们提到，在该“第二代”系统中，干

涉预降频设计将锁模脉冲重频从 80 MHz 降至 $f_{\text{rep}}^{(0)''} = 20$ MHz，其后由单次声光调制抑制。不幸的是，目前该声光调制器对这一 50 ns 延迟后的其与子脉冲序列的光强抑制比仅 $\sim 0.8\%$ （可能是受到声光驱动射频反射导致的子波影响）。在图 5.7 中“E”点光强下，该额外子脉冲序列的总能量高达 0.5 pJ，足以导致 10% 的额外光子反冲加速，与实验现象相符。

5.4.4 $N=3$ 组合脉冲布居翻转的全局模型

最后，如我们在前文中所介绍的，贝叶斯优化算法可以给出对参数空间的先验建模。我们用 $N = 3$ 组合脉冲偶极加速实验测量来验证这种能力。具体来说，通过对 $N = 3$ 组合脉冲 $\Delta\varphi_{31}^c$, $\Delta\varphi_{21}^c$ 射频控制参数的二维扫描，同时以“参数库”数据点拟合保证各脉冲相对强度基本保持一致，并设置脉冲注入总能量 $\mathcal{E}_{\text{tot}} \approx 36$ pJ，获得图 5.8(a) 的加速效果二维图。这个加速效果作为“真实效果”，被用来和贝叶斯方法取样生成的模型对比。图 5.8(b) 是 $N = 3$ 脉冲闭环优化步数 $\text{step} = 50$ 次后的模型。对比图 5.8(a),(b)，我们发现贝叶斯方法以显著小于扫描方法（100 步）的步数，获得了不错的建模效果。

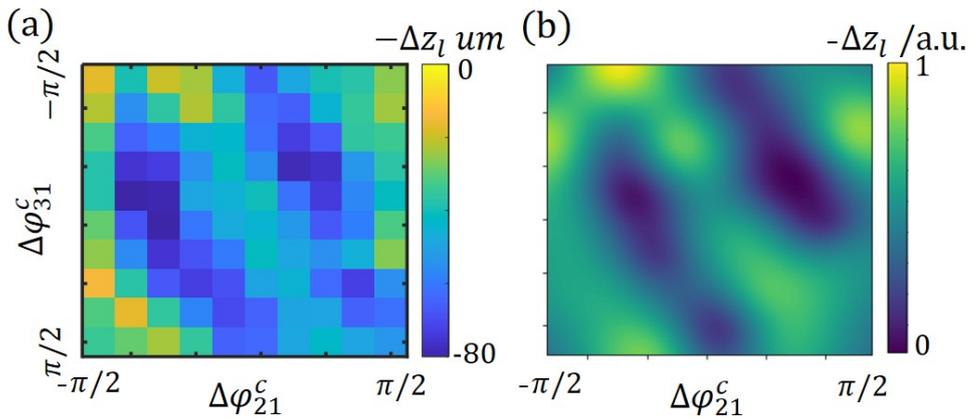


图 5.8 $N = 3$ 组合脉冲容错加速实验的贝叶斯全局建模。图 (a) 和 (b) 分别给出二维参数扫描的加速效果和基于贝叶斯优化算法自动反馈的效果预测。扫描法均匀取样 100 个点 (10×10)。贝叶斯算法的先验模型由 50 次数据采集生成。

5.5 偶极加速实验中的“超分辨”现象

5.5.1 超精细基态再泵浦

在以上贝叶斯优化建模光偶极加速实验中，一个重要的技术细节是在加速过程中引入 $|d\rangle - |e\rangle$ 共振再泵浦光，实现 $|d\rangle$ 态原子的持续激发并由自发拉曼 $|e\rangle \rightarrow |g\rangle$ 跃迁确保原子以大概率处于 $|g\rangle$ 态。如图 5.1 所示，该再泵浦光的传播方向为 $-y$ ，相应的光偶极力不会对沿着 $+z$ 方向的皮秒脉冲产生影响。

这一 $|d\rangle - |g\rangle$ 再泵浦过程确保了皮秒组合脉冲的准二能级激发及接近最简单二能级调控理论的原子态布居翻转^[9]。如果没有该再泵浦过程，则在 D1 组合脉冲反复高效激发及 $5P_{1/2}$ 自发辐射作用，原子态将逐渐均匀布居于 $|g\rangle, |d\rangle$ 超精细能级。此时，由于皮秒脉冲的偏振被设为线性，双光子受激拉曼耦合效应被抑制^[81]，此时组合脉冲的调控对象仍是二能级原子，只是其跃迁频率分裂为差别 6.8GHz 的两套（见章节 2.3.3 中 $\tau_c \sim 1/\omega_{\text{hfs},g} \ll \omega_{\text{hfs},e}$ 相关讨论）。然而，在组合脉冲优化过程中，两套二能级系统的频率差异将导致翻转效率的差异，导致偶极加速效果随参数变化趋于复杂。上述实验添加再泵光也正是基于这个考虑。

在本小节，我们将再泵浦光去除，回归线性 D1 皮秒激发下的“双二能级调控”图像。事实上，这一图像在章节 3.6 已经介绍，并讨论由于自发拉曼散射导致的 $|g\rangle - |d\rangle$ 基态布居转移效应及弱激发极限下的光谱“超分辨”现象。类似现象也在本章偶极加速中，在更大的激发脉冲面积下（ \mathcal{A}_i 在 $\pi/3$ 级别）被发现。以下以 $\mathcal{A}_i \leq \pi/3$ 的弱激发区间实验结果做简要讨论。

5.5.2 $N=2,3$ 偶极加速实验“超分辨”结构

我们考察 $N = 2$ 脉冲序列（ $\tau_d = 40$ ps）小样品（ $t_{\text{tof1}} = 0$ ）偶极加速实验。两脉冲能量保持一致，总能量设置为 $\mathcal{E}_{\text{tot}} \approx 2$ pJ（对应 $\mathcal{A}_i \approx \pi/3$ ）。扫描射频相位 $\Delta\varphi_{2,1}^c \in [0, \pi]$ ，原子团质心位移 Δz 随相位变化展示于图 5.9(a)（蓝色数据点）。可以看到，其变化规律基本呈现为与光谱强度变化一致的周期性结构（参考章节 3.5.2）。

接下来我们关闭偶极加速过程中的再泵浦光（图 5.1(a)），重复相同实验，结果见图 5.9(a) 红色数据点。可以看到， Δz 在最小值附近出现了“分裂”（图 5.9(a) 红色箭头标记）。这一现象和图 3.13(a-c) 的 $\mathcal{A}_i \sim 10$ mrad 弱脉冲结果非常类似。

我们对小功率注入下的 $N = 3$ 的脉冲序列（ $\tau_d = 40$ ps）也进行了类似实验，见图 (b)（相位二维扫描）及图 (c)（反馈优化），这一实验在 $t_{\text{tof1}} = 80$ μs 下进行。此时，注入脉冲总能量约为 $\mathcal{E}_{\text{tot}} \approx 4$ pJ（对应 $\mathcal{A}_i \approx \pi/3$ ）。图 5.9(b)(c) 中在中心处（对应共振光谱强度最大）位置“O”点附近， Δz_l 也出现了“分裂”。

5.5.3 基态布居转移的数值模拟

此类偶极加速过程中出现的光谱超分辨现象的产生原因与章节 3.6.3 中的介绍的原理一致。以 $N = 3$ 脉冲序列为例，对于 ^{87}Rb 原子的 D 线基态超精细分裂 $\omega_{\text{hfs},g} \approx 2\pi \times 6.8$ GHz，当 $\tau_d = 40$ ps 的 $N = 3$ 脉冲对 $|g\rangle - |e\rangle$ 跃迁频率相位一致时，其对 $|d\rangle - |e\rangle$ 跃迁恰好接近最弱。因此 $|d\rangle$ 态将接近成为“暗”态（参考图 3.15）。在多次激发-自发辐射循环后，这一组合脉冲调制后的原子布居将逐渐转移至基态 $|d\rangle$ 上。这里我们运用 D1 线全能级蒙特卡洛数值模拟（参考章节 4.6.1）详细计算了这一基态布居转移过程，并在图 5.10(a) 中给出相应数值模

