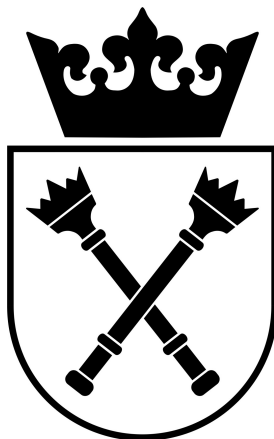


UNIwersYTET JAGIELLOŃSKI
WYDZIAŁ FIZYKI ASTRONOMII I INFORMATYKI STOSOWANEJ
ZAKŁAD FOTONIKI



Rekonstrukcja i inżynieria stanów
kwantowych atomów par pierwiastków
alkalicznych

Rozprawa doktorska

Marek Kopciuch

Promotor:

prof. dr hab. Szymon Pustelny

Kraków, 2024

Zakład Fotoniki
Uniwersytet Jagielloński

Deklaracja

Ja, niżej podpisany, Marek Kopciuch (nr indeksu: 1114873), doktorant Wydziału Fizyki, Astronomii i Informatyki Stosowanej Uniwersytetu Jagiellońskiego oświadczam, że przedłożona przeze mnie rozprawa doktorska pt. „Rekonstrukcja i inżynieria stanów kwantowych atomów par pierwiastków alkalicznych” jest oryginalna i przedstawia wyniki badań wykonanych przeze mnie osobiście, pod kierunkiem prof. dr. hab. Szymona Pustelnego. Pracę napisałem samodzielnie. Oświadczam, że moja rozprawa doktorska została opracowana zgodnie z Ustawą o prawie autorskim i prawach pokrewnych z dnia 4 lutego 1994 r. (Dziennik Ustaw 1994 nr 24 poz. 83 wraz z późniejszymi zmianami). Jestem świadomy, że niezgodność niniejszego oświadczenia z prawdą ujawniona w dowolnym czasie, niezależnie od skutków prawnych wynikających z ww. ustawy, może spowodować unieważnienie stopnia nabytego na podstawie tej rozprawy.

.....
Miejscowość i data

.....
Podpis

Streszczenie

Niniejsza rozprawa podejmuje problem wykorzystania par atomowych pierwiastków metali alkalicznych, w szczególności zaś par rubidu-87, umieszczonych w temperaturze zbliżonej do temperatury pokojowej wewnątrz komórek szklanych z parafinowym pokryciem ścian, do badań z zakresu informacji i metrologii kwantowej. Celem pracy jest rozwój metod manipulacji i rekonstrukcji stanów kwantowych w takich ośrodkach, co otwiera pole dla wielu ciekawych zastosowań. Jedno z takich zastosowań metrologicznych zostało przedstawione w pracy.

Na treść pracy składa się kilka niezależnych, jednak powiązanych ze sobą części. Pierwszą z nich jest teoretyczny opis oraz eksperymentalna weryfikacja, opracowanego przez doktoranta, algorytmu rekonstrukcji stanów kwantowych atomów. Przedstawiona metoda opiera się o pomiary skręcenia płaszczyzny polaryzacji światła przechodzącego przez ośrodek, którego stan kwantowych chcemy zidentyfikować. W porównaniu do znanych wcześniej metod tomograficznych, metoda ta cechuje się możliwością badań w reżimie bliskich odstrojeń światła, co pozwala na badanie efektów, które nie mogły być wcześniej analizowane. Przeprowadzone w ramach pracy analizy teoretyczne pozwoliły na wyprowadzenie związku pomiędzy poszczególnymi elementami macierzy gęstości opisującymi stany kwantowe atomów stanowiących ośrodek, a określonymi składowymi spektralnymi rejestrowanych sygnałów skręcenia płaszczyzny polaryzacji światła, przechodzącego przez ośrodek umieszczony w zewnętrznym polu magnetycznym. Dzięki temu możliwe stała się rekonstrukcja całego stanu kwantowego układu.

Opracowana teoretycznie technika została następnie zweryfikowana doświadczalnie. W ramach badań eksperymentalnych, zademonstrowano możliwość rekonstrukcji stanu podstawowego o całkowitym momencie pędu $f = 1$ demonstrując wysoką wierność przeprowadzonej rekonstrukcji. Prace doświadczalne pozwoliły również zademonstrować bardzo wysoką odpornością tej techniki na zaburzenia zewnętrzne, w tym szum pomiaru oraz niedokładności pola magnetycznego. Ten ostatni element jest niezmiernie istotny z punktu widzenia praktycznych implementacji tej metody.

Niezależnym elementem prac nad tomografią stanu kwantowego było opracowanie nowej metody przygotowania stanu kwantowego. Metoda ta pozwoliła na całkowite wypompowanie atomów z jednego ze poziomów nadsubtelnych stanu podstawowego atomów, przy jednoczesnym zapewnieniu, że żadna część populacji nie została spułapkowana w stanie ciemnym. Rozwiązanie to pozwoliło m.in. na optymalizację procesu manipulacji stanem kwantowym, w znaczący sposób zwiększając wierność prowadzonych operacji, co jest kluczowe z punktu widzenia informacji kwantowej.

Kolejną część niniejszej pracy stanowią badania doświadczalne nowo wyróżnionej klasy stanów kwantowych zwanej stanami idealnego kątomierza kwantowego. Jest to klasa stanów, które optymalizują pomiary obrotów kwantowo-mechanicznych. W ramach doktoratu zaimplementowany został stan kątomierza dla układu o spinie 1. Zostało to zrealizowane przy użyciu struktury energetycznej stanu podstawowego $f = 1$ rubidu-87. Implementacja doświadczalna została następnie zweryfikowana w oparciu o opisaną powyżej metodę tomografii kwantowej.

Dalsze badania doświadczalne, pozwoliły m.in. zweryfikować, że parametry wytwarzanych stanów rzeczywiście optymalizują precyzję pomiaru obrotów kwantowo-mechanicznych.

Ostatnią część pracy stanowią badania nad wykorzystania metody transferu adiabatycznego stanu kwantowego pomiędzy poziomami nadsubtelnymi rubidu-87. Teoretyczne analizy tego zagadnienia prowadzone były w rzeczywistej strukturze energetycznej ww. atomu, która zawiera szereg podpoziomów magnetycznych każdego z poziomów. Zrealizowane badania wykazały, że układ taki da się rozseparować na szereg trój- i czteropoziomowych podukładów, przy czym obecność dodatkowego - czwartego - poziomu energetycznego w stanie wzbudzonym może w sposób dramatyczny zmienić dynamikę transferu. W szczególności, jego obecność może spowodować załamanie się warunku adiabatyczności procesu, czego skutkiem jest brak transferu jakiegokolwiek populacji atomów między stanami kwantowymi. W ten sposób można m.in. kontrolować efektywność procesu transferu czy generować superpozycje stanów pomiędzy poziomami, które nie są bezpośrednio sprzęgane za pomocą światła. Odkrycie to otwiera zatem szereg bardzo ciekawych możliwości inżynierii stanów kwantowych, które nie były dotąd analizowane.

Opisane części, składają się na spójną całość pracy, która przedstawia badania autora prowadzone podczas jego doktoratu.

Abstract

This dissertation is focused on the utilization of warm atomic vapours of alkali metals for studies of the quantum information science and quantum metrology. A key figure are rubidium-87 vapours, in close to the room temperature, enclosed inside glass cells with paraffin-coated walls. The aim of this work is to develop methods for manipulating and reconstructing quantum states in such media, thereby opening the field to numerous intriguing applications. One of utilization in the context of the metrological applications is presented in this work.

The content of the dissertation comprises several independent, yet deeply connected parts. The first part involves the theoretical description and experimental verification of an algorithm for reconstructing the quantum states of atoms, developed by the doctoral candidate. The presented method is based on measurements of the rotation of the polarization plane of light passing through the medium whose quantum state we aim to identify. Compared to previously presented tomographic methods, this approach allows for measurements in the regime of near-resonant light detunings. Usage of such regime enable the study of effects that could not be analyzed before. Theoretical analyses conducted as part of this work have derived the relationship between the density matrix describing the quantum states of the atoms in the medium and the specific spectral components of the recorded signals of polarization rotation of the light when the medium is placed in an external magnetic field. This has enabled the reconstruction of the entire quantum state of the system.

The theoretically developed technique was subsequently experimentally verified. In the course of experimental studies, the feasibility of reconstructing the ground state with a total angular momentum of $f = 1$ was demonstrated, presenting high fidelity in the reconstruction process. Experimental work also demonstrated the high resilience of this technique to external disturbances, including measurement noise and the magnetic field inaccuracies, which is crucial for practical implementations of this method.

An independent element of the experimental research on quantum state tomography was the development of a new method for preparing the quantum state. This method allowed for the complete depopulation of one of the hyperfine levels of the ground state of atoms, while ensuring that no population was trapped in a dark state. This solution enabled, among other things, the optimization of the quantum state manipulation process, significantly increasing the fidelity of the conducted operations, which is critical from the perspective of quantum information science.

Another part of this work involves experimental studies of a newly distinguished class of quantum states called perfect quantum protractor states. These are states that optimize measurements of quantum mechanical rotations. During the doctoral studies, a protractor state was implemented for a system with spin 1. This was realized using the energy structure of the $f = 1$ ground state of rubidium-87. The experimental implementation was then verified using the previously described quantum tomography method. Experimental studies allowed, among other things, to verify that the generated states indeed optimize the precision of

quantum mechanical rotation measurements.

The final part of the dissertation involves studies on the adiabatic quantum state transfer between the hyperfine levels of rubidium-87. Analyses of this issue were conducted within the real energy structure of the atom, which includes several magnetic sublevels of each level. The research demonstrated that such a system can be separated into a series of three- and four-level subsystems, with the presence of an additional - fourth - energy level in the excited state dramatically changing the transfer dynamics. Specifically, its presence can cause the collapse of the adiabatic condition, and as a result deteriorating transfer of any atom population between quantum states. This discovery allows for controlling the efficiency of the transfer process or generating superpositions of states between levels that are not directly coupled by light. This finding opens up a range of very interesting possibilities for quantum state engineering that have not been analyzed so far.

The described sections form a coherent whole, presenting the author's research conducted during the doctoral studies.

Podziękowania

W pierwszej kolejności pragnę wyrazić wdzięczność mojemu promotorowi, prof. Szymonowi Pustelnemu. Szczególnie dziękuję za jego postawę pełną wyrozumiałości oraz pasji do nauki, która stanowiła inspirację i wzór do naśladowania oraz kształtowała mnie od samego początku mojej podróży z fizyką atomową.

Praca naukowa wymaga otwartego, szerszego spojrzenia niż jedynie na wąską dziedzinę wybranej specjalizacji. Na taki rozwój pozwoliło mi kilka wyjazdów naukowych do różnych ośrodków badawczych oraz poznanie niezwykłych ludzi, z którymi dyskusje pozwoliły mi poszerzyć horyzonty i zgłębić wiele interesujących i nowych dla mnie zagadnień, niekoniecznie ściśle związanych z przedstawionym tutaj projektem. W szczególności chciałbym podziękować prof. Morganowi Mitchellowi z ICFO za możliwość poznania „od kuchni” pracy jego grupy eksperymentalnej oraz za wyjaśnienie mi zagadnień ściskania spinowego. Dr. Jankowi Kołodyńskiemu z Centrum Nowych Technologii Uniwersytetu Warszawskiego, za wiele inspirujących godzin poświęconych na dyskusje dotyczące spektroskopii szumów oraz mechanizmu SERF. Prof. Adamowi Miranowiczowi z Uniwersytetu Adama Mickiewicza, za wiele godzin dyskusji, cierpliwość w tłumaczeniu oraz niewyczerpany zasób pomysłów, który pozwolił mi spojrzeć na badania nad tomografią stanów z zupełnie nowej i odświeżającej perspektywy.

Dziękuję również wszystkim koleżankom i kolegom, z którymi miałem okazję bezpośrednio pracować przy tym projekcie: Frankowi Jurasowi, Oli Sierant, Magdzie Smolis, Arashowi Dezhang Fard, Yujie Sun, za liczne wspólne chwile poświęcone zarówno na rozpacz nad niepowodzeniami, jak i na radości z sukcesów. Dziękuję również wszystkim obecnym oraz byłym członkom grupy za stworzenie niesamowitej atmosfery wymiany myśli, zarówno naukowych, jak i tych mniej formalnych. Szczególne podziękowania kieruję do tych, którzy przez lata byli fundamentem tej atmosfery, z którymi dzieliłem zarówno te najlepsze jak i te najdziwniejsze pomysły, za wszystkie rozwiązane problemy, wspólne wygłupy oraz za niezliczone litry wypitej kawy: Irenie Rodzoń, Zuzi Orzechowskiej, Michałowi Padniuk oraz Piotrkowi Putowi.

Chciałbym wyrazić najserdeczniejsze podziękowania moim najbliższym. Szczególnie moim rodzicom, którzy od najmłodszych lat kształtowali we mnie ciekawość świata oraz, co najważniejsze, zawsze byli dla mnie wzorem i niezawodnym wsparciem. Na koniec chciałbym podziękować mojej ukochanej żonie, Justynie, za każdą spędzoną razem chwilę, za kilometry wspólnych podróży i dziesiątki wspólnych projektów. Dziękuję za każdy dzielony uśmiech i za każdą wspólną łzę, jesteś moją inspiracją.

Prace autora

Wchodzące w skład rozprawy:

- [A] M. Kopciuch i S. Pustelny, „Optical reconstruction of the collective density matrix of a qutrit”, Phys. Rev. A **106**, 022406 (2022).
- [B] A. Sierant, M. Kopciuch i S. Pustelny, „Tailoring population transfer between two hyperfine ground states of ^{87}Rb ”, Phys. Rev. A **107**, 052810 (2023).
- [C] M. Kopciuch, M. Smolis, A. Miranowicz i S. Pustelny, „Optimized optical tomography of quantum states of a room-temperature alkali-metal vapor”, Phys. Rev. A **109**, 032402 (2024).
- [D] M. Piotrak, M. Kopciuch, A. D. Fard, M. Smolis, S. Pustelny i K. Korzekwa, „Perfect quantum protractors”, Quantum **8**, 1459 (2024).

Nie wchodzące w skład rozprawy:

- [E] M. Padniuk, M. Kopciuch, R. Cipelletti, A. Wickenbrock, D. Budker i S. Pustelny, „Response of atomic spin-based sensors to magnetic and nonmagnetic perturbations”, Scientific Reports **12**, 324 (2022).

Spis treści

Streszczenie	i
Podziękowania	v
Prace autora	vi
Wstęp	1
1 Pojedynczy atom w polu klasycznym	1
1.1 Struktura energetyczna atomów pierwiastków alkalicznych	1
1.2 Oddziaływanie atomów ze światłem	5
1.3 Wpływ atomów na światło	8
1.4 Oddziaływanie atomów z dwiema wiązkami światła	10
2 Pary atomowe w komórce z antyrelaksacyjnym pokryciem ścian	15
2.1 Opis kwantowy zespołu atomów	15
2.2 Poszerzenie dopplerowskie	17
2.3 Mechanizmy relaksacji polaryzacji atomowej	18
2.4 Modelowanie efektów w komórkach z pokryciem parafinowym	19
2.4.1 Modelowanie stanów stacjonarnych z wyróżnieniem obszaru wiązki laserowej	20
2.4.2 Modelowanie efektów transientowych oraz niejednorodności	25
2.4.3 Uwagi podsumowujące rozdział	26
3 Inżynieria i tomografia stanu kwantowego	28
3.1 Tomografia stanów kwantowych	28
3.1.1 Artykuł: Optical reconstruction of the collective density matrix of a qutrit	31
3.1.2 Stabilność rekonstrukcji stanów	45
3.1.3 Przygotowanie stanu początkowego	46
3.1.4 Artykuł: Optimized optical tomography of quantum states of a room-temperature alkali-metal vapor	50
3.2 Stany PQP czyli stany idealnego kłatomierza kwantowego	65
3.2.1 Artykuł: Perfect quantum protractors	66
3.3 Łamanie lokalnej adiabatyczności w procesie STIRAP	87
3.3.1 Artykuł: Tailoring population transfer between two hyperfine ground states of ^{87}Rb	88
Podsumowanie	98
Bibliografia	99

Wstęp

Celem niniejszej rozprawy jest omówienie badań przeprowadzonych przez autora w ramach realizacji doktoratu. Rozprawa ma formę wprowadzenia do cyklu artykułów opublikowanych w międzynarodowych czasopismach naukowych i wraz z tymi artykułami stanowi spójną całość. Uzupełnienie artykułów dodatkowym opisem pozwala na bardziej szczegółowe wyjaśnienie niektórych aspektów prowadzonych badań, które, ze względu na ograniczoną objętość artykułów, nie zostały dotąd szerzej omówione. Ma to pozwolić na pełniejsze zrozumienie zagadnień opisanych w prezentowanych artykułach.

Głównym „bohaterem” niniejszej rozprawy są „cieple” pary atomowe metali alkalicznych. Ciepłe pary atomowe, czyli pary atomowe w pokojowej lub nieco wyższej temperaturze, to ośrodek, który od ponad pół wieku cieszy się niesłabnącą popularnością w badaniach fizyki atomowej. Powodem tego jest niewątpliwa łatwość pracy z takimi ośrodkami, która w większości przypadków sprowadza się do wykorzystania szklanej komórki z zamkniętą w niej pod próżnią kroplą metalu alkalicznego. Dla kontrastu, wykorzystanie często bardziej kuszących ośrodków, takich jak zimne lub ultra-zimne gazy albo pułapowane jony, wymaga wyrafinowanych układów doświadczalnych, których budowa niejednokrotnie zajmuje wiele lat. Oczywiście jest, że prostota pracy z ciepłymi parami atomowymi ma swoją cenę, którą jest konieczność korzystania z opisu przy pomocy tzw. kolektywnych stanów kwantowych. Opis ten zakłada, że cała grupa atomów zachowuje się w identyczny sposób, co ma prowadzić do obserwacji określonego, uśrednionego zachowania układu. Choć założenie to może wydawać się dużym przybliżeniem, to, jak pokazano w ramach niniejszego doktoratu, ww. formalizm dobrze opisuje ciepłe pary atomowe. Sam formalizm jest zresztą szeroko wykorzystywany w wielu dziedzinach wykraczających poza fizykę atomową. Przykładowo, był on użyty w pierwszych pracach demonstrujących możliwość implementacji algorytmów kwantowych w magnetycznym rezonansie jądrowym w cieczach. Warto jednak zwrócić uwagę, że wykorzystanie rezonansu jądrowego w kwantowej teorii informacji ma pewne ograniczenia, a jednym z nich jest wykorzystanie tzw. stanów pseudoczystych. O stanach takich mówimy wtedy, kiedy pojawia się trudność całkowitego spolaryzowania ośrodka (w rezonansie magnetycznym polaryzacja jądrowa układu rzadko przekracza 10^{-5}), a same stany opisują tylko niewielki podsystem rozważanego układu. W tym kontekście ogromną przewagę mają pary atomowe, dla których możliwe jest wzbudzenie atomów przy pomocy dostępnych źródeł laserowych i użycie, opracowanej w połowie ubiegłego wieku przez Kastlera, metody pompowania optycznego. Pozwalają one na napompowanie układu w niemal 100%.

Korzystając z formalizmu kolektywnej macierzy gęstości, należy pamiętać, że dotyczy on efektów uśrednionych po wielu atomach. Choć zawęża to obszar możliwych badań, to jednak, zachowując pewną dozę ostrożności, pozwala na opis zachowania układów w szeregu zjawisk, w których „indywidualizm” poszczególnych atomów nie jest aż tak ważny. Przykładem może być efekt Zeemana lub Faradaya, zjawiska nieliniowe takie jak nieliniowa magnetorotacja czy elektromagnetycznie indukowana przeźroczystość, ale także niektóre aspekty ściskania

spinowego czy badania punktów wyjątkowych. Tak szerokie spektrum możliwych do opisu zjawisk oraz łatwość pracy z parami atomowymi odpowiedzialne są za ogromną popularność jaką ośrodki te zyskują w metrologii. W szczególności są one wykorzystywane do pomiarów stałych i oscylujących pól magnetycznych, ale również jako bardzo precyzyjne żyroskopy. Połączenie tych zalet z rosnącym zainteresowaniem i rozwojem metrologii kwantowej, czyli dziedziny wykorzystującej w pomiarach efekty nie mające swojego analogu w fizyce klasycznej, sprawia, że rola ciepłych par atomowych na polu współczesnej fizyki atomowej wciąż się zwiększa.

Przytoczone powyżej argumenty pokazują, że rola opisanych w niniejszej pracy ośrodków jest wciąż ważna na polu fizyki atomowej. Z drugiej jednak strony rozwój metrologii i informatyki kwantowej implikuje konieczność lepszego zrozumienia procesów zachodzących w tych ośrodkach na płaszczyźnie kwantowo-mechanicznej. To właśnie ten fakt jest główną motywacją dla powstania niniejszej pracy. Jej głównym elementem jest rozwój metod tomografii stanów kwantowych wytwarzanych w parach atomowych.

W ramach pierwszego rozdziału przedstawione zostało krótkie wprowadzenie do podstawowych, a zarazem niezbędnych z punktu widzenia niniejszej pracy pojęć. Obejmują one zagadnienia związane ze strukturą energetyczną metali alkalicznych, w szczególności rubidu-87, ale także z opisem oddziaływania atomów ze światłem. Rozdział 2 stanowi dyskusję bardziej ukierunkowaną na efekty charakterystyczne dla ciepłych par atomowych oraz komórek parafinowych. Omówiony w nim został sposób opisu stanów kwantowych poprzez stany kolektywne wraz z dyskusją mocnych i słabych stron tego podejścia w kontekście ciepłych par atomowych. W rozdziale tym opisany został również wpływ efektu Dopplera na obserwowane w ciepłych parach zjawiska oraz charakterystyczne dla takiego układu kanały relaksacji. Zwieńczenie tego rozdziału stanowi dyskusja nad metodami modelowania efektów w komórkach z antyrelaksacyjnymi pokryciami parafinowymi, będąca jednocześnie wstępem i objaśnieniem metod modelowania wykorzystanych w artykułach składających się na niniejszą rozprawę. Rozdział 3 pokrótce omawia artykuły stanowiące podstawę niniejszej pracy, zwracając szczególną uwagę na aspekty, które nie zostały w artykułach wystarczająco dogłębnie omówione z uwagi na ograniczenia na liczbę stron. Całość rozprawy zamyka podsumowanie przedstawiające konkluzje wynikające z pracy oraz dalsze kierunki rozwoju projektu, w ramach którego niniejsza praca powstawała.

Rozdział 1

Pojedynczy atom w polu klasycznym

Celem niniejszego rozdziału jest wprowadzenie Czytelnika w podstawy prostego modelu teoretycznego, pozwalającego opisać układ pojedynczego, nieruchomego atomu oddziałującego z falą elektromagnetyczną (wiązką laserową) rozważaną jako klasyczne pole elektromagnetyczne. Model ten pozwoli, w dalszej części pracy, opisać zjawiska obserwowane w cyklu prac stanowiących podstawę niniejszej rozprawy doktorskiej.

Aby zaprezentowane rozważania lepiej oddawały warunki, w których prowadzone są badania doświadczalne, w niniejszym rozdziale rozważana jest struktura energetyczna atomów metali alkalicznych oraz semiklasyczny model ich oddziaływania z polami zewnętrznymi, takimi jak światło oraz zmienne i stałe pola magnetyczne. Pozwala to opisać szereg prostych zjawisk optycznych oraz określić dynamikę, jakiej podlega układ atomy–światło.

W celu pełniejszego opisu oddziaływania atomów ze światłem, w końcowej części tego rozdziału, przedstawiony został wstęp do opisu oddziaływania atomów z dwiema wiązkami laserowymi. Pozwoliło to na uzyskanie szeregu ciekawych efektów, takich jak elektromagnetycznie indukowana przezroczystość (ang. *electromagnetically induced transparency* - EIT) [1], spójne pułapkowanie populacji (ang. *coherent population trapping* - CPT) [2], czy zjawisko STIRAP (ang. *stimulated Raman adiabatic passage*) [3, 4]. Szczególny nacisk został położony na zjawisko STIRAP, które jest głównym tematem artykułu [B].

1.1 Struktura energetyczna atomów pierwiastków alkalicznych

Najczęściej wykorzystywaną w eksperymentach fizyki atomowej grupą pierwiastków są metale alkaliczne. Taki stan rzeczy wynika z silnego sprzężenia tego typu pierwiastków ze światłem, obecności przejść atomowych o łatwo dostępnych długościach fali oraz możliwości manipulacji stanem tych atomów przy pomocy pól zewnętrznych (np. pola magnetycznego lub elektrycznego). Właściwości te są następstwem posiadania przez tego typu atomy zaledwie jednego elektronu walencyjnego, co ułatwia także ich opis teoretyczny i sprawia, że można je traktować jako atomy wodoropodobne [5].

Szczegółowa analiza struktury energetycznej, nawet tak prostych atomów jak atomy pierwiastków metali alkalicznych (jeden elektron walencyjny), wymaga uwzględnienia szeregu efektów począwszy od elektrostatycznego oddziaływania elektronów z jądrem atomowym, poprzez sprzężenie spin-orbita, poprawkę Darwina, przesunięcie Lamba, kończąc na sprzężeniu całkowitego momentu pędu elektronu ze spinem jądra. Z punktu widzenia omawianych w niniejszej pracy badań, szczególnie istotna jest struktura związana z momentem pędu poszczególnych stanów, która bezpośrednio wynika ze składowania spinu elektronu walencyjnego, orbitalnego momentu pędu elektronu walencyjnego oraz spinu jądra atomowego, które opi-

sane są odpowiednio operatorami $\hat{\mathbf{S}}$, $\hat{\mathbf{L}}$ oraz $\hat{\mathbf{I}}$. Punktem wyjścia do dalszych rozważań jest struktura poziomów energetycznych atomu wynikająca z równania Diraca dla atomu wodoropodobnego, która rozróżnia stany ze względu na główną oraz poboczną liczbę kwantową. W takim układzie najsilniejszym efektem, od którego należy rozpocząć analizę struktury energetycznej jest sprzężenie spinu elektronu z jego orbitalnym momentem pędu, zwane sprzężeniem subtelnym. W pierwszym przybliżeniu źródłem tego oddziaływania jest pole magnetyczne wytwarzane przez jądro atomowe w układzie spoczynkowym elektronu ¹ [5–7]. Matematycznie, oddziaływanie to można zapisać przy pomocy hamiltonianu

$$\hat{H}_{SO} = \zeta(r)\hat{\mathbf{L}} \cdot \hat{\mathbf{S}}, \quad (1.1)$$

gdzie $\zeta(r)$ jest stałą zależną od odległości pomiędzy elektronem a ładunkiem jądra atomowego. Standardową metodą wykorzystywaną do rozważania tego typu sprzężenia jest wprowadzenie całkowitego momentu pędu elektronu $\hat{\mathbf{J}} = \hat{\mathbf{L}} + \hat{\mathbf{S}}$, a następnie skorzystanie z własności

$$\hat{\mathbf{J}}^2 = (\hat{\mathbf{L}} + \hat{\mathbf{S}})^2 = \hat{\mathbf{L}}^2 + 2\hat{\mathbf{L}} \cdot \hat{\mathbf{S}} + \hat{\mathbf{S}}^2. \quad (1.2)$$

Dzięki temu hamiltonian (1.1) można zapisać jako:

$$\hat{H}_{SO} = \frac{\zeta(r)}{2} (\hat{\mathbf{J}}^2 - \hat{\mathbf{L}}^2 - \hat{\mathbf{S}}^2). \quad (1.3)$$

W tym sprzężeniu do opisu stanu atomów metalu alkalicznego wykorzystywane są trzy liczby kwantowe J , L oraz S .² W szczególności stan podstawowy atomów dany jest jako: $|j = 1/2, s = 1/2, l = 0\rangle$. Dla atomów rubidu-87, które wykorzystywane są w pracach stanowiących podstawę niniejszego doktoratu, w zwyczajowo używanej notacji spektroskopowej [6], stan podstawowy oznaczony jest jako $5^2S_{1/2}$. Natomiast najniżej leżący stan wzbudzony, który ma orbitalny moment pędu $L = 1$, rozszczepia się na 2 poziomy: $|J = 1/2, S = 1/2, L = 1\rangle$ oraz $|J = 3/2, S = 1/2, L = 1\rangle$. Stany te oznaczane są odpowiednio jako $5^2P_{1/2}$ oraz $5^2P_{3/2}$, zaś linie widmowe, odpowiadające przejściom optycznym pomiędzy tymi stanami a stanem podstawowy w metalach alkalicznych, nazywane odpowiednio liniami D_1 oraz D_2 .

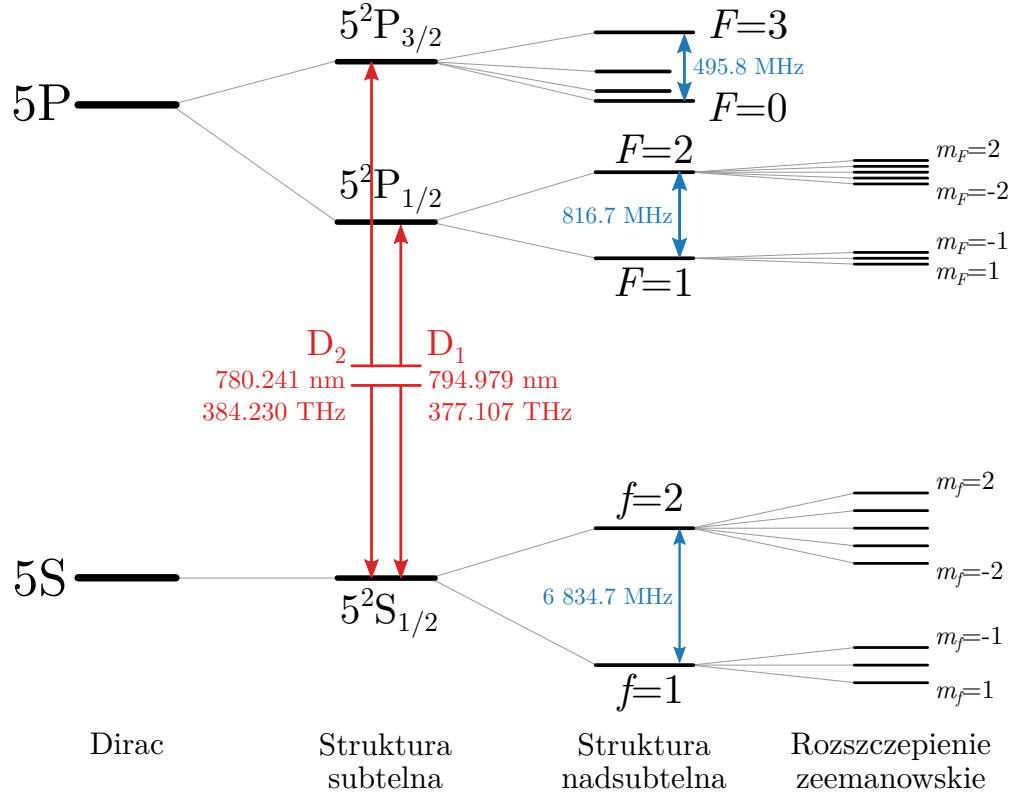
Dokładniejsza analiza oddziaływań, które są obecne w atomach, pokazuje, że w kolejnym kroku należy uwzględnić oddziaływanie całkowitego momentu pędu elektronu $\mathbf{J}$ ze spinem jądra atomowego $\mathbf{I}$, któremu, w przypadku rubidu-87, odpowiada liczba kwantowa $I = 3/2$. Oddziaływanie to, zwane oddziaływaniem nadsubtelnym, jest dla metali alkalicznych opisane równaniem³:

$$\hat{H}_{IJ} \approx A_{hfs}\hat{\mathbf{I}} \cdot \hat{\mathbf{J}} + B_{hfs} \frac{3(\hat{\mathbf{I}} \cdot \hat{\mathbf{J}})^2 + \frac{3}{2}(\hat{\mathbf{I}} \cdot \hat{\mathbf{J}}) - \bar{I}\bar{J}}{2I(2I-1)J(2J-1)}, \quad (1.4)$$

¹W przypadku atomów pierwiastków metali alkalicznych, ładunek jądra odczuwany przez elektron walencyjny jest częściowo ekranowany przez elektrony powłok wewnętrznych [6].

²Wszystkie rozważania zawarte w niniejszej pracy odnoszą się do stanów podstawowych oraz niskoleżących stanów wzbudzonych znajdujących się w obrębie jednej linii spektralnej. W związku z tym przyjęta została konwencja, w której wartości momentu pędu/spinu stanu podstawowego są oznaczane małymi literami: s , l , j oraz f , natomiast dla stanu wzbudzonego wielkimi literami: S , L , J oraz F .

³W tym równaniu zaniedbano najmniejszy człon oddziaływania, tj. człon oktapolowy.[8]



Rysunek 1.1: Schemat układu poziomów energetycznych rubidu-87 wynikający z (od lewej) równania Diraca, poprawki na sprzężenie spin-orbita, poprawki nadsubtelnej. W ramach struktury subtelnej wydzielone są dwie linie spektralne D₁ oraz D₂. Dla poprawienia przejrzystości schematu nie przedstawiono rozszczepienia zeemanowskiego podpoziomów stanu 5²P_{3/2}. Odległości pomiędzy stanami nie są przedstawione w skali, za wyjątkiem względnych rozszczepień stanu 5²P_{3/2} oraz rozszczepień zeemanowskich, które obrazują różnicę w czynnikach żyromagnetycznych stanu podstawowego i wzbudzonego.

gdzie A_{hfs} oraz B_{hfs} to odpowiednio magnetyczna stała dipolowa oraz elektryczna stała kwadrupolowa, natomiast $\bar{X} = X(X + 1)$. Poprzez analogię do sprzężenia subtelnego można pokazać, że do opisu tego oddziaływania można wprowadzić pojęcie całkowitego momentu pędu atomu $\mathbf{F}$, którego operator $\hat{\mathbf{F}}$ wiąże się z operatorami całkowitego momentu pędu elektronu $\hat{\mathbf{J}}$ i spinu jądra $\hat{\mathbf{I}}$ relacją $\hat{\mathbf{F}} = \hat{\mathbf{I}} + \hat{\mathbf{J}}$. Oddziaływanie nadsubtelne prowadzi do dalszego rozszczepienia struktury subtelnej. Z punktu widzenia niniejszej rozprawy szczególnie istotne jest rozszczepienie poziomów energetycznych rubidu-87 wchodzących w skład linii D₁, czyli rozszczepienie stanów o całkowitym momencie pędu elektronu $j = J = 1/2$ na dwa stany o całkowitym momencie pędu atomu równym $f = 1$ lub $f = 2$ oraz $F = 1$ lub $F = 2$.

Jedną z podstawowych własności poziomów energetycznych w strukturze nadsubtelnej jest ich degeneracja. Każdy poziom o całkowitym momencie pędu równym f , składa się z dokładnie $2f + 1$ podpoziomów, które nazywamy podpoziomami magnetycznymi. Nazwa wywodzi się z faktu, iż podstawowym mechanizmem znoszenia degeneracji tych stanów jest umieszczenie ich w zewnętrznym polu magnetycznym. W takim przypadku hamiltonian opi-

sujący oddziaływanie atomów z polem jest dany przez:

$$\hat{H}_B = \mu_B (g_S \hat{\mathbf{S}} + g_L \hat{\mathbf{L}} + g_I \hat{\mathbf{I}}) \cdot \mathbf{B}, \quad (1.5)$$

gdzie μ_B to magneton Bohra, natomiast g_i to tzw. czynnik g -Landégo dla odpowiedniego momentu pędu/spinu. W przypadku gdy zewnętrzne pole magnetyczne będzie słabe, co oznacza, że zniesienie degeneracji będzie znacznie mniejsze niż rozszczepienie nadsubtelne, powyższe oddziaływanie można zapisać z wykorzystaniem operatora całkowitego momentu pędu

$$\hat{H}_B = \mu_B g_F \hat{\mathbf{F}} \cdot \mathbf{B} = \gamma_F \hat{\mathbf{F}} \cdot \mathbf{B}. \quad (1.6)$$

Taki opis wymaga wprowadzenia czynnika g -Landégo dla całkowitego momentu pędu, który wynika z reguł składania momentów pędu [5–7]

$$g_F \approx g_J \frac{\bar{F} + \bar{J} - \bar{I}}{2\bar{F}} \approx \left(1 + \frac{\bar{J} + \bar{S} - \bar{L}}{2\bar{J}}\right) \frac{\bar{F} + \bar{J} - \bar{I}}{2\bar{F}}. \quad (1.7)$$

Przybliżenie w pierwszej równości jest efektem zaniedbania członu pochodzącego z jądra atomowego. Wynika ono z faktu, że typowo dla metali alkalicznych czynnik Landégo spinu jądrowego jest o co najmniej dwa rzędy wielkości mniejszy od czynnika elektronowego. Przykładowo, dla rozważanego tutaj rubidu-87 wynosi $g_I = 0.0009951414(10)$ [9]. Drugie przybliżenie wynika z przybliżenia czynników Landégo dla spinu elektronu $g_s \approx 2$ oraz orbitalnego momentu pędu $g_L \approx 1$ [5, 7, 10]. W przypadku gdy pole magnetyczne zorientowane jest wzdłuż osi kwantyzacji $\mathbf{z}$, oddziaływanie można zapisać jako:

$$\hat{H}_B = \hbar \Omega_L \hat{F}_z, \quad (1.8)$$

gdzie częstość sprzężenia $\Omega_L = \gamma_f B / \hbar$ jest nazywana częstością Larmora. Gdy do opisu układu zostanie wykorzystana baza rozpięta na stanach własnych operatora $\hat{F}_z$, takie oddziaływanie powoduje liniowe w funkcji pola magnetycznego rozszczepienie podpoziomów zeemanowskich opisanych magnetyczną liczbą kwantową m_f . Ze względu na liniowość rozszczepienia poziomów efekt ten nosi nazwę liniowego efektu Zeemana [5, 11], natomiast ww. baza, nazywana jest bazą zeemanowską. Dla rubidu-87, wykorzystywanego w pracach przedstawionych w tej rozprawie, czynnik żyromagnetyczny $\gamma_f \approx \pm 700.6 \text{ kHz G}^{-1}$ [8], gdzie $\pm$ odpowiada stanom podstawowym odpowiednio o $f = 1$ i $f = 2$. W polach magnetycznych słabszych od pola magnetycznego Ziemi, tj. sytuacjach rozważanych w ramach niniejszej rozprawy, rozszczepienie podpoziomów magnetycznych zawiera się w granicy pomiędzy 1 i 100 kHz. Oznacza to, że jest ono znacznie mniejsze od rozszczepienia nadsubtelnego tych poziomów, które wynosi ok. 6.835 GHz [8].

Z punktu widzenia powyższych rozważań istotne jest na koniec zwrócenie uwagi na to, że operatory momentu pędu są generatorami grupy obrotów

$$\hat{R}_{\mathbf{n}}(d\phi) = \hat{\mathbb{1}} - \frac{i}{\hbar} \hat{\mathbf{J}} \cdot \mathbf{n} d\phi, \quad (1.9)$$

gdzie $\hat{R}_{\mathbf{n}}(d\phi)$ jest operatorem obrotu wokół osi $\mathbf{n}$ o infinitezymalny kąt $d\phi$. Wynika z tego, że w reżymie liniowego efektu Zeemana ewolucja stanów nadsubtelnych pod wpływem przyłożonego pola magnetycznego odpowiada kwantowo-mechanicznym obrotom o kąt $\Omega_L t_B$, gdzie t_B jest czasem działania pola B .

1.2 Oddziaływanie atomów ze światłem

Oddziaływanie atomu z zewnętrznym polem magnetycznym nie jest jedynym oddziaływaniem, które można obserwować w atomach metali alkalicznych. Jednym z innych bardzo istotnych oddziaływań jest oddziaływanie atomu z koherentną wiązką światła. Takie oddziaływanie można opisywać w sposób w pełni kwantowo-mechaniczny [12, 13], jednak w sytuacji gdy atom oddziałuje z wiązką światła laserowego o „makroskopowym” natężeniu, zazwyczaj wystarczy opisać to oddziaływanie w reżymie klasycznym, tj. w języku oddziaływania atomów z klasycznym, oscylującym polem elektrycznym. W takim przypadku oddziaływanie atomu ze światłem rozważane jest jako oddziaływanie naładowanej cząstki (elektronu związanego w atomie) z oscylującym polem elektrycznym. W najniższym rzędzie przybliżeń, kiedy długość fali elektromagnetycznej jest znacznie większa od rozmiarów atomu, interakcja atomu z zewnętrznym polem sprowadza się do oddziaływania dipolowego [5, 12]

$$\hat{H}_{int} = -\hat{\mathbf{d}} \cdot \mathbf{E}, \quad (1.10)$$

gdzie $\hat{\mathbf{d}} = e\hat{\mathbf{r}}$ jest operatorem momentu dipolowego elektronu walencyjnego, który jest przeskalowanym przez ładunek elementarny e operatorem położenia $\hat{\mathbf{r}}$. Natomiast $\mathbf{E} = \mathbf{E}_0 \cos(\omega t + \varphi)$ jest polem elektrycznym fali świetlnej o częstotliwości ω . Taka postać operatora momentu dipolowego skutkuje jego bardzo ważną własnością, mianowicie nieparzystością względem odbicia przestrzennego. Z tej właściwości wynikają m.in. reguły wyboru dla przejść dipolowych. Zgodnie z nimi w atomach wodoropodobnych przejścia dipolowe pomiędzy stanami o tej samej parzystości (tym samym orbitalnym momencie pędu L lub momencie pędu różniącym się o wartość parzystą) są wzbronione. Co więcej, jeżeli spin jądra atomowego jest różny od zera można wywnioskować dodatkowe reguły wyboru:

$$L - l \neq 0, \quad (1.11)$$

$$F - f = \pm 1 \vee 0, \quad (1.12)$$

$$F + f \geq 1. \quad (1.13)$$

Znajomość postaci operatora momentu dipolowego pozwala na wyliczenie amplitudy prawdopodobieństwa A_{if} przejścia pomiędzy stanem początkowym $|\psi_i\rangle$ oraz końcowym $|\psi_f\rangle$, które jest indukowane światłem o określonej polaryzacji

$$A_{if} \propto \langle \psi_f | \hat{\mathbf{d}} \cdot \mathbf{n} | \psi_i \rangle, \quad (1.14)$$

gdzie $\mathbf{n}$ jest wersorem określającym polaryzację pola elektrycznego wiązki. Jeżeli stany wyrażone są w bazie zeemanowskiej, w sprzężeniu nadsubtelnym: $|\psi_i\rangle = |f, m_f\rangle$ oraz $|\psi_f\rangle = |F, m_F\rangle$, to do rozważania tego problemu wygodnie jest wykorzystać twierdzenie Wignera-Eckarta [7, 10]. Wymaga to zapisania wersora polaryzacji w bazie sferycznej (polaryzacje $\sigma^\pm$ oraz π), jednak dzięki temu elementy macierzowe operatora momentu dipolowego przyjmują

postać:

$$\begin{aligned} \langle F, m_F | \hat{\mathbf{d}} \cdot \mathbf{n} | f, m_f \rangle &= \sum_q \mathbf{n} \cdot \mathbf{q} \langle F, m_F | \hat{d}_q | f, m_f \rangle = \\ &= (-1)^{F-m_F} \langle F || \hat{\mathbf{d}} || f \rangle \sum_q \begin{pmatrix} F & 1 & f \\ -m_F & q & m_f \end{pmatrix}, \end{aligned} \quad (1.15)$$

gdzie $\langle F || \hat{\mathbf{d}} || f \rangle$ jest zredukowanym elementem macierzowym operatora momentu dipolowego, który jest taki sam dla wszystkich przejść wchodzących w skład tej samej linii w strukturze nadsubtelnej. Wykorzystując własności składania momentu pędu, można pokazać, że zredukowany element macierzowy dla struktury nadsubtelnej można przetłumaczyć na zredukowany moment macierzowy dla struktury subtelnej [7, 10]. Pozwala to w łatwy sposób porównywać siły przejść w ramach całej linii spektralnej (np. D₁ lub D₂). Dodatkowo znajomość zredukowanego elementu macierzowego struktury nadsubtelnej⁴ pozwala w łatwy sposób zdefiniować częstość Rabiego dla wiązki oddziałującej z atomem na zadanym przejściu

$$\Omega_R = \frac{E_0 \langle F || \hat{\mathbf{d}} || f \rangle}{\hbar}. \quad (1.16)$$

Znajomość częstości Rabiego pozwala na wprowadzenie parametru nasycenia [5]. W ogólności parametr ten jest zdefiniowany jako stosunek szybkości wzbudzeń do tempa relaksacji. Taka definicja jest dosyć ogólna i pozwala definiować parametr nasycenia adekwatny do określonego przypadku. Przykładowo, najprostszym parametrem nasycenia jest κ_1 , który mówi o tym na ile wysyczone jest przejście pomiędzy stanem podstawowym a wzbudzonym. W przypadku gdy częstość wzbudzeń dana jest przez częstość Rabiego a szybkość relaksacji przez stałą relaksacji stanu wzbudzonego Γ (szerokość naturalną), parametr κ_1 przyjmuje postać [5]:

$$\kappa_1 = \frac{\Omega_R^2}{\Gamma^2}. \quad (1.17)$$

Tak zdefiniowany parametr nasycenia pozwala oszacować wartość amplitudy pola elektrycznego światła, dla którego pojawia się znaczące obsadzenie stanu wzbudzonego.

Jednym z najważniejszych i najczęściej stosowanych przybliżeń przy opisie oddziaływania atomów ze światłem jest przybliżenie fali rotującej (ang. *rotating wave approximation* – *RWA*) [5, 12]. Polega ono na wybraniu takiego układu odniesienia, w którym energia stanu wzbudzonego będzie porównywalna z energią stanu podstawowego. Takim układem jest układ rotujący na częstości wiązki laserowej dostrojonej blisko częstości przejścia atomowego. Transformacja ta jest szczególnie łatwa do zapisania w układzie dwupoziomowym, w którym $\hat{U} = \hat{P}_g + \hat{P}_e \exp^{-i\omega t}$, przy czym $\hat{P}_g = |g\rangle\langle g|$ oraz $\hat{P}_e = |e\rangle\langle e|$ są operatorami rzutowania na odpowiedni stan podstawowy i wzbudzony.⁵ W takim przypadku odwirowany hamiltonian

⁴Warto zauważyć, że w literaturze częstość Rabiego bywa zdefiniowana zarówno z wykorzystaniem zredukowanego elementu macierzowego dla struktury subtelnej jak i nadsubtelnej, a wybór konkretnego przypadku zależy od rozważanego problemu lub zastosowania.

⁵Uogólnienie powyższej transformacji na układ złożony z dwóch zbiorów podpoziomów magnetycznych jest relatywnie proste i sprowadza się do przedefiniowania operatorów rzutowania jako: $\hat{P}_g = \sum |f m_f\rangle\langle f m_f|$ oraz $\hat{P}_e = \sum |F m_F\rangle\langle F m_F|$.

oraz macierz gęstości przyjmują postacie:

$$\hat{\tilde{H}} = \hat{U}^\dagger \hat{H} \hat{U} - i\hbar \hat{U}^\dagger \left(\partial_t \hat{U} \right), \quad (1.18)$$

$$\rho = \hat{U} \hat{\rho} \hat{U}^\dagger, \quad (1.19)$$

gdzie tylda oznacza, że dany operator jest zdefiniowany w bazie rotującej. Warto zauważyć, że działanie drugiego członu w równaniu (1.18) sprowadza się do obniżenia energii stanu wzbudzonego do wartości $\Delta = \omega - \omega_0$, czyli wartości odstrojenia pola optycznego od przejścia atomowego.

Ze względu na regułę wyboru dotyczącą orbitalnego momentu pędu [równanie (1.11)] operator elektrycznego momentu dipolowego nie może sprzęgać stanu podstawowego lub stanu wzbudzonego z samym sobą. Oznacza to, że musi on spełniać zależność:

$$\hat{\mathbf{d}} = \hat{P}_e \hat{\mathbf{d}} \hat{P}_g + \hat{P}_g \hat{\mathbf{d}} \hat{P}_e. \quad (1.20)$$

Powoduje to, iż transformacja hamiltonianu (1.10) do bazy rotującej daje:

$$\hat{\tilde{H}}_{int} = -E_0 \left[\hat{P}_e \hat{\mathbf{d}} \hat{P}_g \left(1 + e^{i2\omega t} \right) + \hat{P}_g \hat{\mathbf{d}} \hat{P}_e \left(1 + e^{-i2\omega t} \right) \right]. \quad (1.21)$$

Zaniedbanie członów oscylujących w powyższym równaniu jest istotą przybliżenia fali rotującej.

Warto zwrócić uwagę, że przybliżenie RWA może być wykorzystywane nie tylko w przypadku pól optycznych, ale również oscylujących pól magnetycznych [14]. Istotnym jest wówczas zapewnienie, by szerokość linii odwirowywanego przejścia była znacznie mniejsza niż częstotliwość tego przejścia⁶. Jeżeli ten warunek nie jest spełniony, obserwowany jest efekt przesuwania częstości rezonansowej wywołany zaniedbaną składową pola - efekt Blocha-Siegerta [14–16].

Znajomość postaci podstawowych operatorów opisujących oddziaływanie atomu z poszczególnymi polami zewnętrznymi pozwala wyliczać czasową ewolucję stanu kwantowego atomu. Ponieważ jednak atom może podlegać relaksacji (np. poprzez emisję spontaniczną ze stanu wzbudzonego do stanu podstawowego lub zderzenia międzyatomowe) jego ewolucja staje się nieunitarna. Oznacza to, że w opisie ewolucji stanów musimy odwołać się do formalizmu macierzy gęstości. W tym formalizmie równanie ewolucji może zostać zapisane na kilka różnych sposobów, które zasadniczo różnią się sposobem opisu relaksacji. Jednym z nich, szeroko wykorzystywanym w fizyce atomowej do opisu ciepłych par [5], jest równanie Liouville'a w postaci:

$$i\hbar \frac{d}{dt} \rho = \left[\hat{H}, \rho \right] - \frac{i}{2} \left\{ \hat{\Gamma}, \rho \right\} + \hat{\Lambda}(\rho), \quad (1.22)$$

gdzie $[\cdot, \cdot]$ jest komutatorem, a $\{\cdot, \cdot\}$ jest antykomutatorem. Operator $\hat{\Gamma}$ jest operatorem relaksacji, natomiast $\hat{\Lambda}(\rho)$ jest operatorem repopulacji [5]. Postać tych operatorów, w sytuacji gdy cała niehermitowska część ewolucji sprowadza się do emisji spontanicznej ze stanu wzbudzonego (stan podstawowy jest nieskończenie długo żyjący), została przedstawiona w pracy [12].

⁶W przypadku przejść optycznych warunek ten jest zawsze spełniony.

W informatyce kwantowej równanie ewolucji czasowej macierzy gęstości często bywa nazywane równaniem master lub równaniem Lindblada [17, 18]. Wykorzystuje ono wówczas opis niekoherentnej części ewolucji układu przy pomocy tzw. operatorów Lindblada lub operatorów skoków kwantowych

$$i\hbar \frac{d}{dt}\rho = [\hat{H}, \rho] - \frac{i}{2} \sum_{\mu} \left\{ \rho, \hat{L}_{\mu}^{\dagger} \hat{L}_{\mu} \right\} + \hat{L}_{\mu} \rho \hat{L}_{\mu}^{\dagger}, \quad (1.23)$$

gdzie sumowanie po μ pozwala na uwzględnienie wielu niezależnych kanałów relaksacji $\hat{L}_{\mu}$. Rozdzielenie relaksacji na indywidualne kanały tłumienia jest szczególnie użyteczne przy wykorzystaniu formalizmu efektywnych hamiltonianów [13, 18].

Warto na koniec zauważyć, że relacja pomiędzy dwoma ww. opisami problemu jest relatywnie prosta i można ją zapisać w postaci:

$$\hat{\Gamma} = \sum_{\mu} \hat{L}_{\mu}^{\dagger} \hat{L}_{\mu}, \quad (1.24)$$

$$\hat{\Lambda}(\rho) = \sum_{\mu} \hat{L}_{\mu} \rho \hat{L}_{\mu}^{\dagger}. \quad (1.25)$$

Najbardziej podstawowym kanałem relaksacji wynikającym z oddziaływania atomów z otoczeniem (rezerwuarem) jest relaksacja izotropowa. Sprawia ona, że atom w dowolnym stanie kwantowym ma takie samo prawdopodobieństwo niekoherentnego przeniesienia do każdego innego stanu. Oznacza to, że część operatora relaksacji (repopulacji) odpowiadająca za ten kanał jest opisana odpowiednio znormalizowaną macierzą jednostkową, która została przeskalowana o stałą relaksacji γ . W parach atomowych metali alkalicznych stała ta jest o wiele rzędów wielkości mniejsza niż stała relaksacji stanu wzbudzonego Γ .

Należy zauważyć, że jak dotąd relaksacja izotropowa jest jedynym mechanizmem, który powoduje niszczenie stanów kwantowych w stanie podstawowym. Przez to oraz przez fakt, że dla stanów wzbudzonych wyraźnie dominująca jest relaksacja przez emisję spontaniczną, γ często jest nazywana współczynnikiem relaksacji stanu podstawowego. Jej znajomość pozwala na zdefiniowanie drugiego parametru nasycenia [5]

$$\kappa_2 = \frac{\Omega_R^2}{\Gamma\gamma}. \quad (1.26)$$

Parametr ten określa amplitudę pola elektrycznego, które pozwala na istotną zmianę rozkładu populacji w ramach podpoziomów zeemanowskich stanu podstawowego. Należy jednak pamiętać, że tak zdefiniowany parametr nasycenia został wyprowadzony przy założeniu izotropowej relaksacji. W sytuacji, w której istnieją inne kanały relaksacji, może on być zatem traktowany jedynie jako swego rodzaju przybliżenie pozwalające na budowanie pewnej intuicji eksperymentalnej.

1.3 Wpływ atomów na światło

Jednym z najpowszechniej wykorzystywanych opisów oddziaływania atomów ze światłem jest w pełni kwantowo-mechaniczny opis, który wykorzystuje sprzężenie atomowego momentu

pędu do operatorów Stokesa światła. Jest to podejście szczególnie użyteczne, gdy wiązka światła laserowego jest daleko odstrojona od przejścia atomowego [19] lub w reżymie bardzo częstych zderzeń atomów, podczas których zachowany jest całkowity moment pędu zderzających się atomów (ang. *spin-exchange relaxation free* – *SERF*) [20]. Jedną z największych zalet tego podejścia jest opisanie ściskania spinowego poprzez mechanizm *back action* [13]. Istnieją także uogólnienia tego modelu pozwalające na opis światła blisko dostrojonego, ale są one rzadziej stosowane [21].

Alternatywnym do stricte kwantowego opisu oddziaływania atomy-światło jest podejście semiklasyczne, w którym światło propagujące przez ośrodek jest traktowane jako klasyczna fala elektromagnetyczna. Podejście to co prawda zawęża możliwości zastosowań metody jedynie do koherentnych stanów światła, jednak daje ono szereg przewag obliczeniowych. Przykładowo, jest ono często wykorzystywane do opisu oddziaływań o charakterze tensorowym. Przykładem jego wykorzystania jest opis działania magnetometrów typu AMOR (ang. *amplitude-modulated magneto-optical rotation* – *AMOR*) [22].

Metoda semiklasyczna została wykorzystana w pracach [A, C] do wyprowadzenia sygnałów magnetorotacji oraz zdefiniowania mierzonych obserwabli. W tym podejściu, przy wykorzystaniu równań Maxwella dla fali propagującej w spolaryzowanym ośrodku [5], równanie falowe dane jest w postaci:

$$\nabla^2 \mathbf{E} - \frac{1}{c^2} \partial_t^2 \mathbf{E} = \mu_0 \partial_t^2 \mathbf{P}. \quad (1.27)$$

Możemy teraz sparametryzować pola elektryczne oraz polaryzację atomową i zapisać te wielkości w postaci [5]:

$$\begin{aligned} \mathbf{E} = E_0 \text{Re} \left\{ e^{i(kz - \omega t + \phi)} \left(\cos(\epsilon) [\cos(\alpha) \mathbf{x} + \sin(\alpha) \mathbf{y}] + \right. \right. \\ \left. \left. + i \sin(\epsilon) [\cos(\alpha) \mathbf{y} - \sin(\alpha) \mathbf{x}] \right) \right\} \end{aligned} \quad (1.28)$$

$$\mathbf{P} = \text{Re} \left\{ e^{i(kz - \omega t + \phi)} [(P_1 - iP_2) \mathbf{x} + (P_3 - iP_4) \mathbf{y}] \right\}. \quad (1.29)$$

Taka parametryzacja uwzględnia następujące parametry opisujące propagującą wiązkę: E_0 - amplituda pola elektrycznego wiązki, k - wektor falowy,⁷ ω - częstość kołowa wiązki, ϕ - faza, α - skręcenie płaszczyzny polaryzacji oraz ϵ - eliptyczność. Dodatkowo P_i oznacza odpowiednią składową polaryzacji atomowej P . Równania (1.27) i (1.28) pozwalają wyznaczyć zależność ewolucji parametrów światła od odpowiednich składowych polaryzacji atomowej. W szczególności pozwoliło to w pracy [A] wyliczyć zależność parametrów światła spolaryzowanego

⁷W parametryzacji założono, że światło propaguje wzdłuż osi $\mathbf{z}$.

liniowo wzdłuż osi $\mathbf{y}$ od polaryzacji ośrodka:

$$\partial_z \alpha = -\frac{\omega}{2\varepsilon_0 E_0 c} P_2, \quad (1.30)$$

$$\partial_z \epsilon = -\frac{\omega}{2\varepsilon_0 E_0 c} P_1, \quad (1.31)$$

$$\partial_z \varphi = \frac{\omega}{2\varepsilon_0 E_0 c} P_3, \quad (1.32)$$

$$\frac{1}{E_0} \partial_z E_0 = \frac{\omega}{2\varepsilon_0 E_0 c} P_4. \quad (1.33)$$

Spośród nich szczególną uwagę poświęcono skręceniu płaszczyzny polaryzacji, którą to wielkość wykorzystano do rekonstrukcji stanów kwantowych w metodzie opracowanej w ramach niniejszego doktoratu.

Ostatnim krokiem do wyliczenia ewolucji parametrów światła, pod wpływem atomów, jest wyrażenie polaryzacji atomowej poprzez wartość oczekiwaną operatora momentu dipolowego

$$\mathbf{P} = N_{at} \text{Tr} [\rho \hat{\mathbf{d}}], \quad (1.34)$$

gdzie N_{at} jest liczbą atomów w ośrodku. Wyliczając ewolucję macierzy gęstości w znanych warunkach, powyższe równanie pozwala na wyznaczenie równań ewolucji parametrów światła takich jak: kąt polaryzacji i eliptyczności oraz amplituda i faza, jako funkcje macierzy gęstości ośrodka. To podejście umożliwiło m.in. analizę ewolucji skręcenia płaszczyzny polaryzacji dla światła liniowo spolaryzowanego, które propaguje się wzdłuż osi zewnętrznego, jednorodnego pola magnetycznego, przyłożonego do próbki atomowej. Takie wyprowadzenie zostało szczegółowo opisane przez doktoranta w dodatkach do artykułu [A]. Warto nadmienić, że taka analiza pozwoliła na precyzyjne opisanie zachowania układu dla niewielkich odstrojeń wiązki próbującej. To zaś pozwoliło na uzyskanie informacji o tensorowej składowej polaryzowalności atomowej, co wyróżnia opracowaną metodę na tle innych pokrewnych badań.

1.4 Oddziaływanie atomów z dwiema wiązkami światła

Opisane wcześniej oddziaływanie atomy-światło ograniczało się do oddziaływania modelowego atomu dwupoziomowego z pojedynczą, monochromatyczną wiązką światła. Naturalnym rozszerzeniem tego modelu jest zarówno rozszerzenie struktury energetycznej atomów (rozważanie większej liczby poziomów), jak również dodanie kolejnej wiązki światła. Takie rozszerzenie modelu pozwala na badanie całej rodziny nowych zjawisk takich jak spójne pułapkowanie populacji (ang. *coherent population trapping* – *CPT*) [2], elektromagnetycznie indukowana przeźroczystość (ang. *electromagnetically induced transparency* – *EIT*) [1] czy zjawisko STIRAP (ang. *stimulated Raman adiabatic passage* – *STIRAP*) [3, 4]. W ramach cyklu prac stanowiących podstawę tej rozprawy, szczególną uwagę poświęcono procesowi STIRAP.

W najprostszym wariantcie zjawisko STIRAP rozważane jest w trójpoziomowym układzie typu Λ (patrz Rys. 1.2)⁸. W ogólności zjawisko to polega na przelaniu populacji atomu po-

⁸Proces STIRAP można rozpatrywać również w innych układach, jak np. w układzie kaskadowym. W tej pracy wykorzystano układ lambda, ponieważ lepiej oddaje sytuację atomu rubidu-87.

między dwoma stanami, $|i\rangle$ oraz $|f\rangle$, przy czym bezpośrednie przeniesienie populacji między nimi w oparciu o oddziaływanie dipolowe nie jest możliwe (przejście wzbronione). Dlatego też do transferu populacji wykorzystuje się stan pośredni $|e\rangle$, do którego sprzężenie możliwe jest z każdego z dwóch pozostałych stanów. Najważniejszą cechą procesu STIRAP jest fakt, że stan pośredni pomimo mediowania procesu nie jest w żadnym jego momencie populowany. W ten sposób straty, które mogłyby się pojawić w takim procesie są zaniechane, a sam transfer jest koherentny. Przykładowo, w rubidzie-87 możliwe jest przeniesienie populacji pomiędzy dwoma długożyjącymi poziomami nadsubtelnymi stanu podstawowego poprzez sprzężenie ich do krótkożyjącego stanu wzbudzonego.

Kluczowym z punktu widzenia STIRAP elementem procesu jest precyzyjna kontrola stanów własnych układu poprzez przyłożenie dwóch następujących po sobie impulsów światła dostrojonych odpowiednio do przejścia $|f\rangle \rightarrow |e\rangle$ oraz przejścia $|i\rangle \rightarrow |e\rangle$. W analizie tych impulsów należy zauważyć, że w pierwszej kolejności przykładany jest impuls pomiędzy stanem końcowym a stanem pośrednim, a dopiero później pomiędzy stanem początkowym a stanem pośrednim⁹. Oznacza to, że sekwencja impulsów jest odwrotna niż ta jakiej można by się intuicyjnie spodziewać.

