arXiv:2302.12293v1 [physics.atom-ph] 23 Feb 2023

高效制备 NaCs 基态分子的途径

Claire Warner、Niccolò Bigagli、Aden Z. Lam、Weijun Yuan、Siwei Zhang、Ian Stevenson 和 Sebastian Will

哥伦比亚大学物理系，美国纽约州纽约市 10027

摘要。 我们研究了将 NaCs 分子转移至其转动振动基态的双光子路径。以 NaCs Feshbach分子为起点，我们在 900 纳米至 940 纳米的波长范围内进行了束缚态到束缚态的激发态光谱测量，涵盖了$c\,^3\Sigma^+$、$b\,^3\Pi$和$B\,^1\Pi$电子态的 30 多个振动态。通过分析转动精细结构，我们确定了高度混合的$c\,^3\Sigma_1^+\ |v=22\rangle \sim b\,^3\Pi_1\ |v=54\rangle$态，它可作为受激拉曼绝热通道（STIRAP）的高效桥接态。我们实现了向 NaCs 基态的转移，效率最高达 88(4)%。高效转移对于实现强偶极 NaCs 分子的多体量子相，以及高保真度地探测单分子至关重要；例如，这对光学晶格中的自旋物理实验和光镊阵列中的量子信息实验都很重要。

1. 引言

超冷分子 [1, 2, 3, 4] 是探索多体量子物理 [5, 6, 7, 8, 9, 10], 、量子信息 [11, 12, 13, 14, 15, 16],和量子化学 [1, 17, 18, 19, 20, 21, 22, 23, 24]新前沿的新兴平台。许多已提出的应用都需要具有高相空间密度的大量超冷分子。迄今为止，分子系统中最高的相空间密度是通过将超冷异核分子由超冷原子组装而成实现的。首先，在 Feshbach共振 [25]附近缔合形成弱束缚分子。随后，利用电子激发态作为 Feshbach态与基态之间的桥梁，通过相干双光子过程将分子转移至转动振动基态。双碱金属分子基态转移的主力技术是受激拉曼绝热通道（STIRAP） [26]。这种方法已应用于同核分子 [27, 28, 29] 和异核分子 [30, 31, 32, 33, 34, 35, 36, 37, 38, 39, 40]。迄今报告的最高 STIRAP转移效率约为 90%，对应于 RbCs [41]和 NaRb [10, 42]。通常，优化转移效率的关键在于仔细测定激发态结构，并最终选出理想的中间态 [43, 44, 45]。

高效的 STIRAP 可将一组 Feshbach分子转移至基态时的相空间密度损失降至最低。这对于近期制备基态分子的简并费米气体 [46, 47]至关重要，也将是实现分子玻色-爱因斯坦凝聚的关键。此外，分子通常通过逆转组装过程进行探测，随后对组成原子成像。反向 STIRAP 的效率会直接影响探测保真度。高探测保真度对于制备和表征偶极分子的新型多体相至关重要，例如晶态体相 [48], 、奇异密度序 [49, 7, 50], 或光学晶格中的自旋序 [5, 51]。

近期，研究人员已报道在光镊 [39] 和体系统 [40]中制备 NaCs 基态分子。NaCs 尤其受到关注，因为其在转动振动基态下具有较大的偶极矩，为 4.75(20) 德拜 [52] ，有望实现新型强关联和高度纠缠的量子相 [6, 7]。这一较大的偶极矩也使 NaCs 成为微波屏蔽 [53, 54, 55, 56] 和共振屏蔽 [57, 58, 59, 60], 的理想候选体系，这两种方法都能抑制非弹性二体碰撞造成的损失。迄今为止，寻找一条适用于 NaCs 的通用、高效基态制备途径仍是一项挑战。文献 [39] 报道，在光镊中通过$c^3\Sigma_1^+ \ |v = 26\rangle$ 激发态进行拉曼-拉比转移，可将单个 NaCs 分子转移至基态，效率为 82(10)%。然而，这一方案难以用于空间延展系统，例如大型分子光镊阵列和体气体，因为精确的 π 脉冲要求激光强度高度均匀。STIRAP 转移对实验误差不那么敏感，但在本组早期的工作中 [40] ，其效率仅达到 55(3)% 。

在本研究中，我们报告了NaCs基态分子自旋极化气体的制备，其转移效率最高可达88(4)%。这一改进源于对NaCs电子激发态的深入分析。我们发现$c^3\Sigma_1^+ \ |v = 22\rangle$ 具有

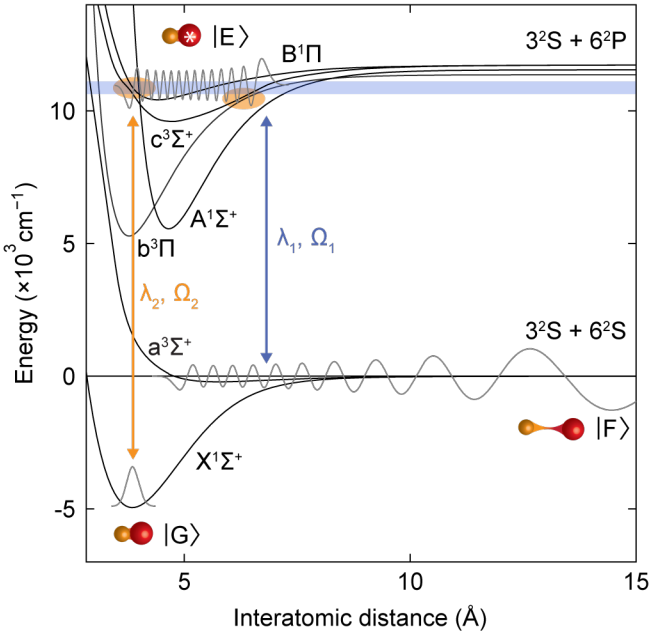


图1. NaCs 分子在钠 3^2S +铯 6^2P解离极限以下的势能曲线。态按照 Hund（a）情形标记。图中还绘出了 Feshbach $|F\rangle$ 态和基态 $|G\rangle$ 的振动波函数，以及 $|E\rangle = c\,^3\Sigma_1^+\,|v=22\rangle$激发态。STIRAP 上行（下行）腿跃迁的波长和拉比频率分别标记为 $\lambda_{1(2)}$ 和 $\Omega_{1(2)}$。蓝色阴影区域表示图3中研究的范围。橙色阴影椭圆表示势能中的避免交叉区域，这会导致振动态位置显著偏移。

优良的性质，并将其用作STIRAP转移至两个不同超精细态的中间态。这一进展是迈向制备高相空间密度NaCs气体，以及通过量子气体显微镜在光镊阵列或扩展体样品中高保真度探测单分子的重要一步。

2. 方法

STIRAP [26] 是一种通过中间激发态 $|E\rangle$，在 Λ-型系统的低能态$|F\rangle$和 $|G\rangle$之间实现相干布居转移的方案。这里，$|F\rangle$表示 Feshbach 分子态，$|G\rangle$表示转动振动基态，$|E\rangle$表示电子激发分子态。$|F\rangle$ 和 $|G\rangle$ 通过两束相位相干激光器与 $|E\rangle$ 耦合，如图1所示。对于耦合 $|F\rangle$ 和 $|E\rangle$的上行激光，其拉比频率记为Ω_1，波长记为 λ_1。对于耦合 $|G\rangle$和 $|E\rangle$的下行腿激光，其拉比频率记为 Ω_2，波长记为 λ_2。由于耦合，会形成暗态 $\cos\,\theta(t)\,|F\rangle - \sin\,\theta(t)\,|G\rangle$，其中 $\theta(t) = \tan^{-1}(\Omega_1/\Omega_2)$。通过绝热变化 Ω_1 和 Ω_2，这一暗态可以从 $|F\rangle$ 连续转变为 $|G\rangle$ 。

本研究旨在确定一个能使 NaCs 的 STIRAP 效率达到最优的态 $|E\rangle$。尽管 $|E\rangle$不会对暗态产生贡献，但其性质会显著影响转移效率。我们证明，选择合适的中间态

表1. Feshbach分子波函数（$m_F = m_S + m_I = 4$）在$|S,\ m_S;\ m^{I_{\mathrm{Na}}},\ m_{I_{\mathrm{Cs}}}\rangle$ 基底中的分解，其中S 为总电子自旋，m_S 为S 在量子化轴上的投影，$m^{I_{\mathrm{Na(Cs)}}}$ 为钠（铯）在量子化轴上的核自旋投影。$m_I = m_{I_{\mathrm{Na}}} + m^{I_{\mathrm{Cs}}}$ 为总核自旋投影。

