

## 第三讲 化学稳定分子的激光减速、冷却及其MOT技术\*

夏勇 汪海玲 许亮 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/wl20180103

### Laser slowing and cooling of chemically stable molecules and MOT technology

XIA Yong WANG Hai-Ling XU Liang YIN Jian-Ping<sup>†</sup>

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

**摘要** 文章首先介绍了分子激光减速和冷却的基本原理、技术方案及其最新进展, 主要包括分子的选择、分子激光减速、分子激光冷却、电光冷却多原子分子等。接着简单介绍了分子磁光囚禁的基本原理、技术方案及其最新研究进展。最后, 就分子“激光减速、冷却与磁光囚禁”的研究进行了简单的总结与展望。

**关键词** 冷分子, 激光减速, 激光冷却, 磁光囚禁

**Abstract** We first introduce the basic principles, technical schemes and latest progress in laser slowing and cooling of molecules, including the selection of molecular candidates, their laser slowing and cooling, electro-optical cooling of polyatomic molecules, and so forth. The basic principles, techniques and recent progress of magneto-optical trapping for molecules will then be described. Following a brief summary, an overview of future prospects will be presented.

**Keywords** cold molecule, laser slowing, laser cooling, magneto-optical trap

## 1 引言

冷分子的实验制备与研究是近几年来原子分子和光物理研究领域中的前沿热点之一, 同时也是一个包含物理、化学、量子信息和天文物理的跨学科交叉研究领域。分子不同于原子的地方主要在于分子内部复杂的自由度, 比如振动和转动能级, 这给分子冷却带来了许多困难, 因此分子的激光冷却是一项充满机会与挑战的实验。但在温度比较低时, 分子丰富的内态结构也给多种多

样的科学问题研究带来了新的机会。冷分子可以用于精密测量, 包括基本物理常数、对称性问题、电子电偶极矩等; 用于分子结构的高分辨率光谱研究; 用于冷碰撞和冷化学的研究; 还可用于多体物理问题的研究<sup>[1-4]</sup>。

到目前为止, 在实验上制备冷分子的途径主要有两种。第一种方法是通过光(或磁场)缔合的方法将两种碱金属冷原子结合成一种冷分子<sup>[4]</sup>。一束激光驱动两种处于非束缚态原子的能级到另一种处于电子激发态的分子能级的光学跃迁。一般情况下, 光子通过自发辐射衰减到分子的多个振转能级上, 回到分子基态上的效率非常低, 典型的分子相空间密度为 $10^{-12}$ ; 采用另一束激光将

\* 国家自然科学基金(批准号: 91536218, 11374100, 10904037, 10974055, 11034002, 11274114, 11347194, 11404151, 61205198)、国家重点基础研究发展计划(批准号: 2011CB921602)资助项目

处于电子激发态的分子受激辐射转移到弱束缚分子的单一基态上,通过这样一个相干绝热转移过程可以大大提高处于基态上的分子数目。KRb冷分子样品的最低温度可以达到250 nK,空间密度为 $10^{12}/\text{cm}^3$ ,对应的相空间密度为0.1。在3D光学晶格中这种处于绝对基态的KRb费米子寿命可达 $25\text{ s}^{[4, 5]}$ 。最近处于电子基态和振转基态的NaK费米子<sup>[6]</sup>、RbCs<sup>[7, 8]</sup>和NaRb<sup>[9]</sup>玻色子也在实验室实现了。第二种方法是直接减速或冷却化学性质稳定的分子。一般来说主要的实验手段包括:(1)缓冲气体冷却,主要原理是通过热分子和低温He原子之间的碰撞和热交换来实现将分子内态和外态的冷却,此时分子的平动温度和转动温度大致为几K。这种实验技术由美国哈佛大学Doyle小组首先提出,技术难点在于真空低温技术,采用这种方法产生的冷分子束可以作为实现分子激光冷却的预冷束源<sup>[10]</sup>;(2)空间非均匀、同步开关的电场、磁场和激光场对分子的减速,分子的温度在mK量级,处于半经典区间。采用交变静电场斯塔克减速的办法获得单态冷分子脉冲是研究分子冷碰撞最好的实验平台之一<sup>[11]</sup>;(3)近几年来激光冷却实验取得了重要进展,这是由于在一些特殊的双原子自由基分子的电子—振转基态和电子激发态振转基态能级之间存在一个接近闭合的三能级或四能级系统,与冷原子的闭合能级结构类似,利用这一特殊的能级结构即可实现分子的激光冷却<sup>[12]</sup>。2009年美国耶鲁大学DeMille小组首先在实验上验证了氟化铯(SrF)分子具有准闭合的能级系统,可以用于直接的分子激光冷却实验<sup>[13]</sup>。2010年他们观测到了分子束的横向多普勒冷却(5 mK)和Sisyphus冷却(300  $\mu\text{K}$ )效应<sup>[14]</sup>,之后实现了自发辐射力对分子束纵向速度的减速(从140 m/s到50 m/s)<sup>[15]</sup>。2014年他们实现了第一个3D SrF分子磁光阱,冷分子温度为2.5 mK,分子数目为300个<sup>[16]</sup>。2016年报道了SrF分子射频磁光阱实验结果,可以把囚禁分子数目提高到2000个,温度为400  $\mu\text{K}$ ,分子寿命为0.5 s<sup>[17]</sup>。目前还有氧化钇分子(YO)<sup>[18]</sup>、氟化钙分子(CaF)<sup>[19, 20]</sup>和氟化镁分子(MgF)<sup>[21]</sup>等在进行激光冷却的实验研究。采用激光冷却方法来产生冷分子或超冷分子的实验研究

