

超冷原子分子混合气中三原子分子的首次量子相干合成

王心瑶^{1,2,3} 赵博^{1,2,†} 白春礼^{3,††} 潘建伟^{1,2,†††}

(1 中国科学技术大学 合肥微尺度物质科学国家研究中心 合肥 230026)

(2 量子信息与量子科技前沿协同创新中心 上海 201315)

(3 中国科学院化学研究所 北京 100190)

2022-03-03 收到

† email: bozhao@ustc.edu.cn

†† email: clbai@cas.cn

††† email: pan@ustc.edu.cn

DOI: 10.7693/wl20220308

量子计算和量子模拟具有强大的并行计算和模拟能力,不仅能够解决经典计算机无法处理的计算难题,还能有效揭示复杂物理系统的规律,从而为新能源开发、新材料设计等提供指导^[1]。量子计算研究的终极目标是构建通用型量子计算机,但实现这一目标需要制备大规模的量子纠缠并进行容错计算,仍然需要长期不懈的努力。当前量子计算的短期目标是发展专用型量子计算机,即专用量子模拟机,它能够在某些特定的问题上解决现有经典计算机无法解决的问题。例如,超冷原子分子量子模拟^[2, 3],利用高度可控的超冷量子气体来模拟复杂的难于计算的物理系统,可以对复杂系统进行精确的全方位的研究,因而在化学反应和新型材料设计中具有广泛的应用前景。

超冷分子将为实现量子计算打开新的思路,并为量子模拟提供理想平台。但由于分子内部的振动转动能级非常复杂,通过直接冷却的方法来制备超冷分子非常困难。超冷原子技术的发展为制备超冷分子提供了一条新的途径。人们可以绕开直接冷却分子的困难,从超冷原子气中利用激

光、电磁场等来合成分子。利用光从原子气中合成分子的研究可以追溯到20世纪80年代^[4]。激光冷却原子技术的出现使得光合成双原子分子得以快速的发展,并在高精度光谱测量中取得了广泛的应用。在光合成双原子分子取得成功之后,人们开始思考能否利用量子调控技术从原子和双原子分子的混合气中合成三原子分子。2006年,美国国家标准局的Paul Julienne教授等人回顾了光合成双原子分子过去20年的发展历史,并指出从原子和双原子分子的混合气中合成三原子分子是未来合成分子领域的一个重要研究方向^[5]。但光合成的双原子分子气存在密度低、温度高等缺点,一直无法用来研究三原子分子的合成。后来随着超冷原子气中费希巴赫(Feshbach)共振技术的发展,利用磁场或射频场合成分子成为制备超冷双原子分子的主要技术手段^[6]。从超冷原子中制备的双原子Feshbach分子具有相空间密度高、温度低等优点,并且可以用激光将其相干地转移到振动转动的基态。自2008年美国科学院院士Deborah Jin和叶军的联合实验小组制备了铷钾超冷基态分子以来^[7],多种碱金属原子的双原子分子先后在其他实验室中被制备出来,并被广泛地应用于超冷化学和量子模拟的研究中^[8-11]。

超冷基态分子的成功制备重新唤起了人们对合成超冷三原子分子的研究兴趣。超冷三原子分子所具有的丰富自由度和可被外场精确调控的性质使其成为了模拟量子三体问题的理想研究平台。三体问题极其复杂,即使经典的三体问题由于存在混沌效应也无法精确求解。在量子力学的约束下,三体问题变得更加难以捉摸。如何理解

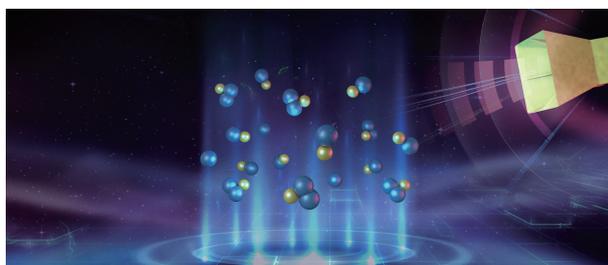


图1 从超冷原子和双原子分子混合气中利用射频场合成三原子分子的示意图

和描述量子力学下的三体问题一直都是少体物理中的一个重要难题。此外，超冷三原子分子可以用来实现超高精度的光谱测量，这为刻画复杂的三体相互作用势能面提供了重要的基准。由于计算势能面需要高精度地求解多电子薛定谔方程，超冷三原子分子的势能面也为量子化学中的电子结构问题提供了重要的信息。

2015年，法国国家科学研究中心的Olivier Dulieu教授等在理论上分析了从原子和双原子分子混合气中合成三原子分子的可行性^[12]。但由于三原子分子的能级结构及相互作用极其复杂，无法精确计算，因而理论上无法预测三原子分子束缚态的能量以及散射态和束缚态的耦合强度。2019年，我们课题组首次观测到超低温下钾原子和钠钾双原子分子的Feshbach共振，相关成果发表于*Science*杂志^[13]。在Feshbach共振附近，三原子分子束缚态的能量和散射态的能量趋于一致，同时散射态和束缚态之间的耦合被大幅度地共振增强。原子分子Feshbach共振的成功观测为合成三原子分子提供了新的机遇。但由于原子和分子的Feshbach共振非常复杂，理论上难以解释，能否和如何利用Feshbach共振来合成三原子分子依然是实验上的巨大挑战。