$\|S, m_S;\ m^{I_{\mathrm{Na}}}, m_{I_{\mathrm{Cs}}}\rangle$	m_I	贡献	通道
$\|1,\ -1;\ 3/2,\ 7/2\rangle$	5	19.7%	Open
$\|0,\ 0;\ 3/2,\ 5/2\rangle$	4	25.5%	闭合
$\|1,\ 0;\ 3/2,\ 5/2\rangle$	4	16.8%	闭合
$\|0,\ 0;\ 1/2,\ 7/2\rangle$	4	1%	闭合
$\|1,\ 1;\ 3/2,\ 3/2\rangle$	3	31.1%	闭合
$\|1,\ 1;\ 1/2,\ 5/2\rangle$	3	4.9%	闭合
$\|1,\ 1;\ -1/2,\ 7/2\rangle$	3	1%	闭合

可以显著提高 STIRAP 转移效率。我们的搜索依据以下三项标准进行：（1）$|E\rangle$ 应与 $|F\rangle$ 和 $|G\rangle$均有较强耦合。耦合强度由弗兰克-康登因子（FCF）、跃迁偶极矩和选择定则决定。（2）拉比耦合 $\Omega_{1(2)}$ 应达到或超过激发态线宽 Γ。（3）激发态应与其他态充分隔离，使相关态尽可能构成一个三能级系统。

我们首先分析 NaCs 基态 [61] 和激发态 [62, 63, 64, 65]的电子势能曲线（见图 1）。初始 Feshbach态为 $|\mathrm{F}\rangle = \mathrm{a}^3\Sigma^+|\mathrm{v} = 23\rangle$，振动基态为 $|\mathrm{G}\rangle = \mathrm{X}\ ^1\Sigma^+|\mathrm{v} = 0\rangle$。铯的大自旋轨道耦合导致 $\mathrm{c}^3\Sigma_1^+$ 势能曲线与 $\mathrm{B}\,^1\Pi$和 $\mathrm{b}\ ^3\Pi_1$ 势能曲线之间出现避免交叉，如图 1 所示。因此，名义上自旋禁戒的 $\mathrm{a}\ ^3\Sigma^+ \leftrightarrow \mathrm{B}\ ^1\Pi$和 $\mathrm{X}\ ^1\Sigma^+ \leftrightarrow \mathrm{c}^3\Sigma_1^+$跃迁变得允许 [64, 65, 66],，因而许多 $\mathrm{c}^3\Sigma_1^+$和 $\mathrm{B}\ ^1\Pi$振动态预计具有混合自旋特征‡。 $|\mathrm{F}\rangle$的自旋组成见表1，它根据偶极跃迁的选择定则，决定哪些中间自旋态 $|\mathrm{E}\rangle$ 与 $|\mathrm{F}\rangle$ 耦合，并最终与 $|\mathrm{G}\rangle$ 耦合。Feshbach态主要由具有三重态特征的自旋态构成，因此，若激发态具有混合自旋特征，则有利于与单重态基态耦合；对于 $\mathrm{c}^3\Sigma_1^+ \sim \mathrm{B}\ ^1\Pi$复合态，这正如预期。故我们将研究重点放在这一复合态上。值得一提的是，上跃迁和下跃迁波长都处于常规激光的波长范围内。

利用已知势能曲线确定的振动波函数，我们计算了$c\ ^3\Sigma_1^+ \sim B\ ^1\Pi$复合体中 $|F\rangle$和$|G\rangle$的振动态的弗兰克-康登因子。结果如图2所示。下跃迁腿的弗兰克-康登因子相对恒定，而上跃迁腿的弗兰克-康登因子则因激发振动态不同而相差数个数量级。因此，优先寻找与 Feshbach 态耦合较强的中间态。根据计算得到的弗兰克-康登因子，有若干候选态，包括$B\,^1\Pi\ |v = 13\rangle$和$c\ ^3\Sigma_1^+\ |v = 22,\ 26\rangle$。然而，仅凭弗兰克-康登因子只能粗略判断哪些态可能适合实现高效的 STIRAP 转移。接下来，我们

‡ NaCs 遵循洪德情形（c），而不是洪德情形（a）。

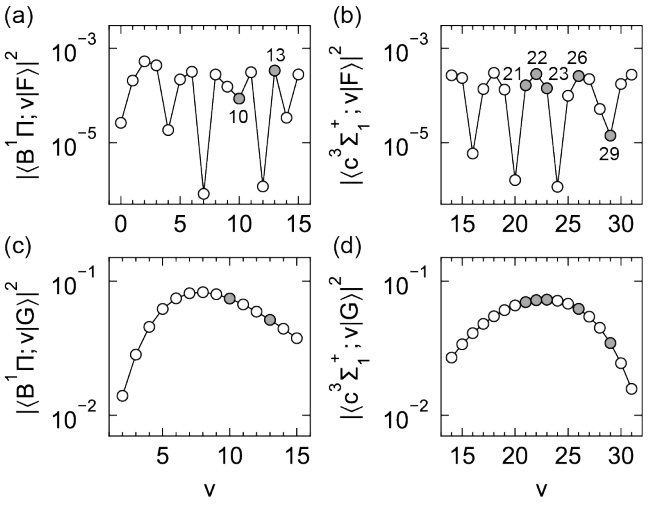


图 2. 涉及$c^3\Sigma_1^+ \sim B^1\Pi$ 复合态的 STIRAP 路径中相关的弗兰克-康登因子。振动波函数使用 Numerov-Cooley 求解器（LEVEL16）计算得出 [67]。(a) Feshbach态 $|F\rangle = a^3\Sigma^+|v=23\rangle$与$B^1\Pi$振动态之间，(b) Feshbach态与$c^3\Sigma_1^+$振动态之间，(c)$B^1\Pi$振动态与基态 $|G\rangle = X^1\Sigma^+|v=0\rangle$之间，以及 (d)$c^3\Sigma_1^+$振动态与基态之间的弗兰克-康登因子。带标签的实心点表示本研究中通过光谱学观测到的振动态，其标签为振动量子数v。

将对这些及其他潜在中间态的性质进行详细的光谱学研究。

3. 单光子光谱学

我们对 NaCs Feshbach 分子超冷系综进行束缚态间的单光子光谱学测量。方法如下：首先，通过宽范围扫描确定可能的上跃迁。然后，对宽范围扫描中发现的每个特征进行更高分辨率的扫描，根据其子结构识别属于$c^3\Sigma_1^+ \sim B^1\Pi$复合态的态。最后，我们进行超精细分辨扫描，以确定适用于 STIRAP 转移的具体特征§。

我们的实验从一份温度为 350(50) nK、含有 $2.0(4)\times10^4$ 个 NaCs Feshbach分子的样品开始。这些分子通过将磁场扫描穿过 864.12(5) G 处的异种粒子费什巴赫共振而形成 [68, 69]。分子被囚禁在交叉光偶极阱中；在 863.85(1) G 的磁场下，阱频率为 $\omega = 2\pi\times\{30(2),\ 60(4),\ 160(10)\}$ Hz。磁场沿竖直方向，定义了量子化轴。上行激光和下跃迁激光在水平面内同向传播。线偏振光的偏振方向平行（垂直）于量子化轴时，可激发 π （σ^+/σ^-）跃迁。照射后，通过反向磁场扫描将 Feshbach分子解离为钠原子和铯原子，并在低磁场下对铯原子成像。如果上行激光与某个激发态共振，样品中的 Feshbach分子就会损失，这表现为

