arXiv:2301.06663v1 [physics.atom-ph] 17 Jan 2023

利用激光脉冲实现受激吸收和受激发射，对一氟化钡分子施加大光学力：完整的密度矩阵模拟

A. Marsman、D. Heinrich、M. Horbatsch 和 E. A. Hessels*
Department of Physics and Astronomy, York University(EDM^3 合作组)
（日期：2023年1月18日）

我们对一氟化钡（BaF）束流的光学偏转进行了完整的密度矩阵模拟。采用成对的反向传播的激光脉冲，先实现受激吸收，随后实现受激发射。该方案产生的力几乎是连续波激光偏转所能获得的力的十倍，而且力与自发衰变之比也提高了十倍以上。大幅减少自发衰变是实现分子光学偏转的关键，因为通往其他振动态的分支比使循环跃迁无法实现。本研究是 EDM^3 合作组测量电子电偶极矩工作的一部分，该工作使用嵌入低温氩固体中的 BaF 分子。偏转 BaF 分子可使它们与来自缓冲气体冷却烧蚀源的其他烧蚀产物分离，然后再将其嵌入氩固体中。我们的模拟表明，实现足以完成这种分离的大幅偏转是可行的。

I. 引言

自首次提出 [1]并付诸实践 [2]以来，激光束在原子上产生的光学力已被证明是原子物理学中的一项重要工具。这些力通常源于吸收一个动量量子（$\hbar\vec{k}$），随后发生自发衰变。这一过程产生的力可高达 $F_0 = \hbar k/(2\tau)$，相当于每经过两个寿命就改变一个动量量子。

另一类原子激光力方案利用受激发射：原子受激时获得 $\hbar k$ 的动量，随后，一束方向相反的激光束通过受激发射使原子返回基态，从而再为原子增加动量。此类受激发射方案产生的力可以大于 F_0，但代价是必须采用更复杂的装置，涉及多束激光束和随时间变化的光场。原子受激发射力的一个重要例子是由 Grimm 等人首次演示 [3]并由其他人进一步发展 [4–8]的双色力。双色力使用两对彼此反向传播、频率互有偏移的激光束。频率偏移会在两个方向上产生拍频；在原子所在位置，这种拍频会使来自两个方向的脉冲（在时间上错开）依次到达。

另一种更直接的受激发射光学力方案，利用来自反向传播激光束的脉冲对驱动受激吸收和发射。Long 等人已将此方案应用于原子 [9]。在本研究中，我们考察分子所受的光学力，并模拟一种使用激光脉冲的受激发射方案。我们将研究对象具体限定为一氟化钡（BaF）分子；EDM^{3}合作项目正是利用这种分子，对电子的电偶极矩进行超高精度测量 [10]。为进行测量，缓冲气体冷却激光烧蚀源产生的 BaF 分子被嵌入固态氩中。为了制备不受污染的固体，必须通过偏转将 BaF 分子与其他烧蚀产物分离。对于我们的几何构型，需要近 3 m/s 的偏转（相当于 1000 个光子动量量子）。这一偏转远大于此前利用双色力实现的其他分子的偏转 [11, 12]。

分子给光学力带来了重大挑战[13]。第一个困难源于振动态的存在。每次分子发生自发辐射时，都有一定的分支比使其返回电子基态的 $v > 0$ 能级。对于某些分子（包括 BaF），还存在跃迁至中间电子态的分支比。若要继续冷却，就需要一组再泵浦激光，将分子送回适当的态。

此外，对于最适合冷却的分子（包括 BaF），所需跃迁在基态中的子态数量 n_g 多于激发态中的子态数量（n_e）。图 1 展示了这一情况，其中给出了 BaF 冷却跃迁涉及的态 [14]（$X\,^2\Sigma_{1/2}$ v=0，N=1 负宇称态和 $A\,^2\Pi_{1/2}$ v'=0，j'=1/2 正宇称态）。计入超精细结构后，基态包含 $n_g = 12$ 个子态，而激发态包含 $n_e = 4$ 个子态。拥有 $n_g > n_e$ 会对激光冷却产生两种不利影响。

第一个效应是，偏振固定的激光会迅速将布居数泵浦到暗态（即无法被这种偏振激发的 n_g 态的线性组合），从而使光学力停止。这些暗态可以通过以下方式使其失稳：例如，[15] 通过——