还处于起步阶段,还有大量的问题有待研究和探索,比如分子束的纵向快速高效减速以达到电、磁势阱装载的速度范围,冷分子3D磁光囚禁的冷分子数目及其坐标空间或相空间密度的提高和进一步冷却,还有化学稳定的极性超冷分子的玻色—爱因斯坦凝聚和费米量子简并等<sup>[22]</sup>。文章首先介绍分子激光减速和冷却的基本原理、技术方案及其最新进展;接着介绍分子磁光囚禁的基本原理、技术方案及其最新进展;最后就分子激光减速与冷却及其磁光囚禁的研究进行了简单总结,并就分子激光冷却与囚禁实验中存在的一些关键科学与技术问题及其未来发展趋势给予了简单展望。

## 2 分子激光减速和冷却的基本原理、技术方案及其最新进展

激光冷却的基本条件是:存在一个简单的多能级系统(如二能级或三能级系统);光子的“吸收—辐射”跃迁循环必须是封闭的、耗散的、多次重复的。采用一个或两个激光束就能满足上述激光冷却条件,在大量的跃迁循环过程中实现光子与原子间动量的有效交换,从而导致原子运动速度的降低和温度的冷却。原子激光冷却中基本的冷却机制是“多普勒冷却”,主要思想是:一束原子束以速度 $v$ 相对光波运动时,由于多普勒效应,被共振吸收的光波的频率是 $\nu=\nu_0(1-\nu/c)$ ,这里 $\nu_0$ 为原子静止时的吸收频率,原子通过自发辐射的方式辐射光子回到基态,吸收一个光子都会导致原子获得一个与其运动方向相反的反冲动量,而自发辐射光子的方向是随机的,大量自发辐射光子对原子产生的反冲动量之和为零。于是原子再吸收光子,然后再自发辐射,多次重复这样的过程,原子不停地吸收光子获得的反冲动量不断累加,而大量自发辐射光子引起的反冲动量对整个空间的累加为零,最终原子被减速下来。当原子速度降低到一定大小时,共振条件不再能满足,减速的效果就会减弱,甚至停止,这就是所谓的多普勒频移效应。将原子冷却到比多普勒温度更低时需要新的冷却机制,最典型的两种机制就是偏振梯度冷却(polarization gradient cooling)

和强度梯度冷却(intensity gradient cooling)。原子的激光冷却实际上就是对原子质心运动速度的减速和冷却。分子相对于原子来说，除了电子能级之外，还有振动能级和转动能级。即每个分子有很多个电子能级，每个电子能级中包括无数个振动能级(而且振动能级之间的光学跃迁没有选择定则)，每个振动能级间包含着无数个转动能级。它们之间的关系如图1所示。

因此，由于分子内部缺乏封闭的跃迁循环，故传统的基于自发辐射力的激光冷却技术无法直接应用于中性分子，但可选择特殊的分子、特殊的能级结构，即可构成准封闭的跃迁循环，从而实现分子激光冷却的定点突破。的确，近年来，人们还是在一些简单的双原子分子中找到了一些准闭合的能级系统，并实现了分子的激光减速、冷却与磁光囚禁，例如 SrF、YO、CaF、MgF 等。SrF 分子的能级结构如图2所示，其中图2(a)是 SrF 的电子基态和第一激发态及其相应的振动能级，红色实线为能级间的激光泵浦，虚线为

自发辐射通道；图2(b)是电子基态( $v=0, N=1$ )的转动态的超精细分裂能级图及其光抽运到电子第一激发态( $v'=0, N'=0$ )的4条跃迁线。

### 2.1 激光冷却分子的选择

通常，分子在两个电子态的不同振动能级之间的电偶极跃迁不存在选择定则，这给分子的激光冷却带来了极大的困难。但是这些振动能级间光跃迁的几率大小，可用 Frank—Condon 原理来解释或估算。Frank—Condon 原理能够直观地解释电子谱带的振动强度分布，电子跃迁发生得如此之快，以至于跃迁前后分子中各原子核的位置及其环境可视为几乎不变，即在两个势能曲线之间垂直向上或向下跃迁的几率最大。这些跃迁发生在核动能最小的点上，也就是在振动的极限位置上，因此跃迁时核间距或动量都没有明显的变化。此原理的量子力学表述为：振动跃迁的强度与此跃迁的始态及终态相应的两个振动波函数的重叠积分的平方成正比，即

$$I \propto \left[ \int \Psi'_v \Psi''_v dR \right]^2 \quad (1)$$

上式右边的值称为 Frank—Condon(FC)因子，它的大小取决于两个电子态的振动波函数的重叠程度。

分子振动跃迁通道由电偶极选择定则、分子具体结构决定。这些振动态之间的跃迁概率可以用 FC 因子描述。不同的振动态之间的跃迁几率是不同的，而这些振动态中的转动态之间的跃迁受到转动态跃迁选择定则和电偶极宇称选择定则

的支配。因此，选择合适的分子用来从事激光冷却实验是一个首要的问题，要关注候选分子的激发态能级结构和相应的寿命，关系到光子散射速率和冷却过程。FC 因子的对角化程度，对应着振动态能级跃迁几率和所需要的激光数目。超精细能级间隔大小决定了是否可以采用商用的 EOM 或者 AOM 来覆盖这些能级循环，构建准闭合的能级跃迁循环。纵然想要实现分子的激光冷却困难重重，但是经过科研人员