Opis matematyczny należy rozpocząć od zapisania hamiltonianu dla rozważanej powyżej sytuacji oraz wykonania przybliżenia fali wirującej. W przypadku większej liczby wiązek, istnieje kilka sposobów odwirowania układu, które w efekcie dają inną parametryzację problemu. Typowym sposobem jest jednak odwirowanie układu przez zastosowanie transformacji

$$\hat{U}(t) = \hat{P}_i + \hat{P}_e e^{-i\omega_p t} + \hat{P}_f e^{-i(\omega_p - \omega_s)t}, \quad (1.35)$$

gdzie $\hat{P}_\mu$ jest operatorem rzutowania na stan $|\mu\rangle$ ¹⁰. Zastosowanie takiej transformacji oraz zaniechanie członów szybkooscylujących powoduje, że hamiltonian układu przyjmuje postać:

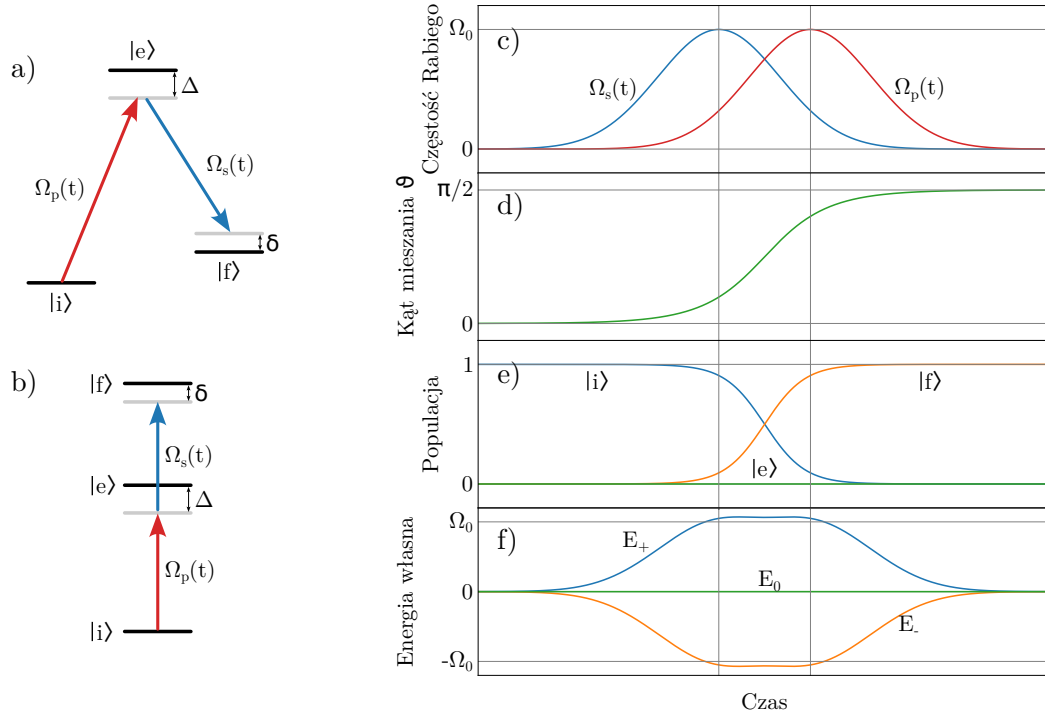
$$\hat{H} = \hbar \begin{bmatrix} 0 & \frac{1}{2}\Omega_p(t) & 0 \\ \frac{1}{2}\Omega_p(t) & \Delta & \frac{1}{2}\Omega_s(t) \\ 0 & \frac{1}{2}\Omega_s(t) & \delta \end{bmatrix}, \quad (1.36)$$

gdzie $\Omega_{s(p)}(t) = E_{s(p)}^0(t)\langle e|\hat{d}|f(i)\rangle$ jest wolnozmienną¹¹ częstością Rabiego wiązki stokesowskiej (pompującej), która uwzględnia przebieg czasowy impulsów pola elektrycznego $E_{s(p)}^0$. Dodatkowo, Δ jest odstrojeniem jednofotonowym, zaś δ jest odstrojeniem dwufotonowym (patrzy Rys. 1.2), które, w przeciwieństwie do odstrojenia jednofotonowego, mocno wpływa na efektywność procesu i z punktu widzenia optymalizacji transferu powinno w zdecydowanej większości przypadków wynosić 0. Jeżeli ten warunek jest spełniony, diagonalizacja problemu

⁹Pierwszy impuls nazywany jest impulsem stokesowskim, natomiast drugi impuls nazywany jest impulsem pompującym.

¹⁰Taki zapis pozwala łatwo uogólniać powyższy opis na stany zdegenerowane, przykładowo stany nadsubtelne.

¹¹Wolnozmiennność oznacza, że czas charakterystyczny zmian obwiedni impulsów jest znacznie dłuższy niż częstotliwość optyczna.



Rysunek 1.2: Dwie struktury energetyczne często wykorzystywane do opisu procesu STIRAP: a) układ typu Lambda oraz b) układ drabinowy. Rysunek c) przedstawia wykres zależności czasowej amplitud dwóch impulsów światła (wiązka stokesowska i pompująca). Amplitudy są tak dobrane, że maksimum ich efektywnej częstości Rabiego były równe Ω_0 , dzięki czemu kąt mieszania ϑ (wykres d) płynnie przechodzi od wartości 0 do $\pi/2$. Takie dobranie parametrów skutkuje efektywnym transferem populacji ze stanu $|i\rangle$ do stanu $|f\rangle$, bez tymczasowego obsadzenia stanu pośredniczącego $|e\rangle$ (wykres e). Na wykresie f) dodatkowo przedstawiono ewolucję energii stanów własnych układu w czasie. Jak widać w układzie wyraźnie obserwowana jest separacja stanów w czasie przelewania się populacji, co jest konieczne ze względu na zachowanie warunku adiabatywności.

daje następujące wartości własne:

$$\begin{aligned} |-\rangle &= \sin(\vartheta(t)) \sin(\varphi(t)) |i\rangle + \cos(\varphi(t)) |e\rangle + \cos(\vartheta(t)) \sin(\varphi(t)) |f\rangle \\ |0\rangle &= \cos(\vartheta(t)) |i\rangle - \sin(\vartheta(t)) |f\rangle \\ |+\rangle &= \sin(\vartheta(t)) \cos(\varphi(t)) |i\rangle - \sin(\varphi(t)) |e\rangle + \cos(\vartheta(t)) \cos(\varphi(t)) |f\rangle, \end{aligned} \quad (1.37)$$

gdzie $\vartheta(t)$ oraz $\varphi(t)$ są nazywane kątami mieszania i są zdefiniowane przez:

$$\tan(\vartheta(t)) = \frac{\Omega_p(t)}{\Omega_s(t)} \quad (1.38)$$

$$\tan(2\varphi(t)) = \frac{\sqrt{\Omega_s^2(t) + \Omega_p^2(t)}}{\Delta}. \quad (1.39)$$

Przedstawione powyżej stany własne $|\pm\rangle$, $|0\rangle$ mają energie dane zależnościami:

$$E_{\pm} = \frac{1}{2} \left(\Delta \pm \sqrt{\Delta^2 + \Omega_s^2(t) + \Omega_p^2(t)} \right) \quad (1.40)$$

$$E_0 = 0. \quad (1.41)$$

Istotnym jest fakt, że przy założonej sekwencji impulsów światła kąt mieszania zmienia się od 0 do $\pi/2$, co oznacza, że na początku sekwencji stan $|0\rangle$ jest tożsamy ze stanem $|i\rangle$, natomiast na jej końcu ze stanem $|f\rangle$. Istotnym jest zapewnienie takich warunków eksperymentu, aby ewolucja kąta mieszania była adiabatyczna. Oznacza to, że musi ona być na tyle wolna, aby nie indukować przejścia atomu do stanów $|\pm\rangle$, dzięki czemu sekwencja STIRAP w sposób koherentny przelewa populację pomiędzy stanami $|i\rangle$ oraz $|f\rangle$. Ubranie tego stwierdzenia w matematyczne ramy odbywa się poprzez wykorzystanie twierdzenia o adiabatyczności i powoduje sformułowanie dwóch warunków, nazywanych w literaturze lokalnym i globalnym warunkiem adiabatyczności [3]. Pierwszy z tych warunków, tj. warunek lokalnej adiabatyczności, nakłada więzy na gładkość przykładanych impulsów, oznacza to, że zmiana obwiedni impulsów w czasie nie może być zbyt gwałtowna

$$\sqrt{\Omega_s^2(t) + \Omega_p^2(t)} \gg \left| \frac{d}{dt} \vartheta(t) \right| = \frac{|\Omega_s(t) \dot{\Omega}_p(t) - \dot{\Omega}_s(t) \Omega_p(t)|}{\Omega_s^2(t) + \Omega_p^2(t)}. \quad (1.42)$$

Na podstawie powyższego równania można wyprowadzić drugi warunek, tj. warunek globalny adiabatyczności. W tym celu obustronnie wyciąłkuje się równanie (1.42) po czasie

$$\mathcal{A} = \int_{-\infty}^{\infty} \sqrt{\Omega_s^2(t) + \Omega_p^2(t)} dt \gg \frac{\pi}{2}. \quad (1.43)$$

Tak zapisane równanie można dalej uprościć, zakładając, że impuls stokesowski oraz pompujący mają takie same charakterystyki, oraz że pole $\mathcal{A}$ można ograniczyć z góry przez maksymalną wartość częstotliwości Rabiego Ω_{max} oraz czas trwania impulsu T

$$\Omega_{max} T \geq \mathcal{A} \gg \pi/2. \quad (1.44)$$

Pierwsza z powyższych nierówności może być w różnym stopniu wysycona, w zależności od kształtu impulsów, im bardziej kształt impulsu przypomina impuls prostokątny tym bardziej będzie ona dążyła do równości. Powoduje to, że w praktyce stosuje się uproszczoną nierówność:

$$\Omega_{max}T > \mathcal{A}_{min}, \quad (1.45)$$

gdzie $\mathcal{A}_{min}$ jest minimalnym polem impulsów. W typowych sytuacjach wystarczającym jest założenie, że $\mathcal{A}_{min} = 3\pi$ [4]. Warunek ten intuicyjnie pozwala zrozumieć jak szybko można przeprowadzić sekwencję impulsów przy zadanym natężeniu wiązek laserowych.

Opisane w tym rozdziale zagadnienia, poczynwszy od struktury energetycznej metali alkalicznych, w tym w szczególności strukturze energetycznej atomów rubidu-87, poprzez opis oddziaływania tych atomów z polami magnetycznymi oraz elektromagnetycznymi (światłem), są krótkim wstępem do opisu zachowania par atomowych zamkniętych w komórkach z parafinowym pokryciem ścian. Znajomość tych zagadnień pozwala na bardziej szczegółowy opis zjawisk, z którymi mamy do czynienia w eksperymentach prowadzonych w ramach niniejszej pracy, w tym m.in. pompowania optycznego oraz nieniszczącego próbkowania atomów światłem. Aby ten opis był jednak kompletny istotnym jest wprowadzenie cech charakterystycznych dla ośrodków jakimi są pary atomowe, które zostały umówione w kolejnym rozdziale niniejszej rozprawy.

Rozdział 2

Pary atomowe w komórce z antyrelaksacyjnym pokryciem ścian

W rozdziale tym Czytelnik zostanie wprowadzony w zagadnienia dotyczące właściwości i praw, którym podlegają atomy rubidu tworzące pary atomowe o temperaturze pokojowej, umieszczone w komórce z antyrelaksacyjnym (parafinowym) pokryciem ścian. Na potrzeby tych rozważań, modelowy układ jednoatomowy, omówiony w rozdziale 1, zostanie rozszerzony na termiczne zespoły atomowe. Na podstawie opisu ruchu atomów w komórce, omówione zostaną zjawiska takie jak uśrednianie oddziaływań, poszerzenie dopplerowskie linii rezonansowej oraz występowanie określonych kanałów relaksacji.

Rozdział ten dyskutuje również założenia przyjęte przez autora w opracowanej przez niego technice tomografii stanów prezentowanej w pracach [A, C] oraz sposób, w jaki poszerzenia dopplerowskie wpływają na „rozmywanie” wąskich efektów spektralnych, co zostało zaprezentowane w artykule [B]. Istotną częścią tego rozdziału jest także opis przygotowanych przez autora modeli numerycznych, które wykorzystano w trakcie badań m.in. podczas weryfikacji procesu przygotowywania stanów kwantowych (pompowanie optyczne).

2.1 Opis kwantowy zespołu atomów

Rozważając temat par atomowych od strony teoretycznej, kluczowym zagadnieniem jest sposób opisu stanów kwantowych atomów takiego ośrodka. Pierwszą i natychmiastową obserwacją, zgodną z rozważaniami prowadzonymi w rozdziale 1, jest fakt, że z uwagi na relaksację stanów atomowych i związaną z nią niehermitowską ewolucję układu, atomy nie mogą być dobrze opisane funkcjami falowymi. Co więcej, opisanie makroskopowego zespołu atomów przy pomocy pełnej macierzy gęstości, tj. uwzględnienie każdego z atomów z osobna, nie jest możliwe, ze względu na ogromną ich liczbę w ośrodku (w temperaturze pokojowej i objętości 1 cm^3 mamy ok. 10^{11} atomów rubidu). Z tego powodu, często stosowaną praktyką jest zastosowanie jednoatomowej macierzy gęstości [5, 23], nazywaną również kolektywną lub uśrednioną macierzą gęstości. Jej formalne wyprowadzenie polega na rozważaniu układu chmura atomowa i otoczenie, z którym atomy oddziałują, a następnie wyliczeniu częściowego śladu, kolejno po otoczeniu, a następnie po $n - 1$ atomach próbki, przy czym istotne w tym przypadku jest założenie o nierozróżnialności cząstek. Bardziej intuicyjne wprowadzenie kolektywnej macierzy gęstości opiera się na zapisaniu jej jako średniej ważonej po poszczególnych stanach kwantowych atomów w próbce

$$\rho = \sum_i W_i |\psi_i\rangle\langle\psi_i|, \quad (2.1)$$

gdzie W_i należy rozumieć jako prawdopodobieństwo znalezienia w naszej próbce atomu w stanie $|\psi_i\rangle$. Rozpisanie stanów $|\psi_i\rangle = \sum_a c_a^{(i)} |\phi_a\rangle$ w bazie ortonormalnej $\{|\phi\rangle\}$, gdzie $c_a^{(i)}$ są amplitudami prawdopodobieństwa, daje:

$$\rho = \sum_{i,a,b} W_i c_a^{(i)} c_b^{(i)*} |\phi_a\rangle\langle\phi_b|, \quad (2.2)$$

gdzie $*$ oznacza sprzężenie zespolone. Jeżeli jako bazę do opisu eksperymentu wybierzemy bazę zeemanowską, to powyższe równanie przyjmie postać:

$$\rho = \sum_{\substack{i,f,f' \\ m,m'}} W_i c_{fm}^{(i)} c_{f'm'}^{(i)*} |f, m\rangle\langle f', m'| := \sum_{\substack{f,f' \\ m,m'}} \rho_{f,f',m,m'} |f, m\rangle\langle f', m'|. \quad (2.3)$$

Należy zauważyć, że takie zdefiniowanie macierzy gęstości jest w zupełności wystarczające do opisanie wszystkich zjawisk jednoatomowych, czyli opierających się na wewnętrznej ewolucji pojedynczego atomu. Jednak efekty wielociałowe, takie jak splątanie kwantowe [24] czy wielociałowe ściskanie atomów [25, 26], wymykają się temu opisowi. Dlatego też ważnym pytaniem jest pytanie o to, na ile takie efekty są istotne dla atomów w postaci par atomowych umieszczonych w komórkach z parafinowym pokryciem ścian i czy opis przy pomocy kolektywnej macierzy gęstości jest w takim przypadku wystarczający.

Jednym z efektów wielociałowych obserwowanych w parach atomowych pierwiastków alkalicznych są zderzenia atomów z wymianą spinu. W zderzeniach tych dwa atomy zmieniają swój stan kwantowy, przy czym zmiana ta zachodzi tak, że zachowany jest wypadkowy rzut momentu pędu zderzających się atomów. W temperaturze pokojowej jednak, gęstość rubidu jest zbyt niska, aby efekt ten był znaczący i dlatego zazwyczaj mogą one zostać pominięte [5]. Warto jednak zauważyć, że w komórkach z gazem buforowym, które często ogrzewane są do temperatury 100 °C do 150 °C, w których to ciśnienie par rubidu rośnie o 3-4 rzędy wielkości, efekt zderzeń z wymianą spinów może mieć duży wpływ na ewolucję kwantową układu, a nawet prowadzi do powstawania mechanizmu SERF. Kolejne dwa efekty wielociałowe związane są z generowaniem splątania atomów światłem, co polega na oddziaływaniu atomów ze sobą przy pomocy fotonu. W pierwszym przypadku, oświetlenie atomów odstrojonym światłem (światłem próbkującym) może spowodować, że kilka atomów może oddziaływać dyspersyjnie z tym samym fotonem [24, 27]. Drugi z efektów związany jest z pompowaniem optycznym i polega na tym, że w przypadku oświetlenia atomów wiązką dostrojoną do rezonansu, fotony reemitowane w zjawisku emisji spontanicznej mogą być reabsorbowane przez inne atomy [20, 28]. Trzeba jednak zauważyć, że aby te efekty miały znaczący wpływ na ewolucję zespołu atomowego, ośrodek musi się charakteryzować wysoką gęstością optyczną [27, 29]. W przypadku par atomowych w temperaturze bliskiej temperatury pokojowej umieszczonych w komórce o długości rzędu centymetra, wielkość ta nie przekracza jedności, co oznacza, że efekty te są niedbywalne. Dlatego też, w rozważaniach zaprezentowanych w ramach niniejszej pracy efekty wielociałowe nie mają dużego wpływu na ewolucję rozważanego układu i opis przy użyciu jednociłowej kolektywnej macierzy gęstości jest dobrym przybliżeniem.

2.2 Poszerzenie dopplerowskie

Nieodzowną częścią pracy z parami atomowymi w temperaturze pokojowej jest konieczność uwzględnienia ruchu atomów. Ruch ten powoduje wiele efektów modyfikujących zachowanie i właściwości atomów w chmurze termicznej w stosunku do tych obserwowanych w atomach nieruchomych.

Jednym z najważniejszych efektów, jakie należy w takich układach uwzględnić, jest efekt Dopplera [5, 12]. Ruch atomów powoduje bowiem zmianę właściwości spektralnych ośrodka. Gdy atom porusza się bowiem w wiązce lasera, efektywna częstość światła obserwowana w układzie poruszającego się atomu jest równa $\omega = \omega_0 - \mathbf{k} \cdot \mathbf{v}$, gdzie ω_0 jest częstością przejścia w układzie spoczynkowym atomu, $\mathbf{k}$ jest jego wektorem falowym, natomiast $\mathbf{v}$ jest prędkością poruszającego się atomu [5, 20]. Natychmiastowym wnioskiem z analizy tej zależności jest fakt, że dla przesunięcia częstotliwości przejścia istotna jest tylko składowa prędkość atomu wzdłuż osi propagacji światła (nazwijmy ją z). To właśnie z jej powodu atom „odczuwa” przesunięcie dopplerowskie częstości o wartość $\Delta_D = -kv_z$.

Rozkład prędkości cząstek, będących w równowadze termodynamicznej, jest dany przez rozkład Maxwella [5, 20]

$$f_v(v) dv = \left(\frac{m}{2\pi k_B T} \right)^{3/2} e^{-mv^2/(2k_B T)} dv, \quad (2.4)$$

gdzie $v = v_x^2 + v_y^2 + v_z^2$, a v_i jest prędkością atomu w kierunku i , m jest masą atomu, natomiast T jest temperaturą par. Jako że interesująca, z punktu widzenia efektu Dopplera, jest tylko z -owa składowa prędkości, równanie (2.4) można wyciągnąć po płaszczyźnie prostopadłej, a następnie przepisać otrzymane wyrażenie przy pomocy przesunięć dopplerowskich odczuwanych przez poruszające się w próbce atomy

$$f_{\Delta_D}(\Delta_D) d\Delta_D = \frac{1}{\Gamma_D \sqrt{\pi}} e^{-\Delta_D^2/\Gamma_D^2} d\Delta_D, \quad (2.5)$$

gdzie $\Gamma_D = k\sqrt{2k_B T/m}$ jest nazywana szerokością dopplerowską. Dla rozpatrywanego w ramach niniejszej rozprawy rubidu-87 oraz wzbudzeń na linii D_1 , szerokość Dopplera w temperaturze pokojowej ($20 - 50^\circ\text{C}$) jest równa $\Gamma_D/2\pi \approx 300$ MHz.

Znajomość rozkładu częstości „odczuwalnych” przez atomy w gazie (2.5) pozwala na sformułowanie ogólnej metody transformowania zależności spektralnych dla atomów spoczywających do układów o znanym poszerzeniu dopplerowskim. Odbywa się to poprzez wykonanie spłotu badanej zależności spektralnej $\alpha(\Delta)$ z rozkładem (2.5)

$$\alpha_D(\Delta) = (\alpha * f_{\Delta_D})(\Delta) = \int_{-\infty}^{\infty} \alpha(\Delta + \Delta_D) f_{\Delta_D}(\Delta_D) d\Delta_D. \quad (2.6)$$

Taka metoda jest standardowym podejściem w analizie ośrodków poszerzonych dopplerowsko, została ona zastosowana przez doktoranta przykładowo w pracy [A], aby zmodyfikować przewidziane zależności amplitudy skrócenia płaszczyzny polaryzacji od odstrojenia światła. W tym konkretnym przypadku efekt Dopplera spowodował znaczące poszerzenie szerokości spektralnej badanej zależności (z 6 do 300 MHz) oraz wyraźną zmianę kształtu linii z

profilu lorentzowskiego na profil Voigta [30]. Jest to również podręcznikowy przypadek splotu dwóch struktur spektralnych, z których szerokość jednej jest znacząco mniejsza. W granicznym przypadku, gdy wąska struktura staje się deltą Diraca, wynikiem splotu będzie odtworzenie profilu maxwellowskiego (2.5), co skutkuje poszerzeniem struktury do szerokości dopplerowskiej i takiegoż też kształtu. Dodatkowo, ze względu na fakt iż rozkład (2.5) jest unormowany do jedności, omawiany splot zachowuje pole zawarte pod badaną strukturą, wynikiem czego poszerzeniu badanej struktury towarzyszy również znaczący spadek jej amplitudy. Ta procedura pozwoliła, w artykule [C], przewidzieć, w jaki sposób odstrojenie wiązki próbującej wpływa na stabilność procesu rekonstrukcji. Zależność ta została później zweryfikowana eksperymentalnie, co dowiodło poprawności tego podejścia. Dodatkowo, w artykule [B], pozwoliła ona przewidzieć złamanie efektu selektywności transferu populacji poprzez procedurę STIRAP, która została zauważona w układach wielopoziomowych.

2.3 Mechanizmy relaksacji polaryzacji atomowej

Jednym z istotnych efektów, które należy brać pod uwagę podczas przygotowywania doświadczeń w ciepłych parach atomowych są, charakterystyczne dla takiego ośrodka, mechanizmy relaksacji polaryzacji atomowej (kwantowego atomu). Można je umownie podzielić na 3 typy: (1) pochodzące od zderzeń atomów stanowiących gaz, (2) wynikające ze zderzeń atomów gazu ze ściankami naczynia, oraz (3) wynikające z niejednorodności pól oddziałujących z atomami próbki.

Z punktu widzenia relaksacji wynikającej ze zderzeń międzyatomowych możemy wyróżnić dwa typy zderzeń: (1) zderzenia z wymianą stanu spinowego (ang. *spin-exchange collisions*) oraz (2) zderzenia niszczące stan spinowy (ang. *spin-destruction collisions*) [11, 20, 31]. Zderzenia pierwszego rodzaju to niskoenergetyczne zderzenia, przy których następuje wymiana stanu spinu elektronów walencyjnych dwóch zderzających się atomów, a hamiltonian oddziaływania dany jest przez:

$$\hat{H}_{int} = V(r) \hat{\mathbf{S}}^{(1)} \cdot \hat{\mathbf{S}}^{(2)}, \quad (2.7)$$

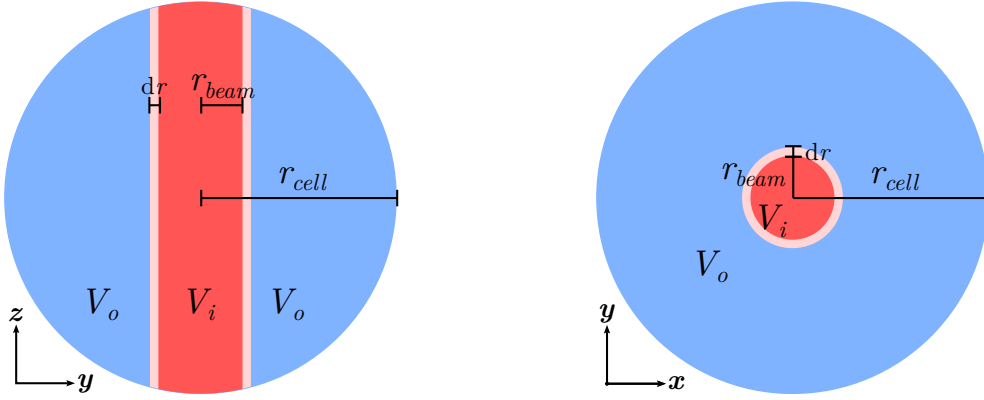
gdzie $\hat{\mathbf{S}}^{(i)}$ oznacza operator spinu elektronu walencyjnego i -tego atomu, natomiast $V(r)$ jest potencjałem zależnym od odległości pomiędzy jądrami atomowymi. Takie oddziaływanie spełnia dwie, bardzo istotne z punktu widzenia efektywnej ewolucji atomów własności. Po pierwsze zachowuje całkowity spin elektronowy zderzających się atomów, a po drugie nie wpływa na zmianę ich spinu jądrowego. Oznacza to, że efekt zderzeń z wymianą spinów polega głównie na wymianie stanów nadsubtelnych zderzających się atomów [31]. Jak zostało wspomniane w rozdziale 1.1, dwa stany nadsubtelne stanu podstawowego w rubidzie, a nawet ogólniej w metalach alkalicznych, charakteryzują się równymi co do wartości ale przeciwnymi co do znaku czynnikami żyromagnetycznymi. Wynikiem tego zderzenia z wymianą spinu powodują mikroskopowo odwrócenie znaku ewolucji w polu magnetycznym, a w konsekwencji makroskopowo defazowanie stanu spinowego grupy atomów. W temperaturach od 50 do 150 °C, to ten mechanizm relaksacji jest dominujący wobec relaksacji wywołanej zderzeniami niszczącymi stan

spinowy, natomiast w temperaturach wyższych relaksacja wywołana zderzeniami z wymianą spinów zaczyna być ograniczana poprzez efekt SERF. Przykładowo przekrój czynny na zderzenia z wymianą spinów dla rubidu-87 wynosi $1.9(2) \times 10^{-14} \text{ cm}^2$ [32], co, przy średniej wartości prędkości w temperaturze 40°C wynoszącej 276 m/s i gęstości par około $10^{11} \text{ atom cm}^{-3}$ [8], daje średni czas pomiędzy zderzeniami wynoszący 19 ms , podczas gdy dla tych samych warunków i przy przekroju czynnym wynoszącym $1.6 \times 10^{-17} \text{ atom cm}^{-3}$ [33], średni czas pomiędzy zderzeniami niszczącymi stan spinowy wynosi $T_{de} = 22.6 \text{ s}$.

Drugim mechanizmem relaksacji są zderzenia atomów ze ściankami naczynia. Ze względu na bardzo niską gęstość atomową panującą w komórce (typowo $10^{11} \text{ atom cm}^{-3}$ [34]), prawdopodobieństwo zderzenia się atomów rubidu jest niezwykle niskie (średnia droga swobodna atomu jest około 10^2 razy większa niż rozmiary komórki). Oznacza to, że ruch atomów w przestrzeni jest balistyczny (atom porusza się głównie po liniach prostych pomiędzy ściankami komórki), a nie jest, jak w typowych gazach, błędzeniem przypadkowym. W przypadku wykorzystania szklanej komórki bez żadnych specjalnych pokryć ścian, praktycznie każde zderzenie ze ściankami powoduje depolaryzację atomu [11]. Oznacza to, że przy komórce o średnicy 35 mm w temperaturze pokojowej średni czas pomiędzy depolaryzującymi zderzeniami wynosi około $100 \mu\text{s}$. Aby zwiększyć ten czas powszechnie wykorzystywane są pokrycia parafinowe [11, 35]. Zwiększają one ilość zderzeń wymaganych do depolaryzacji atomu do wartości $10^3 - 10^4$, w zależności od rodzaju wykonanego pokrycia oraz geometrii komórki [34, 36]. Sam mechanizm zderzenia atomu z pokryciem parafinowym polega na chwilowym osadzeniu się atomu na warstwie parafiny, a następnie jego desorpcji z powierzchni. Cały proces absorpcja-desorpcja trwa średnio około 10 ns [36] i zachowuje stan spinowy atomu. Głównym mechanizmem, wpływającym na obniżenie czasu relaksacji związanego ze zderzeniami ze ściankami, jest zderzenie atomu z niedoskonałościami pokrycia parafinowego lub uwięzienie w kropli metalicznego rubidu osadzonego na pokryciu. W obu przypadkach stan spinowy atomu jest od razu niszczone. W komórkach z pokryciem parafinowym średni czas życia atomu T_w jest w granicach 10 ms do 1 s , co jest wartością porównywalną z czasem pomiędzy zderzeniami z wymianą spinów.

2.4 Modelowanie efektów w komórkach z pokryciem parafinowym

Kolejnym istotnym efektem, który wynika z termicznego ruchu atomów jest uśrednianie oddziaływań, którym podlegają atomy [37]. Dzieje się tak dlatego, że atom, poruszając się w komórce, w różnych chwilach czasu próbkuje inne obszary przestrzeni. W przypadku gdy pola oddziałujące na próbkę nie są jednorodne, atom podlega różnym warunkom ewolucji. Przykładowo, inaczej ewoluować będzie stan kwantowy atomu, gdy będzie on przechodził przez obszar, w którym oddziałuje z rezonansową wiązką światła, a inaczej gdy światło to jest nierezonansowe, indukując np. dynamiczny efekt Starka, lub gdy nie ma go wcale. Podobnie inna będzie ewolucja stanu atomu w stałym polu magnetycznym, a inna gdy pole to jest przestrzennie niejednorodne, co z punktu widzenia poruszającego się atomu implikuje oddzia-



Rysunek 2.1: Schemat podziału obszarów wykorzystanych w modelowaniu, pokazanych z dwóch rzutów: a) w płaszczyźnie YZ oraz b) w płaszczyźnie XY. Obszar zaznaczony na czerwono i oznaczony jako V_i odpowiada obszarowi oddziaływania z wiązką, natomiast obszar niebieski, nazwany jako V_o to obszar bez wiązki laserowej. Dodatkowo jasnoróżowy kolor oznacza obszar wewnątrz V_o , który znajduje się w infinytezymalnym otoczeniu granicy obszarów.

ływanie z polem zależnym od czasu. W końcu wpływ na ewolucję ma również czas, w którym atom podlega takiemu czy innemu oddziaływaniu. Pokazuje to, że ruch atomów w objętości, w której oddziaływanie zależy od miejsca w przestrzeni wymaga odpowiedniego modelowania takich układów.

2.4.1 Modelowanie stanów stacjonarnych z wyróżnieniem obszaru wiązki laserowej

Pierwszą metodą modelowania wykorzystaną w ramach cyklu prac stanowiących niniejszy doktorat było modelowanie oddziaływania atomów z wiązką światła pompującą atomy do stanu stacjonarnego (stan taki stanowił stan początkowy dla wielu dalszych badań). Metoda ta jest oparta o precyzyjne wyliczanie stanu odpowiadającego równowadze termodynamicznej pomiędzy procesami zachodzącymi w obszarze oświetlonym wiązką laserową (w wiązce światła) oraz w obszarze ciemnym (poza wiązką światła). W modelu tym niejednorodności natężenia w wiązce zostały zaniedbane, tzn. wiązka laserowa opisywana jest jednorodnym profilem natężeniowym obejmującym skończoną przestrzeń w obszarze komórki [15, 37]. Jak pokazano na Rys. 2.1, wiązka światła została w takim modelowaniu podzielona na dwa wyraźnie rozgraniczone obszary: pierwszy, w którym atomy nie oddziałują ze światłem, natomiast mogą swobodnie zderzać się ze ściankami komórki, co powoduje relaksację, oraz drugi obszar, w którym atomy oddziałują z wiązką laserową. Warto zauważyć, że gdy rozmiar poprzeczny wiązki jest mały, $r_{beam} \ll r_{cell}$, można uprościć obliczenia zakładając, że w obszarze z wiązką nie następuje relaksacja ze względu na zderzenia ze ściankami, co wynika z niewielkiego przekrycia omawianego obszaru ze ściankami komórki. Oprócz uwzględnienia oddziaływania ze światłem i relaksacji podczas zderzeń ze ściankami komórki w rozważaniach należy dodatkowo uwzględnić pole magnetyczne.

Z punktu widzenia obliczeniowego, uwzględnienie dwóch obszarów oddziaływania można

przedstawić jako układ o dodatkowym (przestrzennym) stopniu swobody

$$\rho = \sum_{\substack{\alpha, \alpha' \\ f, f' \\ m, m'}} \rho_{\alpha, \alpha', f, f', m, m'} |\alpha, f, m\rangle \langle \alpha', f', m'|, \quad (2.8)$$

gdzie $\alpha = i(o)$ odpowiada za pozycję atomu w wiązce lub poza nią. Takie rozszerzenie przestrzeni fazowej powoduje znaczne zwiększenie wymiarowości problemu, tj. liczba dostępnych stanów zwiększa się dwukrotnie, czyli wymiar macierzy gęstości wzrasta czterokrotnie. Okazuje się jednak, że tak postawiony problem jest przewymiarowany i można go uprościć. Należy zauważyć, że jedynym mechanizmem, w ramach którego atom może przejść pomiędzy obszarami jest termiczny ruch atomów uśredniony po ich relatywnie dużej liczbie. W efekcie podczas przejścia przez granicę obszarów zachowany jest tylko stan podstawowy układu $|o(i), f, m\rangle$, a stany wzbudzone i koherencje optyczne ulegają relaksacji. Oznacza to również, że nie ma mechanizmu generującego koherencje pomiędzy stanami w obu obszarach, co z kolei powoduje, że dla $f \neq f'$ wszystkie elementy $\rho_{i, o, f, f', m, m'} = \rho_{o, i, f, f', m, m'} = 0$. Dzięki temu znacząco zmniejsza się wymiarowość problemu¹, a macierz gęstości może zostać zapisana jako suma prosta

$$\rho = \rho_i \oplus \rho_o, \quad (2.9)$$

gdzie $\rho_\alpha = \sum_{\substack{f, f' \\ m, m'}} \rho_{\alpha, \alpha, f, f', m, m'} |\alpha, f, m\rangle \langle \alpha, f', m'|$.

W analogiczny sposób do rozważań dla macierzy gęstości, tj. do podejścia, w którym rozdzielamy rozważania dla obszarów V_i oraz V_o , możemy skonstruować hamiltonian całego układu oraz operatory relaksacji i repopulacji (równanie (1.22)):

$$\hat{H}(\Delta) = \hat{H}_i(\Delta) \oplus \hat{H}_o, \quad (2.10)$$

$$\hat{\Gamma} = \hat{\Gamma}_i \oplus \hat{\Gamma}_o, \quad (2.11)$$

$$\hat{\Lambda}(\rho) = \hat{\Lambda}_i(\rho_i) \oplus \hat{\Lambda}_o(\rho_o), \quad (2.12)$$

gdzie $\hat{H}_{i(o)}$, $\hat{\Gamma}_{i(o)}$ oraz $\hat{\Lambda}_{i(o)}$ są operatorami zdefiniowanymi odpowiednio w wiązce i poza nią². Warto zauważyć, że w tej metodzie, pomimo wyraźnego rozgraniczenia na dwa obszary, możliwe jest opisywanie oddziaływań obejmujących cały obszar komórki. Standardowym przykładem może być tutaj pole magnetyczne, które jest opisane jako pole jednorodne obecne w obu obszarach.

Do tego momentu w matematycznym opisie ewolucji pominięte zostały procesy przejścia atomów pomiędzy obszarami V_i oraz V_o . Jak już wspomniano, przelewanie populacji i koherencji zeemanowskich pomiędzy obszarami w rzeczywistym eksperymencie odpowiada przelatywowaniu atomów przez granicę obszarów. Proces ten z natury jest procesem stochastycznym, a więc efektywnie niekoherentnym. Proces przejścia przez granicę może być modelowany

¹Przedstawione tutaj rozważania opierają się na modelu z dwoma obszarami oddziaływania, jednak warto zauważyć, że ten sam tok myślowy można uogólnić na większą liczbę obszarów, gdzie przedstawione uproszczenie znacznie zyskuje na znaczeniu, ponieważ redukuje ono skalowanie wymiaru problemu z kwadratowego, względem ilości obszarów, do liniowego.

²Warto zauważyć, że jedynym operatorem zależnym od odstrojenia wiązki laserowej jest $\hat{H}_i$.

poprzez odpowiedni kanał relaksacji i repopulacji, który efektywnie „zabiera” atomy z jednego obszaru i „dodaje” je w tym samym stanie spinowym do drugiego. Jest to wyjątkowo proste do przedstawienia za pomocą operatorów Lindblada, gdzie wystarczy wprowadzić zbiór operatorów o postaci $\hat{L}^{i(o)} = \sqrt{\gamma_{i(o)}} \sum_{f,m} |o(i), f, m\rangle \langle i(o), f, m|$, co jednocześnie prowadzi do następującej postaci operatorów relaksacji i repopulacji³:

$$\hat{\gamma}_{i(o) \rightarrow o(i)} = \hat{L}^{i(o)\dagger} \hat{L}^{i(o)} = \gamma_{i(o)} \hat{\mathbb{1}}_{i(o)}, \quad (2.13)$$

$$\hat{\Lambda}(\rho)_{i(o) \rightarrow o(i)} = \hat{L}^{i(o)} \rho \hat{L}^{i(o)\dagger} = \gamma_{i(o)} \sum_{\substack{f,f' \\ m,m'}} |o(i), f, m\rangle \langle o(i), f', m'| \rho_{i(o), i(o), f, f', m, m'}, \quad (2.14)$$

gdzie $\gamma_{i(o)}$ jest współczynnikiem przejścia (ang. *rate of transition*) mówiącym o szybkości z jaką atomy przelatują z obszaru $o(i)$ do obszaru $i(o)$.

Określenie współczynników przejścia pomiędzy obszarami można rozpocząć od rozważenia zmiany liczby atomów w obszarze V_o

$$dN_o = [-\gamma_o N_o + \gamma_i N_i] dt = 0, \quad (2.15)$$

gdzie $N_{i(o)}$ jest liczbą atomów w obszarze oświetlonym i nieoświetlonym światłem, zaś ostatnia równość zakłada istnienie równowagi termodynamicznej w układzie. Istnienie równowagi termodynamicznej implikuje również fakt, że gęstość atomów n_{at} jest dobrze określona jako:

$$n_{at} = \frac{N_o}{V_o} = \frac{N_i}{V_i}. \quad (2.16)$$

Warto w tym miejscu rozważyć zachowanie atomów znajdujących się pomiędzy dwoma obszarami, czyli w infimezymalnie wąskim (grubość dr) obszarze tuż nad granicą V_i (Rys. 2.1). Objętość tego obszaru dana jest jako $S dr$, gdzie S jest powierzchnią granicy obszarów. Korzystając z wcześniej wprowadzonej gęstości atomowej, można oszacować liczbę atomów tuż przy granicy obszarów jako $S n_{at} dr$. Ponieważ rozkład prędkości atomów nie wyróżnia żadnego kierunku, można przyjąć, że dokładnie połowa, z tak wyznaczonej liczby atomów przekroczy granicę obszarów i przejdzie do obszaru V_i , a połowa pozostanie w obszarze V_o . Oznacza to, że zmiana liczby atomów w obszarze V_o na skutek ucieczki atomów z obszaru przygranicznego o szerokości dr wynosi:

$$dN_o|_{o \rightarrow i} = -\frac{1}{2} S n_{at} dr. \quad (2.17)$$

Możemy teraz, korzystając ze średniej prędkości atomów, obliczyć ubytek atomów z obszaru dr w czasie dt . Aby wyliczyć średnią prędkość atomów przekraczających granicę należy wykorzystać rozkład Maxwella danego równaniem (2.4) i wyliczyć wartość oczekiwaną składowej prędkości, która jest prostopadła do powierzchni S :

$$dN_o|_{o \rightarrow i} = -S n_{at} \sqrt{\frac{k_b T}{2\pi m}} dt = -\frac{S}{V_o} \sqrt{\frac{k_b T}{2\pi m}} N_o dt = -\gamma_o N_o dt. \quad (2.18)$$

³Należy zauważyć, że sumowanie przebiega również po stanach wzbudzonych.

Analogiczne rozumowanie można przeprowadzić dla dopływu atomów z obszaru V_i , co ostatecznie daje następującą relację na liczbę atomów opuszczających obszar V_o :

$$dN_o = \left[-\frac{S}{V_o} \sqrt{\frac{k_b T}{2\pi m}} N_o + \frac{S}{V_i} \sqrt{\frac{k_b T}{2\pi m}} N_i \right] dt = [-\gamma_o N_o + \gamma_i N_i] dt. \quad (2.19)$$

Uwzględnienie wszystkich opisanych powyżej procesów pozwala na zapisanie równania Liouville'a rozważanego układu. W sytuacji stacjonarnej przyjmuje ono postać:

$$0 = \frac{d\rho}{dt} = [\hat{H}(\Delta), \rho] - \frac{i}{2} \{ \hat{\Gamma}, \rho \} + \hat{\Lambda}(\rho) - \sum_{\substack{\alpha, \alpha' = i, o \\ \alpha \neq \alpha'}} \left(\frac{i}{2} \{ \hat{\gamma}_{\alpha \rightarrow \alpha'}, \rho \} - \hat{\Lambda}(\rho)_{\alpha \rightarrow \alpha'} \right), \quad (2.20)$$

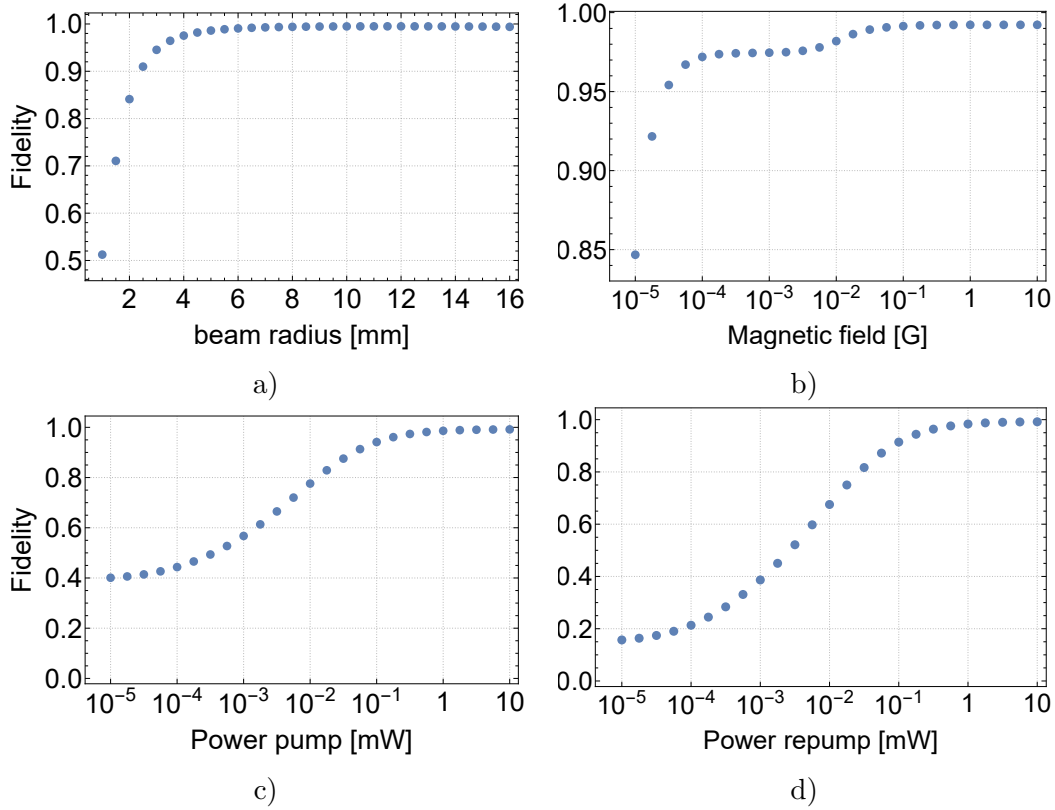
gdzie pierwsza część odpowiada standardowej postaci równania Liouville'a (1.22), natomiast druga opisuje mechanizm przelewania atomów pomiędzy obszarami. Warto zauważyć, że tak postawiony problem polega na rozwiązaniu układu równań liniowych, co powoduje, że numeryczne znajdowanie rozwiązań takiego układu jest proste i efektywne.

Należy w tym miejscu zauważyć, że rozwiązanie równania (2.20) pozwala na obliczenie rozwiązania jedynie dla jednej, konkretnej klasy prędkości atomów, determinowanej przez efektywne odstrojenie Δ „odczuwane” przez poruszające się atomy. Aby uzyskać wynik odpowiadający ośrodkowi poszerzonemu dopplerowsko, należy rozwiązać powyższe równanie dla zbioru różnych odstrojeń, który można ustalić za pomocą rozkładu odstrojeń (2.5), a następnie obliczyć średnią ważoną zgodnie z rozkładem (2.5).

Omówiony powyżej sposób modelowania jest szczególnie użyteczny w przypadku rozważania stanów stacjonarnych atomów występujących w postaci termicznych par umieszczonych w pojemnikach (komórkach) z antyrelaksacyjnym (parafinowym) pokryciem ścian, gdzie sprowadza się on do rozpisania równania Liouville'a i nie wymaga wykorzystania metod Monte Carlo. Metoda ta została m.in. wykorzystana przy wyznaczaniu efektywności pompowania atomów w takich układach oraz optymalizacji efektywności tego procesu w funkcji mocy, dostrojenia oraz średnicy wiązki światła. Szczególnie istotne są tutaj wnioski dotyczące zależności efektywności pompowania od mocy wiązki oraz jej średnicy. Wyniki przeprowadzonych symulacji, przy założonych parametrach zgodnych z projektowanym eksperymentem (patrz Rys. 2.2), stoją w zgodności z efektem opisywanym w [15, 37], że efektywność pompowania nie zależy od jej średnicy, a jedynie od całkowitej mocy wiązki. W celu oszacowania zakresu parametrów, w których powinny leżeć szukane wartości, można wykorzystać zmodyfikowane wyrażenie na parametr nasycenia dla przejścia nadsubtelnego [38] w komórkach parafinowych

$$\kappa_{hf} = \frac{\Omega_R^2}{\Gamma_\gamma} \frac{\Gamma}{\Gamma_D} \frac{V_i}{V_{cell}}. \quad (2.21)$$

To samo modelowanie pozwoliło na zaprojektowanie metody przygotowania stanów z wykorzystaniem repompowania drugiego stanu nadsubtelnego, co jest niezwykle istotne dla procesów tomografii i inżynierii stanów kwantowych, gdyż nie pozwala na pułapowanie atomów w tzw. ciemnym, tj. nie oddziałującym ze światłem stanie kwantowym (patrz rozdział 3.1.3. Przygotowanie tej procedury wymagało wyznaczenia granicznych wartości mocy wiązek pompującej i repompującej, ich średnicy, ale także optymalizacji kierunku i mocy przykładanego pola magnetycznego.



Rysunek 2.2: Wykresy wierności wytwarzania stanu metodą opisaną w rozdziale 3.1.3, otrzymane poprzez modelowanie z podziałem komórki na 2 obszary. W pompowaniu założono pompowanie światłem liniowo spolaryzowanym w osi z , repompowanie światłem spolaryzowanym w osi y - obie przekierowujące się i propagujące wzdłuż osi x . Dodatkowo obecne było jednorodne pole magnetyczne o natężeniu 10 mG ustawione w osi z . Wykorzystanie takiej konfiguracji pompowania zostało szerzej wyjaśnione w rozdziale 3.1.3. Wszystkie parametry symulacji są zgodne z wykorzystanymi w układzie eksperymentalnym z [C, D], czyli średnica komórki wynosząca 33 mm, moc każdej z wiązek 7 mW oraz promień 4.5 mm (chyba że na wykresie oznaczono inaczej). Wiązki są dostrojone do przejść, a cały efekt został wyliczony dla poszerzenia dopplerowskiego odpowiadającego temperaturze 40 °C.

2.4.2 Modelowanie efektów transientowych oraz niejednorodności

Zupełnie inne podejście do modelowania dynamiki atomów w komórce z pokryciem parafinowym zostało wykorzystane, gdy obiektem zainteresowania były efekty dynamiczne. W ramach pracy nad artykułem [C], metoda ta została wykorzystana do oceny wpływu niejednorodności cewek na efekt działania przykładanych impulsów. Po niewielkich uogólnieniach pozwala ona również na uwzględnienie impulsów światła. W takim przypadku przyjęto sposób modelowania oparty o symulacje Monte Carlo, w których atom porusza się w ograniczonej przestrzeni w zadanym polu. Otwiera to dodatkowe możliwości, gdyż tutaj, w przeciwieństwie do poprzedniej metody, symulowane warunki, w tym np. pole magnetyczne, nie muszą być jednorodne w jakimkolwiek obszarze, ale mogą być wyrażone funkcją o dowolnej zależności przestrzennej.

Jest oczywistym, że opisywana metoda wymaga dużych zasobów obliczeniowych ze względu na fakt, iż przy termicznych prędkościach atomów oraz relatywnie niewielkich rozmiarach komórek należy zastosować relatywnie krótki krok czasowy, a odtworzenie zachowania grupy atomów wymaga wielokrotnego iterowania symulacji w celu zebrania reprezentatywnej statystyki. Powoduje to, że rozwiązywanie pełnego równania Liouville’a (1.22) w każdym kroku znacznie ogranicza użyteczność tego rodzaju symulacji. Pewnym uproszczeniem przy symulowaniu wpływu niejednorodnych pól magnetycznych na ewolucję atomów jest wykorzystanie równania Blocha [E, 21]

$$\frac{d}{dt}\mathbf{F}(t) = \gamma_F \hat{\mathbf{F}} \times \mathbf{B}, \quad (2.22)$$

gdzie $\mathbf{F}(t) = \text{Tr}(\rho \hat{\mathbf{F}})$ jest wartością oczekiwaną operatora momentu pędu. Warto zauważyć, że w przeciwieństwie do standardowego równania Blocha, nie uwzględniono tutaj procesów relaksacji, a jedynie unitarną ewolucję pochodzącą od pola magnetycznego. Odpowiada to symulowaniu stochastycznych kwantowych trajektorii ze stochastycznymi skokami realizującymi procesy relaksacji w danym układzie, a następnie obserwowaniu efektu uśrednionego po odpowiednio dużej próbie statystycznej.

Podstawową kwestią w tak postawionym problemie są założenia odnośnie ruchu atomów. Jak zostało wspomniane w rozdziale 2.3, ruch atomów w komórkach z pokryciem parafinowym i bez gazu buforowego jest ruchem balistycznym. Dzięki temu model ruchu atomów w przestrzeni jest bardzo prosty, wymaga jednak uwzględnienia mechanizmu zderzenia ze ściankami naczynia. Jak wspomniano wyżej, gdy atom uderza w ściankę komórki, nie następuje jego odbicie sprężyste, ale osadzenie atomu na powierzchni, a następnie „uwolnienie” w czasie średnio 10 ns. Przy całym procesie stan kwantowy atomów jest zachowany. Proces absorpcja-desorpcja jest więc równoważny losowaniu nowej wartości prędkości atomu z rozkładu Maxwella (2.4), natomiast kąta z rozkładu $f_{\varphi,\vartheta}(\varphi, \vartheta) = \cos \vartheta / (2\pi)$, gdzie $\vartheta \in (0, \pi/2)$ jest kątem od osi normalnej do komórki w punkcie desorpcji, a kąt φ jest kątem w płaszczyźnie stycznej do tego punktu [15, 37]. Jest to rozkład, który jest tożsamy z warunkowym losowaniem wszystkich trzech składowych prędkości z rozkładu Maxwella, gdzie odrzucone zostają przypadki, kiedy zwrot prędkości atomu wybiega poza komórkę.

Kolejnym, równie istotnym efektem, który należy uwzględnić, są opisane w rozdziale 2.3

mechanizmy relaksacji. Ze względu na fakt, iż w tej symulacji rozpatrywana jest trajektoria i ewolucja pojedynczego atomu, nie jest konieczne rozważanie uśrednionej relaksacji w postaci operatora relaksacji (1.22). Zamiast tego można skupić się na fizycznym procesie i jego skutkach na pojedynczy atom. Takie procesy mają charakter punktowy w czasie, ale ich występowanie jest czysto stochastyczne. Pierwszym rozważanym mechanizmem relaksacji jest relaksacja przez zderzenia ze ściankami komórki. Jak zostało wcześniej opisane, wykorzystanie parafiny ogranicza ten kanał relaksacji, jednakże nie tłumi go całkowicie, z prawdopodobieństwem $1 : 10^3$ stan spinowy zostanie całkowicie zmieniony [15]. W takich sytuacjach losowany jest nowy zupełnie niezależny stan spinowy. Drugim mechanizmem relaksacji jest relaksacja przez zderzenia niszczące stan spinowy, jednak ze względu na wyjątkowo małe prawdopodobieństwo zajścia tego procesu może on zostać zaniedbany. Na koniec należy uwzględnić mechanizm relaksacji przez zderzenia z wymianą spinów, gdzie z prawdopodobieństwem dt/T_{se} , gdzie dt to odstęp czasu pomiędzy kolejnymi krokami symulacji, atom ulega zderzeniu z wymianą spinu [39].

Ze względu na dużą złożoność obliczeniową, jak i również łatwe akumulowanie błędów numerycznych podczas obliczeń ewolucji, istotnym jest korzystanie z metod upraszczających obliczenia. Dobrą praktyką jest wybranie na tyle małego kroku dt , aby móc założyć, że w tym czasie atom znajduje się w stałym i jednorodnym polu. Pozwala to na analityczne rozwiązanie ewolucji atomu na każdym przedziale czasu $[t_i, t_i + dt)$ względem zmieniającego się pola.

Przedstawiona w niniejszym rozdziale technika pozwoliła na oszacowanie wpływu niejednorodności pól magnetycznych wykorzystanych do generowania impulsów kontrolnych w pracach [C] oraz [D], pokazując, że niejednorodności pola powodują defazowanie stanu, które w geometrii wykorzystywanej w eksperymencie jest zaniedbywalne.

2.4.3 Uwagi podsumowujące rozdział

Modelowanie zachowania atomów w gazach termicznych, tj. w ośrodkach zbudowanych z atomów poruszających się (poszerzenie dopplerowskie linii) nastrocza pewnych trudności, z których większość wynika ze stochastycznej natury ruchu atomów. Najdokładniejsze wyniki modelowania takich układów zapewniają symulacje Monte Carlo z pełnym rozwiązywaniem równań Liouville’a w każdym kroku. Jest to jednak metoda niezwykle wymagająca w kontekście wykorzystania zasobów obliczeniowych, a w efekcie bardzo powolna. W większości przypadków zupełnie wystarczające jest wykorzystanie uproszczonych metod. W przypadku gdy obszarem zainteresowania są stany stacjonarne układu, warto skorzystać z metody opisanej w rozdziale 2.4.1, należy jednak pamiętać o jej zasadniczym ograniczeniu, jakim jest założenie o jednorodności oddziaływań na wydzielonych obszarach komórki. Dodatkowo w swojej najprostszej wersji taka metoda pozwala na uwzględnienie tylko zaburzeń stałych w czasie. Jednakże znane są w literaturze metody znajdowania rozwiązań stacjonarnych dla zaburzeń periodycznych [40].

W przypadku analizy efektów przejściowych, przykładowo odpowiedzi układu na zaburzenia impulsowe, nadal możliwe jest skorzystanie z powyższej metody. Wymaga to jednak wtedy pełnego rozwiązywania różniczkowego równania Liouville’a zamiast jego postaci stacjonarnej,

będącej liniowym układem równań. Metoda ta jednak, tak samo jak jej stacjonarna wersja, zakłada jednorodność oddziaływań w ramach wskazanych obszarów. Gdy natomiast wymagane jest symulowanie wpływu niejednorodności na ewolucję układu atomowego, koniecznym jest wykorzystanie metod Monte Carlo.

Rozdział 3

Inżynieria i tomografia stanu kwantowego

Celem niniejszego rozdziału jest przeprowadzenie Czytelnika przez cykl prac będących podstawą niniejszej rozprawy, która jest częścią większego projektu jakim jest rozwój inżynierii stanów kwantowych w ciepłych parach atomowych. Pierwsza część tego rozdziału została poświęcona opisowi techniki tomografii stanów kwantowych, zarówno od strony teoretycznej obejmującej opracowanie techniki oraz jej analizę numeryczną, jak i eksperymentalnej, w ramach której autor zbudował i zaprogramował układ eksperymentalny, a następnie wykonał badania porównawcze z wynikami analiz numerycznych. Druga część tego rozdziału to krok w stronę metrologii kwantowej. W tej części zaprezentowana została nowo opisana klasa stanów kwantowych: *perfect quantum protractors*. W ramach niniejszego cyklu prac została zaprezentowana metoda ich wytwarzania w układach atomowych oraz zostały zbadane własności tej klasy stanów w kontekście pomiaru kątów obrotu. Ostatnia część tego rozdziału opisuje proces łamania warunku lokalnej adiabatyczności, który rozważany był w kontekście zjawiska STIRAP obserwowanego w układzie rubidu-87.

3.1 Tomografia stanów kwantowych

Najczęściej stosowaną techniką pomiaru stanów kwantowych w eksperymentach bazujących na magnetycznym rezonansie jądrowym (ang. *nuclear magnetic resonance* – *NMR*) jest pomiar zaniku magnetyzacji, zwany także, z uwagi na specyfikę pomiarów w tradycyjnego NMR, pomiarem sygnałów FID (ang. *free induction decay* – *FID*) [41, 42]. Technika ta polega na pomiarze makroskopowej magnetyzacji próbki za pomocą zewnętrznego czujnika pola magnetycznego, zazwyczaj w postaci cewki dostrojonej do częstotliwości konkretnego przejścia w strukturze badanej próbki. Jak zostało pokazane przez doktoranta w pracy [A], jeżeli przez próbkę termicznych par atomowych pierwiastków alkalicznych zamkniętych w komórce szklanej przechodzi wiązka liniowo spolaryzowanego światła, której oś propagacji pokrywa się z osią przyłożonego pola magnetycznego, to w sytuacji nierównowagowej polaryzacja światła ulega periodycznej modulacji, efektywnie odtwarzając zachowanie obserwowane w magnetycznym rezonansie jądrowym (przy założeniu, że wszystkie zaburzenia zewnętrzne poza dwoma wymienionymi wyżej, np. światło pompujące i repompujące, są wyłączone). Dodatkowo praca [A] wskazuje jawne równania opisujące otrzymywane sygnały w dowolnym układzie spinyowym. Zostały one wyprowadzone wychodząc z równań (1.30) i (1.34) oraz wykorzystując serię przybliżeń charakterystycznych dla wykorzystanego ośrodka. Najważniejszymi z nich są założenia o charakterystycznych relacjach pomiędzy czasami relaksacji stanu nadsubtelnego

a szerokością naturalną stanu wzbudzonego, $\gamma \ll \Gamma$, o niskim natężeniu wiązki próbkującej, co objawia się liniowością otrzymanych równań względem amplitudy pola elektrycznego E_0 , oraz o odstrojeniu światła próbkującego, które jest znacznie większe niż częstość Larmora ewolucji w polu magnetycznym, $\Omega_L \ll \Delta$, przy czym w przeciwieństwie do innych prac z zakresu tomografii stanów atomowych [19], odstrojenie to nie jest traktowane w limicie bardzo dalekich odstrojeń. Następnie otrzymana zależność została w pracy [C] przedstawiona w bardziej przyjaznej, z eksperymentalnego punktu widzenia, postaci:

$$\delta\alpha(t; \Delta) = \eta(\Delta) \left(e^{-\gamma_1 t} [\langle \hat{\alpha}_R \rangle \sin(2\Omega_L t) + \langle \hat{\alpha}_I \rangle \cos(2\Omega_L t)] - \zeta(\Delta) e^{-\gamma_2 t} \langle \hat{\beta} \rangle \right), \quad (3.1)$$

gdzie Δ jest odstrojeniem wiązki laserowej od przejścia atomowego, $\eta(\Delta)$ oraz $\zeta(\Delta)$ są tzw. globalnym i lokalnym czynnikiem skalującym, $\gamma_{1(2)}$ stałymi relaksacji, odpowiednio, składowej poprzecznej i podłużnej magnetyzacji atomowej, natomiast $\hat{\alpha}_{I(R)}$ oraz $\hat{\beta}$ są operatorami zależnymi od struktury poziomów energetycznych. Co ciekawe, wyrażenie (3.1) jest w pełni analogicznym wyrażeniem na rejestrowany sygnał w stosunku do wyrażeń otrzymywanych w klasycznych eksperymentach NMR [41] oraz ciałostalowych układach półprzewodnikowych [43]. Dzięki temu obserwacje zaprezentowane w powstałych w ramach niniejszej rozprawy pracach nad tomografią wykraczają znacząco poza badanie ciepłych par atomowych, zahaczając zarówno o badania NMR cieczy w wysokim polu, jak i badania ciał stałych. Co więcej, badania te mają również bezpośrednie przełożenie na pomiary sygnałów NMR w bardzo słabym i prawdziwie zerowym polu magnetycznym [42, 44], otwierając dla nich cały obszar badań związanych z inżynierią stanów kwantowych.

Warto w tym miejscu zwrócić uwagę na zasadniczą różnicę techniki opracowanej w ramach niniejszej rozprawy a innymi technikami wykorzystywanymi do rekonstrukcji stanu kwantowego atomów par atomowych. Jak wspomniano powyżej, opracowana w ramach niniejszej rozprawy metoda nie skupia się na reżymie, w którym wiązka próbkująca jest bardzo daleko odstrojona. Dzięki temu możliwe jest obserwowanie większej ilości składowych sygnału niż w przykładowo metodzie opisanej w pracach [19, 45], w których oddziaływanie atom-światło jest ograniczone tylko do tzw. składowej wektorowej, co efektywnie sprowadza się do obserwowania tylko składowej $\langle \hat{\beta} \rangle$ w równaniu (3.1). Co prawda opracowana metoda jest efektywnie wolniejsza, jednak niosąca ważne zalety. Przykładowo, jak wykazał doktorant w pracy [A], przy znajomości warunków, w których jest przeprowadzany eksperyment (pole magnetyczne oraz natężenie i odstrojenie światła próbkującego), jest ona wyjątkowo odporna zarówno na szumy eksperymentalne, jak i niedoskonałości procedury kontrolnej.

Najprostszą a jednocześnie szeroko stosowaną metodą rekonstrukcji stanów kwantowych, i to zarówno w przypadku qubitów spinowych [43], jak i fotonowych [46], jest technika inwersji liniowej. W metodzie tej założona jest wyjątkowo prosta parametryzacja macierzy gęstości atomów, gwarantująca liniowość dalszej procedury

$$\rho = \begin{bmatrix} x_{11}^R & x_{10}^R + ix_{10}^I & x_{11}^R + ix_{11}^I \\ x_{10}^R - ix_{10}^I & 1 - x_{11}^R - x_{11}^I & x_{01}^R + ix_{01}^I \\ x_{11}^R - ix_{11}^I & x_{01}^R - ix_{01}^I & x_{11}^R \end{bmatrix}, \quad (3.2)$$

gdzie $\bar{1} = -1$ oraz wszystkie elementy $x_{ij}^{R(I)} \in \mathbb{R}$. Warto zauważyć, że taka parametryzacja

od razu zawiera warunek normalizacji macierzy gęstości (wyrazy na diagonalu sumują się do jedności). Pozwala to na łatwe wprowadzenie zwektoryzowanej postaci macierzy gęstości jako:

$$\mathbf{x} = [x_{11}^R, x_{11}^I, x_{10}^R, \dots]^T. \quad (3.3)$$

Następnie dla każdej z obserwabli $\hat{O}_i$ należy sformułować równanie w postaci $\text{Tr} [\hat{O}_i \rho] = b_i$, gdzie b_i jest wynikiem pomiaru danej obserwabli. Skonstruowanie takich równań dla wszystkich założonych obserwabli pozwala na zapisanie układu równań w postaci macierzowej

$$\mathbb{O} \cdot \mathbf{x} = \mathbf{b} + \mathbf{b}_0, \quad (3.4)$$

gdzie $\mathbf{b}_0$ jest stałym wektorem wynikającym z zawarcia w (3.2) warunku normalizacji, natomiast $\mathbb{O}$ jest macierzą współczynników, która wynika bezpośrednio z postaci wybranego zestawu obserwabli. Standardowym podejściem do rozwiązania tego równania jest wykorzystanie estymacji metodą najmniejszych kwadratów [47, 48]

$$\mathbf{x} = \min \|\mathbb{O} \cdot \mathbf{x} - (\mathbf{b} + \mathbf{b}_0)\|^2. \quad (3.5)$$

Warto zauważyć, że klasyczne podejście do metody najmniejszych kwadratów zakłada, że taki układ równań jest nadokreślony, czyli ilość wykonanych pomiarów jest większa niż ilość szukanych elementów macierzowych. Powoduje to, że macierz współczynników $\mathbb{O}$ nie jest kwadratowa, a zatem nie można jej odwrócić. W takim wypadku, standardowym rozwiązaniem jest pomnożenie całego równania (3.4) przez $\mathbb{O}^\dagger$, co pozwala wyliczyć wektor $\mathbf{x}$ jako:

$$\mathbf{x} = (\mathbb{O}^\dagger \mathbb{O})^{-1} \mathbb{O}^\dagger (\mathbf{b} + \mathbf{b}_0). \quad (3.6)$$

Zasadniczą zaletą takiego podejścia jest relatywnie niski koszt obliczeniowy [47].