* hessels@yorku.ca

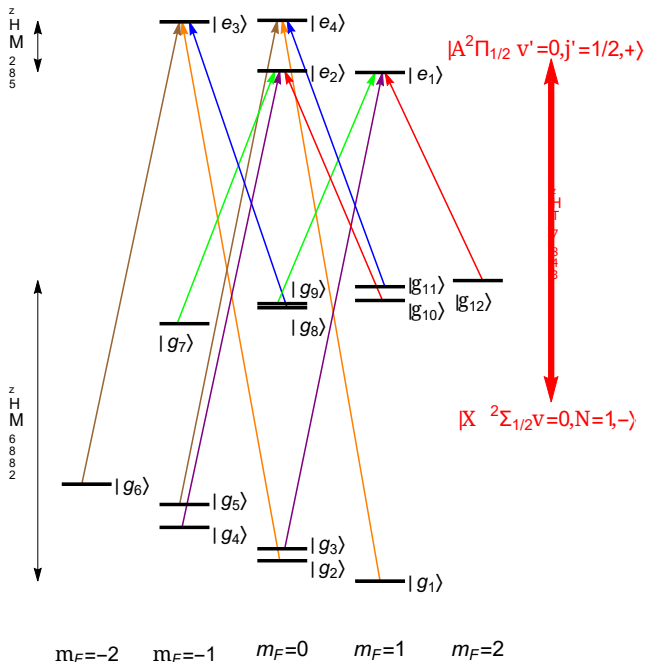

图 1.（在线彩色）在 1000 高斯磁场下，$X\,^2\Sigma_{1/2}$ v=0, N=1 负宇称态和$A\,^2\Pi_{1/2}$ v'=0, j'=1/2 正宇称态的 BaF 能级。磁场分辨出子态之间的各个跃迁，箭头表示被驱动的十二个跃迁。由于激光频率成对相近，这些跃迁由六种激光频率驱动，如箭头的六种颜色所示，详情见表I。

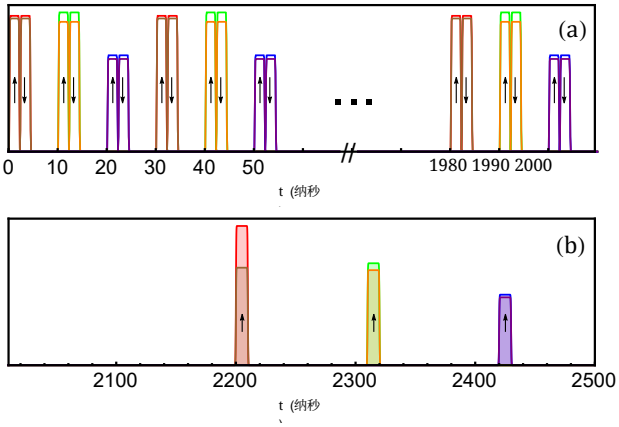

图2。（网络版彩色）激光脉冲的时序图。面板（a）显示偏转开始后的第一个 2 μs。向上照射的激光束发出的 2 ns π脉冲，紧接着由向下照射的激光束发出一个类似的 π 脉冲。每个脉冲都包含两个频率，如图中颜色及图 1 中对应的颜色所示。这两个频率作用于十二个 $|g_i\rangle$ 态中的四个态的布居数。这两个脉冲之后，分别间隔 10 ns 和 20 ns 发出类似的脉冲，作用于其他 $|g_i\rangle$ 态；这一持续 30 ns 的序列重复 67 次。这些脉冲之后，针对 $v=1$ 态中各个对应激光跃迁的单个 10.5 ns 脉冲，会将布居数再泵浦回 $v=0$，如面板（b）所示。在分子穿过激光束的过程中，两个面板所示的序列重复约 15 次。

例如，使用调频激光器 [16]，或施加取向适当的磁场 [17]，使分子发生拉莫尔进动并进入亮态。通常，进动所用的磁场强度约为 10 高斯。我们克服暗态问题的方法是施加大得多的磁场（约 1000 高斯），以分辨各个子态（如图 1 所示），然后使用激光脉冲分别寻址各个子态。

具有 $n_{\rm g}>n_{\rm e}$ 的第二个影响是，即使解决了暗态问题，力也会更小。例如，如果没有暗态积累，且激光能够有效地使 $n_{\rm g}+n_{\rm e}$态的布居数均衡，那么自发衰减力所能达到的最大值为 $F_{\rm m}=2F_0n_{\rm e}/(n_{\rm e}+n_{\rm g})$。受激发射力也会出现类似的下降。

II. 光学偏转方案

我们提出的光学偏转方案采用一系列激光脉冲，每个脉冲持续 2 ns，如图 2(a) 所示。首先，由一束向上传播的激光束发出第一个脉冲，紧接着由一束向下传播的激光束发出第二个脉冲。第一个脉冲旨在将基态布居数激发到激发态，第二个脉冲则通过受激过程将这些布居数送回基态。图 2(a) 中的每组两个脉冲都包含两个不同的频率（如两种颜色的脉冲所示），这两个频率驱动四个跃迁，如图 1 中这两种颜色的四个箭头所示。沿激光束轴向施加的 1000高斯磁场会解除 $|g_i\rangle$ 态之间的简并，使这四个彼此分离的跃迁得以驱动，同时几乎不会因其他 $|g_i\rangle$到$|e_j\rangle$ 跃迁而发生意外布居转移。每个频率下的强度均经过选择，以满足 π脉冲条件，从而使图 1 中四个 $|g_i\rangle$ 态的布居数能够高效地激发到 $|e_1\rangle$、$|e_2\rangle$、$|e_3\rangle$ 和 $|e_4\rangle$这四个态，随后再返回原来的四个 $|g_i\rangle$态。

