

## 第二讲 分子束的静电 Stark 减速、静磁 Zeeman 减速和光学 Stark 减速技术\*

侯顺永 尹亚玲 印建平<sup>†</sup>

(华东师范大学 精密光谱科学与技术国家重点实验室 上海 200062)

2016-10-13收到

<sup>†</sup> email: jpyin@phy.ecnu.edu.cn

DOI: 10.7693/wl20170706

### Slowing molecular beams using electrostatic Stark deceleration, magnetostatic Zeeman deceleration and optical Stark deceleration

HOU Shun-Yong YIN Ya-Ling YIN Jian-Ping<sup>†</sup>

(State Key Laboratory of Precision Spectroscopy, East China Normal University, Shanghai 200062, China)

**摘要** 文章首先回顾了分子在外场中的三个效应及其冷分子被外场操控的基本原理,接着简单介绍利用分子与电磁场的相互作用来实现分子束减速的基本原理。随后详细介绍各种分子束减速的技术方案、实验结果及其最新研究进展,包括分子束的静电 Stark 减速、静磁 Zeeman 减速和光学 Stark 减速技术。最后,简单介绍了由上述减速技术获得的冷分子样品在冷碰撞物理、冷化学物理和精密测量物理等领域中的应用研究。

**关键词** 静电 Stark 减速, 静磁 Zeeman 减速, 光学 Stark 减速

**Abstract** We first introduce three effects arising from the interaction of electromagnetic fields with molecules, as well as the basic principle of manipulating cold molecules using external fields, including the deceleration of molecular beams using electromagnetic fields. Various deceleration methods for molecular beams involving electrostatic Stark deceleration, magnetostatic Zeeman deceleration and optical Stark deceleration will be given, together with the experimental results and recent research progress. Finally, we will briefly present the applications of cold molecules prepared by the above methods in the fields of cold collision, cold chemistry, and precision measurements.

**Keywords** electrostatic Stark deceleration, magneto-static Zeeman deceleration, optical Stark deceleration

## 1 引言

从上世纪末到现在,在世界范围掀起了研究冷分子的热潮,一系列制备冷分子的技术应运而

生,而分子束减速技术是其中最为有效的方法之一。减速后的分子不仅可用于冷分子实验,比如冷碰撞物理研究与精密测量,而且还可以作为下一步深度冷却的起点,比如激光冷却和蒸发冷却等。经过短短十几年的发展,分子减速技术(包括静电 Stark 减速、静磁 Zeeman 减速和光学 Stark 减速)已经逐步走向成熟。减速器的结构、形状及其功能得到了极大改善与提升,并逐渐向微型化、

\* 国家自然科学基金委重点资助项目(批准号: 91536218)和面上项目(批准号: 10904037, 10974055, 11034002, 11274114, 11374100, 11347194, 11404151 和 61205198); 国家重点基础研究发展计划(批准号: 2011CB921602); 国家自然科学基金委青年科学基金(批准号: 11504112)资助项目

集成化方向发展,为将来实现分子芯片以及量子计算奠定了基础,同时也为冷分子物理及其相关领域的研究提供了新的契机。本讲的主题是分子束减速技术,将从基本概念与原理、技术方案、最新进展以及应用等几个方面对这些技术进行简单综述与讲解。本讲首先回顾直流 Stark 效应、Zeeman 效应与交流 Stark 效应的基本概念,其次介绍分子束静电 Stark 减速、静磁 Zeeman 减速以及光学 Stark 减速的基本原理,接着介绍各种减速器的技术方案与实验结果及最新研究进展。最后在总结与展望中,简要说明了分子束减速技术在冷碰撞、冷化学、精密光谱和精密测量以及量子计算等领域中有广阔的应用前景。

## 2 外场中的三个效应及其冷分子操控的基本原理

### 2.1 直流 Stark 效应

1913 年斯塔克(Stark)在光谱实验中发现氢(H)原子巴耳末系的各谱线在强电场作用下发生谱线分裂的现象,称为斯塔克效应(Stark effect),为此获得了 1919 年的诺贝尔物理学奖。

对于极性分子,由于其内部电荷分布的不对称,因而拥有永久电偶极矩(permanent electric dipole moment,  $\mu_e$ )。于是,当极性分子在外电场中运动时,分子的内能级将发生 Stark 分裂,其能级分裂的间距与电场强度有关。这一分子能级的分裂现象称之为 Stark 效应,相应的能级分裂间距叫做 Stark 位移或电偶极相互作用势。因此,当一个具有电偶极矩为  $\mu_e$  的中性冷分子在非均匀电场  $E$  中运动,并且冷分子的运动满足绝热近似条件时,由于 Stark 效应,它将感受到如下的电偶极相互作用势:

$$U = -\mu_e \cdot E. \quad (1)$$

如果  $\mu_e$  平行于  $E$ ,则相互作用势是吸引势,分子将被吸引到电场强度的最大处,分子即处于强场搜寻态(strong-field-seeking state);反之,如果  $\mu_e$  反平行于  $E$ ,则相互作用势是排斥势,分子

将被排斥到电场强度最弱的地方,分子即处于弱场搜寻态(weak-field-seeking state)。因此,当冷分子的运动满足绝热近似条件时,采用静电场与分子的电偶极相互作用,即可实现冷分子的静电操纵与控制。

### 2.2 Zeeman 效应

1896 年塞曼(Zeeman)在观察磁场中钠(Na)火焰黄色双线时发现的谱线分裂现象,称为塞曼效应(Zeeman effect),为此获得了 1902 年的诺贝尔物理学奖(和洛伦兹一起)。

类似地,当一个具有磁偶极矩为  $\mu_b$  的顺磁性分子(或冷原子)在非均匀磁场  $B$  中运动,并且冷分子(冷原子)的运动满足绝热近似条件时,由于 Zeeman 效应,它将感受到如下的磁偶极相互作用势:

$$U = -\mu_b \cdot B. \quad (2)$$

如果  $\mu_b$  平行于  $B$ ,则相互作用势是吸引势,处于强场搜寻态(strong-field-seeking state)的分子(或原子)将被吸引到磁场强度的最大处;反之,如果  $\mu_b$  反平行于  $B$ ,则相互作用势是排斥势,处于弱场搜寻态(weak-field-seeking state)的分子(或原子)将被排斥到磁场强度最弱的地方。因此,当冷分子(或冷原子)的运动满足绝热近似条件时,采用静磁场与分子(或原子)的磁偶极相互作用,即可实现冷分子(或冷原子)的静磁操纵与控制。

### 2.3 交流 Stark 效应

处于非均匀光场中的中性分子(或原子)将感应出一个电偶极矩,从而因受到激光场的偶极相互作用而改变分子(或原子)的运动状态。这一分子(或原子)电偶极矩的激光感应现象通常称之为交流 Stark 效应。因此当一个分子(或原子)在非共振激光场中运动时,将受到光场的电偶极相互作用。分子与光场的电偶极相互作用哈密顿量可表示为

$$H_{int} = -d \cdot E = -\mu_e \cdot E - \frac{1}{2} E_\rho \alpha_{\rho\rho'} E_{\rho'}, \quad (3)$$