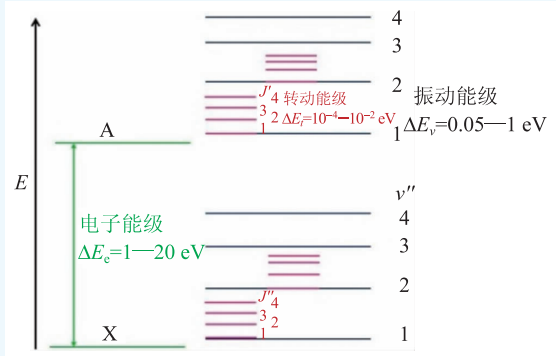


图1 分子的电子能级、振动能级和转动能级

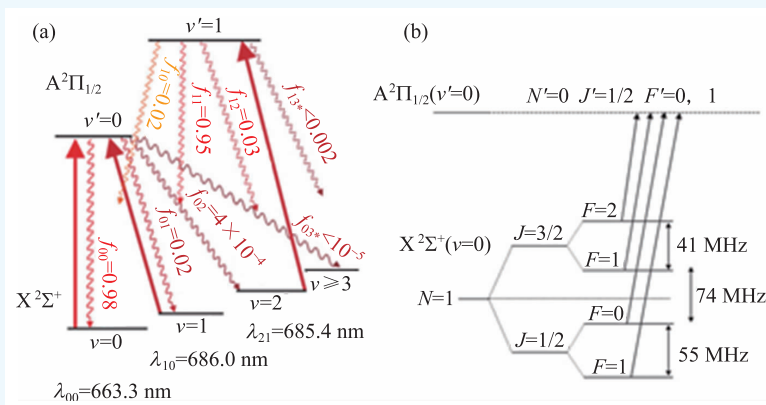


图2 SrF 分子的能级结构

的不断努力，还是取得了十分重要的进展。2009年DeMille小组首先在实验上论证了分子激光冷却的可行性<sup>[13]</sup>。他们在实验上利用激光消融的办法制备出SrF，经过低温缓冲气体冷却得到初始温度较低的分子束，再根据SrF分子超精细能级结构中 $A^2\Pi_{1/2}$  ( $v'=0, J=1/2$ ) 和  $X^2\Sigma^+(v=0, N=1)$  之间的跃迁而构建近闭合循环。在这类分子冷却能级结构 $J \rightarrow J-1$ 跃迁

中，由于一个线偏振光只能驱动一个基态子能级的跃迁，其他两个子能级就是暗态，存在这样的暗态结构，会导致冷却循环中光子的跃迁过程很快终止。实验上通过改变冷却激光的偏振方向和外加磁场之间的夹角<sup>[13]</sup>，按照MHz速率调制冷却光为左旋、右旋圆偏振光<sup>[18]</sup>来消除分子暗态。

## 2.2 分子激光减速技术：EOM调制多边带减速、激光扫频减速

与原子的激光冷却类似，分子通过定向共振吸收与之相向传播的激光跃迁到激发态，然后通过随机的自发辐射回到基态，经过多次这样的“吸收—自发辐射”循环跃迁过程来逐步降低速度。一般说来，将普通的碱土金属一氟化物双原子分子速度从数百m/s减速至10 m/s左右至少需要散射 $10^4$ 次光子，为能够散射如此之多的光子，分子应具有一个准封闭的循环跃迁系统。

2012年，DeMille小组利用SrF分子的准闭合能级系统和具有多边带光谱结构的激光实现了SrF分子的纵向辐射压力减速，其实验装置如图3所示<sup>[15]</sup>。SrF脉冲分子束通过激光消融和缓冲气体冷却产生，经过准直后被一束与分子束相向传播的激光减速，一段距离后探测激光诱导荧光信号。为了形成准闭合的能级系统，用来减速的激光包括一束主要的冷却激光和两束泵浦激光，同时为了在较大的减速范围内覆盖振转基态能级中的超精细能级，三束激光均通过电光调制器后获得调制频率在41 MHz和44 MHz之间的边带，形成一个能够在较大的减速范围内持续减速分子的

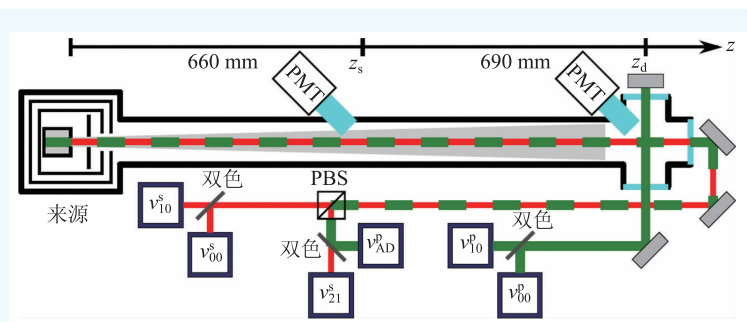


图3 采用EOM调制多边带减速SrF分子束的实验装置(PMT: 光电倍增管, PBS: 偏振分束器)

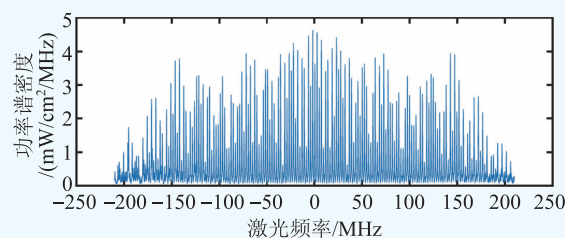


图4 展宽的主减速激光频谱

宽频带光谱结构。通过调整减速激光相对于分子共振吸收频率的失谐量，可以获得减速到不同末速度的分子样品。他们的实验研究发现，当激光失谐量在 $-260$  MHz时，能够将具有初始速度 $175$  m/s的分子减速至 $50$  m/s以下，减速效率约为 $6\%$ ，其中分子束的发散和横向加热效应是造成分子数目锐减的主要因素。

2016年，美国哈佛大学Doyle小组报道了通过类似的宽频带激光将CaF分子减速到了磁光阱可以捕获的 $10$  m/s附近的速度范围<sup>[20]</sup>。CaF分子由激光消融CaF<sub>2</sub>样品产生，通过具有两级缓冲气体冷却装置的束源获得具有 $60$  m/s初始速度的预冷分子束。为了覆盖基态的超精细能级分裂，同时在较大的减速范围内补偿多普勒频移，一束冷却激光和两束泵浦激光均依次通过两台调制频率分别为 $24.8$  MHz和 $4.5$  MHz的电光调制器，使得激光光谱展宽到约 $400$  MHz的范围，如图4所示。采用这种类似“白光”减速的方案，探测到了约 $60000$ 个速度约为 $10$  m/s的分子，能够直接装载到磁光阱中开展进一步的激光冷却实验研究。

