arXiv:2303.07715v1 [physics.atom-ph] 14 Mar 2023

通过外部驱动调控长程分子势

Tanita Klas,[1] Jana Bender,[1] Patrick Mischke,[1,2] Thomas Niederpr¨um,[1] 和 Herwig Ott[1], *

[1] *Department of Physics and Research Center OPTIMAS, Rheinland-Pfälzische Technische Universität Kaiserslautern-Landau, 67663 Kaiserslautern, Germany* [2] *Max Planck Graduate Center with the Johannes Gutenberg-UniversitätMainz (MPGC), Staudinger Weg 9, 55128 Mainz, Germany*（日期：2023年3月15日）

我们报道了在较大原子间距下调控分子势的方法。通过与一个高度激发的长程里德堡分子势进行失谐光学耦合，可以产生分子态。该耦合会在低能分子势中形成一个势阱，并支持一个束缚态。势阱深度以及分子的结合能均可通过耦合参数调节。我们对这些分子进行了表征，发现实验结果与基于两个相关绝热势能曲线耦合的理论模型吻合良好。我们的研究为在超冷基态原子之间生成长程分子，以及将其用于超冷化学和Feshbach共振、Efimov物理或晕分子研究等应用，开辟了众多可能性。

单个原子之间的相互作用由粒子间的分子势决定。分子势决定了散射性质以及分子束缚态的出现。因此，人们投入了大量精力来正确理解和控制相互作用势，尤其是在超冷原子气体的研究中。可控地改变或调谐分子势，对超冷化学应用和少体物理具有巨大潜力；然而，这是一项艰巨的任务，因为分子势由原子的性质决定。

在磁 [1]和光学 [2]Feshbach共振的背景下，针对散射过程对低能态进行势能工程的尝试引起了广泛关注。这些研究推动了多体物理领域的一系列进展，包括超冷分子的缔合 [3, 4], 、分子玻色-爱因斯坦凝聚态的形成 [5, 6]以及超冷偶极分子系统 [7]。研究已证明，大分子里德堡缀饰能够在光学晶格中，使相距微米的两个基态原子之间产生距离选择性相互作用 [8]。然而，迄今为止，尚未能以这种方式对低能分子势进行工程调控，从而产生新的分子束缚态。对分子振动态和转动态的控制，使势能工程成为超冷化学的一个有前景的平台 [9]。

在此，我们展示一种通用方案，说明如何利用强光学耦合，将辅助势的特定性质转移到目标势上。具体而言，我们将一个在大原子间距处带有势阱的辅助势，与一个短程目标势耦合，如图 1 所示。如果在所关注的原子间距处，辅助势的起伏幅度远大于目标势，那么辅助势的特性就会混入目标势。由此形成的分子势继承了目标态的短程物理，但

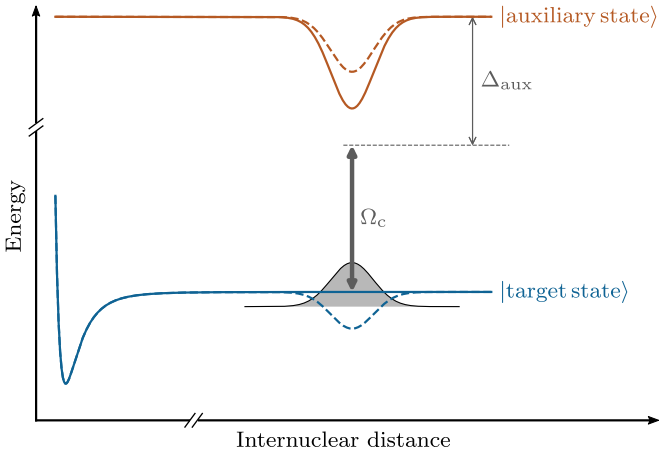


图 1. 分子势工程示意图。分子目标态的势（蓝色实线）与一条激发分子势能曲线（红色实线）强烈耦合，后者称为辅助态。失谐为 Δ_{aux} 的非共振强耦合 Ω_{c} （灰色箭头）会改变两条势能曲线（蓝色和红色虚线）。耦合足够强时，低位势能曲线会形成一个可支持束缚态的势阱（灰色阴影区域）。势阱的深度和形状可通过耦合参数调节。为简便起见，忽略了相关态额外的原子光移。