式中  $\mu_e$  是永久电偶极矩,  $\rho$  以及  $\rho'$  为空间固定的坐标。  $\alpha_{\rho\rho'}$  为极化张量,  $E$  为电场强度。根据埃伦费斯特(Ehrenfest)公式, 分子所受到的光场偶极力为

$$\mathbf{F} = -\langle \nabla H_{\text{int}} \rangle = \left\langle \boldsymbol{\mu} \cdot \nabla \mathbf{E} + \frac{1}{2} \nabla E_{\rho} \alpha_{\rho\rho'} E_{\rho'} \right\rangle. \quad (4)$$

在该式求平均的过程中, 永久电偶极矩产生的偶极作用力为零。因此, 分子与光场之间的偶极作用力为

$$\mathbf{F} = \frac{1}{2} \nabla \langle E_{\rho} \alpha_{\rho\rho'} E_{\rho'} \rangle. \quad (5)$$

若光场为沿着  $z$  方向的线偏振光, 那么(5)式可以简写为

$$\mathbf{F} = -\nabla U(\mathbf{r}), \quad (6)$$

式中  $U(\mathbf{r}) = -\frac{1}{2} \alpha_{zz} \langle \mathbf{E} \cdot \mathbf{E} \rangle$  为分子在光场中的偶极 Stark 势能。分子所受偶极力的方向与激光场的强度梯度, 方向与激光失谐量的正负有关。当激光为红失谐时, 光场偶极力指向光场强度最强的地方; 而当激光为蓝失谐时, 光场偶极力指向光场强度最弱的地方。因此, 利用红失谐(或蓝失谐)激光场与中性原子间的光学偶极相互作用, 即可实现冷分子(或冷原子)的激光操纵与控制。

### 3 分子束减速的基本原理(以 Stark 减速为例)

如果外场(电场、磁场或非共振光场)的梯度与分子的运动方向平行, 分子的纵向速度则会发

生改变。如图 1(a)所示, 当弱场搜寻态分子(即势能随场强增加而增加的分子)由弱场飞到强场区域时, 分子的 Stark 势能增加, 作为补偿(根据机械能守恒定律), 其动能减少, 也就是纵向速度降低。如果这时突然关闭电场, 由于惯性, 分子将以减速后的速度继续飞行, 这样便实现了对分子的减速。但是通常上述减速过程需要重复多次(比如 100 次), 分子的纵向速度才会被显著降低。图 1(b)是传统减速器的原理图。该减速器是由一系列周期性排列、相互垂直放置的电极组成。工作中 Stark 减速器奇数级与偶数级电极交替接高压或接地, 这样在沿减速器轴线方向形成周期性分布的非均匀电场, 如图 1(b)所示。当分子沿轴向进入 Stark 减速器时开始爬坡, 从而获得 Stark 势能, 同时分子的动能减小, 运动速度降低; 在分子达到最大场强之前快速切换电场, 使分子重新处于爬坡状态。经过多次重复, 原理上可以将分子减到任意速度。分子的静磁减速以及光学 Stark 减速与静电 Stark 减速的基本原理一样, 不同的是将外场换成了磁场及光场。

## 4 减速方案与实验结果

### 4.1 静电 Stark 减速

利用外场对粒子(原子或分子)的操控可以追溯到上世纪 20 年代著名的 Stern—Gerlach 实验<sup>[1]</sup>。该实验利用非均匀场对银原子的偏转证实了电子自旋的存在, 同时也开启了外场操控粒子束(原子或分子)横向运动的先河。为了实现对粒子束的纵向操控, 早在上世纪 50 年代已经有人提出利用多级 Stark 减速实现极性分子纵向减速的思想<sup>[2, 3]</sup>, 然而, 直到 1999 年才在实验上取得成功。也即从减速思想的提出到实验上成功, 中间经历了数十年的时间, 这是因为分子束减速实验需要满足如下条件: (1) 高密度的分子束; (2) 精确的时序

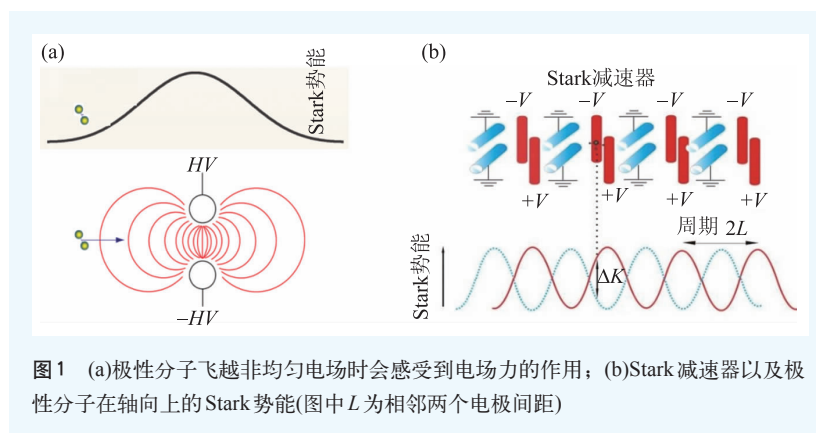


图 1 (a)极性分子飞越非均匀电场时会感受到电场力的作用; (b)Stark 减速器以及极性分子在轴向上的 Stark 势能(图中  $L$  为相邻两个电极间距)



控制；(3)稳定的三维(横向和纵向)相空间区域。超声分子束具有很高的分子束密度和良好的准直性，是分子束减速实验的理想束源。现代电子学的发展提供了足够快速的高压开关，这为精确时序控制铺平了道路。最后，实验上精巧设计的现代 Stark 减速器可以提供稳定的相空间区域，于是才诞生了现代静电 Stark 减速技术。1999年，Meijer 小组在国际上首次成功实现了一氧化碳(CO)分子的纵向减速，将该分子从 225 m/s 减速到 98 m/s<sup>[4]</sup>。图 2 是他们使用的 Stark 减速器。2000年，Meijer 小组用同一台实验装置减速了重氨(ND<sub>3</sub>)分子，并将其囚禁在静电阱中<sup>[5]</sup>。

随着第一次分子减速的成功，世界各地许多小组(包括我们华东师范大学冷分子小组也于 2010 年成功实现了超声 ND<sub>3</sub> 分子束的有效 Stark 减速)陆续开展了分子束静电 Stark 减速的实验研究，并且在功能和用途上逐步完善和发展。比如有可用于减速强场搜寻态分子的强场搜寻态减速器，有尺度仅有几公分的芯片减速器等。下面分别予以简单介绍。