§ 我们的波长计精度为 1 兆赫，准确度为100 兆赫。

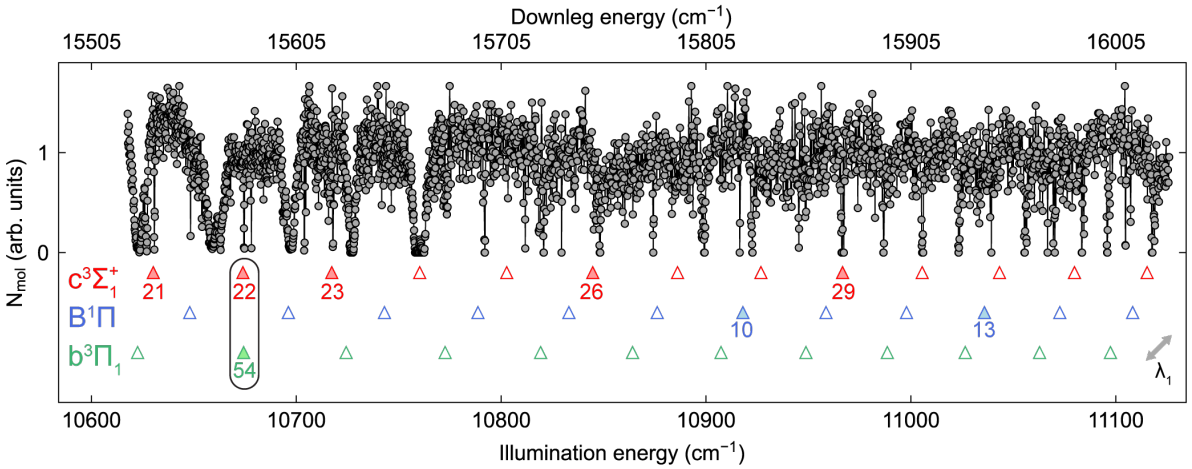


图3。 NaCs电子激发振动态的单光子光谱。数据点以约 3 GHz 的步长采集，使用功率为 50 mW、曝光时间为 1 ms 的上行激光。上行激光的线偏振方向与量子化轴成 45 度（右下角灰色斜箭头所示），因此 $\sigma^{\pm}$ 和π 跃迁均可被激发。三角形表示根据 LEVEL16 计算的振动态位置 [67]，分别对应$c\,^3\Sigma_1^+$（红色）、$B\,^1\Pi$（蓝色）和$b\,^3\Pi_1$态（绿色）。实心三角形表示根据其转动子结构并与现有数据进行比较后唯一确定的能级。其旁标注了振动量子数v。圈出的$c\,^3\Sigma_1^+\ |v=22\rangle$态与$b\,^3\Pi_1\ |v=54\rangle$态彼此重叠。

最终铯原子数减少。对于高分辨率扫描和 STIRAP转移，我们将激光锁定到高精细度光学腔（$\mathfrak{F}\sim 20,\ 000$），使其线宽缩窄至 1 kHz 以下。进行单光子光谱学时，我们用上行激光照射 Feshbach分子；该激光由钛蓝宝石激光器产生，是一束聚焦光束，束腰半径为 $1/e^2$（47(5) μm）。曝光时间从粗略扫描所用的 1 ms 到最高分辨率扫描所用的 5 μs 不等。

为了粗略定位振动能级，我们进行了宽范围的光谱扫描，如图3所示。损失特征对应于电子激发态流形中的振动态$B^1\Pi$，$c^3\Sigma^+$，$A^1\Sigma^+$，和$b^3\Pi$，如图1所示。总的来说，我们观测到38个振动态。对于其中一些特征，其观测位置与计算得到的振动能级有所偏差。这是预料之中的，因为在激发光谱的这一范围内，势能曲线会发生避免交叉，并伴有态混合（见图1）。值得注意的是，位于约10620、10660、10700、10730和10760 cm^{-1}处的一些特征表现出极大的线宽。

接下来，我们辨认出具有 $\Omega=1$ 精细结构的特征，因为这些特征属于$c\,^3\Sigma_1^+\sim B\,^1\Pi$复合态。这里，$\Omega=\Sigma+\Lambda$，其中 Σ和 Λ分别是总电子自旋和轨道角动量在核间轴上的投影。振动态的 Ω 值直接体现在其转动结构中。具有 $\Omega=0^+$的态有$J=1$个特征，其中$J=\Omega+R$，而R是原子核的转动角动量。具有 $\Omega=0^-$ 的态在$J=0$ 和2处有特征。具有 $\Omega=2$ 的态在$J=2$处有特征。具有 $\Omega=1$ 的态有$J=1$ 和2个特征 [70]。我们进行中分辨率扫描，以分辨宽扫描中观测到的所有振动特征的转动精细结构，从而

表2。 观测到的 $\Omega = 1$ 谱线的性质。 Γ 是每个振动能级的超精细分辨扫描中 $J = 1$特征的平均线宽。

能量（太赫兹）	能量（厘米$^{-1}$）	Hund (a) 标记	$\Gamma/(2\pi)$（兆赫）
318.695	10630.5	$c^3\Sigma_1^+ \|v = 21\rangle$	30(5)
320.007	10674.3	$b^3\Pi_1 \|v = 54\rangle$	4(2)
320.008	10674.3	$c^3\Sigma_1^+ \|v = 22\rangle$	6(1)
321.309	10717.7	$c^3\Sigma_1^+ \|v = 23\rangle$	12(3)
325.130	10845.2	$c^3\Sigma_1^+ \|v = 26\rangle$	51(6)
327.267	10916.5	$B^1\Pi \|v = 10\rangle$	15(2)
328.790	10967.3	$c^3\Sigma_1^+ \|v = 29\rangle$	180(50)
330.767	11033.2	$B^1\Pi \|v = 13\rangle$	10(2)

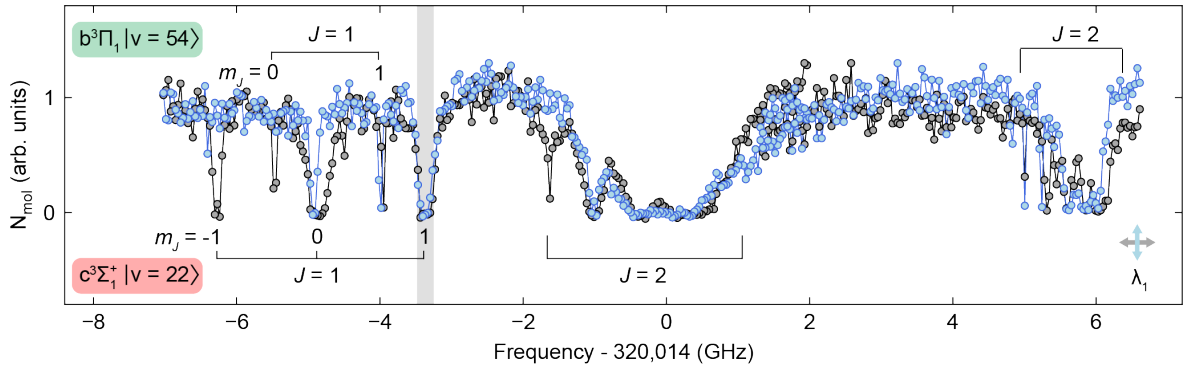


图4。 混合$c^3\Sigma_1^+ \, |v = 22\rangle \sim b^3\Pi_1 \, |v = 54\rangle$态的转动结构测量结果。数据点以约 30 兆赫的步长采集，使用功率为 20 mW 的上行激光，曝光时间为 200 μs。上方（下方）标签表示$b^3\Pi_1 \, |v = 54\rangle$（$c^3\Sigma_1^+ \, |v = 22\rangle$）转动态。蓝色（灰色）数据是在激光垂直（水平）偏振下采集的。灰色阴影表示用于 STIRAP转移的谱线。未观测到$J = 1$, $m_J = -1$ 线对应的$b^3\Pi_1 \, |v = 54\rangle$。在水平偏振光谱中，我们观测到$J = 1$的全部三个 m_J 态。在垂直偏振光谱中，$m_J = -1$ 线强度减弱。由于底层的超精细结构，我们观测到m_J 线存在偏振依赖位移。

辨认 $\Omega = 1$ 态。结合测得的转动精细结构与现有的NaCs光谱数据 [71], , 我们将其中若干特征唯一地指认为$c^3\Sigma_1^+$或$B^1\Pi$态流形中的振动态。态指认如图3所示。表2列出了这些态以及相应$J = 1$ 特征的拟合线宽；这些特征与耦合到转动振动基态有关。

根据其弗兰克-康登因子以及相对较窄的线宽，我们认为$c^3\Sigma_1^+ \, |v = 22\rangle$ 是一个很有前景的候选态。图4展示了转动态分辨扫描。有趣的是，扫描显示$c^3\Sigma_1^+ \, |v = 22\rangle$与 $b^3\Pi_1 \, |v = 54\rangle$态重叠，其转动子能级间隔不到 1 GHz。通常，由于弗兰克-康登因子极弱，预期无法在从 Feshbach态出发的束缚-束缚光谱学中观测到$b^3\Pi_1$ 态。然而在本例中，$b^3\Pi_1 \, |v = 54\rangle$ 与