在更大的核间距处还具有一个额外的势阱。如果耦合足够强，就会出现分子束缚态。

正如 Wang 和 Cˆot´e [10], 最近提出的，基于超长程里德堡分子的势工程方案，非常适合在原本只有短程势的情况下，于数百至数千玻尔半径的较大原子间距处创建新的势阱。我们将这一通用思路应用于超冷铷原子，通过与属于分子势的强光学耦合，操控一个处于 5S 态的原子与一个处于 6P 态的原子（目标态）之间的分子势

该分子势属于 25D 里德堡态（辅助态），此态与一个处于 5S 态的基态原子形成束缚态。为展示势的改变，我们给出了实验依据，证明由此形成的势中的长程势阱内出现了一个分子束缚态。

通过光缔合光谱学，我们在实验中发现，不同耦合参数会导致结合能发生变化，并用理论模型对此进行了描述。根据理论计算，这些分子的键长为 950 a_0, ，比 5S-6P势的短程部分大三个数量级。我们预计，这类罕见的分子态及其背后的势工程方案，未来可用于调控超冷区间基态原子之间的分子相互作用。

要在实验中实现所提出的方案，正确选择辅助里德堡态至关重要。形成这类分子的概率取决于相关超冷气体中原子的距离分布；键长越长、主量子数越高，就越有利。另一方面，较大的光学耦合强度，以及辅助势中深而孤立良好的势阱（这允许相对于原子里德堡态采用更大的失谐量），则有利于选择较低的主量子数。由于我们从 $6P_{3/2}$ 态驱动耦合跃迁，因此可以耦合到里德堡D态和S态；通常我们更倾向于D态，因为其电离率更高、拉比耦合更强。综合考虑这些因素，我们选择了 $25D_{5/2}$ 态，其相关分子势如图2所示。该势在原子间距为 850 至 1100 a_0 时形成双势阱结构，深度约为 $-h \times 280$MHz；在给定的原子气体密度下，这一间距出现的概率足够高。我们特别选取其 $m_J = 5/2$ 塞曼态，通过一次 σ^+ 跃迁，以拉比频率 $\Omega_c = 2\pi \times 293$MHz 和相对于 $25D_{5/2}$ 里德堡态变化的失谐量 Δ_{aux} ，从完全拉伸的 $6P_{3/2}$ $F = 3$ $m_F = 3$ 态实现具有最大拉比耦合的确定跃迁。

由波长为 1064 nm 的专用光束和波长为 1030 nm、交叉传播的强耦合激光构成囚禁势阱，用于囚禁约 2×10^5 ^{87}个处于 $5S_{1/2}$ $F = 2$ $m_F = 2$ 基态的 Rb 原子。由于新分子态主要具有 5S-6P 特征，我们可以通过对 5S 至 6P 跃迁进行弱探测，从 5S-5S 初态中光缔合出该分子态。因此，我们加入一束波长为 420 nm、反向传播的弱探测光束，其偏振为 σ^+ ，拉比频率为 Ω_P ，相对于原子光移后的 $6P_{3/2}$ 态的失谐量为 δ_{targ} 。在耦合光束以恒定高功率持续 300 ms 的同时，我们施加 1000 个脉宽为 10 μs 的探测脉冲。为了探测经调控、处于 5S-6P 目标势中的分子，我们利用其混合成分