#### 4.1.1 强场搜寻态分子减速器

2002 年，由 Meijer 小组首次实现强场搜寻态分子减速。顾名思义，该减速器适合于减速强场搜寻态分子。与弱场搜寻态分子减速器电极的构型不同，强场搜寻态减速器电极与分子运动轴平行，相邻两级电极在横向上相互垂直，如图 3 所示。这种电极又被称为 AG 透镜(alternating gradient lens)。分子在包含电极的平面内散焦，而在垂直面内聚焦。当分子沿轴线飞行时，透镜互相垂直放置，这样分子会在两个横向上被交互聚焦，而且聚焦作用强于散焦作用。当强场搜寻态分子进入透镜，分子在纵向会被加速，而分子离开透镜时，则被减速；只要准确控制透镜电压开关时序，分子既可以被纵向减速，也可以获得交互横向聚焦。第一个被减速的强场搜寻态分子是亚稳态 CO 分子<sup>[6]</sup>，减速器共包含 12 级 AG 透镜。随后被减速的强场搜寻态分子有 YbF<sup>[7]</sup>，C<sub>7</sub>H<sub>3</sub>N<sup>[8]</sup> 和 CaF<sup>[9]</sup> 等。近年来的研究表明，AG 减速器对电极的准直性非常敏感，如果 AG 透镜中加上非线性

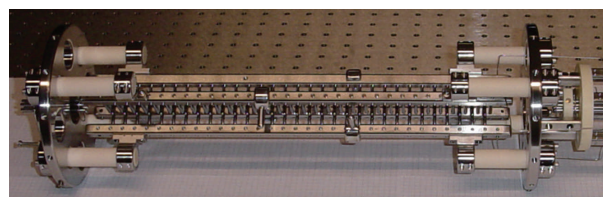


图 2 国际上首台成功的静电 Stark 减速器(Meijer 小组)

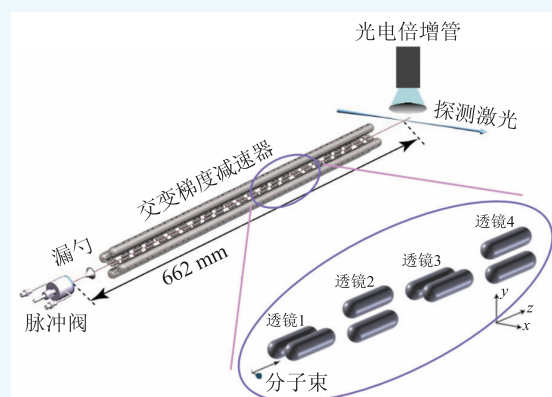


图 3 强场搜寻态分子减速器。电极与分子运动轴线方向平行，插图是电极的放大图(Meijer 小组)

聚焦项，分子在减速器传输过程中会遭受大量损失，因而强场搜寻态分子的高效减速问题至今尚未被真正解决。

#### 4.1.2 芯片减速器

2009 年，S. A. Meek 等人利用芯片减速器在几公分的距离之内将 CO 分子从几百米每秒的速度减速到静止<sup>[10]</sup>，并囚禁在芯片表面。实验方案如图 4(a)所示，芯片包含 1254 级宽为 10 μm、间距为 40 μm 的黄金电极，这些电极沉积在玻璃基底上。电极每隔两个互相连接在一起，所加电压为： $V_n(t) = \pm V_0 [1 + \cos(2\pi\nu t + \phi_n)]$ ，于是在芯片表面产生间距为 120 μm 的管状电场，导引管最小处距芯片表面 25 μm，导引管的尺寸为 20 μm。导引管以 120 μm × ν (ν 是调制频率，单位为 MHz) 的速度、25 μm 的恒定高度运动。当电压  $V_0 = 80$  V 时，静电阱深度为 4 kV/cm。对于亚稳态  $a^3 \prod_1(v' = 0, J' = 1)$  CO 分子，该阱深为 50 mK。当频率 ν 设定为 2.6 MHz 时，分子波包保持 312 m/s 的速度不变，当频率变为 2.0 MHz，1.4 MHz 和 0.8 MHz 时，分子波包被减速到 240 m/s，168 m/s 和 96 m/s。阱中分子的密度在 10<sup>7</sup>/cm<sup>3</sup> 量级，这与

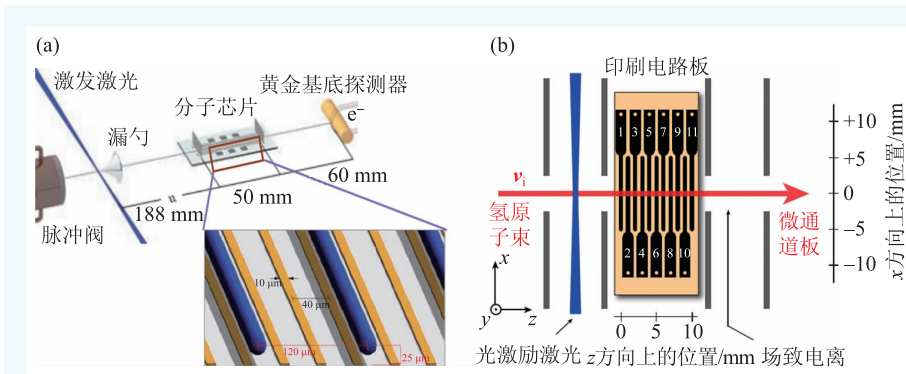


图4 (a)芯片减速器<sup>[10]</sup>; (b)芯片里德伯原子减速器<sup>[11]</sup>

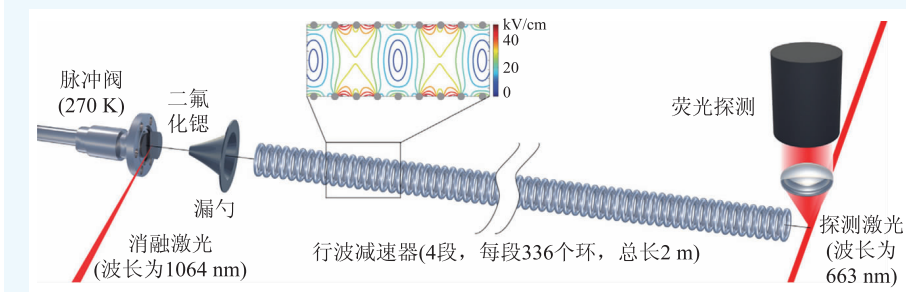


图5 行波减速器实验装置(插图为减速器内部电场分布)<sup>[13]</sup>

经过减速囚禁在宏观阱中的分子数密度相当。

2012年, S. D. Hogan 等人在印刷电路板表面将里德伯态H原子从760 m/s分别加速到1200 m/s和减速到静止并囚禁<sup>[11]</sup>, 装置如图4(b)所示。其工作原理与芯片分子减速器相似, 但由于里德伯态原子有很大的电偶极矩, 因此该印刷电路板仅包含11级电极。