Kolejną, często wykorzystywaną metodą estymacji macierzy gęstości jest metoda największej wiarygodności [47, 48]. Polega ona na wyznaczeniu najbardziej prawdopodobnego stanu na podstawie założonego rozkładu prawdopodobieństwa obserwowanych danych. Podstawą tej metody jest skonstruowanie funkcji wiarygodności

$$\mathcal{L} = \prod_i P(\rho|b_i), \quad (3.7)$$

gdzie $P(\rho|b_i)$ jest prawdopodobieństwem, że pomiar obserwabli $\hat{O}_i$ w stanie ρ da w pomiarze wynik b_i . Zazwyczaj, jeżeli pomiary kolejnych obserwabli nie wykazują korelacji, zakłada się, że wszystkie pomiary są nieskorelowane i pochodzą z rozkładu normalnego, a funkcja wiarygodności przyjmuje postać iloczynu eksponent [40, 48].

Największą zaletą metody największej wiarygodności jest łatwość parametryzacji macierzy gęstości w taki sposób, aby zapewnić dodatnią określoność macierzy gęstości. Najprostszą metodą jest skorzystanie z rozkładu Cholesky'ego [48], gdzie $\rho = \mathbb{L}\mathbb{L}^\dagger$ oraz

$$\mathbb{L} = \begin{bmatrix} x_1 & 0 & 0 \\ x_2 + ix_3 & x_4 & 0 \\ x_5 + ix_6 & x_7 + ix_8 & x_9 \end{bmatrix}. \quad (3.8)$$

Taka parametryzacja natychmiastowo zapewnia dodatnią określoność macierzy gęstości, natomiast dodatkowy warunek $\prod_i x_i^2 = 1$ zapewnia jej normalizację. Zasadniczą wadą tej metody jest jej duża złożoność obliczeniowa, co jest szczególnie widoczne w większych układach. Co więcej, w przypadku pomiarów opartych o zanik magnetyzacji, gdzie do pojedynczego przebiegu magnetyzacji dopasowuje się funkcję wielu zmiennych (estymuje się jednocześnie kilka różnych obserwabli), poszczególne obserwable są ze sobą skorelowane. To dodatkowo utrudnia konstrukcję funkcji wiarygodności.

W ramach przedstawianego cyklu prac nie wykorzystywano jednej metody rekonstrukcji. Przykładowo w pracy [A] do rekonstrukcji stanów została wykorzystana metoda największej wiarygodności, natomiast w późniejszych pracach [C, D] została wykorzystana inwersja liniowa, a w przypadkach, gdy zwracała ona wielkości niefizyczne (niedodatnio określona macierz gęstości), metoda największej wiarygodności była wykorzystywana, aby znaleźć fizyczną macierz gęstości, która była najbliższą otrzymanej metodą inwersji.

3.1.1 Artykuł: Optical reconstruction of the collective density matrix of a qutrit

W ramach artykułu zatytułowanego „Optical reconstruction of the collective density matrix of a qutrit” przedstawione zostało szczegółowe wyprowadzenie opracowanej przez doktoranta metody tomografii stanów kwantowych. W szczególności opisane zostały założenia pozwalające na poprawne działanie opracowanej techniki oraz symulacje przedstawiające zakresy parametrów eksperymentalnych pozwalających na jej wiarygodne stosowanie. Warto nadmienić, że pomimo tytułu odnoszącego się do układu trójpoziomowego, zaproponowana w pracy metoda jest znacznie ogólniejsza, gdyż pozwala na wyznaczenie mierzonych obserwabli dla układu dwupoziomowego o dowolnych całkowitych momentach pędu stanu podstawowego f oraz wzbudzonego F , tj. o dowolnej liczbie poziomów nadsubtelnych w danym stanie.

W ramach pracy nad opisywanym artykułem doktorant przygotował teorię wiążącą sygnały magnetorotacji z konkretnymi elementami macierzy gęstości, co pozwoliło na rekonstrukcję tych drugich. Był on także odpowiedzialny za analizy numeryczne weryfikujące przeprowadzoną, na podstawie tak otrzymanych sygnałów, tomografię stanów kwantowych. W końcu doktorant jest współautorem treści artykułu.

Optical reconstruction of the collective density matrix of a qutrit

Marek Kopciuch  and Szymon Pustelny 

Institute of Physics, Jagiellonian University in Kraków, Łojasiewicza 11, 30-348 Kraków, Poland



(Received 14 July 2021; revised 27 May 2022; accepted 28 June 2022; published 10 August 2022)

Reliable tomography of a quantum state of atoms in room-temperature vapors offers interesting applications in quantum-information science. To step toward the applications, here, we theoretically investigate a technique of reconstruction of a collective density matrix of atoms in a state of a total angular momentum equal to unity. By studying transformation of density matrix due to magnetic-field pulses and deriving explicit relations between optical signals and specific density-matrix elements, we demonstrate full reconstruction of quantum states. Numerical simulations allow us to demonstrate that the reconstruction fidelity of pure and mixed states may exceed 0.95 and that the technique is robust against noise and uncertainties.

DOI: [10.1103/PhysRevA.106.022406](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.106.022406)

I. INTRODUCTION

One of the most important challenges of quantum-information science is the reconstruction of an unknown quantum state [1–5]. The reconstruction requires measurements of different noncommuting observables on a set of systems occupying the same quantum state. Unfortunately, due to the no-cloning theorem [6], preparation of identical copies of a single quantum state is impossible. Utilization of a macroscopic system, composed of a large number of particles and described by a collective quantum state, enables measurements over many elements at the same time [5,7]. Interpretation of such a reconstruction is straightforward in media composed of particles in a (statistically) identical quantum state. A specific example of such a system is the Bose-Einstein condensate [3]. The situation is different in room-temperature atomic vapors, where inhomogeneous transition broadening leads to a velocity-dependent interaction with external fields (the Doppler effect) and, as a result, atoms in various quantum states are simultaneously present in the medium. Nevertheless, even in such a case, there are distinct examples in which atoms may be considered to be statistically occupying the same quantum state. A specific example of this situation is an atomic vapor contained in a paraffin-coated cell, where atoms freely travel between the container walls and their polarization is preserved in wall collisions [8–10]. Thus, the interaction of atoms is averaged over a whole cell volume [8,9]. Although in reality, the whole-system state is a statistical average over quantum states of its microscopic elements, the system still possesses many features of a quantum state, revealing numerous quantum properties (shot noise [11,12], squeezing [11], entanglement [13], etc.). In turn, it is interesting from the point of view of quantum-state tomography.

In this work, we present an approach to reconstruct the collective density matrix [14,15] of atoms in an atomic ensemble based on continuous weak measurements [7,15,16]. In measurements, a system under investigation is weakly perturbed

during probing; hence, the attainable information is limited. This fact can be regained by performing measurements at many microscopic subsystems (e.g., atoms) at the same time. The approach was already implemented in quantum-state tomography of cold atoms (see, for example, Ref. [7]), however, contrary to previous works, our approach is described in a semiclassical picture, in which incident light is purely classical.

The semiclassical approximation is a sufficient and conventional way to describe light-atom interaction when light is in a coherent state (e.g., laser light). This formalism is widely used to describe room-temperature and hot atomic gases [17], but can also be used to describe cold-atom experiments [17,18]. Previous approaches achieved nondestructive measurements using far-detuned light, which allows one to use an effective ground-state Hamiltonian [7], neglecting the tensor part of the light-atom interaction. In our approach, we take into account entire light-atom interaction, specifically including the tensor contribution to the interaction, and calculate the evolution of the system using the first-order perturbation theory. As a result, we explore scenarios in which weak, yet arbitrary, detuning light is used. This is of particular importance in the case of Doppler-broadened media, where one needs to account for atoms with different velocity classes. Moreover, as shown below, by carefully choosing the detuning, one can gain additional information about the system from a single measurement. Our approach offers the ability to derive analytical formulas for atomic evolution rather than numerical simulation of the evolution, as previously done [15]. Because the overall evolution of such a system is complicated, we perform a series of approximations, suitable for alkali vapors at room temperature. It allows us to relate polarization rotation and ellipticity change with the quantum properties of atoms (density-matrix elements). In turn, this enables the reconstruction of an arbitrary quantum-mechanical state of atoms based on the observed signals. Additionally, we demonstrate application of the approach for the full reconstruction of a density matrix of a three-level system (qutrit) formed

within magnetic sublevels of long-lived ground state [10,19]. The technique is implemented for the reconstruction of both pure and mixed states, and its precision and robustness against different limitations (noise and uncertainties) are investigated.

II. RELATION BETWEEN OBSERVABLES AND QUANTUM-STATE PROPERTIES

Optical tomography of a quantum state is based on measurements of specific properties of light propagating through a medium consisting of atoms whose quantum state one wants to reconstruct. Particular examples of observables that provide such information are the polarization angle α and the degree of ellipticity ϵ . In Appendix A, the relations of these two observables with the density-matrix elements characterizing the atoms of the ground state f and the excited state F , where f and F denote the total angular momentum in the ground state and excited state, respectively, are derived. Although it is possible to derive the relation for any light polarization, here we limit ourselves to the case of y-polarized light propagating along the z axis. This gives us the relations for the polarization rotation $\partial_z \alpha$ and the ellipticity $\partial_z \epsilon$

$$\partial_z \epsilon - i \partial_z \alpha = -\frac{\omega}{2\epsilon_0 E_0 c} U_{xq}^T \mathcal{P}^q, \quad (1)$$

where U_{xq}^T is the transformation from the spherical to the Cartesian basis [17] and $\mathcal{P}^q$ is the q th component of the complex polarization of the atomic vapor in the spherical basis:

$$\begin{aligned} \mathcal{P}^q &= 2N_{at} (-1)^{j+f+I+F+1} \sqrt{(2f+1)(2F+1)} \langle j \| \hat{\mathbf{d}}^{(J)} \| J \rangle \\ &\times \left\{ \begin{matrix} j & f & I \\ F & J & 1 \end{matrix} \right\} \left[\sum_{m,\mu} (-1)^m \begin{pmatrix} f & 1 & F \\ -m & q & \mu \end{pmatrix} \tilde{\rho}_{\mu m}(t) \right], \end{aligned} \quad (2)$$

where $\tilde{\rho}_{\mu m}$ is the optical-coherence amplitude between the ground state m and the excited state μ , $\tilde{\rho}_{\mu m}$ is given in the rotating wave approximation, ω is the frequency and E_0 is the amplitude of light, and N_{at} denotes the atomic number density. f and F are the total angular momenta of the ground and excited state, respectively, j and J are the corresponding total electronic angular momenta, and I is the nuclear spin. The reduced dipole matrix element $\langle j \| \hat{\mathbf{d}}^{(J)} \| J \rangle$ is calculated in the J manifold. It should be noted that the angular-momentum composition of the system is given by the Wigner $3j$ and $6j$ symbols. Precise knowledge of the $\omega/(2\epsilon_0 E_0 c)$ factor, appearing in Eq. (1), is of crucial importance for quantum-state tomography.

The evolution of optical coherence of atoms subjected to the magnetic field B_z and interacting with weak x -polarized light (we only account for linear terms in E_0 and expand the density matrix as $\tilde{\rho} = \sum_n E_0^n \tilde{\rho}^{(n)} \approx \tilde{\rho}^{(0)} + E_0 \tilde{\rho}^{(1)}$), detuned from the optical transition by Δ , is derived in Appendix A. For the current discussion, we simplify the relations by noting that (a) the ground-state relaxation rate γ is typically several

orders of magnitude smaller than the excited-state relaxation rate Γ , $\Gamma \gg \gamma$, and (b) the Larmor frequency Ω_L is small compared with the detuning Δ , $\Delta \gg \Omega_L$. This allows us to simplify the equation for the time evolution of the optical-coherence amplitude

$$\begin{aligned} \dot{\tilde{\rho}}_{\mu m}(t) &\approx -\left(i\Delta + \frac{\Gamma}{2}\right) \tilde{\rho}_{\mu m}(t) \\ &+ \frac{i\Omega_R}{2} (-1)^{j-f+3F+I-\mu} \sqrt{(2f+1)(2F+1)} \\ &\times \left\{ \begin{matrix} j & f & I \\ F & J & 1 \end{matrix} \right\} \left[\sum_{q,n} U_{yq}^T \begin{pmatrix} F & 1 & f \\ -\mu & q & n \end{pmatrix} \rho_{nm}^{(0)}(t) \right], \end{aligned} \quad (3)$$

where $\Omega_R = \langle j \| \hat{\mathbf{d}}^{(J)} \| J \rangle E_0$ is the Rabi frequency, and $\rho_{mm}^{(0)}$ is the zeroth-order Zeeman coherence between the ground-state magnetic sublevels m and n (if $m = n$, $\rho_{mm}^{(0)}$ is the ground-state population of the sublevel m). It is noteworthy that we dropped the tilde above ground-state density-matrix elements because RWA only applies to optical coherences and does not affect the ground-state density-matrix elements. It is important to note that, because we are interested in the effects linear in E_0 , Eq. (3) is independent of the excited-state evolution and depends only on the evolution of the zeroth-order of the density matrix. The $\rho_{nm}^{(0)}(t)$ term describes the evolution of the ground-state manifold within uniform static magnetic field, assuming negligible backaction (this is a good approximation of the ground-state density matrix). Using the Liouville equation, one can get the time-dependent formulas

$$\rho_{mm}^{(0)}(t) = \left(\rho_{mm}(0) - \frac{1}{2f+1} \right) e^{-\gamma t} + \frac{1}{2f+1}, \quad (4a)$$

$$\rho_{nm}^{(0)}(t) = \rho_{nm}(0) e^{-\gamma t} e^{-i(n-m)\Omega_L t}. \quad (4b)$$

Taking a time derivative of Eq. (1) and combining it with Eqs. (3) and (4) allows us to relate the time-dependent polarization rotation and ellipticity change with the density-matrix elements

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} [\partial_z \epsilon - i \partial_z \alpha] &= -\left(i\Delta + \frac{\Gamma}{2}\right) [\partial_z \epsilon - i \partial_z \alpha] \\ &+ \frac{i\chi}{2} e^{-\gamma t} [\langle \hat{\alpha}_R \rangle \sin(2\Omega_L t) \\ &+ \langle \hat{\alpha}_I \rangle \cos(2\Omega_L t) - i \langle \hat{\beta} \rangle], \end{aligned} \quad (5)$$

where

$$\begin{aligned} \chi &= \frac{N_{at} \omega |\langle j \| \hat{\mathbf{d}}^{(J)} \| J \rangle|^2}{2\epsilon_0 c \hbar} (-1)^{2j+2J} (2f+1)(2F+1) \\ &\times \left\{ \begin{matrix} j & f & I \\ F & J & 1 \end{matrix} \right\}^2, \end{aligned} \quad (6)$$

and $\hbar$ is the reduced Planck constant. Here the density-matrix elements are grouped into expectation values of the effective observables

$$\hat{\alpha}_R = \sum_{m=-f}^{f-2} \begin{pmatrix} f & 1 & F \\ -m-2 & 1 & m+1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} F & 1 & f \\ -m-1 & 1 & m \end{pmatrix} (|m\rangle \langle m+2| + |m+2\rangle \langle m|), \quad (7a)$$

$$\hat{\alpha}_I = \sum_{m=-f}^{f-2} \begin{pmatrix} f & 1 & F \\ -m-2 & 1 & m+1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} F & 1 & f \\ -m-1 & 1 & m \end{pmatrix} (i|m\rangle\langle m+2| - i|m+2\rangle\langle m|), \quad (7b)$$

$$\hat{\beta} = \sum_{m=-f}^f \left[\begin{pmatrix} f & 1 & F \\ -m & 1 & m-1 \end{pmatrix}^2 - \begin{pmatrix} f & 1 & F \\ -m & -1 & m+1 \end{pmatrix}^2 \right] |m\rangle\langle m|. \quad (7c)$$

Taking real and imaginary parts of the quantity allows us to solve Eqs. (5).

It should be noted that the system has several timescales associated with different processes. Here, we exclusively focus on slowly evolving terms (evolution on the timescale of $1/\Omega_L$), neglecting transient effects, which typically occur on the timescale $1/\Gamma$.

In typical experiments, room-temperature atomic vapors are optically thin media, thus one can go to the limit of $\partial_z \alpha \rightarrow \Delta \alpha / L$, where L is the geometric thickness of the medium. It allows us to write the polarization rotation as

$$\Delta \alpha = \chi L e^{-\gamma t} [\langle \hat{\alpha}_R \rangle \mathcal{L}_R(\Delta) \sin(2\Omega_L t) + \langle \hat{\alpha}_I \rangle \mathcal{L}_R(\Delta) \cos(2\Omega_L t) - \langle \hat{\beta} \rangle \mathcal{L}_I(\Delta)], \quad (8)$$

where $\mathcal{L}_{R(I)}(\Delta)$ is the real (imaginary) part of the Lorentz profile $\mathcal{L}(\Delta) = (\Gamma - 2i\Delta)^{-1}$. As shown in Eq. (8), the polarization rotation $\Delta \alpha$ yields information about the ground-state density matrix. Specifically, the oscillating component of the signal is associated with the Zeeman coherences, whereas the nonoscillating component is proportional to the population imbalance. This dependence naturally implies the strategy to reconstruct specific density-matrix elements.

Until this point, the motion of atoms was neglected. Yet, in room-temperature vapors, atomic motion and hence the Doppler effect need to be taken into account. It can be achieved by substituting the detuning Δ , with the Doppler-shifted detuning $\Delta - \Delta_D$, $\Delta \rightarrow \Delta - \Delta_D$, and averaging the relation over the Doppler distribution $f_D(\Delta_D) = (\Gamma_D \sqrt{\pi})^{-1} \exp(-\Delta_D^2 / \Gamma_D^2)$ [17], where Γ_D is the Doppler broadening. As a result, we need to rewrite the Lorentz profiles in Eq. (8) by

$$\mathcal{L}_{R(I)} \rightarrow V_{R(I)}(\Delta) = (\mathcal{L}_{R(I)} * f_D)_{\Delta_D}(\Delta), \quad (9)$$

where $(\cdot * \cdot)_{\Delta_D}$ stays for the convolution over Δ_D . One can notice that $V(\Delta)$ is the Voigt profile by its definition:

$$V_{R(I)}(\Delta) = \int \mathcal{L}_{R(I)}(\Delta - \Delta_D) f_D(\Delta_D) d\Delta_D. \quad (10)$$

Unfortunately, the information accessible through Eq. (8) is limited, i.e., the signal depends only on three observables $\langle \hat{\alpha}_R \rangle$, $\langle \hat{\alpha}_I \rangle$, and $\langle \hat{\beta} \rangle$. Thus, to determine the remaining density-matrix elements or, to be more precise, to create informationally complete positive operator-valued measure (POVM) [7], we introduce a set of control pulses Q_i . This allows us to mix the population and coherences of various magnetic sublevels and extend the set of observables:

$$\text{Tr}[\hat{X} Q_i \rho Q_i^\dagger] = \langle Q_i^\dagger \hat{X} Q_i \rangle = \langle \hat{X}' \rangle. \quad (11)$$

III. SIMULATIONS OF A QUTRIT

Here, we implement our algorithm on a qutrit. In a specific case, where $f = 1$ and $F = 0$ (such a transition occurs, for example, in ^{87}Rb excited at the D_2 line), the observables (7) take the form

$$\langle \hat{\alpha}_R \rangle = \frac{1}{3}(\rho_{1,-1} + \rho_{-1,1}), \quad (12a)$$

$$\langle \hat{\alpha}_I \rangle = \frac{i}{3}(-\rho_{1,-1} + \rho_{-1,1}), \quad (12b)$$

$$\langle \hat{\beta} \rangle = \frac{1}{3}(\rho_{1,1} - \rho_{-1,-1}). \quad (12c)$$

To gain access to other density-matrix elements, we rotate the system with the pulses of nonoscillating magnetic fields. Assuming that the pulses rotate the state around the z axis by φ and around the y axis by ϑ and the pulse lengths are negligibly short, the transformed operators are given by

$$\langle \hat{X}' \rangle = \langle \hat{\mathcal{D}}^\dagger(0, \vartheta, \varphi) \hat{X} \hat{\mathcal{D}}(0, \vartheta, \varphi) \rangle, \quad (13)$$

where $\hat{\mathcal{D}}$ is the quantum-mechanical rotation operator [20]. Using Eq. (13), one can calculate the relationship of rotated operator matrix elements with the elements of the initial operator

$$\hat{X}'_{mn} = \sum_{b,d} e^{i\varphi(d-b)} d_{mb}^{(1)}(\vartheta) d_{dn}^{(1)}(\vartheta) \hat{X}_{bd}, \quad (14)$$

where $d^{(1)}$ is the Wigner (small) d matrix of the first order [14]. To illustrate this, we consider rotation of the system by $\vartheta = \pi/2$ and $\varphi = 0$, which allows us to encode information about the $\Delta m = 1$ coherences in the detectable signal

$$\begin{aligned} \langle \hat{\beta}' \rangle &= \langle \hat{\mathcal{D}}^\dagger(0, \frac{\pi}{2}, 0) \hat{\beta} \hat{\mathcal{D}}(0, \frac{\pi}{2}, 0) \rangle \\ &= -\frac{1}{3\sqrt{2}}(\rho_{-10} + \rho_{0-1} + \rho_{10} + \rho_{01}). \end{aligned} \quad (15)$$

Similarly, it can be shown that the rotation of the state mixes the $\Delta m = 2$ coherences with the population of the $m = 0$ sublevel

$$\begin{aligned} \langle \hat{\alpha}'_R \rangle &= \langle \hat{\mathcal{D}}^\dagger(0, \frac{\pi}{2}, 0) \hat{\alpha}_R \hat{\mathcal{D}}(0, \frac{\pi}{2}, 0) \rangle \\ &= -\frac{1}{6}(\rho_{11} - 2\rho_{00} + \rho_{-1-1} + \rho_{1-1} + \rho_{-11}), \end{aligned} \quad (16)$$

which eventually enables the full reconstruction of the ground-state density matrix.

To test the developed quantum-state tomography protocol, we perform numerical simulations of a given-state density-matrix evolution. On the basis of numerical simulations, we determine the polarization rotation of x -polarized light, which

is then contaminated with white noise and used for reconstruction of the density matrix. The reconstruction is based on fitting the polarization-rotation signals $\Delta\alpha$ with the function

$$\Delta\alpha = e^{-\gamma t} [A_\alpha \sin(2\Omega_L t) + B_\alpha \cos(2\Omega_L t) + C_\alpha], \quad (17)$$

where A_α , B_α , and C_α are the fitting parameters. In our fitting routine, the three amplitudes are the only free parameters, i.e., the Larmor frequency Ω_L and the ground-state relaxation rate γ are known (the Larmor frequency Ω_L may be known from the strength of the magnetic field applied during probing and the ground-state relaxation rate γ could be determined based on other measurements, such as relaxation in the dark [9,21]). It should be noted that constraining Ω_L and γ allows extractions of A , B , and C even in the case of a poor signal-to-noise ratio (SNR).

Combining Eqs. (8), (14), and (17) enables derivation of the explicit relations between the fitting parameters and the postpulse ground-state density-matrix elements

$$\tilde{\rho}_{1-1}^\circ = (\tilde{\rho}_{-11}^\circ)^* = \frac{A_\alpha - iB_\alpha}{\zeta L}, \quad (18a)$$

$$\tilde{\rho}_{-1-1}^\circ - \tilde{\rho}_{11}^\circ = \frac{C_\alpha}{\zeta L}. \quad (18b)$$

As discussed above, a single fitting provides access to three density-matrix elements (compare with a technique described, for example, in Ref. [7]). Other density-matrix elements can be acquired by an appropriate choice of magnetic-field pulses [Eq. (14)]. In a noiseless system, three sets of pulses allow full reconstruction of the $f = 1$ state. However, the presence of noise and imperfections of the matrix manipulation (e.g., uncertainty of the pulse-rotation angles or Larmor-precession frequency) may introduce uncertainties in the reconstruction. This may lead to a reconstruction of the matrix that does not correspond to a physical state. To accommodate for such an uncertainty, a larger set of pulses may be used, but even then the results may be nonphysical. To address this problem, many approaches can be implemented (see, for example, Refs. [22,23]). Here, we use the approach based on the minimization of the distance between the reconstructed matrices and the matrix corresponding to the closest physical state. For that, we assume that the distance between matrices is defined based on the Frobenius norm

$$\delta(\rho_r) = \sum_j \text{Tr}[(\rho_j - \rho_r)^\dagger (\rho_j - \rho_r)], \quad (19)$$

where ρ_j is the j th set of “measured” density-matrix elements (note that only the elements associated with the three observables are determined in a single measurement, so ρ_j is not a completely filled matrix). Optimization with the constraints of semipositivity and normalization is achieved by parametrizing the density matrix by the Cholesky decomposition [1].

To demonstrate the applicability of the technique, we first consider the reconstruction of a pure state. The density matrix, corresponding to a nontrivial pure state, is shown in Fig. 1(a) (blue bars). Polarization-rotation signals [Figs. 1(c)–1(f)] were calculated for a set of four arbitrarily chosen magnetic-field pulses. To mimic “experimental” data, we contaminated the simulated signals with white noise. To introduce a measure of the noise, we define the SNR as the ratio between

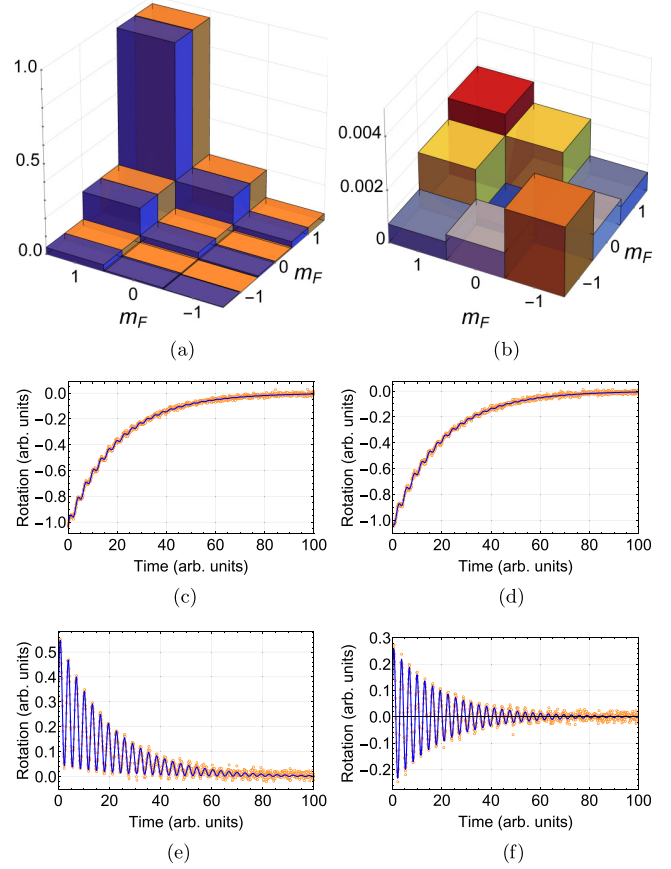


FIG. 1. (a) Magnitude of density-matrix elements of the reconstructed density matrix (blue or dark gray) of a randomly chosen pure state (orange or light gray). (b) The difference between magnitudes of the density-matrix elements of the reconstructed and initial state. Simulated signals of polarization rotation for a set of initial magnetic-field pulses: (c) $\varphi = 0$ and $\theta = 0$, (d) $\varphi = 0$ and $\theta = \pi/2$, (e) $\varphi = \pi/2$ and $\theta = 0$, and (f) $\varphi = \pi/2$ and $\theta = \pi/2$. The simulations are performed in for the Larmor-frequency normalized set of parameters: $\Omega_R = 1$, $\Gamma = \Delta = 1000$, $\gamma = 0.05$ and $\Omega_R = 1$, $N_{at} = 10^{10}$, and $\Omega_L^{pulse} = 100$, $\Omega_L = 1$.

the amplitude of a signal measured for a fully aligned state (see the Appendix B) to the root-mean-square of noise. In the case considered, the generated signals were burdened with noise corresponding to $\text{SNR} = 25$. The data was then fit using Eq. (17) and the density matrix was reconstructed [Fig. 1(a), orange bars]. As shown in Fig. 1(b), presenting the difference between the assumed and reconstructed density matrix, the reconstruction is reliable and the error is only a small fraction of the reconstructed values. To quantify the performance of the protocol, we calculated the fidelity $\mathcal{F}$ between the reconstructed density matrix ρ_r and the matrix ρ' used for the calculations [24]

$$\mathcal{F}(\rho_r, \rho') = (\text{Tr}[\sqrt{\sqrt{\rho_r} \rho' \sqrt{\rho_r}}])^2, \quad (20)$$

which, in the considered case, was 0.997.

Next, we analyzed the reconstruction of a partially mixed state (Fig. 2). Similarly as before, the rotation signals were simulated and white noise was added to the data. A noticeable

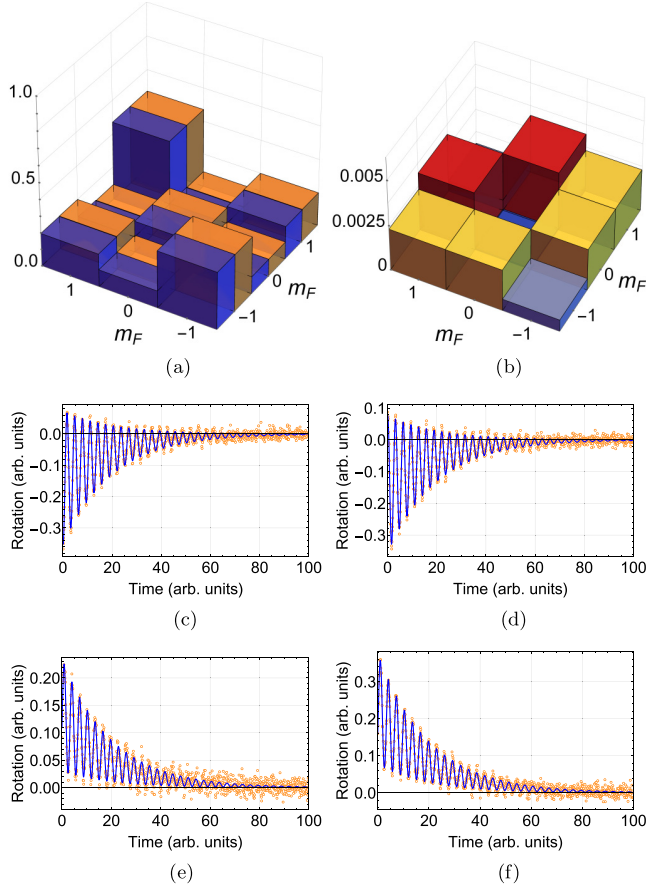


FIG. 2. Reconstruction of the partially mixed state: (a) initial (orange or light gray) and reconstructed (blue or dark gray) state and (b) absolute values of differences between matrices elements. The rotation signals, along with the fitting, for (c) $\varphi = 0$ and $\theta = 0$, (d) $\varphi = 0$ and $\theta = \pi/4$, (e) $\varphi = \pi/4$ and $\theta = 0$, and (f) $\varphi = \pi/4$ and $\theta = \pi/4$. The simulation parameters identical as in Fig. 1.

difference between this and the previous result is the amplitude of the observed signals, being smaller for the mixed state. In fact, one can formulate the general observation that the more mixed the state, the lower the amplitude of the signal. The fitting of the reconstruction of the state was 0.996.

An important question is the role of SNR and uncertainty of the rotation pulses in the fidelity of the state reconstruction. To address this question, we analyze the fidelity of the reconstruction of pure, partially mixed (an averaged purity of 0.6), and fully mixed (unpolarized) states versus SNR and uncertainty of rotation induced by DC pulses. For each SNR or angle uncertainty, the reconstruction was performed 100 times with a set of four control pulses (four pairs of rotation angles), rotating the matrix around the z and y axes at random angles. Randomization of rotation angles was introduced to avoid trapping of the reconstruction in local minima. The fidelity of the reconstruction for the pure and partially mixed states was averaged over ten different states, which were obtained from the stretched state by a unitary transformation, generated from the Haar measure [25].

To estimate the average value and the variance of the fidelity for each set of parameters, we simulate a 1000

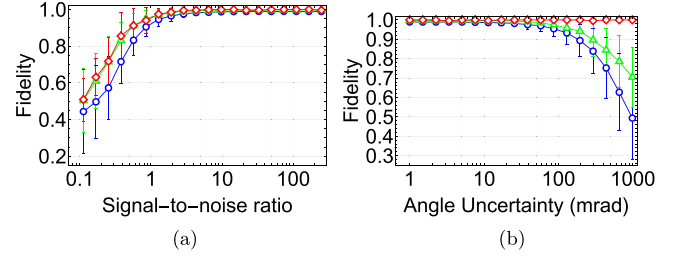


FIG. 3. (a) Fidelity of the state reconstruction versus SNR and (b) uncertainty of the magnetic-field pulse rotation. The results are shown for a pure states (blue circles), partially mixed purity ≈ 0.6 (green triangles) and fully mixed state (red diamonds).

reconstruction (10 states $\times$ 100 different sets of random rotation angles and compare the reconstructed state with the assumed one by calculating the fidelity. We plot the achieved fidelities for a set of simulation parameters on a histogram and fit the beta distribution [26]. The choice of beta distribution was dictated by the fact that fidelity is limited to the range between zero and unity, so modeling it by the normal distribution would not yield reasonable conclusions. After fitting, we calculate the expectation value and the variance of this fitted distribution and treat them as an average value and variance of fidelity for the chosen set of parameters. The results, shown in Fig. 3, reveal that already with a single set of four measurements, each with SNR at a level of 1, the fidelity exceeds 0.9 and at a level of 10, the fidelity is close to unity. As described above, such high reconstruction fidelity results from constraining the Larmor frequency Ω_L and relaxation or decay rate γ of the signal and, therefore, improving the fitting precision of A_α , B_α , and C_α .

Another question concerns the role of rotation uncertainty. We showed with the simulations that rotation uncertainty up to several tens of milliradians has almost no effect on the fidelity of the reconstruction. For larger uncertainties, the fidelity starts to deteriorate (with the distinct exception of the thermal state). Nevertheless, the precision of the rotation at the level of a few degrees, which is easily achieved experimentally, ensures a good reconstruction of the state.

From the perspective of practical implementation of the protocol [27], an important question concerns the number of measurements needed for a reliable reconstruction of a quantum state. Generally, in the considered system, one needs to measure at least three polarization-rotation signals to fully reconstruct the density matrix. However, as shown in Fig. 4(a), for even lower number of measurements, partial reconstruction is possible, although its fidelity is small. In principle, the higher the number of measurements, the more precise the reconstruction. This becomes particularly important in noisy media, where low signal quality needs to be overcome by more measurements, so that minimization, being the last stage of the algorithm, can be performed more precisely.

A different contribution to the uncertainty of the reconstruction comes from the action of the probing beam. For our considerations, we have assumed that the action of probe light is so small that it is negligible. Generally, this is not true, and the probe action can manifest itself at various levels. For instance, even in a simple case of classical light, there is nonzero

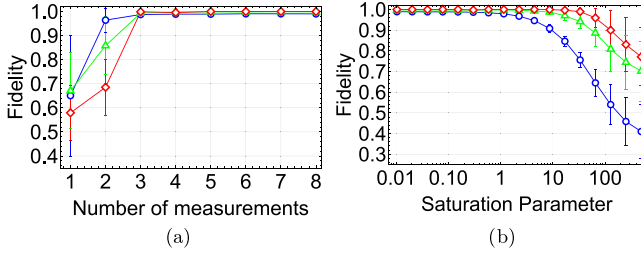


FIG. 4. Fidelity of the reconstruction versus (a) number of measurements and (b) strength of the light-matter coupling, expressed as the saturation constant κ_2 , for pure (blue circles), mixed (green triangles), and thermal (red diamonds) states. The calculations were performed for the same parameters as in Fig. 3 with $\text{SNR} \approx 25$ and no uncertainty in the rotation.

probability of the optical excitation by an off-resonant (probe) beam. This manifests itself as optical pumping, which modifies the reconstructed state and hence decreases the fidelity of the reconstruction. This effect is shown in Fig. 4(b), where fidelity is measured versus the probe-light saturation parameter $\kappa_2 = \Omega_R^2/(\Gamma\gamma)$ [17].

For small κ_2 , the pumping is inefficient, so the probe light does not affect the state. However, the higher the probe-light intensity, the more probable the excitation is. In turn, this pumping with the probe leads to deterioration of the fidelity of the reconstruction. This effect is reduced in paraffin-coated cells, where the atoms, moving freely through the cell, enter and exit the light beam, which effectively averages the perturbation across the entire cell [8]. It allows us to achieve an effective saturation parameter roughly two orders of magnitude smaller than that in a cold atomic ensemble [8].

IV. CONCLUSIONS

In this work, we described the technique for reconstructing a collective density matrix of an arbitrary quantum state. By deriving explicit relationships between polarization rotation and ellipticity change with the ground-state density-matrix elements, we demonstrate the ability of the full reconstruction of an unknown state. This technique was then analyzed in the context of the reconstruction of the quantum state of the long-lived $f = 1$ state that can act as a qutrit. With the analysis, the robustness of the technique against noise, experimental uncertainties, and the number of measurements was demonstrated.

In the near future, we plan to use the technique to reconstruct a collective density matrix of the $f = 1$ ground state of room-temperature ^{87}Rb vapor contained in a paraffin-coated cell [27]. The reconstruction of the state, initially generated and modified using a sequences of light as well as static and oscillating magnetic-field pulses will be performed via the detection of polarization rotation linearly polarized off-resonant light. The analysis will offer the first step in the practical implementation of the technique.

We plan to further expand the experimental research. In this context, however, an important question concerns the ability to experimentally reconstruct a state of an angular momentum greater than 1. As shown in this article, in principle the

technique offers such a capability. However, the experimental problem is the degeneracy of the evolution frequency of $\Delta m = 2$ coherences. We plan to approach it via lifting the degeneracy either by using the nonlinear Zeeman effect [28] or the ac Stark effect [7]. Both lead to energy shifts of magnetic sublevels, which remove the coherence degeneracy and thus differentiate contributions to the signal from different coherences. Despite the technical challenges associated with turning the fields on and off, it is believed that through such an approach, the reconstruction of an arbitrary quantum state can be performed. Specifically, we plan to implement the reconstruction of quantum states of both hyperfine levels of rubidium atoms.

ACKNOWLEDGMENTS

The authors thank Jan Kołodyński and Adam Miranowicz for stimulating discussions. The authors acknowledge the support of the National Science Centre, Poland within the SONATA BIS programme (Grant No. 2019/34/E/ST2/00440).

APPENDIX A: DERIVATION OF RELATIONS

1. Semiclassical light-atom interaction

In the semiclassical approximation, the relation between light and atomic properties is governed by the Maxwell equation [17]:

$$\nabla^2 \mathbf{E} - \frac{1}{c^2} \partial_t^2 \mathbf{E} = \mu_0 \partial_t^2 \mathbf{P}, \quad (\text{A1})$$

where $\mathbf{E}$ is the electric field of light and $\mathbf{P}$ is the polarization of the atoms. Taking a generic form of light

$$\mathbf{E} = E_0 \text{Re}\{e^{i(kz - \omega t + \phi)} (\cos(\epsilon) [\cos(\alpha) \mathbf{x} + \sin(\alpha) \mathbf{y}] + i \sin(\epsilon) [\cos(\alpha) \mathbf{y} - \sin(\alpha) \mathbf{x}])\}, \quad (\text{A2})$$

where E_0 , ϕ , ϵ , α , ω , and k are the amplitude, phase, ellipticity, polarization-orientation angle, frequency, and wave number of light, respectively, and assuming that the polarization can be written as

$$\mathbf{P} = \text{Re}\{e^{i(kz - \omega t + \phi)} [(P_{(1)} - iP_{(2)}) \mathbf{x} + (P_{(3)} - iP_{(4)}) \mathbf{y}]\}, \quad (\text{A3})$$

where $P_{(i)}$ are the respective quadrature components of the atomic polarization, explicit relations can be drawn between the specific properties of light and the given polarization quadratures. For convenience, we introduce a complex atomic polarization vector $\mathcal{P}$, the components of which are defined by Eq. (A3). Substituting Eqs. (A2) and (A3) into Eq. (A1) and neglecting the second-order derivatives enable one to derive relations for polarization rotation and degree of ellipticity on the quadratures $P_{(i)}$. Taking linearly polarized light ($\epsilon = 0$) along the y axis ($\alpha = \pi/2$), the polarization rotation, ellipticity, phase change and absorption, defined as partial derivatives over distance, are given by

$$\partial_z \alpha = -\frac{\omega}{2\epsilon_0 E_0 c} P_{(2)}, \quad (\text{A4a})$$

$$\partial_z \epsilon = -\frac{\omega}{2\epsilon_0 E_0 c} P_{(1)}, \quad (\text{A4b})$$

$$\partial_z \varphi = \frac{\omega}{2\varepsilon_0 E_0 c} P_{(3)}, \quad (\text{A4c})$$

$$\frac{1}{E_0} \partial_z E_0 = \frac{\omega}{2\varepsilon_0 E_0 c} P_{(4)}. \quad (\text{A4d})$$

Using the atomic-polarization components, Eqs. (A4) can be written as

$$\mathcal{P}_x = P_{(1)} + iP_{(2)} = -\frac{2\varepsilon_0 E_0 c}{\omega} (\partial_z \epsilon - i\partial_z \alpha), \quad (\text{A5a})$$

$$\mathcal{P}_y = P_{(3)} + iP_{(4)} = \frac{2\varepsilon_0 E_0 c}{\omega} \left(\partial_z \varphi - i\frac{1}{E_0} \partial_z E_0 \right). \quad (\text{A5b})$$

The atomic polarization can be derived as an expectation value of the dipole operator $\hat{\mathbf{d}}$,

$$\mathbf{P} = N_{at} \langle \hat{\mathbf{d}} \rangle = N_{at} \text{Tr}[\rho \hat{\mathbf{d}}], \quad (\text{A6})$$

where ρ is the density matrix, N_{at} is the atomic number density and, $\langle \rangle$ denotes the expectation value. It is more convenient to calculate the components of the atomic polarization in the rotation basis. To do so, the dipole operator is transformed to the rotating basis

$$\hat{d}^q = U_{qi}^* \hat{d}_i, \quad (\text{A7})$$

where U is the transformation to the rotation basis [17], and then the atomic-polarization components take the form

$$\begin{aligned} P_{(i)} &= 2N_{at} \text{Re} \left\{ \sum_q \sum_{m\mu} \rho_{\mu m} U_{iq}^T d_{m\mu}^q \right\} \\ &= \text{Re} \left\{ \sum_q U_{iq}^T \left(2N_{at} \sum_{m\mu} d_{m\mu}^q \rho_{\mu m} \right) \right\} \\ &= \text{Re} \left\{ e^{-i\omega t} \sum_q U_{iq}^T \left(2N_{at} \sum_{m\mu} d_{m\mu}^q \tilde{\rho}_{\mu m} \right) \right\} \\ &= \text{Re} \left\{ e^{-i\omega t} \sum_q U_{iq}^T \mathcal{P}^q \right\}. \end{aligned} \quad (\text{A8})$$

In the first equity factor two and the real part comes from the summation over complex conjugated terms in trace in (A6). In the third equity, we transform the density matrix to the rotating frame:

$$\rho = \hat{M} \tilde{\rho} \hat{M}^\dagger = \begin{pmatrix} (\tilde{\rho}_{mn}) & (\tilde{\rho}_{m\mu}) e^{i\omega t} \\ (\tilde{\rho}_{\mu m}) e^{-i\omega t} & (\tilde{\rho}_{\mu\nu}) \end{pmatrix}, \quad (\text{A9})$$

where $\hat{M} = \hat{P}_g + e^{i\omega t} \hat{P}_e$ is the transformation into the rotating frame, with $\hat{P}_{g(e)}$ beginning the projection operator into the ground- and excited-state subspace. $(\tilde{\rho}_{mn})$ and $(\tilde{\rho}_{\mu\nu})$ are the submatrices corresponding to the ground and excited states, and $(\tilde{\rho}_{m\mu})$ denotes the submatrix describing the optical coherences between the states. To keep text more clear, we hold the convention that for the magnetic quantum number the Latin letter denotes the ground state, while the Greek stands for the excited state.

Transferring the system to the rotating frame allows us to obtain a time-dependent version of Eq. (A3). Using the Wigner-Eckart formula [20] and recalculating the reduced matrix element of the dipole operator from the total angular

momentum to the total electronic angular momentum, one can show that

$$\begin{aligned} \mathcal{P}^q &= 2N_{at} (-1)^{j+f+I+F+1} \sqrt{(2f+1)(2F+1)} \langle j \| d^{(J)} \| J \rangle \\ &\times \begin{Bmatrix} j & f & I \\ F & J & 1 \end{Bmatrix} \left[\sum_{m\mu} (-1)^m \begin{pmatrix} f & 1 & F \\ -m & q & \mu \end{pmatrix} \tilde{\rho}_{\mu m} \right]. \end{aligned} \quad (\text{A10})$$

This allows us to calculate an explicit formula for polarization rotation and ellipticity change:

$$(\partial_z \epsilon - i\partial_z \alpha) = -\frac{\omega}{2\varepsilon_0 E_0 c} U_{xq}^T \mathcal{P}^q. \quad (\text{A11})$$

2. Hamiltonian of the system

The quantum-mechanical evolution of a quantum state, described using the density matrix, can be calculated using the Liouville equation

$$\frac{d}{dt} \rho = -\frac{i}{\hbar} [\hat{H}, \rho] - \frac{1}{2} \{ \hat{\Gamma}, \rho \} + \hat{\Lambda}(\rho), \quad (\text{A12})$$

where $\hat{H}$ is the total Hamiltonian of the system and $\hat{\Gamma}$ and $\hat{\Lambda}$ are relaxation operators responsible for relaxation and repopulation of the levels (see, for example, Refs. [17,29]). The Hamiltonian $\hat{H}$ is the sum of the unperturbed Hamiltonian $\hat{H}_0$ and the interaction operator $\hat{V}$, which in the considered case accounts for the interaction with light and the magnetic field. In the rotating frame, the unperturbed Hamiltonian is given by $\hat{H}_0 = \hbar \Delta \hat{P}_e$, where Δ is the detuning of the light from the transition. In the rotating-wave approximation (RWA), the magnetic and optical parts of the Hamiltonian are given by

$$\hat{H}_{\text{mag}} = \hbar \Omega_L (\hat{P}_g \hat{F}_z \hat{P}_g + \beta \hat{P}_e \hat{F}_z \hat{P}_e), \quad (\text{A13a})$$

$$\hat{H}_{\text{opt}} = -\frac{E_0}{2} (\hat{P}_g \hat{d}_y \hat{P}_e + \hat{P}_e \hat{d}_y \hat{P}_g). \quad (\text{A13b})$$

The Larmor frequency $\Omega_L = g_f \mu_B B / \hbar$ is determined by the magnetic field B with g_f being the ground-state Landé factor, μ_B the Bohr magneton, $\beta = g_F / g_f$ the ratio between Landé factors of the excited and ground states, and $\hat{d}_y$ is the dipole operator for linearly polarized light along the y axis.

We assume that our system has two independent mechanisms of relaxation. The first originates from spontaneous emission, resulting in depopulation of the excited state with a relaxation rate Γ . The second comes from the interaction with environment and it is associated, e.g., with collisions with container walls, intra-atomic collisions, etc. This relaxation is typically modeled as isotropic with rate γ . In turn, the relaxation operator is given by

$$\hat{\Gamma} = \hat{\hat{\Gamma}} = \hat{P}_e \Gamma + \hat{1} \gamma. \quad (\text{A14})$$

Since we want to conserve a number of atoms in our sample, we need to introduce repopulation. In the rotating frame, the repopulation due to the spontaneous emission is given by [29]

$$\hat{\Lambda}_{sp}(\tilde{\rho}) = 2\Gamma \sum_i \hat{P}_g (\hat{d}_i \tilde{\rho} \hat{d}_i) \hat{P}_g. \quad (\text{A15})$$

At the same time, isotropic relaxation should equally repopulate the entire ground state, so that

$$\hat{\Lambda}_{iso}(\tilde{\rho}) = \frac{\gamma}{2f+1} \hat{P}_g. \quad (\text{A16})$$

3. Evolution of optical coherences

It can be deduced from Eqs. (A10) and (A11) that, in order to calculate the polarization rotation and the ellipticity change, the evolution of the optical coherences needs to be determined. Here, we assume weak probe light, hence the density matrix can be expanded into the power series over E_0 and cut at the linear term, i.e., $\tilde{\rho} = \sum_n \tilde{\rho}^{(n)} E_0^n \approx \tilde{\rho}^{(0)} + \tilde{\rho}^{(1)} E_0$,

$$\frac{d}{dt} \tilde{\rho}_{\mu m}^{(0)}(t) = - \left\{ i[\Delta + \Omega_L(\beta\mu - m)] + \frac{2\gamma + \Gamma}{2} \right\} \tilde{\rho}_{\mu m}^{(0)}(t), \quad (\text{A17a})$$

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} \tilde{\rho}_{\mu m}^{(1)}(t) = & - \left\{ i[\Delta + \Omega_L(\beta\mu - m)] + \frac{2\gamma + \Gamma}{2} \right\} \tilde{\rho}_{\mu m}^{(1)}(t) \\ & - \frac{i}{2\hbar} \sum_n \hat{d}_{\mu n}^y \tilde{\rho}_{nm}^{(0)}(t). \end{aligned} \quad (\text{A17b})$$

This allows us to express the density-matrix evolution as

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} \tilde{\rho}_{\mu m}(t) \approx & - \left\{ i[\Delta + \Omega_L(\beta\mu - m)] + \frac{2\gamma + \Gamma}{2} \right\} \tilde{\rho}_{\mu m}(t) \\ & - \frac{iE_0}{2\hbar} \sum_n \hat{d}_{\mu n}^y \tilde{\rho}_{nm}^{(0)}(t). \end{aligned} \quad (\text{A18})$$

It is noteworthy that our evolution depends only on the ground-state subspace in zeroth order so in the absence of the optical field. In addition, such an expression can be simplified. First, one should note that as we want to perform a nondestructive measurement and stay in the regime of low magnetic field (linear Zeeman effect), we get the condition $\Omega_L \ll \Delta$. Second, for room-temperature vapors, isotropic relaxation is typically a few orders of magnitude smaller than the spontaneous emission rate, $\gamma \ll \Gamma$. Finally, the Wigner-Eckart theorem can be used to represent the matrix elements of the dipole operator by their reduced matrix elements, in a manner similar to that used in Eq. (A10):

$$\frac{d}{dt} \tilde{\rho}_{\mu m}(t) = - \left(i\Delta + \frac{\Gamma}{2} \right) \tilde{\rho}_{\mu m}(t) + \frac{i\Omega_R}{2} (-1)^{j-f+3F+I-\mu} \sqrt{(2f+1)(2F+1)} \left\{ \begin{matrix} j & f & I \\ F & J & 1 \end{matrix} \right\} \left[\sum_{q,n} U_{yq}^T \begin{pmatrix} F & 1 & f \\ -\mu & q & n \end{pmatrix} \rho_{nm}^{(0)}(t) \right], \quad (\text{A19})$$

where $\Omega_R = E_0 \langle j \| d^{(J)} \| J \rangle / \hbar$ is the Rabi frequency. By substituting the above relation into Eqs. (A10) and (A11), one can get the relations for the temporal evolution of the polarization rotation and ellipticity change,

$$\frac{d}{dt} (\partial_z \epsilon - i \partial_z \alpha) = - \left(i\Delta + \frac{\Gamma}{2} \right) (\partial_z \epsilon - i \partial_z \alpha) + i\chi \left[\sum_{qr} U_{xq}^T U_{yr}^T \sum_{m\mu} (-1)^q \begin{pmatrix} f & 1 & F \\ -m & q & \mu \end{pmatrix} \begin{pmatrix} F & 1 & f \\ -\mu & r & n \end{pmatrix} \tilde{\rho}_{nm}^{(0)}(t) \right], \quad (\text{A20})$$

where χ is given by

$$\chi = \frac{N_{at} \omega |\langle j \| \hat{\mathbf{d}}^{(J)} \| J \rangle|^2}{2\epsilon_0 c \hbar} (-1)^{2j+2J} (2f+1)(2F+1) \left\{ \begin{matrix} j & f & I \\ F & J & 1 \end{matrix} \right\}^2. \quad (\text{A21})$$

4. Effective observables

Analyzing Eq. (A20) one can see that the evolution of the polarization rotation and change of ellipticity are related and depend only on the ground state in the zeroth-order approximation (we assumed that the optical field is very weak, so that the excited-state population is negligible). Moreover, by the analysis of Eq. (A9) one can show that RWA does not change the ground-state subspace (since now on we drop tilde over the ground-state elements). Thus, the evolution of those ground-state terms are given by

$$\tilde{\rho}_{nm}^{(0)}(t) = \rho_{nm}^{(0)}(0) e^{-[\gamma - i(n-m)]t}, \quad (\text{A22a})$$

$$\tilde{\rho}_{nm}^{(0)}(t) = \left(\rho_{nm}^{(0)}(0) - \frac{1}{2f+1} \right) e^{-\gamma t} + \frac{1}{2f+1}. \quad (\text{A22b})$$

At time $t = 0$ we begin to probe the atoms with light. Thus, at $t = 0$, the zeroth-order density matrix is exactly the density matrix of the initial state, $\rho_{nm}^{(0)}(0) = \rho_{nm}(0)$. Applying this into Eq. (A20) and carefully collecting terms allows us to write this equation in the following form:

$$\frac{d}{dt} [\partial_z \epsilon - i \partial_z \alpha] = - \left(i\Delta + \frac{\Gamma}{2} \right) [\partial_z \epsilon - i \partial_z \alpha] + \frac{i\chi}{2} e^{-\gamma t} [\langle \hat{\alpha}_R \rangle \sin(2\Omega_L t) + \langle \hat{\alpha}_I \rangle \cos(2\Omega_L t) - i \langle \hat{\beta} \rangle], \quad (\text{A23})$$

where we introduced three observables

$$\hat{\alpha}_R = \sum_{n=-f}^{f-2} \begin{pmatrix} f & 1 & F \\ -n-2 & 1 & n+1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} F & 1 & f \\ -n-1 & 1 & n \end{pmatrix} (|n\rangle \langle n+2| + |n+2\rangle \langle n|), \quad (\text{A24a})$$

$$\hat{\alpha}_I = \sum_{n=-f}^{f-2} \begin{pmatrix} f & 1 & F \\ -n-2 & 1 & n+1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} F & 1 & f \\ -n-1 & 1 & n \end{pmatrix} (i|n\rangle\langle n+2| - i|n+2\rangle\langle n|), \quad (\text{A24b})$$

$$\hat{\beta} = \sum_{n=-f}^f \left[\begin{pmatrix} f & 1 & F \\ -n & 1 & n-1 \end{pmatrix}^2 - \begin{pmatrix} f & 1 & F \\ -n & -1 & n+1 \end{pmatrix}^2 \right] |n\rangle\langle n|. \quad (\text{A24c})$$

We separate the real and imaginary parts of Eq. (A23), which allows us to solve the equations analytically. Although general solutions of the equations are complicated, they can be simplified using the assumptions discussed above. However, it can be significantly simplified using the following assumptions. First, it should be noted that we are mostly interested in the evolution connected with the drive originating from the ground-state evolution, this evolution takes place on the timescale characterized by the ground-state decay rate γ and Larmor frequency Ω_L . Thus, we can neglect the

transient effects proportional to $\exp(-\Gamma t)$. Next, we can group the oscillatory and constant terms of the remaining solution and expand the respective amplitudes in the power series to the first order in Ω_L and γ . The mentioned amplitudes are the functions of detuning Δ , Larmor frequency Ω_L and relaxation rates γ and Γ . As under typical experimental conditions [16,28], Ω_L and γ span between several Hz up to tens of kHz. At the same time, the relaxation rate of the first-excited state of typically investigated alkali-metal atoms is in the MHz range, so that to fulfill the assumptions the detuning

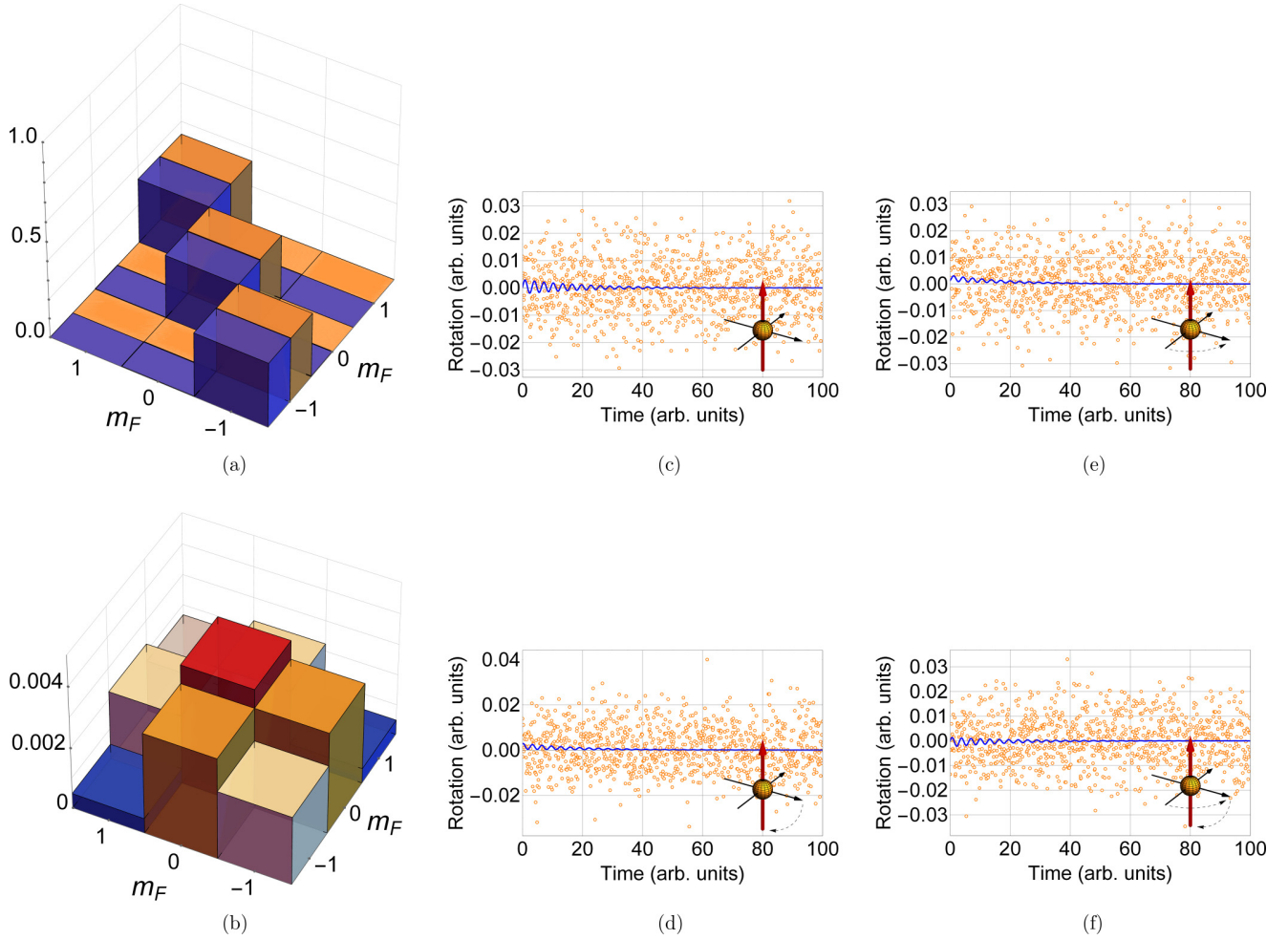


FIG. 5. Reconstruction of the fully mixed state. (a) Absolute values of density-matrix elements corresponding to initial (orange or light gray) and reconstructed (blue or dark gray) states and (b) the absolute differences between the corresponding elements of the density matrices. The rotation signals (orange points) along with the fitting (blue line) for (c) $\varphi = 0$ and $\theta = 0$, (d) $\varphi = 0$ and $\theta = \pi/4$, (e) $\varphi = \pi/4$ and $\theta = 0$, and (f) $\varphi = \pi/4$ and $\theta = \pi/4$. Insets in panels (c)–(f) show the AMPS of the state after respective rotations. Red thicker arrow denotes the magnetic-field and light-propagation direction and dashed arrows indicate the direction of the rotation due to the control pulses. Simulation parameters the same as in the main text.

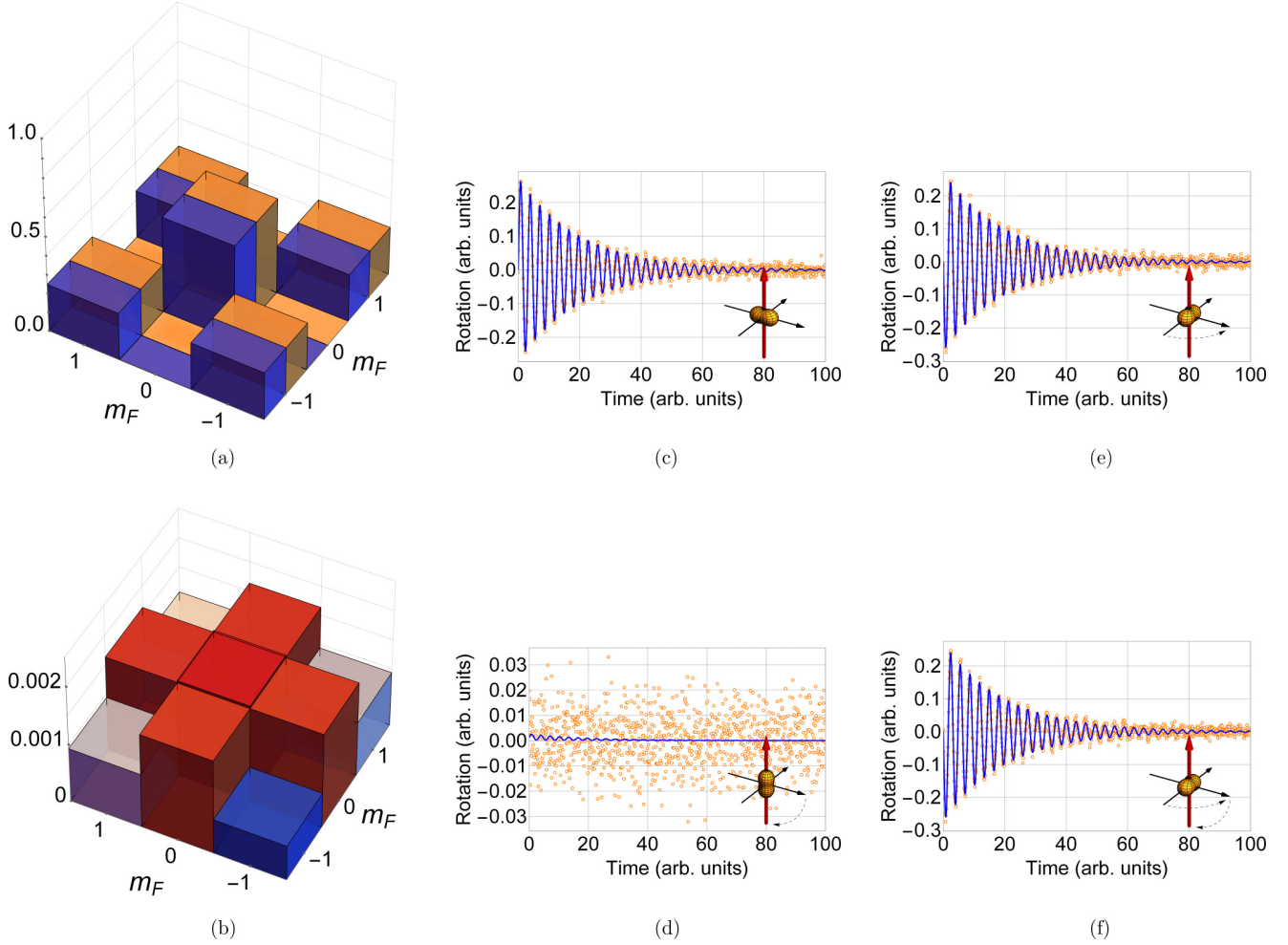


FIG. 6. Reconstruction of the density matrix of a fully aligned state. (a) Absolute values of the density-matrix elements corresponding to initial (orange or light gray) and reconstructed (blue or dark gray) states with (b) the absolute value of the differences between the two matrices. (c)–(f) Simulated signals obtained for the same set of parameters as in Fig. 5. Insets in panels (c)–(f) show the AMPS of the state after respective rotations.

should be at least several times larger. Finally, under typical conditions, the room-temperature alkali vapors are optically thin, so that $\partial_z \alpha$ can be written in linear limit $\Delta \alpha / L$, where L is the thickness of the atomic medium. Altogether, this allows us to achieve quite a compact form of the expressions

$$\Delta \alpha = -\chi L e^{-\gamma t} \left(\frac{\Gamma \langle \hat{\alpha}_r \rangle}{\Gamma^2 + 4\Delta^2} \sin(2\Omega_L t) + \frac{\Gamma \langle \hat{\alpha}_i \rangle}{\Gamma^2 + 4\Delta^2} \cos(2\Omega_L t) - \frac{2\Delta \langle \hat{\beta} \rangle}{\Gamma^2 + 4\Delta^2} \right), \quad (\text{A25a})$$

$$\Delta \epsilon = \chi L e^{-\gamma t} \left(\frac{2\Delta \langle \hat{\alpha}_r \rangle}{\Gamma^2 + 4\Delta^2} \sin(2\Omega_L t) + \frac{2\Delta \langle \hat{\alpha}_i \rangle}{\Gamma^2 + 4\Delta^2} \cos(2\Omega_L t) + \frac{\Gamma \langle \hat{\beta} \rangle}{\Gamma^2 + 4\Delta^2} \right). \quad (\text{A25b})$$

It should be noted that $\Gamma/(\Gamma^2 + 4\Delta^2)$ and $2\Delta/(\Gamma^2 + 4\Delta^2)$ are, in fact, the real and imaginary part of the Lorentz function $\mathcal{L}(\Delta) = (\Gamma - 2i\Delta)^{-1}$.