如果基态仅由四个子态组成，这对脉冲便可重复施加，并在每个周期中 impart 两个动量量子。然而，当存在十二个子态时，自发衰变会使布居数从这四个态转移到另外八个 $|g_i\rangle$ 态，而这八个态将成为暗态。可以通过让下一对脉冲（图 2(a)中以紫色和蓝色表示）作用于另外四个 $|g_i\rangle$ 态来克服暗态问题；这对脉冲使用两个频率，驱动图1中所示的紫色和蓝色跃迁。随后，第三对脉冲则作

用于剩余的四个 $|g_i\rangle$ 态（图1和图 2(a)中的橙色和棕色态）。

如果不存在自发衰变，这一脉冲循环（图 2(a) 的前 30 ns）便可无限重复，而无需担心暗态。然而，如果发生自发衰变，例如在图 2(a) 中的 2 ns 处发生，那么第二个脉冲原本旨在将布居数激发回 $|g_i\rangle$ 态，却会反而将其激发至 $|e_j\rangle$ 态，从而沿相反方向赋予其一个动量量子。此外，之后的所有脉冲也会同样起到相反作用，将错误符号的动量赋予分子。在这种情况下，分子会持续受到方向相反的力，直到另一次自发衰变使方案重新回到正轨。脉冲对之间的延迟时间（例如，图 2(a) 中以 3 ns 和 11 ns 为中心的脉冲之间的延迟）使得纠正方案、使其回到预期循环的自发衰变发生速率，高于使力方向反转的自发衰变速率；后者只有在自发衰变发生于间隔很短的脉冲之间时才会出现（例如，图 2(a) 中以 11 ns 和 13 ns 为中心的脉冲之间）。

净效应是，大多数时候（约80%的时间；这是由脉冲对之间10 ns的周期与脉冲延迟的8 ns中心间隔之比决定的），力的方向正确；而20%的时间，力的方向相反。因此，净力相当于每10 ns获得0.6（80%减去20%）乘以两个动量量子再除以三。除以三是因为每个10 ns周期内，只有三分之一的布居数受到作用。预测的净力是自发衰减力 F_m 可能产生的力的九倍（只有消除暗态问题后，才能实现这种自发衰减力）。压缩图2的时间尺度会产生更大的力，但缩短脉冲持续时间后，脉冲本身具有更宽的频谱，因此可能需要更强的磁场，才能充分分辨图 1中的能级。还需要更高强度的激光，以满足 π-脉冲判据。

如下一节所示，布居数始终主要分布在基态中。这减少了自发衰变，从而减少了损失到 $v = 1$ 和其他状态的布居数。因此，在当前方案中只需要一个再泵浦激光。

III. 完整密度矩阵模拟

本节介绍偏转方案的密度矩阵模拟。由于处于 $A\,^2\Pi_{1/2}(v = 0)$态的BaF分子衰变至 $X\,^2\Sigma_{1/2}(v = 0)$态的分支比 [14] 为96.4%（见图 3），图 1中的十六个态构成了一个近似封闭的系统。然而，衰变至 $X\,^2\Sigma_{1/2}(v = 1)$ 态的分支比 [14] 为3.5%，

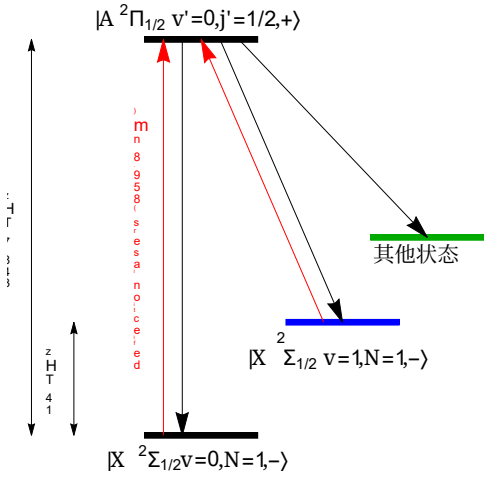

图 3.（在线彩色） $A^2\Pi_{1/2}$ 态的分支比，以及冷却方案所需的激光波长。

因此还需在模拟中纳入另外十二个基态（$|g_{13}\rangle$至 $|g_{24}\rangle$，它们是图 1中 $|g_1\rangle$ 至$|g_{12}\rangle$ 的 $v = 1$ 对应态）。为避免布居数积累在这十二个态中，需要使用再泵浦激光。剩余0.1%的分支比 [14] 包括自发衰变至$X\,^2\Sigma_{1/2}(v>1)$态和 $A'\,^2\Delta_{3/2}$ 态。自发衰变至后一个态会使分子在第二次衰变至$X\,^2\Sigma_{1/2}$ 态时改变宇称。如下文所示，这些态无需再泵浦激光，因此可将它们视为一个额外的单一态（$|g_{25}\rangle$）；该态是暗态，布居数会随时间不断积累。