利用宽频带激光减速分子的特点是由于各种速度的分子均同时参与减速，最终减速的分子速度分布较宽，即“冷却”效果较差，而激光扫频

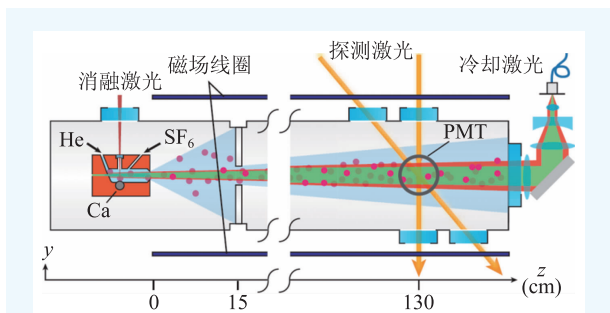


图5 激光扫频实验装置

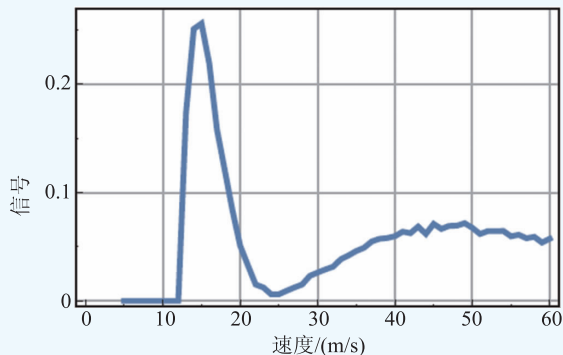


图6 减速波包的速度分布

方法有望使分子的速度分布获得压缩的效果，成为减速分子的另一重要实验方法。

2014年，英国帝国理工学院 Hinds 小组研究了采用扫描激光频率的方式减速 CaF 超声分子束的可行性<sup>[19]</sup>。CaF 分子通过 Ca 单质与含有 SF<sub>6</sub> 的 Ar 载气在激光消融的室温条件下发生化学反应产生，获得超声分子束的初始速度为 600 m/s。用来减速的一束冷却激光和一束泵浦激光均通过电光调制器和声光调制器产生 3 条边带来激发超精细能级跃迁，在固定减速激光频率的情况下，分子能够被减速 17 m/s，至 583 m/s，温度由初始的 3 K 降至 330 mK；而当对激光的中心频率通过一个声光调制器施加 30 MHz/ms 的扫描速率时，分子能够被有效减速 34 m/s，至 566 m/s。

2016年，该小组又报道了利用激光扫频实现 CaF 脉冲分子束的辐射压力减速的最新进展，其实验装置如图 5 所示<sup>[23]</sup>。CaF 分子来源于在通入 He 和 SF<sub>6</sub> 的低温环境下激光消融 Ca 单质通过化学反应而产生的分子束源，产生的分子束初始速度为 178 m/s，冷却激光和泵浦激光均通过电光调制器加入 24 MHz 边带以覆盖超精细分裂，且均进行了激光中心频率的线性扫描。通过仔细地改善

引起分子束发散的条件和扫频方式，成功地利用扫频速率 37 MHz/ms 的激光将分子从 178 m/s 减至 15 m/s (图 6)，速度分布压缩 10 倍，获得的分子数目为  $8 \times 10^5 / \text{cm}^2 / \text{pulse}$ ，下一步可将其装载至磁光阱中实现进一步的激光冷却与囚禁。

2015年，美国 JILA 实验室的叶军小组利用转动态微波混合技术解决了 YO 分子循环跃迁中存在中间态的问题，通过宽频带激光和扫描激光频率相结合的方式使得 10 m/s 以内的 YO 分子数目明显增加，实验装置如图 7 所示<sup>[24]</sup>。其中 YO 分子通过激光消融 Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 样品产生，两级缓冲气体冷却装置降低了分子束的初始平动速度 (75 m/s)，通过将减速激光的频谱范围扩展至  $\pm 30$  MHz，并扫描激光中心频率使其保持与减速分子共振，观测到了 10 m/s 处的分子数目显著增多 (图 8)，显然，该速度已处于三维磁光阱的有效捕获范围之内。

### 2.3 分子激光冷却：分子束横向多普勒冷却和 Sisyphus 冷却

多普勒冷却的实验研究中，首先使用准直小孔使分子束的横向速度分布宽度为 4 m/s 左右，对应横向多普勒宽度为 10 MHz，使多普勒冷却力影响到整个横向的分子束。例如对于 SrF 分子，由于跃迁激光的频率有 3 个，每个有 4 个边带，共计 12 个。对应的分子跃迁能级有 44 个，包括 3 个基态能级，每个能级具有 12 个磁子能级，2 个激发态具有 4 个磁子能级<sup>[14]</sup>。在实现分子多普勒