In analogy to the polarization rotation and ellipticity change, relations for absorption and phase change can be derived. To do so we introduce another observable

$$\hat{\delta} = \sum_{n=-f}^f \left[\begin{pmatrix} f & 1 & F \\ -n & 1 & n-1 \end{pmatrix}^2 + \begin{pmatrix} f & 1 & F \\ -n & -1 & n+1 \end{pmatrix}^2 \right] |n\rangle \langle n|. \quad (\text{A26})$$

which is used in the following relations for absorption ΔE and phase change $\Delta \varphi$:

$$\frac{\Delta E}{E} = \chi L \mathcal{L}_R(\Delta) e^{-\gamma t} [\langle \hat{\alpha}_r \rangle \cos(2\Omega_L t) - \langle \hat{\alpha}_i \rangle \sin(2\Omega_L t) + (\langle \hat{\delta} \rangle - \delta_s)] + \chi L \mathcal{L}_R(\Delta) \delta_s, \quad (\text{A27a})$$

$$\Delta \varphi = -\chi L \mathcal{L}_I(\Delta) e^{-\gamma t} [\langle \hat{\alpha}_r \rangle \cos(2\Omega_L t) - \langle \hat{\alpha}_i \rangle \sin(2\Omega_L t) + (\langle \hat{\delta} \rangle - \delta_s)] - \chi L \mathcal{L}_I(\Delta) \delta_s. \quad (\text{A27b})$$

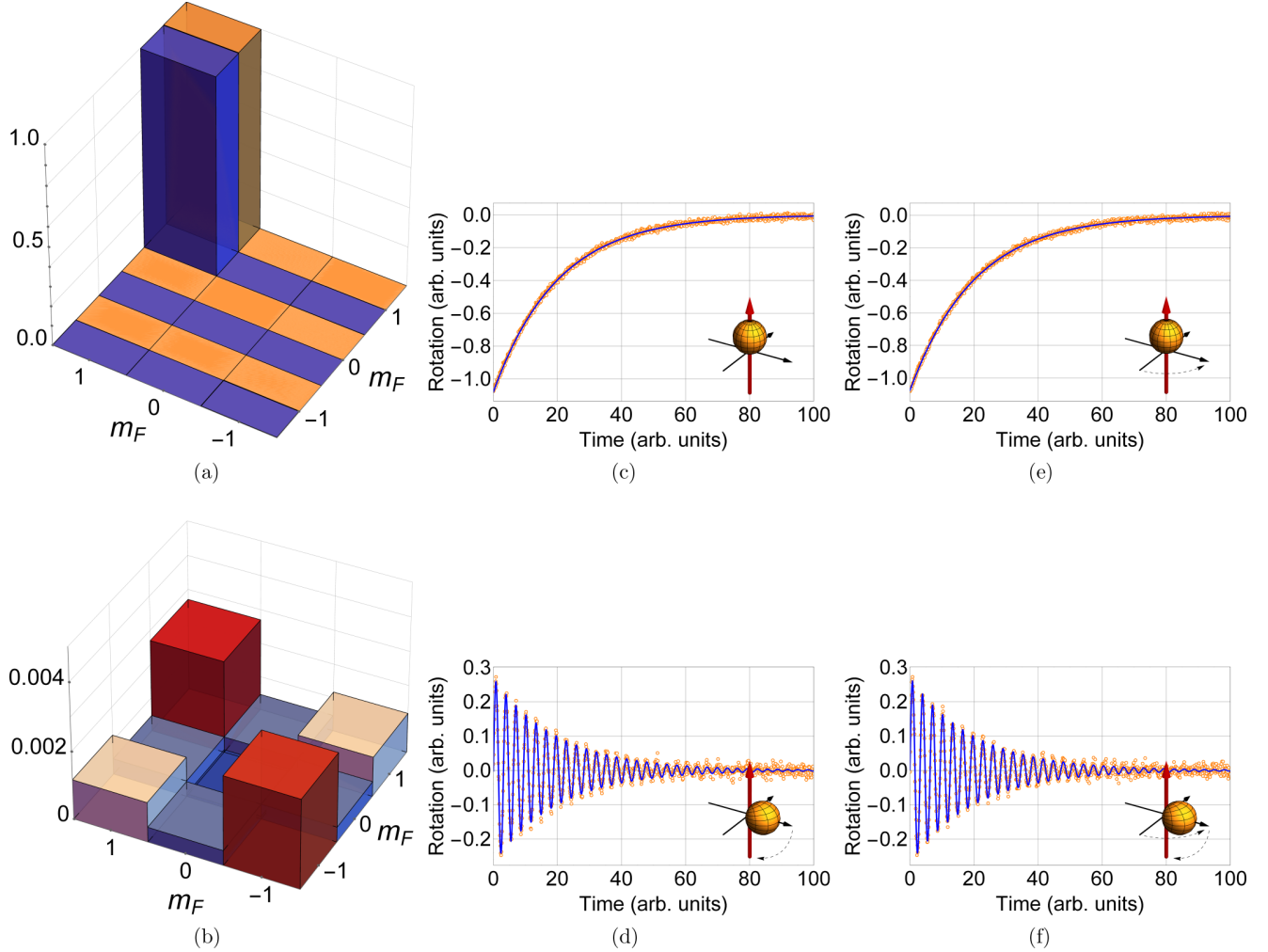


FIG. 7. Reconstruction of the density matrix corresponding to the stretch state. (a) Absolute value of the density-matrix elements of the initial (orange or light gray) and reconstructed (blue or dark gray) states with (b) an absolute value of the differences between corresponding density-matrix elements. (c)–(f) Simulated rotation signals obtained with a set of four initial DC magnetic-field pulses.

It should be noted that the term

$$\delta_s = \frac{2}{2f+1} \sum_{n=-f}^f \begin{pmatrix} f & 1 & F \\ -n & 1 & n-1 \end{pmatrix}^2,$$

which arises exclusively in the relations of absorption and phase change, corresponds to the isotropic fraction of the state. This is intuitively understood because absorption and phase changes are always present in the medium, independently of its anisotropic.

APPENDIX B: RECONSTRUCTION OF SPECIFIC STATES

Although the main text presents a reconstruction of two generic states, i.e., pure and partially mixed states (some analysis were also performed for the fully mixed state), here we present results of the reconstructions of several other examples that are often experimentally generated [16,30,31].

The simplest state one may consider for reconstruction is a fully mixed state, corresponding to atoms in thermal equilibrium in the absence of the magnetic field. In

such a case, population of all ground-state sublevels is equal and no coherences are present in the system. It can be shown, using the angular-momentum probability surfaces (AMPS) [32], which conveniently represent the density matrices as three-dimensional (3D) objects, that the thermal-equilibrium state corresponds is fully symmetric (AMPS is a sphere). In turn, the state is optically isotropic, i.e., no polarization rotation or ellipticity change is expected.

We also expect this because of the full symmetry of the density matrix. It should be noted, however, that in the real measurement the signal is contaminated with noise or systematic effects, associated with imperfections of detection, which can lead to fitting of nonzero polarization rotation.

The results of the simulations of the polarization rotation proceeded with pulses rotating density matrix by the angles φ and θ are shown in Figs. 5(c)–5(f). To better simulate the experimental signals, the simulated data were contaminated with white noise, and such signals were used for fitting and reconstruction (blue traces in the experimental data). Figure 5(a) shows initial and reconstructed density matrix and

Fig. 5(b) presents deviation of the reconstructed matrix from the initial matrix. Under such conditions, the fidelity of the reconstruction is very close to unity, $\mathcal{F} = 0.999$. At this point, it is hard to determine whether this remaining deviation is a consequence of the principal uncertainty of our method resulting from the approximations in the model or fitting errors.

An aligned state is a nontrivial state that is generated, for example, by a linearly polarized light. Such a state is widely used in optical magnetometry [21,33–36]. When generated with x - or y -polarized light and without any transverse magnetic fields, a characteristic feature of the state is the presence of strong $\Delta m = 2$ coherences with the simultaneous absence of $\Delta m = 1$ coherences. The density matrix corresponding to such a state is shown in Fig. 6(a) with an initial state shown in orange and the reconstructed state in blue. Based on the geometric argument using AMPS (the density matrix corresponds to the peanut-like shape oriented along the polarization direction), evolution of the matrix (rotation of the peanut-like shape) due to the longitudinal magnetic field leads to the modulation of light parameters at twice the Larmor frequency (the matrix reproduces itself twice during the Larmor period). At the same time, rotation and differently oriented fields give signals in the first and second harmonics of the Larmor frequency [37], with the distinct exception of rotation around the peanut axis, which provides no modulation (full symmetry around the axis) [Fig. 6(d)]. The simulated signals

(with noise added) along with the fitting functions are shown in Figs. 6(c)–6(f).

Based on the signals, we performed the reconstruction and achieved a fidelity of 0.998.

The second nontrivial state, often encountered experimentally, is the fully oriented state (the stretch state). This state is generated by circularly polarized light, which pumps atoms into the ground-state sublevel of a maximum or minimum magnetic number m . The corresponding density matrix is shown in Fig. 7(a).

The analysis of the state using the AMPS shows that when the state is oriented along the magnetic field, there is no precession and hence no oscillating component of the signal. Then the only contribution to rotation signals comes from the population imbalance between the sublevels. Due to relaxation processes, the imbalance deteriorates over time. As discussed in the main text, the population imbalance results in static rotation, one expects nonzero nonoscillating rotation, which decays over time. Indeed, such behavior is observed in two of the data sets, corresponding to $\varphi = 0$, $\theta = 0$ and $\varphi = \pi/2$, $\theta = 0$ pulse sets. However, when the shape is oriented at an angle to the magnetic field, it provides an oscillating signal that is also visible in the simulations. Based on the simulations [Figs. 7(c)–7(f)], the density matrix was reconstructed [blue bars in Fig. 7(a)]. The differences between the initial and the reconstructed matrix are shown in Fig. 7(b) and the fidelity of the reconstruction is equal to 0.999.

-
- [1] *Quantum State Estimation*, edited by M. Paris and J. Rehacek (Springer, Berlin, Heidelberg, 2004), Vol. 649.
 - [2] Y. Liu, J. Tian, R. Betzholz, and J. Cai, Pulsed Quantum-State Reconstruction of Dark Systems, *Phys. Rev. Lett.* **122**, 110406 (2019).
 - [3] S. Mancini and P. Tombesi, Quantum state reconstruction of a Bose-Einstein condensate, *Europhys. Lett.* **40**, 351 (1997).
 - [4] H. J. Briegel, D. E. Browne, W. Dür, R. Raussendorf, and M. Van den Nest, Measurement-based quantum computation, *Nat. Phys.* **5**, 19 (2009).
 - [5] J. I. Cirac, L.-M. Duan, D. Jaksch, and P. Zoller, Quantum Information Processing with Quantum Optics, in *International Conference on Theoretical Physics*, edited by Daniel Iagolnitzer, Vincent Rivasseau, and Jean Zinn-Justin (Birkhäuser Basel, Basel, 2004), pp. 759–781.
 - [6] W. K. Wootters and W. H. Zurek, A single quantum cannot be cloned, *Nature (London)* **299**, 802 (1982).
 - [7] I. H. Deutsch and P. S. Jessen, Quantum control and measurement of atomic spins in polarization spectroscopy, *Opt. Commun.* **283**, 681 (2010).
 - [8] E. Zhivun, A. Wickenbrock, J. Sudyka, B. Patton, S. Pustelny, and D. Budker, Vector light shift averaging in paraffin-coated alkali vapor cells, *Opt. Express* **24**, 15383 (2016).
 - [9] M. T. Graf, D. F. Kimball, S. M. Rochester, K. Kerner, C. Wong, D. Budker, E. B. Alexandrov, M. V. Balabas, and V. V. Yashchuk, Relaxation of atomic polarization in paraffin-coated cesium vapor cells, *Phys. Rev. A* **72**, 023401 (2005).
 - [10] M. V. Balabas, T. Karaulov, M. P. Ledbetter, and D. Budker, Polarized Alkali-Metal Vapor with Minute-Long Transverse Spin-Relaxation Time, *Phys. Rev. Lett.* **105**, 070801 (2010).
 - [11] V. G. Lucivero, R. Jiménez-Martínez, J. Kong, and M. W. Mitchell, Squeezed-light spin noise spectroscopy, *Phys. Rev. A* **93**, 053802 (2016).
 - [12] V. G. Lucivero, P. Anielski, W. Gawlik, and M. W. Mitchell, Shot-noise-limited magnetometer with sub-picotesla sensitivity at room temperature, *Rev. Sci. Instrum.* **85**, 113108 (2014).
 - [13] B. Julsgaard, A. Kozhekin, and E. S. Polzik, Experimental long-lived entanglement of two macroscopic objects, *Nature (London)* **413**, 400 (2001).
 - [14] J. J. Sakurai and J. Napolitano, *Modern Quantum Mechanics* (Cambridge University Press, Cambridge, 2017).
 - [15] G. A. Smith, S. Chaudhury, A. Silberfarb, I. H. Deutsch, and P. S. Jessen, Continuous Weak Measurement and Nonlinear Dynamics in a Cold Spin Ensemble, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 163602 (2004).
 - [16] S. Pustelny, D. F. Jackson Kimball, S. M. Rochester, V. V. Yashchuk, W. Gawlik, and D. Budker, Pump-probe nonlinear magneto-optical rotation with frequency-modulated light, *Phys. Rev. A* **73**, 023817 (2006).
 - [17] M. Auzinsh, D. Budker, and S. Rochester, *Optically Polarized Atoms: Understanding Light-Atom Interactions* (Oxford University Press, Oxford, 2010).
 - [18] Krystian Sycz, Adam M. Wojciechowski, and Wojciech Gawlik, Atomic-state diagnostics and optimization in cold-atom experiments, *Sci. Rep.* **8**, 2805 (2018).
 - [19] D. Budker, L. Hollberg, D. F. Kimball, J. Kitching, S. Pustelny, and V. V. Yashchuk, Microwave transitions and nonlinear

- magneto-optical rotation in anti-relaxation-coated cells, *Phys. Rev. A* **71**, 012903 (2005).
- [20] Albert Messiah, *Quantum Mechanics: Volume II* (North-Holland Publishing Company, Amsterdam, 1962).
- [21] W. Chalupczak, P. Josephs-Franks, R. M. Godun, and S. Pustelny, Radio-frequency spectroscopy in the dark, *Phys. Rev. A* **88**, 052508 (2013).
- [22] E. Bagan, A. Monras, and R. Muñoz-Tapia, Comprehensive analysis of quantum pure-state estimation for two-level systems, *Phys. Rev. A* **71**, 062318 (2005).
- [23] R. Schmied, Quantum state tomography of a single qubit: comparison of methods, *J. Mod. Phys.* **63**, 1744 (2016).
- [24] Yeong-Cherng Liang, Yu-Hao Yeh, Paulo E. M. F. Mendonça, Run Yan Teh, Margaret D. Reid, and Peter D. Drummond, Quantum fidelity measures for mixed states, *Rep. Prog. Phys.* **82**, 076001 (2019).
- [25] K. Życzkowski, K. A. Penson, I. Nechita, and B. Collins, Generating random density matrices, *J. Math. Phys.* **52**, 062201 (2011).
- [26] M. Enríquez, F. Delgado, and K. Życzkowski, Entanglement of Three-Qubit Random Pure States, *Entropy* **20**, 745 (2018).
- [27] M. Kopciuch and S. Pustelny (unpublished).
- [28] S. Pustelny, M. Koczwara, Ł. Cincio, and W. Gawlik, Tailoring quantum superpositions with linearly polarized amplitude-modulated light, *Phys. Rev. A* **83**, 043832 (2011).
- [29] J. P. Barrat and C. Cohen-Tannoudji, Étude du pompage optique dans le formalisme de la matrice densité, *J. Phys. Radium* **22**, 329 (1961).
- [30] W. Gawlik, L. Krzemień, S. Pustelny, D. Sangla, J. Zachorowski, M. Graf, A. O. Sushkov, and D. Budker, Nonlinear magneto-optical rotation with amplitude modulated light, *Appl. Phys. Lett.* **88**, 131108 (2006).
- [31] O. Katz and O. Firstenberg, Light storage for one second in room-temperature alkali vapor, *Nat. Commun.* **9**, 2074 (2018).
- [32] S. M. Rochester and D. Budker, Atomic polarization visualized, *Am. J. Phys.* **69**, 450 (2001).
- [33] S. Pustelny, A. Wojciechowski, M. Gring, M. Kotyba, J. Zachorowski, and W. Gawlik, Magnetometry based on nonlinear magneto-optical rotation with amplitude-modulated light, *J. Appl. Phys.* **103**, 063108 (2008).
- [34] Z. Ding, X. Long, J. Yuan, Z. Fan, and H. Luo, Sensitive determination of the spin polarization of optically pumped alkali-metal atoms using near-resonant light, *Sci. Rep.* **6**, 32605 (2016).
- [35] N. Wilson, C. Perrella, R. Anderson, A. Luiten, and P. Light, Wide-bandwidth atomic magnetometry via instantaneous-phase retrieval, *Phys. Rev. Research* **2**, 013213 (2020).
- [36] Piotr Put, Kacper Popiolek, and Szymon Pustelny, Different sensitivities of two optical magnetometers realized in the same experimental arrangement, *Sci. Rep.* **9**, 2537 (2019).
- [37] S. Pustelny, W. Gawlik, S. M. Rochester, D. F. Jackson Kimball, V. V. Yashchuk, and D. Budker, Nonlinear magneto-optical rotation with modulated light in tilted magnetic fields, *Phys. Rev. A* **74**, 063420 (2006).

3.1.2 Stabilność rekonstrukcji stanów

Tomografia stanów kwantowych jest procedurą, która na podstawie pomiarów wartości oczekiwanych zbioru operatorów estymuje stan układu kwantowego. Przy takiej procedurze istotne jest zrozumienie, w jaki sposób wybór zbioru mierzonych operatorów wpływa na propagację błędów pomiarowych, czyli na stabilność rekonstrukcji. Jest to szczególnie ważne, ponieważ tomografia stanów jest podstawą testowania i weryfikacji algorytmów kwantowych.

Analiza stabilności procedury jest wyjątkowo istotna w przypadku inwersji liniowej, której zasadniczą zaletą jest łatwość obliczeniowa oraz intuicyjność. Ceną zalety powyższej metody jest fakt, że przy nieoptymalnym wyborze mierzonych obserwacji [46], metoda potrafi zwielokrotnić błędy pomiarowe, prowadząc do często zupełnie bezużytecznych wyników. Objawiają się one m.in. niedodatnią określonością wynikowej macierzy gęstości [47, 48].

W tym miejscu warto zauważyć, że w literaturze problem optymalizacji tomografii kwantowej był opisywany na wiele różnych sposobów, w tym również poprzez dobór odpowiedniego zbioru pomiarów [49, 50]. Takie podejście pozwala na stosunkowo łatwe znalezienie analitycznych postaci zbioru impulsów kontrolnych, które najlepiej optymalizują dany, konkretny pomiar [43, 46].

W analizie metod numerycznych do określenia, w jaki sposób błędy danych wejściowych $\delta \mathbf{b}$ propagują się poprzez algorytm f na błędy w rozwiązaniu danego problemu $\delta f(\mathbf{b})$, wykorzystuje się wskaźnik uwarunkowania [40, 51, 52] zdefiniowany poprzez:

$$\kappa = \lim_{\epsilon \rightarrow 0^+} \sup_{\|\delta \mathbf{b}\| < \epsilon} \frac{\|f(\mathbf{b} + \delta \mathbf{b})\| / \|f(\mathbf{b})\|}{\|\delta \mathbf{b}\| / \|\mathbf{b}\|}. \quad (3.9)$$

Intuicyjnie wskaźnik ten może być rozumiany jako najbardziej pesymistyczny stosunek względnego błędu wyniku do względnego błędu pomiaru. Im wyższy wskaźnik uwarunkowania, tym gorzej uwarunkowany jest problem. Oznacza to, że nawet niewielkie zmiany w danych wejściowych mogą prowadzić do znaczących błędów w wynikach. W kontekście problemu inwersji liniowej, wskaźnik uwarunkowania jest narzędziem służącym do oceny stabilności odwracania macierzy $\mathbb{O}^\dagger \mathbb{O} = \mathbb{C}$. W przypadku inwersji liniowej wskaźnik uwarunkowania przyjmuje postać [40, 51, 52]:

$$\kappa(\mathbb{C}) = \|\mathbb{C}\|_2 \|\mathbb{C}^{-1}\|_2 = \frac{\max[\text{svd}(\mathbb{C})]}{\min[\text{svd}(\mathbb{C})]} \geq 1, \quad (3.10)$$

gdzie $\|\cdot\|_2$ jest normą spektralną macierzy¹. Jest to znana w literaturze metoda sprawdzania stabilności tomografii stanów nie tylko opartej o pomiary FID, ale również opartej o np. zliczenia fotonów.

Warto zauważyć, że wykorzystanie takiej metody kwantyfikowania stabilności tomografii stanów kwantowych jest znane w literaturze i było wykorzystywane do znajdowania optymalnych baz pomiarowych w oparciu o znane symetrie wykorzystanych w konkretnych pracach struktur energetycznych [43, 53]. Jednak często wyznaczone bazy pomiarowe są relatywnie trudne do zaimplementowania w układzie eksperymentalnym i, ze względu na skomplikowane

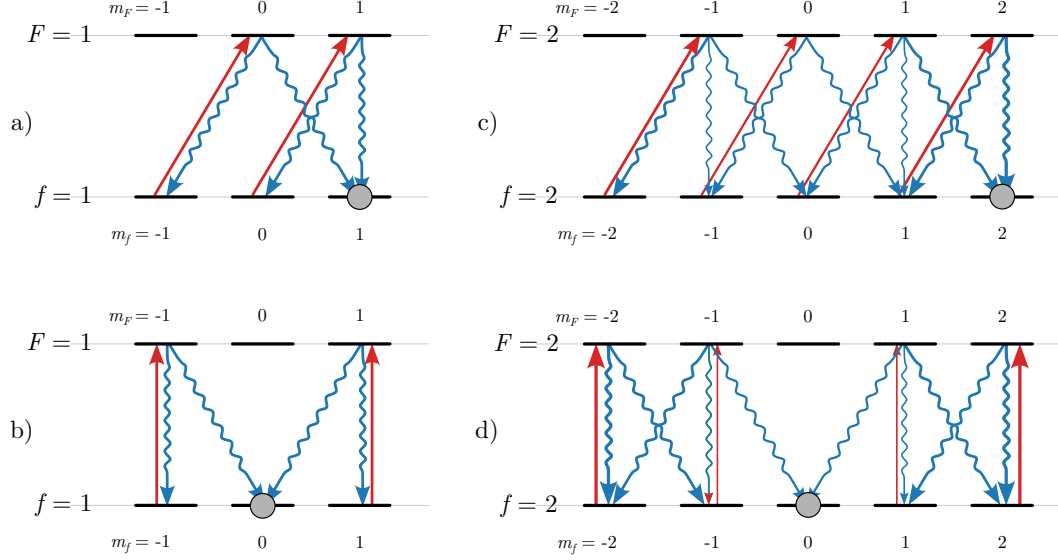
¹Wykorzystanie innej normy jest również możliwe, jednak to norma spektralna jest najczęściej wykorzystywana.

transformacje wymagane do ich realizacji, mogą zwiększać niepewności pomiarowe. Aby ograniczyć ten problem, w pracy [C] zaproponowane zostały dwie metody optymalizacji wskaźnika uwarunkowania w pomiarach opartych o zanik magnetyzacji. Pierwsza oparta jest o zmianę względnych wag otrzymywanych składowych mierzonego sygnału, a druga oparta o powtarzanie pomiarów i selektywny wybór niektórych komponentów. Dodatkowo w tej samej pracy przedstawiono eksperymentalną weryfikację wpływu wskaźnika uwarunkowania na wzrost niepewności rekonstrukcji. Należy podkreślić, że opracowane metody nie ograniczają się tylko do tomografii w ciepłych parach, ale wskazują sposób optymalizacji dla dowolnej tomografii opartej na sygnałach zaniku magnetyzacji. W szczególności otwiera to perspektywy opracowania optymalnych metod tomografii we wcześniej niewykorzystywanych reżymach, takich jak NMR w ultraniskim polu magnetycznym.

3.1.3 Przygotowanie stanu początkowego

W ramach przedstawionej na Rys. 1.1 struktury rubidu-87, można wyróżnić dwa długiżące stany podstawowe, charakteryzujące się całkowitym momentem pędu $f = 1$ i $f = 2$. Po magnetycznym zniesieniu degeneracji, stany te rozpinają się na tryplet oraz kwintet podpoziomów, które mogą być adresowane przy pomocy pola magnetycznego lub światła. W naturalny sposób otwiera to możliwość wykorzystania tego stanu trypletowego jako qutritu. Co istotne, qutrit ten jest dość dobrze izolowany od otoczenia, ponieważ przerwa energetyczna do kwintetu wynosi 6.8 GHz [8], podczas gdy rozszczepienia podpoziomów w ramach trypletu wytwarzane w reżymie liniowego efektu Zeemana w polu magnetycznym $B_z \approx 150$ mG jest rzędu 100 kHz. W konsekwencji układ ten pozwala na badanie własności qutritów, które dotychczas były mniej eksplorowane niż układy qubitowe.

Podstawowym wyzwaniem niemal każdego eksperymentu z dziedziny informatyki kwantowej jest precyzyjne i powtarzalne wytwarzanie stanu początkowego układu. W przypadku układu wykorzystanego w tej pracy, naturalnym sposobem realizacji tego celu było użycie procesu pompowania optycznego [54]. Stanem początkowym, który jest interesujący z punktu widzenia badania własności qutritu, jest stan czysty. Jego szczególnym przypadkiem jest stan, w którym wszystkie atomy trypletu przepompowywane są do jednego podpoziomu energetycznego. W opisywanych badaniach można to osiągnąć przy pomocy dwóch wiązek: wiązki pompującej, działającej na przejściu $f = 1 \rightarrow F = 1$ i wytwarzającej wymagany stan w ramach qutritu, oraz wiązki repompującej, działającej na przejściu $f = 2 \rightarrow F = 2$, opróżniającej kwintet. Działanie pierwszej wiązki łatwo zobrazować na modelowym przejściu zamkniętym $f = 1 \rightarrow F = 1$. W takim przypadku, ze względu na reguły wyboru, polaryzacja światła pozwala wybrać dowolny z trzech stanów, do którego atomy mogą zostać przepompowane (Rys. 3.1). Wykorzystując światło spolaryzowane kołowo $\sigma^\pm$, populacja atomów jest przenoszona w stronę jednego ze skrajnych stanów $|1, \pm 1\rangle$. Natomiast ze względu na wzbronienie przejścia $|1, 0\rangle \rightarrow |1, 0\rangle$, polaryzacja π przepompowuje atomy do stanu $|1, 0\rangle$. Niestety, w realnej sytuacji pompowanie na tym przejściu nie odbywa się w cyklu zamkniętym, tj. atomy mogą uciekać do drugiego z nadsubtelnych stanów podstawowych. Co więcej, ze względu na czynniki Clebsha-Gordona prawdopodobieństwo, że po wzbudzeniu atom zrelaksuje do stanu

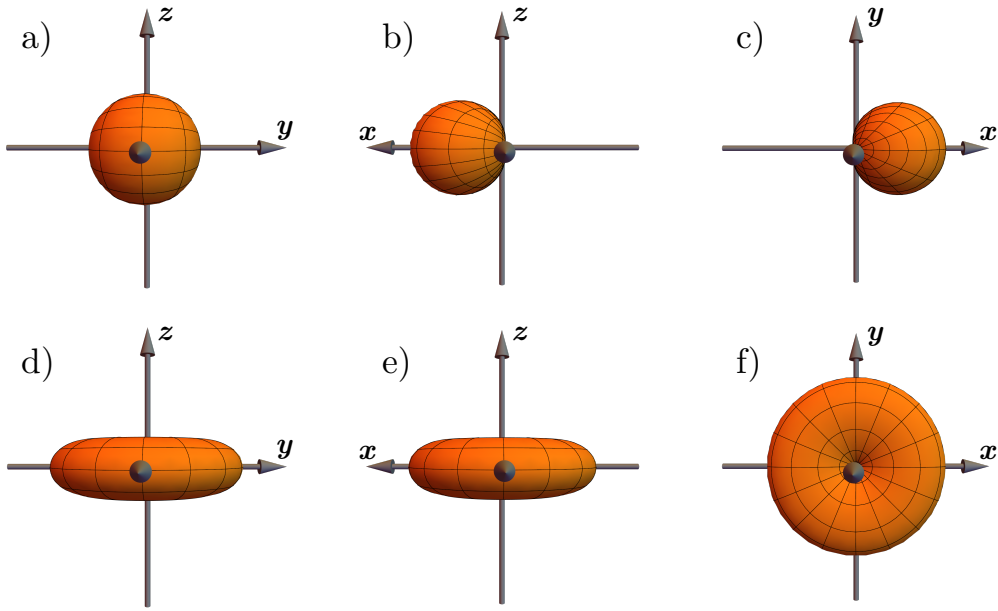


Rysunek 3.1: Schematy pompowania optycznego dla układu zamkniętego $f = 1 \rightarrow F = 1$ pobudzanego polaryzacją liniową prawoskrętną σ^+ (a) oraz liniową typu π (b), oraz dla przejścia $f = 2 \rightarrow F = 2$ pobudzanego tymi samymi polaryzacjami światła [odpowiednio (c) oraz (d)]. Czerwone strzałki przedstawiają sprzężenia wyindukowane światłem pompującym, zaś zielone pofalowane strzałki przedstawiają kanały rozpadu stanów wzbudzonych (dla zwiększenia czytelności rysunków zaniedbano kanały rozpadu ze stanów niesprzężonych światłem). Szare koła wskazują populację stanów, w których pułapkowana jest populacja. W pełni symetryczne zależności do tych otrzymanych dla światła o polaryzacji σ^+ można uzyskać dla światła o polaryzacji σ^- .

$f = 2$ zamiast $f = 1$ wynosi $2 : 1$ [5]. Przy zaniedbywalnej relaksacji samych stanów podstawowych, skutkuje to efektywnie całkowitym opróżnieniem trypletu. Aby uniknąć tego efektu, do przygotowania stanu można wykorzystać wiązkę repompującą „pracującą” na przejściu $f = 2 \rightarrow F = 2$. Zadaniem tej wiązki jest ciągle opróżnianie kwintetu i przepompowanie atomów do stanu trypletowego. Jednakże należy zauważyć, że dla każdej z podstawowych polaryzacji, ze względu na reguły wyboru, w stanie $f = 2$ istnieją podpoziomy nieoddziałujące ze światłem, które uniemożliwiają całkowite przepompowanie atomów do trypletu.

Aby rozwiązać problem pułapkowania populacji w stanie ciemnym, podczas realizacji doktoratu opracowano metodę pompowania optycznego w obecności dodatkowego pola magnetycznego, którego zadanie polega na przelewaniu populacji uwięzionej w stanie ciemnym do stanów oddziałujących ze światłem. Podejście to pozwoliło m.in. w rozważanym rubidzie-87 przelać całą populację stanu $f = 2$ do stanu $f = 1$.

Działanie mechanizmu „uwalniania” populacji ze stanu ciemnego można w intuicyjny sposób wytłumaczyć w oparciu o pewne symetrie istniejące w układzie. Aby zademonstrować wspomniane symetrie, warto wykorzystać możliwość przedstawienia macierzy gęstości jako płaszczyzn prawdopodobieństwa – AMPS (ang. *Angular Momentum Probability Surface*) [55]. Powierzchnie AMPS powstają poprzez obliczenie przekrycia badanego stanu ze stanem o maksymalnym rzucie momentu pędu w danym kierunku przestrzennym. Rozważenie pełnego kąta bryłowego prowadzi do powstania zamkniętych powierzchni, które w układzie sferycznym charakteryzowanym przez $\{(\rho_{ff}(\Theta, \phi), \Theta, \phi), \text{gdzie } \Theta \in [0, \pi] \wedge \phi \in [0, 2\pi]\}$, gdzie promień dany



Rysunek 3.2: Struktury AMPS reprezentujące stany wytwarzane w badaniach prowadzonych w ramach niniejszej pracy. Struktury a)-c) odpowiadają stanowi powstałemu podczas pompowania optycznego atomów na przejściu $f = 1 \rightarrow F = 1$ przez wiązkę światła spolaryzowaną kołowo prawoskrętnie i propagującą wzdłuż osi x , zaś d)-f) atomom pompowanym na przejściu $f = 2 \rightarrow F = 2$ przez wiązkę spolaryzowaną liniowo wzdłuż osi z i propagującą wzdłuż x . Kolejne trójki rysunków przedstawiają rzut danego AMPS w płaszczyznach yz , xz oraz xy . W oparciu o przedstawione struktury łatwo dostrzegalna jest dyskutowana w treści rozprawy symetria obrotowa stanów. W szczególności dla stanu pompowanego światłem kołowym osią symetrii jest oś x , czyli kierunek propagacji wiązki pompującej. Natomiast dla stanu pompowanego światłem liniowym jest to oś z , czyli oś wzdłuż której, światło pompujące jest spolaryzowane.

jest przez²:

$$\rho_{ff}(\Theta, \phi) = \langle ff(\Theta, \phi) | \rho | ff(\Theta, \phi) \rangle = \sum_{mm'} \mathcal{D}_{mf}^{(f)*}(\phi, \Theta, 0) \rho_{mm'} \mathcal{D}_{m'f}^{(f)}(\phi, \Theta, 0). \quad (3.11)$$

$\mathcal{D}^{(f)}(\phi, \Theta, 0)$ jest tutaj złożonym operatorem obrotu o kąty Eulera [5] działającym na stan o momencie pędu f .

W najprostszych przypadkach polaryzacji światła (polaryzacja kołowa i liniowa) zidentyfikowanie osi symetrii wytwarzanych stanów jest szczególnie proste. Światło kołowo spolaryzowane, pompując populację do skrajnego stanu³ zawsze wytwarza stan o orientacji wybranej wzdłuż osi propagacji światła oraz o zwrocie wybranym przez prawo-/lewoskrętność polaryzacji. Dla światła spolaryzowanego liniowo sytuacja jest niewiele bardziej skomplikowana. Należy zauważyć, iż światło liniowo spolaryzowane może zostać rozłożone na superpozycję dwóch wiązek o przeciwnych kołowych polaryzacjach, ale równych amplitudach propagujących w tą samą stronę co światło liniowo spolaryzowane. W tym wypadku oś symetrii wytwarzanego stanu odzwierciedla fazę pomiędzy tymi dwiema składowymi, w związku z czym oś symetrii wytwarzanego stanu pokrywa się z osią polaryzacji światła liniowego [5]. Kilka przykładowych reprezentacji stanów dla typowych schematów pompowania w układach zamkniętych przedstawiono na Rys. 3.1, podczas gdy przykładowe otrzymane AMPS zwizualizowano na Rys. 3.2.

Wykorzystanie AMPS pozwala na intuicyjne wytłumaczenie opracowanej metody pompowania. Polega ona bowiem na zidentyfikowaniu osi symetrii stanu wytwarzanego przez wiązkę pompującą, następnie dodaniu wiązki repompującej w taki sposób, aby oś symetrii wytwarzanego przez nią stanu była prostopadła do osi stanu wytwarzanego przez wiązkę pompującą. Ostatnim elementem jest dodanie stałego pola magnetycznego wzdłuż osi symetrii stanu pompowanego. W tym kontekście warto zwrócić uwagę, że oparcie definicji AMPS na stanach własnych momentu pędu, bardzo dobrze oddaje symetrie stanów względem pól magnetycznych. Mianowicie symetria obrotowa AMPS, względem wybranej osi, oznacza, że omawiany stan jest nieczuły na pole magnetyczne w danej osi. I odwrotnie, dodanie pola w innym kierunku niż oś symetrii sprawia, że stan ewoluuje, co objawia się rotacją AMPS wokół osi przyłożonego pola. W tym kontekście dodanie pola prostopadłego do osi AMPS wytworzonego przy pomocy wiązki repompującej, powoduje przelewanie populacji w ramach poziomu $f = 2$ ze stanu ciemnego do stanów oddziałujących z wiązką repompującą. Jednocześnie pole to nie wpływa na stan wytwarzany w ramach poziomu $f = 1$.

Ważną obserwacją wynikającą z prowadzonych powyżej rozważań jest, że symetria obrotowa stanu wokół danego kierunku przekłada się na nieczułość tego stanu na pole magnetyczne zorientowane w tym kierunku. Jest to konsekwencją faktu, że ewolucja stanu kwantowego pod wpływem słabego pola magnetycznego tożsama jest kwantowo-mechanicznym obrotem tego stanu wokół kierunku pola magnetycznego. Chcąc zatem uniknąć pułapkowania populacji w jakimkolwiek stanie kwantowym należy tak dobrać polaryzację wiązki repompującej, aby oś

²Warto zauważyć, że w definicji zostało wykorzystane oznaczenie momentu pędu stanu podstawowego, wynika to z faktu, iż taka reprezentacja zazwyczaj jest wykorzystywana do wizualizowania stanów podstawowych.

³W bazie zeemanowskiej, o osi kwantyzacji ustawionej zgodnie z osią propagacji wiązki.

symetrii pompowanego przez nią stanu nie przekrywała się z osią symetrii stanu wytwarzanego przez wiązkę pompującą. Jednocześnie należy zapewnić, aby pole magnetyczne skierowane było zgodnie z osią symetrii stanu wytwarzanego przez wiązkę pompującą. W ten sposób wiązka pompująca wytwarza konkretny stan kwantowy, pompując atomy do stanu ciemnego, podczas gdy wiązka repompująca takiego stanu nie ma.

Kończąc rozważania dotyczące przygotowania atomów przy pomocy wiązki pompującej i repompującej, należy zwrócić uwagę na konieczność zapewnienia odpowiedniego natężenia pola magnetycznego przy określonym natężeniu światła wiązki repompującej. W tym celu należy porównać częstość Larmora Ω_L precesji wymuszanej polem magnetycznym do częstości Rabiego Ω_R wiązki repompującej. Warunkiem koniecznym jest zapewnienie aby $\Omega_L > \Omega_R$, co zapewnia, że pomiędzy statystyczną absorpcją dwóch kolejnych fotonów wiązki repompującej, atom znacząco (o kąt co najmniej π) zmienia swój stan („obraca” się).

Opisana powyżej metoda przygotowania stanu została zweryfikowana poprzez serie symulacji za pomocą metod opisanych w rozdziale 2.4, których wyniki zaprezentowana na Rys. 2.2. Warto jednocześnie zauważyć, że takie same rezultaty osiągnięto bez włączonego pola magnetycznego, ale z wykorzystaniem ciekłokrystalicznego depolaryzatora, który zmienia przestrzenny rozkład polaryzacji w przekroju wiązki. To powoduje, że wiązka efektywnie nie jest spolaryzowana. Co więcej, tak przygotowany stan, w którym zdecydowana większość populacji atomowej ($> 95\%$) jest przepompowana do jest do jednego stanu nadsubtelnego, jest częściowo odporny na zderzenia relaksację poprzez zderzenia z wymianą spinów [56]. Wynika to z opisanego w rozdziale 2.3 mechanizmu tej relaksacji, który polega na zamianie stanów nadsubtelnych zderzających się atomów.

Opracowanie powtarzalnej metody wytwarzania stanów początkowych o wysokiej wierności było kluczowym elementem badań nad tomografią stanów kwantowych oraz pierwszym krokiem do dalszego rozwoju tej metody w celu opracowania tomografii procesów. W szczególności, została ona wykorzystana w badaniach opisanych w artykułach [C, D] stanowiących podstawę niniejszego doktoratu.

3.1.4 Artykuł: Optimized optical tomography of quantum states of a room-temperature alkali-metal vapor

W artykule „Optimized optical tomography of quantum states of a room-temperature alkali-metal vapor” zademonstrowano pierwszą eksperymentalną realizację metody tomografii opracowanej w artykule [A]. Dokonano tego w układzie doświadczalnym zaprojektowanym i zbudowanym przez doktoranta. Dodatkowo artykuł przedstawia opisaną w rozdziale 3.1.2 analizę stabilności przeprowadzonej tomografii oraz optymalizuje ją w oparciu o zaproponowane przez doktoranta metody.

W ramach prac nad artykułem doktorant odpowiadał za zaprojektowanie oraz zbudowanie układu eksperymentalnego. Szczególnie istotnym elementem w tym kontekście było opracowanie przez niego nowej metody pompowania optycznego oraz adaptacja techniki CYCLOPS w celu ograniczenia błędów pomiarowych. Oprócz tego autor był odpowiedzialny za opracowanie metod optymalizacji tomografii stanów kwantowych oraz analizę danych doświadczalnych.

Ponadto aktywnie uczestniczył on w przygotowaniu manuskryptu artykułu, w szczególności w przygotowaniu części III-V oraz dodatków.

Optimized optical tomography of quantum states of a room-temperature alkali-metal vapor

Marek Kopciuch^{1,2,*}, Magdalena Smolis¹, Adam Miranowicz³, and Szymon Pustelny^{1,†}

¹*Institute of Physics, Jagiellonian University in Kraków, Łojasiewicza 11, 30-348 Kraków, Poland*

²*Doctoral School of Exact and Natural Sciences, Faculty of Physics, Astronomy and Applied Computer Sciences, Jagiellonian University, Łojasiewicza 11, 30-348 Kraków, Poland*

³*Institute of Spintronics and Quantum Information, Faculty of Physics, Adam Mickiewicz University, 61-614 Poznań, Poland*



(Received 4 September 2023; revised 23 January 2024; accepted 1 February 2024; published 1 March 2024)

We demonstrate an experimental technique for the quantum-state tomography of the collective qutrit states of a room-temperature alkali-metal vapor. It is based on the measurements of the polarization of light traversing the vapor subjected to a magnetic field. To assess the technique's robustness against errors, experimental investigations are supported with numerical simulations. This not only allows us to determine the fidelity of the reconstructed states, but also to analyze the quality of the reconstruction for specific experimental parameters, such as light tuning and the number of measurements. By utilizing the conditional number, we demonstrate that the reconstruction robustness can be optimized by a proper adjustment of experimental parameters, and further improvement is possible with the repetition of specific measurements. Our results demonstrate the potential of this high-fidelity reconstruction method of quantum states of room-temperature atomic vapors.

DOI: [10.1103/PhysRevA.109.032402](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.109.032402)

I. INTRODUCTION

Quantum technologies are founded upon the precise manipulation and reconstruction of quantum states. When dealing with single microscopic quantum objects, the reconstruction of states becomes challenging. This stems from a (usually) destructive nature of the reconstruction and small amplitudes of recorded signals. To address these difficulties, some researchers have turned their focus towards studying ensembles of quantum objects, which display a collective quantum behavior [1–15].

Atomic vapors serve as a prime example of a medium utilized for the engineering of collective quantum states. In their ultracold form, they allow for precise quantum control through light and other external fields, albeit the implementation of such control requires complex experimental setups. On the other hand, room-temperature vapors can be studied using simpler apparatuses, but they simultaneously present challenges in terms of theoretical understanding of to which extent collective ensembles are quantum [3]. Despite these problems, however, room-temperature atomic vapors were used to demonstrate various quantum-mechanical effects including coherent population trapping [4], spin squeezing [5,6], macroscopic entanglement [7,8], spin waves [8,9], squeezed-light generation [5,10,11], and the entanglement of light modes

[12]. A rubidium vapor was also used to construct an on-demand quantum memory [13,14]. These experiments have revived the interest in such media, while also necessitating the development of reliable quantum state tomography (QST) methods.

In this work, we demonstrate an experimental implementation of the recently proposed QST method [15]. The method enables the reconstruction of a complete collective density matrix of a room-temperature atomic vapor. It is based on the illumination of the vapor with an off-resonant probing light, and monitoring properties of the light after traversing a medium subjected to an external magnetic field. This enabled us to reconstruct a collective quantum state of ^{87}Rb atoms residing in the $F = 1$ ground state (qutrit), as shown in Fig. 1.

To evaluate the efficiency of the tomographic technique, we used the so-called conditional number [16–18]. Previously, the parameter was used for a comprehensive comparison of the optical tomographic methods of two polarization qubits [17] or the nuclear magnetic resonance (NMR) tomography of two ^1H spins $1/2$ (two qubits) [19] and a single nuclear spin $3/2$ (a quartit) in a semiconductor quantum well [20]. We demonstrate that, by an appropriate tuning of a probing light, the conditional number can be minimized (corresponding to an optimized reconstruction), reaching as small value as 2.25. We also discuss the methods for further improvement of the reconstruction efficiency by repeating specific measurements.

II. PRINCIPLES OF THE OPTICAL TOMOGRAPHY

We begin with a brief overview of the QST technique developed in Ref. [15]. This method relies on measuring the polarization rotation of linearly polarized probe light traversing a medium (e.g., room-temperature alkali-metal atoms) subjected to a longitudinal magnetic field. We assume that the

*marek.kopciuch@doctoral.uj.edu.pl

†pustelny@uj.edu.pl

Published by the American Physical Society under the terms of the [Creative Commons Attribution 4.0 International](https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/) license. Further distribution of this work must maintain attribution to the author(s) and the published article's title, journal citation, and DOI.

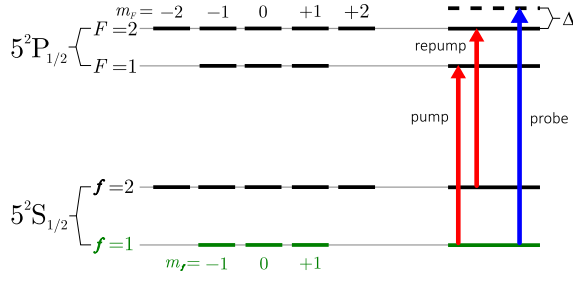


FIG. 1. Energy-level diagram corresponding to the ^{87}Rb D_1 line (presented energy gaps are not in scale), with measured qutrit marked with green. Additionally, tunings of all the laser beams are presented; red lines correspond to the pumping and repumping light used for the state preparation, and the blue line shows the probing beam which is blue detuned from the resonance by Δ and used for state reconstruction.

amplitude of the light is small, which allows us to describe its interaction with atoms using a perturbation theory of the lowest order (linear interaction). At the same time, unlike previous approaches (see, e.g., Refs. [21,22]), we do not assume a significant detuning of the light from the optical transition. This allows us to consider not only vector contributions to a polarization rotation [21,23,24], but also a tensor contribution [25], and hence reconstruct the whole collective density matrix of the atoms. It is noteworthy that this reconstruction is achieved without full control over the system, as successive magnetic sublevels are equally split due to a weak magnetic field (due to the linear Zeeman effect) and, hence, cannot be selectively addressed [26].

In Ref. [15], the relation between a time-dependent polarization rotation $\delta\alpha(t)$ and operators $\hat{\alpha}_{R,I}$ and $\hat{\beta}$ was introduced. These operators are associated with the coherence and population difference of specific magnetic sublevels and, hence, provide the access to specific density-matrix elements. In this work, we employ a slightly modified version of that relationship, i.e.,

$$\delta\alpha(t; \Delta) = \eta(\Delta)(e^{-\gamma_1 t}[\langle\hat{\alpha}_R\rangle \sin(2\Omega_L t) + \langle\hat{\alpha}_I\rangle \cos(2\Omega_L t)] - \zeta(\Delta)e^{-\gamma_2 t}\langle\hat{\beta}\rangle), \quad (1)$$

where $\eta(\Delta) = \chi V_R(\Delta)$ and $\zeta(\Delta) = V_I(\Delta)/V_R(\Delta)$ are the global and local scaling factors associated with the real (V_R) and imaginary (V_I) parts of the Voigt profile, respectively, and χ is related to experimental parameters, such as an atomic density and a transition frequency (for more details see Appendix A). As shown in Eq. (1), the time dependence of the polarization rotation is determined by the Larmor frequency Ω_L and the longitudinal and transverse relaxation rates γ_1 and γ_2 .

Since a single measurement described by Eq. (1) allows us to extract only limited information about the system (specifically the population difference and the coherence between magnetic sublevels with $\Delta m_F = 2$), it is necessary to expand the set of measured signals to obtain a more comprehensive information. To achieve this, we introduce a series of unitary operations known as control pulses, which modify the state. This provides us the access to other density-matrix elements and, hence, offers a complete characterization of the system

[15]. In turn, the reconstruction problem can be presented as [15]

$$\mathbb{O}\rho_V = \mathbf{b}, \quad (2)$$

where $\mathbb{O}$ represents the coefficient matrix determined by the set of observables, and $\rho_V = [\rho_{11}^R, \rho_{10}^R, \rho_{10}^I, \dots]^T$ (where $\rho_{mn}^R = \text{Re}\{\rho_{mn}\}$ and $\rho_{mn}^I = \text{Im}\{\rho_{mn}\}$, and $\bar{1} = -1$) is the vectorized form of a standard-form (square) density matrix ρ with elements ρ_{ij} (see Appendix A for more information). Moreover, $\mathbf{b}$ is the observation vector, which contains the values of measured observables. In a typical experimental scenario, the set of measurements, given in Eq. (2), is often overdetermined, and it is advantageous to rescale it to a more suitable form,

$$\mathbb{C}\rho_V = \tilde{\mathbf{b}}, \quad (3)$$

where $\mathbb{C} = \mathbb{O}^\dagger \mathbb{O}$ and $\tilde{\mathbf{b}} = \mathbb{O}^\dagger \mathbf{b}$. This rescaling enables the calculation of the density operator by simply inverting the aforementioned linear problem.

III. EXPERIMENTAL DETAILS

A. Experimental setup

The heart of our experimental system is a paraffin-coated spherical cell 3 cm in diameter, containing an isotopically enriched sample of ^{87}Rb atoms. The cell is heated up to 50°C and placed inside a cylindrical magnetic shield made of three layers of mumetal and a cubic innermost ferrite layer (a shielding factor of about 10^5). Apart from the cell, the shield additionally contains a set of magnetic-field coils, which enables the residual-field compensation and generation of magnetic-field pulses in the $\mathbf{x}$, $\mathbf{y}$, and $\mathbf{z}$ directions. During the application of magnetic-field pulses, which rotate the states, other magnetic fields and all light beams are switched off. Light used for the illumination of the rubidium atoms is provided by three diode lasers, where the pump and probe lasers are distributed-feedback lasers (DFBs), and the repump laser is a Fabry-Pérot laser (ECDL). All the lasers are independently tuned, and the repump laser wavelength is frequency-stabilized using a dichroic atomic vapor laser lock (DAVLL) [27]. The wavelengths of the other two lasers are passively maintained due to their inherent temporal stability. Performance of all the lasers is monitored using a wave meter, while the pump and probe lasers are additionally monitored through saturated absorption spectroscopy (SAS). The intensities of the laser beams are dynamically controlled by three acousto-optical modulators (AOMs). To generate a specific quantum state in the vapor, the pump-light polarization is set by polarizers (POLs) and a quarter-wave plate ($\lambda/4$), while the repump light is linearly polarized in a direction orthogonal to the pump-light propagation direction (i.e., along the $\mathbf{y}$ axis). The $\mathbf{y}$ polarization of the probe light is provided by a Glan-Thomson polarizer placed before the shield and its polarization rotation after the medium is measured using a balanced polarimeter consisting of a Wollaston prism (WOL) and a balanced photodetector (BPD). To determine the local scaling factor (see the discussion below), the intensity of the probe light is monitored prior to the shield. The schematic of the setup is shown in Fig. 2(a).

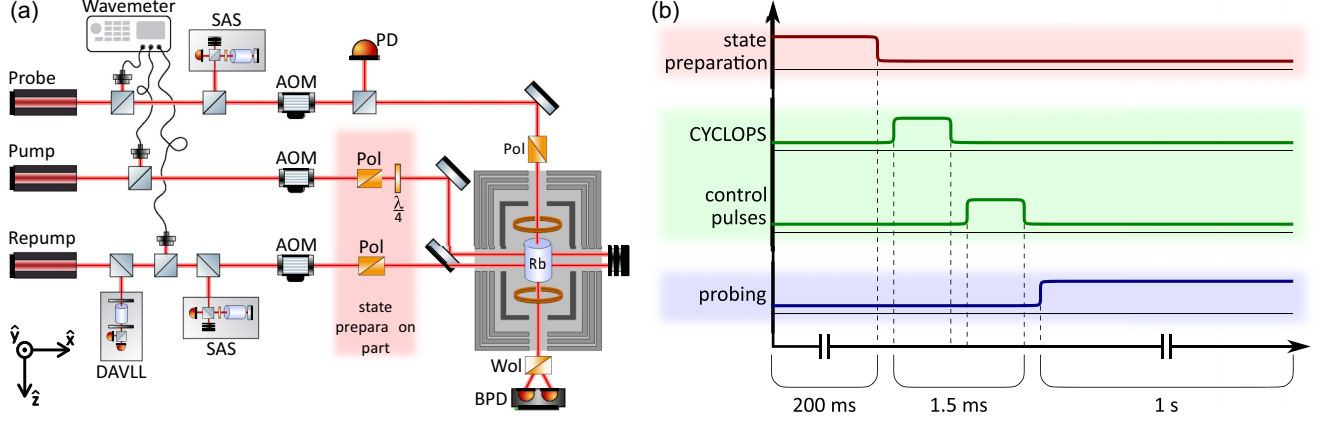


FIG. 2. (a) Simplified scheme of the experimental setup used for the quantum-state generation and tomography of collective states of an alkali-metal vapor. SAS: Saturation absorption spectroscopy; DAVLL: Dichroic atomic vapor laser lock; AOM: Acousto-optic modulator; PD: Photodiode; Pol: Glan-Thompson polarizer; $\lambda/4$: Quarter-wave plate; Rb: Parafin-coated vapor cell filled with ^{87}Rb ; Wol: Wollaston prism; BPD: Balanced photodetector. (b) Experimental sequence used in our method. The initial state of atoms is prepared with the pump light turned on for about 200 ms (red trace). After the preparation period, we apply a sequence of magnetic pulses to modify the state of the atoms (green trace). Here, the CYCLOPS pulses (see Sec. III D) are first used and then the control pulses are implemented for a total time of about 1.5 ms. Finally, the probe light is turned on, alongside with the longitudinal magnetic field, for about 1 s (blue) and the polarization rotation signal is recorded.

B. Experimental sequence

The experimental sequence utilized in our measurements is shown in Fig. 2(b). The sequence begins with a pumping period during which a specific quantum state is engineered. This stage typically consists of a 200-ms light pulse (optical pumping), which is applied simultaneously with the repumping that prevents the atoms from escaping into the dark ($F = 2$) state, followed by a few short pulses ($\approx 100 \mu\text{s}$, a rotation-angle uncertainty of 0.12°), enabling the generation of a desired complex state. Subsequently, a series of magnetic-field pulses is used to mitigate technical problems (see Sec. III D), which is followed by a set of control pulses. Once the pulses are completed, a constant magnetic field is applied along the z direction, ranging between 10 and 100 nT. At the same time, the probe light, propagating along z with an intensity of $1\text{--}20 \mu\text{W}/\text{cm}^2$, is switched on. In order to improve the signal-to-noise ratio (SNR), the intensity of the probe light is modulated at a frequency of 200 kHz and a polarimeter signal is detected using a lock-in amplifier.

C. Global and local scaling factors

An important element of the reconstruction of the density matrix is the determination of the global scaling factor $\eta(\Delta)$ in Eq. (1). This can be done by measuring the light absorption in an unpolarized vapor. Using the absorption relationship derived in Appendix C, the factor can be identified by comparing the absorption of the probe light, tuned to the same wavelength as that during the tomography measurements (i.e., blue detuned from $f = 1 \rightarrow F = 2$ by 50–400 MHz), with the absorption of a far-detuned light ($>15 \text{ GHz}$). The global scaling factor is given by

$$\eta(\Delta) = \frac{27}{16} \left(\sqrt{\frac{U_2(\Delta)/U_1(\Delta)}{U_2(\infty)/U_1(\infty)}} - 1 \right), \quad (4)$$

where U_1 is the voltage measured at the transimpedance photodetector placed in front of the medium and U_2 after it [see Fig. 2(a) and Appendix C 1] with Δ indicating the probe light tuned for QST and ∞ stands for the far-detuned light.

Experimental determination of the local scaling factor, $\zeta(\Delta)$ in Eq. (1) presents a greater challenge. It requires the preparation of an anisotropic well-defined quantum state. In this work, we select “stretched” states along the x and z axes. This means that the state has maximal projection of its angular momentum on the respective axis. The first state can be created by illuminating the atoms with a circularly polarized pump light propagating along the x axis. The preparation of the second state is more involved and requires the application of an additional magnetic-field pulse after the optical pumping, which rotates the atomic x polarization to the z direction. Note that we have experimentally verified that this process did not introduce dephasing, as evidenced by the unchanged signal amplitude for a many- π pulse. Employing this procedure allows us to mitigate the systematic errors arising from varying polarization levels achieved with the pump light propagating along different directions, while simultaneously simplifying the experimental setup. The formulas for the light polarization rotation corresponding to these two states are (see Appendix C 2 for more details)

$$\delta\alpha^{(z)}(t; \Delta) = -\frac{5(1-\epsilon)}{24} \eta(\Delta) \zeta(\Delta) e^{-\gamma_2 t}, \quad (5)$$

$$\delta\alpha^{(x)}(t; \Delta) = -\frac{(1-\epsilon)}{48} \eta(\Delta) e^{-\gamma_1 t} \cos(2\Omega_L t), \quad (6)$$

where ϵ is the isotropic part of state. This allows one to calculate the local scaling factor as

$$\zeta(\Delta) = \frac{1}{10} \frac{\delta\alpha^{(z)}(0; \Delta)}{\delta\alpha^{(x)}(0; \Delta)}. \quad (7)$$

D. CYCLOPS-like measurements

Equation (1) shows that our reconstruction method is sensitive to the initial phase of the measured signal. As uncontrollable phase delays are present in every experiment, the identification of the quadrature components of the signal becomes difficult. To address this issue, we adapt the cyclically ordered phase sequence (CYCLOPS) method, commonly utilized in NMR [28,29]. In our approach, we leverage the fact that the π rotation of the state around the $\mathbf{y}$ axis leads to a sign reversal of $\langle \hat{\alpha}_I \rangle$ and $\langle \hat{\beta} \rangle$ (for more information, see Appendix D). At the same time, by applying the pulse rotating the state by $\pi/2$ around the $\mathbf{z}$ axis and next the pulse rotating the state around the $\mathbf{y}$ axis by π , the signs of the $\langle \hat{\alpha}_R \rangle$ and $\langle \hat{\beta} \rangle$ are reversed (see Appendix D). By subtracting these two transformed states from the initial signal, we obtain

$$(\delta\alpha - \delta\alpha^{(Y)})(t; \Delta) = 2\eta(\Delta)[- \zeta(\Delta)e^{\gamma_2 t} \langle \hat{\beta} \rangle + e^{-\gamma_1 t} \langle \hat{\alpha}_I \rangle \cos(2\Omega_L t + \varphi)], \quad (8)$$

$$(\delta\alpha - \delta\alpha^{(ZY)})(t; \Delta) = 2\eta(\Delta)[- \zeta(\Delta)e^{\gamma_2 t} \langle \hat{\beta} \rangle + e^{-\gamma_1 t} \langle \hat{\alpha}_R \rangle \sin(2\Omega_L t + \varphi)], \quad (9)$$

where φ is an unknown phase shift originating from the experimental apparatus. In our CYCLOPS-like measurements, the problem of the unknown phase is alleviated, as the final signals, given by Eqs. (9) and (10), depend only on one quadrature (via either sine or cosine time dependence) and, thus, φ becomes insignificant. The procedure also allows us to remove systematic shifts of the signals associated with the imbalance of the polarimeter (for more details, see Appendix D).

E. Technique limitations

Our technique has two main limitations. The first is associated with the intensity of the light used to probe the atoms. From the point of view of the SNR this intensity should be maximized. On the other hand, the developed theoretical model should adequately describe the considered system. The model, given in Ref. [15], assumes a negligible population of the excited state. This condition is fulfilled if the optical transition is not saturated, i.e., when

$$\kappa_o = \frac{\Omega_R^2}{\Gamma^2} \ll 1, \quad (10)$$

where κ_o is the saturation parameter of the optical transition, Ω_R is the Rabi frequency of the probe light, and Γ is the natural width of this transition. For the uncoated vapor cell, the saturation intensity of ^{87}Rb atoms which are excited at the D_1 line is 2.39 mW/cm^2 . It should be noted, however, that in paraffin-coated cells the intensity saturating the optical transition needs to be normalized over the whole cell volume [30].

To fulfill the model assumptions, we also need to ensure that the probing beam is not pumping atoms, i.e., that the thermalized state (the steady state when the pump beam is switched off) differs from the isotropic state. To ensure that we can use hyperfine saturation parameter κ_{hf} [31], which also incorporates correction for the Doppler broadening of the medium and the differences between the cell volume and its

illuminated part:

$$\kappa_{\text{hf}} = \frac{\Omega_R^2}{\Gamma\gamma} \frac{\Gamma}{\Gamma_D} \frac{V_i}{V_c}, \quad (11)$$

where γ is the relaxation of the atomic state (in our case $\gamma = \gamma_1$), Γ_D is the Doppler width of the transition, V_i is the volume of the atoms illuminated by the probing beam, while V_c is the volume of the entire cell. Using Eq. (11) we determine hyperfine saturation intensity as $I_{\text{sat}}^{\text{hf}} \approx 27.9 \text{ } \mu\text{W/cm}^2$.

Second limitation comes from the fact that it is assumed that the light characteristic parameters (amplitude, polarization angle, ellipticity, and phase) remain constant throughout the medium which holds when medium is considered to be optically thin. This allows us to approximate the initial values of the parameters during our calculations. However, in the scenarios where the medium is optically thick, we need to solve differential equations for these parameters when the light propagates through the medium [32]. As the density matrix is influenced by the light field, this leads to an increased complexity of the analysis.

IV. RECONSTRUCTION OF STATES

To perform QST, we conducted the above-described nine measurements, consisting of three sets of CYCLOPS-like pulses for each of the three control pulses. To ensure the self-consistency of our reconstruction procedure, we simultaneously fit all of the polarization-rotation signals with shared parameters, such as the global phase, relaxation rates, and oscillation frequency. The fitting values are then used to determine the observables and reconstruct the qutrit density-matrix elements using the linear inversion method given in Eq. (3). However, as this method does not guarantee the reconstructed matrices to be positive semidefinite, we utilize a maximum likelihood method with the Euclidean norm [20,33] to find the closest physical realization of the reconstructed matrix.

To validate our tomography technique, we compare the reconstructed density matrices with numerical simulations of the states obtained during the pumping stage. For the simulations, we assume the interaction of an appropriately polarized light with a Doppler-broadened medium consisting of the atoms of the energy-level structure similar to that of the D_1 line in ^{87}Rb . As in the real experiment, we assume that there are two distinct spatial regions between which the atoms can freely move. In the first region, the atoms evolve in a homogeneous magnetic field and relax to thermal equilibrium due to the collisions with vapor-cell walls and between one another. This corresponds to the atoms residing outside of the light beams. In the second region, the atoms still interact with the magnetic field, but also with the pump and repump light. Moreover, we neglect the wall relaxation in this region. The latter region corresponds to the atoms inside the light beams. All the parameters used in the simulations match the parameters of our experimental setup. We have validated the robustness of our technique by aligning experimental data with corresponding simulations of selected basic states, which we could readily generate. Looking ahead, we aim to extend this methodology to reconstruct more complex states that pose experimental challenges. This capability is crucial, especially for applications like quantum process tomography.