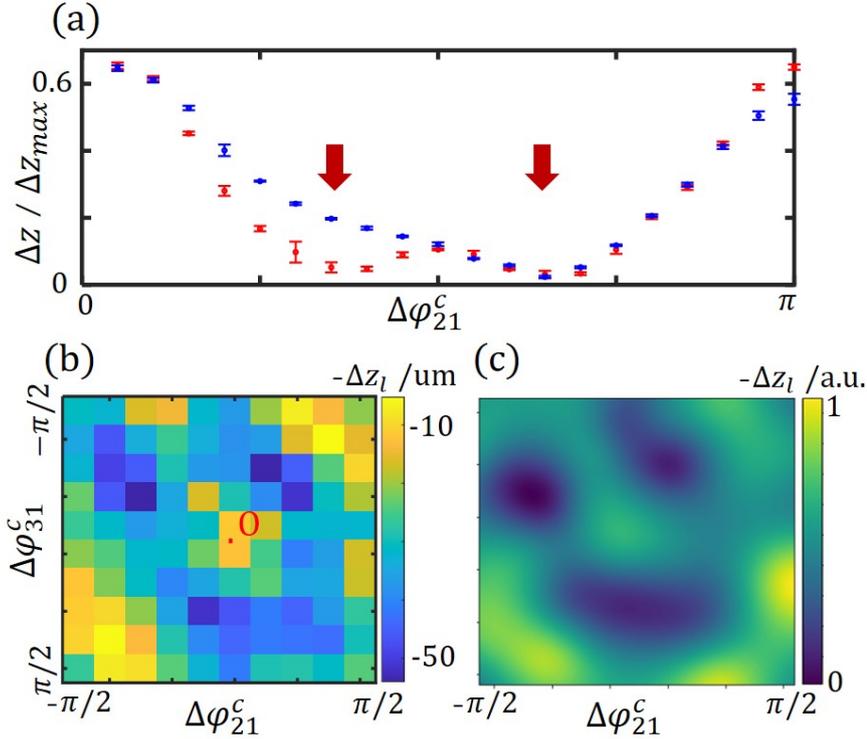


图 5.9 $N = 2, 3$ 组合脉冲加速实验中的“超分辨”光谱响应。(a) 对于 $N = 2$ 脉冲，我们分别就 $|d\rangle - |e\rangle$ 跃迁再泵浦光（图 5.1）开启及关闭条件下，测量原子团质心位移 Δz 随射频脉冲相对相位 $\Delta \varphi_{2,1}^c \in [0, \pi]$ 变化（对应 $\Delta \varphi_{2,1} \in [0, 2\pi]$ ）的变化。相应结果由红色、蓝色记号分别表示。误差条表示约 10 次采集统计不确定度。类似的 $N = 3$ 脉冲，再泵浦光关闭结果显示于 (b)。(c) 为相应贝叶斯建模结果（50 次采样）。上述组合脉冲调控实验的子脉冲面积 $\mathcal{A}_i < 0.3\pi$ 均处于弱激发区间。

拟结果。原子初始布居均匀分布在基态 $|g\rangle, |d\rangle$ 上。由于 ^{87}Rb 原子 $|g\rangle$ 具有 5 个塞曼子能级， $|d\rangle$ 具有 3 个塞曼子能级，因此有初态布居 $\rho_{gg}^{(0)} = 5/8$ ， $\rho_{dd}^{(0)} = 3/8$ 。在经历 $N_{\text{acc}} \approx 10 \sim 20$ 次加速并自发辐射周期后，我们可以看到原子布居几乎已经转移到了 ρ_{dd} 上形成稳态。图 5.10(b) 模拟了最后一次加速 $N_{\text{acc}} = 100$ 的皮秒脉冲结束瞬间，原子的激发态布居分布 ρ_{ee} 在不同脉冲相位组合下的分布。可以看到，其与上述图 5.9(b)(c) 中的 Δz 结构基本一致。模拟中单脉冲面积为“ $\pi/3$ ”，接近图 5.9 实验条件。

最后，需要强调的是，在本节工作中虽然我们选择相对较弱的脉冲激发，并将此类“超分辨光谱”特性和线性光谱进行对比，形成章节 3.6.3 讨论的频谱超分辨结论。而重复激发下基态布居转移本身并不需要弱激发条件。因此，在没有再泵浦光保护 $|g\rangle$ 态布居的情况下，类似实验现象在更强的组合脉冲激发参数扫描过程中也会出现。

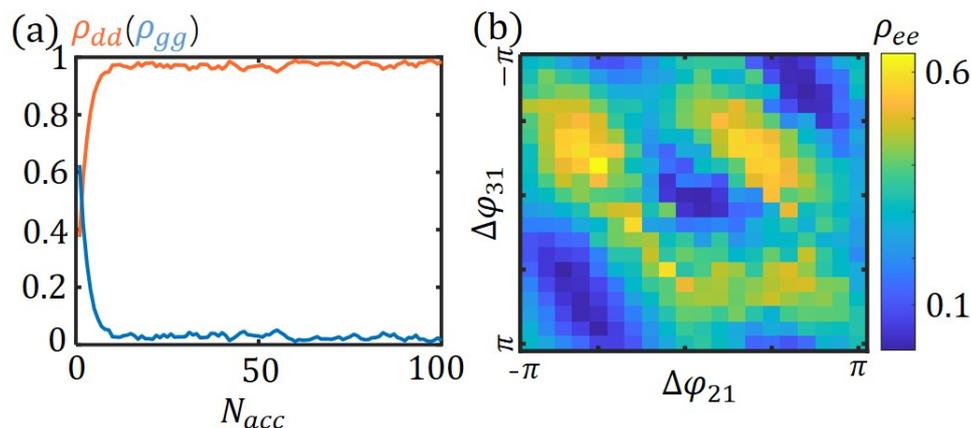


图 5.10 基于蒙特卡洛 D1 线数值模拟的原子布居变化。我们利用全能级数值模拟演算相同相位下的 $N = 3$ 皮秒组合加速脉冲对原子布居翻转，单脉冲面积设置为“ $\pi/3$ ”。每次加速脉冲作用后，我们用随机波函数法模拟原子在 $1/f_{\text{rep}} = 250 \text{ ns}$ 时间内的自发辐射。在图 (a) 中，我们展示了由 30 次蒙特卡洛循环平均，原子在每次 f_{rep} 周期后的基态布居分布，可以看到在 $N_{\text{acc}} \approx 10 \sim 20$ 次周期后，原子基态布居已基本转移至 ρ_{dd} 上形成稳态。在图 (b) 中，我们模拟了最后一次加速 $N_{\text{acc}} = 100$ 脉冲结束瞬间的原子激发态布居 ρ_{ee} 随脉冲相位分布，其呈现出与 Δz 分布一致的结构。

5.6 本章小结

本章节首先介绍了冷原子偶极加速实验。利用技术升级后的皮秒组合脉冲生成系统，我们在实验上实现了对冷原子样品的容错偶极加速。该进展中运用的 $N = 5$ 组合脉冲参数空间十分庞大，参数优化无法由扫描遍历的方法展开。得益于皮秒脉冲序列生成系统稳定性，我们设计了基于贝叶斯优化算法的反馈闭环实验，以自动优化高效实现原子样品容错布居翻转，在驱动光强变化 $\pm 50\%$ 内均获得 90% 以上的加速效果。相比于 $N = 1$ 单脉冲下加速效果，这一组合脉冲的加速方案具有对光强非均匀展宽的高度容错性。本工作进展的简单改进可直接用于实现冷原子物质波的相干加速^[8]及电偶极集体辐射的相干操控^[29,33-34]。

注意到上述 $N = 5$ 脉冲容错偶极加速的最佳效果是在近 1 小时优化时间内的 700 次反馈实验中（图 5.6，每个点 10 次重复）由贝叶斯建模对皮秒组合脉冲相位实现优化，自动获得。如模拟实验图 5.5 所示，给与更长优化时间，并允许脉冲强度同时优化，则该效率可提高至 99% 级。实际实验过程中，长时间优化可能被锁模激光失锁、光纤耦合效率浮动等因素影响，因此本工作暂时止步于图 5.7 结果。目前，这一组合脉冲的原子偶极容错加速实验仍在进展中。我们后续期望建立起从皮秒脉冲生成系统到原子偶极加速系统的更全面及精确的模型，进而允许子脉冲强度和相位独立调节，同时提高系统稳定性，期待在光强变化大