模拟中总共包含 29 个态：25 个基态和 4 个激发态。在分子通过激光束的时间段内，通过数值积分其微分方程，可以确定密度矩阵元的时间演化：

$$
\begin{aligned}
\frac{d\rho_{gg'}}{dt} &= i\omega_{g'g}\rho_{gg'} + \frac{i}{2}\sum_e(\Omega_{eg'}\rho_{ge} - \Omega_{ge}\rho_{eg'}) \\
&\quad + \sum_{e,e'}\gamma_{ege'g'}\rho_{ee'}; \\
\frac{d\rho_{ee'}}{dt} &= i\omega_{e'e}\rho_{ee'} + \frac{i}{2}\sum_g(\Omega_{ge'}\rho_{eg} - \Omega_{eg}\rho_{ge'}) \\
&\quad - \frac{1}{2}\sum_{g,e''}(\gamma_{ege''g}\rho_{e''e'} + \gamma_{e''ge'g}\rho_{ee''}); \\
\frac{d\rho_{ge}}{dt} &= i(\omega_{eg} - \omega_v)\rho_{ge} + \frac{i}{2}\sum_{g'}\Omega_{g'e}\rho_{gg'} \\
&\quad - \frac{i}{2}\sum_{e'}\Omega_{ge'}\rho_{e'e} - \frac{1}{2}\sum_{g',e'}\gamma_{e'g'eg'}\rho_{ge'},
\end{aligned}
\tag{1}
$$

其中，指标 g 和 e 分别表示 25 个基态和

4 个激发态。这里，$\hbar\omega_{ab} = E_a - E_b$ 是 1000高斯磁场中两个状态 $|a\rangle$ 和 $|b\rangle$ 之间的能量差。这些能量采用参考文献 [16] 附录中详述的方法计算，并列于本文附录的表II中。对于每个 v 值，$|e\rangle$ 态与 $|g\rangle$ 态的平均能量之差记为 ω_v （$v = 0,\ 1$）。使用旋波近似（两次），以避免光学频率 ω_0 和 ω_1 处的快速振荡。

我们采用自发衰减的完整表述 [18, 19]，该表述利用

$$\gamma_{ege'g'} = \frac{\omega^3}{3\pi\epsilon_0\hbar c^3}\vec{d}_{ge}\cdot\vec{d}_{e'g'}. \tag{2}$$

对角元素 γ_{ege} 等于分支比乘以 $1/\tau$。随后，可根据 $A\,^2\Pi_{1/2}$ 态的测量寿命（$\tau = 57.1$ ns [20]）、各振动态的分支比 [14]，以及从单个塞曼态 $|e_j\rangle$ 到 $|g_i\rangle$的跃迁比，推导出偶极矩阵元。这些跃迁比采用参考文献 [16] 中所述的方法计算。所用电偶极矩阵元的数值列于附录的表 III 中。

式（1）中的拉比频率为

$$\Omega_{ge}(t) = \vec{d}_{ge}\cdot\sum_p \frac{\hat{\epsilon}_p E_{0p}(\vec{r},t)}{\hbar} e^{i[(\omega_p-\omega_v)t-\vec{k}_p\cdot\vec{r}+\phi_p]}\Big|_{\vec{r}=\vec{r}_m(t)}. \tag{3}$$

这里，$\vec{d}_{ge}$ 是态 g 与 e 之间的电偶极矩阵元；求和遍历所有激光场，包括图 2(a)中的向上和向下光束及其全部六个频率分量（详见表I），以及图 2(b)所示的六个再泵浦频率。频率、波矢、相位、偏振和振幅分别表示为 $\omega_p/(2\pi)$、$\vec{k}_p$、ϕ_p、$\hat{\epsilon}_p$ 和 $E_{0p}(\vec{r},\ t)$。后者同时包含激光脉冲的时间轮廓（图2）和激光束的空间轮廓；空间轮廓取为平顶形状（例如参考文献 [21]），并用如下形式的椭圆超高斯函数近似

$$e^{(-x^2/w^2-y^2/h^2)^5}, \tag{4}$$

其中，w 和 h 的取值经过选择，使得光束的半高全宽在宽度方向为 5 mm，在高度方向为 1 mm。各光束所用的 E_0 取值列于表I，对应的激光峰值功率（在 2-ns 脉冲期间）约为 2 W。