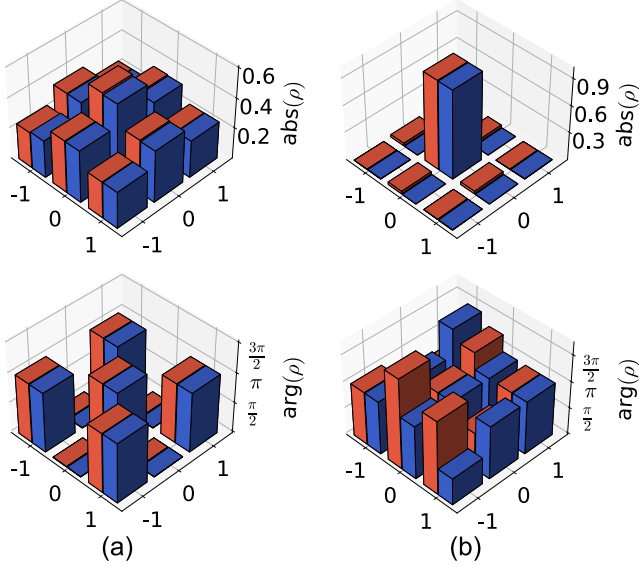


FIG. 3. Comparison of two experimentally reconstructed density matrices (blue bars), with simulated ones (red bars), including their amplitude (upper panels) and phase (lower panels). The first state (a) is pumped with circularly polarized light and the second state (b) is pumped with linearly z-polarized pumps, propagating along the x axis. The fidelity achieved between the experimental results and simulations in both cases exceeds 0.99.

As representative examples for our reconstruction, we consider two states that can be easily generated experimentally and simulated theoretically. The first state can be pumped with a strong, pumping light which is circularly polarized and propagating along the x axis [Fig. 3(a)]. The state has a nonuniform population distribution and all its coherences are nonzero. This allows us to demonstrate that our method can reconstruct not only different coherences, but also determine their amplitudes and phases with a high accuracy. According to the numerical simulations of the system, the repump light pumps more than 98% of the atoms into the desired hyperfine manifold and the created state is very close to the perfect pure state [fidelity of 0.96946(91)]. Main uncertainties of the pumping originate from the temporal variations in the frequency and intensity of lasers. The results of the experimental reconstruction and simulations are presented in Fig. 3(a). As can be seen, the results are in a very good agreement revealing a reconstruction fidelity of 0.995. As the second example, we considered a state pumped with the π -polarized light, propagating along the x axis. In the ideal case (without experimental artifacts), this scheme leads to the total depletion of the $m_F = \pm 1$ states and no coherences between any sublevels. In this case, the simulations suggest that, in our experimental conditions, over 98% of atoms are pumped into an effective pure state with a fidelity of 0.98029(38). As shown in Fig. 3(b), our measurements demonstrate a good agreement with numerical simulations, demonstrating the fidelity of 0.998. Nonetheless one can notice that a very small amplitude of the coherences can lead to the deterioration of the phase reconstruction. The very high quality of the reconstruction of these two representative states demonstrates the usefulness of our QST technique.

It is noteworthy that one of the most important advantages of this tomography technique is its significant robustness against white noise [15]. However, we also verified with numerical simulations that the robustness remains practically unchanged for the assumed noise that adequately represents experimental noise (with a specific spectral structure). Specifically, we tested the robustness of the method using the $1/f$ noise and noise arising at specific spectral components of the signal, e.g., close to the Larmor frequency, where the signal of interest arises. In the analysis, we observed a small deterioration of the methods performance, but with the SNR at a level of 5 a 0.99 fidelity was achieved.

V. CONDITIONING AND OPTIMIZATION OF QUANTUM STATE TOMOGRAPHY

A. Condition number in linear inversion

The condition number κ is a useful parameter to evaluate the reliability of a QST method [see Eq. (3)]. Specifically, to quantify the ability to tolerate errors or sensitivity to the errors, we use the condition number of a (nonsingular) matrix $\mathbb{C}$, which, assuming the spectral norm $\|\cdot\|_2$, can be defined as [34–36]

$$\begin{aligned}\kappa(\mathbb{C}) &= \|\mathbb{C}\|_2 \|\mathbb{C}^{-1}\|_2 \\ &= \max[\text{svd}(\mathbb{C})] \max[\text{svd}(\mathbb{C}^{-1})] \\ &= \frac{\max[\text{svd}(\mathbb{C})]}{\min[\text{svd}(\mathbb{C})]} \geq 1,\end{aligned}\quad (12)$$

where $\text{svd}(\mathbb{C})$ denotes the singular values of $\mathbb{C}$. The significance of this error-robustness parameter explains well the Gastinel-Kahan theorem [35], which states that a relative distance of a nonsingular square matrix $\mathbb{C}$ from the set of singular matrices corresponds to the inverse of the condition number. Utilizing the error $\delta\tilde{\mathbf{b}}$ in the observation vector $\tilde{\mathbf{b}}$ and the condition number $\kappa(\mathbb{C})$, one can estimate the error $\delta\rho_V$ in the reconstructed density matrix ρ_V from the Atkinson inequalities [34]

$$\frac{1}{\kappa(\mathbb{C})} \frac{\|\delta\tilde{\mathbf{b}}\|}{\|\tilde{\mathbf{b}}\|} \leq \frac{\|\delta\rho_V\|}{\|\rho_V\|} \leq \kappa(\mathbb{C}) \frac{\|\delta\tilde{\mathbf{b}}\|}{\|\tilde{\mathbf{b}}\|}. \quad (13)$$

The above equation allows for easier and more intuitive understanding of the usefulness of the condition number. One can notice that, in the procedure of linear inversion, propagation of the experimental uncertainty highly depends on the state that is measured and which of the measured signals have higher relative uncertainties. Equation (13) allows one to make a general statement that, even though the relative uncertainty of the reconstruction is state dependent, it is also bounded by the relative uncertainty of the observation vector multiplied by $\kappa(\mathbb{C})$. This allows the interpretation that the condition number is the measure of the stability of our method or, in other words, it shows how our method in some particular cases may amplify the experimental uncertainties and errors. When the condition number approaches 1, it becomes apparent that small relative variations in the observation vector $\tilde{\mathbf{b}}$ always result in correspondingly small relative changes in the reconstructed state ρ_V . In order to account for the errors $\delta\mathbb{C}$ present in the coefficient matrix $\mathbb{C}$, these inequalities can be expanded according to the formulation derived in Ref. [34], giving rise

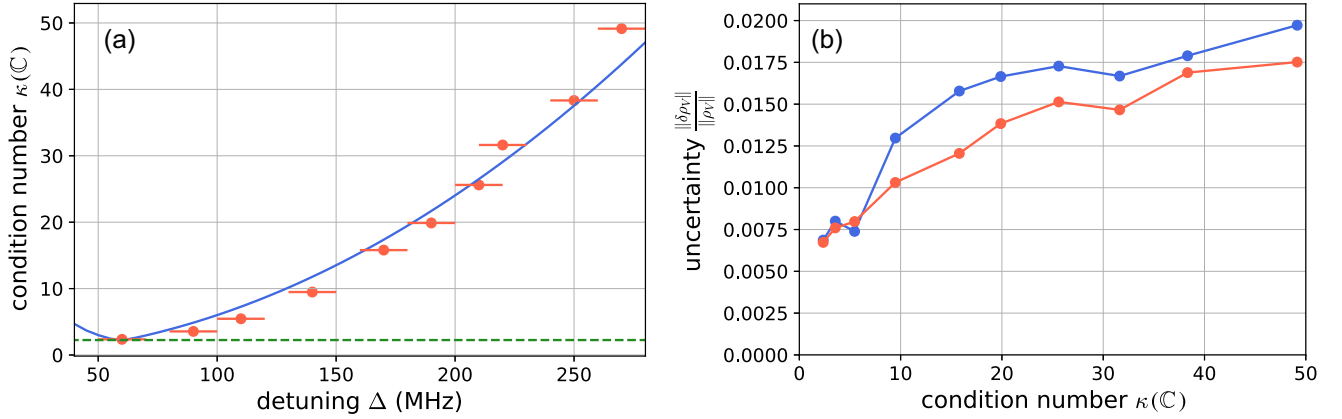


FIG. 4. (a) Condition number $\kappa(\mathbb{C})$ of a state measured versus the detuning Δ of the probing light from the center of the Doppler-broadened $f = 1 \rightarrow F = 2$ transition. The red points indicate the values calculated based on experiment (horizontal uncertainty comes from the uncertainty of detuning; the evaluated vertical errors are so small that they are not visible in the plot), while the blue curve shows the theoretical dependence calculated from the absorption measurements. The green dashed line indicates the smallest $\kappa(\mathbb{C}) = 2.25$ achievable using this approach. (b) Relative uncertainty of the linear inversion [see Eq. (13)] as a function of the condition number $\kappa(\mathbb{C})$. Red points correspond to the reconstruction of the state pumped with the circularly polarized light that propagated along the x axis [see Fig. 3(a)] and blue points correspond to the reconstruction of the state generated with the linearly z -polarized pump light, propagating along the x axis [see Fig. 3(b)]. It is seen that the uncertainty of the condition number is significantly smaller than the size of the data points. Solid lines are added for clarity.

to the expression

$$\frac{\|\delta\rho_V\|}{\|\rho_V\|} \leq \frac{\kappa(\mathbb{C})}{1 - \kappa(\mathbb{C})\|\delta\mathbb{C}\|/\|\mathbb{C}\|} \left[\frac{\|\delta\tilde{\mathbf{b}}\|}{\|\tilde{\mathbf{b}}\|} + \frac{\|\delta\mathbb{C}\|}{\|\mathbb{C}\|} \right]. \quad (14)$$

By referring to the inequalities in Eqs. (13) and (14), we can infer that the quality of a QST method, in terms of its error sensitivity or robustness, can be assessed through its condition number $\kappa(\mathbb{C})$, which characterizes the degree to which small (large) changes in the observation vector $\tilde{\mathbf{b}}$ lead to relatively small (large) changes in the reconstructed state ρ_V . Thus, if $\kappa(\mathbb{C})$ is small (large), the QST method is well conditioned (ill conditioned), indicating the robustness (sensitivity) of the method to errors in the observation vector $\tilde{\mathbf{b}}$. In the case of ill-conditioned QST, even slight errors in $\tilde{\mathbf{b}}$ can cause significant errors in the reconstructed ρ_V . In short, the smaller the condition number is, the stronger robustness of a given linear-inversion-based QST method is against errors. Thus, one can refer to an optimal method in this respect if $\kappa(\mathbb{C}) = 1$. Numerical examples of ill-conditioned QST problems can be found in Refs. [17,34].

As a quantifier (or a “measure”) of the “closeness” of two quantum states, which in our case correspond to the simulated state $\rho_{\text{sim}} = \rho_V$ and the experimentally reconstructed state $\rho_{\text{exp}} = \rho_V + \delta\rho_V$, one can use a mixed-state fidelity [37]. It is based on the Bures distance or the relative error (RE) in ρ_{exp} , defined as $\|\rho_{\text{exp}} - \rho_{\text{sim}}\|/\|\rho_{\text{sim}}\| = \|\delta\rho_V\|/\|\rho_V\|$ for a chosen norm. The estimation of the RE is especially simple by applying the Atkinson inequalities, given in Eqs. (13) and (14). Specifically, the inequalities give the lower and upper bounds on the RE in ρ_{exp} due to (i) the experimental RE in $\tilde{\mathbf{b}}$ (both statistical and systematic), (ii) the systematic RE in $\mathbb{C}$ caused by, e.g., inaccurate experimental apparatus settings, but also (iii) the condition number κ , which is a measure of the

error amplification due to the employed inversion in a given linear reconstruction procedure.

B. Optimization via probe light tuning

In order to optimize a QST process, it is desired to make the coefficient matrix $\mathbb{C}$ more isotropic, which means that each measurement brings an equal amount of information about the system. A simple example of such an optimized problem is when each measurement brings information about only a specific density-matrix element, with all measurements having the same weight [17,18]. In this case, the coefficient matrix $\mathbb{C}$ is proportional to identity. Even though such optimization is intuitive, it is often unpractical, because experimental transformations, which are required to achieve a desired scheme, are very complex. Instead, here we propose a scheme wherein a single experimental parameter is adjusted. In our case, this parameter is the probing light detuning Δ , which is incorporated in Eq. (1) through $\zeta(\Delta)$.

It is important to note that our method does not guarantee an optimal tomography process with $\kappa(\mathbb{C}) = 1$. Therefore, to explore the limit of the method, we calculate the eigenvalues of the coefficient matrix with $\zeta(\Delta)$ as a free parameter. In our case, the eigenvalues of $\mathbb{C}$ can be analytically calculated, taking the values $\{\frac{1}{100}, \frac{1}{150}, \frac{1}{225}, \frac{1}{225}, \frac{1}{225}, \frac{\zeta^2}{18}, \frac{\zeta^2}{9}, \frac{\zeta^2}{9}\}$. From this, we obtain the dependence of $\kappa(\mathbb{C})$ on $\zeta(\Delta)$ [see Fig. 4(a)] and a minimal possible conditional number, equal to 2.25 is determined.

To further illustrate the effect of the probing-light detuning on the reconstruction uncertainty and, hence, to demonstrate the potential of this approach, we perform a series of reconstructions of a state generated under the same conditions, but reconstructed using different probing-light detunings. In our experiment, the detuning is changed from 50 to 270 MHz. The results of these investigations, shown in Fig. 4(b),

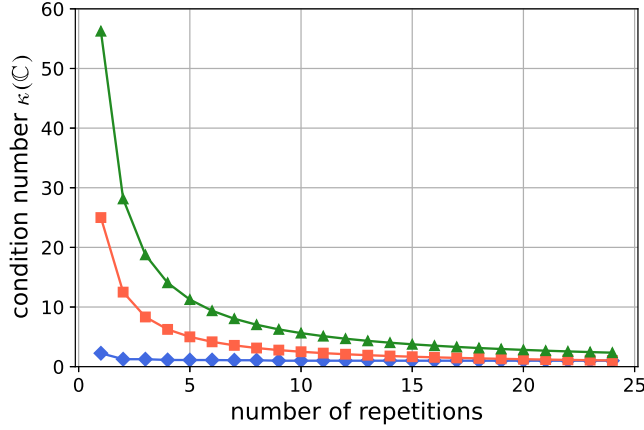


FIG. 5. Minimum achievable condition number versus a number of repetitions of specific measurements. Three sets of points correspond to the condition number at different detunings: 300 MHz (green triangles), 200 MHz (red squares), and 60 MHz (blue diamonds). The solid lines are added for eye guidance.

demonstrate that the reliability of the reconstruction deteriorates with the detuning and it achieves the minimum in the vicinity of the center of the Doppler-broadened transitions $f = 1 \rightarrow F = 2$. This agrees with our theoretical prediction of the condition-number detuning dependence, which we calculate assuming that $\zeta(\Delta) = V_I(\Delta)/V_R(\Delta)$.

C. Conditional number versus the number of measurements

The repetition of specific measurements offers a straightforward and versatile method for optimizing the relative weights of the observables used in the state-reconstruction procedure. This approach allows us to achieve the condition number arbitrarily close to 1, making it particularly valuable when the original method is infeasible or when the condition number is desired to be smaller than the detuning-optimized bound (e.g., 2.25). However, it should be noted that this technique is associated with a potential drawback. Namely the number of repetitions required to attain $\kappa(C) = 1$ is typically substantial, especially when dealing with initially high condition numbers, as illustrated in Fig. 5.

VI. CONCLUSIONS

In this study, we presented an experimental implementation of the quantum-state tomography technique, which was originally proposed in Ref. [15]. The technique enabled us to successfully reconstruct collective quantum states of a qutrit in room-temperature rubidium vapor at the $f = 1$ ground state. Compared to other tomographic techniques [21,22,38,39], our method distinguishes itself with a superior fidelity, resilience against the SNR, and a straightforward control protocol. However, these advantages come at the expense of longer measurement times compared to alternative approaches. To overcome experimental challenges of the reconstruction, we adapted the CYCLOPS technique, which allowed us to achieve a reliable reconstruction by mitigating the problem of unknown phase delays present in measured

signals. Additionally, we presented a comprehensive analysis of the technique by introducing the conditional number, which quantifies the reliability of the reconstruction. This parameter was investigated versus different experimental factors, including tuning of the probing light, i.e., the light used for the reconstruction. We demonstrated that, by an appropriate tuning of the light, conditional numbers as low as 2.25 can be achieved (where the conditional number of 1 refers to an ideal reconstruction). We also demonstrated that further improvement of the reconstruction (by lowering the conditional number) can be achieved by the repetition of the specific measurements.

The reported successful implementation of the presented QST technique opens up avenues for measuring a range of fundamental properties of qutrits. In the future, we plan to focus on exploring different measures of nonclassicality and establishing their ordering for various classes of quantum states. We also plan a further development of the technique to demonstrate quantum process tomography, i.e., to expand the method's capabilities in the characterization of quantum operations and transformations. Finally, the ability to accurately reconstruct the quantum states of atomic ensembles allows for an experimental optimization of the generation of metrologically appealing quantum states. This is the research direction that we currently pursue in our work.

Our findings underscore the efficacy of high-fidelity quantum-state reconstruction within room-temperature atomic vapors, showcasing the promise of this approach for advancing quantum research and applications.

ACKNOWLEDGMENTS

The authors would like to thank Arash D. Fard for his help in experimental measurements and Alexander Franzen for providing the COMPONENTLIBRARY package under the Creative Commons license, which was used to prepare the scheme of our experimental setup. The work was supported by the National Science Centre, Poland within the SONATA BIS program (Grant No. 2019/34/E/ST2/00440). M.K. would like to acknowledge support from the Excellence Initiative of the Research University of the Jagiellonian University in Kraków. A.M. is supported by the Polish National Science Centre (NCN) under the Maestro (Grant No. DEC-2019/34/A/ST2/00081).

APPENDIX A: PRINCIPLES OF THE TOMOGRAPHY METHOD

In Ref. [15], the relation between the time- and detuning-dependent polarization rotation $\delta\alpha(t; \Delta)$ and the operators $\hat{\alpha}_{R,I}$ and $\hat{\beta}$, associated with the coherences and populations difference of specific magnetic sublevels, is given as

$$\delta\alpha(t; \Delta) = \chi e^{-\gamma t} [\langle \hat{\alpha}_R \rangle V_R(\Delta) \sin(2\Omega_L t) + \langle \hat{\alpha}_I \rangle V_R(\Delta) \cos(2\Omega_L t) - \langle \hat{\beta} \rangle V_I(\Delta)], \quad (\text{A1})$$

where $V_R(\Delta)$ and $V_I(\Delta)$ are the real and imaginary parts of the Voigt profile, respectively, and χ is related to experimental parameters such as an atomic density and transition frequency. In order to derive Eq. (A1), the isotropic relaxation of the atomic state was assumed. This may not be the case

in a real experiment, where various experimental factors (e.g., magnetic-field gradients), may introduce additional dephasing of coherences. In turn, the off-diagonal elements of the density matrix relax faster than the diagonal ones. As the observables $\hat{\alpha}_{R,I}$ depend exclusively on the coherences, while $\hat{\beta}$ on the population imbalance, to account for the fact, we introduce two separate relaxation rates, slightly modifying Eq. (A1), i.e.,

$$\delta\alpha(t; \Delta) = \eta(\Delta)(e^{-\gamma_I t} [\langle \hat{\alpha}_R \rangle \sin(2\Omega_L t) + \langle \hat{\alpha}_I \rangle \cos(2\Omega_L t)] - \zeta(\Delta)e^{-\gamma_R t} \langle \hat{\beta} \rangle), \quad (\text{A2})$$

where $\eta(\Delta) = \chi V_R(\Delta)$ and $\zeta(\Delta) = V_I(\Delta)/V_R(\Delta)$ are the global and local scaling factors, respectively.

The expectation values $\langle \hat{\alpha}_{R,I} \rangle$ and $\langle \hat{\beta} \rangle$ depend on the population difference and the coherences between the states of the magnetic quantum-number difference $\Delta m_F = 2$. Thus, the operators do not allow one to reconstruct an entire density matrix of the system. In order to access the remaining density-matrix elements (e.g., the coherences with the $\Delta m_F = 1$), one needs to transform the measured observables, so that the overall set of measurements defines a positive operator-valued measure (POVM) [21]. This can be achieved by introducing the unitary-evolution operators U_i , commonly called the control pulses, which modify the observable $\hat{O}$ in the following manner:

$$\text{Tr}[\hat{O} U_i \rho U_i^\dagger] = \langle U_i^\dagger \hat{O} U_i \rangle = \langle \hat{O}' \rangle, \quad (\text{A3})$$

where $\hat{O}$ can be either $\hat{\alpha}_{R,I}$ or $\hat{\beta}$. With the set of the observables $\hat{O}_i$, one can present the reconstruction problem in vectorized forms as given by Eqs. (2) and (3).

It should be noted that reconstruction based on Eq. (3) may produce unphysical results, which arise when the reconstructed density matrix is not positive semidefinite. In such a case, one may use several techniques to find a corresponding physical realization of the matrix. The simplest approach is to set negative eigenvalues to zero and renormalize the density matrix. More elaborate techniques find the closest positive semidefinite matrix using different norms using, for example, a maximum likelihood method [20,33]. In the presented work, we use such a method, assuming that a distance between matrices is based on the Euclidean norm,

$$d^2(\mathbb{A}, \mathbb{B}) = \sum_{ij} |\mathbb{A} - \mathbb{B}|_{ij}^2. \quad (\text{A4})$$

The applied implementation of the method allows us to obtain a physical density matrix, which gives the best approximation of the measured observables.

APPENDIX B: RECONSTRUCTION OF QUTRIT STATES

The general theoretical discussion presented in this paper may be used to reconstruct a three-level system (qutrit). In our work, such a system is implemented using the ground-state hyperfine level of ^{87}Rb of the total angular momentum $f = 1$ (Fig. 1). In this case, the density matrix can be written as

$$\rho = \begin{bmatrix} \rho_{11}^R & \rho_{10}^R + i\rho_{10}^I & \rho_{11}^R + i\rho_{11}^I \\ \rho_{10}^R - i\rho_{10}^I & 1 - \rho_{11}^R - \rho_{11}^R & \rho_{01}^R + i\rho_{01}^I \\ \rho_{11}^R - i\rho_{11}^I & \rho_{01}^R - i\rho_{01}^I & \rho_{11}^R \end{bmatrix}, \quad (\text{B1})$$

where $\bar{1} = -1$. It follows from above that $\text{Tr}(\rho) = 1$. It is noteworthy that the normalization of the density matrix modifies the vector $\mathbf{b}$ by shifting its elements by a fixed value. It can be shown [15] that, for a system probed on the transition $f = 1 \rightarrow F = 2$ (Fig. 1), the observables $\hat{\alpha}_{R,I}$ and $\hat{\beta}$ are given by

$$\hat{\alpha}_R = \frac{\hat{d}_+^2 + \hat{d}_-^2}{\|\hat{d}\|} = \frac{1}{30}(|\bar{1}\rangle\langle 1| + |1\rangle\langle \bar{1}|), \quad (\text{B2a})$$

$$\hat{\alpha}_I = \frac{i(\hat{d}_+^2 - \hat{d}_-^2)}{\|\hat{d}\|} = \frac{i}{30}(|\bar{1}\rangle\langle 1| - |1\rangle\langle \bar{1}|), \quad (\text{B2b})$$

$$\hat{\beta} = \frac{\hat{d}_+ \hat{d}_- - \hat{d}_- \hat{d}_+}{\|\hat{d}\|} = \frac{1}{6}(|\bar{1}\rangle\langle \bar{1}| - |1\rangle\langle 1|), \quad (\text{B2c})$$

where $\hat{d}_\pm$ are the dipole operators associated with the right (+) and left (−) circular polarization components of the linearly polarized probe light, and $\|\hat{d}\|$ is the reduced dipole-matrix element corresponding to the transition.

To expand the set of observables used for tomography, we introduce the control pulses U_i implemented as pulses of a DC or nonoscillating magnetic field that induce a geometrical rotation of the spin polarization by $\pi/2$ around the $\mathbf{x}$ or $\mathbf{y}$ axes. The explicit forms of the control pulses are

$$U_x = \frac{1}{2} \begin{bmatrix} 1 & i\sqrt{2} & -1 \\ i\sqrt{2} & 0 & i\sqrt{2} \\ -1 & i\sqrt{2} & 1 \end{bmatrix}, \quad (\text{B3a})$$

$$U_y = \frac{1}{2} \begin{bmatrix} 1 & -\sqrt{2} & 1 \\ \sqrt{2} & 0 & -\sqrt{2} \\ 1 & \sqrt{2} & 1 \end{bmatrix}. \quad (\text{B3b})$$

Applying U_x and U_y to the operators given by Eqs. (B2) allows one to relate the observables $\alpha_{R,I}$ and β with all the other density-matrix elements and, hence, reconstruct the whole density matrix.

APPENDIX C: DERIVATION OF SCALING FACTORS

1. Global scaling factor

An essential parameter of the presented QST technique is the global scaling factor $\eta(\Delta)$ in Eq. (A2). The most convenient way to calculate this parameter is based on the measurements of the absorption of light by completely unpolarized atoms. From the formula describing the change in the amplitude of the light traversing a medium, given in Ref. [15], one obtains

$$\frac{\delta E}{E}(t; \Delta) = \frac{2\eta(\Delta)}{2f+1} \sum_{n=-f}^f \begin{pmatrix} f & 1 & F \\ -n & 1 & n-1 \end{pmatrix}^2, \quad (\text{C1})$$

where f and F are the total angular momenta of the ground and excited states, respectively, which for our system are $f = 1$ and $F = 2$. Additionally, one should notice that this model was derived for a two-level system, while in more complex systems of ^{87}Rb , where the two ground states $f = 1$ and $f = 2$ exist, the absorption of light tuned to the $f = 1$ ground state results only from 3/8 of the total number of atoms in the sample. As in our experimental procedure, we

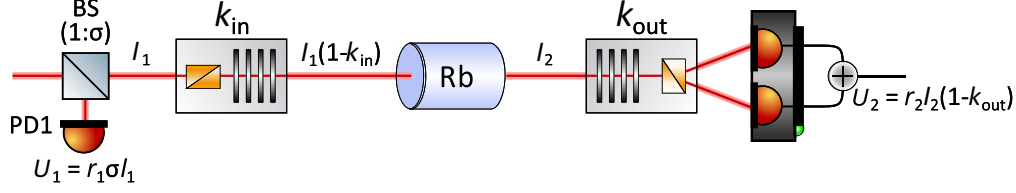


FIG. 6. Simplified scheme of the experimental setup used for the measurements of the global scaling factor $\eta(\Delta)$. A nonpolarizing beam splitter (BS) with 1-to- σ splitting ratio is used to measure the light intensity before it enters atomic ensemble. The light intensity is measured as a voltage $U_1(\Delta) = r_1 \sigma I_1(\Delta)$, where r_1 is the light power-voltage conversion factor in a transimpedance photodetector (PD1). The light intensity is written as a function of the light detuning Δ to highlight the fact that the changes in the light frequency usually introduce the corresponding changes in the light intensity emitted by the laser. After BS, there are various optical elements, introducing intensity losses k_{in} , and a vapor cell containing atoms whose state is to be reconstructed. Next, the beam experiences losses, k_{out} , due to the elements situated after the cell, and finally the light is split using the balanced polarimeter, consisting of a Wollstone prism and a balanced photodetector. The output signal U_2 is the sum of the voltages measured by each of the PDs that constitute the balanced photodetector. Both PDs have the same conversion gain r_2 , thus $U_2(\Delta) = r_2 I_2(\Delta)(1 - k_{out})$.

repump all the atoms in the $f = 1$ state, and then Eq. (C1) needs to be modified to account for the fact:

$$\begin{aligned} \frac{\delta E}{E}(t; \Delta) &= \frac{8}{3} \frac{2\eta(\Delta)}{3} \sum_{n=-1}^1 \begin{pmatrix} 1 & 1 & 2 \\ -n & 1 & n-1 \end{pmatrix}^2 \\ &= \frac{16}{27} \eta(\Delta). \end{aligned} \quad (C2)$$

Since the amplitude of light is not a parameter easily measurable experimentally, it is more convenient to replace the light-amplitude change by the light-intensity change,

$$\frac{\delta E}{E} = \sqrt{1 + \frac{\delta I}{I}} - 1, \quad (C3)$$

where I is the probing light intensity and δI is the change of the light intensity resulting from the absorption in the medium (note that δI is negative).

In a real experiment, the intensity of transmitted light can be influenced by losses at different optical elements within the system (e.g., glass walls of the vapor cell). For a reliable reconstruction, it is crucial to distinguish these losses from the light absorption in the medium. To address this problem, we measure the sum of the two outputs of a balanced polarimeter used for the state reconstruction and the intensity of light before its transmission through the atomic ensemble (Fig. 6). This allows us to write

$$\begin{aligned} \frac{\delta I}{I} &= \frac{I_2(\Delta) - I_1(\Delta)(1 - k_{in})}{I_1(\Delta)(1 - k_{in})} \\ &= \frac{r_1 \sigma}{r_2(1 - k_{in})(1 - k_{out})} \frac{U_2(\Delta)}{U_1(\Delta)} - 1. \end{aligned} \quad (C4)$$

The most convenient way to determine the overall scaling [corresponding to the first term in Eq. (C4)] is to measure the signal for a far-detuned light, $\Delta \rightarrow \infty$. As in this case, the light absorption is negligibly small, and one obtains

$$\frac{U_1(\infty)}{U_2(\infty)} = \frac{r_1 \sigma}{r_2(1 - k_{in})(1 - k_{out})}. \quad (C5)$$

Combining Eqs. (C2)–(C5), we obtain the final relation for the global scaling factor $\eta(\Delta)$, which is given by

$$\eta(\Delta) = \frac{27}{16} \left(\sqrt{\frac{U_1(\infty) U_2(\Delta)}{U_2(\infty) U_1(\Delta)}} - 1 \right). \quad (C6)$$

2. Local scaling factor

The second important parameter that is needed for the tomography method is the local scaling factor $\zeta(\Delta)$. As discussed in the main text, to calculate the parameter we compare the rotation signals measured for the “stretched” states pumped along the $\mathbf{x}$ and $\mathbf{z}$ axes, which are given by the density matrices

$$\rho_z = (1 - \epsilon) \begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{bmatrix} + \frac{\epsilon}{3} \mathbb{1}, \quad (C7a)$$

$$\begin{aligned} \rho_x &= (1 - \epsilon) \begin{bmatrix} \frac{1}{4} & -\frac{1}{2\sqrt{2}} & \frac{1}{4} \\ -\frac{1}{2\sqrt{2}} & \frac{1}{2} & -\frac{1}{2\sqrt{2}} \\ \frac{1}{4} & -\frac{1}{2\sqrt{2}} & \frac{1}{4} \end{bmatrix} \\ &+ \frac{\epsilon}{3} \mathbb{1}. \end{aligned} \quad (C7b)$$

Here, we assumed a small imperfection in pumping manifesting through the isotropic term of the amplitude ϵ . It is noteworthy that none of the observables used for the state reconstruction [given by Eqs. (B2)] generates any signal corresponding to the isotropic term ($\epsilon = 0$). Using Eqs. (B2) and (A2) allows one to calculate the corresponding rotation signals for the two cases,

$$\delta\alpha^{(z)}(t; \Delta) = -\frac{5(1 - \epsilon)}{24} \eta(\Delta) \zeta(\Delta) e^{-\gamma_2 t}, \quad (C8a)$$

$$\delta\alpha^{(x)}(t; \Delta) = -\frac{(1 - \epsilon)}{48} \eta(\Delta) e^{-\gamma_1 t} \cos(2\Omega_L t). \quad (C8b)$$

By including the amplitudes of the oscillatory and DC parts of the signals, the local scaling factor can be finally calculated as

$$\zeta(\Delta) = \frac{1}{10} \frac{\delta\alpha^{(z)}(0; \Delta)}{\delta\alpha^{(x)}(0; \Delta)}. \quad (C9)$$

APPENDIX D: CYCLOPS-LIKE MEASUREMENTS

In a real experiment, an oscillating part of the polarization-rotation signal may experience additional phase shift φ and the whole signal may have a DC offset, D . Thus, Eq. (A2) is modified to

$$\begin{aligned} \delta\alpha(t; \Delta) = & \eta(\Delta) [\langle \hat{\alpha}_R \rangle \sin(2\Omega_L t + \varphi) \\ & + \langle \hat{\alpha}_I \rangle \cos(2\Omega_L t + \varphi)] e^{-\gamma t} \\ & - \zeta(\Delta) \langle \hat{\beta} \rangle e^{-\gamma_2 t} + D. \end{aligned} \quad (\text{D1})$$

These additional factors may arise due to electronics or the imbalance of the polarimeter. As the reconstruction method requires fine determination of the quadrature components of the signal, one concludes that knowing the precise value of φ is needed. In our work, we use a slightly different approach, incorporating a π rotation around the $\mathbf{y}$ axis, i.e.,

$$\begin{aligned} U_y(\alpha) &= \begin{bmatrix} \cos^2(\frac{\alpha}{2}) & -\frac{\sin(\alpha)}{\sqrt{2}} & \sin^2(\frac{\alpha}{2}) \\ \frac{\sin(\alpha)}{\sqrt{2}} & \cos(\alpha) & -\frac{\sin(\alpha)}{\sqrt{2}} \\ \sin^2(\frac{\alpha}{2}) & \frac{\sin(\alpha)}{\sqrt{2}} & \cos^2(\frac{\alpha}{2}) \end{bmatrix}, \\ U_y(\pi) &= \begin{bmatrix} 0 & 0 & 1 \\ 0 & -1 & 0 \\ 1 & 0 & 0 \end{bmatrix}. \end{aligned} \quad (\text{D2})$$

This results in a sign change in $\langle \hat{\alpha}_I \rangle$ and $\langle \hat{\beta} \rangle$,

$$\langle \hat{\alpha}_R^{(Y)} \rangle = \langle U_y(\pi)^\dagger \hat{\alpha}_R U_y(\pi) \rangle = \langle \hat{\alpha}_R \rangle, \quad (\text{D3a})$$

$$\langle \hat{\alpha}_I^{(Y)} \rangle = \langle U_y(\pi)^\dagger \hat{\alpha}_I U_y(\pi) \rangle = -\langle \hat{\alpha}_I \rangle, \quad (\text{D3b})$$

$$\langle \hat{\beta}^{(Y)} \rangle = \langle U_y(\pi)^\dagger \hat{\beta} U_y(\pi) \rangle = -\langle \hat{\beta} \rangle. \quad (\text{D3c})$$

For such a pulse, the rotation signal is given by

$$\begin{aligned} \delta\alpha(t; \Delta) = & \eta(\Delta) [\langle \hat{\alpha}_R \rangle \sin(2\Omega_L t + \varphi) \\ & - \langle \hat{\alpha}_I \rangle \cos(2\Omega_L t + \varphi)] e^{-\gamma t} \\ & + \zeta(\Delta) \langle \hat{\beta} \rangle e^{-\gamma_2 t} + D. \end{aligned} \quad (\text{D4})$$

Calculating the difference between the signal with and without the pulse, one obtains

$$\begin{aligned} (\delta\alpha - \delta\alpha^{(Y)})(t; \Delta) = & 2\eta(\Delta) [-\zeta(\Delta) e^{\gamma_2 t} \langle \hat{\beta} \rangle \\ & + e^{-\gamma t} \langle \hat{\alpha}_I \rangle \cos(2\Omega_L t + \varphi)]. \end{aligned} \quad (\text{D5})$$

As can be seen, this difference depends only on a single oscillatory component, thus there is no problem with determining the initial phase. Additionally, one can see that the difference is free from the offset due to the imbalance of the polarimeter.

In a similar fashion, one can obtain a signal containing the second quadrature using the following sequence of two pulses, with the first pulse introducing the rotation around the $\mathbf{y}$ axis by π (being identical to the previous pulse), and the second pulse generating the rotation by $\pi/2$ around the $\mathbf{z}$

axis:

$$\begin{aligned} U_z(\alpha) &= \begin{bmatrix} e^{-i\alpha} & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & e^{i\alpha} \end{bmatrix}, \\ U_{zy} &= U_z(\pi/2) U_y(\pi) = \begin{bmatrix} 0 & 0 & -i \\ 0 & -1 & 0 \\ i & 0 & 0 \end{bmatrix}. \end{aligned} \quad (\text{D6})$$

The pulses transform the expectation values of the observables as

$$\langle \hat{\alpha}_R^{(ZY)} \rangle = \langle U_{zy}^\dagger \hat{\alpha}_R U_{zy} \rangle = -\langle \hat{\alpha}_R \rangle, \quad (\text{D7a})$$

$$\langle \hat{\alpha}_I^{(ZY)} \rangle = \langle U_{zy}^\dagger \hat{\alpha}_I U_{zy} \rangle = \langle \hat{\alpha}_I \rangle, \quad (\text{D7b})$$

$$\langle \hat{\beta}^{(ZY)} \rangle = \langle U_{zy}^\dagger \hat{\beta} U_{zy} \rangle = -\langle \hat{\beta} \rangle, \quad (\text{D7c})$$

which allows one to calculate the rotation difference,

$$\begin{aligned} (\delta\alpha - \delta\alpha^{(ZY)})(t; \Delta) = & 2\eta(\Delta) [-\zeta(\Delta) e^{\gamma_2 t} \langle \hat{\beta} \rangle \\ & + e^{-\gamma t} \langle \hat{\alpha}_R \rangle \sin(2\Omega_L t + \varphi)]. \end{aligned} \quad (\text{D8})$$

Similarly to the former case, the signal contains the information about only one quadrature and no dependence on the polarimeter imbalance.

The robustness of the signal against the unknown phase shift or the signal offset motivated us to use the CYCLOPS pulses for our quantum-state reconstruction.

APPENDIX E: EXAMPLES OF RECONSTRUCTION

In order to illustrate the reconstruction of a qutrit state, we utilize six experimental polarization rotations, presented in Fig. 7. The signals were observed for the state generated with the circularly polarized light, propagating along the $\mathbf{x}$ axis.

The reconstruction process involved several stages. First, we measured the absorption of the probing light in an unpolarized sample to determine the global scaling factor (see Sec. III C). In the considered experiment, we obtained $\eta(\Delta) = 0.3236(21)$. To determine the local scaling factor, we pumped our ensemble using a circularly polarized light propagating along the $\mathbf{x}$ axis to prepare a stretched state in this direction [see Sec. III C and Fig. 8(a)]. We compare the signal with the similar results obtained with and without a magnetic $\pi/2$ pulse applied along the $\mathbf{y}$ direction [see Fig. 8(b)]. This allowed us to determine the local scaling factor, which, in the considered case, was $\zeta(\Delta) = -0.4790(12)$. Next, we recorded nine signals measured with the control pulses. For each control-pulse sequence (no pulse, $\pi/2$ rotation around the $\mathbf{y}$ axis, and $\pi/2$ rotation around the $\mathbf{x}$ axis), we employed three different sets of the CYCLOPS pulses (no CYCLOPS pulse, a pulse in the $\mathbf{y}$ direction, and a CYCLOPS pulse in the $\mathbf{z}$ and then $\mathbf{y}$ directions). These signals are used to generate the difference signals [Eqs. (D5) and (D8)], which are shown in Fig. 7, and then are fitted to reconstruct the expectation values of the required operators. This is done with shared parameters, including the frequency, global phase, and relaxation rates. Finally, we used nine reconstructed observables to perform linear inversion [according to Eq. (3)], and, thus to obtain a matrix corresponding to the state. In the considered case, we

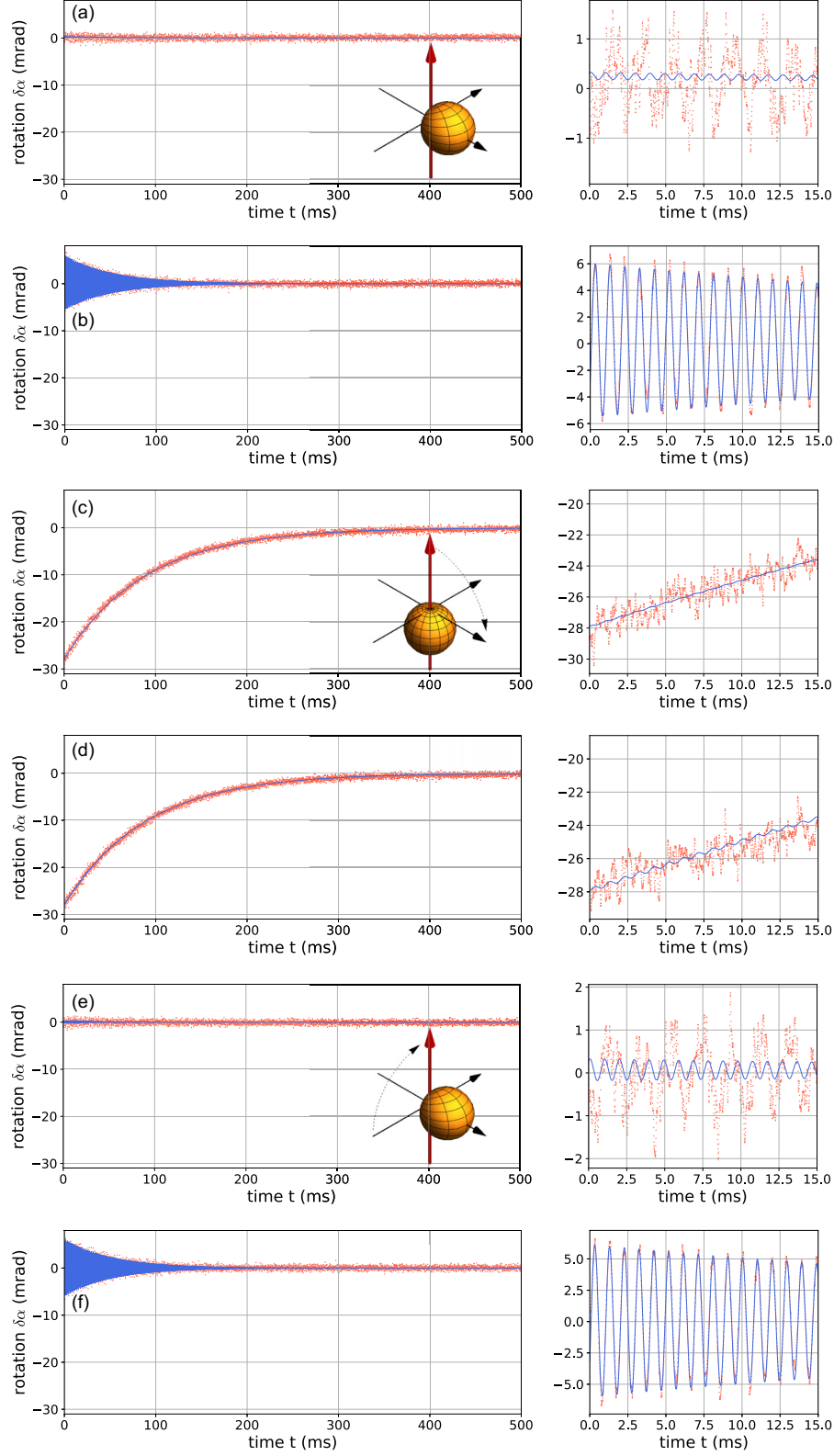


FIG. 7. Detected polarization rotations (red dots) and fitted dependences (blue lines), corresponding to the first [Eq. (D5)] (a) and the second [Eq. (D8)] (b) quadratures of the signal measured without the control pulses. (c) and (d) correspond to the same signals measured with the pulse rotating the state by $\pi/2$ around the y axis, while (e) and (f) correspond to the pulse rotating the state by $\pi/2$ around the x axis. The right column shows magnifications of the first 15 ms of the registered signals. The insets in (a), (c), and (e) show the angular-momentum probability surfaces [40] of the reconstructed state after respective rotations (denoted with black dashed arrows). The red axis denotes the axis of the magnetic field applied during detection, which coincides with the probe-light propagation direction.

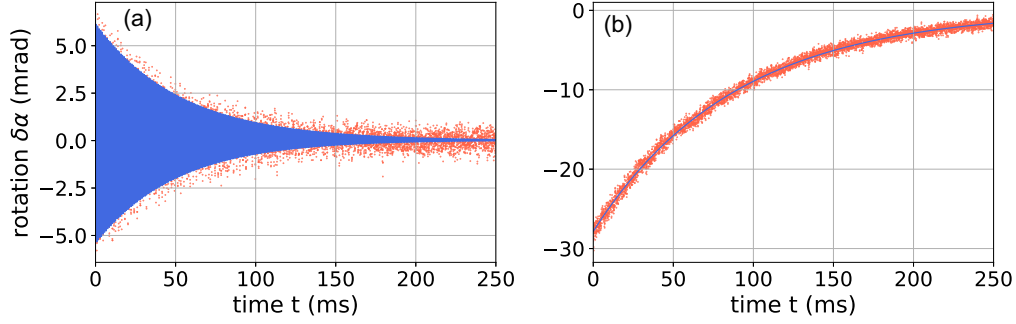


FIG. 8. Results of the measurement of the atomic response when the atoms are polarized along (a) x and (b) z axes. Based on the measurements, the local scaling factor was determined as $\zeta(\Delta) = -0.4790(12)$.

obtained

$$\rho = \begin{bmatrix} 0.2363 & -0.3903 - 0.0002i & 0.2748 - 0.0033i \\ -0.3903 + 0.0002i & 0.5175 & -0.3737 + 0.0022i \\ 0.2748 + 0.0033i & -0.3737 - 0.0022i & 0.2461 \end{bmatrix}. \quad (\text{E1})$$

It is evident from its eigenvalues, $\text{eig}(\rho) = \{1.057, -0.041, -0.016\}$, that the reconstructed matrix is not positive semidefinite. In order to address this problem, at the last stage, we applied the maximum likelihood method [33] to find the positive semidefinite matrix closest to the reconstructed one. This process allowed us to obtain the following density matrix:

$$\rho_{\text{ML}} = \begin{bmatrix} 0.2410 & -0.3507 + 0.0003i & 0.2447 - 0.0020i \\ -0.3507 - 0.0003i & 0.5104 & -0.3562 + 0.0027i \\ 0.2447 + 0.0020i & -0.3562 - 0.0027i & 0.2486 \end{bmatrix}, \quad (\text{E2})$$

with nonnegative eigenvalues, $\text{eig}(\rho) = \{1, 0, 0\}$. This state is graphically presented in Fig. 3(a).

-
- [1] K. Mouloudakis, G. Vasilakis, V. G. Lucivero, J. Kong, I. K. Kominis, and M. W. Mitchell, Effects of spin-exchange collisions on the fluctuation spectra of hot alkali-metal vapors, *Phys. Rev. A* **106**, 023112 (2022).
 - [2] R. Shaham, O. Katz, and O. Firstenberg, Strong coupling of alkali-metal spins to noble-gas spins with an hour-long coherence time, *Nat. Phys.* **18**, 506 (2022).
 - [3] W. Happer, Optical pumping, *Rev. Mod. Phys.* **44**, 169 (1972).
 - [4] O. Schmidt, R. Wynands, Z. Hussein, and D. Meschede, Steep dispersion and group velocity below $c/3000$ in coherent population trapping, *Phys. Rev. A* **53**, R27(R) (1996).
 - [5] K. Hammerer, K. Mølmer, E. S. Polzik, and J. I. Cirac, Light-matter quantum interface, *Phys. Rev. A* **70**, 044304 (2004).
 - [6] H. Krauter, C. A. Muschik, K. Jensen, W. Wasilewski, J. M. Petersen, J. I. Cirac, and E. S. Polzik, Entanglement generated by dissipation and steady state entanglement of two macroscopic objects, *Phys. Rev. Lett.* **107**, 080503 (2011).
 - [7] O. Katz, R. Shaham, E. S. Polzik, and O. Firstenberg, Long-lived entanglement generation of nuclear spins using coherent light, *Phys. Rev. Lett.* **124**, 043602 (2020).
 - [8] K. Jensen, W. Wasilewski, H. Krauter, T. Fernholz, B. M. Nielsen, M. Owari, M. B. Plenio, A. Serafini, M. M. Wolf, and E. S. Polzik, Quantum memory for entangled continuous-variable states, *Nat. Phys.* **7**, 13 (2011).
 - [9] M. Dąbrowski, M. Parniak, and W. Wasilewski, Einstein-Podolsky-Rosen paradox in a hybrid bipartite system, *Optica* **4**, 272 (2017).
 - [10] E. E. Mikhailov and I. Novikova, Low-frequency vacuum squeezing via polarization self-rotation in Rb vapor, *Opt. Lett.* **33**, 1213 (2008).
 - [11] I. H. Agha, G. Messin, and P. Grangier, Generation of pulsed and continuous-wave squeezed light with ^{87}Rb vapor, *Opt. Express* **18**, 4198 (2010).
 - [12] W. Wasilewski, T. Fernholz, K. Jensen, L. S. Madsen, H. Krauter, C. Muschik, and E. S. Polzik, Generation of two-mode squeezed and entangled light in a single temporal and spatial mode, *Opt. Express* **17**, 14444 (2009).
 - [13] A. Heifetz, A. Agarwal, G. C. Cardoso, V. Gopal, P. Kumar, and M. S. Shahriar, Super efficient absorption filter for quantum memory using atomic ensembles in a vapor, *Opt. Commun.* **232**, 289 (2004).
 - [14] M. Dąbrowski, R. Chrapkiewicz, and W. Wasilewski, Magnetically tuned, robust and efficient filtering system for spatially multimode quantum memory in warm atomic vapors, *J. Mod. Opt.* **63**, 2029 (2016).
 - [15] M. Kopciuch and S. Pustelny, Optical reconstruction of the collective density matrix of a qutrit, *Phys. Rev. A* **106**, 022406 (2022).
 - [16] Y. I. Bogdanov, G. Brida, M. Genovese, S. P. Kulik, E. V. Moreva, and A. P. Shurupov, Statistical estimation of the efficiency of quantum state tomography protocols, *Phys. Rev. Lett.* **105**, 010404 (2010).
 - [17] A. Miranowicz, K. Bartkiewicz, J. Peřina, M. Koashi, N. Imoto, and F. Nori, Optimal two-qubit tomography based on local

- and global measurements: Maximal robustness against errors as described by condition numbers, *Phys. Rev. A* **90**, 062123 (2014).
- [18] K. Bartkiewicz, A. Černoš, K. Lemr, and A. Miranowicz, Priority choice experimental two-qubit tomography: Measuring one by one all elements of density matrices, *Sci. Rep.* **6**, 19610 (2016).
- [19] S. S. Roy and T. S. Mahesh, Density matrix tomography of singlet states, *J. Magn. Reson.* **206**, 127 (2010).
- [20] A. Miranowicz, S. K. Özdemir, J. Bajer, G. Yusa, N. Imoto, Y. Hirayama, and F. Nori, Quantum state tomography of large nuclear spins in a semiconductor quantum well: Optimal robustness against errors as quantified by condition numbers, *Phys. Rev. B* **92**, 075312 (2015).
- [21] I. H. Deutsch and P. S. Jessen, Quantum control and measurement of atomic spins in polarization spectroscopy, *Opt. Commun.* **283**, 681 (2010).
- [22] C. Lovecchio, S. Cherukattil, B. Cilenti, I. Herrera, F. S. Cataliotti, S. Montangero, T. Calarco, and F. Caruso, Quantum state reconstruction on atom-chips, *New J. Phys.* **17**, 093024 (2015).
- [23] K. Hammerer, A. S. Sørensen, and E. S. Polzik, Quantum interface between light and atomic ensembles, *Rev. Mod. Phys.* **82**, 1041 (2010).
- [24] Y. Takahashi, K. Honda, N. Tanaka, K. Toyoda, K. Ishikawa, and T. Yabuzaki, Quantum nondemolition measurement of spin via the paramagnetic Faraday rotation, *Phys. Rev. A* **60**, 4974 (1999).
- [25] G. Colangelo, R. J. Sewell, N. Behbood, F. M. Ciurana, G. Triginer, and M. W. Mitchell, Quantum atom–light interfaces in the Gaussian description for spin-1 systems, *New J. Phys.* **15**, 103007 (2013).
- [26] D. D’Alessandro, *Introduction to Quantum Control and Dynamics* (CRC, Boca Raton, FL, 2021).
- [27] S. Pustelny, V. Schultze, T. Scholtes, and D. Budker, Dichroic atomic vapor laser lock with multi-gigahertz stabilization range, *Rev. Sci. Instrum.* **87**, 063107 (2016).
- [28] R. Freeman, *A Handbook of Nuclear Magnetic Resonance* (Longman Scientific & Technical, London, 1987).
- [29] F. A. Bonk, E. R. deAzevedo, R. S. Sarthour, J. D. Bulnes, J. C. C. Freitas, A. P. Guimarães, I. S. Oliveira, and T. J. Bonagamba, Quantum logical operations for spin 3/2 quadrupolar nuclei monitored by quantum state tomography, *J. Magn. Reson.* **175**, 226 (2005).
- [30] E. Zhivun, A. Wickenbrock, J. Sudyka, B. Patton, S. Pustelny, and D. Budker, Vector light shift averaging in paraffin-coated alkali vapor cells, *Opt. Express* **24**, 15383 (2016).
- [31] M. Auzinsh, D. Budker, and S. M. Rochester, Light-induced polarization effects in atoms with partially resolved hyperfine structure and applications to absorption, fluorescence, and nonlinear magneto-optical rotation, *Phys. Rev. A* **80**, 053406 (2009).
- [32] M. Auzinsh, D. Budker, and S. M. Rochester, *Optically Polarized Atoms: Understanding Light-Atom Interactions* (Oxford University Press, Oxford, 2010).
- [33] M. Paris and J. Řehaček, *Quantum State Estimation*, Lecture Notes in Physics Vol. 649 (Springer, Berlin, 2004).
- [34] K. E. Atkinson, *An Introduction to Numerical Analysis* (Wiley, New York, 1989).
- [35] N. J. Higham, *Accuracy and Stability of Numerical Algorithms* (SIAM, Philadelphia, 1996).
- [36] G. H. Golub and C. F. Van Loan, *Matrix Computations* (Johns Hopkins University Press, Baltimore 1996).
- [37] P. Zanardi, H. T. Quan, X. Wang, and C. P. Sun, Mixed-state fidelity and quantum criticality at finite temperature, *Phys. Rev. A* **75**, 032109 (2007).
- [38] T. Fernholz, H. Krauter, K. Jensen, J. F. Sherson, A. S. Sørensen, and E. S. Polzik, Spin squeezing of atomic ensembles via nuclear-electronic spin entanglement, *Phys. Rev. Lett.* **101**, 073601 (2008).
- [39] G. M. D’Ariano, L. Maccone, and M. Painsi, Spin tomography, *J. Opt. B: Quantum Semiclass. Opt.* **5**, 77 (2003).
- [40] S. M. Rochester and D. Budker, Atomic polarization visualized, *Am. J. Phys.* **69**, 450 (2001).

3.2 Stany PQP czyli stany idealnego kątomierza kwantowego

Głównym celem projektu było stworzenie platformy złożonej z układu eksperymentalnego i zoptymalizowanego algorytmu tomografii stanów, która pozwalałaby na testowanie nowych koncepcji zarówno w dziedzinie informacji kwantowej opartej na qutricie, jak i w metrologii kwantowej. Jednym z pierwszych zastosowań powstałej platformy było wytworzenie z wysoką wiernością, a następnie zbadanie klasy stanów określanych jako stany PQP (ang. *perfect quantum protractor*). Stany takie to szczególna podklasa stanów zwanych kątomierzami kwantowymi, czyli stanów, które po obrocie o określone kąty, wokół określonych osi, zawsze przechodzą do stanów ortogonalnych. Bardziej formalnie są to stany, dla których można wyróżnić oś $\mathbf{n}$ oraz zbiór obrotów $\{\theta_k\}_k$ takich, że zbiór stanów powstały przez zastosowanie ww. obrotów jest zbiorem stanów wzajemnie ortogonalnych

$$\forall \theta_k \wedge \theta_l \in \{\theta_k\}_k : \quad \langle \psi | \hat{R}_{\mathbf{n}}^\dagger(\theta_k) \hat{R}_{\mathbf{n}}(\theta_l) | \psi \rangle = 0. \quad (3.12)$$

Jednakże jeżeli stan kątomierza ma należeć do klasy PQP, musi spełniać dodatkowe warunki. Pierwszy z nich to to, że ww. zbiór stanów musi rozpinąć bazę, czyli liczba kątów tworzących zbiór stanów ortogonalnych musi być równa wymiarowi przestrzeni. Drugi warunek mówi, że muszą istnieć dokładnie trzy osie, wokół których ten sam zbiór kątów utworzy trzy osobne i niezależne od siebie zestawy stanów wzajemnie ortogonalnych. Oznacza to, że poprzez jeden zbiór wyróżnionych obrotów oraz trzy wybrane osie są generowane trzy niezależne od siebie bazy ortogonalne.

W pracy [D] przedstawione zostały metody wyznaczania stanów PQP. Następnie stany te zostały wyznaczone jawnie dla spinów 1, 3/2, 3 oraz 7/2. Szczególnie przeanalizowany został przypadek spinu 1, dla którego przykładowy stan PQP dany jest jako:

$$|\psi\rangle = \frac{1}{\sqrt{3}} \left(e^{i\phi_+} |1, 1\rangle + |1, 0\rangle + e^{i\phi_-} |1, -1\rangle \right), \quad (3.13)$$

gdzie $\phi_+ = \pm\pi/4$ oraz $\phi_- = \pm 3\pi/4$ lub $\phi_+ = \pm 3\pi/4$ oraz $\phi_- = \pm\pi/4$. Stan taki został wytworzony eksperymentalnie poprzez poddanie stanu początkowego o zerowym rzucie momentu pędu $|1, 0\rangle$ sekwencji obrotów wzdłuż osi $\mathbf{x}$ oraz $\mathbf{z}$

$$|\psi\rangle = \hat{R}_{\mathbf{z}} \left(-\frac{\pi}{4} \right) \hat{R}_{\mathbf{x}} \left(-\cos^{-1} \left(\frac{1}{\sqrt{3}} \right) \right) |1, 0\rangle. \quad (3.14)$$

To właśnie ten stan był następnie analizowany doświadczalnie.

Warto w tym miejscu zauważyć, że zaproponowany zestaw obrotów powoduje zmianę kierunku osi symetrii stanu $|1, 0\rangle$ z kierunku $\mathbf{z}$ (patrz Rys. 3.2) do kierunku $(\mathbf{x} + \mathbf{y} + \mathbf{z})/\sqrt{3}$. Obrazuje to podstawową własność stanów PQP, czyli równość wariancji operatorów momentu pędu wzdłuż każdej z trzech wybranych osi⁴.

Z metrologicznego punktu widzenia, stany PQP są optymalnym wyborem zarówno przy pomiarze obrotu o losowy kąt wokół jednej z trzech osi, przy czym oś ta nie jest znana a

⁴Podana własność została przedyskutowana w paragrafie (4.2) pracy [D].

priori, jak i przy próbie rozróżnienia o jaki kąt z dyskretnego zbioru $\theta_l = 2\pi l/(2S + 1)$, gdzie S jest spinem układu w którym wytworzono stan PQP, stan został obrócony.

W przypadku badań doświadczalnych stanów PQP prowadzonych w ramach niniejszego doktoratu użyteczność stanów PQP została zademonstrowana inaczej. Analizując równanie na skreślenie płaszczyzny polaryzacji wykorzystywane w badaniach tomografii stanów (3.1) oraz ewolucję obecnych w nim obserwabli $\langle \hat{\alpha}_R \rangle$ oraz $\langle \hat{\alpha}_I \rangle$ pod wpływem obrotu o kąt θ wokół osi $\mathbf{z}$, otrzymano zależności:

$$\langle \hat{\alpha}_R(\theta) \rangle = R \cos(2\theta + \theta_0) \quad (3.15)$$

$$\langle \hat{\alpha}_I(\theta) \rangle = R \sin(2\theta + \theta_0), \quad (3.16)$$

gdzie θ_0 jest początkową fazą zależną od stanu, na którym dokonano pomiaru, natomiast $R = \sqrt{\langle \hat{\alpha}_R \rangle^2 + \langle \hat{\alpha}_I \rangle^2}$ jest wartością skalującą, niezależną od wartości przyłożonego obrotu a jedynie od początkowego stanu atomów. Takie podejście pozwala na łatwe identyfikowanie obrotów poprzez pojedynczy pomiar FID. Jednocześnie warto zauważyć, że wykreślając pomiary dla różnych kątów na płaszczyźnie $\langle \hat{\alpha}_R \rangle$ od $\langle \hat{\alpha}_I \rangle$, co pokazano na Rys. 6 w pracy [D], można w intuicyjny sposób interpretować wartość R jako miarę rozdzielczości kątowej pomiaru. W analogiczny sposób, tj. poprzez cykliczną zamianę osi $\mathbf{x} \rightarrow \mathbf{y} \rightarrow \mathbf{z}$, przeprowadzone zostały pomiary z wiązką próbkującą stan efektywnie w pozostałych osiach. Pozwoliło to zaprezentować, że stany PQP są równie czułe w każdej z trzech wybranych osi, jednocześnie maksymalizując średnią czułość na obroty.

3.2.1 Artykuł: Perfect quantum protractors

W ramach artykułu zatytułowanego „Perfect quantum protractors” po raz pierwszy wprowadzono i przeanalizowane stany PQP. W szczególności w artykule przedstawione zostały wyniki eksperymentalnej realizacji wybranych stanów tej klasy dla układu o całkowitym momencie pędu równym 1. Badania te przeprowadzono w parach atomowych rubidu-87, a same wyniki poddano analizie pod kątem własności tych stanów, czyli równej i maksymalnej czułości na pomiary obrotów wokół trzech wybranych osi.

W ramach artykułu doktorant odpowiadał za zaprojektowanie i przygotowanie eksperymentu, analizę danych eksperymentalnych oraz był współautorem części tekstu opisującej przeprowadzony eksperyment.

Perfect quantum protractors

Michał Piotrak^{1,2}, Marek Kopciuch^{3,4}, Arash Dezhang Fard^{3,4}, Magdalena Smolis⁴, Szymon Pustelny⁴, and Kamil Korzekwa⁴

¹Department of Physics, Imperial College London, London SW7 2AZ, United Kingdom

²Department of Physics and Astronomy, University College London, London WC1E 6BT, United Kingdom

³Doctoral School of Exact and Natural Sciences, Jagiellonian University, Faculty of Physics, Astronomy and Applied Computer Sciences, 30-348 Kraków, Poland

⁴Faculty of Physics, Astronomy and Applied Computer Science, Jagiellonian University, 30-348 Kraków, Poland

August 30, 2024

In this paper we introduce and investigate the concept of a *perfect quantum protractor*, a pure quantum state $|\psi\rangle \in \mathcal{H}$ that generates three different orthogonal bases of $\mathcal{H}$ under rotations around each of the three perpendicular axes. Such states can be understood as pure states of maximal uncertainty with regards to the three components of the angular momentum operator, as we prove that they maximise various entropic and variance-based measures of such uncertainty. We argue that perfect quantum protractors can only exist for systems with a well-defined total angular momentum j , and we prove that they do not exist for $j \in \{1/2, 2, 5/2\}$, but they do exist for $j \in \{1, 3/2, 3\}$ (with numerical evidence for their existence when $j = 7/2$). We also explain that perfect quantum protractors form an optimal resource for a metrological task of estimating the angle of rotation around (or the strength of magnetic field along) one of the three perpendicular axes, when the axis is not *a priori* known. Finally, we demonstrate this metrological utility by performing an experiment with warm atomic vapours of rubidium-87, where we prepare a perfect quantum protractor for a spin-1 system, let it precess around x , y or z axis, and then employ it to optimally estimate the rotation angle.

1 Introduction

Uncertainty relations are one of the most well-known aspects of quantum mechanics. Despite being originally formulated more than a century ago [1, 2], they are still an active field of research [3, 4]. This counter-intuitive feature of nature that knowing one property of a quantum system with certainty necessarily means that we must be uncertain about another complementary property is usually considered as a fundamental metrological restriction. Thus, we can never measure perfectly conjugate variables, such as position and momentum, time and energy, or angular position and angular momentum.

However, one can also look at this from a different angle and see quantum uncertainty not as a metrological

restriction, but rather as a metrological resource. First, note that the operators corresponding to one of the pair of conjugate variables generate change of the other variable: momentum operator is a generator of translations in space, energy operator (Hamiltonian) is a generator of time evolution, and angular momentum operators generate rotations in space. Then, it is clear that the eigenstates of a given generator (i.e., states with a well-defined value and no uncertainty) are useless for measuring the conjugate variable. For example, energy eigenstates are known to be stationary and do not evolve in time – as such, they are useless for measuring time. On the other hand, a quantum system prepared in a superposition of different energy eigenstates (so with some energy uncertainty) can act as a clock, since it can non-trivially evolve in time to another distinguishable state [5].