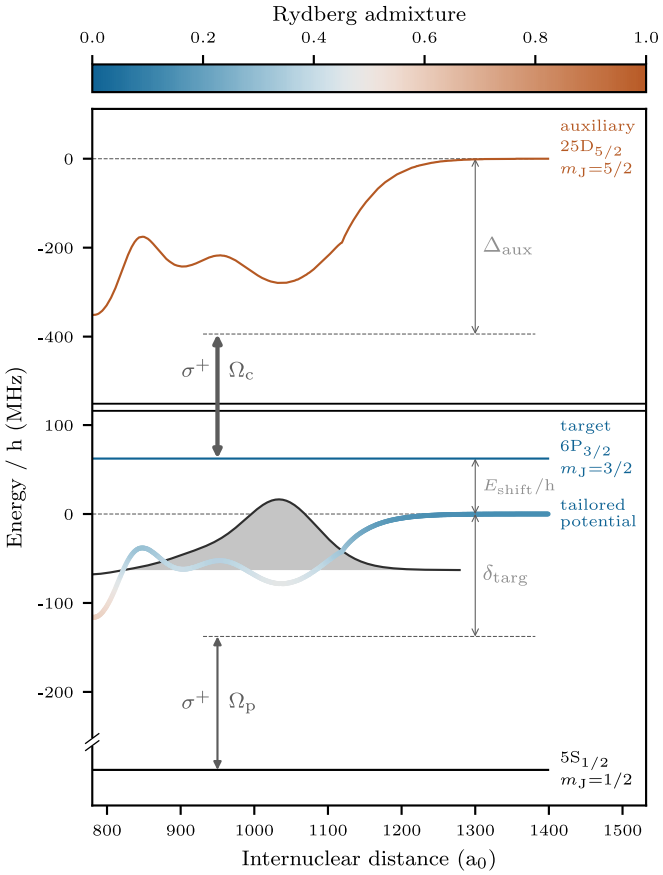


图 2. 工程化分子势。带有 $m_J = 3/2$ 的 $6P_{3/2}$ 目标态（细蓝线）与辅助 $25D_{5/2}$ 里德堡态的 $m_J = 5/2$ 子能级（细红线）强烈耦合，耦合由一个 σ^+ 偏振激光驱动，其失谐为 $\Delta_{aux} = -2\pi \times 300$ MHz，拉比频率为 $\Omega_c = 2\pi \times 293$ MHz（灰色箭头）。5S-6P定制势（粗蓝线）发生形变，并呈现调制后的里德堡态混合（颜色编码）。具体而言，5S-6P势形成一个势阱，支持一个振动态（灰色阴影区域），其能量相对于原位置移动了 $-h \times 62$ MHz，即其结合能。光缔合光谱通过弱的 σ^+ 偏振激光（拉比频率 Ω_P）从 $5S_{1/2}$ $m_J = 1/2$ 基态探测 $6P_{3/2}$ $m_J = 3/2$ 态。由于我们将里德堡分子的束缚机制与耦合机制分开处理，因此用单原子基底表示该系统，并通过里德堡势的调制来体现 5S 原子。

里德堡特性及其固有的电离过程会产生原子 Rb^+ 离子和分子 Rb_2^+ 离子。Rb^+离子源于偶极阱或黑体辐射引起的光电离，而分子离子则由缔合电离产生 [11]。在施加的小电场中，离子被引导至探测器；由于飞行时间不同，可以区分这两类离子。里德堡分子与原子里德堡态的主要衰变通道不同 [12], ，因此我们预计，工程化分子的特征主要会出现在两种信号中的一种。为此，我们评估这两种