范围内实现 $\bar{f} > 0.99$ 的加速。随着脉冲“参数库”（章节3.4.3）的精密完善，我们还期待甚至实现从理论模型^[9]到实验操控的直接编程。

在以上两章实验工作中，我们均运用了 Rb 原子 D1 跃迁布居数翻转来研究皮秒组合脉冲的原子态操控效率。需要注意的是，超越布居翻转，本章工作的 $N = 5$ 皮秒组合脉冲序列可拓展为强光学跃迁 SU(2) 任意量子门操控（如图 2.7），因此可支持基于高精度原子电偶极任意操控的新型原子物理和量子光学技术。

第六章 总结与展望

6.1 本文总结

强光学电偶极跃迁是中性原子与光相互作用最重要的形式。对强光学跃迁的操控和测量是从非线性光学到原子光谱的重要课题。然而由于相干时间受自发辐射限制，科技前沿对强光学跃迁的精密和全面操控技术尚不多见。基于强光学跃迁操控的量子调控技术仅近年来才有初步发展，包括冷原子系综光偶极集体辐射操控^[29,33-34]，驱动强光学跃迁自旋相关动量转移^[8]等技术进展。事实上，对强光学跃迁的精密操控即对原子中电子运动进行全面和任意的操控，如本文引言所述（章节1.1.4），强光学跃迁极高的 Q 值可支持光脉冲在皮秒时间内驱动孤立二能级系统，借鉴微波磁共振组合脉冲技术，可在光强不均等非完美条件下实现电偶极量子态的完美操控。

本论文工作通过光脉冲任意调制技术创新，发展可用于驱动强光学跃迁实现精密原子态调控的组合容错皮秒脉冲“超快”调控技术。本文工作总结如下：

1. 针对皮秒-纳秒时间光脉冲调制技术空白^[11,178]，我们结合“倒空间-时间”直接转换的脉冲整形思想，研发出可编程任意皮秒脉冲序列生成系统。其中，“第一代”系统可以 $\delta f_M \approx 30$ GHz 的调制带宽产生最大 $\tau_{d,\max} = 10^2$ ps 级延时的任意 N 子脉冲皮秒脉冲序列，子脉冲的延迟、振幅及相位均任意可编程调整。而“第二代”系统基于 4-F 成像的多频声光调制原理，通过对声光衍射系统和脉冲后选取技术的升级，大幅提升了系统的输出效率，可产生峰值接近 10W 的 $N = 5$ 皮秒脉冲序列。该系统单模输出具有高度的被动波形稳定性。而这一稳定性已经体现在“首次”皮秒组合脉冲冷原子实验中光谱“超分辨”现象的成功观测。这一脉冲调制系统为强光学跃迁的皮秒组合脉冲容错高保真操控奠定了技术基础。

2. 我们在纳米光纤-热原子蒸汽界面以毫瓦级低功率组合皮秒脉冲实现了原子态的高保真布居翻转操控^[12]。该实验使用 $N = 3$ 皮秒脉冲序列驱动消逝场中原子 D1 线激发，获得了光纤波导的 D2 线探测光脉冲透射率高达 70% 的相对增强。结合数值模拟结果，证实了这一透射率变化源于近场中获得高达 80% 以上的基态原子 D1 线布居翻转效率。对于光强及偏振极不均匀的消逝场来说，这一组合脉冲的几何容错性已经接近理论极限。这一进展从实验和理论两方面，验证了皮秒组合脉冲实现光学电偶极容错调控的可行性，同时为下一步在纳米光纤界面与冷原子结合，开展新型原子光谱^[23-24]和非线性量子光学前沿研究^[29-30,179]打下基础。而该实验过程中发展的数值建模方案本身，也可进一步被运用于探索纳米光纤表面势^[14,147-148,162-163]等研究中。

3. 在自由空间冷原子界面, 我们利用原子偶极加速实验验证了皮秒组合脉冲对光强非均匀展宽的高度容错性。初步实验结果证明了, 特定参数下的 $N = 5$ 皮秒组合脉冲, 可以在注入功率变化约 $\pm 50\%$ 的范围内均实现 $f > 0.9$ 的布居翻转效率, 提供远大于单脉冲的单向加速效率。本工作进展的简单改进可直接用于实现冷原子物质波的相干加速及电偶极集体辐射的相干操控^[29,33]。实验进展展示了皮秒组合光脉冲方案在冷原子中的应用前景, 为高效激光冷却^[31]、离子阱量子信息处理^[8] 等研究中的高速物质波加速技术创新提供了崭新思路。

6.2 对本文工作的一些展望

本文工作是组合脉冲方案在光学电偶极跃迁中的首次运用。其核心技术, 可编程皮秒组合脉冲生成技术, 在输出功率 (章节3.3.4)、可编程性 (章节3.4.3) 及最大延时 (章节3.3.3) 等方面还存在不足, 以下我们讨论相应提高方案。

在脉冲序列生成技术的输出功率上, 可以借鉴复合声光调制技术^[65] 实现子脉冲的高频相干累加 (而非分束), 这一方案可一定程度上解决输出功率问题。而更加直接的功率提升方法是在输入或者输出端增加光功率放大器。通过功率放大, 可以将皮秒组合脉冲应用于实现更大原子样品的精密和“超快”量子调控。

在光脉冲参数测量方面, 为突破自制光谱仪^[128] 测量的精度限制, 我们目前正在设计和搭建基于 VIPA (Virtually Imaged Phase Arrays)^[180] 的光谱系统, 该系统可以在更高的分辨率下对多个脉冲的相对相位进行更直接和精确的测量。对波形的精确测量和建模将允许我们更加准确的对输出脉冲波形直接编程, 结合多能级调控理论, 对调控效果进行更加精确的预测。此类技术进步将允许我们实验实现组合脉冲调控效果和量子优化控制理论^[9] 的一一对应, 大幅度提高实验优化的效率 (章节5.6), 更加迅速的实现 $f \sim 99\%$ 级高保真量子门操控。

在脉冲最大延时上, 我们的皮秒组合脉冲生成技术受限于光栅 (第一代) 和阶梯反射镜 (第二代) 长度, 目前最大延时在 $\tau_{d,\max} \sim 200$ ps。这样的延时足够支持单次近完美原子态操控。然而在原子光谱等测量应用中, 例如面向高精度“超级 Ramsey”光谱技术^[22-24], 需要将延时增加到纳秒以上。大延时脉冲的产生一方面可以运用光梳技术^[181]。另一方面, 大延时也可以简单的通过引入多个光栅 (阶梯反射镜) 模块, 由 4-F 系统精确成像构成。其光学相位可以由辅助连续光监控^[121-122] 并锁定于原子谱线。我们预期对这样的长延时组合脉冲序列进行类似图 4.12 的相位扫描即可直接用于精密原子光谱测量。

皮秒脉冲序列生成技术的提升将允许我们全面提高对冷 (热) 原子强光学跃迁的量子调控能力。如章节4.3论述, $N = 5$ 级别的皮秒组合脉冲将允许高达 $f > 99\%$ 保真度的量子操控对 $\pm 50\%$ 的光强和偏振涨落容错。这样的原子电偶极运动精密和全面操控能力将是“史无前例”的。首先, 如章节1.1.1所述, 一大类微波和亚稳态组合脉冲光谱技术^[23-24] 可被运用于实现高效原子光谱测量, 可

能在单原子光谱^[3]，纳米光学界面原子光谱^[14,147-148,162-163]等应用中发挥重要作用。而对原子外态的动量传递可被用于在离子阱中实现“超快”量子门^[8]，并在自由空间超冷晶格中通过光偶极集体辐射调控^[29,33]支持新兴超冷原子量子光学研究^[182-184]。

最后，在纳米光纤界面（第四章）方向，皮秒组合脉冲精密调控能力的全面运用必须与冷原子技术结合。为此，我们正在搭建纳米光纤-冷原子界面系统^[185]，计划在冷原子系综和近场光晶格^[154,158,186]中实现皮秒组合脉冲的原子态及光偶极精密操控。如章节4.3论述，在该纳米光纤-冷原子体系中，利用 $N = 5$ 的小功率皮秒组合脉冲就可以实现如图 4.4(b) 中特定区域的布居数 $f > 99\%$ 级精确翻转。这样“完美”翻转的连续运用可用于实现纳米光纤界面的光偶极自旋波几何相位调制^[29-30]，制备出几乎没有集体辐射的多原子光偶极激发^[187]，支持全新的纳米光学界面非线性量子光学研究^[136]。