This concept was formalised by introducing the notion of *quantum clocks* [6], which was then generalised in Ref. [7]. The basic idea is that a clock can be realised by a finite-dimensional quantum system, whose “ticks” at discrete times correspond to evolutions into different mutually orthogonal states. Projective measurement in the basis formed by these states allows for accurate, although discrete, measurements of time. The maximal number of different moments in time that can be then perfectly distinguished by a d -dimensional quantum clock is given by d , and this can happen only for the clock initialised in an optimal state of uniform superposition of energy eigenstates (i.e., for the state maximising energy uncertainty).

In this paper, we generalise the original construction of quantum clocks to quantum systems being able to optimally measure more than one variable. More precisely, we introduce and investigate the notion of *perfect quantum protractors* – d -dimensional quantum states that can be used to perfectly distinguish d rotation angles around any of the three perpendicular axes. In other words, under rotations around x , y and z axes these states generate three different orthogonal bases, and they also simultaneously maximise the uncertainty of the three components of angular momentum. We show that such optimal states can only exist for systems with a well-defined angular momentum j and, surprisingly, we prove that their existence depends on j . We analyse in detail small-dimensional

arXiv:2310.13045v2 [quant-ph] 29 Aug 2024

cases of $j < 4$ and explain metrological setups for which perfect quantum protractors are optimal resources. Finally, we perform an experiment with atomic vapours of rubidium-87 playing the role of spin-1 perfect quantum protractors employed to optimally estimate the rotation angle.

The paper is structured as follows. First, in Sec. 2, we set the scene by recalling the mathematical formalism of angular momentum and formally defining the central concepts of optimal and perfect quantum protractors. Next, in Sec. 3, we present results on the existence and non-existence of these states for spin- j systems. We then proceed to discussing the properties of perfect quantum protractors in Sec. 4, focusing mainly on the fact that they are pure states that maximise uncertainty about angular momentum measurements, and describing their entanglement features. Next, Sec. 5 is devoted to justifying the utility of perfect quantum protractors for metrological tasks of measuring rotation angles. In Sec. 6 we present the experiment we performed with rubidium vapour, where we prepared perfect quantum protractor states of spin-1 systems and used them to optimally estimate rotation angles. Finally, we conclude the paper and provide outlook for future work in Sec. 7.

2 Setting the scene

2.1 Mathematical background

Rotations in three dimensions are generally described by a Lie group $\text{SO}(3)$, i.e., a special orthogonal group of dimension 3. Orthogonality ensures that the transformation preserves the inner product, hence it is an isometry. Speciality implies that the parity is conserved as well, hence the group is restricted to proper rotations. The group $\text{SO}(3)$ is double-covered by $\text{SU}(2)$, the special unitary group of dimension 2, so equivalently rotations can be described by elements of $\text{SU}(2)$. This is very convenient when considering quantum particles with angular momentum and will be used throughout this paper.

The Lie algebra $\mathfrak{su}(2)$ generating $\text{SU}(2)$ is defined by the following commutation relation between its three generators:

$$[J_k, J_l] = i\epsilon_{klm}J_m, \quad (1)$$

where ϵ_{klm} is the Levi-Civita tensor. Since $\text{SU}(2)$ is a 3-parameter Lie group, each of its elements can be formed from the elements of $\mathfrak{su}(2)$ via exponentiation:

$$\forall R(\boldsymbol{\theta}) \in \text{SU}(2) : \quad R(\boldsymbol{\theta}) = e^{-i\boldsymbol{\theta} \cdot \mathbf{J}}, \quad (2)$$

where $\boldsymbol{\theta} = (\theta_x, \theta_y, \theta_z)$ is a vector of real numbers and $\mathbf{J} = (J_x, J_y, J_z)$. To denote rotations around x , y and z axes we will use a shorthand notation of R_x , R_y and R_z .

Matrix representations of $\mathfrak{su}(2)$ of size d are associated with angular momentum operators along different axes: J_x , J_y and J_z correspond to angular momenta along three perpendicular axes, and so $\hat{\mathbf{n}} \cdot \mathbf{J}$, with $\hat{\mathbf{n}}$ denoting a unit

vector, represents angular momentum along axis $\hat{\mathbf{n}}$ ¹. In particular, irreducible representations of size $(2j+1)$ correspond to spin- j systems, whose Hilbert space we will denote by $\mathcal{H}_j$, and for which one has

$$J^2 := J_x^2 + J_y^2 + J_z^2 = j(j+1). \quad (3)$$

In the irreducible case, the eigenstates of $\hat{\mathbf{n}} \cdot \mathbf{J}$ form a complete and orthonormal basis of $\mathcal{H}_j$, so any state with a total angular momentum j can be expressed as:

$$\forall |\psi\rangle \in \mathcal{H}_j : \quad |\psi\rangle = \sum_{m=-j}^j c_{\hat{\mathbf{n}},m} |j, m\rangle_{\hat{\mathbf{n}}}, \quad (4)$$

where $|j, m\rangle_{\hat{\mathbf{n}}}$ is the eigenstates of $\hat{\mathbf{n}} \cdot \mathbf{J}$ with eigenvalue m .

Now, a state $|\psi\rangle$ of a quantum system transforms under the rotation described by $R(\boldsymbol{\theta})$ as follows:

$$|\psi\rangle \xrightarrow{R(\boldsymbol{\theta})} e^{-i\boldsymbol{\theta} \cdot \mathbf{J}} |\psi\rangle = e^{-i\boldsymbol{\theta} \cdot \hat{\mathbf{n}} \cdot \mathbf{J}} |\psi\rangle, \quad (5)$$

where we decomposed $\boldsymbol{\theta}$ into a unit vector times its magnitude, $\boldsymbol{\theta} = \theta \hat{\mathbf{n}}$. In particular, for spin- j systems, we can use the decomposition from Eq. (4) to see that the rotation by angle θ around axis $\hat{\mathbf{n}}$ transforms the state of the system as follows:

$$|\psi\rangle = \sum_{m=-j}^j c_{\hat{\mathbf{n}},m} |j, m\rangle_{\hat{\mathbf{n}}} \xrightarrow{R(\theta \hat{\mathbf{n}})} \sum_{m=-j}^j c_{\hat{\mathbf{n}},m} e^{-im\theta} |j, m\rangle_{\hat{\mathbf{n}}}. \quad (6)$$

For a general quantum system, the corresponding Hilbert space $\mathcal{H}$ can be uniquely decomposed into a direct sum of Hilbert spaces corresponding to irreducible representations of $\text{SU}(2)$ as follows:

$$\mathcal{H} = \bigoplus_j \mathcal{H}_j^{\otimes g_j}, \quad (7)$$

with j taking integer or half-integer values and g_j denoting the degeneracy of a subspaces $\mathcal{H}_j$. For example, a system consisting of four spin-1/2 particles can be decomposed as:

$$(\mathcal{H}_{1/2})^{\otimes 4} = \mathcal{H}_0^{\otimes 2} \oplus \mathcal{H}_1^{\otimes 3} \oplus \mathcal{H}_2. \quad (8)$$

Thus, an arbitrary quantum state $|\Psi\rangle$ living in a general Hilbert space $\mathcal{H}$ can be expressed as:

$$|\Psi\rangle = \sum_{j=0}^{j_{\max}} \sum_{m=-j}^j \sum_{\alpha=1}^{g_j} c_{\hat{\mathbf{n}},j,m,\alpha} |j, m, \alpha\rangle_{\hat{\mathbf{n}}}, \quad (9)$$

where $j_{\max}$ is the total angular momentum of the highest irrep appearing in the decomposition of $\mathcal{H}$.

2.2 Formal statement of the problem

In this work we investigate special families of quantum states that we call *quantum protractors*.

¹Throughout the paper we will slightly abuse the notation with $R(\boldsymbol{\theta})$ and J_k denoting both elements of the Lie group and algebra, as well as their matrix representations of size d .

Definition 1 (Quantum protractors). A quantum protractor of order n with respect to axis $\hat{\mathbf{n}}$ is a quantum state $|\psi\rangle \in \mathcal{H}$ with $\dim \mathcal{H} = d$ for which there exist angles $\{\theta_1, \dots, \theta_n\}$ such that

$$\forall 1 \leq k < l \leq n: \langle \psi | R^\dagger(\theta_k \hat{\mathbf{n}}) R(\theta_l \hat{\mathbf{n}}) | \psi \rangle = 0, \quad (10)$$

i.e., $|\psi\rangle$ rotated around $\hat{\mathbf{n}}$ by these angles forms a set of n mutually orthogonal states. A quantum protractor of order d is called *optimal*. A state that is an optimal quantum protractor simultaneously with respect to r perpendicular axes is said to be of rank r , and a quantum protractor with the maximal rank equal to 3 is called *perfect*.

Our main goal is to solve the existence problem of perfect quantum protractors in Hilbert spaces of various dimensions, capture their properties and understand the consequences of their (non-)existence.

3 Existence

We first observe that in our search for optimal quantum protractors, we only need to consider states living in Hilbert spaces $\mathcal{H}_j$, i.e., states of quantum systems with well-defined total angular momentum j . To see this, first consider an arbitrary state $|\Psi\rangle \in \mathcal{H}$ of a general system given by Eq. (9). The overlap between $|\Psi\rangle$ rotated by angle θ_k about axis $\hat{\mathbf{n}}$ and $|\Psi\rangle$ rotated by angle $\theta_l = \theta_k - \theta$ about the same axis is given by:

$$\begin{aligned} \langle \Psi | e^{-i\theta \hat{\mathbf{n}} \cdot \mathbf{J}} | \Psi \rangle &= \sum_{j=0}^{j_{\max}} \sum_{m=-j}^j \sum_{\alpha=1}^{g_j} |c_{\hat{\mathbf{n}},j,m,\alpha}|^2 e^{-im\theta} \\ &= \sum_{m=-j_{\max}}^{j_{\max}} e^{-im\theta} \sum_{j=|m|}^{j_{\max}} \sum_{\alpha=1}^{g_j} |c_{\hat{\mathbf{n}},j,m,\alpha}|^2. \end{aligned} \quad (11)$$

Introducing

$$p_m := \sum_{j=|m|}^{j_{\max}} \sum_{\alpha=1}^{g_j} |c_{\hat{\mathbf{n}},j,m,\alpha}|^2, \quad (12)$$

so that $\mathbf{p}$ is a normalised probability distribution, we get

$$\langle \Psi | e^{-i\theta \hat{\mathbf{n}} \cdot \mathbf{J}} | \Psi \rangle = \sum_{m=-j_{\max}}^{j_{\max}} e^{-im\theta} p_m. \quad (13)$$

Exactly the same overlaps would be obtained if instead we rotated a state $|\psi\rangle \in \mathcal{H}_{j_{\max}}$ from Eq. (4) with $c_{\hat{\mathbf{n}},m} = \sqrt{p_m}$. This proves that the number of orthogonal states that can be obtained via rotations of a system with a composite Hilbert space $\mathcal{H}$ is bounded by the dimension of the highest irrep $\mathcal{H}_{j_{\max}}$ appearing in the decomposition from Eq. (7). Since for an optimal quantum protractor we require this number to be equal to the dimension of the system, without loss of generality we can limit our considerations to states living in $\mathcal{H}_j$.

3.1 Optimal quantum protractors of rank 1

We start with a simple observation that characterises all optimal quantum protractors of rank 1 as phase states [8].

Proposition 1. A state $|\psi\rangle \in \mathcal{H}_j$ is an optimal quantum protractor with respect to axis $\hat{\mathbf{n}}$ if and only if it is of the form

$$|\psi\rangle = \frac{1}{\sqrt{2j+1}} \sum_{m=-j}^j e^{i\phi_m} |j, m\rangle_{\hat{\mathbf{n}}}. \quad (14)$$

Proof. We first prove by direct calculation that $|\psi\rangle$ from Eq. (14) is an optimal quantum protractor. We start by choosing $(2j+1)$ angles $\theta_k = 2\pi k/(2j+1)$ for $k \in \{0, \dots, 2j\}$. Then, the overlap between $|\psi\rangle$ rotated by angle θ_k about axis $\hat{\mathbf{n}}$ with $|\psi\rangle$ rotated by angle θ_l about the same axis is given by:

$$\langle \psi | e^{i(\theta_k - \theta_l) \hat{\mathbf{n}} \cdot \mathbf{J}} | \psi \rangle = \frac{1}{2j+1} \sum_{m=-j}^j e^{i \frac{2\pi(k-l)m}{2j+1}} = \delta_{kl}. \quad (15)$$

Since there exist $\dim \mathcal{H}_j = (2j+1)$ rotation angles that transform $|\psi\rangle$ into a set of mutually orthogonal states, $|\psi\rangle$ is an optimal quantum protractor.

We will now prove that every optimal quantum protractor must be of the form given in Eq. (14). For $|\psi\rangle$ to be an optimal quantum protractor, its $(2j+1)$ rotated versions must be mutually orthogonal. However, according to Eq. (6), rotations only introduce phase factors in the relevant angular momentum eigenbasis, and do not modify probabilities. Thus, we require the existence of $(2j+1)$ orthogonal states $|\psi_k\rangle$ with $k \in \{0, \dots, 2j\}$ such that

$$|\psi_k\rangle = \sum_{m=-j}^j \sqrt{p_m} e^{i\phi_{k,m}} |j, m\rangle_{\hat{\mathbf{n}}}, \quad (16)$$

with $p_m = |\langle \psi | j, m \rangle_{\hat{\mathbf{n}}}|^2$. However, Proposition 4 from Ref. [9] clearly states that this is possible only if $\max_m p_m \leq 1/(2j+1)$, which enforces all p_m to be equal to $1/(2j+1)$, which in turn enforces $|\psi\rangle$ to be of the form from Eq. (14). $\square$

3.2 Optimal quantum protractors of rank 2

We now proceed to proving the existence of optimal quantum protractors of rank 2 in Hilbert spaces $\mathcal{H}_j$ for all j . From Proposition 1, we know that in order for $|\psi\rangle \in \mathcal{H}_j$ to be an optimal quantum protractor with respect to axes $\hat{\mathbf{n}}$ and $\hat{\mathbf{m}}$, it has to satisfy the following:

$$\begin{aligned} |\psi\rangle &= \frac{1}{\sqrt{2j+1}} \sum_{m=-j}^j e^{i\phi_m} |j, m\rangle_{\hat{\mathbf{n}}} \\ &= \frac{1}{\sqrt{2j+1}} \sum_{m=-j}^j e^{i\varphi_m} |j, m\rangle_{\hat{\mathbf{m}}}. \end{aligned} \quad (17)$$

In other words, we are looking for a state that is a uniform superposition of all basis states for two different bases, the eigenbases of $\hat{\mathbf{n}} \cdot \mathbf{J}$ and $\hat{\mathbf{m}} \cdot \mathbf{J}$. Luckily for us, this problem was investigated in the past in a different context, and so we can employ the following result from Refs. [10, 11].

Theorem 1 (Theorem 1 of Ref. [10]). For any two bases $\{|a_n\rangle\}$ and $\{|b_n\rangle\}$ of a d -dimensional Hilbert space there exist at least 2^{d-1} states $|\psi\rangle$ that are unbiased in both bases, i.e.:

$$\forall n: |\langle a_n|\psi\rangle|^2 = |\langle b_n|\psi\rangle|^2 = \frac{1}{d}. \quad (18)$$

The above then straightforwardly leads to the following corollary:

Corollary 1. In every Hilbert space $\mathcal{H}_j$, there exist at least 4^j optimal quantum protractors with respect to any two axes and so, in particular, there exist optimal quantum protractors of rank 2.

We will provide examples of optimal quantum protractors of rank 2 in the next section while discussing the existence of perfect quantum protractors.

3.3 Perfect quantum protractors

For a quantum protractor to have rank 3 it must satisfy the condition specified in Proposition 1 for each of the three perpendicular axes. Thus, in what follows, we will start with the most general states belonging to $\mathcal{H}_j$ and enforce them to yield uniform distributions in each of the three angular momentum eigenbases. To simplify the notation, we will use x , y and z subscripts to denote unit vectors along three Cartesian axes, and we will skip j in $|j, m\rangle$ as it will be fixed in each of the following sections. Also, for m , instead of using $\pm 1/2, \pm 1$, etc., we will use a tidier and self-explanatory notation employing the following symbols: $\{\uparrow, \downarrow, 0, \uparrow, \downarrow, \uparrow, \downarrow\}$. Finally, for the convenience of the reader, Appendix A contains expressions for angular momentum eigenstates along x and y axes in terms of standard angular momentum eigenstates along the z axis.

3.3.1 $j = 1/2$

A general state $|\psi\rangle \in \mathcal{H}_{1/2}$, ignoring the irrelevant global phase, is given by:

$$|\psi\rangle = \sqrt{p_\uparrow} |\uparrow\rangle_z + \sqrt{p_\downarrow} e^{i\phi_\downarrow} |\downarrow\rangle_z. \quad (19)$$

From Proposition 1, we know that

$$p_\uparrow = p_\downarrow = \frac{1}{2}. \quad (20)$$

Using the above one finds

$$|\langle\psi|\uparrow\rangle_x|^2 = \frac{1 + \cos\phi_\downarrow}{2}, \quad |\langle\psi|\uparrow\rangle_y|^2 = \frac{1 - \sin\phi_\downarrow}{2}. \quad (21)$$

Since it is impossible to make both of the above expressions simultaneously equal to $1/2$ (rendering the corresponding distributions uniform), for $j = 1/2$ there does not exist a perfect quantum protractor. Note, however, that since each of the above two expressions can be separately equal to $1/2$ for two different $\phi_\downarrow$, there exist two optimal protractors of rank 2. We illustrate this in Fig. 1,

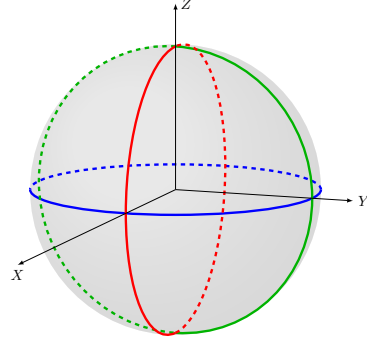


Figure 1: **No perfect quantum protractor for $j = 1/2$.** States that are optimal quantum protractors with respect to axes x , y , and z lie on great circles (green, red, and blue, respectively) around these axes on the Bloch sphere. States that lie on the intersection of two such great circles correspond to optimal quantum protractors of rank 2. Since the three great circles do not all intersect in one point, there is no perfect quantum protractor for spin-1/2 systems.

where the condition of being an optimal quantum protractor with respect to a given axis can be understood geometrically. More generally, an optimal quantum protractor with respect to two arbitrary (not necessarily perpendicular) axes $\hat{n}$ and $\hat{m}$ is given by the eigenstates of $(\hat{n} \times \hat{m}) \cdot \mathbf{J}$, where $\times$ denotes the cross product.

3.3.2 $j = 1$

Ignoring the irrelevant global phase and employing Proposition 1 makes a general state $|\psi\rangle \in \mathcal{H}_1$ take the following form:

$$|\psi\rangle = \frac{1}{\sqrt{3}} (e^{i\phi_\uparrow} |\uparrow\rangle_z + |0\rangle_z + e^{i\phi_\downarrow} |\downarrow\rangle_z). \quad (22)$$

Using the above, we get

$$|\langle\psi|\uparrow\rangle_x|^2 + |\langle\psi|\downarrow\rangle_x|^2 = \frac{2 + \cos(\phi_\uparrow - \phi_\downarrow)}{3}, \quad (23a)$$

$$|\langle\psi|\uparrow\rangle_y|^2 + |\langle\psi|\downarrow\rangle_y|^2 = \frac{2 - \cos(\phi_\uparrow - \phi_\downarrow)}{3}. \quad (23b)$$

Enforcing uniform distributions clearly means that one of the following two equations holds

$$\phi_\downarrow = \phi_\uparrow + \pi/2, \quad \phi_\downarrow = \phi_\uparrow - \pi/2, \quad (24)$$

leading to

$$|\langle\psi|0\rangle_x|^2 = |\langle\psi|0\rangle_y|^2 = \frac{1}{3}. \quad (25)$$

Moreover, in the first case, we get

$$|\langle\psi|\uparrow\rangle_x|^2 = |\langle\psi|\uparrow\rangle_y|^2 = \frac{2 - \sqrt{2}(\cos\phi_\uparrow - \sin\phi_\uparrow)}{6}, \quad (26)$$

and so uniform distributions along both x and y axes are obtained if and only if $\phi_\uparrow = \pi/4$ or $\phi_\uparrow = -3\pi/4$. In the second case, we get

$$|\langle\psi|\uparrow\rangle_x|^2 = |\langle\psi|\downarrow\rangle_y|^2 = \frac{2 - \sqrt{2}(\cos\phi_\uparrow + \sin\phi_\uparrow)}{6}, \quad (27)$$

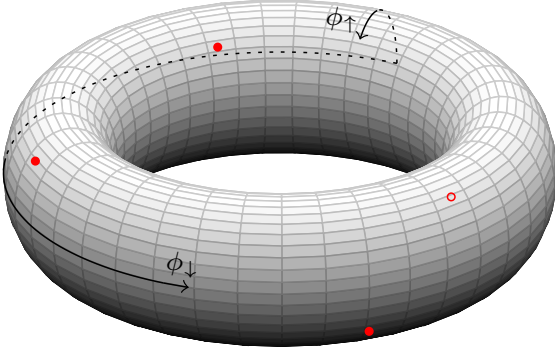


Figure 2: **Perfect quantum protractors for $j = 1$.** Phases $\phi_{\uparrow}$ and $\phi_{\downarrow}$ in Eq. (22) that yield perfect quantum protractors are indicated by red circles (the empty circle indicates that the point lies on the surface of the torus invisible to the viewer). These states are also the only optimal quantum protractors of rank 2.

and so uniform distributions along both x and y axes are obtained if and only if $\phi_{\uparrow} = -\pi/4$ or $\phi_{\uparrow} = 3\pi/4$.

Therefore, for $j = 1$ there exist four perfect quantum protractors given by Eq. (22) with the following phases (see Fig. 2 for the visualisation of these solutions):

$$\phi_{\uparrow} = \pm \frac{\pi}{4} \quad \text{and} \quad \phi_{\downarrow} = \pm \frac{3\pi}{4}, \quad (28a)$$

$$\phi_{\uparrow} = \pm \frac{3\pi}{4} \quad \text{and} \quad \phi_{\downarrow} = \pm \frac{\pi}{4}. \quad (28b)$$

Note that, interestingly, based on the above analysis the conditions for an optimal rank 2 protractor coincide with the conditions for a perfect protractor in the case of $j = 1$.

3.3.3 $j = 3/2$

Following the same reasoning as before, the candidate state $|\psi\rangle$ for a perfect quantum protractor in $\mathcal{H}_{3/2}$ has the following form

$$|\psi\rangle = \frac{1}{2} (|\uparrow\rangle_z + e^{i\phi_{\uparrow}} |\uparrow\rangle_z + e^{i\phi_{\downarrow}} |\downarrow\rangle_z + e^{i\phi_{\downarrow}} |\downarrow\rangle_z). \quad (29)$$

Using the above, we get

$$|\langle\psi|\uparrow\rangle_x|^2 + |\langle\psi|\downarrow\rangle_x|^2 = \frac{1}{2} - \frac{\cos(\phi_{\uparrow} - \phi_{\downarrow}) + \cos \phi_{\downarrow}}{4}, \quad (30a)$$

$$|\langle\psi|\uparrow\rangle_y|^2 + |\langle\psi|\downarrow\rangle_y|^2 = \frac{1}{2} + \frac{\sin(\phi_{\uparrow} - \phi_{\downarrow}) + \sin \phi_{\downarrow}}{4}. \quad (30b)$$

Thus, enforcing uniform distributions means that

$$\phi_{\uparrow} = \phi_{\downarrow} + \phi_{\downarrow} + \pi. \quad (31)$$

Using the above, we further get that $|\langle\psi|\uparrow\rangle_x| = |\langle\psi|\downarrow\rangle_y|$ if and only if

$$(\cos \phi_{\downarrow} - \sin \phi_{\downarrow})(1 + \sqrt{3} \sin \phi_{\downarrow}) = 0. \quad (32)$$

The first parenthesis vanishes when $\phi_{\downarrow} = \pi/4$ or $\phi_{\downarrow} = -3\pi/4$, while the second one vanishes if $\phi_{\downarrow} = -\arcsin(1/\sqrt{3})$ or $\phi_{\downarrow} = \arcsin(1/\sqrt{3}) - \pi$. For the first two options, enforcing $|\langle\psi|\uparrow\rangle_x| = |\langle\psi|\downarrow\rangle_x|$ results in

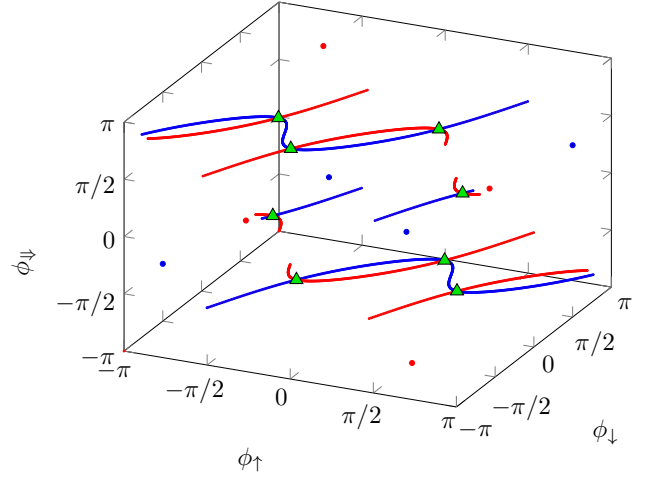


Figure 3: **Perfect quantum protractors for $j = 3/2$.** Phases $\phi_{\uparrow}$, $\phi_{\downarrow}$ and $\phi_{\downarrow}$ in Eq. (29) that yield optimal quantum protractors of rank 2 with respect to axes x and z (y and z) are indicated by blue (red) lines and points. The eight intersection points, indicated by green triangles, correspond to perfect quantum protractors.

$\sin \phi_{\downarrow} = 1/\sqrt{3}$, whereas enforcing the same for the other two options yields

$$\cos \phi_{\downarrow} + \sin \phi_{\downarrow} = 0. \quad (33)$$

Combining the above all together, we get the following eight candidate solutions:

$\phi_{\downarrow}$	$\phi_{\downarrow}$	
$\pi/4$	$\arcsin \frac{1}{\sqrt{3}}$	$\vee \quad \pi - \arcsin \frac{1}{\sqrt{3}}$
$-3\pi/4$	$\arcsin \frac{1}{\sqrt{3}}$	$\vee \quad \pi - \arcsin \frac{1}{\sqrt{3}}$
$-\pi/4$	$-\arcsin \frac{1}{\sqrt{3}}$	$\vee \quad \arcsin \frac{1}{\sqrt{3}} - \pi$
$3\pi/4$	$-\arcsin \frac{1}{\sqrt{3}}$	$\vee \quad \arcsin \frac{1}{\sqrt{3}} - \pi$

where in each case $\phi_{\uparrow}$ is given by Eq. (31). Straightforward calculation shows that all these solutions actually yield perfect quantum protractors. We visualise these solutions in Fig. 3, where we also present all solutions for optimal protractors of rank 2.

3.3.4 $j = 2$

As before, we start with the following $|\psi\rangle$ being the candidate for a perfect quantum protractor in $\mathcal{H}_2$:

$$|\psi\rangle = \frac{1}{\sqrt{5}} (e^{i\phi_{\uparrow}} |\uparrow\rangle_z + e^{i\phi_{\uparrow}} |\uparrow\rangle_z + |0\rangle_z + e^{i\phi_{\downarrow}} |\downarrow\rangle_z + e^{i\phi_{\downarrow}} |\downarrow\rangle_z). \quad (35)$$

Using the above, we get

$$|\langle\psi|\uparrow\rangle_x|^2 + |\langle\psi|\downarrow\rangle_x|^2 = \frac{2-a-b}{5}, \quad (36a)$$

$$|\langle\psi|\uparrow\rangle_y|^2 + |\langle\psi|\downarrow\rangle_y|^2 = \frac{2-a+b}{5}, \quad (36b)$$

where

$$a = \cos(\phi_{\uparrow} - \phi_{\downarrow}), \quad b = \cos(\phi_{\uparrow} - \phi_{\downarrow}). \quad (37)$$

Since we want to enforce uniform distributions and as the only way for $a + b$ and $a - b$ to vanish simultaneously is $a = b = 0$, we get four cases

$$\phi_{\downarrow} = \phi_{\uparrow} \pm \pi/2, \quad \phi_{\downarrow} = \phi_{\uparrow} \pm \pi/2, \quad (38)$$

which we will denote by $C_{\pm\pm}$ and analyse one by one.

For C_{++} we have

$$|\langle\psi|\downarrow\rangle_x|^2 - |\langle\psi|\uparrow\rangle_y|^2 = \frac{2}{5} \cos(\phi_{\uparrow} - \phi_{\downarrow}), \quad (39)$$

leading to $\phi_{\uparrow} = \phi_{\downarrow} \pm \pi/2$. In either case, additionally enforcing

$$|\langle\psi|0\rangle_x| = |\langle\psi|0\rangle_y| \quad \text{and} \quad |\langle\psi|\uparrow\rangle_x| = |\langle\psi|\downarrow\rangle_x| \quad (40)$$

leads to a set of two contradictory equations

$$\cos \phi_{\uparrow} = \sin \phi_{\uparrow} \quad \text{and} \quad \cos \phi_{\uparrow} = -\sin \phi_{\uparrow}. \quad (41)$$

For C_{+-} we have

$$|\langle\psi|\uparrow\rangle_x|^2 - |\langle\psi|\downarrow\rangle_y|^2 = \frac{2}{5} \sin(\phi_{\uparrow} - \phi_{\downarrow}), \quad (42)$$

leading to $\phi_{\uparrow} = \phi_{\downarrow}$ or $\phi_{\uparrow} = \phi_{\downarrow} + \pi$. In either case, enforcing Eq. (40) leads again to a set of contradictory equations from Eq. (41). For C_{-+} we have

$$|\langle\psi|0\rangle_x| = |\langle\psi|0\rangle_y| \quad \Longleftrightarrow \quad \sin \phi_{\uparrow} = \cos \phi_{\uparrow}, \quad (43)$$

leading to $\phi_{\uparrow} = \pi/4$ or $\phi_{\uparrow} = -3\pi/4$. In either case, enforcing

$$|\langle\psi|\uparrow\rangle_x| = |\langle\psi|\uparrow\rangle_y| \quad \text{and} \quad |\langle\psi|\uparrow\rangle_x| = |\langle\psi|\downarrow\rangle_y| \quad (44)$$

leads to a set of contradictory equations from Eq. (41) with $\uparrow$ subscript replaced by $\downarrow$. Finally, for C_{--} , we have

$$|\langle\psi|0\rangle_x| = |\langle\psi|0\rangle_y| \quad \Longleftrightarrow \quad \sin \phi_{\uparrow} = -\cos \phi_{\uparrow}, \quad (45)$$

leading to $\phi_{\uparrow} = -\pi/4$ or $\phi_{\uparrow} = 3\pi/4$. In either case, enforcing Eq. (44) leads to a set of contradictory equations from Eq. (41) with $\uparrow$ subscript replaced by $\downarrow$.

We thus conclude that it is impossible to find a state $|\psi\rangle$ with uniform distributions over the angular momentum eigenstates for three perpendicular axes, and thus for $j = 2$ there does not exist a perfect quantum protractor. Of course, due to Corollary 1, there exist optimal quantum protractors of rank 2, with the following being one example:

$$|\psi\rangle = \frac{e^{i\theta} |\uparrow\rangle_z + |\uparrow\rangle_z + |0\rangle_z - |\downarrow\rangle_z + e^{i\theta} |\downarrow\rangle_z}{\sqrt{5}} \quad (46a)$$

$$= \frac{e^{i\phi} |\uparrow\rangle_x - |\uparrow\rangle_x + e^{i(\phi+\theta)} |0\rangle_x + |\downarrow\rangle_x + e^{i\phi} |\downarrow\rangle_x}{\sqrt{5}}, \quad (46b)$$

where

$$\theta = \arctan \sqrt{\frac{5}{3}}, \quad \phi = \arctan \sqrt{\frac{5}{27}}. \quad (47)$$

and the solutions found in Sec. 3.3.3

3.3.5 $j = 5/2$

Again, we start with the following candidate for a perfect quantum protractor in $\mathcal{H}_{5/2}$:

$$|\psi\rangle = \frac{1}{\sqrt{6}} (|\uparrow\uparrow\rangle_z + e^{i\phi_{\uparrow}} |\uparrow\uparrow\rangle_z + e^{i\phi_{\uparrow}} |\uparrow\rangle_z + e^{i\phi_{\downarrow}} |\downarrow\downarrow\rangle_z + e^{i\phi_{\downarrow}} |\downarrow\downarrow\rangle_z + e^{i\phi_{\downarrow}} |\downarrow\rangle_z). \quad (48)$$

To prove our point, we will need the following five quantities

$$A := |\langle\psi|\uparrow\uparrow\rangle_x|^2 + |\langle\psi|\uparrow\rangle_x|^2 + |\langle\psi|\downarrow\downarrow\rangle_x|^2 - \frac{1}{2}, \quad (49a)$$

$$B := |\langle\psi|\uparrow\uparrow\rangle_y|^2 + |\langle\psi|\uparrow\rangle_y|^2 + |\langle\psi|\downarrow\downarrow\rangle_y|^2 - \frac{1}{2}, \quad (49b)$$

$$C := |\langle\psi|\uparrow\uparrow\rangle_x|^2 + |\langle\psi|\downarrow\downarrow\rangle_x|^2 - \frac{1}{3}, \quad (49c)$$

$$D := |\langle\psi|\uparrow\uparrow\rangle_x|^2 + |\langle\psi|\downarrow\downarrow\rangle_x|^2 - \frac{1}{3}, \quad (49d)$$

$$E := C + |\langle\psi|\uparrow\uparrow\rangle_y|^2 + |\langle\psi|\downarrow\downarrow\rangle_y|^2 - \frac{1}{3}, \quad (49e)$$

which should all be equal to zero if we enforce uniform distributions.

Direct calculation yields

$$E = \frac{\sqrt{5}}{24} (\cos \phi_{\downarrow} + \cos(\phi_{\uparrow} - \phi_{\downarrow})), \quad (50)$$

and so we get two options:

$$\phi_{\downarrow} = \pi + \phi_{\uparrow} - \phi_{\downarrow}, \quad (51a)$$

$$\phi_{\downarrow} = \pi - \phi_{\uparrow} + \phi_{\downarrow}. \quad (51b)$$

Assuming the first of the above equations holds, one finds

$$A = -\frac{1}{6} \cos(\phi_{\uparrow} - \phi_{\downarrow}), \quad B = \frac{1}{6} \sin(\phi_{\uparrow} - \phi_{\downarrow}), \quad (52)$$

and thus we get a contradiction, since the above two expressions cannot vanish simultaneously. Therefore, we are forced to assume that Eq. (51b) holds, which gives us

$$A + iB = -\frac{1}{6} (e^{i(\phi_{\downarrow} - \phi_{\uparrow})} + e^{i(\pi + 2\phi_{\uparrow} - \phi_{\downarrow})} + e^{i\phi_{\downarrow}}). \quad (53)$$

Now, we observe that the above is a sum of three unit vectors on a complex plane, and such a sum can only vanish if these vectors form an equilateral triangle. As a result, one of the following two cases has to hold:

$$\phi_{\downarrow} + \frac{2\pi}{3} = \phi_{\downarrow} - \phi_{\uparrow}, \quad \phi_{\downarrow} + \frac{4\pi}{3} = \pi + 2\phi_{\uparrow} - \phi_{\downarrow}, \quad (54a)$$

$$\phi_{\downarrow} + \frac{4\pi}{3} = \phi_{\downarrow} - \phi_{\uparrow}, \quad \phi_{\downarrow} + \frac{2\pi}{3} = \pi + 2\phi_{\uparrow} - \phi_{\downarrow}, \quad (54b)$$

which, after taking into account Eq. (51b), gives the following two $\mp$ options:

$$\phi_{\downarrow} = \phi_{\uparrow} + \phi_{\uparrow} \mp \frac{\pi}{2}, \quad (55a)$$

$$\phi_{\downarrow} = \mp \frac{5\pi}{6}, \quad (55b)$$

$$\phi_{\downarrow} = \phi_{\uparrow} \mp \frac{11\pi}{6}. \quad (55c)$$

Finally, using these two sets of $\mp$ solutions to simplify expressions for C and D , we get

$$C = \frac{(\sqrt{5} - 5\sqrt{3}) \cos \phi_{\uparrow} \pm (\sqrt{15} + 5) \sin \phi_{\uparrow}}{48\sqrt{2}}, \quad (56a)$$

$$D = \frac{(\sqrt{5} + 3\sqrt{3}) \cos \phi_{\uparrow} \pm (\sqrt{15} - 3) \sin \phi_{\uparrow}}{48\sqrt{2}}. \quad (56b)$$

It is then clear that independently of the chosen $\mp$ solution, it is impossible to simultaneously make C and D vanish. We thus conclude that it is impossible to find a state $|\psi\rangle$ with uniform distributions over the angular momentum eigenstates for three perpendicular axes, and thus for $j = 5/2$ there does not exist a perfect quantum protractor.

3.3.6 $j = 3$ and higher angular momenta

Resolving the problem of existence of perfect quantum protractors using direct analytical methods becomes less and less feasible with growing angular momentum j , as the number of phase variables increases. One can then employ numerical optimisation methods to attack the problem for higher values of j . Namely, one can first use analytical methods to decrease the number of phase variables as much as possible, and then maximize some function f of the remaining variables, with f chosen such that it attains its maximum for the perfect quantum protractor. One simple choice for that is to start with a state $|\psi\rangle$ from Proposition 1 with $\hat{n} = z$, remove the global phase (so that the number of phase ϕ_m variables is $2j$), and maximize

$$f(\phi) = H(\mathbf{p}^x) + H(\mathbf{p}^y) - 2\log(d). \quad (57)$$

In the above $H(\cdot)$ denotes the Shannon entropy, whereas $\mathbf{p}^k$ is the probability distribution over measurements of angular momentum along axes $k \in \{x, y\}$. Clearly, since the maximum value of Shannon entropy is $\log d$, and for a perfect quantum protractor one gets uniform distributions for measurements along all three perpendicular axes, the function f attains its maximum equal to 0 only for perfect quantum protractors.

Using this method, we were able to find a perfect quantum protractor for $j = 3$, i.e., we recovered the analytical expressions for the phases from the numerical solutions for which f was equal to 0. It can be verified analytically that the following state,

$$|\psi\rangle = \frac{1}{\sqrt{7}} (e^{i\phi_{\uparrow}} |\uparrow\rangle_z + e^{i\phi_{\uparrow}} |\uparrow\rangle_z + e^{i\phi_{\uparrow}} |\uparrow\rangle_z + |0\rangle + e^{i\phi_{\downarrow}} |\downarrow\rangle_z + e^{i\phi_{\downarrow}} |\downarrow\rangle_z + e^{i\phi_{\downarrow}} |\downarrow\rangle_z), \quad (58)$$

with phases

$$\begin{aligned} \phi_{\uparrow} &= -\theta - \frac{\pi}{4}, & \phi_{\uparrow} &= \pi/4, & \phi_{\uparrow} &= \theta + \frac{3\pi}{4}, \\ \phi_{\downarrow} &= \theta - \frac{3\pi}{4}, & \phi_{\downarrow} &= -\pi/4, & \phi_{\downarrow} &= -\theta + \frac{\pi}{4}, \end{aligned} \quad (59)$$

where $\theta = \frac{1}{2} \arctan \sqrt{15}$, is indeed a perfect quantum protractor (but most probably not the only one).

Moreover, for $j = 7/2$ the numerical optimization gave the value of f to be zero up to numerical precision, which strongly suggests that a perfect quantum protractor exists in $\mathcal{H}_{7/2}$ (see Appendix B for details). For higher values of j , this simple numerical optimisation procedure does not find phases for which f is equal to zero. This, however, may be inconclusive, as the number of variables may be too large to efficiently find the global maximum.

4 Properties

In this section we will argue that perfect quantum protractors are pure states that maximise the uncertainty of angular momentum measurements. Thus, they can be considered as the opposite of the much more studied states that minimise angular momentum uncertainty [12], such as spin coherent states [13] or spin intelligent states [14]. As we shall see, this property of maximising uncertainty renders angular momentum certainty relations trivial, and makes perfect quantum protractors optimal resources for particular metrological tasks.

4.1 Entropic uncertainties

Let us start with information-theoretic (entropic) quantifiers of uncertainty. A very general family of such uncertainty measures, based on a minimal set of axioms, is given by Rényi entropies [15]. These are defined by

$$H_{\alpha}(\mathbf{p}) := \frac{1}{1-\alpha} \log \left(\sum_i p_i^{\alpha} \right), \quad (60)$$

where $\alpha \geq 0^2$ and $\mathbf{p}$ denotes the probability vector of observing different events. Here, these events will correspond to measuring different values of angular momentum along different axes for a state $|\psi\rangle$, and so we introduce probability distributions $\mathbf{p}^x$, $\mathbf{p}^y$ and $\mathbf{p}^z$, whose entries are given by $|\langle\psi|j, m\rangle_x|^2$, $|\langle\psi|j, m\rangle_y|^2$ and $|\langle\psi|j, m\rangle_z|^2$, respectively.

Now, it is easy to see that, independently of α , Rényi entropies achieve their maxima, equal to $\log(2j+1)$, only for a uniform distribution over angular momentum eigenstates. Thus, the following very general entropic quantifier of total uncertainty about angular momenta measurements is trivially upper bounded,

$$H_{\alpha_x}(\mathbf{p}^x) + H_{\alpha_y}(\mathbf{p}^y) + H_{\alpha_z}(\mathbf{p}^z) \leq 3\log(2j+1), \quad (61)$$

for all $\alpha_k \geq 0$ and $k \in \{x, y, z\}$. Although physicists are mainly preoccupied with the lower bounds for such uncertainty quantifiers (with the famous Maassen-Uffink entropic uncertainty relation [16] being a prime example), the non-trivial upper bounds were also studied under the name of certainty relations [17–19]. For example, in Ref. [17] it was shown that for a spin $j = 1/2$ system one has

$$H(\mathbf{p}^x) + H(\mathbf{p}^y) + H(\mathbf{p}^z) \leq \frac{3\log 6 - \sqrt{3}\log(2+\sqrt{3})}{2}. \quad (62)$$

²Importantly, $\lim_{\alpha \rightarrow 1} H_{\alpha}$ is the previously introduced and most widely used entropic quantity – the Shannon entropy H .

However, the existence of a perfect protractor for a spin- j system means that there is no non-trivial upper bound on the angular momentum uncertainty. This is because Proposition 1 requires perfect quantum protractors to be given by a uniform superposition over all $(2j+1)$ angular momentum eigenstates for all three axes, and so such states attain the trivial upper bound of $3 \log(2j+1)$. Thus, based on the results presented in this work, we know that there are no equivalents of Eq. (62) for spin- j systems when $j \in \{1, 3/2, 3, 7/2\}$. More generally, we can summarise it as follows.

Corollary 2. If a perfect quantum protractor exists in $\mathcal{H}_j$, then there is no non-trivial entropic certainty relation for angular momentum operators, since it saturates the trivial bound,

$$H(\mathbf{p}^x) + H(\mathbf{p}^y) + H(\mathbf{p}^z) = 3 \log(2j+1). \quad (63)$$

4.2 Variance-based uncertainties

Let us now proceed to more traditional quantifiers of uncertainty based on the variance,

$$\sigma_k^2 := \langle J_k^2 \rangle - \langle J_k \rangle^2, \quad (64)$$

where we omit the dependence of σ_k^2 on $|\psi\rangle$ and use a shorthand notation with $\langle A \rangle$ denoting the expectation value of A in a state $|\psi\rangle$. We can then consider three Pythagorean means (arithmetic, geometric and harmonic) of angular momentum variances along three perpendicular axes:

$$\bar{\sigma}_A^2 := \frac{\sigma_x^2 + \sigma_y^2 + \sigma_z^2}{3}, \quad (65a)$$

$$\bar{\sigma}_G^2 := \sqrt[3]{\sigma_x^2 \sigma_y^2 \sigma_z^2}, \quad (65b)$$

$$\bar{\sigma}_H^2 := \left(\frac{(\sigma_x^2)^{-1} + (\sigma_y^2)^{-1} + (\sigma_z^2)^{-1}}{3} \right)^{-1}. \quad (65c)$$

Crucially, for a perfect quantum protractor, variances for all three axes are the same,

$$\sigma_k^2 = \frac{1}{2j+1} \left(\sum_{m=-j}^j m^2 - \left(\sum_{m=-j}^j m \right)^2 \right) = \frac{j(j+1)}{3}, \quad (66)$$

and so all Pythagorean means are equal to $j(j+1)/3$.

For the arithmetic mean, let us note that

$$\bar{\sigma}_A^2 \leq \frac{\langle J_x^2 \rangle + \langle J_y^2 \rangle + \langle J_z^2 \rangle}{3} = \frac{\langle J^2 \rangle}{3} = \frac{j(j+1)}{3}, \quad (67)$$

and this upper bound is attained by states satisfying

$$\langle J_x \rangle = \langle J_y \rangle = \langle J_z \rangle = 0. \quad (68)$$

Such states are known in the literature as spin-1-anticoherent states [20, 21], and perfect quantum protractors form particular examples of such states. Note also that perfect quantum protractors have equal angular momentum variances along three perpendicular axes,

x , y , and z , but not necessarily along any axis as spin-2-anticoherent states have (see Sec. 7 for more discussion on that subject).

For the geometric mean, we have

$$\begin{aligned} (\bar{\sigma}_G^2)^3 &\leq \langle J_x^2 \rangle \langle J_y^2 \rangle \langle J_z^2 \rangle \\ &= \langle J_x^2 \rangle \langle J_y^2 \rangle (j(j+1) - \langle J_x^2 \rangle - \langle J_y^2 \rangle). \end{aligned} \quad (69)$$

Thus, to upper bound it, we can consider the following function of two variables,

$$g(x, y) := xy(j(j+1) - x - y), \quad (70)$$

and find its maximum within the region specified by the following constraints:

$$0 \leq x, y \leq j^2, \quad (71a)$$

$$x + y \leq j(j+1). \quad (71b)$$

Direct calculation of partial derivatives yields the following maximum

$$g\left(x = \frac{j(j+1)}{3}, y = \frac{j(j+1)}{3}\right) = \left(\frac{j(j+1)}{3}\right)^3. \quad (72)$$

To be sure that this is indeed an upper bound, we also need to verify the value of g at the boundaries specified by Eqs. (71a)-(71b). Clearly, for $x = 0$, $y = 0$ and $x + y = j(j+1)$, we get $g = 0$, and so the only non-trivial boundary one has to consider is given by $x = j^2$ and $y \in [0, j]$ (the case with inverted x and y is analogous). This yields

$$g(x = j^2, y) = j^2 y(j - y), \quad (73)$$

which takes its maximum at $y = j/2$, resulting in

$$g\left(x = j^2, y = \frac{j}{2}\right) = \frac{j^4}{4}. \quad (74)$$

Since the above value is smaller than the one from Eq. (72), we conclude that

$$\bar{\sigma}_G^2 \leq \frac{j(j+1)}{3}, \quad (75)$$

and that the perfect quantum protractor attains the above upper bound.

Finally, for the harmonic mean, we have

$$\begin{aligned} 3(\bar{\sigma}_H^2)^{-1} &= (\sigma_x^2)^{-1} + (\sigma_y^2)^{-1} + (\sigma_z^2)^{-1} \\ &= \frac{1}{\sigma_x^2} + \frac{1}{\sigma_y^2} + \frac{1}{j(j+1) - \sigma_x^2 - \sigma_y^2}. \end{aligned} \quad (76)$$

To upper bound it, we can then consider the following function,

$$h(x, y) = \frac{1}{x} + \frac{1}{y} + \frac{1}{j(j+1) - x - y}, \quad (77)$$

and, as before, find its maximum value subject to constraints from Eqs. (71a)-(71b). Analogous and straightforward calculations lead to the same result, i.e., that the

maximum is achieved at $x = y = j(j+1)/3$. Therefore, the harmonic mean is upper bounded by

$$\bar{\sigma}_H^2 \leq \frac{j(j+1)}{3}, \quad (78)$$

and perfect quantum protractors saturate the above bound.

We thus conclude that perfect quantum protractors maximise all Pythagorean means of variance-based uncertainties about measurements of angular momenta along three perpendicular axes. Thus, these are the states of complete knowledge (since they are pure states) that nevertheless yield maximal uncertainty about angular momenta. As we shall see in the next section, this makes them a valuable resource for quantum metrology.

4.3 Entanglement

In Sec. 3, we have proved that a perfect quantum protractor for a d -dimensional system can only exist for systems carrying an irrep j . This means that it is impossible to obtain a perfect quantum protractor, while combining two (or more) systems carrying irreps $j_1 > 0$ and $j_2 > 0$ (with dimensions $d_k = 2j_k + 1$). The reason is that a perfect quantum protractor, by definition, would need to distinguish $d_1 d_2 = (2j_1 + 1)(2j_2 + 1)$ angles; but we know that the highest irrep appearing in the decomposition of $\mathcal{H}_{j_1} \otimes \mathcal{H}_{j_2}$ is $j_{\max} = j_1 + j_2$, and so the best we can do is to distinguish $2j_{\max} + 1 < d_1 d_2$ angles.

Nevertheless, one may focus on perfect quantum protractors living in the highest irrep subspace $\mathcal{H}_{j_{\max}}$ of the joint Hilbert space of a few subsystems, and investigate the resulting entanglement between the subsystems. To clarify this idea, let us start with the simplest example of two spin-1/2 systems, whose total Hilbert space $\mathcal{H} = \mathcal{H}_{1/2} \otimes \mathcal{H}_{1/2}$ splits into a direct sum of $\mathcal{H}_0$ and $\mathcal{H}_1$. Now, we know that in order to get the best quantum protractor $|\psi\rangle \in \mathcal{H}$, it should live in the subspace corresponding to the highest irrep, so that $|\psi\rangle \in \mathcal{H}_1$. We can then take solutions for perfect quantum protractors of spin-1 system from Sec. 3.3.2 and write them explicitly in the basis of two spin-1/2 systems:

$$|\psi\rangle = \frac{1}{\sqrt{3}} \left(e^{i\phi_{\uparrow}} |\uparrow\uparrow\rangle + \frac{1}{\sqrt{2}} (|\uparrow\downarrow\rangle + |\downarrow\uparrow\rangle) + e^{i\phi_{\downarrow}} |\downarrow\downarrow\rangle \right), \quad (79)$$

with the angles $\phi_{\uparrow}$ and $\phi_{\downarrow}$ given by Eqs. (28a)-(28b). It is a straightforward calculation to show that

$$|\psi\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} [|\phi_{\uparrow}\rangle \otimes |\uparrow\rangle + |\phi_{\downarrow}\rangle \otimes |\downarrow\rangle], \quad (80)$$

where

$$|\phi_{\uparrow}\rangle := \sqrt{\frac{2}{3}} e^{i\phi_{\uparrow}} |\uparrow\rangle + \sqrt{\frac{1}{3}} |\downarrow\rangle, \quad (81a)$$

$$|\phi_{\downarrow}\rangle := \sqrt{\frac{1}{3}} |\uparrow\rangle + \sqrt{\frac{2}{3}} e^{i\phi_{\downarrow}} |\downarrow\rangle, \quad (81b)$$

are orthogonal states. Thus, a $j = 1$ perfect quantum protractor $|\psi\rangle$ constructed from two spin-1/2 subsystems

is a maximally entangled state of these two subsystems. At the same time, it is an easy exercise to verify that for a product state of two spin-1/2 systems, it is impossible to obtain a perfect quantum protractor (the best one can do is the same as with a single spin-1/2 system).

The next perfect quantum protractor $|\psi\rangle$ that we found in this paper lives in $\mathcal{H}_{3/2}$, which is the highest irrep in the decomposition of the total Hilbert space of three spin-1/2 subsystems, or spin-1 and spin-1/2 subsystems. One can then again investigate the entanglement properties of these three or two subsystems in a state $|\psi\rangle$. Here, we will analyse in detail the first (harder) case, and just state the result for the second case, which can be obtained in a very similar manner. Using Clebsch-Gordan coefficients, we have

$$|\uparrow\rangle = |\uparrow\uparrow\uparrow\rangle, \quad |\downarrow\rangle = |\downarrow\downarrow\downarrow\rangle, \quad (82a)$$

$$|\uparrow\rangle = \frac{1}{\sqrt{3}} (|\uparrow\uparrow\downarrow\rangle + |\uparrow\downarrow\uparrow\rangle + |\downarrow\uparrow\uparrow\rangle), \quad (82b)$$

$$|\downarrow\rangle = \frac{1}{\sqrt{3}} (|\downarrow\downarrow\uparrow\rangle + |\downarrow\uparrow\downarrow\rangle + |\uparrow\downarrow\downarrow\rangle), \quad (82c)$$

where the states on the left hand sides of the above equations describe the total spin-3/2 system, and the states on the right hand sides of these equations describe three spin-1/2 subsystems. We can then combine the above with a general formula for spin-3/2 perfect quantum protractor, Eq. (29), to arrive at

$$|\psi\rangle = \frac{1}{2\sqrt{3}} \left(\sqrt{3} |\uparrow\uparrow\uparrow\rangle + e^{i\phi_{\uparrow}} (|\uparrow\uparrow\downarrow\rangle + |\uparrow\downarrow\uparrow\rangle + |\downarrow\uparrow\uparrow\rangle) + e^{i\phi_{\downarrow}} (|\downarrow\downarrow\uparrow\rangle + |\downarrow\uparrow\downarrow\rangle + |\uparrow\downarrow\downarrow\rangle) + e^{i\phi_{\downarrow}} \sqrt{3} |\downarrow\downarrow\downarrow\rangle \right), \quad (83)$$

Using eight sets of angles found in Sec. 3.3.3, we get eight spin-3/2 perfect quantum protractors expressed in the basis of three spin-1/2 subsystems. The simplest way to analyse their entanglement properties is to notice that we deal with pure states for which partial traces over any two spin-1/2 subsystems leave us in a maximally mixed state of a single spin-1/2 subsystem. It is then known [22], that such a state is a GHZ state, i.e., up to local unitaries it is given by $(|\uparrow\uparrow\uparrow\rangle + |\downarrow\downarrow\downarrow\rangle)/\sqrt{2}$ which, according to many multipartite entanglement measures, is regarded as a maximally entangled state of three subsystems. And for the case of combining spin-1 and spin-1/2 subsystems, one can show that a perfect quantum protractor is given by a maximally entangled bipartite state.

Finally, the last perfect quantum protractor for which we have analytic expressions lives in $\mathcal{H}_3$. There are many combinations of subsystems for which this subspace appears as the highest irrep, e.g., two spin-3/2 subsystems, three spin-1 subsystems, six spin-1/2 subsystems, one spin-1 and one spin-2 subsystems, etc. Here, we will limit our considerations only to the first case of $\mathcal{H}_{3/2} \otimes \mathcal{H}_{3/2}$, as our aim is not to provide a full analysis, but rather to show that, despite what we have seen so far, perfect quantum protractors not always need to correspond to maximally entangled states. As before, using Clebsch-Gordan coefficients, we can rewrite the spin-3 perfect quantum protractor from Eq. (58) (with angles given by Eq. (59))

in the basis of two spin-3/2 subsystems, and then trace out one of the subsystems. The resulting mixed state is given by

$$\rho = \begin{pmatrix} \frac{1}{4} & ae^{-3i\pi/4} & \frac{ai}{\sqrt{2}} & 0 \\ ae^{3i\pi/4} & \frac{1}{4} & 0 & \frac{ai}{\sqrt{2}} \\ -\frac{ai}{\sqrt{2}} & 0 & \frac{1}{4} & ae^{i\pi/4} \\ 0 & -\frac{ai}{\sqrt{2}} & ae^{-i\pi/4} & \frac{1}{4} \end{pmatrix}, \quad (84)$$

where

$$a = \frac{3\sqrt{6} + 2\sqrt{10}}{70}. \quad (85)$$

The above is clearly not a maximally mixed state, and so, while the two spin-3/2 subsystems are entangled, they are not maximally entangled.

5 Metrological applications

A paradigmatic example of a metrological task in the quantum realm is given by a phase estimation problem [23]. In this setting, a system initially prepared in a generally mixed state ρ undergoes a unitary evolution that transforms it as

$$\rho \rightarrow \rho_\theta := e^{-iH\theta} \rho e^{iH\theta}, \quad (86)$$

where H is a known self-adjoint operator and θ is a real number corresponding to an unknown phase shift. The goal is to find the estimate $\hat{\theta}$ of θ by preparing the system in the optimal probe state ρ , allowing it to undergo the unknown phase shift θ and performing a generalised quantum measurement specified by POVM elements $\{\Pi_{\hat{\theta}}\}$. Finally, upon observing outcome $\hat{\theta}$, which happens with probability

$$p(\hat{\theta}|\theta) = \text{Tr}(\rho_\theta \Pi_{\hat{\theta}}), \quad (87)$$

one guesses that $\theta = \hat{\theta}$. Of course, the choice of the optimal strategy (i.e., ρ and $\{\Pi_{\hat{\theta}}\}$) depends on the measure of success one chooses, as well as on the prior knowledge about the distribution of θ [24, 25].

Here, we will consider the case when H in Eq. (86) is given by an angular momentum operator J_k . Thus, the transformation corresponds either to a physical rotation of the system around the axis k by an angle θ , or to a time evolution generated by a Hamiltonian given by the angular momentum along the axis k (e.g., precession in a magnetic field). Estimating the phase can then provide information about the angle of rotation or the strength of the magnetic field, so the probe state ρ can be seen as a protractor or a magnetometer.

If we only cared about estimating θ for a single J_k , we could simply use the known results on quantum phase estimation. Instead here, we will focus on a very particular case of a multiparameter estimation problem, involving three different generators: J_x , J_y and J_z (for a related problem of finding optimal states for aligning Cartesian reference frames see Ref. [26]). Namely, imagine that one knows that an unknown phase shift of θ_x , θ_y or θ_z will be

generated by either J_x , J_y or J_z . However, one does not *a priori* know which generator will be used (a situation referred to as a random sensing scenario in Ref. [27]), so one needs to prepare a probe state ρ that will be able to detect all these different phase shifts. Then, before the measurement is performed, one obtains the information about the generator (i.e., the axis of rotation), and can choose an appropriate measurement. As we will now argue, the optimal pure probe state in such a scenario is given by a perfect quantum protractor.

5.1 Standard setup

Given n copies of a pure state $|\psi\rangle$, the quantum Cramér-Rao bound sets the following (attainable) lower bound on the inaccuracy of estimating the phase θ_k generated by J_k [28]:

$$\Delta\theta_k^2 \geq \frac{1}{4n\sigma_k^2}, \quad (88)$$

where $\Delta\theta_k^2$ is the mean square error of estimating θ_k and σ_k^2 is the variance of J_k in a state $|\psi\rangle$ as defined in Eq. (64). Now, if states $|\psi\rangle$ are used to estimate the phases θ_x , θ_y and θ_z generated by J_x , J_y and J_z with equal probability 1/3, then the expected inaccuracy is lower bounded by

$$\frac{\Delta\theta_x^2 + \Delta\theta_y^2 + \Delta\theta_z^2}{3} \geq \frac{1}{4n\bar{\sigma}_H^2} \geq \frac{3}{4nj(j+1)}, \quad (89)$$

where the second inequality comes from Eq. (78). As this inequality is saturated by $|\psi\rangle$ being a perfect quantum protractor, we conclude that such states minimise the inaccuracy of estimation and are thus optimal for the considered metrological task.

5.2 Discrete setup

The existence of perfect quantum protractors also affects a discrete version of the estimation problem studied recently in Ref. [29]. Discrete here means that the phase is not arbitrary, but takes one of the n values $\theta_l = 2\pi l/n$ for $l \in \{0, 1, \dots, n-1\}$ with equal probability 1/n. Fixing for a while a single generator given by J_k , the problem of phase estimation can then actually be seen as a problem of state discrimination between n states,

$$\rho_l = e^{-iJ_k\theta_l} \rho e^{iJ_k\theta_l}, \quad (90)$$

where ρ is the initial probe state of size d . The probability of success is then given by

$$p_{\text{succ}}(\rho, \{\Pi_l\}) = \frac{1}{n} \sum_{l=1}^n \text{Tr}(\rho_l \Pi_l), \quad (91)$$

where $\{\Pi_l\}$ denote POVM elements. Following Ref. [29], one can show that optimising over all states and over all POVMs, this probability is given by

$$p_{\text{succ}}^{\text{opt}} := \max_{\rho, \{\Pi_l\}} p_{\text{succ}}(\rho, \{\Pi_l\}) = \begin{cases} d/n & \text{for } n \geq d, \\ 1 & \text{for } n < d. \end{cases} \quad (92)$$

Crucially, when $n \geq d$, this optimal value can be achieved by the optimal quantum protractor with respect to the axis k . One simply prepares a pure probe state $\rho = |\psi\rangle\langle\psi|$ with $|\psi\rangle$ given by Eq. (14) (with the axis $\hat{n}$ specified by k) and POVM elements given by

$$\Pi_l = \frac{d}{n} e^{-iJ_k\theta_l} |\psi\rangle\langle\psi| e^{iJ_k\theta_l}. \quad (93)$$

The above operators are obviously positive and it is a straightforward calculation to show that

$$\sum_l \Pi_l = \mathbb{1}. \quad (94)$$

We then get

$$p_{\text{succ}} = \frac{1}{n} \sum_{l=1}^n \text{Tr}(\rho_l \Pi_l) = \frac{d}{n}, \quad (95)$$

where each term in the sum is equal to d/n , so the success probability is independent of the actual phase. Since perfect quantum protractors have the properties used above simultaneously for three different generators given by J_x , J_y and J_z , we can thus conclude that such states can be employed as optimal probe states simultaneously maximising the probability of success for three estimation problems of discrete phases generated by J_x , J_y and J_z .

6 Experiment

6.1 Experimental setup and sequence

To experimentally implement perfect quantum protractors, an atomic vapour of rubidium-87 is used. The lowest energy states of the atoms are two hyperfine levels with the total angular momentum $j = 1$ and $j = 2$.³ At 50°C, the vapour concentration is 10^{11} atoms/cm³, which indicates that individual interactions between atoms, being their point-like collisions, are rare (with characteristic times on the order of hundreds of milliseconds). In turn, the quantum state of the system can be described using a single-atom/collective density matrix [30].

The rubidium atoms are contained in a 3-cm in diameter paraffin-coated vapour cell (the total number of atoms in the cell is 1.4×10^{12} atoms), which is placed inside a magnetic field consisting of three layers of mu-metal and a single, innermost ferrite layer. The shield of a shielding factor 10^6 provides stable magnetic conditions, reducing external, uncontrollable magnetic fields. Apart from the cell, the shield additionally houses a set of magnetic-field coils, which enables compensation of residual magnetic fields, as well as generation of homogeneous magnetic-field pulses in the x , y , and z directions. The light used to illuminate rubidium atoms is provided by three diode lasers. The pump laser is used to create the initial state in the atoms and the probe laser is used to

³Conventionally, these states are indicated by F . However, to keep consistency with the previous discussion, here they are denoted by j .

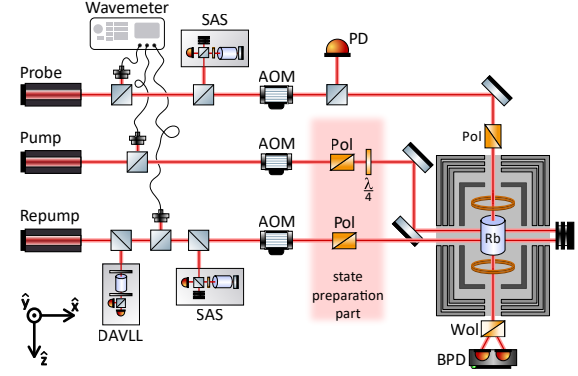


Figure 4: **Experimental setup.** SAS – saturation absorption spectroscopy, DAVLL – dichroic atomic vapour laser lock, AOM – acousto-optic modulator, PD – photodiode, Pol – Glan-Thompson polariser, $\lambda/4$ – quarter-wave plate, ^{87}Rb – paraffin-coated vapour cell filled with ^{87}Rb , Wol – Wollaston prism, BPD – balanced photodetector.

measure/reconstruct the state. Additionally, the repump laser enables depletion of the $j = 2$ level so that the whole system effectively reduces to a spin-1 system. In general, the experimental sequence is divided into three stages: (1) generation of a desired quantum state, which involves optical pumping with the pump tuned to the $j = 1$ state along with the depletion of the $j = 2$ state with the repump, (2) manipulation of the state with magnetic fields, and (3) measurements of the state. The simplified scheme of the experimental setup is shown in Fig. 4 and described in more detail in Ref. [31].