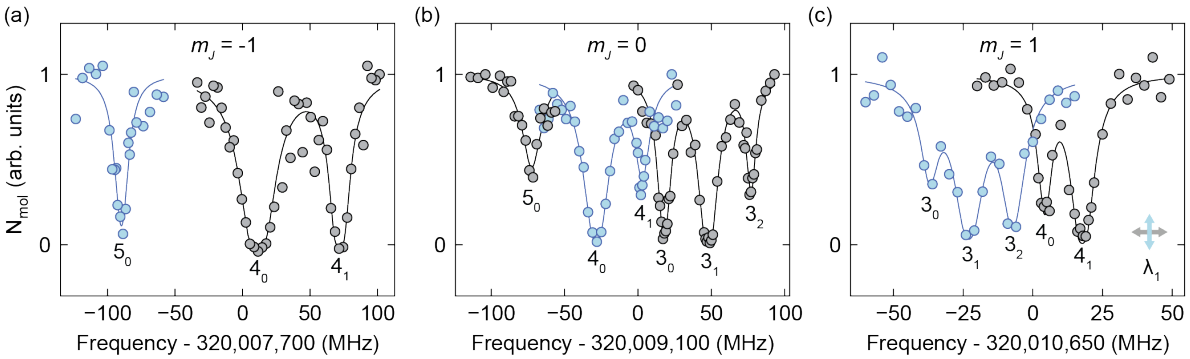


图5. $c^3\Sigma_1^+\,|v=22, J=1\rangle$ 的超精细分辨扫描，分别对应 (a) $m_J=-1$、(b) $m_J=0$和 (c) $m_J=1$ 子能级（见图4）。每个特征均标注为 $m_{I,\,n}$。蓝色（灰色）数据点表示使用垂直（水平）光偏振采集的数据，右下角的箭头表示偏振方向。实线表示对公式 1 的拟合；所有拟合结果见表3。为获得足够的拟合信号强度，对光强和曝光时间进行了调整。

$c^3\Sigma_1^+\,|v=22\rangle$ 发生态混合，使$b^3\Pi_1\,|v=54\rangle$ 特征的线宽增大，从而能够在扫描中观测到这些特征；与此同时，$c^3\Sigma_1^+\,|v=22\rangle$ 特征的线宽则变窄。

因此，如图5所示，可以分辨出$J=1$、$m_J=-1$、0、1 子能级的$c^3\Sigma_1^+\,|v=22\rangle$的超精细结构。在我们的扫描范围内，这是唯一观测到完全分辨的超精细结构的激发振动态。我们利用超精细特征的结构及其对激光偏振的依赖关系，确定m_I 量子数，并将其标记为$m_{I,\,n}$；其中n 是计数索引，采用与参考文献 [72] 类似的约定。这里，m_I 是I 在量子化轴上的投影，而$I=I_{\mathrm{Na}}+I_{\mathrm{Cs}}$ 是钠和铯核自旋之和。整数n 按能量递增的顺序，对产生给定m_I 值的$m_{I_{\mathrm{Na}}}$和$m_{I_{\mathrm{Cs}}}$ 的各种可能组合进行计数。我们将每个$m_{I,\,n}$特征拟合为指数衰减模型

$$N = N_0 \exp(-\Gamma_{\mathrm{sc}}\tau), \tag{1}$$

其中，N_0 是初始分子数，τ 是照射时间。假设光子散射率为 $\Gamma_{\mathrm{sc}}=\Omega_1^2\Gamma/(1+4(\Delta/\Gamma)^2+2(\Omega_1/\Gamma)^2)$，其中 Γ 是该谱线的自然线宽，Δ 是激光相对于共振的失谐。我们将拉比耦合强度按激光强度归一化，得到约化跃迁偶极矩，$\tilde{d}_1=\Omega_1/\sqrt{I_0}$。这里，$I_0$ 是 π 跃迁中上跃迁光束的峰值强度，对于 σ 跃迁则为峰值强度的一半。$c^3\Sigma_1^+\,|v=22, J=1\rangle$ 超精细谱线的线宽和耦合强度列于表3。

观测到的哪些超精细特征适合用于基态转移？Feshbach分子的总自旋投影为$m_F=4$。上行跃迁中会改变的量子数取决于 STIRAP光束的偏振，为$m_F\equiv m_I+m_J$。π 跃迁可到达$m_F=4$ 激发态，σ^- 跃迁可到达$m_F=3$ 激发态，而σ^+ 跃迁可到达$m_F=5$ 激发态。然而，在 863.85(1) G 下，激发态处于 Paschen–Back区，核自旋与电子自旋解耦，

表3. 观测到的谱线：$c\,^3\Sigma_1^+\,|v=22,J=1\rangle$，量子数为 m_J，态标记为 $m_{I,n}$，测得的激光激发能E、拟合线宽 Γ 和测得的约化偶极矩$\tilde{d}_1$。特征位置的相对不确定度为 1 兆赫。总体不确定度为 100 兆赫，受波长计限制。

m_J	$m_{I,n}$	能量 (兆赫) - 320 太赫兹	$\Gamma/(2\pi)$ (兆赫)	$\tilde{d}_1$ (千赫/$\sqrt{\text{毫瓦/厘米}^2}$)
-1	5_0	7611	6(2)	0.24 (3)
-1	4_0	7711	11(3)	1.9 (2)
-1	4_1	7773	5(2)	1.6 (2)
0	5_0	9027	4(1)	0.30(3)
0	4_0	9072	4(1)	1.4(2)
0	4_1	9102	4(1)	0.42(4)
0	3_0	9117	7(1)	4.3(4)
0	3_1	9148	7(1)	5.7(6)
0	3_2	9176	7(1)	3.0(3)
1	3_0	10613	5(1)	2.7(3)
1	3_1	10627	5(1)	5.6(6)
1	3_2	10643	5(1)	4.4(5)
1	4_0	10654	5(1)	2.7(3)
1	4_1	10669	5(1)	4.4(5)

观测到的特征结构表明了这一点。因此，无法通过上行激光改变m_I 量子数。我们观测到从 Feshbach态到$m_{I、n}=3$ 和 4 特征对应激发态的强耦合，以及到$m_{I、n}=5$对应激发态的弱耦合。如表1所示，Feshbach分子的闭合通道贡献主要为$m_{I、n}=3$ 和 4，这解释了它与不同超精细激发态之间的相对耦合强度。在以下讨论中，我们用m_I 标签指称各态，因为m_I 是比m_F限制性更强的量子数，它决定了通过双光子转移能够到达哪些基态超精细能级。我们选择$c\,^3\Sigma_1^+\,|v=22、J=1、m_J=1\rangle$ 作为 STIRAP的中间态，因为它对$m_{I、n}=3$ 和 4 都呈现分辨良好的特征，且线宽相对较窄，为 $2\pi\times5($1) 兆赫。

4. 转移至基态

以$c\,^3\Sigma_1^+\,|v=22,\ J=1,\ m_J=1\rangle$ 作为激发态，我们进行 STIRAP 转移至转动振动基态。具体而言，我们测定转移至$m_I=3$ 和 4 对应的基态能级的转移效率。相应的双光子方案如图6 (a) 所示。相关的基态超精细结构如图6 (b) 所示。下行激光是一个聚焦光束（$1/e^2$ 半径为 200 μm），波长为 642 纳米，由外腔二极管激光器||产生。