#### 4.1.3 行波减速器

传统减速器的操控模式是通过精确切换减速器内两种静态电场构型(static configuration), 在减速器内部形成一个有效的移动静电阱。目前大多数减速器, 包括世界上第一台成功实现CO分子减速的减速器也属于这种类型。不过这种减速器本身存在一个固有缺陷: 减速效率较低, 尤其对减速大质量的重分子存在以下明显不足: (1)重分子初动能较大, 传统减速器需要更多的减速电极; (2)当分子速度被减速至较低时, 横向过聚焦效应造成大量分子损失; (3)由于重分子在弱电场中才有弱场搜寻态存在, 随着电场强度的增加, 这些弱场搜寻态将翻转为强场搜寻态, 因此传统

减速器中电场强度的限制也将大大增加减速器的级数或长度, 并极大地降低减速效率。而行波 Stark 减速器 (traveling-wave Stark decelerator)<sup>[12, 13]</sup>, 可以形成连续移动、真正意义上的三维势阱, 这种势阱拥有很强的减速力和很大的相空间接收区域, 可以囚禁重分子拐点以下的弱场搜寻态分子。由于被囚禁分子在减速过程中始终处于同一个势阱中, 因而不会有分子损失。该减速器如图5所示, 由一系列圆环电极构成, 电极上施加正弦调制电压, 每

根电极上的电势表达式为<sup>[14]</sup>

$$V_n(t) = V_0 \sin\left(-\phi_0(t) + \frac{2\pi n}{N}\right), \quad (7)$$

其中  $V_0$  是正弦波幅值,  $\phi_0(t)$  是与时间有关的相位角补偿,  $N$  是电极周期数。2012年 N. E. Bulleid 等人采用一台 0.5 m 长的行波减速器将弱场搜寻态的 YbF 分子束从 300 m/s 减速到 276 m/s<sup>[12]</sup>。随后 J. E. van den Berg 等人利用一台 2 m 长的行波减速器将 SrF 分子从 300 m/s 减到 234 m/s, 减去了分子 40% 的动能<sup>[15]</sup>。最近, H. L. Bethlem 小组把传统减速器和行波减速器组合在一起减速 ND<sub>3</sub> 分子<sup>[16]</sup>。他们先利用传统减速器将超声速 ND<sub>3</sub> 分子减到 100 m/s, 然后用行波减速器将该分子减速到静止, 并囚禁在减速器末端。这种减速后直接囚禁在减速器末端的方法实际上去掉了传统的装载过程, 大大提高了装载效率, 增加了囚禁分子数目。

到目前为止, 实验上已经成功减速了多种极性分子, 包括双原子分子、对称陀螺分子以及非对称陀螺分子, 详见表1。表中包含了被减速分

表1 目前被静电 Stark 减速的极性分子(相关参数及实验结果)\*

分子	量子态	电偶极矩(德拜)	减速级数	电压(正/负千伏)	初始速度(米每秒)	末速度(米每秒)	Ref.
CO	$ a^3 \prod_{\Omega=1}, J=1, M\Omega=-1\rangle$	1.37	64	10	225	98	[4]
OH	$ X^2 \prod_{3/2}, J=3/2, M\Omega=-9/4\rangle$	1.67	108	20	428	0*	[17]
OD	$ X^2 \prod_{3/2}, J=3/2, M\Omega=-9/4\rangle$	1.65	108	20	428	0	[17]
NH	$ a^1 \Delta, J=2, M\Omega=2\rangle$	1.49	108	20	520	0	[18]
LiH	$ X^1 \prod^+, J=1, M\Omega=0\rangle$	5.88	100	10	420	53	[19]
YbF	$ X^2 \sum^+, N=2, M_N=0\rangle$	3.91	320	10	300	276	[7]
ND <sub>3</sub>	$ J, KM\rangle= 1, -1\rangle$	1.50	64	10	256	0	[5]
NH <sub>3</sub>	$ J, KM\rangle= 1, -1\rangle$	1.47	64	10	255	100	[20]
SO <sub>2</sub>	$ J, M\rangle= 1, 0\rangle$	1.59	326	12.5	285	53	[21]
H <sub>2</sub> CO	$ J, M\rangle= 1, 1\rangle$	2.34	143	12.5	340	26	[22]
CaF	$ X^2 \sum^+, N=4, M_N=0\rangle$	1.50	100	20	340	224	[9]
NO	$ X^2 \prod_{3/2}, J=3/2, f, M\Omega=-9/4\rangle$	0.16	316	20	315	229.2	[23]
C <sub>2</sub> H <sub>3</sub> N	$ J_{k_x, k_y}\rangle= 0_{0, 0}\rangle$	4.515	27	15	320	289	[8]
SrF	$ X^2 \sum^+, N=1, M_N=0\rangle$	3.5	336	5	300	234	[15]
CH <sub>3</sub> F	$ J, KM\rangle= 1, -1\rangle$	1.86	100+336	10/5	315	0	[24]

\* Stark 减速器将分子减到足够低的速度, 当分子最终被囚禁在静电阱中时, 分子束平均速度为零。

子的相关参数及实验结果。以 CO 分子为例,  $|a^3 \prod_{\Omega=1}, J=1, M\Omega=-1\rangle$  态中,  $a^3 \prod_{\Omega=1}$  是分子的电子谱项,  $a$  表示电子亚稳态,  $\prod$  表示电子轨道角动量在分子轴上分量的绝对值,  $\prod$  左上角的数字“3”表示电子自旋的多重性,  $\Omega$  表示总电子角动量在分子轴上的分量。 $J$  表示分子的转动角动量量子数,  $M$  代表磁量子数,

以上介绍的都是脉冲 Stark 减速。2014 年, 德国 Rempe 小组提出了一种离心减速器, 如图 6 所示, 他们利用该装置在实验上成功实现了连续分子束的 Stark 减速, 将 CF<sub>3</sub>H 分子由 200 m/s 减速到 15 m/s<sup>[25]</sup>。其工作原理如下: 一束连续射流束通过一段静电四极杆引导到离心减速器。离心减速器由内外两层圆环构成, 外围的两根电极静止

不动(图中绿色电极), 而内圈螺旋型电极(图中紫色和红色)以一定角速度旋转。环形电极内部电场的横向分布与直导引的横向电场分布相同。当分子由外围向离心减速器中心运动时, 分子需要克服离心力做功, 从而减少了动能, 也就是被减速了。被减去的动能为  $E = \frac{1}{2}m(\Omega r)^2$ , 这里  $m$  是分子质量,  $\Omega$  是离心机角速度,  $r$  是距中心的距离。由于离心力是保守力, 因而分子束的相空间密度在减速过程中保持不变。需要注意的是, 在减速过程中电场力并不做功, 静电四极仅仅起到导引的作用。图 6 是 CF<sub>3</sub>H 分子在被 (+/-)5 kV 导引时, 不同角速度下被减速的分子束速度分布。从图 6 可以看到, 分子束被减去的动能与离心机角速度有关, 而与分子束初速度无关。减速后的分