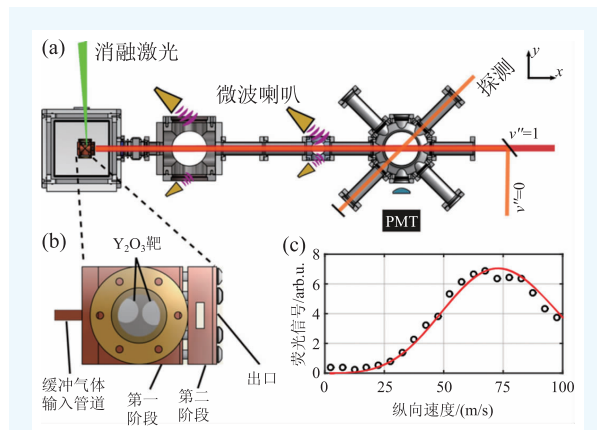


图7 叶军小组实现 YO 分子激光冷却的实验装置

冷却时，需要调节激光和分子能级之间的失谐，由于跃迁能级非常多，调节失谐时对有些能级是红失谐，而对另外一些能级可能是蓝失谐，所以采用一个净平均的失谐量来表示。首先需要在实验上定义一个冷却光和再泵浦光失谐为0的位置，此时测量到最大的荧光信号，然后设定再泵浦光的调制频率43 MHz，失谐为0，然后调节冷却光的失谐来研究多普勒效应，主要通过CCD的成像来分析分子束横向位置分布随着失谐量的变化关系，同时合适的磁场强度(和方向)也是非常重要的。实验上当冷却光失谐量为 $-1.5 \Gamma$ ，磁场为5 G时，分子束横向方向上的粒子数分布有明显的压窄，低速的分子信号增强。在5 G磁场条件下，红失谐冷却光对应着分子束横向的多普勒冷却效应，蓝失谐冷却光对应着加热效应。他们在实验上还研究了分子束横向方向上的Sisyphus冷却过程。当磁场大小为0.6 G，冷却光失谐量为 $1.5 \Gamma$ 时，在分子束横向空间分布中间出现一个尖峰，围绕着速度为0的分子数目增加了很多，而速度大一些的分子由于受到非常小的加热作用，这部分分子的数目基本不变。研究结果表明，在0.6 G磁场条件下，蓝失谐冷却光对应着分子束横向的Sisyphus冷却效应，红失谐冷却光对应着加热效应。

## 2.4 多原子分子的电光冷却

Max Planck量子光学研究所的G. Rempe小组提出了一种静电囚禁多原子分子的Sisyphus冷却方法。同时使用一束红外激光、微波和射频能够冷却被束缚的 $\text{CH}_3\text{F}$ 分子<sup>[25]</sup>。实验结果表明，一百万个 $\text{CH}_3\text{F}$ 分子的温度从390 mK冷却到29 mK，相空间密度增加29倍。制备和探测样品的实验过程如图9所示。在静电阱里实现多原子分子Sisyphus冷却的关键是构造分子能级和可多次重复的冷却循环。这个冷却循环包括一个振动激发态和两对转动基态。首先，被液氮冷却后经过弯曲导引(速度滤波)的 $\text{CH}_3\text{F}$ 冷分子被空间变化的静电场

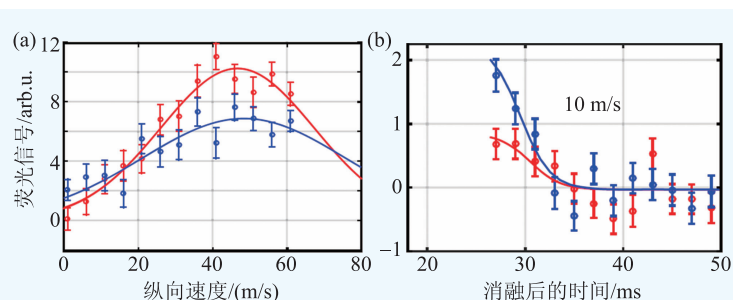


图8 减速分子波包的速度分布和粒子数分布

操控。 $\text{CH}_3\text{F}$ 有很大的电偶极矩，很容易被囚禁，并产生很大的Stark势频移。 $\text{CH}_3\text{F}$ 被红外光激发到振动激发态 $|1; 3, 3, 3\rangle$  (寿命0.1 s)，自发辐射到一对较长寿命的转动激发态 $(|0; 4, 3, 3\rangle, |0; 4, 3, 4\rangle)$ 和 $(|0; 3, 3, 2\rangle, |0; 3, 3, 3\rangle)$ 。处于 $|0; 4, 3, 4\rangle$ 和 $|0; 3, 3, 3\rangle$ 两个能级的分子由于大的电场梯度走向势阱的边缘，相较于 $|0; 4, 3, 3\rangle$ 和 $|0; 3, 3, 2\rangle$ 能级的分子，沿着陡峭的势垒爬坡，分子势能增加，动能减小。射频场将分子激发到 $|0; 4, 3, 3\rangle$ 和 $|0; 3, 3, 2\rangle$ ，这里有较小的电场梯度，处于这两个能级的分子在均匀电场的作用下加速到势阱的中心，微波场将 $|0; 4, 3, 3\rangle$ 态的分子激发回 $|0; 3, 3, 2\rangle$ 态，然后， $|0; 3, 3, 2\rangle$ 的分子再次泵浦到 $|1, 3, 3, 3\rangle$ 态，从而构成了分子冷却的循环。在这个循环里，分子在 $|0; 4, 3, 3\rangle, |0; 4, 3, 4\rangle$ 动能损失要比在 $|0; 3, 3, 2\rangle, |0; 3, 3, 3\rangle$ 的动能增加大得多，因此整体的冷却效果是静电场梯度引起的Sisyphus冷却。每一次循环冷却的程度依赖于斯塔克势的频移，取决于分子在与射频场共振之前爬坡的位置。因此扫描射频冷却频率缓慢减少到390 MHz，最终冷却温度为29 mK。他们发现，在阱里的分子寿命和射频场的扫描频率有关，在最大冷却温度下寿命约27 s，但是约60%的分子将被损失掉，因此，使用更好的囚禁方法或者更快的冷却方法可能会减少分子的损失。

2015年，该小组实现了囚禁的 $\text{CH}_3\text{F}$ 分子的转动态冷却，通过光学泵浦转动态 $J=3, 4, 5$ 中16个磁子能级到一个单量子态。这种转动冷却和质心运动冷却混合的方法可将处在 $J=4, K=3, M=4$ 量子态的分子数目增加到 $10^6$ 个，分子束的平动温度为30 mK<sup>[26]</sup>。2016年他们采用类似的冷却方法