The experimental goal of this work is to generate the ideal quantum protractor state $|\psi\rangle$ and demonstrate that it is the optimal state for measurements of rotations around the x , y , and z axes, as well as for the determination of magnetic-field strength along these axes. Without loss of generality, we use for that the state derived in Sec. 3.3.2,

$$|\psi\rangle = \frac{1}{\sqrt{3}} \left(e^{i\frac{3\pi}{4}} |\uparrow\rangle_z + |0\rangle_z + e^{i\frac{\pi}{4}} |\downarrow\rangle_z \right). \quad (96)$$

Such a state can be generated from the $|0\rangle_z$ state through the application of a sequence of geometric rotations:

$$|\psi\rangle = R_z\left(-\frac{\pi}{4}\right) R_x\left(-\cos^{-1}\left(\frac{1}{\sqrt{3}}\right)\right) |0\rangle_z. \quad (97)$$

Experimentally, the state $|\psi\rangle$ can be generated with z -polarized light propagating in the x direction that is tuned to the $j = 1 \rightarrow j' = 1$ transition, which generates the $|0\rangle_z$ state, and non-oscillating magnetic-field pulses applied along the x and z -axis.

As shown in Refs. [31, 32], the time-dependent polarization rotation of the probe light is given by⁴

$$\delta\alpha(t, \Delta) = \eta(\Delta) e^{-\gamma_1 t} [\langle M_1^z \rangle \sin(2\Omega_L t) + \langle M_2^z \rangle \cos(2\Omega_L t)] - \zeta(\Delta) e^{-\gamma_2 t} \langle M_3^z \rangle, \quad (98)$$

⁴Here, we replaced originally used observables $\langle\alpha_R\rangle$, $\langle\alpha_I\rangle$, and $\langle\beta\rangle$ with the ones used in this work: $\langle M_1^z \rangle$, $\langle M_2^z \rangle$, and $\langle M_3^z \rangle$.

where η and ζ are scaling constants that depend on the probe light detuning Δ , Ω_L is the Larmor-precession frequency of the atoms, γ_1 and γ_2 are the relaxation rates of coherences and populations, respectively (for more details see Ref. [31]). For the spin-1 system probed with the light tuned to the $j = 1 \rightarrow j' = 1$ transition, the observables governing the signal amplitude are given by:

$$M_1^z = J_x^2 - J_y^2, \quad (99a)$$

$$M_2^z = J_x J_y + J_y J_x, \quad (99b)$$

$$M_3^z = J_z. \quad (99c)$$

Hence, by measuring and analysing the time-dependent rotation $\delta\alpha$, we can extract the expectation values $\langle M_i^z \rangle$. As explained in the following section, these values contain information about the rotation θ_z applied around the z axis. To measure rotations around the other two axes by the angles θ_x or θ_y , we utilize magnetic-field pulses that effectively transform the z axis into the x or y axis before the actual polarization-rotation measurements [31].

6.2 Optimality

Using the properties of the angular momentum operators, one can show that

$$e^{iJ_z\theta_z} J_x e^{-iJ_z\theta_z} = \cos\theta_z J_x - \sin\theta_z J_y, \quad (100a)$$

$$e^{iJ_z\theta_z} J_y e^{-iJ_z\theta_z} = \sin\theta_z J_x + \cos\theta_z J_y, \quad (100b)$$

When one combines the equations with Eqs. (99a)-(99c), one obtains the following relationship that shows how $M_i^z(|\psi\rangle) := \langle M_i^z \rangle$ depend on the rotation angle around the z -axis:

$$M_1^z(e^{-iJ_z\theta_z} |\psi\rangle) = r_z \cos(2\theta_z + \alpha_z), \quad (101a)$$

$$M_2^z(e^{-iJ_z\theta_z} |\psi\rangle) = r_z \sin(2\theta_z + \alpha_z), \quad (101b)$$

$$M_3^z(e^{-iJ_z\theta_z} |\psi\rangle) = M_3^z(|\psi\rangle), \quad (101c)$$

with

$$\begin{aligned} r_z &= \sqrt{(M_1^z(|\psi\rangle))^2 + (M_2^z(|\psi\rangle))^2} \\ &= |\langle (J_x + iJ_y)^2 \rangle| = |\langle (J_+^z)^2 \rangle| \end{aligned} \quad (102)$$

and $\alpha_z = \arccos(M_1^z/r_z)$. For rotations around the two other axes, all the results are analogous after a cyclic exchange of labels $x \rightarrow y \rightarrow z$.

We see that with varying the rotation angle θ_k around the k axis, the first two components of $\mathbf{M}^k(|\psi\rangle)$ form a circle of a radius r_k , while the third component is invariant. It is then clear that the larger the r_k is, the higher the resolution of the measurement of the rotation angle. Writing the general pure spin-1 state as

$$|\xi\rangle = \sqrt{p_\uparrow^k} e^{i\phi_\uparrow^k} |\uparrow\rangle_k + \sqrt{1-p_\uparrow^k-p_\downarrow^k} |0\rangle_k + \sqrt{p_\downarrow^k} e^{i\phi_\downarrow^k} |\downarrow\rangle_k, \quad (103)$$

from Eq. (102) we get

$$r_k = 2\sqrt{p_\downarrow^k p_\uparrow^k} \leq p_\downarrow^k + p_\uparrow^k \leq \langle J_k^2 \rangle, \quad (104)$$

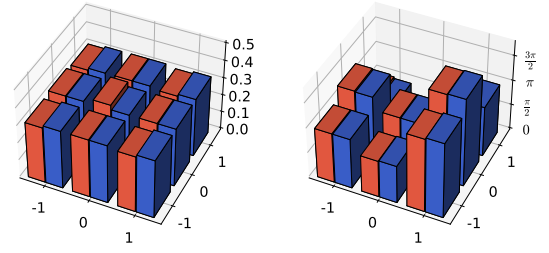


Figure 5: **Quantum tomography of a perfect quantum protractor.** Comparison between the reconstructed density matrix of our system (red) and the perfect protractor state (blue). The left graph shows the amplitudes of the respective matrix elements, while the right presents phases. The reconstructed data shows the fidelity of 0.995.

where we also used the inequality of arithmetic and geometric means, and the fact that we are dealing with a spin-1 system. Thus, all Pythagorean means of r_x , r_y and r_z are upper bounded by the corresponding Pythagorean means of $\langle J_x^2 \rangle$, $\langle J_y^2 \rangle$ and $\langle J_z^2 \rangle$. For the latter, however, we found upper bounds of $2/3$ in Sec. 4.2. Since a direct calculation shows that for a perfect quantum protractor one has $r_k = 2/3$ for all $k \in \{x, y, z\}$, we conclude that these states maximise all Pythagorean means of r_k and, therefore, are optimal in our experiment for distinguishing between different angle rotations along all three perpendicular axes.

6.3 Results

As the first step of the experimental investigations, we verified our ability to generate the perfect quantum protractor state [Eq. (96)]. This is done by performing the full-state tomography [31, 32], the results of which are shown in Fig. 5. The obtained results confirm that, using the sequence described by Eq. (97), we generated the perfect protractor state with a fidelity of 0.995.

Our main objective is to demonstrate that perfect quantum protractors form the optimal metrological resources for the considered experimental task of estimating rotation angles and to show that it saturate the upper bound for r_k . To achieve this, we conducted a series of measurements, in which we first applied magnetic pulses to rotate the system by angles from 0 to π around the z axis, and then measured the values of M_1^z and M_2^z . In order to also assess the behaviour of $\mathbf{M}^x$ and $\mathbf{M}^y$ under rotations around x and y , respectively, we introduced an additional $\pi/2$ rotation just before the measurement, effectively translating our measurement axis (previously aligned with z) into x or y . Furthermore, we have performed this experiment not only for the initial quantum protractor state, but also for three other arbitrarily selected states of a spin-1 system. This way we can demonstrate different performance of these states for the considered metrological task (see Fig. 6).

As can be seen in Fig. 6, all experimental results match the values expected from the theoretical considerations. As predicted, for the protractor state, we observe the

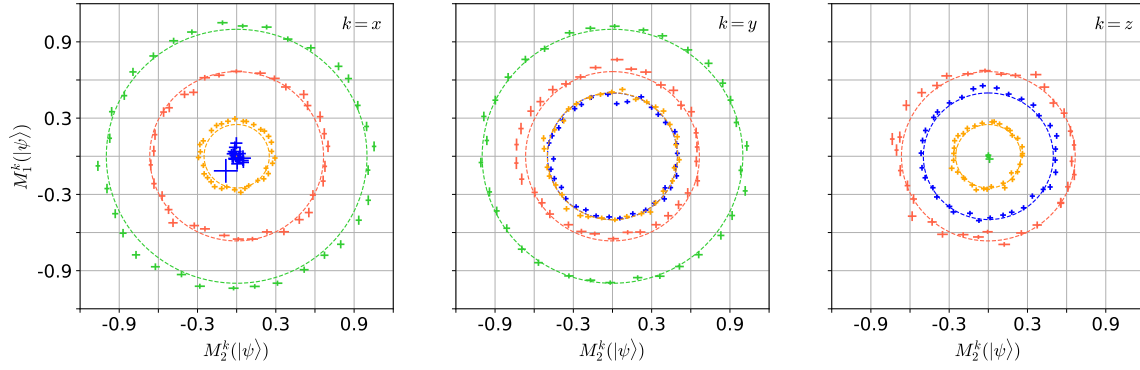


Figure 6: **Experimental estimation of rotation angles.** Results of measuring $M_1^k(|\psi\rangle)$ and $M_2^k(|\psi\rangle)$ for $k \in \{x, y, z\}$ (left to right) for different initial states (different colours) under rotations by $\pi l/34$ for $l \in \{0, \dots, 33\}$. Points indicate the results of a single-shot experiment for a given rotation angle (error bars show propagated uncertainty of fitting to Eq. (98)), while the dashed lines show the theoretical dependence that can be calculated using Eqs. (101a)-(101b). Colours correspond to: the perfect quantum protractor $|\psi\rangle$ – red, $|-1\rangle_x$ – blue, $|0\rangle_z$ – green, and $R_y(\pi/4)|-1\rangle_x$ – orange.

measurement results lying on circles of equal radius of approximately 2/3 for rotations around all three axes. We also note that, as in the case of $|0\rangle_z$ state, it is possible to achieve a higher radius (so also a higher resolution) for rotations around one or two axes, but for the price of a significant reduction for the other axis, so that according to performance measures based on Pythagorean means, perfect quantum protractors are the best states for the task.

7 Conclusions and outlook

In this paper we have analysed a special family of quantum states, the so-called perfect quantum protractors, that possess particular properties with respect to the rotation group. Namely, such states are simultaneously given by a uniform superposition over the eigenstates of angular momentum operators J_x , J_y and J_z . As such, they maximise average uncertainty of these three observables, and they also generate three full bases under the rotations around three perpendicular axes. We also showed that these properties make perfect quantum protractors an optimal resource for a metrological task of estimating an angle of rotation around one of the *a priori* unknown perpendicular axes, and demonstrated it experimentally with spin-1 systems of the atomic vapours of rubidium-87.

The optimality of perfect quantum protractors in the introduced metrological task begs for a comparison with spin anticonherent states, which have been investigated in recent years as optimal quantum states for angle measurements [21, 33–36]. As already mentioned, all perfect quantum protractors are at the same time spin 1-anticonherent states, i.e., the expectation value of angular momentum operator along any axis vanishes for them. They fall short of being spin 2-anticonherent states: while the expectation value of squared angular momentum operators along x , y , and z axes are maximal (and thus equal to each other), for other rotation axes they dif-

fer. Thus, while both types of states can be used for multiparameter estimation tasks, in the case of quantum protractors we cannot choose completely arbitrary rotation axes, but rather we are restricted to a distinguished set of three perpendicular ones.

However, the biggest difference between the two types of states comes from the metrological success metric used to define them. Anticonherent states emerged from the studies of quantum states that minimize the probability that after rotation they project onto themselves, averaged uniformly over all rotation axes. One thus often focuses on sensitivity to small rotation angles and tries to maximise the change of state under rotation around any axis. Also, the nature of this metric means that in order to measure a rotation angle using spin anticonherent states, we need to perform many measurements and reconstruct the rotation angle from measurement statistics (simply because we need to estimate the overlap). On the other hand, perfect quantum protractors are defined as states that, under rotations around three perpendicular axes, transform through the largest possible number of mutually orthogonal states. As a result, they can distinguish between all rotation angles, not being limited to small rotations. Moreover, they can be used for single-shot measurements of rotation angles $\{2\pi k/(2j+1)\}_{k=0}^{2j}$, i.e., one can unambiguously distinguish between a set of such rotation angles using a single measurement, without the need of collecting measurement statistics. In Appendix C, we explicitly illustrate these differences using anticonherent and protractor states for a spin-3 system.

Since we were only able to analyse the problem of perfect quantum protractors for systems with total angular momentum $j < 4$ (proving that perfect quantum protractors exist when $j \in \{1, 3/2, 3\}$ and numerically verifying it for $j = 7/2$), the main open problem is the existence of perfect quantum protractors for all values of $j \geq 4$. It is clear that direct algebraic methods that we have used here become less and less handy for higher angular momenta, and so it seems that more general methods employing the representation theory of Lie groups could be

helpful. Alternatively, smarter numerical methods could also be developed.

More abstractly, one can also generalise the studied problem to arbitrary Lie groups (e.g. $SU(3)$) with generators $\{g_1, \dots, g_n\}$. The question then would be to find a state $|\psi\rangle$ that transforms under each $e^{ig_k t}$ in such a way that it generates an orthogonal basis. This problem is, in a way, similar to the problem of generating symmetric informationally complete quantum measurements (SIC-POVMs) [37, 38] via the group action on the fiducial state. Here, we are also looking for a fiducial state $|\psi\rangle$ that under the action of n subgroups (instead of the whole group) generates orthogonal bases (instead of SIC-POVMs). Alternatively, one could also investigate whether quantum protractors can, under rotations, generate bases of extreme spin coherence [39].

Another mathematical perspective on the problem investigated here can be obtained by focusing on the uniform superposition property of perfect quantum protractors. Let us recall that in Refs. [10, 11] it was shown that for any two observables, A and B , there always exist pure quantum states that are simultaneously a uniform superposition over the eigenstates of both A and B . Here, we showed that for three particularly important observables, J_x , J_y and J_z , there can also exist states that have this uniform property in three different bases. More generally, one can then investigate under what conditions on observables $A_1, \dots, A_n$, it is possible to find states that are a simultaneous uniform superposition with respect to all n eigenbases. For example, in prime power dimensions d , where it is known that $d+1$ mutually unbiased bases exist [40], one can always find states that are a uniform superposition in d different bases. Of course, these kind of results would have direct consequences for certainty relations, as discussed in this paper.

Finally, on a more applicational side, it would be interesting to investigate whether perfect quantum protractors may be useful beyond simple metrological tasks described here. For example, one could try to define an entangled generalisation of quantum protractors, in order to obtain the analogue of the phase estimation improvement from the standard quantum limit to the Heisenberg limit [41]. In fact, the results presented in Sec. 4.3 of this paper already prove that entanglement is necessary to create the known perfect quantum protractors for $j \in \{1, 3/2, 3\}$ while combining multiple subsystems. The question, however, remains whether there exists some general bound quantitatively linking the amount of entanglement between subsystems and their ability to act as a perfect quantum protractor.

Acknowledgements

KK would like to thank Cristina Cîrstoiu, Rafał Demkowicz-Dobrzański, Iman Marvian and Karol Życzkowski for useful comments and discussions. KK acknowledges financial support by the Foundation for Polish Science through TEAM-NET project (contract no. POIR.04.04.00-00-17C1/18-00). This work

was also supported by the National Science Centre, Poland within the Sonata Bis programme (Grant No. 2019/34/E/ST2/00440). MK would like to acknowledge the support from the Excellence Initiative – Research University of the Jagiellonian University in Kraków.

A Angular momentum operators and eigenstates

With the matrix representation of the spin- j angular-momentum operators, given in the eigenbasis of J_z , i.e., when

$$(J_z)_{kl} = (j+1-k)\delta_{kl}, \quad (105)$$

for $k, l \in \{1, \dots, 2j+1\}$ and δ_{kl} denoting the Kronecker delta, we have

$$(J_x)_{kl} = \frac{1}{2}(\delta_{l,l+1} + \delta_{k+1,l})\sqrt{(j+1)(k+l-1)-kl}, \quad (106a)$$

$$(J_y)_{kl} = \frac{i}{2}(\delta_{k,l+1} - \delta_{k+1,l})\sqrt{(j+1)(k+l-1)-kl}. \quad (106b)$$

Below, we provide several explicit matrix representations for J_x and J_y , together with their eigenstates represented in the J_z eigenbasis. To shorten the notation, we will omit the z subscript for the eigenstates of J_z (e.g., $|\uparrow\rangle$ should be read as $|\uparrow\rangle_z$).

$$j = 1/2$$

$$J_x = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix}, \quad J_y = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 0 & -i \\ i & 0 \end{pmatrix}, \quad (107)$$

$$|\uparrow\rangle_x = \frac{|\uparrow\rangle + |\downarrow\rangle}{\sqrt{2}}, \quad |\downarrow\rangle_x = \frac{|\uparrow\rangle - |\downarrow\rangle}{\sqrt{2}}, \quad (108a)$$

$$|\uparrow\rangle_y = \frac{|\uparrow\rangle + i|\downarrow\rangle}{\sqrt{2}}, \quad |\downarrow\rangle_y = \frac{|\uparrow\rangle - i|\downarrow\rangle}{\sqrt{2}}. \quad (108b)$$

$$j = 1$$

$$J_x = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 0 & 1 & 0 \\ 1 & 0 & 1 \\ 0 & 1 & 0 \end{pmatrix}, \quad J_y = \frac{i}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 0 & -1 & 0 \\ 1 & 0 & -1 \\ 0 & 1 & 0 \end{pmatrix}, \quad (109)$$

$$|\uparrow\rangle_x = \frac{1}{2}(|\uparrow\rangle + \sqrt{2}|0\rangle + |\downarrow\rangle), \quad (110a)$$

$$|0\rangle_x = \frac{1}{\sqrt{2}}(-|\uparrow\rangle + |\downarrow\rangle), \quad (110b)$$

$$|\downarrow\rangle_x = \frac{1}{2}(|\uparrow\rangle - \sqrt{2}|0\rangle + |\downarrow\rangle), \quad (110c)$$

$$|\uparrow\rangle_y = \frac{1}{2}(|\uparrow\rangle + i\sqrt{2}|0\rangle - |\downarrow\rangle), \quad (111a)$$

$$|0\rangle_y = \frac{1}{\sqrt{2}}(|\uparrow\rangle + |\downarrow\rangle), \quad (111b)$$

$$|\downarrow\rangle_y = \frac{1}{2}(-|\uparrow\rangle + i\sqrt{2}|0\rangle + |\downarrow\rangle). \quad (111c)$$

$$j = 3/2$$

$$J_x = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 0 & \sqrt{3} & 0 & 0 \\ \sqrt{3} & 0 & 2 & 0 \\ 0 & 2 & 0 & \sqrt{3} \\ 0 & 0 & \sqrt{3} & 0 \end{pmatrix}, \quad (112)$$

$$J_y = \frac{i}{2} \begin{pmatrix} 0 & -\sqrt{3} & 0 & 0 \\ \sqrt{3} & 0 & -2 & 0 \\ 0 & 2 & 0 & -\sqrt{3} \\ 0 & 0 & \sqrt{3} & 0 \end{pmatrix}, \quad (113)$$

$$|\uparrow\rangle_x = \frac{1}{2\sqrt{2}} \left(|\uparrow\rangle + \sqrt{3} |\uparrow\rangle + \sqrt{3} |\downarrow\rangle + |\Psi\rangle \right), \quad (114a)$$

$$|\uparrow\rangle_x = \frac{1}{2\sqrt{2}} \left(-\sqrt{3} |\uparrow\rangle - |\uparrow\rangle + |\downarrow\rangle + \sqrt{3} |\Psi\rangle \right), \quad (114b)$$

$$|\downarrow\rangle_x = \frac{1}{2\sqrt{2}} \left(\sqrt{3} |\uparrow\rangle - |\uparrow\rangle - |\downarrow\rangle + \sqrt{3} |\Psi\rangle \right), \quad (114c)$$

$$|\Psi\rangle_x = \frac{1}{2\sqrt{2}} \left(-|\uparrow\rangle + \sqrt{3} |\uparrow\rangle - \sqrt{3} |\downarrow\rangle + |\Psi\rangle \right), \quad (114d)$$

$$|\uparrow\rangle_y = \frac{1}{2\sqrt{2}} \left(|\uparrow\rangle + i\sqrt{3} |\uparrow\rangle - \sqrt{3} |\downarrow\rangle - i |\Psi\rangle \right), \quad (115a)$$

$$|\uparrow\rangle_y = \frac{1}{2\sqrt{2}} \left(i\sqrt{3} |\uparrow\rangle - |\uparrow\rangle + i |\downarrow\rangle - \sqrt{3} |\Psi\rangle \right), \quad (115b)$$

$$|\downarrow\rangle_y = \frac{1}{2\sqrt{2}} \left(-\sqrt{3} |\uparrow\rangle + i |\uparrow\rangle - |\downarrow\rangle + i\sqrt{3} |\Psi\rangle \right), \quad (115c)$$

$$|\Psi\rangle_y = \frac{1}{2\sqrt{2}} \left(-i |\uparrow\rangle - \sqrt{3} |\uparrow\rangle + i\sqrt{3} |\downarrow\rangle + |\Psi\rangle \right). \quad (115d)$$

$$j = 2$$

$$J_x = \begin{pmatrix} 0 & 1 & 0 & 0 & 0 \\ 1 & 0 & \sqrt{\frac{3}{2}} & 0 & 0 \\ 0 & \sqrt{\frac{3}{2}} & 0 & \sqrt{\frac{3}{2}} & 0 \\ 0 & 0 & \sqrt{\frac{3}{2}} & 0 & 1 \\ 0 & 0 & 0 & 1 & 0 \end{pmatrix}, \quad (116)$$

$$J_y = i \begin{pmatrix} 0 & -1 & 0 & 0 & 0 \\ 1 & 0 & -\sqrt{\frac{3}{2}} & 0 & 0 \\ 0 & \sqrt{\frac{3}{2}} & 0 & -\sqrt{\frac{3}{2}} & 0 \\ 0 & 0 & \sqrt{\frac{3}{2}} & 0 & -1 \\ 0 & 0 & 0 & 1 & 0 \end{pmatrix}, \quad (117)$$

$$|\uparrow\rangle_x = \frac{1}{4} \left(|\uparrow\rangle + 2 |\uparrow\rangle + \sqrt{6} |0\rangle + 2 |\downarrow\rangle + |\Psi\rangle \right), \quad (118a)$$

$$|\uparrow\rangle_x = \frac{1}{2} \left(-|\uparrow\rangle + |\uparrow\rangle - |\downarrow\rangle + |\Psi\rangle \right), \quad (118b)$$

$$|0\rangle_x = \frac{1}{2} \left(\sqrt{\frac{3}{2}} |\uparrow\rangle - |0\rangle + \sqrt{\frac{3}{2}} |\downarrow\rangle \right), \quad (118c)$$

$$|\downarrow\rangle_x = \frac{1}{2} \left(-|\uparrow\rangle - |\uparrow\rangle + |\downarrow\rangle + |\Psi\rangle \right), \quad (118d)$$

$$|\Psi\rangle_x = \frac{1}{4} \left(|\uparrow\rangle - 2 |\uparrow\rangle + \sqrt{6} |0\rangle - 2 |\downarrow\rangle + |\Psi\rangle \right), \quad (118e)$$

$$|\uparrow\rangle_y = \frac{1}{4} \left(|\uparrow\rangle + 2i |\uparrow\rangle - \sqrt{6} |0\rangle - 2i |\downarrow\rangle + |\Psi\rangle \right), \quad (119a)$$

$$|\uparrow\rangle_y = \frac{1}{2} \left(-|\uparrow\rangle - i |\uparrow\rangle - i |\downarrow\rangle + |\Psi\rangle \right), \quad (119b)$$

$$|0\rangle_y = \frac{1}{2} \left(\sqrt{\frac{3}{2}} |\uparrow\rangle + |0\rangle + \sqrt{\frac{3}{2}} |\downarrow\rangle \right), \quad (119c)$$

$$|\downarrow\rangle_y = \frac{1}{2} \left(-|\uparrow\rangle + i |\uparrow\rangle + i |\downarrow\rangle + |\Psi\rangle \right), \quad (119d)$$

$$|\Psi\rangle_y = \frac{1}{4} \left(|\uparrow\rangle - 2i |\uparrow\rangle - \sqrt{6} |0\rangle + 2i |\downarrow\rangle + |\Psi\rangle \right). \quad (119e)$$

$$j = 5/2$$

$$J_x = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 0 & \sqrt{5} & 0 & 0 & 0 & 0 \\ \sqrt{5} & 0 & 2\sqrt{2} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 2\sqrt{2} & 0 & 3 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 3 & 0 & 2\sqrt{2} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 2\sqrt{2} & 0 & \sqrt{5} \\ 0 & 0 & 0 & 0 & \sqrt{5} & 0 \end{pmatrix}, \quad (120)$$

$$J_y = \frac{i}{2} \begin{pmatrix} 0 & -\sqrt{5} & 0 & 0 & 0 & 0 \\ \sqrt{5} & 0 & -2\sqrt{2} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 2\sqrt{2} & 0 & -3 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 3 & 0 & -2\sqrt{2} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 2\sqrt{2} & 0 & -\sqrt{5} \\ 0 & 0 & 0 & 0 & \sqrt{5} & 0 \end{pmatrix}, \quad (121)$$

$$|\uparrow\rangle_x = \frac{1}{4\sqrt{2}} \left(|\uparrow\rangle + \sqrt{5} |\uparrow\rangle + \sqrt{10} |\uparrow\rangle + \sqrt{10} |\downarrow\rangle + \sqrt{5} |\Psi\rangle + |\Psi\rangle \right), \quad (122a)$$

$$|\uparrow\rangle_x = \frac{1}{4\sqrt{2}} \left(-\sqrt{5} |\uparrow\rangle - 3 |\uparrow\rangle - \sqrt{2} |\uparrow\rangle + \sqrt{2} |\downarrow\rangle + 3 |\Psi\rangle + \sqrt{5} |\Psi\rangle \right), \quad (122b)$$

$$|\uparrow\rangle_x = \frac{1}{4} \left(\sqrt{5} |\uparrow\rangle + |\uparrow\rangle - \sqrt{2} |\uparrow\rangle - \sqrt{2} |\downarrow\rangle + |\Psi\rangle + \sqrt{5} |\Psi\rangle \right), \quad (122c)$$

$$|\downarrow\rangle_x = \frac{1}{4} \left(-\sqrt{5} |\uparrow\rangle + |\uparrow\rangle + \sqrt{2} |\uparrow\rangle - \sqrt{2} |\downarrow\rangle - |\downarrow\rangle + \sqrt{5} |\downarrow\rangle \right), \quad (122d)$$

$$|\downarrow\rangle_x = \frac{1}{4\sqrt{2}} \left(\sqrt{5} |\uparrow\rangle - 3 |\uparrow\rangle + \sqrt{2} |\uparrow\rangle + \sqrt{2} |\downarrow\rangle - 3 |\downarrow\rangle + \sqrt{5} |\downarrow\rangle \right) \quad (122e)$$

$$|\downarrow\rangle_x = \frac{1}{4\sqrt{2}} \left(-|\uparrow\rangle + \sqrt{5} |\uparrow\rangle - \sqrt{10} |\uparrow\rangle + \sqrt{10} |\downarrow\rangle - \sqrt{5} |\downarrow\rangle + |\downarrow\rangle \right), \quad (122f)$$

$$|\uparrow\rangle_y = \frac{1}{4\sqrt{2}} \left(-i |\uparrow\rangle + \sqrt{5} |\uparrow\rangle + i\sqrt{10} |\uparrow\rangle - \sqrt{10} |\downarrow\rangle - i\sqrt{5} |\downarrow\rangle + |\downarrow\rangle \right), \quad (123a)$$

$$|\uparrow\rangle_y = \frac{1}{4\sqrt{2}} \left(i\sqrt{5} |\uparrow\rangle - 3 |\uparrow\rangle - i\sqrt{2} |\uparrow\rangle - \sqrt{2} |\downarrow\rangle - 3i |\downarrow\rangle + \sqrt{5} |\downarrow\rangle \right), \quad (123b)$$

$$|\uparrow\rangle_y = \frac{1}{4} \left(-i\sqrt{5} |\uparrow\rangle + |\uparrow\rangle - i\sqrt{2} |\uparrow\rangle + \sqrt{2} |\downarrow\rangle - i |\downarrow\rangle + \sqrt{5} |\downarrow\rangle \right), \quad (123c)$$

$$|\downarrow\rangle_y = \frac{1}{4} \left(i\sqrt{5} |\uparrow\rangle + |\uparrow\rangle + i\sqrt{2} |\uparrow\rangle + \sqrt{2} |\downarrow\rangle + i |\downarrow\rangle + \sqrt{5} |\downarrow\rangle \right), \quad (123d)$$

$$|\downarrow\rangle_y = \frac{1}{4\sqrt{2}} \left(-i\sqrt{5} |\uparrow\rangle - 3 |\uparrow\rangle + i\sqrt{2} |\uparrow\rangle - \sqrt{2} |\downarrow\rangle + 3i |\downarrow\rangle + \sqrt{5} |\downarrow\rangle \right), \quad (123e)$$

$$|\downarrow\rangle_y = \frac{1}{4\sqrt{2}} \left(i |\uparrow\rangle + \sqrt{5} |\uparrow\rangle - i\sqrt{10} |\uparrow\rangle - \sqrt{10} |\downarrow\rangle + i\sqrt{5} |\downarrow\rangle + |\downarrow\rangle \right). \quad (123f)$$

$j = 3$

$$J_x = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 0 & \sqrt{6} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ \sqrt{6} & 0 & \sqrt{10} & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \sqrt{10} & 0 & 2\sqrt{3} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 2\sqrt{3} & 0 & 2\sqrt{3} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 2\sqrt{3} & 0 & \sqrt{10} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & \sqrt{10} & 0 & \sqrt{6} \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \sqrt{6} & 0 \end{pmatrix}, \quad (124)$$

$$J_y = \frac{i}{2} \begin{pmatrix} 0 & -\sqrt{6} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ \sqrt{6} & 0 & -\sqrt{10} & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \sqrt{10} & 0 & -2\sqrt{3} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 2\sqrt{3} & 0 & -2\sqrt{3} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 2\sqrt{3} & 0 & -\sqrt{10} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & \sqrt{10} & 0 & -\sqrt{6} \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \sqrt{6} & 0 \end{pmatrix}, \quad (125)$$

$$|\uparrow\rangle_x = \frac{1}{8} \left(|\uparrow\rangle + \sqrt{6} |\uparrow\rangle + \sqrt{15} |\uparrow\rangle + 2\sqrt{5} |0\rangle + \sqrt{15} |\downarrow\rangle + \sqrt{6} |\downarrow\rangle + |\downarrow\rangle \right), \quad (126a)$$

$$|\uparrow\rangle_x = \frac{1}{4} \left(-\sqrt{\frac{3}{2}} |\uparrow\rangle - 2 |\uparrow\rangle - \sqrt{\frac{5}{2}} |\uparrow\rangle + \sqrt{\frac{5}{2}} |\downarrow\rangle + 2 |\downarrow\rangle + \sqrt{\frac{3}{2}} |\downarrow\rangle \right), \quad (126b)$$

$$|\uparrow\rangle_x = \frac{1}{8} \left(\sqrt{15} |\uparrow\rangle + \sqrt{10} |\uparrow\rangle - |\uparrow\rangle - 2\sqrt{3} |0\rangle - |\downarrow\rangle + \sqrt{10} |\downarrow\rangle + \sqrt{15} |\downarrow\rangle \right), \quad (126c)$$

$$|0\rangle_x = \frac{1}{4} \left(-\sqrt{5} |\uparrow\rangle + \sqrt{3} |\uparrow\rangle - \sqrt{3} |\downarrow\rangle + \sqrt{5} |\downarrow\rangle \right), \quad (126d)$$

$$|\downarrow\rangle_x = \frac{1}{8} \left(\sqrt{15} |\uparrow\rangle - \sqrt{10} |\uparrow\rangle - |\uparrow\rangle + 2\sqrt{3} |0\rangle - |\downarrow\rangle - \sqrt{10} |\downarrow\rangle + \sqrt{15} |\downarrow\rangle \right), \quad (126e)$$

$$|\downarrow\rangle_x = \frac{1}{4} \left(-\sqrt{\frac{3}{2}} |\uparrow\rangle + 2 |\uparrow\rangle - \sqrt{\frac{5}{2}} |\uparrow\rangle + \sqrt{\frac{5}{2}} |\downarrow\rangle - 2 |\downarrow\rangle + \sqrt{\frac{3}{2}} |\downarrow\rangle \right), \quad (126f)$$

$$|\downarrow\rangle_x = \frac{1}{8} \left(|\uparrow\rangle - \sqrt{6} |\uparrow\rangle + \sqrt{15} |\uparrow\rangle - 2\sqrt{5} |0\rangle + \sqrt{15} |\downarrow\rangle - \sqrt{6} |\downarrow\rangle + |\downarrow\rangle \right), \quad (126g)$$

$$|\uparrow\rangle_y = \frac{1}{8} \left(-|\uparrow\rangle - i\sqrt{6} |\uparrow\rangle + \sqrt{15} |\uparrow\rangle + 2i\sqrt{5} |0\rangle - \sqrt{15} |\downarrow\rangle - i\sqrt{6} |\downarrow\rangle + |\downarrow\rangle \right), \quad (127a)$$

$$|\uparrow\rangle_y = \frac{1}{4} \left(\sqrt{\frac{3}{2}} |\uparrow\rangle + 2i |\uparrow\rangle - \sqrt{\frac{5}{2}} |\uparrow\rangle - \sqrt{\frac{5}{2}} |\downarrow\rangle - 2i |\downarrow\rangle + \sqrt{\frac{3}{2}} |\downarrow\rangle \right), \quad (127b)$$

$$|\uparrow\rangle_y = \frac{1}{8} \left(-\sqrt{15} |\uparrow\rangle - i\sqrt{10} |\uparrow\rangle - |\uparrow\rangle - 2i\sqrt{3} |0\rangle + |\downarrow\rangle - i\sqrt{10} |\downarrow\rangle + \sqrt{15} |\downarrow\rangle \right), \quad (127c)$$

$$|0\rangle_y = \frac{1}{4} \left(\sqrt{5} |\uparrow\rangle + \sqrt{3} |\uparrow\rangle + \sqrt{3} |\downarrow\rangle + \sqrt{5} |\downarrow\rangle \right), \quad (127d)$$

$$|\downarrow\rangle_y = \frac{1}{8} \left(-\sqrt{15} |\uparrow\rangle + i\sqrt{10} |\uparrow\rangle - |\uparrow\rangle + 2i\sqrt{3} |0\rangle + |\downarrow\rangle + i\sqrt{10} |\downarrow\rangle + \sqrt{15} |\downarrow\rangle \right), \quad (127e)$$

$$|\downarrow\rangle_y = \frac{1}{4} \left(\sqrt{\frac{3}{2}} |\uparrow\rangle - 2i |\uparrow\rangle - \sqrt{\frac{5}{2}} |\uparrow\rangle - \sqrt{\frac{5}{2}} |\downarrow\rangle + 2i |\downarrow\rangle + \sqrt{\frac{3}{2}} |\downarrow\rangle \right), \quad (127f)$$

$$|\downarrow\rangle_y = \frac{1}{8} \left(-|\uparrow\rangle + i\sqrt{6} |\uparrow\rangle + \sqrt{15} |\uparrow\rangle - 2i\sqrt{5} |0\rangle - \sqrt{15} |\downarrow\rangle + i\sqrt{6} |\downarrow\rangle + |\downarrow\rangle \right). \quad (127g)$$

$$j = 7/2$$

$$J_x = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 0 & \sqrt{7} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ \sqrt{7} & 0 & 2\sqrt{3} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 2\sqrt{3} & 0 & \sqrt{15} & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \sqrt{15} & 0 & 4 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 4 & 0 & \sqrt{15} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & \sqrt{15} & 0 & 2\sqrt{3} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 2\sqrt{3} & 0 & \sqrt{7} \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \sqrt{7} & 0 \end{pmatrix}, \quad (128)$$

$$J_y = \frac{i}{2} \begin{pmatrix} 0 & -\sqrt{7} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ \sqrt{7} & 0 & -2\sqrt{3} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 2\sqrt{3} & 0 & -\sqrt{15} & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \sqrt{15} & 0 & -4 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 4 & 0 & -\sqrt{15} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & \sqrt{15} & 0 & -2\sqrt{3} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 2\sqrt{3} & 0 & -\sqrt{7} \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \sqrt{7} & 0 \end{pmatrix}, \quad (129)$$

$$|\uparrow\uparrow\rangle_x = \frac{1}{8\sqrt{2}} \left(|\uparrow\uparrow\rangle + \sqrt{7}|\uparrow\uparrow\rangle + \sqrt{21}|\uparrow\uparrow\rangle + \sqrt{35}|\uparrow\uparrow\rangle + \sqrt{35}|\downarrow\downarrow\rangle + \sqrt{21}|\downarrow\downarrow\rangle + \sqrt{7}|\downarrow\downarrow\rangle + |\downarrow\downarrow\rangle \right), \quad (130a)$$

$$|\uparrow\uparrow\rangle_x = \frac{1}{8\sqrt{2}} \left(-\sqrt{7}|\uparrow\uparrow\rangle - 5|\uparrow\uparrow\rangle - 3\sqrt{3}|\uparrow\uparrow\rangle - \sqrt{5}|\uparrow\uparrow\rangle + \sqrt{5}|\downarrow\downarrow\rangle + 3\sqrt{3}|\downarrow\downarrow\rangle + 5|\downarrow\downarrow\rangle + \sqrt{7}|\downarrow\downarrow\rangle \right), \quad (130b)$$

$$|\uparrow\uparrow\rangle_x = \frac{1}{8\sqrt{2}} \left(\sqrt{21}|\uparrow\uparrow\rangle + 3\sqrt{3}|\uparrow\uparrow\rangle + |\uparrow\uparrow\rangle - \sqrt{15}|\uparrow\uparrow\rangle - \sqrt{15}|\downarrow\downarrow\rangle + |\downarrow\downarrow\rangle + 3\sqrt{3}|\downarrow\downarrow\rangle + \sqrt{21}|\downarrow\downarrow\rangle \right), \quad (130c)$$

$$|\uparrow\uparrow\rangle_x = \frac{1}{8\sqrt{2}} \left(-\sqrt{35}|\uparrow\uparrow\rangle - \sqrt{5}|\uparrow\uparrow\rangle + \sqrt{15}|\uparrow\uparrow\rangle + 3|\uparrow\uparrow\rangle - 3|\downarrow\downarrow\rangle - \sqrt{15}|\downarrow\downarrow\rangle + \sqrt{5}|\downarrow\downarrow\rangle + \sqrt{35}|\downarrow\downarrow\rangle \right), \quad (130d)$$

$$|\downarrow\downarrow\rangle_x = \frac{1}{8\sqrt{2}} \left(\sqrt{35}|\uparrow\uparrow\rangle - \sqrt{5}|\uparrow\uparrow\rangle - \sqrt{15}|\uparrow\uparrow\rangle + 3|\uparrow\uparrow\rangle + 3|\downarrow\downarrow\rangle - \sqrt{15}|\downarrow\downarrow\rangle - \sqrt{5}|\downarrow\downarrow\rangle + \sqrt{35}|\downarrow\downarrow\rangle \right), \quad (130e)$$

$$|\downarrow\downarrow\rangle_x = \frac{1}{8\sqrt{2}} \left(-\sqrt{21}|\uparrow\uparrow\rangle + 3\sqrt{3}|\uparrow\uparrow\rangle - |\uparrow\uparrow\rangle - \sqrt{15}|\uparrow\uparrow\rangle + \sqrt{15}|\downarrow\downarrow\rangle + |\downarrow\downarrow\rangle - 3\sqrt{3}|\downarrow\downarrow\rangle + \sqrt{21}|\downarrow\downarrow\rangle \right), \quad (130f)$$

$$|\downarrow\downarrow\rangle_x = \frac{1}{8\sqrt{2}} \left(\sqrt{7}|\uparrow\uparrow\rangle - 5|\uparrow\uparrow\rangle + 3\sqrt{3}|\uparrow\uparrow\rangle - \sqrt{5}|\uparrow\uparrow\rangle - \sqrt{5}|\downarrow\downarrow\rangle + 3\sqrt{3}|\downarrow\downarrow\rangle - 5|\downarrow\downarrow\rangle + \sqrt{7}|\downarrow\downarrow\rangle \right), \quad (130g)$$

$$|\downarrow\downarrow\rangle_x = \frac{1}{8\sqrt{2}} \left(-|\uparrow\uparrow\rangle + \sqrt{7}|\uparrow\uparrow\rangle - \sqrt{21}|\uparrow\uparrow\rangle + \sqrt{35}|\uparrow\uparrow\rangle - \sqrt{35}|\downarrow\downarrow\rangle + \sqrt{21}|\downarrow\downarrow\rangle - \sqrt{7}|\downarrow\downarrow\rangle + |\downarrow\downarrow\rangle \right), \quad (130h)$$

$$|\uparrow\uparrow\rangle_y = \frac{1}{8\sqrt{2}} \left(i|\uparrow\uparrow\rangle - \sqrt{7}|\uparrow\uparrow\rangle - i\sqrt{21}|\uparrow\uparrow\rangle + \sqrt{35}|\uparrow\uparrow\rangle + i\sqrt{35}|\downarrow\downarrow\rangle - \sqrt{21}|\downarrow\downarrow\rangle - i\sqrt{7}|\downarrow\downarrow\rangle + |\downarrow\downarrow\rangle \right), \quad (131a)$$

$$|\uparrow\uparrow\rangle_y = \frac{1}{8\sqrt{2}} \left(-i\sqrt{7}|\uparrow\uparrow\rangle + 5|\uparrow\uparrow\rangle + 3i\sqrt{3}|\uparrow\uparrow\rangle - \sqrt{5}|\uparrow\uparrow\rangle + \sqrt{5}i|\downarrow\downarrow\rangle - 3\sqrt{3}|\downarrow\downarrow\rangle - 5i|\uparrow\uparrow\rangle + \sqrt{7}|\downarrow\downarrow\rangle \right), \quad (131b)$$

$$|\uparrow\uparrow\rangle_y = \frac{1}{8\sqrt{2}} \left(\sqrt{21}|\uparrow\uparrow\rangle - 3\sqrt{3}|\uparrow\uparrow\rangle - i|\uparrow\uparrow\rangle - \sqrt{15}|\uparrow\uparrow\rangle - i\sqrt{15}|\downarrow\downarrow\rangle - |\downarrow\downarrow\rangle - 3i\sqrt{3}|\downarrow\downarrow\rangle + \sqrt{21}|\downarrow\downarrow\rangle \right), \quad (131c)$$

$$|\uparrow\uparrow\rangle_y = \frac{1}{8\sqrt{2}} \left(-i\sqrt{35}|\uparrow\uparrow\rangle + \sqrt{5}|\uparrow\uparrow\rangle - i\sqrt{15}|\uparrow\uparrow\rangle + 3|\uparrow\uparrow\rangle - 3i|\downarrow\downarrow\rangle + \sqrt{15}|\downarrow\downarrow\rangle - i\sqrt{5}|\downarrow\downarrow\rangle + \sqrt{35}|\downarrow\downarrow\rangle \right), \quad (131d)$$

$$|\downarrow\downarrow\rangle_y = \frac{1}{8\sqrt{2}} \left(i\sqrt{35}|\uparrow\uparrow\rangle + \sqrt{5}|\uparrow\uparrow\rangle + i\sqrt{15}|\uparrow\uparrow\rangle + 3|\uparrow\uparrow\rangle + 3i|\downarrow\downarrow\rangle + \sqrt{15}|\downarrow\downarrow\rangle + i\sqrt{5}|\downarrow\downarrow\rangle + \sqrt{35}|\downarrow\downarrow\rangle \right), \quad (131e)$$

$$|\downarrow\downarrow\rangle_y = \frac{1}{8\sqrt{2}} \left(-i\sqrt{21}|\uparrow\uparrow\rangle - 3\sqrt{3}|\uparrow\uparrow\rangle + i|\uparrow\uparrow\rangle - \sqrt{15}|\uparrow\uparrow\rangle + i\sqrt{15}|\downarrow\downarrow\rangle - |\downarrow\downarrow\rangle + 3i\sqrt{3}|\downarrow\downarrow\rangle + \sqrt{21}|\downarrow\downarrow\rangle \right), \quad (131f)$$

$$|\downarrow\downarrow\rangle_y = \frac{1}{8\sqrt{2}} \left(i\sqrt{7}|\uparrow\uparrow\rangle + 5|\uparrow\uparrow\rangle - 3i\sqrt{3}|\uparrow\uparrow\rangle - \sqrt{5}|\uparrow\uparrow\rangle - i\sqrt{5}|\downarrow\downarrow\rangle - 3\sqrt{3}|\downarrow\downarrow\rangle + 5i|\uparrow\uparrow\rangle + \sqrt{7}|\downarrow\downarrow\rangle \right), \quad (131g)$$

$$|\downarrow\downarrow\rangle_y = \frac{1}{8\sqrt{2}} \left(-i|\uparrow\uparrow\rangle - \sqrt{7}|\uparrow\uparrow\rangle + i\sqrt{21}|\uparrow\uparrow\rangle + \sqrt{35}|\uparrow\uparrow\rangle - i\sqrt{35}|\downarrow\downarrow\rangle - \sqrt{21}|\downarrow\downarrow\rangle + i\sqrt{7}|\downarrow\downarrow\rangle + |\downarrow\downarrow\rangle \right). \quad (131h)$$

B Numerical phases for spin-7/2

Consider the following $|\psi\rangle \in \mathcal{H}_{7/2}$:

$$|\psi\rangle = \frac{1}{\sqrt{8}} \sum_{m=-7/2}^{7/2} e^{i\phi_m} |j, m\rangle_z, \quad (132)$$

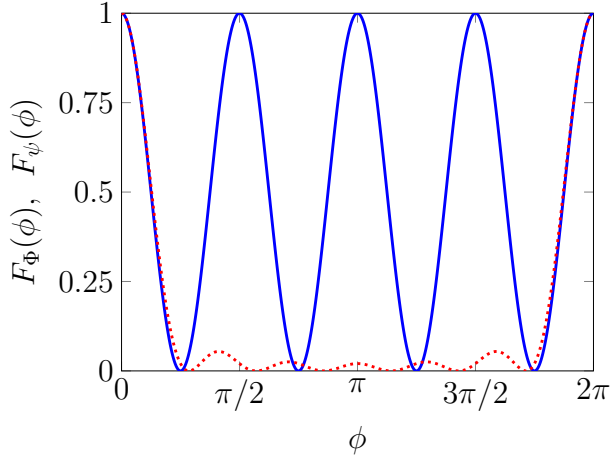


Figure 7: **Perfect quantum protractor versus spin 2-anticoherent state.** The overlap $F_\Phi(\phi)$ between spin 2-anticoherent state $|\Phi\rangle$ for spin-3 system and its version rotated around any axis $\hat{n}$ by angle ϕ (blue solid line) compared with the overlap $F_\psi(\phi)$ between perfect quantum protractor $|\psi\rangle$ for spin-3 system and its version rotated around an axis k by angle ϕ with $k \in \{x, y, z\}$ (red dotted line).

with

$$\phi_{7/2} = 0, \quad (133a)$$

$$\phi_{5/2} = \phi_{-3/2} - \phi_{3/2} + \phi_{-5/2} + \pi, \quad (133b)$$

$$\phi_{1/2} = \theta + \frac{\phi_{3/2} + \phi_{-3/2} + \phi_{-7/2}}{2}, \quad (133c)$$

$$\phi_{-1/2} = \theta + \frac{\phi_{3/2} + \phi_{-3/2} - \phi_{-7/2}}{2} + \pi, \quad (133d)$$

where

$$\theta = -\arcsin \left(\sqrt{\frac{7}{15}} \sin \left(\phi_{-5/2} + \frac{\phi_{-3/2} - \phi_{3/2} - \phi_{-7/2}}{2} \right) + \frac{\phi_{-3/2} + \phi_{3/2} + \phi_{-7/2}}{2} \right). \quad (134)$$

Then, around the following numerical values:

$$\phi_{3/2} = -2.30181413, \quad (135a)$$

$$\phi_{-3/2} = -0.60467766, \quad (135b)$$

$$\phi_{-5/2} = -1.46074545, \quad (135c)$$

$$\phi_{-7/2} = -0.57982923, \quad (135d)$$

the state $|\psi\rangle$, up to numerical precision, becomes a perfect quantum protractor.

C Comparison with spin 2-anticoherent state for spin-3 system

One of the examples of the spin 2-anticoherent state of a spin-3 system is given by [21]:

$$|\Phi\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|3, 2\rangle_z - |3, -2\rangle_z). \quad (136)$$

Its overlap with a version of itself rotated around an arbitrary axis $\hat{n}$ by an angle ϕ is given by

$$F_\Phi(\phi) := |\langle \Phi | R_{\hat{n}}(\phi) | \Phi \rangle|^2 = \cos^2(2\phi), \quad (137)$$

and is plotted in Fig. 7. While the overlap quickly drops from one to zero (signalling the sensitivity of $|\Phi\rangle$ to small angle rotations), it then oscillates just between two orthogonal states. As a result, it can only be used to distinguish between $\phi \in [0, \pi/4]$. For example, a rotation by any of the angles $\{\pi/4, 3\pi/4, 5\pi/4, 7\pi/4\}$ gives not only the same overlap with the original state, but actually exactly the same quantum state, so there does not exist a measurement that could distinguish between those rotation angles.

On the other hand, the overlap of a perfect quantum protractor of spin-3 system, given by Eq. (58), with a version of itself rotated around an axis $k \in \{x, y, z\}$ by an angle ϕ is given by⁵

$$F_\psi(\phi) := |\langle \psi | R_k(\phi) | \psi \rangle|^2 = \frac{1}{49}(1 + 2(\cos(\phi) + \cos(2\phi) + \cos(3\phi)))^2. \quad (139)$$

As can be seen in Fig. 7, it is slightly less sensitive to small angle rotations than the spin 2-anticoherent state (its overlap drops a little slower with increasing ϕ). However, it then rotates through seven mutually orthogonal states. Thus, performing a measurement in this basis allows one to distinguish between all angles $\phi \in [0, 2\pi]$. For example, a rotation by angles $\{2\pi/7, 4\pi/7, 6\pi/7, 8\pi/7, 10\pi/7, 12\pi/7\}$ not only gives a zero overlap with the initial state $|\psi\rangle$, but actually produces six more mutually orthogonal states that can be unambiguously distinguished by a single-shot measurement.

References

- [1] Werner Heisenberg. “Über den anschaulichen Inhalt der quantentheoretischen Kinematik und Mechanik”. *Z. Phys.* **43**, 172–198 (1927).
- [2] Howard Percy Robertson. “The uncertainty principle”. *Phys. Rev.* **34**, 163 (1929).
- [3] Paul Busch, Pekka Lahti, and Reinhard F Werner. “Colloquium: Quantum root-mean-square error and measurement uncertainty relations”. *Rev. Mod. Phys.* **86**, 1261 (2014).
- [4] Patrick J Coles, Mario Berta, Marco Tomamichel, and Stephanie Wehner. “Entropic uncertainty relations and their applications”. *Rev. Mod. Phys.* **89**, 015002 (2017).

⁵More generally, this overlap for a perfect quantum protractor of a spin- j system can be derived using Eq. (14), and is given by

$$|\langle \psi | R_k(\phi) | \psi \rangle|^2 = \left[\frac{1}{2j+1} \left(1 + 2 \sum_{m=1}^j \cos(m\phi) \right) \right]^2. \quad (138)$$

- [5] L. Mandelstam and I. G. Tamm. “The uncertainty relation between energy and time in non-relativistic quantum mechanics”. In *Selected Papers*. Pages 115–123. Springer (1991).
- [6] Asher Peres. “Measurement of time by quantum clocks”. *Am. J. Phys.* **48**, 552–557 (1980).
- [7] Vladimir Bužek, Radosław Derka, and Serge Massar. “Optimal quantum clocks”. *Phys. Rev. Lett.* **82**, 2207 (1999).
- [8] Stephen M Barnett and DT Pegg. “Limiting procedures for the optical phase operator”. *J. Mod. Opt.* **39**, 2121–2129 (1992).
- [9] Kamil Korzekwa, Stanisław Czachórski, Zbigniew Puchała, and Karol Życzkowski. “Distinguishing classically indistinguishable states and channels”. *J. Phys. A* **52**, 475303 (2019).
- [10] Kamil Korzekwa, David Jennings, and Terry Rudolph. “Operational constraints on state-dependent formulations of quantum error-disturbance trade-off relations”. *Phys. Rev. A* **89**, 052108 (2014).
- [11] Martin Idel and Michael M Wolf. “Sinkhorn normal form for unitary matrices”. *Linear Algebra Appl.* **471**, 76–84 (2015).
- [12] Lars Dammeier, René Schwonnek, and Reinhard F Werner. “Uncertainty relations for angular momentum”. *New J. Phys.* **17**, 093046 (2015).
- [13] J Michael Radcliffe. “Some properties of coherent spin states”. *J. Phys. A* **4**, 313 (1971).
- [14] C Aragone, E Chalbaud, and S Salamo. “On intelligent spin states”. *J. Math. Phys.* **17**, 1963–1971 (1976).
- [15] Alfréd Rényi. “On measures of entropy and information”. In *Berkeley Symp. on Math. Statist. and Prob.* Pages 547–561. (1961). url: https://static.renyi.hu/renyi_cikkek/1961_on_measures_of_entropy_and_information.pdf.
- [16] Hans Maassen and Jos BM Uffink. “Generalized entropic uncertainty relations”. *Phys. Rev. Lett.* **60**, 1103–1106 (1988).
- [17] Jorge Sánchez. “Entropic uncertainty and certainty relations for complementary observables”. *Phys. Lett. A* **173**, 233–239 (1993).
- [18] Jorge Sánchez-Ruiz. “Improved bounds in the entropic uncertainty and certainty relations for complementary observables”. *Phys. Lett. A* **201**, 125–131 (1995).
- [19] Zbigniew Puchała, Łukasz Rudnicki, Krzysztof Chabuda, Mikołaj Paraniak, and Karol Życzkowski. “Certainty relations, mutual entanglement, and nondisplaceable manifolds”. *Phys. Rev. A* **92**, 032109 (2015).
- [20] Jason Zimba. “Anticoherent spin states via the Majorana representation”. *Electron. J. Theor. Phys.* **3**, 143–156 (2006). url: <https://citeseerx.ist.psu.edu/document?repid=rep1&type=pdf&doi=2b4f1377d81f87e33c3dc62d2ebcf83cae2b0aee>.
- [21] Aaron Z Goldberg and Daniel FV James. “Quantum-limited Euler angle measurements using anticoherent states”. *Phys. Rev. A* **98**, 032113 (2018).
- [22] Andrew J Scott. “Multipartite entanglement, quantum-error-correcting codes, and entangling power of quantum evolutions”. *Phys. Rev. A* **69**, 052330 (2004).
- [23] Vittorio Giovannetti, Seth Lloyd, and Lorenzo Maccone. “Advances in quantum metrology”. *Nat. Photon.* **5**, 222–229 (2011).
- [24] Rafał Demkowicz-Dobrzański. “Optimal phase estimation with arbitrary a priori knowledge”. *Phys. Rev. A* **83**, 061802 (2011).
- [25] Michael JW Hall and Howard M Wiseman. “Heisenberg-style bounds for arbitrary estimates of shift parameters including prior information”. *New J. Phys.* **14**, 033040 (2012).
- [26] Piotr Kolenderski and Rafał Demkowicz-Dobrzański. “Optimal state for keeping reference frames aligned and the Platonic solids”. *Phys. Rev. A* **78**, 052333 (2008).
- [27] Francesco Albarelli and Rafał Demkowicz-Dobrzański. “Probe incompatibility in multi-parameter noisy quantum metrology”. *Phys. Rev. X* **12**, 011039 (2022).
- [28] Carl W Helstrom. “Quantum detection and estimation theory”. *J. Stat. Phys.* **1**, 231–252 (1969).
- [29] Wojciech Rządowski and Rafał Demkowicz-Dobrzański. “Discrete-to-continuous transition in quantum phase estimation”. *Phys. Rev. A* **96**, 032319 (2017).
- [30] M. Auzinsh, D. Budker, and S. Rochester. “Optically Polarized Atoms: Understanding Light-atom Interactions”. Oxford University Press. (2010).
- [31] Marek Kopciuch, Magdalena Smolis, Adam Miranowicz, and Szymon Pustelny. “Optimized optical tomography of quantum states of a room-temperature alkali-metal vapor”. *Phys. Rev. A* **109**, 032402 (2024).
- [32] Marek Kopciuch and Szymon Pustelny. “Optical reconstruction of the collective density matrix of a qutrit”. *Phys. Rev. A* **106**, 022406 (2022).
- [33] C Chryssomalakos and H Hernández-Coronado. “Optimal quantum roto-sensors”. *Phys. Rev. A* **95**, 052125 (2017).
- [34] John Martin, Stefan Weigert, and Olivier Giraud. “Optimal detection of rotations about unknown axes by coherent and anticoherent states”. *Quantum* **4**, 285 (2020).
- [35] Frederic Bouchard, P de la Hoz, Gunnar Björk, RW Boyd, Markus Grassl, Z Hradil, E Karimi, AB Klimov, Gerd Leuchs, J Řeháček, et al. “Quantum metrology at the limit with extremal majorana constellations”. *Optica* **4**, 1429–1432 (2017).
- [36] Hugo Ferretti, Y Batuhan Yilmaz, Kent Bonsma-Fisher, Aaron Z Goldberg, Noah Lupu-Gladstein, Arthur OT Pang, Lee A Rozema, and Aephraim M Steinberg. “Generating a 4-photon tetrahedron state: toward simultaneous super-sensitivity to non-

- commuting rotations”. [Opt. Quantum](#) **2**, 91–102 (2024).
- [37] Gerhard Zauner. “Quantum designs: Foundations of a noncommutative design theory”. [Int. J. Quantum Inf.](#) **9**, 445–507 (2011).
- [38] J. M. Renes, R. Blume-Kohout, A. J. Scott, and C. M. Caves. “Symmetric informationally complete quantum measurements”. [J. Math. Phys.](#) **45**, 2171–2180 (2004).
- [39] Marcin Rudziński, Adam Burchardt, and Karol Życzkowski. “Orthonormal bases of extreme quantumness”. [Quantum](#) **8**, 1234 (2024).
- [40] William K Wootters and Brian D Fields. “Optimal state-determination by mutually unbiased measurements”. [Ann. Phys.](#) **191**, 363–381 (1989).
- [41] Vittorio Giovannetti, Seth Lloyd, and Lorenzo Maccone. “Quantum-enhanced measurements: beating the standard quantum limit”. [Science](#) **306**, 1330–1336 (2004).

3.3 Łamanie lokalnej adiabatyczności w procesie STIRAP

Jeden z algorytmów inżynierii stanów kwantowych, który jest rozważany w ramach niniejszej rozprawy, bazuje na zjawisku STIRAP [4]. Jego celem jest przeniesienie populacji pomiędzy dwoma stanami podstawowymi rubidu-87, odpowiednio stanem $f = 1$ i $f = 2$. Dodatkowo w przyszłości planowany jest transfer całego stanu kwantowego, tj. przeniesienie populacji z zachowaniem relacji fazowych pomiędzy tworzącymi te stany podpoziomami magnetycznymi (transfer pełnego stanu kwantowego). W pracy [B] wykorzystano do tego celu pobudzenie atomów na linii D_1 w rubidzie (795 nm). W takim przypadku modelowy dla zjawiska STIRAP trypoziomowy układ Λ [4] musi zostać rozszerzony z uwagi na zdegenerowaną strukturę podpoziomów magnetycznych stanów biorących udział w transferze. Jednakże ze względu na reguły przejść, przy ustalonej polaryzacji wiązek indukujących transfer, zwanych wiązką pompującą i wiązką stokesowską, układ redukuje się do kilku niezależnych układów. Warto jednak zauważyć, że w przypadku ciepłych par atomowych efekt Dopplera powoduje poszerzenie linii porównywalne z rozszczepieniem nadształnym stanu wzbudzonego. Sprawia to, że w niektórych rozważaniach należy uwzględnić obecność drugiego stanu wzbudzonego. Dlatego też rozważaną sytuację można zredukować do oddziaływania światła z szeregiem trój- lub czteroziomowych układów (Rys. 1a w pracy [B]). Jak pokazano w pracy [B], obecność dodatkowego czwartego poziomu może mieć ogromny wpływ na dynamikę rozważanego zjawiska, gdyż może nawet uniemożliwić działanie procedury STIRAP i transfer populacji między stanami.

Warto w tym miejscu zwrócić uwagę na pewną istotną różnicę w notacji pomiędzy artykułem [B] a opisanym w rozdziale 1.4 podstawowym procesem STIRAP, która polega na przedefiniowaniu częstości Rabiego. W przypadku podręcznikowego opisu częstość Rabiego wiązki stokesowskiej/pompującej, ze względu na ogólny charakter takiego opisu, dana jest jako: $\Omega_{s(p)}(t) = E_{s(p)}^0(t) \langle e | \hat{\mathbf{d}} | f(i) \rangle$. W przypadku pracy [B], ze względu na wykorzystanie przejścia w ramach jednej linii w strukturze rubidu-87, definicja częstości Rabiego pomiędzy różnymi stanami została ujednolicona poprzez wykorzystanie zredukowanej wartości momentu dipolowego

$$\Omega_{s(p)}(t) = \frac{E_{s(p)}^0(t)}{2\hbar} \langle j = 1/2 | \hat{\mathbf{d}} | J = 1/2 \rangle. \quad (3.17)$$

W rezultacie w hamiltonianie elementy odpowiadające za sprzężenie światłem są dane przez:

$$\Omega_{s(p)}(t) \rightarrow C_{f,F,m_f,m_F} \Omega_{s(p)}(t), \quad (3.18)$$

gdzie

$$C_{f,F,m_f,m_F} = (-1)^{3/2+I+F} \sqrt{(2f+1)} \times \langle F m_F | 1 q f m_f \rangle \begin{Bmatrix} 1/2 & f & I \\ F & 1/2 & 1 \end{Bmatrix}, \quad (3.19)$$

co jest konsekwencją reguł składania momentu pędu [7], zaś q determinowane jest przez polaryzację wiązek. W rezultacie aby zachować dotychczasową formę równań, należy skorygować definicję kąta mieszania (1.38)

$$\tan \vartheta(t) = \frac{\Omega_p(t)}{a\Omega_S(t)}, \quad (3.20)$$

gdzie $a = (C_{fe}/C_{ie})^*$ jest stosunkiem siły sprzężenia na przejściu pompującym i stokesowskim. W konsekwencji redefinicji uległ również warunek na lokalną adiabaticzność (1.42)

$$\sqrt{|a|^2\Omega_s^2(t) + \Omega_p^2(t)} \gg |a| \frac{|\Omega_s(t)\dot{\Omega}_p(t) - \dot{\Omega}_s(t)\Omega_p(t)|}{|a|^2\Omega_s^2(t) + \Omega_p^2(t)}. \quad (3.21)$$

W ramach pracy [B] zaobserwowano wąski spektralnie efekt załamania się transferu (Rys. 3 w [B]), który był obserwowany tylko dla przejść zgrupowanych w podukłady czteropoziomowe. Efekt ten nie ma swojego odpowiednika, a zatem i wytłumaczenia w podręcznikowym układzie trójpoziomowym. Wytłumaczenie tego fenomenu zostało podparte kolejną istotną modyfikacją podstawowego warunku transferu populacji w zjawisku STIRAP, jakim jest warunek lokalnej adiabaticzności (1.42). Jak zostało wcześniej wspomniane, określa on jak szybko mogą zmieniać się parametry fizyczne układu (amplitudy pól elektrycznych wiązek pompującej i stokesowskiej), aby zachodził ww. proces. Warunek lokalnej adiabaticzności wynika bezpośrednio z twierdzenia o adiabaticzności [10], które mówi, że zmiana zaburzenia wpływającego na układ musi być na tyle wolna, żeby separacja energetyczna pomiędzy stanami własnymi układu była znacząca. W ten sposób na podstawie twierdzenia o adiabaticzności można wywnioskować jakie jest prawdopodobieństwo, że atom będzie ewoluował nieadiabaticznie ze stanu $|\delta\rangle$ do innego najbliższego energetycznie stanu $|y\rangle$ [10]

$$P_{|\delta\rangle \rightarrow |y\rangle} \lesssim \max_t \left| \frac{\langle y(t) | \frac{d}{dt} (|\delta(t)\rangle) \rangle}{(E_{y(t)} - E_\delta)/\hbar} \right|^2, \quad (3.22)$$

gdzie $E_{y(\delta)}$ jest energią własną stanu $|y\rangle$ ($|\delta\rangle$). Gdy rozpatrywany jest układ trójpoziomowy, powyższy wzór przekształca się w przytoczone wcześniej wyrażenie (1.42), jednak obecność dodatkowego stanu wzbudzonego znacząco go modyfikuje. Pierwszą istotną kwestią jest fakt, że w tym przypadku energie własne i stany własne (poza stanem ciemnym) są wyrażone przez relatywnie skomplikowane wyrażenia. Można jednak zauważyć, że prawdopodobieństwo „ucieczki” populacji ze stanu ciemnego można wyliczyć, sumując prawdopodobieństwa ucieczki do dowolnego innego stanu:

$$\min_{y \neq \delta} |E_y - E_\delta|/\hbar \gg |a| \frac{|\Omega_p(t)\dot{\Omega}_s(t) - \Omega_s(t)\dot{\Omega}_p(t)|}{\Omega_p^2(t) + |a|^2\Omega_s^2(t)}. \quad (3.23)$$

Prawa strona powyższego równania jasno wskazuje na możliwy problem w zachowaniu warunku adiabaticzności w przypadku struktur wielopoziomowych. Polega on na wystąpieniu zjawiska degeneracji poziomu $|\delta\rangle$ z innym stanem. W takim przypadku niemożliwe jest spełnienie warunku adiabaticzności, a więc i przeprowadzenie procesu STIRAP.