参考文献

- [1] LAMB W E. Fine structure of the hydrogen atom[J]. *Science*, 1956, 123(3194): 439-442.
- [2] SANSONETTI C, SIMIEN C, GILLASPY J, et al. Absolute transition frequencies and quantum interference in a frequency comb based measurement of the Li-6, Li-7 D lines[J]. *Physical Review Letters*, 2011, 107:023001.
- [3] LU Z T, MUELLER P, DRAKE G W F, et al. Colloquium: Laser probing of neutron-rich nuclei in light atoms[J]. *Reviews of Modern Physics*, 2013, 85: 1383-1400.
- [4] BEYER A, MAISENBACHER L, MATVEEV A, et al. The Rydberg constant and proton size from atomic hydrogen[J]. *Science*, 2017, 358:79.
- [5] LI R, WU Y, RUI Y, et al. Absolute frequency measurement of Li 6 D lines with kHz-level uncertainty[J]. *Physical Review Letters*, 2020, 124:063002.
- [6] XIA T Y, SUN W W, EBSER S, et al. Atom-trap trace analysis of Ca/Ca down to the 10 level[J]. *Nature Physics*, 2023:1-5.
- [7] METCALF H J, STRATEN P. *Laser cooling and trapping*[M]. 1st ed. [S.l.]: Springer New York, NY, 1966.
- [8] HUSSAIN M I, HEINRICH D, GUEVARA-BERTSCH M, et al. Ultraviolet laser pulses with multigigahertz repetition rate and multiwatt average power for fast trapped-ion entanglement operations[J]. *Physical Review Applied*, 2021, 15: 024054.
- [9] GENOV G T, SCHRAFT D, HALFMANN T, et al. Correction of arbitrary field errors in population inversion of quantum systems by universal composite pulses [J]. *Physical Review Letters*, 2014, 113:043001.
- [10] LOW G H, YODER T J, CHUANG I L. Methodology of resonant equiangular composite quantum gates[J]. *Physical Review X*, 2016, 6:041067.
- [11] MA Y, HUANG X, WANG X, et al. Precise pulse shaping for quantum control of strong optical transitions[J]. *Optics Express*, 2020, 28(12):17171.
- [12] MA Y, LIU R, JI L, et al. Composite picosecond control of atomic state through a nanofiber interface[J]. *arXiv:2203.06716*, 2022:1-16.
- [13] PHILLIPS W D, METCALF H. Laser deceleration of an atomic beam[J]. *Physical Review Letters*, 1982, 48:596-599.
- [14] TORRALBO-CAMPO L, BRUCE G D, SMIRNE G, et al. Light-induced atomic desorption in a compact system for ultracold atoms[J]. *Scientific Reports*, 2015,

- 5:14729.
- [15] CHEN B, LONG J, XIE H, et al. Portable atomic gravimeter operating in noisy urban environments[J]. *Chinese Optics Letters*, 2020, 18:090201.
- [16] ZIRBEL J J, NI K K, OSPELKAUS S, et al. Collisional stability of fermionic feshbach molecules[J]. *Physical Review Letters*, 2008, 100:143201.
- [17] HUMMON M T, YEO M, STUHL B K, et al. 2D magneto-optical trapping of diatomic molecules[J]. *Physical Review Letters*, 2013, 110:143001.
- [18] ZHANG Y, ZENG Z, LIANG Q, et al. Doppler cooling of buffer-gas-cooled barium monofluoride molecules[J]. *Physical Review A*, 2022, 105:033307.
- [19] HEMMERLING B, CHAE E, RAVI A, et al. Laser slowing of caF molecules to near the capture velocity of a molecular mot[J]. *Journal of Physics B*, 2016, 49 (17):174001.
- [20] TRUPPE S, WILLIAMS H J, FITCH N J, et al. An intense, cold, velocity-controlled molecular beam by frequency-chirped laser slowing[J]. *New Journal of Physics*, 2017, 19(2):022001.
- [21] BARRY J F, SHUMAN E S, NORRGARD E B, et al. Laser radiation pressure slowing of a molecular beam[J]. *Physical Review Letters*, 2012, 108:103002.
- [22] RAMSEY N. Experiments with separated oscillatory fields and hydrogen masers [J]. *Science*, 1990, 248:1612-9.
- [23] YUDIN V, TAICHENACHEV A, OATES C, et al. Hyper-ramsey spectroscopy of optical clock transitions[J]. *Physical Review A*, 2010, 82:011804.
- [24] SANNER C, HUNTEMANN N, LANGE R, et al. Autobalanced Ramsey spectroscopy[J]. *Physical Review Letters*, 2018, 120(5):53602.
- [25] METCALF H. Colloquium : Strong optical forces on atoms in multifrequency light[J]. *Reviews of Modern Physics*, 2017, 89:041001.
- [26] FREEGARDE T, WALZ J, HAENSCH T. Confinement and manipulation of atoms using short laser pulses[J]. *Optics Communications*, 1995, 117:262-267.
- [27] MIAO X, WERTZ E, COHEN M G, et al. Strong optical forces from adiabatic rapid passage[J]. *Physical Review A*, 2007, 75:011402.
- [28] LONG X, YU S, JAYICH A, et al. Suppressed spontaneous emission for coherent momentum transfer[J]. *Physical Review Letters*, 2019, 123:033603.
- [29] HE Y, JI L, WANG Y, et al. Geometric control of collective spontaneous emission [J]. *Physical Review Letters*, 2020, 125:213602.
- [30] HE Y, JI L, WANG Y, et al. Atomic spin-wave control and spin-dependent

- kicks with shaped sub-nanosecond pulses[J]. *Physical Review Research*, 2020, 2:043418.
- [31] JAYICH A, VUTHA A, HUMMON M, et al. Continuous all-optical deceleration and single-photon cooling of molecular beams[J]. *Physical Review A*, 2014, 89: 023425.
- [32] SCULLY M O, ZUBAIRY M S. *Quantum optics*[M]. [S.l.]: Cambridge University, 2005.
- [33] SCULLY M O. Single photon subradiance : Quantum control of spontaneous emission and ultrafast readout[J]. *Physical Review Letters*, 2015, 115:243602.
- [34] HE Y, CAI Q, JI L, et al. Unraveling disorder-induced optical dephasing in an atomic ensemble[J]. *arXiv:2101.10779*, 2021:1-19.
- [35] LIU L, Lü D S, CHEN W B, et al. In-orbit operation of an atomic clock based on laser-cooled 87Rb atoms[J]. *Nature Communications*, 2018, 9:2760.
- [36] 沈元壤. 非线性光学原理[M]. 1 版. 北京: 科学出版社, 1987.
- [37] HOCHSTRASSER R M. Multidimensional ultrafast spectroscopy[J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 2007, 104(36):14189-14189.
- [38] REUTZEL M, LI A, WANG Z, et al. Coherent multidimensional photoelectron spectroscopy of ultrafast quasiparticle dressing by light[J]. *Nature Communications*, 2020, 11:2230.
- [39] CUNDIFF S T, YE J. Colloquium: Femtosecond optical frequency combs[J]. *Reviews of Modern Physics*, 2003, 75:325-342.
- [40] CINGOZ A, YOST D, ALLISON T, et al. Direct frequency comb spectroscopy in the extreme ultraviolet[J]. *Nature*, 2012, 482:68-71.
- [41] PICQUÉ N, HAENSCH T. Frequency comb spectroscopy[J]. *Nature Photonics*, 2019, 13:146-157.
- [42] HUANG S W, CIRMI G, MOSES J, et al. High-energy pulse synthesis with sub-cycle waveform control for strong-field physics[J]. *Nature Photonics*, 2011, 5:475.
- [43] YANG Y, MAINZ R, ROSSI G, et al. Strong-field coherent control of isolated attosecond pulse generation[J]. *Nature Communications*, 2021, 12:6641.
- [44] BERGMANN K, THEUER H, SHORE B W. Coherent population transfer among quantum states of atoms and molecules[J]. *Reviews of Modern Physics*, 1998, 70:1003-1025.
- [45] SHAPIRO M, BRUMER P. Coherent control of molecular dynamics[J]. *Reports*