该光强分布中的 $\vec{r}$ 依赖关系以及式 (3) 的复指数中的 $\vec{r}$，均在分子位置 $\vec{r}_m\,(t)$ 处计算。分子的轨迹由其初始位置（假设位于激光束轴线前方 3.25 mm 处）和初始速度决定（假设为 150 m/s——这是 BaF 的典型速度

跃迁	偏振-化	图 1&2(a)	Δf (MHz)	E_0 (V/cm)
$\|g_{12}\rangle \to \|e_1\rangle$, $\|g_{10}\rangle \to \|e_2\rangle$	σ^-	red	-1696	208
$\|g_6\rangle \to \|e_3\rangle$, $\|g_5\rangle \to \|e_4\rangle$	σ^+	棕色	$+1615$	208
$\|g_9\rangle \to \|e_1\rangle$,$\|g_7\rangle \to \|e_2\rangle$	σ^+	绿色	-1659	217
$\|g_2\rangle \to \|e_3\rangle$, $\|g_1\rangle \to \|e_4\rangle$	σ^-	橙色	$+1739$	203
$\|g_{11}\rangle \to \|e_4\rangle$, $\|g_8\rangle \to \|e_3\rangle$	σ^-	blue	-1104	150
$\|g_4\rangle \to \|e_2\rangle$, $\|g_3\rangle \to \|e_1\rangle$	σ^+	紫色	$+1104$	145

表I. 图 1 中十二个激光跃迁所用的参数。

处于 4 开尔文氦缓冲气体冷却束中的分子 [22]——朝向激光束轴线）以及根据 Ehrenfest 定理得到的力 [23]:

$$\vec{F}(t) = -\hbar\sum_{e,g}\mathrm{Re}[\rho_{eg}(t)\nabla\Omega_{ge}(\vec{r},t)]\Big|_{\vec{r}=\vec{r}_m(t)}. \tag{5}$$

密度矩阵有 $29^2 = 841$ 个分量。然而，当 g 和 g' 的振动量子数 v 不相同时，我们令 $\rho_{gg'} = 0$，因为其微分方程中的 $i\omega_{g'g}$ 项会引起红外频率下的旋转，使得由 $\gamma_{ege'g'}$ 项导致的该态中较慢的累积平均为零。剩下的 505 个密度矩阵元，以及 $\vec{r}_m$(t) 的 $\dot{}$ 个分量和 $\vec{r}_m$(t) 的分量，会在分子通过激光轮廓所需的 45 μ 内进行数值积分。这些积分的计算量很大，因为式 (1) 中的 $\omega_{g'g}$ 项和 $\omega_{eg} - \omega_v$ 项会引起周期短于 1 ns 的振荡，必须准确计算。

该积分的结果见图 4，其中显示了十二个 v=0 基态的总布居数（红色）以及四个激发态的总布居数（蓝色）。图中面板 (b) 的时间切片展示了各个 π脉冲的布居数转移，而面板 (a) 则展示了分子穿过激光束所需时间内的平均布居数。平均而言，只有 10% 的布居数（蓝色虚线）处于激发态，这意味着每个分子平均需要经历约十个寿命才会发生一次自发辐射。自发辐射减少，使布居数损失至暗态的速度减缓；然而，每经过 2 μ个偏转激光脉冲（图 2(a)），便有 18% 的布居数处于 $X\,^2\Sigma_{1/2}$ v=1，N=1 暗态（图 4(a) 中的绿色）。

为避免这些暗态中的布居数进一步累积，六个 10.5 ns 的 π 脉冲（如图 2(b) 所示）驱动从十二个 $X\,^2\Sigma_{1/2}$ v=1、N=1 态（$|g_{13}\rangle$ 至 $|g_{24}\rangle$）到 $|e_1\rangle$ 至 $|e_4\rangle$ 态之一的十二个跃迁。这些跃迁是图 1 和表I所示跃迁的精确 $v = 1$ 对应形式；较长的脉冲时长补偿了耦合这些态的较小电偶极矩阵元。图2中的偏转与再泵浦序列会