我们通过射频耦合的方法来合成三原子分子^[14]。在钠钾分子与钾原子的Feshbach共振附近，应用射频脉冲来耦合散射态与束缚态，并测量钠钾基态分子的损失。这一方法的优势在于即使三原子分子的寿命非常短，三原子分子合成的信号依然能够从钠钾基态分子的损失中体现出来。我们在射频损失谱中发现了与原子跃迁所引发的损失峰明显不同的额外损失，提供了三原子分子合成的明确证据。此外，还观察到

了这一额外的损失和原子跃迁损失峰之间的距离随磁场的变化，并从射频损失谱中提取了三原子分子的结合能。

实验上，我们首先制备钠原子与钾原子的简并混合气，混合气的温度约为250 nK，然后将磁场扫过钠钾原子间的Feshbach共振来合成弱束缚的双原子Feshbach分子。合成钠钾Feshbach分子后，通过受激拉曼绝热通道(STIRAP)技术将弱束缚的钠钾Feshbach分子转移到振转基态，再用一束共振光将光阱中剩余的钠原子吹走，就完成了钠钾基态分子与钾原子混合气的制备。基态分子的内态可以用 $|v, N, m_{\text{Na}}, m_{\text{K}}\rangle$ 来表示，其中 v 和 N 分别为振动和转动量子数， m_{Na} 和 m_{K} 则分别表示钠原子和钾原子的核自旋沿磁场方向的投影。我们将钠钾基态分子制备到 $|0, 0, -3/2, -3\rangle$ ，钾原子制备到 $|F, m_F\rangle = |9/2, -9/2\rangle$ ， F 为钾原子

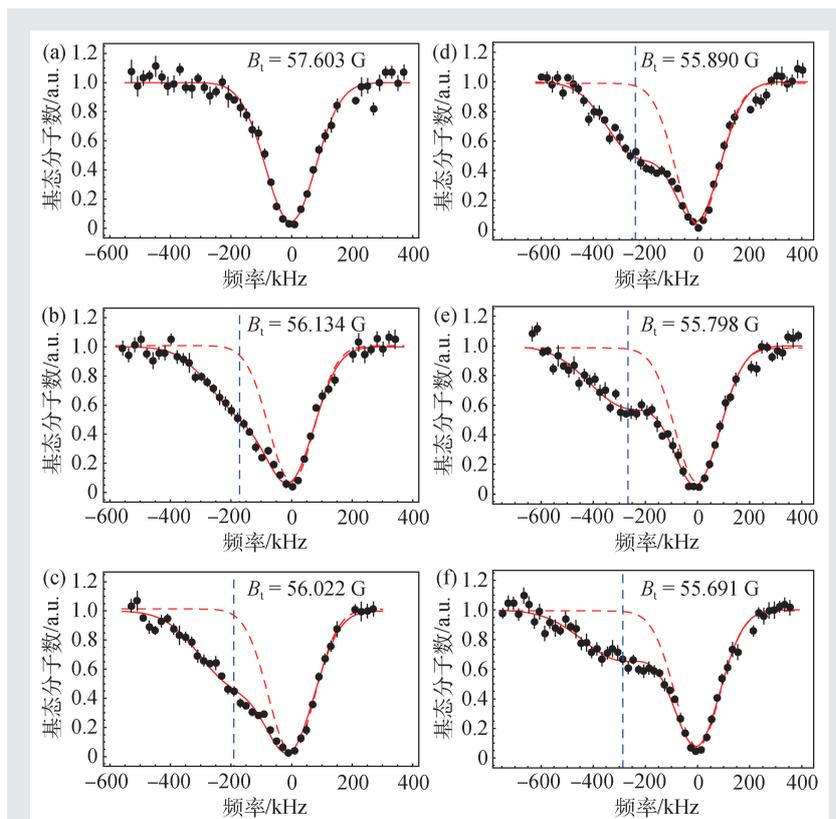


图2 钠钾基态分子 $|0, 0, -3/2, -3\rangle$ 与钾原子 $|9/2, -7/2\rangle$ 的Feshbach共振附近不同磁场下的射频损失谱 (a)当 $B_1=57.603$ G时， $|9/2, -9/2\rangle \rightarrow |9/2, -7/2\rangle$ 原子跃迁损失峰；(b-f)当 55.691 G $\leq B_1 \leq 56.134$ G时，在原子损失峰的左侧出现了由于三原子分子的合成导致的额外损失^[14]