- on Progress in Physics, 2003, 66(6):859.
- [46] KOTRU K, BUTTS D L, KINAST J M, et al. Large-area atom interferometry with frequency-swept Raman adiabatic passage[J]. Physical Review Letters, 2015, 115:103001.
- [47] ZHDANOVICH S, SHAPIRO E A, SHAPIRO M, et al. Population transfer between two quantum states by piecewise chirping of femtosecond pulses: Theory and experiment[J]. Physical Review Letters, 2008, 100:103004.
- [48] JO H, SONG Y, AHN J. Qubit leakage suppression by ultrafast composite pulses [J]. Optics Express, 2019, 27(4):3944-3951.
- [49] ZHU S L, WANG Z D. Implementation of universal quantum gates based on nonadiabatic geometric phases[J]. Physical Review Letters, 2002, 89:097902.
- [50] WIMPERIS S. Broadband, narrowband, and passband composite pulses for use in advanced NMR experiments[J]. Journal of Magnetic Resonance, Series A, 1994, 109(2):221-231.
- [51] LEVITT M H, FREEMAN R. Composite pulse decoupling[J]. Journal of Magnetic Resonance, 1981, 43(3):502-507.
- [52] LEVITT M H. Composite pulses[J]. Progress in Nuclear Magnetic Resonance Spectroscopy, 1986, 18(2):61-122.
- [53] RAHMAN A. Nuclear magnetic resonance[M]. 1st ed. [S.l.]: Springer New York, NY, 1986.
- [54] LOW G H, YODER T J, CHUANG I L. Optimal arbitrarily accurate composite pulse sequences[J]. Physical Review A, 2014, 89:022341.
- [55] ICHIKAWA T, BANDO M, KONDO Y, et al. Geometric aspects of composite pulses[J]. Philosophical Transactions of the Royal Society A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences, 2012, 370(1976):4671-4689.
- [56] TOROSOV B T, VITANOV N V. Smooth composite pulses for high-fidelity quantum information processing[J]. Physical Review A, 2011, 83:053420.
- [57] CUMMINS H K, LLEWELLYN G, JONES J A. Tackling systematic errors in quantum logic gates with composite rotations[J]. Physical Review A, 2003, 67: 042308.
- [58] VANDERSYPEN L M K, CHUANG I L. NMR techniques for quantum control and computation[J]. Reviews of Modern Physics, 2005, 76:1037-1069.
- [59] COLLIN E, ITHIER G, AASSIME A, et al. NMR-like control of a quantum bit superconducting circuit[J]. Physical Review Letters, 2004, 93:157005.

- [60] SCHMIDT-KALER F, HAEFFNER H, RIEBE M, et al. Realization of the Cirac-Zoller controlled-NOT quantum gate[J]. *Nature*, 2003, 422:408-11.
- [61] GULDE S, RIEBE M, LANCASTER G, et al. Implementation of the deutsch-jozsa algorithm on an ion-trap quantum computer[J]. *Nature*, 2003, 421:48-50.
- [62] DUNNING A, GREGORY R, BATEMAN J, et al. Composite pulses for interferometry in a thermal cold atom cloud[J]. *Physical Review A*, 2014, 90:033608.
- [63] SAYWELL J C, KUPROV I, GOODWIN D, et al. Optimal control of mirror pulses for cold-atom interferometry[J]. *Physical Review A*, 2018, 98:023625.
- [64] DIMOVA E S, COMPARAT D, POPKIROV G S, et al. Efficient broadband composite optical isolator[J]. *Applied Optics*, 2013, 52(35):8528-8531.
- [65] LIU R, MA Y, JI L, et al. Composite acousto-optical modulation[J]. *Opt. Express*, 2022, 30(15):27780-27793.
- [66] BULMER J, JONES J, WALMSLEY I. Drive-noise tolerant optical switching inspired by composite pulses.[J]. *Optics Express*, 2020, 28 6:8646-8657.
- [67] MIZRAHI J, SENKO C, NEYENHUIS B, et al. Ultrafast spin-motion entanglement and interferometry with a single atom[J]. *Physical Review Letters*, 2013, 110:203001.
- [68] AHARONOV Y, ANANDAN J. Phase change during a cyclic quantum evolution [J]. *Physical Review Letters*, 1987, 58:1593-1596.
- [69] KATO T. On the adiabatic theorem of quantum mechanics[J]. *Journal of the Physical Society of Japan*, 1950, 5(6):435-439.
- [70] CHEN X, RUSCHHAUPT A, SCHMIDT S, et al. Fast optimal frictionless atom cooling in harmonic traps: Shortcut to adiabaticity[J]. *Physical Review Letters*, 2010, 104:063002.
- [71] MALINOVSKY V, KRAUSE J. General theory of population transfer by adiabatic rapid passage with intense, chirped laser pulses[J]. *The European Physical Journal D*, 2001, 14:147-155.
- [72] LU T, MIAO X, METCALF H. Nonadiabatic transitions in finite-time adiabatic rapid passage[J]. *Physical Review A*, 2007, 75:063422.
- [73] SHAPIRO E A, MILNER V, MENZEL-JONES C, et al. Piecewise adiabatic passage with a series of femtosecond pulses[J]. *Physical Review Letters*, 2007, 99:033002.
- [74] SHAPIRO E A, MILNER V, SHAPIRO M. Complete transfer of populations from a single state to a preselected superposition of states using piecewise

- adiabatic passage: Theory[J]. *Physical Review A*, 2009, 79:023422.
- [75] MAGESAN E, GAMBETTA J M, EMERSON J. Characterizing quantum gates via randomized benchmarking[J]. *Physical Review A*, 2012, 85:042311.
- [76] NIELSEN M A, CHUANG I L. *Quantum computation and quantum information: 10th anniversary edition*[M]. [S.l.]: Cambridge University Press, 2010.
- [77] SU Q D, BRUINSMA R, CAMPBELL W C. Quantum gates robust to secular amplitude drifts[J]. *Physical Review A*, 2021, 104:052625.
- [78] GRIFFITHS D J, SCHROETER D F. *Introduction to quantum mechanics*[M]. 3rd ed. [S.l.]: Cambridge University Press, 2018.
- [79] CAMPBELL W C, MIZRAHI J, QURAIISHI Q, et al. Ultrafast gates for single atomic qubits[J]. *Physical Review Letters*, 2010, 105:090502.
- [80] QIU L, JI L, HU J, et al. Precise spinor matterwave control with nanosecond adiabatic spin-dependent kicks[J]. *PRX Quantum*, 2022, 3:040301.
- [81] HAPPER W. Optical Pumping[J]. *Reviews of Modern Physics*, 1972, 44(2): 169-249.
- [82] WEISSKOPF V, WIGNER E. Berechnung der natürlichen linienbreite auf grund der Diracschen lichttheorie[J]. *Zeitschrift für Physik*, 1930, 63:54-73.
- [83] DALIBARD J, CASTIN Y, MOLMER K. Wave-function approach to dissipative processes in quantum optics[J]. *Physical Review Letters*, 1992, 68:580.
- [84] CARMICHAEL H J. *An open systems approach to quantum optics*[M]. [S.l.]: Springer Berlin, Heidelberg, 1993.
- [85] DUM R, PARKINS A S, ZOLLER P, et al. Monte Carlo simulation of master equations in quantum optics for vacuum, thermal, and squeezed reservoirs[J]. *Physical Review A*, 1992, 46(7):4382-4396.
- [86] WANG Y, KHOO I. On the Wigner-Weisskopf approximation in quantum optics [J]. *Optics Communications*, 1974, 11(4):323-326.
- [87] SWINEHART D F. The Beer-Lambert law[J]. *Journal of Chemical Education*, 1962, 39(7):333.
- [88] MCCLELLAND J, STEELE A, KNUFFMAN B, et al. Bright focused ion beam sources based on laser-cooled atoms[J]. *Applied Physics Reviews*, 2016, 3: 011302.
- [89] RAAB E, PRENTISS M, CABLE A, et al. Trapping of neutral sodium atoms with radiation pressure[J]. *Physical Review Letters*, 1987, 59:2631-2634.
- [90] DALIBARD J, COHEN-TANNOUDJI C. Laser cooling below the doppler limit