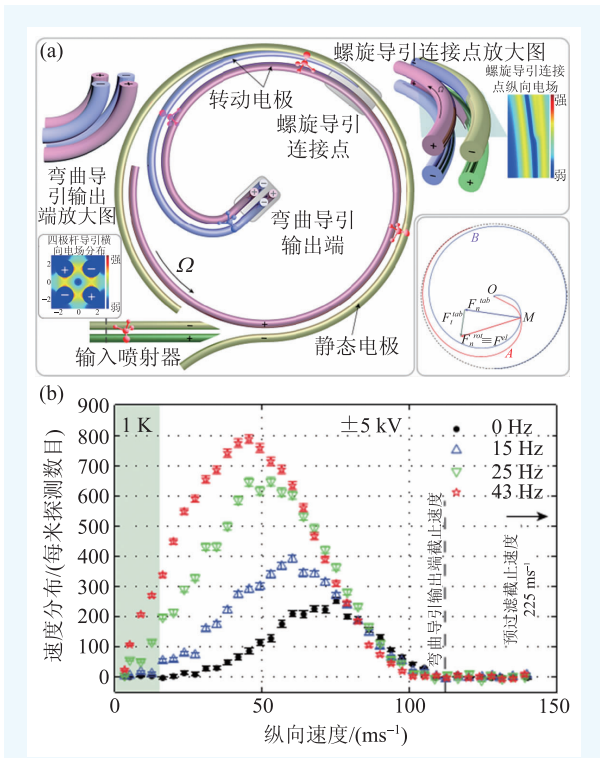


图6 (a)连续分子减速器；(b)CF<sub>3</sub>H分子在用(+/-)5 kV电压导引时，不同角速度下被减速的分子束速度分布

子束速度分布与减速前的分布一样，只不过向低速方向有了移动。

#### 4.2 静磁 Zeeman 减速

原理上，静磁 Zeeman 减速与静电 Stark 减速非常相似，不同的是 Zeeman 减速利用顺磁性分子与磁场的相互作用对分子束进行减速。在构型和操作上，Zeeman 减速器与传统静电 Stark 减速器有以下几点不同：(1)Zeeman 减速器由一系列线圈构成，这些载流线圈沿分子束轴呈圆柱形对称分布，而 Stark 减速器的相邻电极是互相垂直放置的；(2)Zeeman 减速器通过逐个开关每一级的线圈实现对分子束的操控，而 Stark 减速器是通过切换两种不同的电场构型来实现减速的。因此 Zeeman 减速器的势能呈马鞍形，而 Stark 减速器中是一

个移动的有效势阱；(3)二者所用脉冲电场或磁场的上升或下降沿时间是不一样的。通常，Zeeman 减速器线圈产生的磁场上升或下降沿时间为 5—10 μs，而 Stark 减速器一般为 200—500 ns 量级。

国际上首台 Zeeman 减速器由 Merkt 小组研制成功(2007 年)<sup>[26]</sup>，他们的实验装置如图 7 所示，该减速器由 6 级 Zeeman 线圈构成。每个线圈的纵向长度为 7.8 mm，线圈内部直径为 5 mm，可供原子束通过。相邻两级线圈中心到中心间距为 11 mm。减速器的相位角为 55°，电流强度为 140 A，线圈中心的最大磁场强度为 0.8 T。使用以上实验参数，他们成功将氢(H)原子束由 313 m/s 减到 225 m/s。几乎同时 E. Narevicius 等人实现了对亚稳态的氖(Ne)原子的 Zeeman 减速<sup>[27]</sup>。他们利用 18 级 Zeeman 线圈将氖原子从 461 m/s 减到 404 m/s。随后他们的线圈级数从 18 级增加到 64 级<sup>[28]</sup>，电流增加到 750 A，将氖原子速度由 446 m/s 减到 56 m/s，减去了 98% 的原子动能。

2008 年，该小组将 <sup>3</sup>Σ<sub>g</sub><sup>-</sup>态 O<sub>2</sub> 分子速度从 389 m/s 减到 83 m/s<sup>[29]</sup>。最近，T. Momose 小组实现了对多原子自由基分子 CH<sub>3</sub> 的减速<sup>[30]</sup>以及 O<sub>2</sub> 分子的磁囚禁<sup>[31]</sup>。

上述多级 Zeeman 减速器是脉冲式工作模式，其稳定的相空间得益于有效势阱的作用，但同时带来两个问题，即横向与纵向运动的耦合以

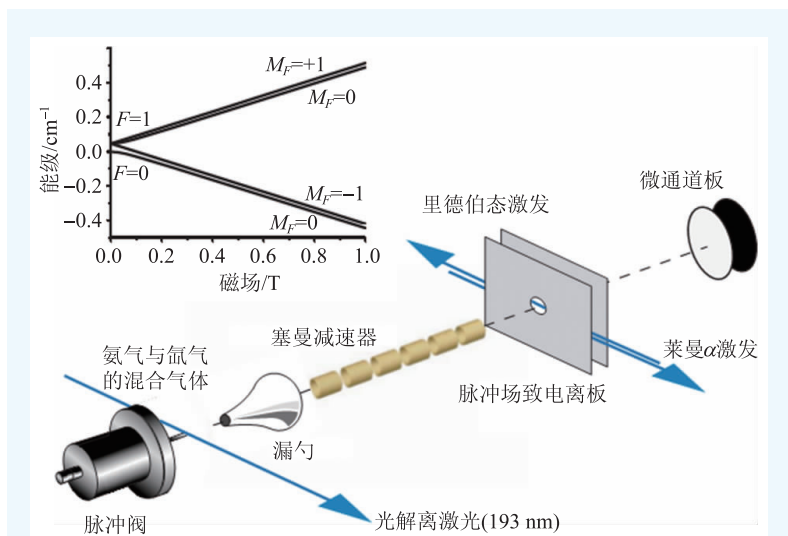


图7 Merkt 小组的 Zeeman 减速实验装置<sup>[26]</sup>

及低速区间的损失会影响减速效率，然而真实的三维运动势阱却可以避免以上问题。利用时序在时间上的重叠以及势阱在空间上的重叠可以形成移动的 Zeeman 势阱，如图 8 所示。

在图 8 所示的实验装置中，每个势阱由两个反亥姆霍兹(anti-Helmholtz)线圈构成，构成势阱的四级线圈并不对称，即其中一个线圈绕了 16 匝，另一个绕 8 匝。电流加到 500 A 时，前后两个线圈磁场分别达到 1 T 和 0.4 T。当磁阱磁场达到最大值时，相邻势阱逐渐打开，磁场最小值的位置会移动到下一个势阱中心。相邻电流脉冲的重叠时间决定了势阱的运动速度。通过逐步增加重叠时间的长度来减慢势阱的运动速度。2011 年，E. Narrevicius 小组利用移动磁阱的 Zeeman 减速将亚稳态氖原子速度从 430 m/s 减到 50 m/s<sup>[32]</sup>，实验与模拟结果如图 9 所示。结果表明，他们获得的低速分子波包的相空间比之前的减速技术提高约两个数量级。