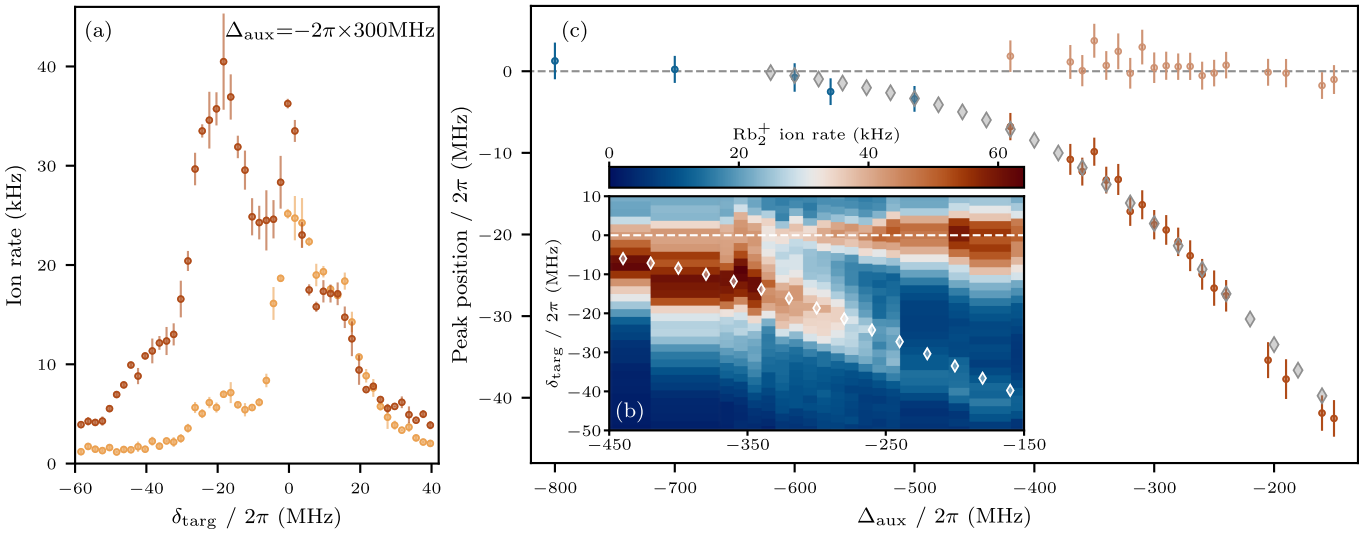


图 3. $\Omega_c = 2\pi \times 293\,$MHz 条件下设计的 5S-6P 分子的光谱学。(a) 耦合激光失谐量为 $\Delta_{aux} = -2\pi \times 300\,$MHz 时的原子 Rb^+（橙色）和分子 Rb_2^+（红色）离子。原子离子主要源于里德堡态与 $6P_{3/2}$ 原子态的混合。分子离子信号中 $\delta_{targ} = -2\pi \times 20$ MHz 处的峰表明存在束缚 5S-6P 态。 δ_{targ} 根据理论原子非共振光移 $E_{shift} = -\hbar\Delta_{aux}/2 - \hbar\sqrt{\Omega_c^2 + \Delta_{aux}^2}/2$ 进行了修正。误差棒表示均值的误差。(b) 我们展示耦合激光处于不同失谐量 Δ_{aux} 时的 Rb_2^+ 离子率。 $\delta_{targ} = 2\pi \times 0\,$MHz 附近的强离子率（虚线）代表原子态。图中另外出现的谱线表明存在 5S-6P 分子。理论计算得到的势阱中计算出的束缚态能够令人信服地重现结合能；这些势阱按 0.39 的比例缩放（白色菱形）。每次测量右侧边缘处的失谐量 Δ_{aux} 在实验中设定。(c) 从双峰高斯拟合中提取不同 Δ_{aux} 条件下 Rb_2^+ 信号中原子峰（细红色）和分子峰（深红色）的位置。对于 $\Delta_{aux} < -2\pi \times 420\,$MHz，只能辨认出一个峰（蓝色）。误差棒表示拟合峰位置的误差，以及光移修正的统计误差；后者由原子峰位置在 $2\pi \times 0\,$MHz 附近的变化表示。理论峰位置（虚线和菱形）取自 (b)。

分别列出各类离子。

按照图 2 所示的探测与耦合方案，我们测量了图 3(a) 所示的光谱。Rb^+ 信号在约 δ_{targ} $=2\pi \times 0$MHz 处出现一个强峰，因此可归因于处于 $6P_{3/2}$态且混有里德堡特性的原子。5S-6P 工程化分子出现的实验特征，表现为 Rb_2^+ 信号在约 $-2\pi \times 20\,$MHz 处出现一个强峰。我们通过调节耦合激光 Δ_{aux} 的失谐，系统地改变辅助态与目标态之间的耦合，并记录 Rb_2^+ 离子率，从而得到图 3(b) 所示的图谱。随着 Δ_{aux} 减小、耦合强度增大，我们观察到一个分子态从原子共振处分支出来。这表明目标态分子势能可以连续形变，且束缚态具有可调控性。为提取分子共振与原子共振的位置，我们对 Rb_2^+ 信号进行双峰高斯函数拟合。两者的位置如图 3(c) 所示。当失谐量为 $\Delta_{aux} \geq -2\pi \times 420$MHz 时，分子峰与原子共振明显分离；在 $\Delta_{aux} = -2\pi \times 150$MHz 时，其结合能增至最大值 –h $\times 40$MHz。

为了从理论上模拟我们的发现，我们再次考虑

图 2 所示的方案，其中忽略各个塞曼子态耦合强度的差异，并考虑一个拉比频率 Ω_c ，它以 Δ_{aux} 的失谐耦合 $6P_{3/2}$ $F = 3$ 态和 $25D_{5/2}$ 态。由于 $6P_{3/2}$ 态中的超精细相互作用小于耦合强度 Ω_c，我们在未耦合的精细结构基底 $|g^*\rangle$ 中对 $6P_{3/2}$ 态建模：$=|6P_{3/2},\ m_J,\ m_I\rangle$ ；对于 $25D_{5/2}$ 精细结构态的塞曼态 $|r\rangle D_{5/2},\ m_J,\ m_I\rangle$ ，其中 $I = 3/2$ 适用于 ^{87}Rb。单原子基底 $|g^*\rangle \oplus |r\rangle$ 中的哈密顿量表示为

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + A_{HFS}\hat{\vec{I}} \cdot \hat{\vec{J}} + \frac{\hbar}{2}\sum_{g^*,r} \Omega_{g^*r} |g^*\rangle \langle r| \qquad (1)$$