3.3.1 Artykuł: Tailoring population transfer between two hyperfine ground states of ^{87}Rb

W ramach artykułu „Tailoring population transfer between two hyperfine ground states of ^{87}Rb ” przedstawiona została procedura STIRAP w rozszerzonym od modelowego układzie

poziomów odwzorowujących linię D_1 rubidu-87. Artykuł podkreśla dodatkowe efekty pojawiające się w takiej strukturze oraz prezentuje zaproponowane przez doktoranta wyjaśnienie ich pochodzenia oparte o łamanie warunku adiabatyczności. Dodatkowo w artykule przedstawiona została propozycja wykorzystania tego efektu jako dodatkowego stopnia selektywności transferu stanów pomiędzy poziomami nadsubtelnymi oraz analiza możliwości wykorzystania tej techniki w ciepłych i zimnych parach atomowych.

W pracach nad niniejszym artykułem doktorant odpowiadał za teoretyczne wytłumaczenie efektu załamania efektywności transferu oraz współtworzył i analizował symulacje opisane w artykule. Jest on również współautorem treści manuskryptu artykułu, w której szczególnie odpowiedzialny była za przygotowanie części II oraz dodatków.

Tailoring population transfer between two hyperfine ground states of ^{87}Rb

Aleksandra Sierant^{1,2,*}, Marek Kopciuch^{1,3}, and Szymon Pustelny¹¹*Institute of Physics, Jagiellonian University in Kraków, Łojasiewicza 11, 30-348 Kraków, Poland*²*Institut de Ciències Fotoniques, The Barcelona Institute of Science and Technology, Castelldefels (Barcelona) 08860, Spain*³*Jagiellonian University, Doctoral School of Exact and Natural Sciences, Faculty of Physics, Astronomy and Applied Computer Sciences, Łojasiewicza 11, 30-348 Kraków, Poland*

(Received 4 November 2022; accepted 20 March 2023; published 24 May 2023)

In this paper, we investigate the coherent control over a complex multilevel atomic system using the stimulated Raman adiabatic passage. Based on the example of ^{87}Rb atoms, excited with circularly polarized light at the D_1 line, we demonstrate the ability to decompose the system into three- and four-level subsystems independently interacting with light beams. Focusing on the four-level system, we demonstrate that the presence of an additional excited state significantly affects the dynamics of the system evolution. Specifically, it is shown that, through the appropriate tuning of the light beams, some of the transfer channels can be blocked, which leads to better control over the system. We also demonstrate that this effect is most significant in media free from inhomogeneous broadening (e.g., Doppler effect) and deteriorates if such broadening is present. For instance, the motion of atoms affects both the efficiency and selectivity of the transfer.

DOI: [10.1103/PhysRevA.107.052810](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.107.052810)

I. INTRODUCTION

The preparation of a system in a desired quantum state plays a crucial role in the advancement of quantum technologies [1], ranging from quantum computation and simulations [2–6] to quantum cryptography and information processing [7]. An important step in developing quantum-information applications is the ability to transfer a quantum state between two different physical manifolds, which, among others, may enable the implementation of quantum memory schemes [8,9]. A particular system in which such a transfer can be realized consists of two long-lived hyperfine ground levels of alkali-metal atoms [10–13].

Stimulated Raman adiabatic passage (STIRAP) [14–21] is a powerful technique that allows the adiabatic transfer of the population between two long-lived states. Originally designed for a three-level system, STIRAP coherently transfers the population between two long-lived lower-energy states $|i\rangle$ and $|f\rangle$ by coupling them to a fast-decaying excited state $|e\rangle$ with a counterintuitive sequence of the so-called Stokes and pump pulses, respectively, coupling the states $|f\rangle$ and $|e\rangle$ and the states $|i\rangle$ and $|e\rangle$. During the pulse sequence, the population is trapped in a dark state that is a superposition of the $|i\rangle$ and $|f\rangle$ states and has a vanishing overlap with the excited state $|e\rangle$ [15]. At the same time, if the Stokes pulse precedes the pump pulse, the dark state initially has a large overlap with the state $|i\rangle$, but later with the state $|f\rangle$ (the population of the

state $|e\rangle$ is negligible at any stage of evolution). In turn, the scheme enables a coherent transfer of the population from the state $|i\rangle$ to the state $|f\rangle$. Previously, STIRAP has been investigated in many systems, including cold atoms [22,23], molecules [24–26], and ions [27,28].

It should be noted that the presence of other excited states may affect the coherent transfer of the population [29–32]. For example, in room-temperature alkali-metal vapors [33–35], for which the Doppler broadening is comparable to or larger than the excited-state splitting, the three-level model is not accurate [36] and calls for a more elaborate description of the phenomenon [29–32,37].

In this paper, we investigate STIRAP for a coherent population transfer between two hyperfine ground-state levels of ^{87}Rb atoms. We show that, despite the rich energy-level structure of rubidium, the system can be effectively decomposed into three- and four-level subsystems. We also demonstrate that appropriately polarized and tuned light provides control over the selectivity of the transfer. The control investigated in this paper is qualitatively different from the previous experiments, which required an additional strong perturbation (e.g., large magnetic field [38–40], which induces a strong splitting of the Zeeman sublevels) to achieve control. Unlike for the above-mentioned case, our technique allows for the transfer of several sublevels simultaneously rather than a single one and enables on-demand blocking of a single, chosen sublevel. Also, such a strong magnetic perturbation leads to the randomization of the coherences in the system, which is not the case for our technique. However, it should be noted that, despite the specific context, the discussion presented in this paper is generic and can be used for any four-level system.

The paper is organized as follows. Section II is dedicated to a theoretical description of STIRAP in a specific context of ^{87}Rb atoms excited at the D_1 line. In particular, the so-called local adiabatic condition (LAC) is introduced in the four-level

*aleksandra.sierant@icfo.eu

Published by the American Physical Society under the terms of the [Creative Commons Attribution 4.0 International](https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/) license. Further distribution of this work must maintain attribution to the author(s) and the published article's title, journal citation, and DOI.

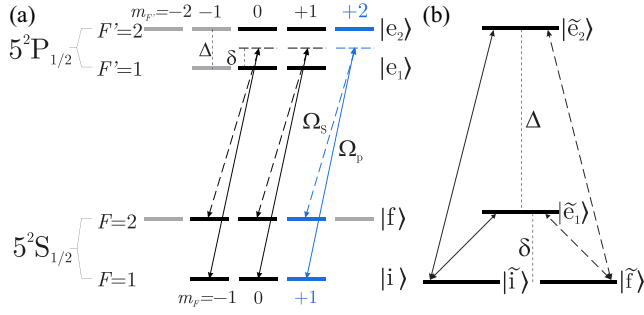


FIG. 1. (a) Energy-level diagram corresponding to the ^{87}Rb D_1 line along with the transitions induced by the σ^+ -polarized pump (solid lines) and Stokes (dashed lines) beams. (b) Example of a separated four-level system in the rotated frame (see discussion in the main text).

system. Section III presents the results of numerical simulations of population transfer between two long-lived ground states of ^{87}Rb . This section analyzes the STIRAP efficiency in Doppler-free and Doppler-broadened media, comparing similarities and differences between the two cases. Conclusions are summarized in Sec. IV. Finally, the adiabatic conditions for STIRAP in the four-level system are derived in the Appendix.

II. THEORY OF STIRAP IN A FOUR-LEVEL SYSTEM

Consider the energy-level structure associated with the $5^2S_{1/2} \rightarrow 5^2P_{1/2}$ transition (D_1 line) in ^{87}Rb atoms [Fig. 1(a)]. The system has four hyperfine levels (two ground levels and two excited levels) of rich magnetic-sublevel structures. To provide the ability to excite only a given pair of states, the spectral widths of the Stokes and pump pulses must be narrower than the splitting of long-lived hyperfine ground states $|i\rangle$ and $|f\rangle$, i.e.,

$$T_{S,P} \gg \frac{\hbar}{\Delta E}, \quad (1)$$

where ΔE is the energy splitting of the ground levels and T_S (T_P) is the duration of the Stokes (pump) pulse. Under such conditions, the Stokes pulse does not excite the atoms that reside in the initial state $|i\rangle$ and the pump light does not excite the atoms present in the final state $|f\rangle$. To fulfill this condition in the considered case of ^{87}Rb atoms ($\Delta E/\hbar \approx 6.8$ GHz), the pulses must last at least 100 ps.

Assuming that the polarizations of the Stokes and the pump beams are the same (here, we considered σ^+ -polarized light), the selection rules indicate that the considered 16-level system can be decomposed into three independent subsystems, two of which are four-level systems [in Fig. 1(a) marked in black] and one of which is a three-level system (marked in blue). The remaining five gray-colored states denote the sublevels that do not participate in STIRAP and hence are neglected in our considerations.

Let us now focus on a single four-level subsystem. Using the standard dipole approximation, one can write an explicit form of the Hamiltonian of the system, which, within the rotating-wave approximation (RWA) [see Fig. 1(b)], takes the

form

$$H = \hbar \begin{pmatrix} \delta & 0 & C_{ie_1}\Omega_P(t) & C_{ie_2}\Omega_P(t) \\ 0 & \delta & C_{fe_1}\Omega_S(t) & C_{fe_2}\Omega_S(t) \\ C_{ie_1}^*\Omega_P(t) & C_{fe_1}^*\Omega_S(t) & 0 & 0 \\ C_{ie_2}^*\Omega_P(t) & C_{fe_2}^*\Omega_S(t) & 0 & \Delta \end{pmatrix}. \quad (2)$$

Here δ is the one-photon detuning, Δ is the frequency splitting of the excited levels, and C_{xy} denotes the coupling constant between the states $|\tilde{x}\rangle$ and $|\tilde{y}\rangle$ given in the rotated basis (see the Appendix). In the considerations, light beams satisfy the two-photon resonance condition ($\omega_S - \omega_P = \Delta E/\hbar$, where ω_S and ω_P are the carrier frequencies of the Stokes and pump beams, respectively), and $\Omega_S(t)$ [$\Omega_P(t)$] is the slowly varying Rabi frequency of the Stokes (pump) beam (for more details see the Appendix).

In general, the diagonalization of a four-level system leads to eigenstates that are nontrivial superpositions of all four unperturbed states. However, there are two cases in which the STIRAP-generated dark state is similar to the dark state of conventional three-level STIRAP [30]. The first case (I) occurs when the couplings of both excited states to the corresponding ground states are equal up to the sign, i.e., $C_{ie_1} = \pm C_{ie_2}$ and $C_{fe_1} = \pm C_{fe_2}$. The second case (II) is associated with the situation where the ground states are coupled equally to the corresponding excited states, i.e., $C_{ie_1} = \pm C_{fe_1}$ and $C_{ie_2} = \pm C_{fe_2}$. Due to the Clebsch-Gordan coefficients, these conditions can be achieved in ^{87}Rb only for the same circular polarization of both beams. If these conditions are met, the four-level dark state is given by the standard formula [15]

$$|\delta\rangle = \cos \vartheta(t)|\tilde{i}\rangle - \sin \vartheta(t)|\tilde{f}\rangle, \quad (3)$$

where ϑ is the mixing angle determined by

$$\tan \vartheta(t) = \frac{\Omega_P(t)}{a\Omega_S(t)}, \quad (4)$$

and $a = (C_{ie_1}/C_{fe_1})^*$. The corresponding eigenenergy of the dark state is equal to $\hbar\delta$, where δ is one-photon detuning. In the rotated basis, the energies of the excited states $|\tilde{e}_1\rangle$ and $|\tilde{e}_2\rangle$ are zero and $\hbar\Delta$, respectively. The coupling between the ground and excited states modifies the eigenstates and significantly shifts the eigenenergies. The coupling of each excited state with both ground states leads to avoided crossings at $\delta = 0$ and Δ . The linear dependence of the dark state on δ results in a level crossing of the dark state with one of the eigenstates, provided by the lack of coupling between the ground levels. The crossing occurs between zero and Δ , $0 < \delta < \Delta$ (see Fig. 2). In the two cases I and II described above, the crossing positions take different values. Specifically, when both excited states are equally strong coupled to the ground states (case I) both avoided crossings have the same widths and the level crossing occurs exactly in the middle between the two avoided crossings $\delta_{(I)} = \Delta/2$ [Fig. 2(a)]. However, in the other case, the avoided crossings have unequal widths due to unequal coupling strengths, and the position of the level crossing is given by $\delta_{(II)} = \Delta|C_{ie_1}|^2/(|C_{ie_1}|^2 + |C_{ie_2}|^2)$. These two cases are shown in Fig. 2.

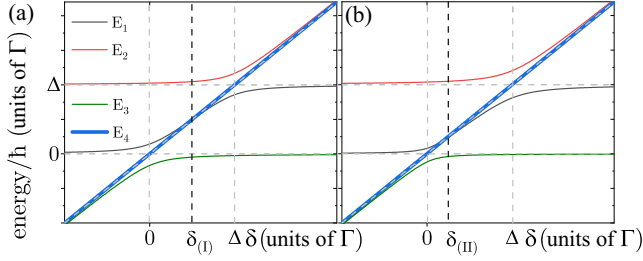


FIG. 2. Eigenenergies of a system as functions of the one-photon detuning δ for equal pump and Stokes Rabi frequencies, $\Omega_s(t) = \Omega_p(t)$. Couplings are equal for both ground (a) and both excited (b) states. Solid lines denote the eigenvalues of the Hamiltonian (2). The thick blue line corresponds to the dark state, whereas the dashed gray lines correspond to the bare energies of states $|i\rangle$, $|f\rangle$, $|e_1\rangle$, and $|e_2\rangle$. The dashed black line indicates the intersection of the curves.

The adiabaticity of the standard three-level STIRAP is guaranteed by global and local adiabatic conditions [19,41]. The presence of the fourth state modifies the eigenstates of the system, so that the standard adiabatic conditions are no longer valid. In the Appendix, we derived a modification of LAC, taking into account the existence of the additional excited state. The condition takes the form

$$\min_{y \neq \delta} |E_y - \hbar\delta| \gg \hbar|a| \frac{|\Omega_p(t)\dot{\Omega}_s(t) - \Omega_s(t)\dot{\Omega}_p(t)|}{\Omega_p^2(t) + |a|^2\Omega_s^2(t)}, \quad (5)$$

where y indicates all eigenstates except the dark state. The condition states that the Stokes and pump pulse smoothness and their overlap are upper bounded by the minimal separation between the dark state and the closest-lying eigenstate. Since in the considered case there is a level crossing, the left-hand side of Eq. (5) is equal to zero. This implies that regardless of pulse smoothness, LAC is not fulfilled, leading to a significant deterioration of the population-transfer efficiency at $\delta_{(I)}$ or $\delta_{(II)}$.

It should be finally stressed that although identical results can be achieved for σ^- -polarized light (polarization π is outside our interest due to the existence of a forbidden transition between the magnetic sublevels of $m_F = 0$ of the states of the same total angular momentum, $F = F'$), the approach does not work for different pump- and Stokes-beam polarizations. In this case, there is no eigenstate that has a vanishing overlap with any of the excited states. Thereby, the excited states are always partially populated, which, through spontaneous emission, compromises the coherence of the transfer. Yet, it can be shown that even in this case there is an eigenstate which, asymptotically in time, behaves like the STIRAP dark state [30]. That is, for $t \rightarrow -\infty$ it behaves like $|i\rangle$, and for $t \rightarrow \infty$ it transforms to $|f\rangle$.

III. RESULTS AND DISCUSSION

In this section, we investigate the transfer of population between two hyperfine ground states of ^{87}Rb . While in the rotating frame the states are degenerate, they can still be individually addressed by the Stokes and pump beams. The excited states $|e_1\rangle$ ($F' = 1$) and $|e_2\rangle$ ($F' = 2$) are separated by

$\Delta = 140\Gamma$, where Γ is the relaxation rate of the excited state. Each of the states is characterized by an additional magnetic-sublevel structure. For the simulations, we assume the equal population of all sublevels of the $F = 1$ state (the state $|i\rangle$) and no population in the $F = 2$ state (the state $|f\rangle$), or in any of the excited states. The system interacts with two Gaussian-shaped light pulses, $\Omega_{s,p}(t) = \Omega^0 \exp[-(t - \tau_{s,p})^2/(2T^2)]$, where $\tau_{s,p}$ are the delays of the Stokes and pump pulses, respectively, Ω^0 is the amplitude of the pulses, and T is their duration. The arbitrarily chosen pulse duration is $T = 300\frac{1}{\Gamma}$ for both pulses ($T = T_s = T_p$) and the separation of the pulses is $200\frac{1}{\Gamma}$. In our analysis, we consider the same circular polarization of the Stokes and pump beams (σ^+ polarization). Evolution of such a 16-level system is calculated by the numerical solution of the master equation [42,43].

Figure 3 presents the efficiency of population transfer in three subsystems specified in the previous section, i.e., two four-state subsystems (first involving the $m_F = -1$ ground-state sublevels and second the $m_F = 0$ sublevels), and the three-level subsystem, accounting for the $m_F = 1$ sublevels. Transfer efficiency is defined as the ratio of the final population of the state $|f\rangle$ to the initial population of the state $|i\rangle$. The color maps show the efficiency as a function of one-photon detuning δ and the Rabi-frequency amplitude Ω^0 . Regardless of the subsystem, failure of STIRAP can be observed at low Rabi-pulse amplitudes. This stems from the violation of the global adiabatic condition (light power is too weak to generate a strong superposition of ground and excited levels) [19]. For a higher Rabi frequency, only a single maximum is observed in the three-level system in the transfer efficiency measured versus the one-photon detuning. At the same time, in the four-level subsystems, where an additional excited level is present, two maxima are observed at the zero and 140Γ detunings. Each of them corresponds to STIRAP involving different excited states. Interestingly, however, the transfer efficiency drops almost to zero for a specific detuning between the two maxima. This is clearly visible in the cross sections shown in Figs. 3(b) and 3(e). The positions of the minima at $\delta = 70\Gamma$ [Fig. 3(b)] and $\delta = 35\Gamma$ [Fig. 3(e)] are determined by violation of LAC and agree well with the discussion presented in Sec. II. Moreover, for the case presented in Fig. 3(e), one can see that the efficiency plateau is not symmetric with respect to the $0 < \delta < \Delta$ region. Specifically, the plateau extends further toward positive detunings due to the stronger avoided crossing at $\delta = \Delta$ than at $\delta = 0$ (case II). Another interesting feature visible in the maps includes the dark blue vertical stripes shown in Figs. 3(d) and 3(g). The stripes indicate the transfer efficiency higher than unity. Although this excess may appear at first sight to be wrong, it is a result of additional repopulation of the level via spontaneous emission from different excited states (incoherent pumping). In fact, this process is present when LAC is violated, and a non-negligible population arises in the excited states. At the same time, the sublevel of $m_F = -1$ is repopulated only by itself [42], so there is no excess of the population relative to the initial-state population.

For a better understanding of the detuning dependences, Figs. 3(c), 3(f), and 3(i) show the energy difference between the dark state and other eigenstates. As shown, one of

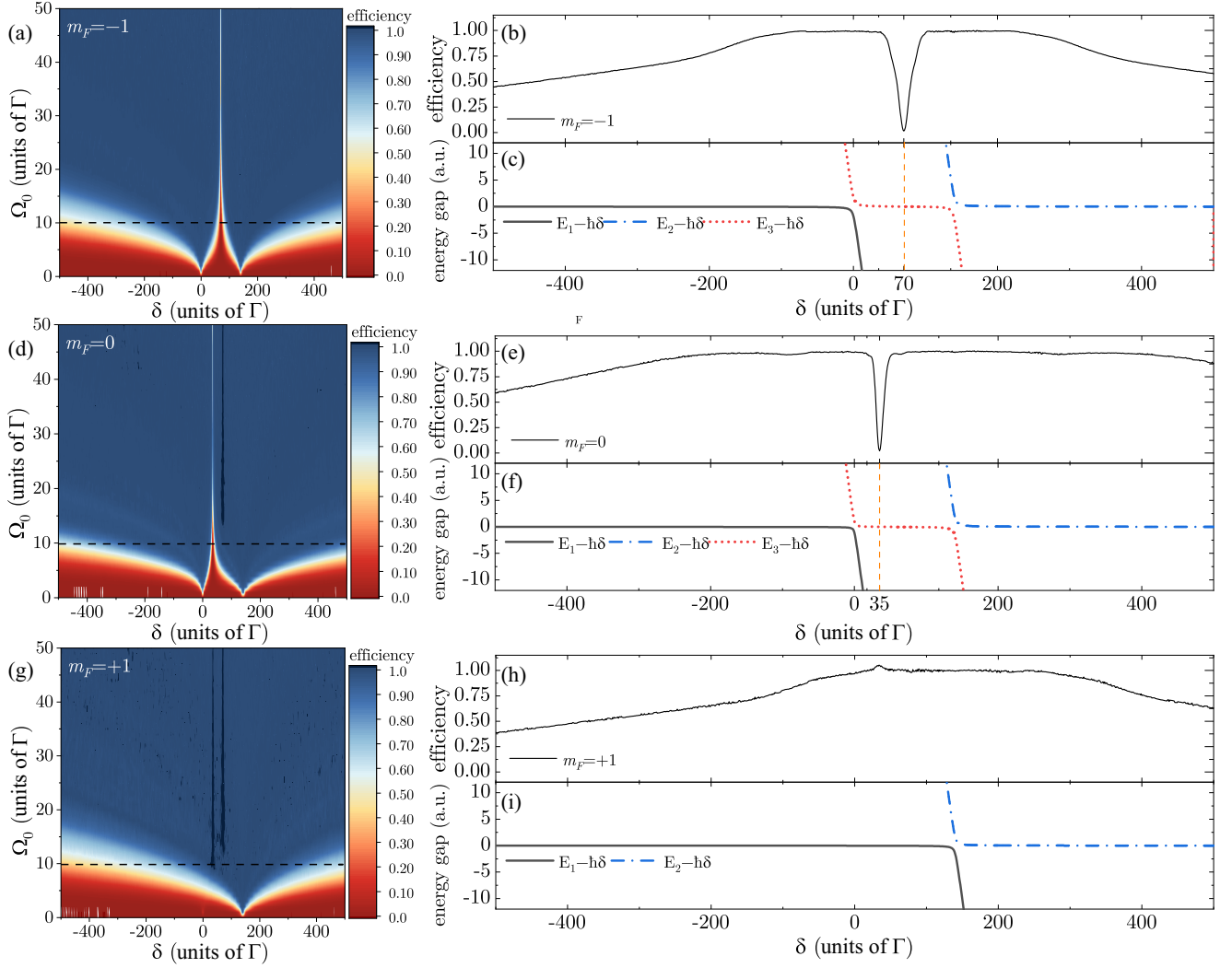


FIG. 3. Efficiency of population transfer from the $m_F = -1$ (a)–(c), $m_F = 0$ (d)–(f), and $m_F = +1$ (g)–(i) sublevels of the $F = 1$ state of the full manifold of states of the ^{87}Rb D_1 line. (a), (d), (g) Efficiency of the population transfer vs Rabi-frequency amplitude Ω_0 and one-photon detuning δ in the natural-linewidth units. (b), (e), (h) Cross sections through the maps at Rabi-frequency amplitude 10Γ , marked by a dashed line. (c), (f), (i) Energy separation $E_i - \hbar\delta$ (solid black, dotted red, and dash-dotted blue lines) as a function of the one-photon detuning δ . Vertical dashed lines indicate the positions of the minimum transfer efficiency, and the energy gap is given in arbitrary units.

the eigenstates (dotted red line) crosses with the dark state (dashed orange line) at 70Γ [Fig. 3(c)] and 35Γ [Fig. 3(f)]. This clearly demonstrates the relationship between the reduction in transfer efficiency and the violation of LAC [Eq. (5)].

Reduction of the efficiency of population transfer in a specific subsystem for given detunings can be used for control over the population transfer, even when resonant pulses are used. Specifically, by tuning the light, one can effectively “turn off” the transfer from the specific. For example, using the σ^+ -polarized light of $\delta = \delta_{(I)}$ ($\delta = \delta_{(II)}$) enables one to block the transfer from the $m_F = -1$ ($m_F = 0$) magnetic sublevel. In the same manner, σ^- -polarized light allows one to “block” the transfer from the $m_F = 1$ sublevel. So far, this kind of control and selectivity in the transfer has required the use of a magnetic field, which splits the Zeeman sublevels so strongly that they can be independently addressed [38–40]. With our technique, the transfer is controlled even if the magnetic sublevels are degenerate.

The dependence of population-transfer efficiency on the one-photon detuning δ plays an important role in room-temperature atomic vapors. In such systems, the Doppler broadening of the transition is about two orders of magnitude larger than the excited-state relaxation rate (natural width). In turn, the overall efficiency of STIRAP is affected by atoms that are Doppler tuned to $\delta_{(I)}$ or $\delta_{(II)}$. Figure 4 presents the transfer efficiency to the $m_F = -1$ sublevel versus one-photon detuning δ and rubidium-vapor temperature. As shown above for $\delta = \delta_{(II)}$, the efficiency suffers from the LAC violation at low temperature and no transfer is observed. However, the efficiency of the transfer increases with temperature [see Fig. 4(b)], which limits the control over the system. On the other hand, the maximum transfer efficiency (efficiencies integrated over the velocity distribution) decreases with temperature. For instance, the efficiency for the room-temperature vapor, interacting with the light of Rabi amplitude 10Γ and zero detuning ($\delta = 0$), decreases from 99.9 to 93.5%

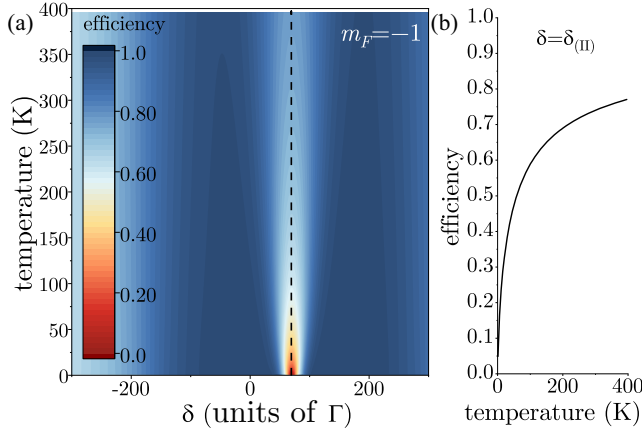


FIG. 4. (a) Population transfer calculated for a subsystem of $m_F = -1$ as a function of the one-photon detuning δ and temperature at peak Rabi frequency 10Γ . (b) Population of the final state at $\delta = \delta_{(II)}$ vs temperature (the position is denoted by the black, dashed line).

compared to the cold atomic ensemble. This behavior may be a problem in the applications of STIRAP in quantum-state engineering with hot atomic vapors.

IV. CONCLUSIONS

In summary, we theoretically investigated coherent population transfer between two long-lived ground states of ^{87}Rb excited at the D_1 line. The transfer is based on the well-established STIRAP method. With our analysis, we showed that the 16-level system of rubidium can be decomposed into three- and four-level independent subsystems. Among them, of particular interest, was the four-level system. The efficiency of the transfer between two ground states was investigated with respect to parameters such as Stokes or probe-pulse amplitude and one-photon detuning. With our analysis, we demonstrated control over the transfer of population from specific magnetic sublevels. Such a control is achieved by tuning the light to the specific regions where the local adiabatic condition is not fulfilled.

In contrast to the previous approaches [38–40], our technique enables population transfer from all magnetic sublevels and selectively blocks a given transfer channel. This opens interesting possibilities for tailoring complex quantum states, e.g., to generate hyperfine coherences between specific magnetic sublevels. Moreover, as will be shown in the future [44], it can be used to transfer quantum states between two energy manifolds (ground-state hyperfine levels), preserving both states' populations and coherences. In this context, the

previous approaches covering application of additional magnetic fields or strong light beams not only complicate an experimental setup but more importantly jeopardize such a transfer (the coherences are randomized or destroyed). The ability of more complex control over the quantum system may be of particular interest for engineering and tomography of long-lived quantum states in atomic vapors [45–48].

ACKNOWLEDGMENTS

The authors thank Nikolai Vitanov for the stimulating discussions, and Piotr Sierant and Piotr Machajek for numerous valuable suggestions. This project was supported by the National Science Center, Poland, under Grants No. 2019/34/E/ST2/00440 and No. 2020/N17/MNW/000015. A.S. acknowledges support from the Government of Spain (Severo Ochoa Grant No. CEX2019-000910-S), Fundació Cellex, Fundació Mir-Puig, and Generalitat de Catalunya (CERCA, AGAUR). This research was supported in part by the Excellence Initiative—Research University at the Jagiellonian University in Kraków.

APPENDIX

1. Hamiltonian of the system

We consider a four-level system with two hyperfine ground levels and two hyperfine excited levels. The electric fields of the Stokes and pump beams are given by

$$\mathbf{E}_{S,p}(t) = \epsilon E_{S,p}^0 f_{S,p}(t) \cos(\omega_{S,p}t), \quad (\text{A1})$$

where E_S^0 (E_p^0) is the electric-field amplitude of the Stokes (pump) light pulse, $f_S(t)$ [$f_p(t)$] is the slowly varying Gaussian envelope of the pulses with normalized amplitudes, ω_S (ω_p) is the Stokes (pump) light frequency, and ϵ is the light polarization vector that is identical for both beams. We use the standard dipole approximation, with the interaction term $V_E = -\mathbf{E} \cdot \mathbf{d}$, where $\mathbf{d}$ is the electric dipole moment. The Hamiltonian can be converted to the rotating frame by using a rotation generator given by $\text{diag}(\omega_p, \omega_S, 0, 0)$. We assume that both ground and both excited states are coupled with the beams and two-photon resonance is fulfilled, i.e.,

$$\omega_S - \omega_p = \frac{\Delta E}{\hbar}, \quad (\text{A2})$$

where ΔE is the energy difference between the initial and final states. In this case, the off-diagonal elements of the Hamiltonian contain both stationary and oscillatory terms. In RWA we neglect the terms oscillating at $2\omega_p$, $2\omega_S$, and $\omega_p + \omega_S$, which allows us to write the Hamiltonian as

$$H = \hbar C \bullet \left\{ \begin{pmatrix} \delta & 0 & \Omega_p(t) & \Omega_p(t) \\ 0 & \delta & \Omega_S(t) & \Omega_S(t) \\ \Omega_p(t) & \Omega_S(t) & 0 & 0 \\ \Omega_p(t) & \Omega_S(t) & 0 & \Delta \end{pmatrix} + \left[e^{-i(\Delta E/\hbar)t} \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \Omega_p(t) & \Omega_p(t) \\ \Omega_S(t) & 0 & 0 & 0 \\ \Omega_S(t) & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} + \text{H.c.} \right] \right\}, \quad (\text{A3})$$

where $\hbar\Delta$ is the energy difference between the excited states, δ is the one-photon detuning, and $\Omega_S(t)$ [$\Omega_p(t)$] is the slowly varying Rabi frequency of the Stokes (pump) beam given by $\Omega_{S,p}(t) = E_{S,p}^0 f_{S,p}(t)/(2\hbar)\langle 1/2 || \hat{\mathbf{d}} || 1/2 \rangle$, with the reduced matrix

element $\langle 1/2 \| \hat{\mathbf{d}} \| 1/2 \rangle$ defined as in Ref. [49]. Note that the reduced matrix element is expressed by the quantum number J , which is convenient when the excitation of alkali-metal atoms is considered on the D_1 line. $\mathcal{C}$ is the coupling-constant matrix

$$\mathcal{C} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & C_{1m_F, 1m_{F'}} & C_{1m_F, 2m_{F'}} \\ 0 & 0 & C_{2m_F, 1m_{F'}} & C_{2m_F, 2m_{F'}} \\ C_{1m_F, 1m_{F'}}^* & C_{2m_F, 1m_{F'}}^* & 0 & 0 \\ C_{1m_F, 2m_{F'}}^* & C_{2m_F, 2m_{F'}}^* & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (\text{A4})$$

with $\bullet$ representing the elementwise or Hadamard product ($[A \bullet B]_{ij} = A_{ij}B_{ij}$). The coupling-constant matrix elements $C_{Fm_F F'm_{F'}}$ are given by

$$C_{Fm_F, F'm_{F'}} = (-1)^{3/2+I+F'} \sqrt{(2F+1)} \langle F'm_{F'} | 1qFm_F \rangle \begin{Bmatrix} 1/2 & F & I \\ F' & 1/2 & 1 \end{Bmatrix}, \quad (\text{A5})$$

where q is the index of light polarization in the spherical basis and I is the nuclear quantum number. Since the RWA Hamiltonian (A3) contains the term oscillating at the frequency $\Delta E/\hbar$, to simplify the description of STIRAP evolution, it is necessary to consider a regime where the term effectively averages to zero. To ensure that, the oscillation period, $T_{\text{osc}} = \hbar/\Delta E$, needs to be much shorter than the slowly varying envelope characteristic times $T_{S,p}$:

$$T_{S,p} \gg \frac{\hbar}{\Delta E}, \quad (\text{A6})$$

which is manifested in Eq. (1) in the main text. Under such conditions, the RWA Hamiltonian (A3) takes the form

$$H = \hbar \begin{pmatrix} \delta & 0 & C_{1m_F, 1m_{F'}} \Omega_p(t) & C_{1m_F, 2m_{F'}} \Omega_p(t) \\ 0 & \delta & C_{2m_F, 1m_{F'}} \Omega_S(t) & C_{2m_F, 2m_{F'}} \Omega_S(t) \\ C_{1m_F, 1m_{F'}}^* \Omega_p(t) & C_{2m_F, 1m_{F'}}^* \Omega_S(t) & 0 & 0 \\ C_{1m_F, 2m_{F'}}^* \Omega_p(t) & C_{2m_F, 2m_{F'}}^* \Omega_S(t) & 0 & \Delta \end{pmatrix} \quad (\text{A7})$$

where the Stokes (pump) beam interacts only with the final (initial) state.

2. ^{87}Rb

In the main paper, we consider ^{87}Rb atoms coupled with σ^+ -polarized light, resonant at the D_1 line. For such a system, one can distinguish only two classes of Hamiltonians, I and II. In case I, the Hamiltonian is given by

$$H_{\text{I}} = \hbar \begin{pmatrix} \delta & 0 & -\frac{\Omega_p(t)}{2\sqrt{6}} & -\frac{\Omega_p(t)}{2\sqrt{6}} \\ 0 & \delta & \frac{\Omega_S(t)}{2\sqrt{2}} & \frac{\Omega_S(t)}{2\sqrt{2}} \\ -\frac{\Omega_p(t)}{2\sqrt{6}} & \frac{\Omega_S(t)}{2\sqrt{2}} & 0 & 0 \\ -\frac{\Omega_p(t)}{2\sqrt{6}} & \frac{\Omega_S(t)}{2\sqrt{2}} & 0 & \Delta \end{pmatrix}. \quad (\text{A8})$$

One of the eigenstates of the Hamiltonian H_{I} is a dark state of the form $|\delta(t)\rangle \propto \sqrt{3}\Omega_S(t)|\tilde{i}\rangle + \Omega_p(t)|\tilde{f}\rangle$, with the eigenenergy equal to $\hbar\delta$. The eigenenergies of other eigenstates are given by the roots of the Hamiltonian characteristic equation. It can be shown that if $\delta_{\text{I}} = \Delta/2$, there exists time t_0 at which $\Omega_p(t_0) = \Omega_S(t_0)$, and one of the other eigenenergies is also equal to $\hbar\Delta/2$, meaning that the dark state crosses with another eigenstate. The same applies to any case for which $C_{ie_1} = \pm C_{ie_2}$ and $C_{fe_1} = \pm C_{fe_2}$.

The case II Hamiltonian is given by

$$H_{\text{II}} = \frac{\hbar}{2\sqrt{6}} \begin{pmatrix} \delta & 0 & -\Omega_p(t) & -\sqrt{3}\Omega_p(t) \\ 0 & \delta & \Omega_S(t) & \sqrt{3}\Omega_S(t) \\ -\Omega_p(t) & \Omega_S(t) & 0 & 0 \\ -\sqrt{3}\Omega_p(t) & \sqrt{3}\Omega_S(t) & 0 & \Delta \end{pmatrix}. \quad (\text{A9})$$

In this case, the dark state is given by $|\delta(t)\rangle \propto \Omega_S(t)|\tilde{i}\rangle + \Omega_p(t)|\tilde{f}\rangle$, and the level crossing occurs at $\delta_{\text{II}} = \Delta/4$. For the general case of class II, i.e., $C_{ie_1} = \pm C_{fe_1}$ and $C_{ie_2} = \pm C_{fe_2}$, the crossing appears at $\delta_{\text{II}} = \Delta|C_{ie_1}|^2/(|C_{ie_1}|^2 + |C_{ie_2}|^2)$.

3. Local adiabatic condition

The LAC follows the adiabatic theorem [50], for which the necessary condition is that the eigenstates remain distinct from each other. The probability of a nonadiabatic transition from the dark state $|\delta(t)\rangle$ to an orthogonal eigenstate $|y(t)\rangle$ is upper bounded by

$$P_{|\delta\rangle \rightarrow |y\rangle} \lesssim \max_t \left| \frac{\langle y(t) | \frac{d}{dt} [|\delta(t)\rangle] }{E_{y(t)}/\hbar - \delta} \right|^2, \quad (\text{A10})$$

where $E_{y(t)}$ is the energy of the state $|y(t)\rangle$ and δ is the energy of the dark state. Importantly, if the above-mentioned energy separation is small, the evolution of the system must be slow enough so that the rate of change of the eigenstate in time is also small [see the derivative in the nominator in Eq. (A10)].

We are interested in the probability of transition of the system from the dark state $|\delta\rangle$ to an entire subspace $\mathcal{Q}_\delta$ orthogonal to the dark state. In general, finding the formula for all eigenstates in a four-level system is complicated. Moreover, the inability to find a compact form of the state $|y\rangle$ limits the usability of the formula (A10). Nevertheless, the probability that the system transits from the dark to any other state can be upper bounded by the overlap of $\frac{d}{dt}|\delta(t)\rangle$ with the entire $\mathcal{Q}_\delta$ subspace and dividing the result by the distance of the dark state to the closest eigenstate. This gives rise to

$$P_{|\delta\rangle\rightarrow\mathcal{Q}_\delta} \lesssim \max_t \left(\frac{|\mathcal{P}_{\mathcal{Q}_\delta}(\frac{d}{dt}|\delta(t)\rangle)|^2}{\min_y |E_{y(t)}/\hbar - \delta|^2} \right), \quad (\text{A11})$$

where $\mathcal{P}_{\mathcal{Q}_\delta}$ is the projection onto $\mathcal{Q}_\delta$. It is convenient to extend the subspace $\mathcal{Q}_\delta$ by a set of vectors $\{|\tilde{e}_1\rangle, |\tilde{e}_2\rangle, |\tilde{\delta}\rangle\}$:

$$|\tilde{\delta}(t)\rangle = \sin \vartheta(t)|\tilde{i}\rangle + \cos \vartheta(t)|\tilde{j}\rangle. \quad (\text{A12})$$

Note that $|\tilde{\delta}(t)\rangle$ is orthogonal to $|\delta(t)\rangle$ [given by Eq. (3)]. The derivative $\frac{d}{dt}|\delta(t)\rangle$ is proportional to $|\tilde{\delta}(t)\rangle$. Since the dark state $|\delta\rangle$ has no overlap with the excited states $|\tilde{e}_1\rangle$ and $|\tilde{e}_2\rangle$, the only nonvanishing contribution to the projection in the nominator of Eq. (A11) comes from the state $|\tilde{\delta}(t)\rangle$, thus

$$P_{|\delta\rangle\rightarrow\mathcal{Q}_\delta} \lesssim \max_t \left| \frac{|a| \frac{|\Omega_p(t)\dot{\Omega}_S(t) - \Omega_S(t)\dot{\Omega}_p(t)|}{\Omega_p^2(t) + |a|^2\Omega_S^2(t)}}{\min_y |E_{y(t)}/\hbar - \delta|} \right|^2. \quad (\text{A13})$$

One would like to keep the probability small, $P_{|\delta\rangle\rightarrow\mathcal{Q}_\delta} \ll 1$, during the entire STIRAP process. $P_{|\delta\rangle\rightarrow\mathcal{Q}_\delta}$ is of the same order of magnitude as the right-hand side of Eq. (A13) [50], thus it has to be much smaller than 1. This translates into the condition

$$\min_{y \neq \delta} |E_y/\hbar - \delta| \gg |a| \frac{|\Omega_p(t)\dot{\Omega}_S(t) - \Omega_S(t)\dot{\Omega}_p(t)|}{\Omega_p^2(t) + |a|^2\Omega_S^2(t)}, \quad (\text{A14})$$

which was used in the main text [Eq. (5)].

-
- [1] A. Acín, I. Bloch, H. Buhrman, T. Calarco, C. Eichler, J. Eisert, D. Esteve, N. Gisin, S. J. Glaser, F. Jelezko *et al.*, *New J. Phys.* **20**, 080201 (2018).
 - [2] M. D. Lukin, M. Fleischhauer, R. Cote, L. M. Duan, D. Jaksch, J. I. Cirac, and P. Zoller, *Phys. Rev. Lett.* **87**, 037901 (2001).
 - [3] A. Smith, B. E. Anderson, H. Sosa-Martinez, C. A. Riofrío, I. H. Deutsch, and P. S. Jessen, *Phys. Rev. Lett.* **111**, 170502 (2013).
 - [4] D. P. DiVincenzo, *Fortschr. Phys.* **48**, 771 (2000).
 - [5] I. Bloch, J. Dalibard, and S. Nascimbene, *Nat. Phys.* **8**, 267 (2012).
 - [6] J. L. O'Brien, *Science* **318**, 1567 (2007).
 - [7] N. Gisin, G. Ribordy, W. Tittel, and H. Zbinden, *Rev. Mod. Phys.* **74**, 145 (2002).
 - [8] A. I. Lvovsky, B. C. Sanders, and W. Tittel, *Nat. Photonics* **3**, 706 (2009).
 - [9] K. Heshami, D. G. England, P. C. Humphreys, P. J. Bustard, V. M. Acosta, J. Nunn, and B. J. Sussman, *J. Mod. Opt.* **63**, 2005 (2016).
 - [10] D. F. Phillips, A. Fleischhauer, A. Mair, R. L. Walsworth, and M. D. Lukin, *Phys. Rev. Lett.* **86**, 783 (2001).
 - [11] M. Lukin, *Rev. Mod. Phys.* **75**, 457 (2003).
 - [12] K. Hammerer, A. S. Sørensen, and E. S. Polzik, *Rev. Mod. Phys.* **82**, 1041 (2010).
 - [13] M. Hosseini, B. M. Sparkes, G. Campbell, P. K. Lam, and B. C. Buchler, *Nat. Commun.* **2**, 174 (2011).
 - [14] U. Gaubatz, P. Rudecki, S. Schiemann, and K. Bergmann, *J. Chem. Phys.* **92**, 5363 (1990).
 - [15] K. Bergmann, H. Theuer, and B. Shore, *Rev. Mod. Phys.* **70**, 1003 (1998).
 - [16] N. V. Vitanov, T. Halfmann, B. W. Shore, and K. Bergmann, *Annu. Rev. Phys. Chem.* **52**, 763 (2001).
 - [17] N. Vitanov, M. Fleischhauer, B. Shore, and K. Bergmann, *Adv. At. Mol. Opt. Phys.* **46**, 55 (2001).
 - [18] K. Bergmann *et al.*, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **52**, 202001 (2019).
 - [19] N. V. Vitanov, A. A. Rangelov, B. W. Shore, and K. Bergmann, *Rev. Mod. Phys.* **89**, 015006 (2017).
 - [20] B. W. Shore, *Adv. Opt. Photon.* **9**, 563 (2017).
 - [21] K. Bergmann, N. V. Vitanov, and B. W. Shore, *J. Chem. Phys.* **142**, 170901 (2015).
 - [22] Y.-X. Du, Z.-T. Liang, Y.-C. Li, X.-X. Yue, Q.-X. Lv, W. Huang, X. Chen, H. Yan, and S.-L. Zhu, *Nat. Commun.* **7**, 12479 (2016).
 - [23] M. A. Gearba, H. A. Camp, M. L. Trachy, G. Veshapidze, M. H. Shah, H. U. Jang, and B. D. DePaola, *Phys. Rev. A* **76**, 013406 (2007).
 - [24] K. Winkler, F. Lang, G. Thalhammer, P. Straten, R. Grimm, and J. H. Denschlag, *Phys. Rev. Lett.* **98**, 043201 (2007).
 - [25] J. G. Danzl, E. Haller, M. Gustavsson, M. J. Mark, R. Hart, N. Bouloufa, O. Dulieu, H. Ritsch, and H.-C. Nägerl, *Science* **321**, 1062 (2008).
 - [26] J. W. Park, S. A. Will, and M. W. Zwierlein, *Phys. Rev. Lett.* **114**, 205302 (2015).
 - [27] J. L. Sørensen, D. Møller, T. Iversen, J. B. Thomsen, F. Jensen, P. Staunum, D. Voigt, and M. Drewsen, *New J. Phys.* **8**, 261 (2006).
 - [28] G. Higgins, F. Pokorny, C. Zhang, Q. Bodart, and M. Hennrich, *Phys. Rev. Lett.* **119**, 220501 (2017).
 - [29] G. W. Coulston and K. Bergmann, *J. Chem. Phys.* **96**, 3467 (1992).
 - [30] N. V. Vitanov and S. Stenholm, *Phys. Rev. A* **60**, 3820 (1999).
 - [31] J. J. Fernández-Soler, J. L. Font, and R. Vilaseca, *Phys. Rev. A* **97**, 063848 (2018).
 - [32] X. Yang, Y. Huang, Z. Zhang, and X. Yan, *Opt. Commun.* **285**, 2101 (2012).
 - [33] M. Oberst, F. Vewinger, and A. Lvovsky, *Opt. Lett.* **32**, 1755 (2007).
 - [34] A. Kuhn, S. Steuerwald, and K. Bergmann, *Eur. Phys. J. D* **1**, 57 (1998).

- [35] L. Wang, X.-L. Song, A.-J. Li, H.-H. Wang, X.-G. Wei, Z.-H. Kang, Y. Jiang, and J.-Y. Gao, *Opt. Lett.* **33**, 2380 (2008).
- [36] T. Tiecke, Ph.D. thesis, University of Amsterdam, 2010.
- [37] J. Gong and S. A. Rice, *J. Chem. Phys.* **121**, 1364 (2004).
- [38] B. W. Shore, J. Martin, M. P. Fewell, and K. Bergmann, *Phys. Rev. A* **52**, 566 (1995).
- [39] J. Martin, B. W. Shore, and K. Bergmann, *Phys. Rev. A* **52**, 583 (1995).
- [40] J. Martin, B. W. Shore, and K. Bergmann, *Phys. Rev. A* **54**, 1556 (1996).
- [41] J. R. Kuklinski, U. Gaubatz, F. T. Hioe, and K. Bergmann, *Phys. Rev. A* **40**, 6741 (1989).
- [42] C. Cohen-Tannoudji, J. Dupont-Roc, and G. Grynberg, *Atom-Photon Interactions Basic Processes and Applications* (John Wiley & Sons, 1998).
- [43] M. Auzinsh, D. Budker, and S. Rochester, *Optically Polarized Atoms: Understanding Light-Atom Interactions* (Oxford University, New York, 2010).
- [44] A. Sierant, M. Kopciuch, and S. Pustelny (unpublished).
- [45] S. Pustelny, M. Koczwara, L. Cincio, and W. Gawlik, *Phys. Rev. A* **83**, 043832 (2011).
- [46] N. Davidson, H. J. Lee, C. S. Adams, M. Kasevich, and S. Chu, *Phys. Rev. Lett.* **74**, 1311 (1995).
- [47] I. H. Deutsch and P. S. Jessen, *Opt. Commun.* **283**, 681 (2010).
- [48] M. Kopciuch and S. Pustelny, *Phys. Rev. A* **106**, 022406 (2022).
- [49] I. I. Sobelman, *Atomic Spectra and Radiative Transitions*, Springer Series on Atomic, Optical, and Plasma Physics, Vol. 12 (Springer, New York, 2012).
- [50] A. Messiah, *Quantum Mechanics* (North-Holland, Amsterdam, 1962), Vol. 2.

Podsumowanie

Celem niniejszej pracy był rozwój oraz zastosowanie metod tomografii stanów kwantowych w ciepłych parach atomowych metali alkalicznych umieszczonych w komórkach szklanych z antyrelaksacyjnym pokryciem ścian. W ramach pierwszego artykułu [A] przedstawiono teoretyczny model umożliwiający realizację tomografii stanów kwantowych w ciepłych parach atomowych. Opis ten stanowi ogólny fundament pozwalający na sformułowanie równań potrzebnych do analizy dynamiki układów kwantowych oraz implementację kwantowej tomografii w dowolnym układzie spinowym realizowanym w ciepłych parach. Jest to również podstawa, na której opierają się dalsze prace. Kolejny artykuł [C] przedstawia eksperymentalną realizację tego protokołu. W artykule tym została również przedstawiona dyskusja stabilności procesu rekonstrukcji stanów, która pozwala na zoptymalizowanie tego procesu poprzez uodpornienie go na multiplikowanie błędów oraz niepewności pomiarowych. Technika ta może być i została wykorzystana m.in. jako podstawowe narzędzie do weryfikacji protokołów inżynierii stanów kwantowych [D].

Drugim zagadnieniem, które analizowane było w ramach niniejszej pracy była inżynieria stanów kwantowych. Zagadnienie to eksplorowane było w różnych kontekstach. Pierwszym z nich było wiarygodne przygotowanie stanów kwantowych wykorzystywanych w tomografii. W ramach tych badań z jednej strony opracowano metody numeryczne, z drugiej zaś zoptymalizowano doświadczalnie proces pompowania optycznego. Ta druga technika pozwoliła na uzyskanieżądanego stanu początkowego z jednoczesnym całkowitym opróżnieniem drugiego stanu nadsubtelnego. Kolejnym zagadnieniem zakrawającym o inżynierię stanów było przygotowanie a następnie zbadanie właściwości stanów PQP [D], które są klasą stanów metrologicznych pozwalających na zoptymalizowanie czułości pomiaru obrotów wokół trzech ortogonalnych osi. Na koniec przedstawiona została analiza procesu STIRAP w ramach linii D_1 rubidu-87 wraz z charakterystycznym efektem spadku efektywności transferu, który wynika z obecności dodatkowego, bliskoleżącego czwartego poziomu energetycznego.

Osiągnięty w ramach prezentowanego cyklu artykułów postęp przyczynia się do ukonstytuowania roli ciepłych par atomowych w komórkach z pokryciem parafinowym jako ośrodka do badań nowo opracowanych koncepcji z zakresu metrologii kwantowej. Z drugiej strony wiarygodna i odporna na błędy pomiarowe procedura tomografii stanów pozwoli w przyszłości na badanie nie tylko własności samych stanów, ale również procesów kwantowych. Ten fakt w połączeniu z możliwością pełnego polaryzowania badanych ośrodków oraz wciąż rozwijaną w tym kontekście techniką STIRAP, umożliwi badanie niehermitowskich dynamik, które z jednej strony pozwalają na głębsze zrozumienie fundamentów kwantowego świata, a z drugiej, w których upatruje się kolejnych możliwości przekroczenia limitów czułości klasycznych urządzeń pomiarowych.

Bibliografia

- [1] K.-J. Boller, A. Imamoglu i S. E. Harris, „Observation of electromagnetically induced transparency”, *Phys. Rev. Lett.* **66**, 2593–2596 (1991).
- [2] O. Schmidt, R. Wynands, Z. Hussein i D. Meschede, „Steep dispersion and group velocity below $c/3000$ in coherent population trapping”, *Phys. Rev. A* **53**, R27 (1996).
- [3] N. V. Vitanov, A. A. Rangelov, B. W. Shore i K. Bergmann, „Stimulated Raman adiabatic passage in physics, chemistry, and beyond”, *Rev. Mod. Phys.* **89**, 015006 (2017).
- [4] K. Bergmann i in., „Roadmap on STIRAP applications”, *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* **52**, 202001 (2019).
- [5] M. Auzinsh, D. Budker i S. Rochester, *Optically Polarized Atoms: Understanding Light-atom Interactions* (OUP Oxford, New York, 2010).
- [6] H. Haken, H. Wolf, I. Deperasińska i J. Prochorow, *Atomy i kwanty: wprowadzenie do współczesnej spektroskopii atomowej* (Wydaw. Naukowe PWN, 1997).
- [7] J. J. Sakurai i J. Napolitano, *Modern Quantum Mechanics*, 3 wyd. (Cambridge University Press, Cambridge, 2020).
- [8] D. A. Steck, *Rubidium 87 D Line Data*, (maj 2024) <https://steck.us/alkalidata/rubidium87numbers.1.6.pdf>.
- [9] E. Arimondo, M. Inguscio i P. Violino, „Experimental determinations of the hyperfine structure in the alkali atoms”, *Rev. Mod. Phys.* **49**, 31–75 (1977).
- [10] A. Messiah, *Quantum Mechanics*, Quantum Mechanics v. 2 (Elsevier Science, 1961).
- [11] D. Budker i D. F. Jackson Kimball, red., *Optical Magnetometry* (Cambridge University Press, Cambridge, 2013).
- [12] C. Cohen-Tannoudji, J. Dupont-Roc i G. Grynberg, *Atom-Photon Interactions: Basic Processes and Applications* (Wiley, 1998).
- [13] K. Hammerer, A. S. Sørensen i E. S. Polzik, „Quantum interface between light and atomic ensembles”, *Rev. Mod. Phys.* **82**, 1041–1093 (2010).
- [14] F. Bloch i A. Siegert, „Magnetic Resonance for Nonrotating Fields”, *Phys. Rev.* **57**, 522–527 (1940).
- [15] J. Sudyka, „Przesunięcia poziomów energetycznych w precyzyjnej magnetometrii atomowej”, Available at https://zf.if.uj.edu.pl/sites/default/files/PhD_JSudyka_final.pdf, PhD thesis (Uniwersytet Jagielloński, Kraków, 2018).
- [16] J. Sudyka, S. Pustelny i W. Gawlik, „Limitations of rotating-wave approximation in magnetic resonance: characterization and elimination of the Bloch–Siegert shift in magneto-optics”, *New Journal of Physics* **21**, 023024 (2019).

- [17] S. Haroche i J.-M. Raimond, *Exploring the Quantum: Atoms, Cavities, and Photons* (Oxford University Press, sierp. 2006).
- [18] F. Reiter i A. S. Sørensen, „Effective operator formalism for open quantum systems”, *Phys. Rev. A* **85**, 032111 (2012).
- [19] I. H. Deutsch i P. S. Jessen, „Quantum control and measurement of atomic spins in polarization spectroscopy”, *Opt. Commun.* **283**, 681–694 (2010).
- [20] W. Happer, „Optical Pumping”, *Rev. Mod. Phys.* **44**, 169–249 (1972).
- [21] G. Colangelo, R. J. Sewell, N. Behbood, F. M. Ciurana, G. Triginer i M. W. Mitchell, „Quantum atom–light interfaces in the Gaussian description for spin-1 systems”, *New Journal of Physics* **15**, 103007 (2013).
- [22] W. Gawlik, L. Krzemień, S. Pustelny, D. Sangla, J. Zachorowski, M. Graf, A. O. Sushkov i D. Budker, „Nonlinear magneto-optical rotation with amplitude modulated light”, *Applied Physics Letters* **88**, 131108 (2006).
- [23] K. Blum, *Density Matrix Theory and Applications*, Physics of atoms and molecules (Springer, Berlin, 2013).
- [24] B. Julsgaard, A. Kozhekin i E. S. Polzik, „Experimental long-lived entanglement of two macroscopic objects”, *Nature* **413**, 400–403 (2001).
- [25] K. Hammerer, K. Mølmer, E. S. Polzik i J. I. Cirac, „Light-matter quantum interface”, *Phys. Rev. A* **70**, 044304 (2004).
- [26] H. Krauter, C. A. Muschik, K. Jensen, W. Wasilewski, J. M. Petersen, J. I. Cirac i E. S. Polzik, „Entanglement Generated by Dissipation and Steady State Entanglement of Two Macroscopic Objects”, *Phys. Rev. Lett.* **107**, 080503 (2011).
- [27] A. B. Matsko, I. Novikova, M. O. Scully i G. R. Welch, „Radiation Trapping in Coherent Media”, *Phys. Rev. Lett.* **87**, 133601 (2001).
- [28] M. Fleischhauer, „Optical pumping in dense atomic media: Limitations due to reabsorption of spontaneously emitted photons”, *Europhysics Letters* **45**, 659 (1999).
- [29] M. Klein, Y. Xiao, M. Hohensee, D. F. Phillips i R. L. Walsworth, *Stored light and EIT at high optical depths*, 2008.
- [30] W. Demtröder, *Laser Spectroscopy: Basic Concepts and Instrumentation*, Advanced Texts in Physics (Springer Berlin Heidelberg, 2002).
- [31] W. Happer i A. C. Tam, „Effect of rapid spin exchange on the magnetic-resonance spectrum of alkali vapors”, *Phys. Rev. A* **16**, 1877–1891 (1977).
- [32] H. M. Gibbs i R. J. Hull, „Spin-Exchange Cross Sections for Rb^{87} - Rb^{87} and Rb^{87} - Cs^{133} Collisions”, *Phys. Rev.* **153**, 132–151 (1967).
- [33] R. J. Knize, „Spin destruction in rubidium-rubidium and potassium-potassium collisions”, *Phys. Rev. A* **40**, 6219–6222 (1989).

- [34] W. Li, M. Balabas, X. Peng, S. Pustelny, A. Wickenbrock, H. Guo i D. Budker, „Characterization of high-temperature performance of cesium vapor cells with anti-relaxation coating”, *Journal of Applied Physics* **121**, 063104 (2017).
- [35] M. V. Balabas, T. Karaulanov, M. P. Ledbetter i D. Budker, „Polarized Alkali-Metal Vapor with Minute-Long Transverse Spin-Relaxation Time”, *Phys. Rev. Lett.* **105**, 70801 (2010).
- [36] D. Budker, L. Hollberg, D. F. Kimball, J. Kitching, S. Pustelny i V. V. Yashchuk, „Microwave transitions and nonlinear magneto-optical rotation in anti-relaxation-coated cells”, *Phys. Rev. A* **71**, 012903 (2005).
- [37] E. Zhivun, A. Wickenbrock, J. Sudyka, B. Patton, S. Pustelny i B. D., „Vector light shift averaging in paraffin-coated alkali vapor cells”, *Opt. Express* **14**, 15383–90 (2016).
- [38] M. Auzinsh, D. Budker i S. M. Rochester, „Light-induced polarization effects in atoms with partially resolved hyperfine structure and applications to absorption, fluorescence, and nonlinear magneto-optical rotation”, *Phys. Rev. A* **80**, 053406 (2009).
- [39] T. Scholtes, S. Pustelny, S. Fritzsche, V. Schultze, R. Stolz i H.-G. Meyer, „Suppression of spin-exchange relaxation in tilted magnetic fields within the geophysical range”, *Phys. Rev. A* **94**, 013403 (2016).
- [40] K. Atkinson, *An Introduction to Numerical Analysis* (Wiley, 1989).
- [41] M. Levitt, *Spin Dynamics: Basics of Nuclear Magnetic Resonance* (Wiley, 2001).
- [42] P. Put, „Ultra-Low and Truly Zero-Field Nuclear Magnetic Resonance”, Available at https://zf.if.uj.edu.pl/sites/default/files/Put_PhD_thesis_2022-compressed.pdf, PhD thesis (Uniwersytet Jagielloński, Kraków, 2022).
- [43] A. Miranowicz, Ş. K. Özdemir, J. ř. Bajer, G. Yusa, N. Imoto, Y. Hirayama i F. Nori, „Quantum state tomography of large nuclear spins in a semiconductor quantum well: Optimal robustness against errors as quantified by condition numbers”, *Phys. Rev. B* **92**, 075312 (2015).
- [44] M. Jiang, T. Wu, J. W. Blanchard, G. Feng, X. Peng i D. Budker, „Experimental benchmarking of quantum control in zero-field nuclear magnetic resonance”, *Science Advances* **4**, eaar6327 (2018).
- [45] S. Chaudhury, S. Merkel, T. Herr, A. Silberfarb, I. H. Deutsch i P. S. Jessen, „Quantum Control of the Hyperfine Spin of a Cs Atom Ensemble”, *Phys. Rev. Lett.* **99**, 163002 (2007).
- [46] A. Miranowicz, K. Bartkiewicz, J. Pe řina, M. Koashi, N. Imoto i F. Nori, „Optimal two-qubit tomography based on local and global measurements: Maximal robustness against errors as described by condition numbers”, *Phys. Rev. A* **90**, 062123 (2014).
- [47] A. Anirudh, K. Theodore i G. Mădălin, „A comparative study of estimation methods in quantum tomography”, *Journal of Physics A: Mathematical and Theoretical* **52**, 234001 (2019).

- [48] M. Paris i J. Rehacek, *Quantum State Estimation*, Lecture Notes in Physics (Springer, Berlin, 2004).
- [49] W. K. Wootters i B. D. Fields, „Optimal state-determination by mutually unbiased measurements”, *Annals of Physics* **191**, 363–381 (1989).
- [50] G. M. D’Ariano, P. Mataloni i M. F. Sacchi, „Generating qudits with $d = 3, 4$ encoded on two-photon states”, *Phys. Rev. A* **71**, 062337 (2005).
- [51] N. J. Higham, *Accuracy and Stability of Numerical Algorithms*, Second (Society for Industrial i Applied Mathematics, 2002).
- [52] G. H. Golub i C. F. Van Loan, *Matrix Computations - 4th Edition* (Johns Hopkins University Press, Philadelphia, 2013).
- [53] Y. I. Bogdanov, G. Brida, I. D. Bukeev, M. Genovese, K. S. Kravtsov, S. P. Kulik, E. V. Moreva, A. A. Soloviev i A. P. Shurupov, „Statistical estimation of the quality of quantum-tomography protocols”, *Phys. Rev. A* **84**, 042108 (2011).
- [54] C. Cohen-Tannoudji i A. Kastler, „I Optical Pumping”, w , t. 5, red. E. Wolf, *Progress in Optics* (Elsevier, 1966), s. 1–81.
- [55] S. M. Rochester i D. Budker, „Atomic polarization visualized”, *Amer. J. Phys.* **69**, 450–454 (2001).
- [56] O. Katz i O. Firstenberg, „Light storage for one second in room-temperature alkali vapor”, *Nature Communications* **9**, 2074 (2018).