我们对 Feshbach 分子云团施加图7 (a) 所示的脉冲序列。

使用 Autler-Townes 光谱测量|| Ω_2 。

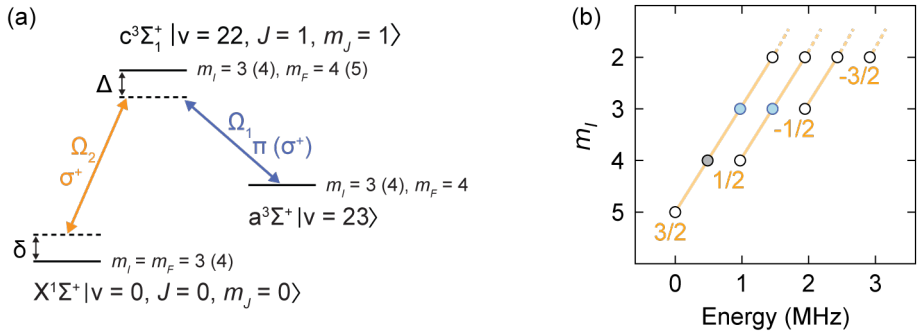


图6. NaCs 不同超精细基态的路径。(a) 通往具有$m_I = 3$ 和 4 的基态能级的双光子路径。利用上跃迁腿上的 π 跃迁和下跃迁腿上的 σ^+ 跃迁，可到达$m_I = 3$。利用上、下跃迁腿上的 σ^+ 跃迁，可到达$m_I = 4$。 Δ 为单光子失谐， δ 为双光子失谐。(b) 计算得到的 864 G 下 NaCs 的基态超精细结构。蓝色（灰色）标出的态是$m_I = m_{I_{\mathrm{Na}}} + m_{I_{\mathrm{Cs}}} = 3$ (4) 能级，与此处介绍的 STIRAP 方案相关。橙色对角线连接具有相同$m_{I_{\mathrm{Na}}}$ 量子数的态，量子数以橙色标注。

序列的前半部分将 Feshbach 分子转移至基态，后半部分则反向转移。我们在不同时间中断脉冲序列，并跟踪 Feshbach 态中的粒子数，如图7 (b) 和 (c) 所示。对于完整执行的脉冲序列，重新出现的 Feshbach 分子所占比例对应于单向转移效率的平方。我们的数据表明，对于 $|m_{I_{\mathrm{Na}}}, m_{I_{\mathrm{Cs}}}\rangle = |3/2, 3/2\rangle$，单向转移效率为 88(4)%，而对于 $|3/2, 5/2\rangle$，在此展示的是优化单光子失谐时的结果，为 74(3)% Δ。

图8(a)展示了基态转移效率随单光子失谐的变化。先前的研究 [39, 40] 表明，对于 NaCs，共振（$\Delta = 0$）时的转移效率很低；这与其他分子种类形成对比，后者在共振时转移效率达到最佳 [30, 33, 34, 32, 35, 73]。我们的数据证实，最佳转移发生在远离共振处，即单光子失谐为较大的正值或负值时；此时失谐显著大于激发态超精细结构特征之间的间隔（见图5(c)）。在较大失谐下，超精细结构不再能被分辨，使系统更接近理想的三能级构型。

在图8（b）中，我们改变双光子失谐，展示了如何转移至不同的基态超精细态。对于 $m_I = 3$，我们观察到转移至 $|m_{I_{\mathrm{Na}}}、 m_{I_{\mathrm{Cs}}}\rangle = |3/2, 3/2\rangle$以及 $|1/2, 5/2\rangle$ 态。对于 $m_I = 4$，我们观察到转移至 $|3/2, 5/2\rangle$ 态。我们观察到转移至 $|3/2, 3/2\rangle$ 和 $|3/2, 5/2\rangle$ 态的转移效率很高，并制备出含有超过 1.5×10^4 个基态分子的样品。与 $|1/2, 5/2\rangle$ 的耦合明显较弱。我们注意到，向不同基态超精细态的转移效率取决于Feshbach态的核自旋组分（见表1）： $|S, m_S; m_{I_{\mathrm{Na}}}, m_{I_{\mathrm{Cs}}}\rangle = |1, 1; 3/2, 3/2\rangle$的贡献为31.1%， $|1, 0; 3/2, 5/2\rangle$的贡献为16.8%，而 $|1, 1; 1/2, 5/2\rangle$的贡献为4.9%。这些贡献与我们的观察一致：转移至 $|m_{I_{\mathrm{Na}}}, m_{I_{\mathrm{Cs}}}\rangle = |3/2, 3/2\rangle$的效率很高，转移至 $|3/2, 5/2\rangle$的效率略低，

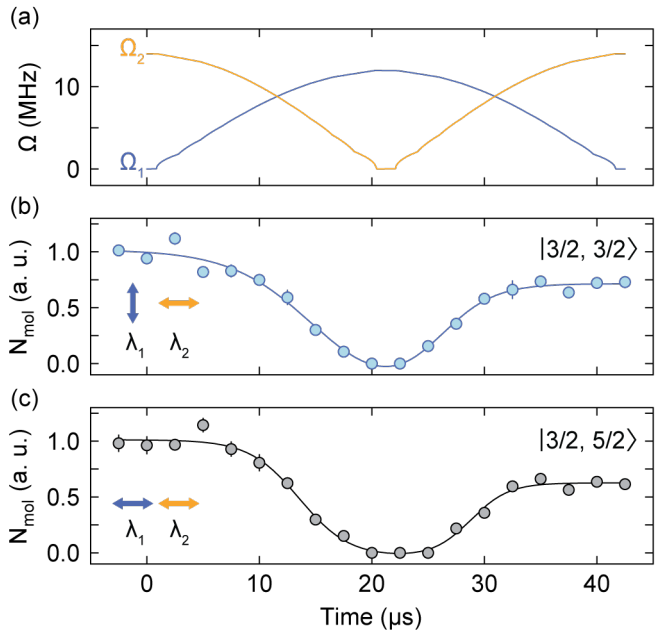


图7。 向基态的 STIRAP 转移及从基态转移出去。（a）实现 STIRAP 转移时拉比频率的动态变化示例。蓝色（橙色）曲线表示上行腿（下行腿）拉比频率，Ω_1（Ω_2）。对于向 $m_I = 3$ 的转移，我们采用 $2\pi \times 12(2)$ 兆赫作为上行腿拉比频率峰值 Ω_1，并采用 $2\pi \times 14(5)$ 兆赫作为下行腿拉比频率峰值 Ω_2。对于向 $m_I = 4$ 的转移，我们采用 $2\pi \times 7(1)$ 兆赫作为 Ω_1，并采用 $2\pi \times 14(5)$ 兆赫作为 Ω_2。（b）和（c）分别表示在使用向 $|m_{I_{Na}}, m_{I_{Cs}}\rangle = |3/2, 3/2\rangle$ 和 $|3/2, 5/2\rangle$ 的转移时，STIRAP 序列期间的 Feshbach分子数量。实线仅用于引导视线。所有数据均在 -180 兆赫的单光子失谐下采集。

而转移至 $|1/2, 5/2\rangle$的效率较低。表3中的数据表明，经由激发态流形 $m_I = 5$ 态的 $c\,^3\Sigma_1^+\ |v = 22, J = 1, m_J = -1\rangle$，应存在非常弱但非零的耦合。若能实现这一点将十分理想，因为这可以直接通往绝对超精细基态 $m_I = 5$。然而，在可达到的实验参数范围内，我们尚未观察到经由该态的转移。

5. 结论

我们已通过$c\,^3\Sigma_1^+\ |v = 22, J = 1, m_J = 1\rangle$ 中间态，实现了向 NaCs 的 $|m_{I_{Na}}, m_{I_{Cs}}\rangle = |3/2, 3/2\rangle$ 和 $|3/2, 5/2\rangle$基态的高效转移，转移效率优于此前观测到的结果。转移效率得以提升的关键在于采用了线宽为 $2\pi \times 5(1)$ 兆赫的中间态，其线宽约比我们课题组先前工作中使用的中间态窄 3 倍 [40]，且比单个 NaCs 分子中用于向基态进行拉曼转移的中间态窄近 25 倍 [39]。这与其他双碱金属分子研究结果一致 [32, 34, 73]，：这些研究表明，对于 STIRAP 效率而言，较窄的激发态线宽比与激发态的强耦合更为重要。