### 4.3 光学 Stark 减速

综上所述，对于具有永久电偶极矩的极性分子，可采用静电 Stark 减速器来实现有效减速；而对于具有永久磁偶极矩的顺磁分子，则可采用静磁 Zeeman 减速来实现有效减速；然而，对于既没有永久电偶极矩又没有永久磁偶极矩的分子，则根据交流 Stark 效应，可采用光学 Stark 减速器对它们进行有效减速。

2004 年，英国 P. F. Barker 小组首先提出并实验验证了采用脉冲高斯光束实现脉冲超声分子束减速的新方案<sup>[33]</sup>，其实验原理如图 10 所示。一束沿着 y 方向飞行的超声分子束垂直经过聚焦的红失谐高斯光束，分子在光场中同时受到沿着分子束方向(y 方向)以及垂直于分子束方向(x 方向)的

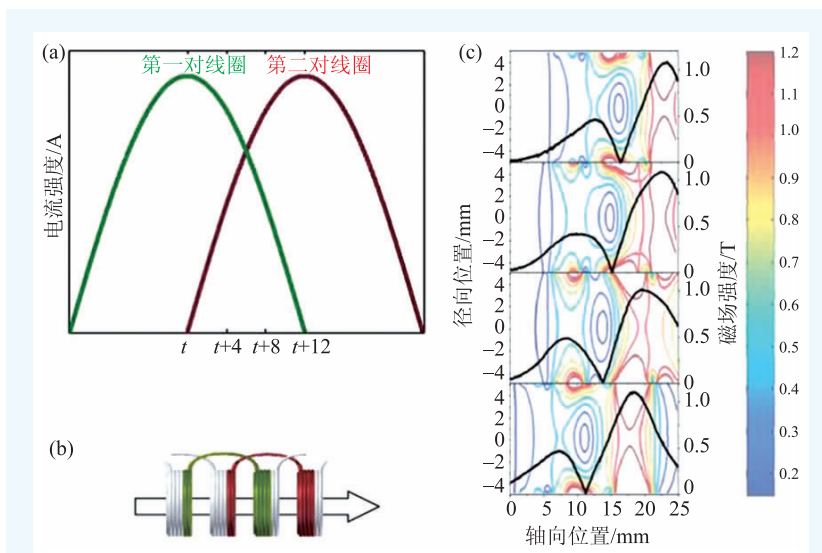


图 8 (a)控制两个重叠四极阱的时序；(b)在空间上重叠的四极阱；(c)磁场分布(黑色曲线代表测量的轴线上的磁场强度分布，轮廓线是有限元方法计算的磁场分布)<sup>[32]</sup>

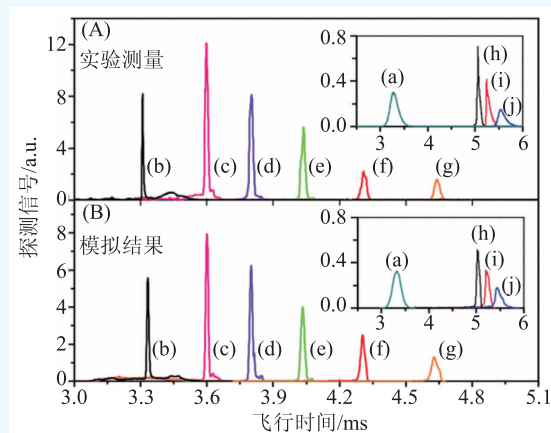


图 9 实验测量(A)和数值模拟(B)获得的 Ne 原子减速 TOF 谱<sup>[32]</sup>。原子束初始速度为(a)430 m/s，被减速波包的中心速度分别为：(b) $432.3 \pm 3.6$  m/s，(c) $352.5 \pm 4.2$  m/s，(d) $298.6 \pm 2.2$  m/s，(e) $249.2 \pm 1.6$  m/s，(f) $199.4 \pm 1.2$  m/s，(g) $148.4 \pm 0.8$  m/s，(h) $97.9 \pm 1.0$  m/s，(i) $76.0 \pm 1.6$  m/s，(j) $53.8 \pm 1.1$  m/s

偶极力作用。其中垂直于分子束方向的作用力可用于聚焦分子束。沿着 y 方向的作用力可用于减速分子或加速分子，具体情况根据分子在光场中的位置而定。当脉冲激光场打开时，若分子处于光场之外，那么分子将不受光场的作用，它的运动状态也不会发生改变；若分子处于 y 轴的左半部分，分子将受到沿着 y 轴正方向的偶极力作用，由于该作用力的方向与分子的运动方向相同，故分子被加速；若分子处于 y 轴的右半部



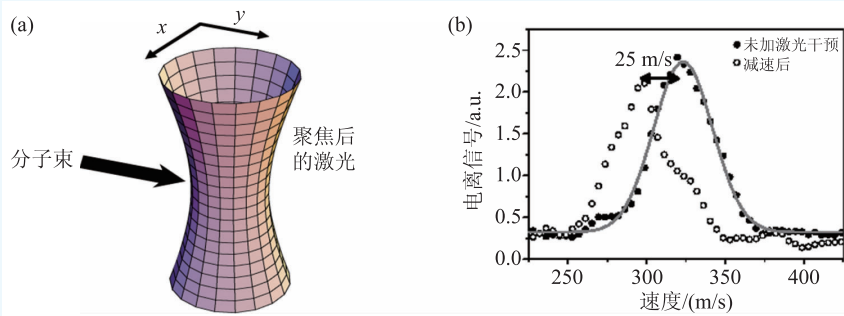


图10 实现超声分子束光学 Stark 减速的原理性方案(a)与实验结果(b)

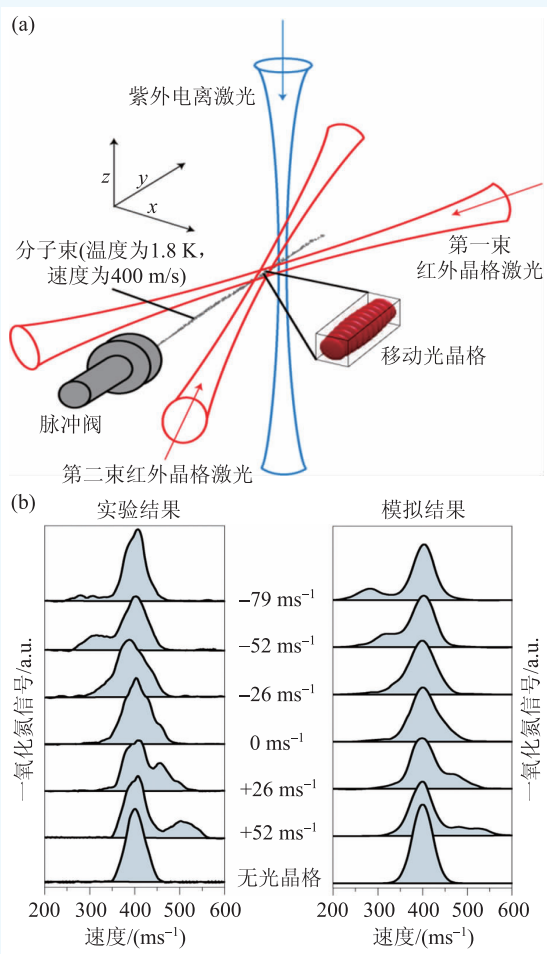


图11 (a)采用运动光学晶格实现分子束减速的实验装置；(b)被光学晶格操控的NO分子的速度分布

分，分子将受到沿着y轴负方向的偶极力作用，由于该作用力的方向与分子的运动方向相反，则分子被减速。在实验过程中通过控制脉冲阀的打开时间与激光器的打开时间间隔来控制光场打开时分子在光场中的位置，从而实现分子的减速。由于光场和分子束均是脉冲的，所以只有具备特