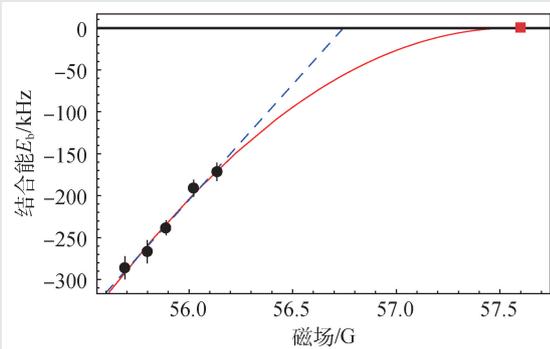


图3 三原子分子的结合能随磁场变化的曲线。图中分别采用 Universal 模型(红线)和线性模型(蓝虚线)对结合能数据进行了拟合^[14]

总角动量量子数, m_F 为总角动量沿磁场方向投影。然后利用钠钾基态分子 $|0, 0, -3/2, -3\rangle$ 与钾原子 $|9/2, -7/2\rangle$ 在约 57.6 G 处的 Feshbach 共振来合成三原子 Feshbach 分子。利用射频合成三原子分子的示意图如图 1 所示。

在这一钠钾基态分子与钾原子的 Feshbach 共振附近, 如果射频脉冲的频率与原子跃迁 $|9/2, -9/2\rangle \rightarrow |9/2, -7/2\rangle$ 的频率共振, 那么钾原子将被转移到 $|9/2, -7/2\rangle$ 态。由于钠钾基态分子与钾原子 $|9/2, -7/2\rangle$ 的非弹性碰撞损失在 Feshbach 共振附近大幅度增强, 钠钾基态分子将快速损失, 在射频损失谱上表现为对称的损失峰。但是如果射频频率与散射态到束缚态的跃迁共振, 就可能在某些磁场下观测到超冷钠钾分子与钾原子

混合气中三原子分子的合成。图 2 展示了不同磁场下, 剩余钠钾基态分子数随射频频率的变化关系。可以从图上清晰地看到, 随着磁场的变化, 在原子损失峰的左侧出现了额外的损失, 这一额外的损失即标志着三原子分子的合成, 且这一额外的损失特征随着磁场的减小在不断向外移动。我们利用双高斯函数对射频损失谱的数据进行拟合, 两个高斯峰之间的差值即为三原子分子在该磁场下的结合能。三原子分子结合能随磁场的变化如图 3 所示。利用 Universal 模型 $E_b \propto (B - B_0)^2$ 对结合能的数据进行了拟合, 所反推出的 Feshbach 共振位置与之前通过实验测得的结果符合得很好^[15], 而如果采用线性模型进行拟合, 反推出的 Feshbach 共振位置就与实验观测的结果有较大的差别。这体现了 Feshbach 共振附近散射态与束缚态的强烈耦合导致的三原子分子束缚态的弯曲。

这一工作首次成功地在原子分子 Feshbach 共振附近利用射频场相干合成了三原子分子, 并测量了 Feshbach 共振附近三原子分子的束缚能。该研究成果近期在 *Nature* 杂志上发表。从三原子 Feshbach 分子出发, 在未来可以尝试将其转移到振转基态, 制备出更为稳定的三原子分子。该工作作为量子三体问题的研究打下了坚实的基础, 为超冷化学的量子模拟提供了一种重要的可推广的实验技术手段, 为这一领域的研究开辟了一条新的道路。

参考文献

- [1] Wilczek F. *Physics Today*, 2016, 69(4):32
- [2] Bloch I, Dalibard J, Nascimbene S. *Nature Physics*, 2012, 8(4): 267
- [3] Cirac J I, Zoller P. *Nature Physics*, 2012, 8(4):264
- [4] Thorsheim H, Weiner J, Julienne P S. *Phys. Rev. Lett.*, 1987, 58 (23):2420
- [5] Jones K M, Tiesinga E, Lett P D *et al.* *Rev. Mod. Phys.*, 2006, 78 (2):483
- [6] Chin C, Grimm R, Julienne P *et al.* *Rev. Mod. Phys.*, 2010, 82(2): 1225
- [7] Ni K K, Ospelkaus S, De Miranda M *et al.* *Science*, 2008, 322 (5899):231
- [8] Park J W, Will S A, Zwierlein M W. *Phys. Rev. Lett.*, 2015, 114 (20):205302
- [9] Molony P K, Gregory P D, Ji Z *et al.* *Phys. Rev. Lett.*, 2014, 113 (25):255301
- [10] Guo M, Zhu B, Lu B *et al.* *Phys. Rev. Lett.*, 2016, 116(20): 205303
- [11] Rvachov T M, Son H, Sommer A T *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, 2017, 119(14):143001
- [12] Pérez-Ríos J, Lepers M, Dulieu O. *Phys. Rev. Lett.*, 2015, 115 (7):073201
- [13] Yang H, Zhang D C, Liu L *et al.* *Science*, 2019, 363(6424):261
- [14] Yang H, Wang X Y, Su Z *et al.* *Nature*, 2022, 602(7896):229
- [15] Wang X Y, Frye M D, Su Z *et al.* *New Journal of Physics*, 2021, 23(11):115010