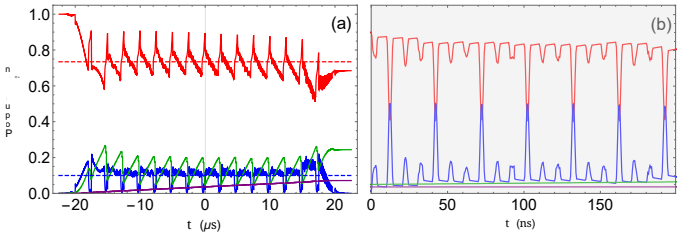

图 4。（在线彩色） v=0基态（红色）、激发态（蓝色）、v=1 基态（绿色）以及所有其他状态（紫色）的总布居数。面板 (a) 显示了整个偏转时间内的时间平均布居数（50 ns 移动平均）。可以看到，经过 2 μs 的偏转脉冲后，v=1 布居数累积至 18%；此时，再泵浦脉冲会使其中大部分返回v=0 态。在整个偏转时间内，所有其他状态的布居数始终很小，表明无需额外的再泵浦激光。窄灰色区域所示的 200 ns 时段在面板 (b) 中放大显示，且未进行时间平均，以便观察各个 π 脉冲的作用。该面板中较大的特征源于对 $|g_1\rangle$、$|g_2\rangle$、$|g_7\rangle$和 $|g_9\rangle$的激发；由于它们的分支比较大，这四个状态的布居数最高。

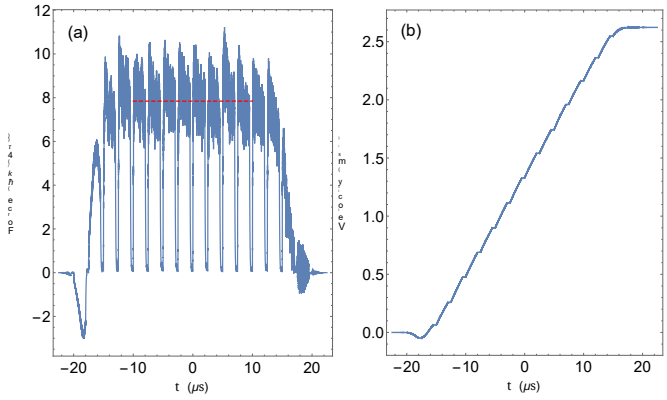

图 5.（在线彩色）采用本文所述方案偏转的氟化钡分子所受的力（a，以 F_m 为单位）和横向速度（b）随时间的变化。

在分子经过激光束时重复进行。

图 5(a) 显示了分子穿过激光束时所受的力。平均力（虚线）是自发辐射力（F_m=$\hbar k/$（4τ））的八倍，表明我们的方案能有效处理暗态，且受激吸收与发射循环的效率几乎与第二节中给出的估算一样高。这一力明显大于此前在分子上实现的双色力，也大于模拟得到的 [24] $Ba^{137}F$ 上的双色力。

考虑到每次自发辐射都可能损失到暗态，分子偏转的一个关键性能指标是每次自发辐射所传递的动量量子数。图 5(a) 中的大力与图 4 中由于激发态布居数低而导致的低自发辐射率相结合，意味着每次自发衰变可传递20 $\hbar k$ 个动量。这一比值比非受激光学偏转方案可能达到的值大 20 倍。由于自发辐射水平较低，其他所有暗态（我们模型中的 $|g_{25}\rangle$ 态）的影响都很小，布居数累积不到 5%，如图 4(a) 中的紫色曲线所示。因此，本方案只需一个再泵浦波长。总共需要两个激光波长（859.8 和 895.7 nm），每个波长都带有边带，以提供六个频率（见表I）。

图 5(b) 显示了分子的横向速度随时间的变化。分子穿过激光器时偏转了 2.6 m/s。这一偏转足以将 BaF 分子与其他烧蚀产物完全分离。由于激光器仅与 $^{138}Ba^{19}F$ 同位素共振，因此得到的 BaF 分子束将具有同位素纯度。

任何偏转方案在实际应用中的一个重要考量是偏转力对激光参数的依赖性，因为实际实施偏转时，这些参数难免无法精确设定。使用表I中 E_0 的六个取值（以及 $v=1$ 跃迁对应的另外六个类似取值），分别乘以 0.95 到 1.05 之间的随机因子，重复进行完整的密度矩阵模拟。模拟结果表明，偏转对激光场振幅的变化具有鲁棒性，所得偏转量（σ_{defl}）的标准差小于 2%。类似地，对于 18 个不同的激光脉冲（频率或方向各异），通过将表I中的 $\sigma^{\pm}$ 偏振替换为$\sigma^{\pm}+\epsilon\sigma^{\mp}$，来模拟每个脉冲偏振不理想的情况；其中，每个激光器的 ϵ 均在-1% 到 $+1$% 之间随机选取。偏转对这种变化也具有鲁棒性，标准差σ_{defl} 小于 1%。最后，将全部十八个激光频率的相位随机改变（范围为 0 到2π），偏转量的变化仍然很小，为$\sigma_{\mathrm{defl}}<6$%。