ˆ其中， H_0 是精细结构哈密顿量， A_{HFS} 是超精细常数，而 Ω_{g^*r} 表示从不同的 $6P_{3/2}$ 态 $|g^*\rangle$到里德堡态 $|r\rangle$的拉比耦合。里德堡态中的超精细相互作用可以忽略。根据选择定则，对于耦合激光的 σ^+ 偏振，由 $|6P_{3/2},\ 3/2, 3/2\rangle$ 和 $|25D_{5/2}, 5/2, 3/2\rangle$ 态张成的希尔伯特空间彼此解耦，因此可视为一个孤立的双能级系统。为确保实验中只探测这个子空间，我们从完全拉伸的态驱动一个 σ^+ 跃迁

$5S_{1/2}$ $F = 2, m_F = 2$ 基态，该态仅由 $m_J = 1/2$ 分量构成。考虑到里德堡分子势的空间变化能量 $V_{\rm mol}(R)$，系统因此可描述为

$$\hat{H}(R) = \hbar \begin{pmatrix} 0 & \Omega_c/2 \\ \Omega_c/2 & \Delta_{\rm aux} + V_{\rm mol}(R)/\hbar \end{pmatrix}. \qquad (2)$$

图 2 展示了系统的较低本征值，以及在典型实验参数下随 R 变化的目标态和辅助态。由此产生的势是两种态的混合，构成了我们所追求的工程化势。当 R 较大时，对角化结果与目标态之间的能量差由交流斯塔克频移 $E_{\rm shift} = -\hbar\Delta_{\rm aux}/2 - \hbar\sqrt{\Omega_c^2 + \Delta_{\rm aux}^2}/2$ 给出。我们根据式 (2) 的本征矢提取局部里德堡态混合，并在图 2 中用颜色标示。通过射击法，我们确定了所得 5S-6P势中的振动束缚态，并找出最低的束缚态，该态主要局域在外侧双势阱中。将局部里德堡混合按振动波函数加权后，我们发现图 3(a) 中所设计分子的总体里德堡混合约为 43%。

提取出的束缚态结合能如图 3(c) 中的灰色菱形所示。为匹配实验测得的光谱，在计算束缚态之前，已将计算得到的分子势缩放了 0.39 倍。这种不匹配可能源于忽略了里德堡分子相互作用导致的里德堡态中的态混合；这会使辅助态中的 $m_J = 5/2$ 成分减少，进而使拉比频率依赖于 R，且通常会降低。对于最高达 $2\pi \times 293$ MHz 的拉比频率，原子-光耦合甚至可能改变里德堡态-基态相互作用，使得我们关于未受扰动里德堡分子的近似越来越不准确。除这一缩放因子外，计算结果与测量光谱吻合良好，并且很好地再现了实验数据的变化趋势以及与原子共振的脱离点。光谱结果与简单的两能级解释共同表明，我们能够形变目标势，从而构造支持束缚态的分子长程势。

尽管 6P态的短寿命可能会限制我们在超冷气体中的这一具体实现的应用，但需要指出的是，所展示的机制适用于所有能够与里德堡分子耦合的原子对。特别是，这包括两个通过单光子跃迁与里德堡分子势耦合的基态原子。由于基态分子是稳定的，只有里德堡分子的混入会缩短寿命。因此，所需的拉比频率要低得多，才能在两个基态原子之间形成束缚态。对 $2\pi \times 5$ MHz 的拉比频率和 $-2\pi \times 2$ MHz 的失谐进行的现实估算表明，结合能约为 $-\mathrm{h} \times 25$kHz，且分子寿命超过 5 ms。这些条件将为超冷分子物理开辟诸多机遇。由于工程化分子的结合能可调，直至达到两个自由原子的极限，因此可以形成晕态 [13]，其波函数有很大一部分位于经典禁阻区域，空间延展极其庞大。此外，固有的调谐能力也直接与 Efimov物理相关 [14]。甚至有望实现新型光学 Feshbach共振 [15]。