- by polarization gradients: Simple theoretical models[J]. *Journal of The Optical Society of America B*, 1989, 6:2023 - 2045.
- [91] GRIMM R, WEIDEMÜLLER M, OVCHINNIKOV Y. Optical dipole traps for neutral atoms[J]. *Advances in Atomic, Molecular, and Optical Physics*, 2000, 42:95.
- [92] JACOB D, MIMOUN E, SARLO L D, et al. Production of sodium bose-einstein condensates in an optical dimple trap[J]. *New Journal of Physics*, 2011, 13(6): 065022.
- [93] ANDERSON M, ENSHER J, MATTHEWS M, et al. Observation of bose-einstein condensation in a dilute atomic vapor[J]. *Science*, 1995, 269:198-201.
- [94] DONLEY E A, HEAVNER T P, LEVI F, et al. Double-pass acousto-optic modulator system[J]. *The Review of Scientific Instruments*, 2005, 76:063112.
- [95] MÜLLER H, CHIOW S W, HERRMANN S, et al. Nanosecond electro-optical switching with a repetition rate above 20 MHz[J]. *The Review of Scientific Instruments*, 2008, 78:124702.
- [96] HAUS H A. Mode-locking of lasers[J]. *IEEE Journal on Selected Topics in Quantum Electronics*, 2000, 6:1173.
- [97] DAVENPORT M, LIU S, BOWERS J. Integrated heterogeneous silicon/iii-v mode-locked lasers[J]. *Photonics Research*, 2018, 6:468.
- [98] BRISTOW A, KARAIKAIJ D, DAI X, et al. A versatile ultrastable platform for optical multidimensional fourier-transform spectroscopy[J]. *The Review of Scientific Instruments*, 2009, 80:073108.
- [99] MONMAYRANT A, WEBER S, CHATEL B. A newcomer's guide to ultrashort pulse shaping and characterization[J]. *Journal of Physics B*, 2010, 43(10): 103001.
- [100] SIDERS C, SIDERS J, TAYLOR A, et al. Efficient high-energy pulse-train generation using a 2 n-pulse Michelson interferometer[J]. *Applied optics*, 1998, 37:5302-5.
- [101] DROMEY B, ZEPF M, LANDREMAN M, et al. Generation of a train of ultrashort pulses from a compact birefringent crystal array[J]. *Applied optics*, 2007, 46:5142-6.
- [102] TEKAVEC P, LOTT G, MARCUS A. Fluorescence-detected two-dimensional electronic coherence spectroscopy by acousto-optic phase modulation[J]. *The Journal of chemical physics*, 2008, 127:214307.
- [103] BRISTOW A, KARAIKAIJ D, DAI X, et al. A versatile ultrastable platform

- for optical multidimensional fourier-transform spectroscopy[J]. *The Review of Scientific Instruments*, 2009, 80:073108.
- [104] FERMAN M, DA SILVA V, SMITH D, et al. Shaping of ultrashort optical pulses by using an integrated acousto-optic tunable filter[J]. *Optics Letters*, 1993, 18:1505.
- [105] TOURNOIS P. Acousto-optic programmable dispersive filter for adaptive compensation of group delay time dispersion in laser systems[J]. *Optics Communications*, 1997, 140(4):245-249.
- [106] FROEHLY C, COLOMBEAU B, VAMPOUILLE M. Li shaping and analysis of picosecond light pulses: volume 20[M]. [S.l.: s.n.], 1983: 63-153.
- [107] WEINER A. Femtosecond pulse shaping using spatial light modulators[J]. *The Review of Scientific Instruments*, 2000, 71:1929-1960.
- [108] STOBRAWA G, HACKER M, FEURER T, et al. A new high-resolution femtosecond pulse shaper[J]. *Applied Physics B*, 2001, 72:627-630.
- [109] SARDESAI H, CHANG C C, WEINER A. A femtosecond code-division multiple-access communication system test bed[J]. *Journal of Lightwave Technology*, 1998, 16:1953 - 1964.
- [110] MESHULACH D, SILBERBERG Y. Coherent quantum control of two-photon transitions by a femtosecond laser pulse[J]. *Nature*, 1998, 396:239-242.
- [111] DUDOVICH N, ORON D, SILBERBERG Y. Single-pulse coherently controlled nonlinear Raman spectroscopy and microscopy[J]. *Nature*, 2002, 418:512-4.
- [112] TIAN P, KEUSTERS D, SUZAKI Y, et al. Femtosecond phase-coherent two-dimensional spectroscopy[J]. *Science*, 2003, 300:1553-5.
- [113] SUSSMAN B, LAUSTEN R, STOLOW A. Focusing of light following a 4-f pulse shaper: Considerations for quantum control[J]. *Physical Review A*, 2008, 77:043416.
- [114] FREI F, GALLER A, FEURER T. Space-time coupling in femtosecond pulse shaping and its effects on coherent control[J]. *The Journal of Chemical Physics*, 2009, 130:034302.
- [115] JIANG Z, LEAIRD D, WEINER A. Line-by-line pulse shaping control for optical arbitrary waveform generation[J]. *Optics express*, 2006, 13:10431-9.
- [116] FERDOUS F, MIAO H, LEAIRD D, et al. Spectral line-by-line pulse shaping of on-chip microresonator frequency combs[J]. *Nature Photonics*, 2011, 5:770 - 776.
- [117] EMPLIT P, HAMAIDE J, REYNAUD F. Passive amplitude and phase

- picosecond pulse shaping[J]. *Optics Letters*, 1992, 17:1358.
- [118] LEAIRD D, WEINER A. Femtosecond optical packet generation by a direct space-to-time pulse shaper[J]. *Optics Letters*, 1999, 24:853-5.
- [119] MENDOZA-YERO O, MÍNGUEZ-VEGA G, LANCIS J, et al. Diffractive pulse shaper for arbitrary waveform generation[J]. *Optics Letters*, 2010, 35:535-7.
- [120] MANSURYAN T, KALASHYAN M, LHERMITE J, et al. Compact direct space-to-time pulse shaping with a phase-only spatial light modulator[J]. *Optics Letters*, 2011, 36:1635-7.
- [121] 吴赛骏, 马昱迪, 黄幸. 基于多频声光调制及光栅衍射的光脉冲调控方法和系统[P]. 2021.
- [122] WU S, MA Y, HUANG X. Optical pulse shaping method and system based on multi-frequency acoustic-optic deflection and retro-diffraction based multi-delay generation[P]. 2021.
- [123] HAWTHORN C, WEBER K, SCHOLTEN R. Littrow configuration tunable external cavity diode laser with fixed direction output beam[J]. *The Review of Scientific Instruments*, 2001, 72:4477-4479.
- [124] LAZARIDIS P, DEBARGE G, GALLION P. Time-bandwidth product of chirped sech² pulses : application to phase- amplitude- factor measurement[J]. *Optics Letters*, 1995, 20:1160-62.
- [125] AKEMANN W, LÉGER J F, VENTALON C, et al. Fast spatial beam shaping by acousto-optic diffraction for 3d non-linear microscopy[J]. *Optics Express*, 2015, 23:28191.
- [126] 吴赛骏, 马昱迪, 刘瑞娟, 等. 基于多重 4F 成像的高带宽复合声光调制方法 [P]. 2021.
- [127] 吴赛骏, 刘瑞娟, 马昱迪, 等. 基于双路声光干涉的激光脉冲重频超高速分频方法[P]. 2022.
- [128] WHITE J, SCHOLTEN R. Compact diffraction grating laser wavemeter with sub-picometer accuracy and picowatt sensitivity using a webcam imaging sensor [J]. *The Review of Scientific Instruments*, 2012, 83:113104.
- [129] XINAN G, LAMBSDORFF M, KUHL J, et al. Fastscanning autocorrelator with 1 ns scanning range for characterization of modelocked ion lasers[J]. *The Review of Scientific Instruments*, 1988, 59:2088 - 2090.
- [130] STECK D A. Rubidium 87 d line data[J]. available online at <http://steck.us/alkalidata> (revision 2.1.5, 13 January 2015).
- [131] WILLIAM HAPPER T W, Yuan-Yu Jau. Optical pumping of atoms[M/OL].