定速度的分子才能飞行通过y轴的右半部分光场而获得减速，也就是说，该方案只利用了右边半个高斯光场减速了脉冲分子束中的部分分子。

实验中使用的是纵向温度为2.3 K的脉冲超声苯分子束，将调Q Nd:YAG激光器输出波长1064 nm的高斯激光聚焦成束腰半径 $w_0=20\ \mu\text{m}$

的光束。当激光的脉宽为15 ns时，最大光强可以达到 $1.6\times 10^{12}\ \text{W}/\text{cm}^2$ ，对应苯分子的阱深为253 K。在单个脉冲光场的作用下超声分子束的最可几速度降低了25 m/s，所对应的平均加速度为 $10^8g$ ，分子束的动能减少了15%。由于无法实现脉冲激光的时序同步控制，故难以实现多级的光学 Stark 减速，因而也难以实现超声分子束的有效减速。为此，2006年该小组提出了一种采用阱深为22 K的一维匀速运动光学晶格实现超声分子束有效光学 Stark 减速的新方案，并在实验上实现了一氧化氮(NO)分子束的光学 Stark 减速<sup>[34]</sup>。实验原理如图11(a)所示。调Q Nd:YAG激光器输出的波长为1064 nm，脉宽为5.8 ns，功率为 $2.2\times 10^{11}\ \text{W}/\text{cm}^2$ 的红外激光被分束后相遇，形成一维周期性光学晶格。通过调制使两束光保持一定的频率差 $\Delta\omega$ ，则晶格的运动速度为 $v_L=\Delta\omega/k$ ，这里k为波矢。入射NO超声分子束的平动温度为1.8 K，最可几速度为400 m/s。在实验中，他们利用波长为226 nm的紫外激光电离被晶格减速的NO分子以实现共振多光子电离光谱测量。图11(b)中左图为实验探测到的分子束速度分布，右图为模拟的分子束速度分布，很明显实验结果与模拟结果吻合得非常好。图中给出不同的晶格运动速度下，分子束与光晶格相互作用之后的速度分布曲线。结果表明，当晶格的速度相对于分子束最可几速度400 m/s为负时，分子束中部分分子被减速，而当晶格的速度相对于分子束最可几速度400 m/s为正时，分子束中部分分子就会被加速。通过数据分析可知，当晶格的速度为321 m/s时(即相对于分子束最

可几速度400 m/s为-79 m/s), 大约7%的NO分子从400 m/s减速到270 m/s。通过共振多光子电离的测量结果分析, 被减速脉冲分子的密度为 $5 \times 10^{10} \text{ cm}^{-3}$ , 分子数目为 $2 \times 10^5$ 个。

此外, 2006年美国Chandler小组采用静止的脉冲光学晶格实现了超声 $\text{H}_2$ 分子束的光学Stark减速与加速<sup>[35]</sup>。与P. F. Barker小组不同, 他们在实验中通过调节光晶格的强度来控制减速或加速分子的程。2010年, Barker小组通过改进实验装置, 优化实验参数, 成功将超声苯分子有效减速至 $\sim 0 \text{ m/s}$ <sup>[36]</sup>。

由于采用静止或者运动光学晶格的光学Stark减速仅是单个激光脉冲内的多级Stark减速, 仍然缺乏类似于静电Stark减速或静磁Zeeman减速中的聚束(bunching)效应, 因而上述两种光学Stark减速器获得的冷分子温度一般很高, 约为500 mK量级。为此, 我们小组提出了分别采用准连续、静止或匀速运动的光学晶格实现脉冲亚声速分子束光学Stark减速的新方案<sup>[37, 38]</sup>, 研究发现, 我们提出的光学Stark减速新方案不仅可用于实现脉冲亚声速分子束从240 m/s至0的有效减速, 而且可获得温度为几个 $\mu\text{K}$ 的脉冲冷分子束, 两种方案相比, 采用运动光晶格的方案可在非常少的减速级数(16000级)和非常短的光晶格长度( $< 10 \text{ mm}$ )下实现亚声速分子束从240 m/s至0的有效减速。显然, 采用运动光晶格可实现化学稳定分子的激光有效减速与冷却。

## 5 应用前景

光谱实验的分辨率极限最终取决于粒子与光场的相互作用时间。比如室温下空气的速度为500 m/s, 25 mK的重氮分子速度为5 m/s。对于相互作用区域长度为1 m的实验设备, 500 m/s的气体分子的观察时间为几个毫秒量级, 对应的观察谱线宽度约为几千赫兹, 而对于毫开量级的气体分子, 谱线分辨率可以提高几个量级。2004年, J. van Veldhoven等人利用Stark减速器将 $^{15}\text{ND}_3$ 分子减速到52 m/s时, 第一次观察到了该分子

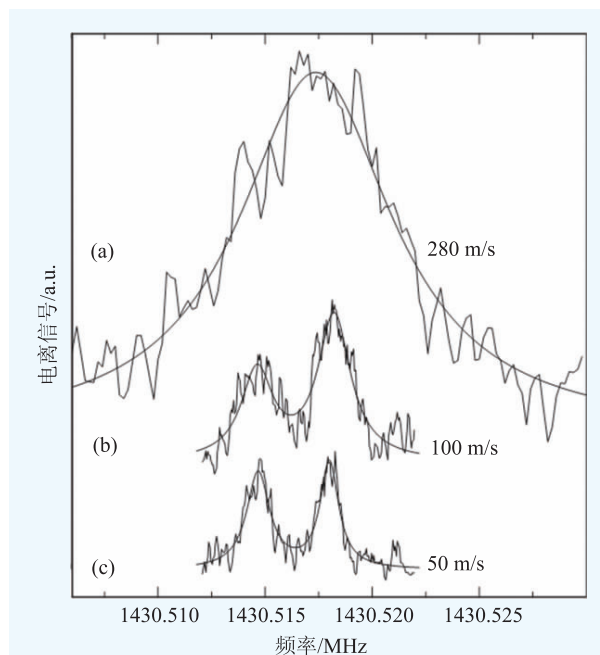


图12 不同速度下 $^{15}\text{ND}_3$ 分子 $|J, K\rangle = |1, 1\rangle$ 转动态下的两个超精细跃迁谱线(分子束速度为280 m/s和50 m/s的谱线宽度分别为10 kHz和1 kHz)<sup>[39]</sup>