我们还针对不同的初速度进行了模拟。改变沿分子束轴方向的速度纵向分量，对力的大小影响很小。例如，纵向分量变化 7%，力的变化不到 2%。我们还在固定纵向分量为 150 m/s 的情况下，针对不同的初始速度分量进行了模拟；这些分量垂直于分子束轴（沿激光束轴方向）。为了将 BaF 分子与其他烧蚀产物分离，我们只需将横向速度分量限制在-2 至 $+2$ m/s之间。不过，模拟结果表明，我们的偏转方案在很宽的横向速度范围内都有效，如图6所示。

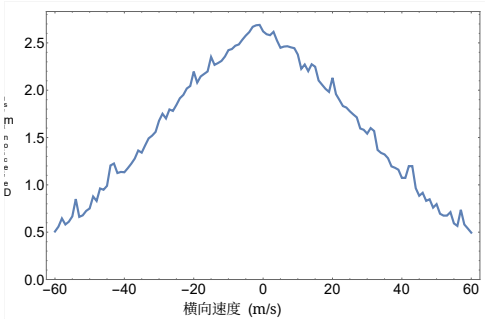

图6。（在线彩色）氟化钡分子的偏转随其初始横向速度的变化。本研究所述方案在很大的速度范围内均有效。

IV. 结论

在这项工作中，我们对一种能够为分子提供强激光偏转力的方案进行了完整的密度矩阵模拟。利用方向相反的激光束发出的成对脉冲，先通过受激过程使布居数跃迁至激发态，随后再引发受激发射。通过施加足够强的磁场，使各个磁子态之间的跃迁能够被分辨，从而避免暗态。该方案可将一束 ^{138}Ba^{19}F与其他激光来自缓冲气体冷却激光烧蚀源的烧蚀产物，正如 EDM^3 合作组所需，用于其计划开展的测量：利用嵌入固态氩中的 BaF 分子测量电子的电偶极矩。

V. 致谢

我们感谢戈登与贝蒂·摩尔基金会、阿尔弗雷德·P·斯隆基金会、约翰·邓普顿基金会（通过西北大学基础物理中心）、加拿大自然科学与工程研究委员会、加拿大创新基金会、安大略研究基金以及约克大学提供的支持。本研究的计算工作得以完成，得益于加拿大数字研究联盟、安大略计算和 SHARCNET 提供的支持。

附录

$v = 0$ 图 1 所示各 $v = 0$ 态的能量是采用参考文献 [16], 中详述的方法计算得出的，这些态之间的电偶极矩阵元也采用相同方法计算。计算所得的能量列于表II, 电偶极矩阵元列于表 III。

[1] A. Ashkin，利用辐射压力加速和俘获粒子，《物理评论快报》**24**，156（1970）。[2] R. Schieder、H. Walther 和 L. W¨oste，利用可调谐染料激光器的光偏转原子束，《光学通讯》**5**，337（1972）。[3] R. Grimm、Y. B. Ovchinnikov、A. I. Sidorov 和 V. S. Letokhov，双色驻波光场中强整流偶极力的观测，《物理评论快报》**65**，1415（1990）。[4] J. S¨oding、R. Grimm、Y. B. Ovchinnikov、P. Bouyer 和 C. Salomon，利用受激光力进行短距离原子束减速，《物理评论快报》**78**，1420 1997（）。[5] M. R. Williams、F. Chi、M. T. Cashen 和 H. Metcalf，铯原子上的双色光力测量，《物理评论 A》**60**，R1763（1999）。[6] M. R. Williams、F. Chi、M. T. Cashen 和 H. Metcalf，利用原子束偏转测量双色力，《物理评论 A》**61**，023408（2000）。[7] M. Partlow、X. Miao、J. Bochmann、M. Cashen 和 H. Metcalf，通过双色减速和准直制备强氦束，《物理评论快报》**93**，213004（2004）。[8] M. A. Chieda 和 E. E. Eyler，亚稳态氦的双色减速，《物理评论 A》**86**，053415（2012）。[9] X. Long、S. Y. Scarlett、A. M. Jayich 和 W. C. Campbell，抑制相干动量传递中的自发辐射，《物理评论快报》**123**，033603（2019）。

g	m_F	E_g(MHz)	e	m_F	E_g(MHz)
1	1	-1464.63	1	1	-292.14
2	0	-1431.73	2	0	-289.66
3	0	-1412.34	3	-1	289.65
4	-1	-1377.77	4	0	292.16
5	-1	-1340.75			
6	-2	-1307.81			
7	-1	1351.63			
8	0	1377.39			
9	0	1384.07			
10	1	1389.16			
11	1	1411.43			
12	2	1421.34			