在我们的 p 由于追求具有窄线宽的中间态，我们受益于 e

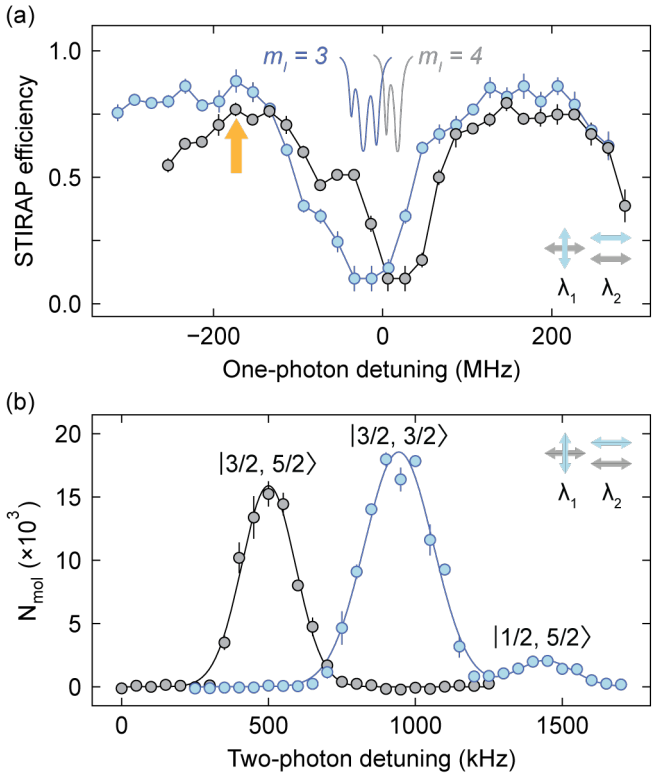


图8. STIRAP 转移效率与超精细选择性。(a) 转移效率随单光子失谐的变化， Δ。蓝色（灰色）点表示转移至$m_I = 3$ (4) 基态。蓝色（灰色）叠加显示了$m_I = 3$ (4) 激发态结构。橙色箭头表示$\Delta = -180$ 兆赫，该值用于 (b) 中的数据。单光子失谐采用图5 (c) 中的刻度测量。(b) 在固定 $\Delta = -180$ 兆赫下，通过改变双光子失谐 δ 获得的基态分子谱。蓝色（灰色）点表示转移至$m_I = 3$(4) 基态。超精细态标记为 $|m_{I_{Na}}, m_{I_{Cs}}\rangle$。双光子失谐是相对于计算得到的$m_I = 5$ 基态位置测量的。曲线仅作视觉参考。基态分子数通过将 Feshbach分子数除以 STIRAP 转移效率得到。

NaCs中存在的强自旋轨道耦合。激发态电子势中的避免交叉会导致$c\,^3\Sigma_1^+ \sim B\,^1\Pi$复合态发生态混合，从而为单重态基态和主要为三重态的Feshbach态提供相对较强的耦合。避免交叉还会混合几乎重叠的$c\,^3\Sigma_1^+\ |v = 22\rangle$态与$b\,^3\Pi_1\ |v = 54\rangle$态，这有利于缩窄$c\,^3\Sigma_1^+\ |v = 22\rangle$线宽，从而适用于STIRAP。除用于高效STIRAP转移的激发态外，我们的光谱学调查还发现了一些具有较大（>10GHz）线宽的特征。我们推测，这些较大的线宽可能是预解离造成的，但确切原因尚不清楚，值得进一步研究。

提高往返于基态的转移效率，对于未来开展NaCs多体量子系统实验至关重要。高效转移至基态能够保留Feshbach分子的高相空间密度 [46]，，从而为直接蒸发冷却至基态分子的玻色–爱因斯坦凝聚体提供更好的起点。在这类系统中，从超流体到莫特绝缘体的

相变可用于实现光学晶格的满填充 [74]。反过来，高效地从基态转移出去能够提高探测保真度。结合单分子分辨成像能力，这为在光学晶格 [49, 10] 和光镊阵列 [75, 76, 77]中开展超冷分子的前沿研究打开了大门。

我们感谢 Eberhard Tiemann 提供 Feshbach态的耦合道计算，并感谢 Kang-Kuen Ni 及其团队进行了富有成效的讨论。我们还感谢 Emily Bellingham 提供实验协助。本研究获得了美国国家科学基金会CAREER奖（奖项编号：1848466）、美国海军研究办公室DURIP奖（奖项编号：N00014-21-1-2721）以及哥伦比亚大学 Lenfest初级教员发展基金的支持。C.W. 感谢加拿大自然科学与工程研究委员会（NSERC）和吴健雄家族基金会的支持。W.Y. 感谢裘槎基金会的支持。I.S. 获得了 Ernest Kempton Adams基金的资助。S.W. 还感谢阿尔弗雷德·P·斯隆基金会提供的额外支持。

作者说明

在完成本文期间，我们获悉哈佛大学 Ni 团队关于 NaCs 高分辨率光缔合光谱学的相关研究 [78]。

参考文献

[1] Roman V. Krems. 冷控化学。《物理化学与化学物理》，10(28):4079–4092, 2008年。[2] Lincoln D. Carr, David DeMille, Roman V. Krems, and Jun Ye. 冷分子与超冷分子：科学、技术与应用。New J. Phys., 11(5):055049, 2009年。[3] Steven A. Moses, Jacob P. Covey, Matthew T. Miecnikowski, Deborah S. Jin, and Jun Ye. 极性分子量子气体的新前沿。Nat. Phys., 13(1):13–20, 2017年。[4] John L. Bohn, Ana Maria Rey, and Jun Ye. 冷分子：化学与量子物质量子工程的进展。《科学》，357(6355):1002–1010, 2017年。[5] Andrea Micheli, Gavin K. Brennen, and Peter Zoller. 极性分子晶格自旋模型工具箱。Nat. Phys., 2(5):341–347, 2006年。[6] T. Lahaye, C. Menotti, L. Santos, M. Lewenstein, and T. Pfau. 偶极玻色量子气体的物理学。Rep. Prog. Phys., 72(12):126401, 2009年。[7] Mikhail A. Baranov, Marcello Dalmonte, Guido Pupillo, and Peter Zoller. 偶极量子气体的凝聚态物质理论。《化学评论》，112(9):5012–5061, 2012年。[8] Bo Yan, Steven A. Moses, Bryce Gadway, Jacob P. Covey, Kaden R. A. Hazzard, Ana Maria Rey, Deborah S. Jin, and Jun Ye. 观测到晶格囚禁极性分子中的偶极自旋交换相互作用。《自然》，501(7468):521–525, 2013年。[9] Ehud Altman et al. 量子模拟器：架构与机遇。PRX Quantum, 2:017003, 2021年。[10] Lysander Christakis, Jason S. Rosenberg, Ravin Raj, Sungjae Chi, Alan Morningstar, David A. Huse, Zoe Z. Yan, and Waseem S. Bakr. 探测超冷分子自旋系统中的位点分辨关联。《自然》，614(7946):64–69, 2023年。[11] D. DeMille. 囚禁极性分子量子计算。《物理评论快报》，88:067901, 2002年。[12] Jee Woo Park, Zoe Z. Yan, Huanqian Loh, Sebastian A. Will, and Martin W. Zwierlein. 超冷 ^{23}钠^{40}钾分子的秒级核自旋相干时间。《科学》，357(6349):372–375, 2017年。[13] Rahul Sawant, Jacob A. Blackmore, Philip D. Gregory, Jordi Mur-Petit, Dieter Jaksch, Jesús Aldegunde,