$|J, K\rangle = |1, 1\rangle$ 态的反演分裂跃迁<sup>[39]</sup>, 跃迁频率在1.43 GHz附近, 可分辨的单个超精细跃迁的谱线宽度为1 kHz(图12), 谱线分辨率提高了一个量级。与此类似, E. R. Hudson等人研究了Stark减速后OH自由基分子的基电子态、基振转态的 $\Lambda$ 双分裂微波跃迁, 其精确度比前人提高了一个数量级以上<sup>[40]</sup>。

与室温气体相比, 冷分子的内态分布比较纯, 因而在碰撞中单态的影响大大加强, 尤其当分子被冷却至超冷温区时, 碰撞完全可以由s波来描述, 也就是说, 散射过程仅由一个量子态决定。2006年, J. J. Gilijamse等人实现了采用Stark减速的OH分子与Xe原子的近阈值非弹性碰撞<sup>[41]</sup>, 能量分辨率 $\sim 13 \text{ cm}^{-1}$ , 准确测量了能量阈值附近的非弹性散射截面, 与理论值相吻合。

## 6 总结与展望

在空间上对分子的二维操控可以追溯到施特恩(Stern)、拉比(Rabi)时代, 而最近十几年发展起来的静电Stark减速、静磁Zeeman减速以及光学

Stark 减速技术可实现对分子束的三维操控, 可将超声分子束减到任意速度, 获得的波包温度约为 10 mK 量级。减速后的分子可以被囚禁或用于冷碰撞、精密测量等实验研究。然而, 以上提到的减速技术都是基于保守力场与分子的相互作用, 因此在减速过程中分子束的相空间密度并没有增加。如果将这些减速技术与激光冷却或蒸发冷却等技术相结合, 则可以增加分子波包的相空间密

度。综上所述, 分子束减速技术丰富了外场操控分子的历史, 将在冷碰撞、冷化学、精密光谱与精密测量以及量子计算等领域有着广阔的应用前景。

致谢 感谢王琴和邓联忠两位老师对本文提出的诸多建议和有益讨论。

## 参考文献

- [1] Stern O, Gerlach W. *Z. Phys.*, 1921, 8: 110
- [2] King J G, Zacharias J R. Quaterly Progress Report (Research Laboratory of Electronics, Massachusetts Institute of Technology), 1958, vol. 48. (15 January)
- [3] King J G. Experiments with slow molecules. In: Proceedings of the 13th Annual Symposium on Frequency Control, Asbury Park. U.S. Army Signal Research and Development Laboratory, 1959. p. 603
- [4] Bethlem H L, Berden G, Meijer G. *Phys. Rev. Lett.*, 1999, 83: 1558
- [5] Bethlem H L, Berden G, Cromptvoets F M H *et al.* *Nature*, 2000, 406: 491
- [6] Bethlem H L, Cromptvoets F M H *et al.* *Phys. Rev. A*, 2002, 65: 053416
- [7] Tarbutt M R, Bethlem H L *et al.* *Phys. Rev. Lett.*, 2004, 92: 173002
- [8] Wohlfart K, Grätz F *et al.* *Phys. Rev. A*, 2008, 77: 031404
- [9] Wall T E, Kanem J F *et al.* *Phys. Chem. Chem. Phys.*, 2011, 13: 18991
- [10] Meek S A, Conrad H, Meijer G. *Science*, 2009, 324: 1699
- [11] Hogan S D *et al.* *Phys. Rev. Lett.*, 2012, 108: 063008
- [12] Bulleid N E, Hendricks R J *et al.* *Phys. Rev. A*, 2012, 86: 021404
- [13] Osterwalder A, Meek S A, Hammer G *et al.* *Phys. Rev. A*, 2010, 81: 051401
- [14] Meek S A, Parsons M F, Heyne G *et al.* *Rev. Sci. Instrum.*, 2011, 82: 093108
- [15] van den Berg J E, Mathavan S C, Meinema C. *J. Mol. Spectr.*, 2014, 300: 22
- [16] Quintero-Perez M, Jansen P, Wall T E *et al.* *Phys. Rev. Lett.*, 2013, 110: 133003
- [17] Hoekstra S *et al.* *Phys. Rev. Lett.*, 2007, 98: 133001
- [18] van de Meerakker S Y T *et al.* *J. Phys. B*, 2006, 39: S1077
- [19] Tokunaga S K, Dyne J M, Hinds E A *et al.* *New J. Phys.*, 2009, 11: 055038
- [20] Bethlem H L, Cromptvoets F M H *et al.* *Phys. Rev. A*, 2002, 65: 053416
- [21] Jung S, Tiemann G, Lisdat C. *Phys. Rev. A*, 2006, 74: 040701
- [22] Hudson E R, Ticknor C, Sawyer B C *et al.* *Phys. Rev. A*, 2006, 66: 063404
- [23] Wang X, Kirste M, Meijer G *et al.* *Phys. Chem.*, 2013, 227: 1595
- [24] Meng C, van der Poel A P P *et al.* *Phys. Rev. A*, 2015, 92: 023404
- [25] Chervenkov S, Wu X, Bayerl J *et al.* *Phys. Rev. Lett.*, 2014, 112: 013001
- [26] Vanhaecke N, Meier U, Andrist M *et al.* *Phys. Rev. A*, 2007, 75: 031402
- [27] Narevicius E, Parthey C G, Libson A *et al.* *New J. Phys.*, 2007, 9: 358
- [28] Narevicius E, Libson A *et al.* *Phys. Rev. Lett.*, 2008, 100: 093003
- [29] Narevicius E, Libson A, Parthey C G *et al.* *Phys. Rev. A*, 2008, 77: 051401
- [30] Momose T, Liu Y, Zhou S *et al.* *Phys. Chem. Chem. Phys.*, 2013, 15: 1772
- [31] Liu Y, Zhou S, Zhong W *et al.* *Phys. Rev. A*, 2015, 91: 021403
- [32] Lavert-Ofir E, Gersten S, Henson A B *et al.* *New J. Phys.*, 2011, 13: 103030
- [33] Fulton R *et al.* *Phys. Rev. Lett.*, 2004, 93: 243004
- [34] Fulton R *et al.* *Nat. Phys.*, 2006, 2: 465
- [35] Serrano J R *et al.* *Phys. Chem. Chem. Phys.*, 2006, 8: 2985
- [36] Bishop A I, Wang L, Barker P F. *New J. Phys.*, 2010, 12: 073028
- [37] Yin Y L, Zhou Q *et al.* *Opt. Express*, 2009, 17 (13): 10706
- [38] Ji X, Zhou Q, Gu Z X *et al.* *Opt. Express*, 2012, 20 (7): 7792
- [39] van Veldhoven J, Küpper J, Bethlem H L *et al.* *Eur. Phys. J. D*, 2004, 31: 337
- [40] Hudson E R, Lewandowski H J *et al.* *Phys. Rev. Lett.*, 2006, 96: 143004
- [41] Gilijamse J J, Hoekstra S *et al.* *Science*, 2006, 313: 1617