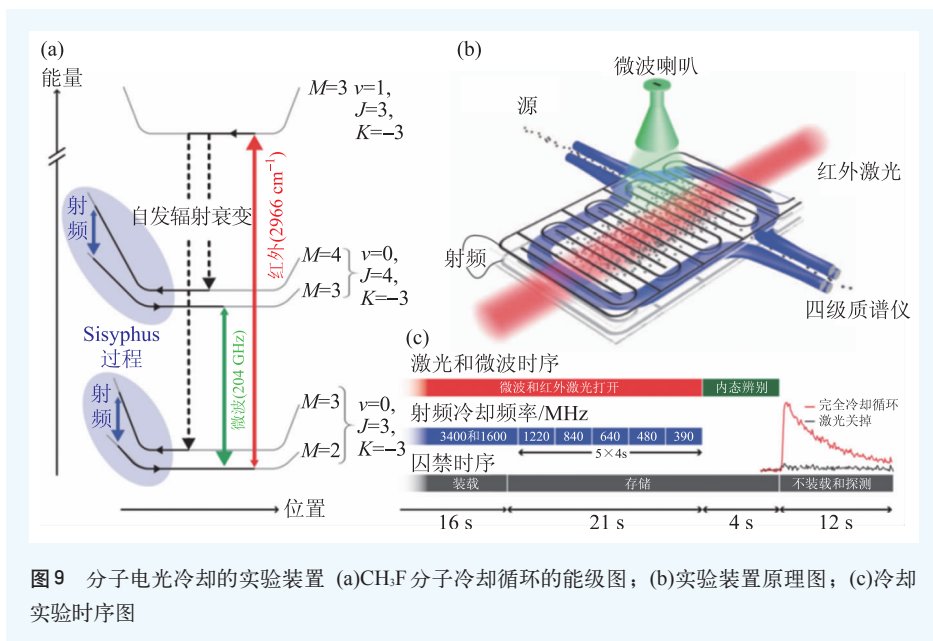


图9 分子电光冷却的实验装置 (a)CH<sub>3</sub>F分子冷却循环的能级图; (b)实验装置原理图; (c)冷却实验时序图

在实验上获得了几百 $\mu\text{K}$ 温度的甲醛分子, 分子数目为 $3 \times 10^5$ 个, 温度为 $420 \mu\text{K}$ , 单量子态超过80%的纯度<sup>[27]</sup>。显然, 这种分子冷却方法的主要优点是避开了分子束激光减速中, 难以有效解决的多普勒频移补偿问题, 和在分子磁光阱技术(MOT)中难以完全解决的暗态及分子激发态的 $g$ 因子较小等问题, 因而获得了的冷分子数目比传统激光减速与冷却技术的多得多。然后, 该冷却方法的缺点是电光冷却时间很长, 静电阱中的冷分子数密度很低, 因而如何将这些冷分子高效装载到一个常规势阱中去进一步冷却, 并提高相空间密度将是一个挑战性的技术问题。

### 3 分子磁光囚禁的基本原理、技术方案及其最新进展

在冷原子物理领域中经常用到磁光阱技术来制备冷原子, 它是利用三维光学黏胶的光辐射压力和四极磁阱来实现原子的激光冷却与囚禁。对于一些原子, 磁光阱可以捕获和冷却原子系综到超冷温度, 因而在精密测量物理、冷化学物理、冷碰撞物理, 量子计算与量子模拟等领域中有着广泛的应用。人们不禁想问, 既然磁光阱有这么大的用处, 能不能应用到分子体系呢, 这样不是可以产生更冷的分子了吗? 由于分子具有更多的

自由度(转动和振动), 在具有磁偶极矩的同时, 还有原子所没有的较大电偶极矩, 因而更具广泛的应用价值。受这些思想的启发, 各种产生冷分子的技术被相继发展。例如通过光缔合光谱或Feshbach共振技术, 可以使冷原子缔合形成低于 $1 \mu\text{K}$ 的冷分子, 但是这个方法受限于只可被激光冷却的原子种类, 而且所产生的冷分子一般寿命很短, 所以直接实现化学稳定分子的磁光

囚禁是很有必要的。分子的复杂结构使它的激光冷却与磁光阱很难实现, 获得的冷分子数目也较少, 但是全世界的科学家们迎难而上, 发展了各种分子磁光阱技术, 并取得了重要的实验进展。

下面以SrF分子为例, 介绍分子磁光囚禁的基本原理, 如图10所示<sup>[16, 17, 28]</sup>。3对相互垂直的圆偏振光相交于一个磁阱的中心区域, 每对光的偏振方向是相反的, 从而形成了一个三维光学黏胶; 同时一对反亥姆霍兹线圈提供一个三维封闭的四极磁阱, 它的磁场强度具有空间线性依赖关系, 磁阱中心位置的磁场为零。为了获得更多的冷分子, 四极磁阱的磁场约为 $10 \text{ G}$ , 这与原子磁光阱的构造非常类似。下面简单介绍分子磁光阱的工作原理。图10(a)给出了振动能级的相关跃迁, 包括FC因子、泵浦激光波长和数目等, 以此来保证跃迁循环的准封闭性。如图10(b)所示, 由于磁场是比较弱的非均匀磁场, 每个位置的Zeeman分裂是不同的, 于是共振跃迁的频率也是随空间变化的。在坐标原点处的磁场为零, 沿坐标轴两侧的磁场强度近似呈线性增大, 但方向相反。以 $z$ 轴为例, 有 $B(z)=Az(A=\text{dB}/\text{dz}, A$ 为磁场梯度, 一般为 $1 \sim 10^2 \text{ G}/\text{cm}$ 量级)。分子超精细的塞曼分裂,  $\Delta E = g_F \mu_B m_F B = g_F \mu_B m_F A z$ , 这里 $g_F$ 是朗德因子, 主要取决于具体原子或分子能级, 表示塞曼分裂的能量大小。沿 $z$ 轴有光强相同的两