表II. 1000高斯磁场下图 1 中基态 $|g\rangle$ 和激发态 $|e\rangle$ 的相对能量。

[10]A. C. Vutha、M. Horbatsch 和 E. A. Hessels，《稀有气体基质中极性分子取向依赖的超精细结构：一种测量电子电偶极矩的方案》，《物理评论 A》**98**，032513（2018）。[11] I. Kozyryev、L. Baum、L. Aldridge、P. Yu、E. E. Eyler 和 J. M. Doyle，《分子的相干双色力偏转》，Physical Review Letters **120**，063205（2018）。

σ^-			π			σ^+		
e	g	$\langle e\|d\|g\rangle$	e	g	$\langle e\|d\|g\rangle$	e	g	$\langle e\|d\|g\rangle$
2	1	-0.015	1	1	-1.329	1	2	-0.001
4	1	0.963	2	2	-1.329	1	3	-1.350
3	2	0.964	4	2	-0.005	2	4	1.350
3	3	-0.016	2	3	0.0004	4	4	-0.028
3	8	1.285	4	3	0.030	2	5	-0.034
3	9	0.259	3	4	-0.031	4	5	-0.939
2	10	-0.939	3	5	-0.015	3	6	0.940
4	10	-0.016	3	7	1.328	2	7	-0.909
2	11	0.006	2	8	0.023	4	7	-0.016
4	11	-1.312	4	8	0.262	1	8	-0.194
1	12	0.940	2	9	0.010	1	9	0.888
			4	9	-1.302			
			1	10	0.016			

表 III. 图 1 所示各态之间的电偶极矩阵元（单位为 ea_0），对应的磁场为 1000 高斯，该磁场定义了量子化轴。这里列出了非零的 $\Delta m_F = 0$ (π) 和 $\Delta m_F = \pm 1$ ($\sigma^{\pm}$) 矩阵元。与 $v = 1$ 态相连的类似矩阵元小了 $\sqrt{0.035/0.964}$ 倍。

[12] S. E. Galica、L. Aldridge、D. J. McCarron、E. E. Eyler 和 P. L. Gould，利用双色受激力偏转分子束，《物理评论 A》**98**，023408（2018）。[13] N. J. Fitch 和 M. R. Tarbutt，激光冷却分子，《原子、分子与光物理进展》**70**，157 2021( )。[14] Y. Hao、L. F. Pa˘steka、L. Visscher、P. Aggarwal、H. L. Bethlem、A. Boeschoten、A. Borschevsky、M. Denis、K. Esajas、S. Hoekstra 和 K. Jungmann，CaF、SrF 和 BaF 的高精度理论研究及其对激光冷却的启示，《化学物理学杂志》**151**，034302（2019）。[15]D. J. Berkeland 和 M. G. Boshier，塞曼简并原子系统中暗态的失稳与光谱学，《物理评论 A》**65**，033413（2002）。[16] P. Kaebert、M. Stepanova、T. Poll、M. Petzold、S. Xu、M. Siercke 和 S. Ospelkaus，表征 ^{40}Ca^{19}F分子的塞曼减速力，《新物理学杂志》**23**，093013（2021）。[17] E. S. Shuman、J. F. Barry 和 D. DeMille，双原子分子的激光冷却，《自然》**467**，820（2010）。[18] D. Cardimona 和 C. Stroud Jr，原子能级的自发辐射耦合，《物理评论 A》**27**，2456（1983）。[19] A. Marsman、M. Horbatsch 和 E. A. Hessels，氦 2^3S_1-至-2^3P_j 跃迁的激光测量中远邻共振引起的频移，《物理评论 A》**86**，040501（2012）。[20] P. Aggarwal、V. R. Marshall、H. L. Bethlem、A. Boeschoten、A. Borschevsky、M. Denis、K. Esa-jas、Y. Hao、S. Hoekstra、K. Jungmann 和 T. B. Meijknecht，BaF中$A^2\Pi_{1/2}$ 和$A^2\Pi_{3/2}$ 态的寿命测量，《物理评论 A》**100**，052503（2019）。[21] H. Ma、Z. Liu、P. Jiang、X. Xu 和 S. Du，改进伽利略折射式光束整形系统，以精确生成任意光束尺寸的近衍射极限平顶光束，《光学快报》**19**，13105（2011）。[22] S. Truppe、M. Hambach、S. M. Skoff、N. E. Bulleid、J. S. Bumby、R. J. Hendricks、E. A. Hinds、B. E. Sauer 和 M. R. Tarbutt，一种用于产生短促、强烈且缓慢分子脉冲的缓冲气体束源，《现代光学杂志》**65**，648 2018( )。[23] R. J. Cook，共振辐射中的原子运动：Ehrenfest 定理的应用，《物理评论 A》**20**，224（1979）。[24] F. Kogel、M. Rockenh¨auser、R. Albrecht 和 T. Langen，一种用于精密测量的激光冷却方案，适用于费米子一氟化钡（^{137}Ba^{19}F）分子，《新物理学杂志》**23**，095003（2021）。