参考文献

* ott@physik.uni-kl.de

[1] C. Chin、R. Grimm、P. Julienne 和 E. Tiesinga，《超冷气体中的 Feshbach 共振》，Rev. Mod. Phys.**82**, 1225 2010( )，出版商：美国物理学会。[2] O. Thomas、C. Lippe、T. Eichert 和 H. Ott，《在量子多体系统中实验实现里德伯光学 Feshbach 共振》，Nature Communications **9**, 2238 (2018)。[3] C. A. Regal、C. Ticknor、J. L. Bohn 和 D. S. Jin，《由原子费米气体制备超冷分子》，Nature **424**, 47 (2003)。[4] E. A. Donley、N. R. Claussen、S. T. Thompson 和 C. E. Wieman，《玻色-爱因斯坦凝聚态中的原子-分子相干性》，Nature **417**, 529，编号：6888，出版商：Nature Publishing Group。[5] M. Greiner、C. A. Regal 和 D. S. Jin，《分子玻色-爱因斯坦凝聚态从费米气体中涌现》，Nature **426**, 537 (2003)。[6] S. Jochim、M. Bartenstein、A. Altmeyer、G. Hendl、S. Riedl、C. Chin、J. Hecker Denschlag 和 R. Grimm，《分子的玻色-爱因斯坦凝聚》，Science **302**, 2101 2003( )。[7] J. L. Bohn、A. M. Rey 和 J. Ye，《冷分子：化学与量子物质量子工程的进展》，Science **357**, 1002 (2017)。[8] S. Hollerith、K. Srakaew、D. Wei、A. Rubio-Abadal、D. Adler、P. Weckesser、A. Kruckenhauser、V. Walther、R. van Bijnen、J. Rui、C. Gross、I. Bloch 和 J. Zeiher，《在里德伯修饰原子阵列中实现距离选择性相互作用》，Phys. Rev. Lett. **128**, 113602 (2022)。[9] Y. Liu 和 K.-K. Ni，《超冷区间的双分子化学》，Annual Review of Physical Chemistry **73**, 73 2022( )。[10] J. Wang 和 R. Cˆot´e，《通过里德伯修饰进行超长程分子工程》，Physical Review Research **2**, 023019 2020( )。[11] T. Niederpr¨um、O. Thomas、T. Manthey、T. M. Weber 和 H. Ott，《超冷里德伯气体中的巨大分子离子形成截面，

在超冷里德伯气体中的形成》，Phys. Rev. Lett. **115**, 013003 2015( )，出版商：美国物理学会。[12] M. Schlagm¨uller、T. C. Liebisch、F. Engel、K. S. Klein-bach、F. B¨ottcher、U. Hermann、K. M. Westphal、A. Gaj、R. L¨ow、S. Hofferberth、T. Pfau、J. P´erez-R´ıos 和 C. H. Greene，《致密气体中单个里德伯原子的超冷化学反应》，Phys. Rev. X **6**, 031020 (2016)，出版商：美国物理学会。[13] S. Zeller、M. Kunitski、J. Voigtsberger、A. Kalinin、A. Schottelius、C. Schober、M. Waitz、H. Sann、A. Hartung、T. Bauer、M. Pitzer、F. Trinter、C. Goihl、C. Janke、M. Richter、G. Kastirke、M. Weller、A. Czasch、M. Kitzler、M. Braune、R. E. Grisenti、W. Sch¨ollkopf、L. P. H. Schmidt、M. S. Sch¨offler、J. B. Williams、T. Jahnke 和 R. D¨orner，《利用自由电子激光器对 He_2 量子晕态成像》，《美国国家科学院院刊》**113**, 14651 (2016)，电子版：https://www.pnas.org/doi/pdf/10.1073/pnas.1610688113 -

.

[14] P. Naidon 和 S. Endo，《Efimov物理：综述》，《物理学进展报告》**80**，056001（2017），出版商：IOP出版社。[15] O. Thomas，*An optical Feshbach resonance using Rydberg molecules*，博士论文，凯泽斯劳滕工业大学（2018年）。

数据可用性

支持本文图表及本研究其他发现的数据，可向通讯作者索取。

致谢

我们感谢 R. Cˆot´e 富有帮助的讨论。我们感谢德国研究联合会通过项目 OT 222/8-1 以及 TR185 OSCAR协作研究中心项目 B2（编号 277625399）提供的经济支持。本工作还获得了马克斯·普朗克研究生中心与美因茨约翰内斯·古腾堡大学（MPGC）的支持。

作者贡献

T.K.、P.M. 和 J.B. 完成了实验。T.K. 和 P.M. 分析了数据。T.K. 完成了分子势计算，并准备了手稿的初始版本。H.O. 提出了该项目。H.O. 和 T.N. 监督了实验。所有作者都参与了数据解读和手稿准备。

竞争性经济利益

作者声明不存在竞争性经济利益。