束对射的激光束，偏振方向分别为 $\sigma^+$ 和 $\sigma^-$ 。SrF基态有4个超精细能级，在 $z>0$ 的位置每个超精细能级对应于不同的光偏振，这个主要是由于每个态的 $g$ 因子不同所决定的。每个超精细能级都会散射光子，可能把分子向中心推，也可能向外推，但是多次散射的总体效果肯定是向磁阱中心推，达到分子囚禁的效果。在 $x$ 和 $y$ 方向也类似，于是所有分子都将受到指向坐标原点的辐射压力，这样就实现了分子的三维激光冷却与磁光囚禁。

由于分子所受的是耗散力，分子在受到囚禁的同时不断地被冷却，使其成为制备超冷分子的重要工具。2010年，DeMille小组实现了SrF分子的二维的激光冷却<sup>[14]</sup>，然后在2012年又成功实现了分子的纵向激光减速与冷却<sup>[15]</sup>，为分子的磁光囚禁做好了充分的准备；终于在2014年成功实现了SrF分子的三维磁光囚禁<sup>[16]</sup>，实验装置如图11所示。除了一束主要的冷却光以外，还有3束再泵浦光，由于基态具有4个超精细能级，所以每束激光都被EOM调制成为4个不同频率的边带，每个边带频率对应不同的圆偏振光，每个 $F$ 态的磁 $g$ 因子不同，所对应的圆偏振也不同。实验得到的冷分子温度约为2.5 mK，密度大概为 $600\text{ cm}^{-3}$ ，冷分子数目只有300个，相应的寿命为56 ms。接着，2015年他们改进了实验方案<sup>[28]</sup>，改变了基态4个超精细能级所对应的圆偏振，这样可以适当减少暗态，提高阱的囚禁力，从而得到冷分子温度为13 mK，数目增加到500个，密度增大到 $4000\text{ cm}^{-3}$ ，寿命为136 ms。最近，他们实现了激光圆偏振方向和静磁场同步调制的MOT<sup>[17]</sup>，相应的光场和磁场的调制频率为射频量级，这样可更大程度上消除暗态，提高磁光阱的效率。最终实现了一个数目为2000个、寿命为0.5 s、温度为 $400\text{ }\mu\text{K}$ 和密度约为 $6\times 10^4/\text{cm}^3$ 的三维SrF-MOT。

2013年叶军小组实现了YO分子的二维磁光囚禁<sup>[18]</sup>，其中用了一束冷却光和两束泵浦光，冷却光被调制成为3个频率，对应于基态的3个超精细能

级。最终把一束分子束横向温度从25 mK冷却到了2 mK。2015年他们用微波抽运方式混合电子基态的转动态，同时加上了一段时间的激光扫频技术，得到了一束速度低于10 m/s的冷分子束。同年他们还提出了一种实现YO窄线宽MOT的新方案<sup>[29]</sup>。

## 4 总结与展望

近年来，人们已成功实现了SrF、YO和CaF等双原子分子的激光冷却和具有亚mK温度的SrF分子的磁光囚禁。由于冷的或超冷的极性分子具有丰富的内部自由度、大的电偶极矩和稳定的物理化学性质(即长寿命)，因而它们有着非常重要而又广阔的应用前景。例如，双原子极性分子拥有永久电偶极矩，引起长程的、可调谐的、各向异性电偶极—电偶极相互作用。电偶极—电偶极相互作用和分子自由度的精密控制使得超冷分子在凝聚态物理的量子模拟和量子计算与量子信息处理领域中成为一个非常有力的竞争者。此外，超冷分子可提供一个独一无二的机会去研究立体化学反应和基本对称性的验证。国际上已实现了SrF、CaF和YO双原子分子的激光冷却和 $\text{CH}_3\text{F}$ 和 $\text{CH}_2\text{O}$ 多原子分子的电光冷却。最近，美国哈佛

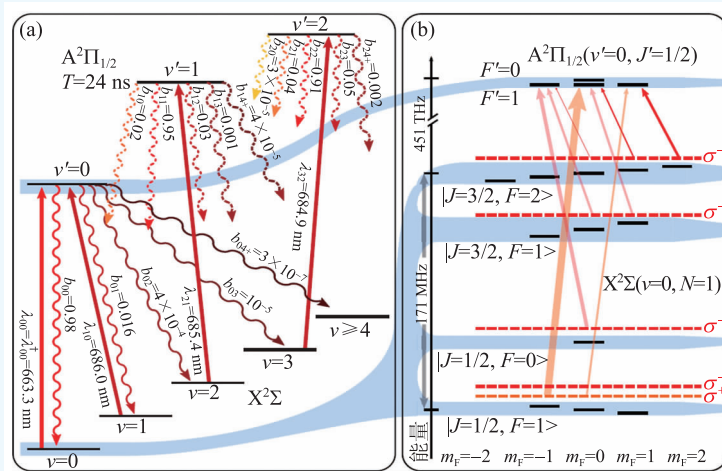


图10 SrF分子磁光阱的工作原理 (a)SrF相关的能级结构，黑实线是电子基态与激发态的各振动能级，向下的波浪线是自发辐射的通道和FC因子，向上的红实线是泵浦激光及其波长；(b)SrF基态超精细结构的塞曼分裂和在 $z>0$ 的位置处冷却激光的4个边带及其偏振情况