- 2010: 49-71. <https://onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1002/9783527629503.ch5>.
- [132] PIATKOWSKI L, HULST N F V. Ultrafast Meets Ultrasmall: Controlling Nanoantennas and Molecules[J]. *ACS Photonics*, 2016, 3:1401.
- [133] WU H, LIU Y, XU P, et al. Photonic nanolaser with extreme optical field confinement[J]. *Physical Review Letters*, 2022, 129:013902.
- [134] AOKI T, PARKINS A, ALTON D, et al. Efficient routing of single photons by one atom and a microtoroidal cavity[J]. *Physical Review Letters*, 2009, 102:083601.
- [135] CHANG D, VULETIC V, LUKIN M. Quantum nonlinear optics - photon by photon[J]. *Nature Photonics*, 2014, 8:685-694.
- [136] CHANG D E, DOUGLAS J S, GONZÁLEZ-TUDELA A, et al. Colloquium : Quantum matter built from nanoscopic lattices of atoms and photons[J]. *Reviews of Modern Physics*, 2018, 90:31002.
- [137] SOLANO P, FATEMI F K, OROZCO L A, et al. Super-radiance reveals infinite-range dipole interactions through a nano fiber[J]. *Nature Communications*, 2019, 8:1857.
- [138] CORZO N V, RASKOP J, CHANDRA A, et al. Waveguide-coupled single collective excitation of atomic arrays[J]. *Nature*, 2019, 566(7744):359-362.
- [139] PENNETTA R, BLAHA M, JOHNSON A, et al. Collective radiative dynamics of an ensemble of cold atoms coupled to an optical waveguide[J]. *Physical Review Letters*, 2022, 128(7):73601.
- [140] SPILLANE S M, PATI G S, SALIT K, et al. Observation of nonlinear optical interactions of ultralow levels of light in a tapered optical nanofiber embedded in a hot rubidium vapor[J]. *Physical Review Letters*, 2008, 100:233602.
- [141] HENDRICKSON S M, LAI M M, PITTMAN T B, et al. Observation of two-photon absorption at low power levels using tapered optical fibers in rubidium vapor[J]. *Physical Review Letters*, 2010, 105:173602.
- [142] VENKATARAMAN V, SAHA K, LONDERO P, et al. Few-photon all-optical modulation in a photonic band-gap fiber[J]. *Physical Review Letters*, 2011, 107:193902.
- [143] FINKELSTEIN R, WINER G, KOPLOVICH D Z, et al. Super-extended nanofiber-guided field for coherent interaction with hot atoms[J]. *Optica*, 2021, 8(2):208.
- [144] ALMOG I, LOEWENTHAL G, COSLOVSKY J, et al. Dynamic decoupling in

- the presence of colored control noise[J]. *Physical Review A*, 2013, 94:042317.
- [145] YUGE T, SASAKI S, HIRAYAMA Y. Measurement of the noise spectrum using a multiple-pulse sequence[J]. *Physical Review Letters*, 2011, 107:170504.
- [146] FUCHS S, BENNETT R, KREMS R V, et al. Nonadditivity of Optical and Casimir-Polder Potentials[J]. *Physical Review Letters*, 2018, 121(8):83603.
- [147] PATTERSON B, SOLANO P, JULIENNE P, et al. Spectral asymmetry of atoms in the Van der Waals potential of an optical nanofiber[J]. *Physical Review A*, 2018, 97:032509.
- [148] SOLANO P, GROVER J A, XU Y, et al. Alignment-dependent decay rate of an atomic dipole near an optical nanofiber[J]. *Physical Review A*, 2019, 99:013822.
- [149] PEYROT T, ŠIBALIĆ N, SORTAIS Y R, et al. Measurement of the atom-surface Van der Waals interaction by transmission spectroscopy in a wedged nanocell[J]. *Physical Review A*, 2019, 100(2):022503.
- [150] HÜMMER D, ROMERO-ISART O, RAUSCHENBEUTEL A, et al. Probing Surface-Bound Atoms with Quantum Nanophotonics[J]. *Physical Review Letters*, 2021, 126:163601.
- [151] WARD J M, MAIMAITI A, LE V H, et al. Contributed review: Optical micro- and nanofiber pulling rig[J]. *The Review of Scientific Instruments*, 2014, 85(11): 111501.
- [152] HOFFMAN J, RAVETS S, GROVER J, et al. Ultrahigh transmission optical nanofibers[J]. *AIP Advances*, 2014, 4:067124.
- [153] TONG L, MICHAEL S. Subwavelength and nanometer diameter optical fibers [M]. 1st ed. [S.l.]: Springer Berlin, Heidelberg, 1995.
- [154] SU D, LIU R, JI Z, et al. Observation of ladder-type electromagnetically induced transparency with atomic optical lattices near a nanofiber[J]. *New Journal of Physics*, 2019, 21:043053.
- [155] SOLANO P, GROVER J, HOFFMAN J, et al. Optical nanofibers: A new platform for quantum optics[J]. *Advances In Atomic, Molecular, and Optical Physics*, 2017, 66:439-505.
- [156] TONG L, MAZUR E. Single-mode guiding properties of subwavelength-diameter silica and silicon wire waveguides[J]. *Optics Express*, 2004, 12:2905.
- [157] SNYDER A W, LOVE J D. Waveguides with exact solutions[M]. Boston, MA: Springer US, 1983: 238-279.
- [158] VETSCH E, DAWKINS S T, MITSCH R, et al. Nanofiber-based optical trapping of cold neutral atoms[J]. *IEEE Journal on Selected Topics in Quantum*

- Electronics, 2012, 18(6):1763-1770.
- [159] SU D, LIU R, ZHANG C, et al. Laser frequency stabilization in sub-nanowatt level using nanofibers[J]. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 2018, 51: 465001.
- [160] ABRAHAM E R, CORNELL E A. Teflon feedthrough for coupling optical fibers into ultrahigh vacuum systems[J]. *Applied Optics*, 1998, 37(10):1762-1763.
- [161] LODAHL P, MAHMOODIAN S, STOBBE S, et al. Review Chiral quantum optics[J]. *Nature*, 2017, 541:473.
- [162] PEYROT T, SORTAIS Y R, GREFFET J J, et al. Optical transmission of an atomic vapor in the mesoscopic regime[J]. *Physical Review Letters*, 2019, 122: 113401.
- [163] SOLANO P, GROVER J, XU Y, et al. Alignment-dependent decay rate of an atomic dipole near an optical nanofiber[J]. *Physical Review A*, 2019, 99:013822.
- [164] GOSWAMI D. Optical pulse shaping approaches to coherent control[J]. *Physics Report*, 2003, 374:385.
- [165] WOLLENHAUPT M, BAUMERT T. Ultrafast laser control of electron dynamics in atoms , molecules and solids[J]. *Faraday Discuss.*, 2011, 153:9-26.
- [166] KELLY J, BARENDS R, CAMPBELL B, et al. Optimal quantum control using randomized benchmarking[J]. *Physical Review Letters*, 2014, 112:240504.
- [167] ROSLUND J. Gradient algorithm applied to laboratory quantum control[J]. *Physical Review A*, 2009, 79:053417.
- [168] FRAZIER P. A tutorial on Bayesian optimization[J]. arXiv:1807.02811, 2018: 1-22.
- [169] RASMUSSEN C E, WILLIAMS C K I. Gaussian processes for machine learning [M]. [S.l.]: The MIT Press, 2005.
- [170] BULL A D. Convergence rates of efficient global optimization algorithms[J]. arXiv:1807.02811, 2011:1-30.
- [171] BULL A D. Practical Bayesian optimization of machine learning algorithms[J]. arXiv:1206.2944, 2012:1-9.
- [172] SEEGER M. Gaussian processes for machine learning[J]. *International journal of neural systems*, 2004, 14:69-106.
- [173] SAUVAGE F, MINTERT F. Optimal quantum control with poor statistics[J]. *PRX Quantum*, 2020, 1:020322.
- [174] SELF C, KHOSLA K, SMITH A, et al. Variational quantum algorithm with