Jeremy M. Hutson, Michael R. Tarbutt, and Simon L. Cornish. 超冷极性分子作为量子位。New J. Phys., 22(1):013027, 2020年。[14] Philip D. Gregory, Jacob A. Blackmore, Sarah L. Bromley, Jeremy M. Hutson, and Simon L. Cornish. 超冷极性分子中的稳健存储量子比特。Nat. Phys., 17(10):1149–1153, 2021年。[15] Connor M. Holland, Yukai Lu, and Lawrence W. Cheuk. 可重构光镊阵列中分子的按需纠缠。arXiv预印本 arXiv:2210.06309, 2022年。[16] Yicheng Bao, Scarlett S. Yu, Loïc Anderegg, Eunmi Chae, Wolfgang Ketterle, Kang-Kuen Ni, and John M. Doyle. 光镊阵列中分子间的偶极自旋交换与纠缠。arXiv预印本 arXiv:2211.09780, 2022年。[17] S. Ospelkaus, K.-K. Ni, G. Quéméner, B. Neyenhuis, D. Wang, M. H. G. De Miranda, J. L. Bohn, J. Ye, and D. S. Jin. 控制转动电子基态极性分子的超精细态。《物理评论快报》，104(3):030402, 2010年。[18] Goulven Quemener and Paul S. Julienne. 超冷分子尽在掌控！《化学评论》，112(9):4949– 5011, 2012年。[19] Xin Ye, Mingyang Guo, Maykel L. González-Martínez, Goulven Quéméner, and Dajun Wang. 具有可控化学反应活性的超冷 ^{23}钠^{87}铷分子碰撞。《科学进展》，4(1):eaaq0083, 2018年。[20] M.-G. Hu, Y. Liu, D. D. Grimes, Y.-W. Lin, A. H. Gheorghe, R. Vexiau, N. Bouloufa-Maafa, O. Dulieu, T. Rosenband, and K.-K. Ni. 直接观测超冷 KRb 分子的双分子反应。《科学》，366(6469):1111–1115, 2019年。[21] Philip D. Gregory, Jacob A. Blackmore, Sarah L. Bromley, and Simon L. Cornish. 超冷^{87}铷^{133}铯分子因长寿命双体碰撞复合物的光激发而损失。《物理评论快报》，124(16):163402, 2020年。[22] Yu Liu, Ming-Guang Hu, Matthew A. Nichols, Dongzheng Yang, Daiqian Xie, Hua Guo, and Kang-Kuen Ni. 通过态到态超冷化学精确检验统计动力学。《自然》，593(7859):379– 384, 2021年。[23] Roman Bause, Arthur Christianen, Andreas Schindewolf, Immanuel Bloch, and Xin-Yu Luo. 超冷黏滞碰撞：理论与实验现状。《物理化学杂志 A》，2023年。[24] Juliana J. Park, Yu-Kun Lu, Alan O. Jamison, Timur V. Tscherbul, and Wolfgang Ketterle. 三重态基态分子间碰撞中的 Feshbach共振。《自然》，614(7946):54–58, 2023年。[25] Cheng Chin, Rudolf Grimm, Paul Julienne, and Eite Tiesinga. 超冷气体中的 Feshbach共振。《现代物理评论》，82:1225–1286, 2010年。[26] Nikolay V. Vitanov, Andon A. Rangelov, Bruce W. Shore, and Klaas Bergmann. 受激拉曼绝热通道在物理、化学及其他领域中的应用。《现代物理评论》，89:015006, 2017年。[27] F. Lang, K. Winkler, C. Strauss, R. Grimm, and J. Hecker Denschlag. 转动振动基态中的超冷三重态分子。《物理评论快报》，101(13):133005, 2008年。[28] Johann G. Danzl, Elmar Haller, Mattias Gustavsson, Manfred J. Mark, Russell Hart, Nadia Bouloufa, Olivier Dulieu, Helmut Ritsch, and Hanns-Christoph Nagerl. 深束缚基态分子量子气体。《科学》，321(5892):1062–1066, 2008年。[29] K. H. Leung, E. Tiberi, B. Iritani, I. Majewska, R.Moszynski, andT.Zelevinsky. 绝对基态超冷 ^{88}锶$_2$ 分子。New J. Phys., 23(11):115002, 2021年。[30] K.-K. Ni, S. Ospelkaus, M. H. G. De Miranda, A. Pe'Er, B. Neyenhuis, J. J. Zirbel, S. Kotochigova, P. S. Julienne, D. S. Jin, and J. Ye. 高相空间密度极性分子气体。《科学》，322(5899):231–235, 2008年。[31] Tetsu Takekoshi, Lukas Reichsöllner, Andreas Schindewolf, Jeremy M. Hutson, C. Ruth Le Sueur, Olivier Dulieu, Francesca Ferlaino, Rudolf Grimm, and Hanns-Christoph Nägerl. 转动振动与超精细基态偶极 RbCs 分子的超冷致密样品。《物理评论快报》，113(20):205301, 2014年。[32] Peter K. Molony, Philip D. Gregory, Zhonghua Ji, Bo Lu, Michael P. Köppinger, C. Ruth Le Sueur, Caroline L. Blackley, Jeremy M. Hutson, and Simon L. Cornish. 制备转动振动基态超冷 ^{87}铷^{133}铯分子。《物理评论快报》，113(25):255301, 2014年。[33] Jee Woo Park, Sebastian A. Will, and Martin W. Zwierlein. 费米 ^{23}钠^{40}钾超冷偶极气体

分子处于绝对基态。《物理评论快报》，114:205302，2015年。[34] Mingyang Guo、Bing Zhu、Bo Lu、Xin Ye、Fudong Wang、Romain Vexiau、Nadia Bouloufa-Maafa、Goulven Quéméner、Olivier Dulieu 和 Dajun Wang。超冷基态偶极^{23}钠^{87}铷分子气体的制备。《物理评论快报》，116(20):205303，2016年。[35] Timur M. Rvachov、Hyungmok Son、Ariel T. Sommer、Sepehr Ebadi、Juliana J. Park、Martin W. Zwierlein、Wolfgang Ketterle 和 Alan O. Jamison。具有电偶极矩和磁偶极矩的长寿命超冷分子。《物理评论快报》，119:143001，2017年。[36] Frauke Seeßelberg、Nikolaus Buchheim、Zhen-Kai Lu、Tobias Schneider、Xin-Yu Luo、Eberhard Tiemann、Immanuel Bloch 和 Christoph Gohle。超冷极性 ^{23}钠^{40}钾分子绝热生成的建模。Phys. Rev. A，97(1):013405，2018年。[37] Lan Liu、De-Chao Zhang、Huan Yang、Ya-Xiong Liu、Jue Nan、Jun Rui、Bo Zhao 和 Jian-Wei Pan。在绝热生成^{23}钠^{40}钾分子的过程中观测到共振与失谐STIRAP之间的干涉。《物理评论快报》，122:253201，2019年。[38] Kai K. Voges、Philipp Gersema、Mara Meyer zum Alten Borgloh、Torben A. Schulze、Torsten Hartmann、Alessandro Zenesini 和 Silke Ospelkaus。超冷玻色性 ^{23}钠^{39}钾基态分子气体。《物理评论快报》，125:083401，2020年。[39] William B. Cairncross、Jessie T. Zhang、Lewis R. B. Picard、Yichao Yu、Kenneth Wang 和 Kang-Kuen Ni。在光镊中组装转动振动基态分子。《物理评论快报》，126:123402，2021年。[40] Ian Stevenson、Aden Z. Lam、Niccolò Bigagli、Claire Warner、Weijun Yuan、Siwei Zhang 和 Sebastian Will（即将发表）。超冷偶极NaCs基态分子气体。《物理评论快报》，2023年。[41] Peter K. Molony、Avinash Kumar、Philip D. Gregory、Russell Kliese、Thomas Puppe、C. Ruth Le Sueur、Jesus Aldegunde、Jeremy M. Hutson 和 Simon L. Cornish。使用无偏移光学频率梳测量超冷 ^{87}铷^{133}铯分子的结合能。Phys. Rev. A，94(2):022507，2016年。[42] Mingyang Guo、Xin Ye、Junyu He、Maykel L. González-Martínez、Romain Vexiau、Goulven Quéméner 和 Dajun Wang。超冷基态玻色分子的偶极碰撞。Phys. Rev. X，8:041044，2018年。[43] Jee Woo Park、Sebastian A. Will 和 Martin W. Zwierlein。通往超冷 ^{23}钠^{40}钾基态分子的双光子路径。New J. Phys.，17(7):075016，2015年。[44] Peter K. Molony、Philip D. Gregory、Avinash Kumar、C. Ruth Le Sueur、Jeremy M. Hutson 和 Simon L. Cornish。绝对基态超冷 ^{87}铷^{133}铯的制备：对受激拉曼绝热通道转移的完整表征。ChemPhysChem，17(22):3811–3817，2016年。[45] Mingyang Guo、Romain Vexiau、Bing Zhu、Bo Lu、Nadia Bouloufa-Maafa、Olivier Dulieu 和 Dajun Wang。用于制备超冷绝对基态 ^{23}钠^{87}铷分子的高分辨率分子光谱学。Phys. Rev. A，96(5):052505，2017年。[46] Luigi De Marco、Giacomo Valtolina、Kyle Matsuda、William G. Tobias、Jacob P. Covey 和 Jun Ye。极性分子的简并费米气体。《科学》，363(6429):853–856，2019年。[47] Marcel Duda、Xing-Yan Chen、Andreas Schindewolf、Roman Bause、Jonas von Milczewski、Richard Schmidt、Immanuel Bloch 和 Xin-Yu Luo。从极化子凝聚态到异核分子简并费米气体的转变。Nat. Phys.，第1–6页，2023年。[48] H. P. Büchler、E. Demler、M. Lukin、A. Micheli、N. Prokof'ev、G. Pupillo 和 P. Zoller。冷极性分子的强关联二维量子相：调控相互作用势的形状。《物理评论快报》，98:060404，2007年。[49] B. Capogrosso-Sansone、C. Trefzger、M. Lewenstein、P. Zoller 和 G. Pupillo。二维光学晶格中冷极性分子的量子相。《物理评论快报》，104(12):125301，2010年。[50] Matthias Schmidt、Lucas Lassablière、Goulven Quéméner 和 Tim Langen。分子玻色-爱因斯坦凝聚体中的自束缚偶极液滴与超固体。Phys. Rev. Research，4(1):013235，2022年。[51] Alexey V. Gorshkov、Salvatore R. Manmana、Gang Chen、Jun Ye、Eugene Demler、Mikhail D. Lukin 和 Ana Maria Rey。利用超冷极性分子实现可调超流动性与量子磁性。《物理评论快报》，107(11):115301，2011年。