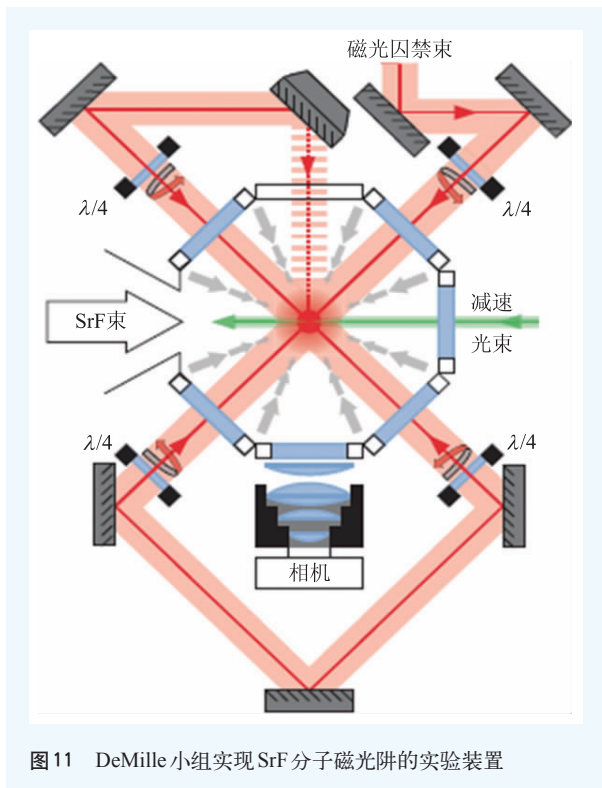


图11 DeMille小组实现SrF分子磁光阱的实验装置

大学的M. Doyle小组还成功实现了SrOH多原子分子的横向激光冷却<sup>[30]</sup>。此外,还有一些合适的候选分子(如MgF、BaF和BaH等)正在被激光减速与冷却。由于分子电子基态的振转能级比较复杂,构建不了非常好的闭合能级用于类似冷原子实验中的Zeeman减速来获得非常高的MOT装载效率。最近Hinds小组利用激光扫频实现CaF脉冲分子束的辐射压力减速的分子数目比白光减

速、多边带激光减速等提高一个量级以上。

尽管国际上几个实验小组选择了各种分子和不同的暗态消除技术来实现分子的磁光囚禁(MOT),但是结果仍然不是很理想,最终获得的冷分子数目很少,仅为 $10^3$ 量级,无法开展进一步的冷分子物理及其应用研究。究其原因,主要存在如下一些问题:(1)在分子束激光减速中,难以有效解决多普勒频移的补偿问题,因而减速效率较低;(2)在分子MOT中,由于外加磁场的影响,存在着许多暗态,难以完全消除;(3)考虑到转动能级的闭合性,几乎所有的分子磁光阱都是type-II型( $F \geq F_0$ ),于是分子激发态的g因子通常很小(比原子小3—5倍,甚至小一个量级),囚禁力很小,而且暗态更多,所以在分子MOT中得到的冷分子数目更少。

综上所述,化学稳定分子的激光冷却与磁光囚禁实验在国际上起步不久,虽然成功实现了SrF分子的3D-MOT,但是还有许多重要科学与关键技术问题尚未真正解决,存在着许多机会与挑战。此外,值得我们思考的问题是:是否有一种更好的方法可以避开“分子束的激光减速”和“使用外磁场的MOT技术”来成功实现分子的有效减速与sub-Doppler激光冷却?显然,如上所述的分子电光冷却就是较好的分子冷却方法之一。当然,是否有比电光冷却更好的方法,值得我们深思与探讨。

## 参考文献

- [1] Doyle J *et al.* Eur. Phys. J. D, 2004, 31: 149
- [2] Carr L *et al.* New J. Phys., 2009, 11: 055049
- [3] Jin D S, Ye J. Chem. Rev., 2012, 112: 4801
- [4] Jin D S, Ye J. Phys. Today, 2011, 64: 27
- [5] Ni K K *et al.* Science, 2008, 322: 231
- [6] Park J W *et al.* Phys. Rev. Lett., 2015, 114: 205302
- [7] Takekoshi T *et al.* Phys. Rev. Lett., 2014, 113: 205301
- [8] Molony P K *et al.* Phys. Rev. Lett., 2014, 113: 255301
- [9] Guo M Y *et al.* Phys. Rev. Lett., 2016, 116: 205303
- [10] Weinstein J D *et al.* Nature, 1998, 395: 148
- [11] van de Meerakker S Y T *et al.* Nat. Phys., 2008, 4: 595
- [12] Di Rosa M D. Eur. Phys. J. D, 2004, 31: 395
- [13] Shuman E S *et al.* Phys. Rev. Lett., 2009, 103: 223001
- [14] Shuman E S *et al.* Nature, 2010, 467: 820
- [15] Barry J F *et al.* Phys. Rev. Lett., 2012, 108: 103002
- [16] Barry J F, McCarron D J *et al.* Nature, 2014, 512: 286
- [17] Norrgard E B *et al.* Phys. Rev. Lett., 2016, 116: 063004
- [18] Hummon M T *et al.* Phys. Rev. Lett., 2013, 110: 143001
- [19] Zhelyazkova V *et al.* Phys. Rev. A, 2014, 89: 053416
- [20] Hemmerling B *et al.* J. Phys. B., 2016, 49: 134002
- [21] Xu L *et al.* Phys. Rev. A, 2016, 93: 013408
- [22] Yin J P. Phys. Rep., 2006, 430: 1
- [23] Truppe S *et al.* New J. Phys., 2017, 19: 022001
- [24] Yeo M *et al.* Phys. Rev. Lett., 2015, 114: 223003
- [25] Zeppenfeld M *et al.* Nature, 2012, 491: 570
- [26] Glöckner R *et al.* Phys. Rev. Lett., 2015, 115: 233001
- [27] Prehn A *et al.* Phys. Rev. Lett., 2016, 116: 063005
- [28] McCarron D J *et al.* New J. Phys., 2015, 17: 035014
- [29] Collopy A L *et al.* New J. Phys., 2015, 17: 055008
- [30] Kozyryev I, Baum L *et al.* J. Phys. B, 2016, 49: 134002