- information sharing[J]. *npj Quantum Information*, 2021, 7:116.
- [175] MUKHERJEE R, SAUVAGE F, XIE H, et al. Preparation of ordered states in ultra-cold gases using Bayesian optimization[J]. *New Journal of Physics*, 2020, 22:075001.
- [176] WIGLEY P, EVERITT P, HENGEL A, et al. Fast machine-learning online optimization of ultra-cold-atom experiments[J]. *Scientific Reports*, 2015, 6: 25890.
- [177] GPYOPT. Gpyopt: A Bayesian optimization framework in Python[EB/OL]. 2016. <http://github.com/SheffieldML/GPyOpt>.
- [178] ROGERS C E, GOULD P L. Nanosecond pulse shaping at 780 nm with fiber-based electro-optical modulators and a double-pass tapered amplifier[J]. *Optics Express*, 2016, 24(3):2596-2606.
- [179] FERIOLI G, GLICENSTEIN A, HENRIET L, et al. Storage and release of subradiant excitations in a dense atomic cloud[J]. *Physical Review X*, 2021, 11:021031.
- [180] SHIRASAKI M. Virtually imaged phased array[J]. *Fujitsu Scientific & Technical Journal*, 1999, 35:113-125.
- [181] HÄNSCH T W. Nobel lecture: Passion for precision[J]. *Reviews of Modern Physics*, 2006, 78:1297-1309.
- [182] RUI J, WEI D, RUBIO-ABADAL A, et al. A subradiant optical mirror formed by a single structured atomic layer[J]. *Nature*, 2020, 583:369-374.
- [183] BEKENSTEIN R, PIKOVSKI I, PICHLER H, et al. Quantum metasurfaces with atom arrays[J]. *Nature Physics*, 2020, 16:1-6.
- [184] SOLNTSEV A, AGARWAL G, KIVSHAR Y. Metasurfaces for quantum photonics[J]. *Nature Photonics*, 2021, 15:1-10.
- [185] TIECKE T, GENSEMER S, LUDEWIG A, et al. High-flux two-dimensional magneto-optical-trap source for cold lithium atoms[J]. *Physical Review A*, 2009, 80:013409.
- [186] VETSCH E, REITZ D, SAGUÉ G, et al. Optical interface created by laser-cooled atoms trapped in the evanescent field surrounding an optical nanofiber[J]. *Physical Review Letters*, 2010, 104:203603.
- [187] ASENJO-GARCIA A, MORENO-CARDONER M, ALBRECHT A, et al. Exponential improvement in photon storage fidelities using subradiance and “selective radiance” in atomic arrays[J]. *Physical Review X*, 2017, 7:031024.

攻读学位期间研究成果

论文工作

1. "Precise pulse shaping for quantum control of strong optical transitions," **Y. Ma**, X. Huang, X. Wang, L. Ji, Y. He, L. Qiu, J. Zhao, Y. Wang, and Saijun Wu, *Opt. Express* **28**, 17171 (2020).
2. "Composite picosecond control of atomic state through a nanofiber interface," **Y. Ma**, R. Liu, L. Ji, L. Qiu, S. Wu, D. Su, Y. Zhao, N. Yao, and W. Fang, arXiv 2203.06716 (2022), (submitted to *Phys. Rev. Applied*).
3. "Composite acousto-optical modulation," R. Liu, **Y. Ma**, L. Ji, L. Qiu, M. Ji, Z. Tao, and S. Wu, *Opt. Express* **30**, 27780 (2022).
4. "Geometric Control of Collective Spontaneous Emission," Y. He, L. Ji, Y. Wang, L. Qiu, J. Zhao, **Y. Ma**, X. Huang, S. Wu, and D. E. Chang, *Phys. Rev. Lett.* **125**, 213602 (2020).
5. "Atomic spin-wave control and spin-dependent kicks with shaped subnanosecond pulses," Y. He, L. Ji, Y. Wang, L. Qiu, J. Zhao, **Y. Ma**, X. Huang, S. Wu, and D. E. Chang, *Phys. Rev. Research* **2**, 043418 (2020).
6. "Imaging moving atoms by holographically reconstructing the dragged slow light," Y. Wang, J. Zhao, X. Huang, L. Qiu, L. Ji, **Y. Ma**, Y. He, J. P. Sobol, and S. Wu, *Phys. Rev. Applied* **18**, 014065 (2022).

专利工作

1. “基于多频声光调制及光栅衍射的光脉冲调控方法和系统,” 吴赛骏, 马昱迪, 黄幸, CN111123560B (2021).
2. “基于多重 4F 成像的高带宽复合声光调制方法,” 吴赛骏, 马昱迪, 刘瑞娟, 裘李阳, CN113777811A (2021).
3. “基于双路声光干涉的激光脉冲重频超高速分频方法,” 吴赛骏, 刘瑞娟, 马昱迪, 季灵晶, CN113725714B (2022).
4. "Optical pulse shaping method and system based on multi-frequency acoustic-optic deflection and retro-diffraction based multi-delay generation," S. Wu, **Y. Ma**, X. Huang, US20210199998A1 (2021).

致 谢

光阴荏苒，白驹过隙，转眼间，我来到复旦大学已经九年了，而五年的博士生涯也即将结束。从邯郸路到新江湾城，我见证了复旦物理系的搬迁，也见证了自己的成长。回首这五年，尽管充满了艰辛与坎坷，但我也收获了知识和克服困难的勇气。在此，我要感谢这期间陪伴我的人，我在这一路上的收获离不开你们的帮助。

首先我要特别感谢吴赛骏教授多年来无微不至的悉心指导。还记得我认识吴老师是在本科期间的一次班委活动，通过抽签的方式，吴老师成为了我当时的“寝室导师”。正是这样的“机缘”，我第一次接触到了冷原子光学实验室，从此被深深的吸引。吴老师具有深厚的理论基础以及丰富的实验经验，并极富开创性的思想。而令我印象最深刻的，是吴老师喜欢在实验室和我们一起做实验，在遇到困惑时和我们讨论问题原因，在遇到挫折时对我们进行鼓励，而在看到有趣的现象时也和我们一起分享喜悦。在这样不断的思考、相互交流、动手实践中，我从吴老师身上不仅学到了大量专业知识，更学到了分析和解决问题的方法。我十分感激能够遇到吴老师这样出色又亲切的导师。

感谢所有我们课题组的同学，我的博士工作也离不开你们的帮助。实验室的老学长赵健和王玉琢博士在我刚进入实验室时，就指导了我最初的光路搭建。细致到一个反射镜的调节技巧，这是在这样的两位学长的细心与耐心的帮助下，我建立了重要的光学实验基础。何亦尊、裘李阳和季灵晶学长具有丰富的数理知识，在许多物理图像的讨论中给予了我极大的启发。同时，几位学长也教会了我很多代码编写相关的知识，而他们编写的各种程序算法，在我博士工作的模拟和理论部分中发挥了巨大作用。组内的黄幸同学同时还是我的室友，我们不仅在实验中讨论问题，还常常在宿舍里交流学习心得。而在生活上黄幸也常常帮助我、鼓励我，和我分享有趣的见闻，是我不可多得的挚友。刘瑞娟同学在纳米光纤的相关工作上具有大量的知识和经验。我的博士工作能够在纳米光纤界面中实现，完全离不开她的指导。胡江勇同学具有丰富的冷原子实验经验，在我与冷原子相关的工作中也给予了我极大的帮助。最后我们还要感谢李一鸣、赵宇翔和邬京谷这几位学弟，在许多光路的搭建和相关问题的讨论中，他们都给予了我很大的启发。李一鸣学弟还帮助我编写了脉冲光谱的拟合程序，也是我博士工作的一个重要组成部分。在此，我再次感谢各位课题组的同学，也祝愿各位今后的科研生活都能多姿多彩。

最后，我要特别感谢我的父母。他们给予了我充分的自由和空间，让我在博士工作期间可以没有后顾之忧。同时他们也给予了我精神上的莫大鼓励，让我拥

有了克服困难的勇气和信心。感谢父母对我的养育之恩，我为拥有这样的父母感到骄傲。

我的博士生涯即将落幕，接下来将要开启一段新的旅程。在此，我也衷心祝愿所有帮助和关心过我的人，今后的路程能够一帆风顺。

马昱迪
2023年05月
于复旦大学

复旦大学

学位论文独创性声明

本人郑重声明：所呈交的学位论文，是本人在导师的指导下，独立进行研究工作所取得的成果。论文中除特别标注的内容外，不包含任何其他个人或机构已经发表或撰写过的研究成果。对本研究做出重要贡献的个人和集体，均已在论文中作了明确的声明并表示了谢意。本声明的法律结果由本人承担。

作者签名： 马昱迪 日期： 2023年5月20日

复旦大学

学位论文使用授权声明

本人完全了解复旦大学有关收藏和利用博士、硕士学位论文的规定，即：学校有权收藏、使用并向国家有关部门或机构送交论文的印刷本和电子版本；允许论文被查阅和借阅；学校可以公布论文的全部或部分内容，可以采用影印、缩印或其它复制手段保存论文。涉密学位论文在解密后遵守此规定。

作者签名： 马昱迪 导师签名： 吴寰宇 日期： 2023年5月20日