[52] Paul J. Dagdigian 和 Lennard Wharton。异核碱金属二聚体的分子束电偏转与共振光谱学：^{39}钾^{7}锂、铷^{7}锂、^{39}钾^{23}钠、铷^{23}钠和^{133}铯^{23}钠。《化学物理学杂志》，57(4):1487–1496，1972年。[53] Tijs Karman 和 Jeremy M. Hutson。超冷极性分子的微波屏蔽。《物理评论快报》，121(16):163401，2018年。[54] Lucas Lassablière 和 Goulven Quéméner。调控超冷偶极分子的散射长度。《物理评论快报》，121(16):163402，2018年。[55] Loïc Anderegg、Sean Burchesky、Yicheng Bao、Scarlett S. Yu、Tijs Karman、Eunmi Chae、Kang-Kuen Ni、Wolfgang Ketterle 和 John M. Doyle。观测到超冷分子的微波屏蔽。《科学》，373(6556):779–782，2021年。[56] Andreas Schindewolf、Roman Bause、Xing-Yan Chen、Marcel Duda、Tijs Karman、Immanuel Bloch 和 Xin-Yu Luo。将微波屏蔽的极性分子蒸发冷却至量子简并。《自然》，607(7920):677–681，2022年。[57] Alexander V. Avdeenkov、Masatoshi Kajita 和 John L. Bohn。静电场中极性$^{1}\Sigma$态分子非弹性碰撞的抑制。Phys. Rev. A，73:022707，2006年。[58] Maykel L. González-Martínez、John L. Bohn 和 Goulven Quéméner。超冷碰撞中偶极转子屏蔽的无量纲理论。Phys. Rev. A，96:032718，2017年。[59] Kyle Matsuda、Luigi De Marco、Jun-Ru Li、William G. Tobias、Giacomo Valtolina、Goulven Quéméner 和 Jun Ye。利用电场对反应性分子进行共振碰撞屏蔽。《科学》，370(6522):1324–1327，2020年。[60] Jun-Ru Li、William G. Tobias、Kyle Matsuda、Calder Miller、Giacomo Valtolina、Luigi De Marco、Reuben R. W. Wang、Lucas Lassablière、Goulven Quéméner、John L. Bohn 等。调控三维分子量子气体中的偶极相互作用并进行蒸发冷却。Nat. Phys.，17(10):1144–1148，2021年。[61] O. Docenko、M. Tamanis、J. Zaharova、R. Ferber、A. Pashov、H. Knöckel 和 E. Tiemann。原子对Na Cs的$X\,^{1}\Sigma^{+}$ 态与$a\,^{3}\Sigma^{+}$ 态之间的耦合及冷碰撞建模。《物理学杂志B：原子、分子与光学物理》，39(19):S929–S943，2006年。 + O. Docenko、M. Tamanis、J. Zaharova、R. Ferber、A. Pashov、H. Knöckel 和 E. Tiemann。NaCs (3)[62] 态的高分辨率光谱学与势能确定。《化学物理学杂志》，124(17):174310，2006年。$^{1}\Pi$ J. Zaharova、O. Nikolayeva、M. Tamanis、M. Auzinsh、R. Ferber、A. Zaitsevskii、E. A. Pazyuk 和 A. V. Stolyarov。NaCs低位[63] 态中的 Λ 倍裂分与永久电偶极矩的实验和理论研究。《化学物理学杂志》，124(18):184318，2006年。$^{1}\Pi$ J. Zaharova、O. Docenko、M. Tamanis、R. Ferber、A. Pashov、H. Knöckel 和 E. Tiemann。NaCs的B[64] 态：高分辨率激光诱导荧光光谱学与势能构建。《化学物理学杂志》，127(22):224302，2007年。$^{1}\Pi$ A. Grochola、P. Kowalczyk、J. Szczepkowski、W. Jastrzebski、A. Wakim、P. Zabawa 和 N. P. Bigelow。NaCs中的自旋禁阻c[65] $(^{3}\Sigma^{+})\Omega = 1X \leftarrow$ 跃迁：在冷热环境中研究$^{1}\Sigma^{+}$ 态。Phys. Rev. A，84(1):012507，2011年。 $\Omega = 1$ P. Zabawa、A. Wakim、M. Haruza 和 N. P. Bigelow。通过耦合光缔合通道形成超冷X[66] $(v\,^{1}\Sigma^{+})$ NaCs分子。Phys. Rev. A，84(6):061401，2011年。$'' = 0$ Robert J. Le Roy。LEVEL：用于求解束缚能级和准束缚能级径向薛定谔方程的计算机程序。J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transf.，186:167–178，2017年。[67] Claire Warner、Aden Z. Lam、Niccolò Bigagli、Henry C. Liu、Ian Stevenson 和 Sebastian Will。重叠的[68]钠与^{23}铯玻色-爱因斯坦凝聚体。Phys. Rev. A，104:033302，2021年。^{133}Aden Z. Lam、Niccolò Bigagli、Claire Warner、Weijun Yuan、Siwei Zhang、Eberhard Tiemann、Ian Stevenson 和 Sebastian Will。高相空间密度的NaCs Feshbach分子气体。Phys. Rev. Res.，4(2):L022019，2022年。[69] Gerhard Herzberg。分子光谱与分子结构。D. van Nostrand，1945年。[70] Patrick J. Zabawa。超冷绝对振动基态NaCs分子的制备。博士学位论文，罗切斯特大学，2012年。

[72] Philip D. Gregory、Jacob A. Blackmore、Luke M. Fernley、Sarah L. Bromley、Jeremy M. Hutson、Simon L. Cornish 等人。超冷 RbCs 分子之间以及原子与分子之间的碰撞。New J. Phys., 23(12):125004, 2021年。[73] Roman Bause、Akira Kamijo、Xing-Yan Chen、Marcel Duda、Andreas Schindewolf、Immanuel Bloch 和 Xin-Yu Luo。将闭合通道主导的 ^{23}钠^{40}K Feshbach分子高效转化为其绝对基态。Phys. Rev. A, 104(4):043321, 2021年。[74] Markus Greiner、Olaf Mandel、Tilman Esslinger、Theodor W. Hänsch 和 Immanuel Bloch。超冷原子气体中从超流体到莫特绝缘体的量子相变。《自然》, 415(6867):39– 44, 2002年。[75] Loïc Anderegg、Lawrence W. Cheuk、Yicheng Bao、Sean Burchesky、Wolfgang Ketterle、Kang-Kuen Ni 和 John M. Doyle。超冷分子的光镊阵列。《科学》, 365(6458):1156–1158, 2019年。[76] Adam M. Kaufman 和 Kang-Kuen Ni。利用超冷原子和分子的光镊阵列开展量子科学。Nat. Phys., 17(12):1324–1333, 2021年。[77] R. V. Brooks、S. Spence、A. Guttridge、A. Alampounti、A. Rakonjac、L. A. McArd、J. M. Hutson 和 S. L. Cornish。在单个光镊中制备一个 ^{87}Rb 原子和一个 ^{133}Cs 原子。New J. Phys., 23(6):065002, 2021年。[78] Lewis R. B. Picard、Jessie T. Zhang、William B. Cairncross、Kenneth Wang、Gabriel E. Patenotte、Annie J. Park、Yichao Yu、Lee R. Liu、Jonathan D. Hood、Rosario González-Férez 和 Kang-Kuen Ni。对 ^{23}Na^{133}Cs 的激发态$c^3\Sigma_1^+$ 势进行高分辨率光缔合光谱学研究。arXiv 预印本 arXiv:2302.09113v1, 2023年。