arXiv:2602.17540v1 [physics.atom-ph] 19 Feb 2026

光学阱中的多原子分子的宇称双重态相干时间

Paige Robichaud, [1, 2, *] Christian Hallas, [1,2] Junheng Tao, [1,2] Giseok Lee, [1,2] Nathaniel B. Vilas, [1,2] 和 John M. Doyle[1,2]

[1] *Department of Physics, Harvard University, Cambridge, MA 02138, USA* [2] *Harvard-MIT Center for Ultracold Atoms, Cambridge, MA 02138, USA*（日期：2026年2月20日）

多原子分子具有复杂的内部结构，非常适用于量子信息科学、量子模拟以及对标准模型之外物理学的精密搜寻。多原子分子的一个关键特征是存在宇称双重态。这些结构通常源于多原子分子所具有的转动和振动自由度，是实现这些多样化量子科学应用的有力优势。线性三原子分子具有 ℓ 型宇称双重态，理论预测其相干性质稳健。我们对 CaOH分子进行光学囚禁，将其制备于 ℓ 型宇称双重态，并实现了 $T_2^* = 0.8(2)$ s 的裸量子比特相干时间。我们利用分子光谱学抵消环境电场，从而抑制差分斯塔克位移，并表征宇称相关阱位移；研究发现，这些位移限制了相干时间。本工作实现的宇称双重态相干时间，是推动多原子分子应用于量子科学的重要里程碑。

超冷分子因其结构复杂性而成为量子科学的强大工具。较大的本征偶极矩和丰富的希尔伯特空间，使量子模拟 [1–3], 量子信息处理 [4–7], 以及超越标准模型的物理学精密搜寻 [8–12]得以采用新颖且稳健的方案。通过对分子进行直接激光冷却 [13–17] 以及间接组装分子 [18–25] 来实现这些目标的研究进展，使这一平台发展到能够构建多个功能性超冷分子光镊阵列[25–29], , 并已实现单量子态操控 [30, 31] 和纠缠 [32–35] 。分子的转动和振动能级结构蕴含着一系列相互作用强且寿命长的态，可构成多功能量子比特 [5, 36, 37]。在若干种双原子分子中，超精细态存储量子比特 [30, 38] 和相互作用转动态量子比特 [31, 39, 40]均已实现较长的相干时间。这些成果利用了“魔法”囚禁光条件：通过调节囚禁光的偏振 [31, 38, 39, 41, 42],、强度 [43], 或波长 [40, 44, 45]，使量子比特态之间的差分光频移接近于零。在较长转动态相干时间的支持下，近期已在双原子分子 [32–35]中实现高保真度的偶极-偶极相互作用，包括可产生纠缠的 iSWAP 门操作。

与双原子分子相比，多原子分子具有更多细致而微妙的结构特征。多原子分子的一个关键优势在于，它们具有一对长寿命、近简并且宇称相反的态，称为“宇称双重态”。人们已提出利用这些态实现量子科学和基础物理精密测量中的多种新颖应用。例如，宇称双重态在适度的外加电场下会充分混合，从而形成具有较大、饱和实验室坐标系电偶极矩的态，以及偶极矩为零的态。这种结构使新型量子计算方案能够实现快速且强度可调的电偶极相互作用 [6, 7] ，并为探索量子磁性模型（包括整数自旋系统）提供了天然平台 [1, 46, 47]。斯塔克结构还允许形成内部共磁力计态，使其不易受系统效应影响，并有利于搜寻标准模型之外的物理（BSM） [8, 10, 48, 49]。在零电场下，宇称双重态分子之间的偶极-偶极相互作用可用于构造 iSWAP 双量子比特门 [32–35]。

上述应用都要求具备稳健的相干特性。宇称双重态有望拥有很长的相干时间，因为它们除宇称外具有相同的所有量子数，因此能够抑制环境扰动引起的退相干效应。在线性三原子分子中，宇称双重态源于振动角动量在核间轴上的投影存在简并， ℓ，如图1所示。这些ℓ型宇称双重态由于具有相同的电子自旋、核自旋和转动角动量，其磁场灵敏度在高阶近似下相同。同样， ℓ型宇称双重态的差分光移也仅剩下依赖于宇称的效应。在低电场下，宇称双重态的斯塔克灵敏度表现为二次差分频移，因此能够抵御环境电场波动引起的退相干。受宇称双重态的这些优势及其他特性所吸引，多原子分子已实现激光冷却 [50, 51], 囚禁 [52–58], 装载到光镊阵列中 [59], , 并针对量子科学应用进行了表征 [60, 61]。

在本研究中，我们测量了光学囚禁的超冷多原子分子中宇称双重态的相干时间。我们考察了 CaOH 中两对完全伸展宇称双重态，每个双重态分别属于激发态中的 $N = 1$ 或 $N = 2$ 转动态

* paigerobichaud@g.harvard.edu

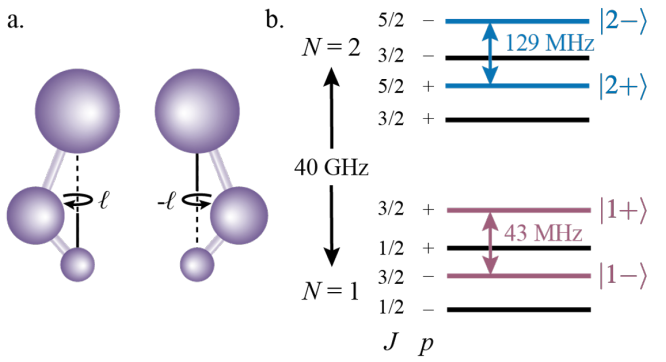

图1. a. 分子的弯曲振动模式示意图。振动角动量在核间轴上的投影为 ℓ。b. $N=1$ 和 $N=2$ 在 CaOH 的 $X(010)$ 振电子态中的转动态结构，其中包含宇称双重态。科里奥利相互作用会分裂宇称双重态之间的简并，并区分面内和面外振动，其中 $|\pm\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}\left(|\ell\rangle \pm (-1)^{N-\ell}|-\ell\rangle\right)$。本研究考察的量子比特态是完全伸展态，分别标记为 $|1+\rangle$ 和 $|1-\rangle$（位于 $N=1$）以及 $|2+\rangle$ 和 $|2-\rangle$（位于 $N=2$）。

˜弯曲振动态，X（010），如图1所示。为减轻差分二次斯塔克频移引起的退相干，我们利用宇称双重态跃迁的赫兹级光谱测量消除环境电场。我们测量并比较了宇称双重态中斯塔克灵敏度的转动依赖性。我们发现，两种双重态的相干时间均受光学阱导致的光频移限制；采用魔偏振角可减小这种影响。我们观测到宇称双重态中的本征相干时间为 $T_2^* = 0.8$（2）秒。$N=1$ 宇称双重态。

我们的实验首先在蓝失谐磁光俘获 [62]之后，利用单频灰糖蜜冷却，将激光冷却的 CaOH 分子装载到 1064 纳米光学偶极阱中。随后，这些分子被光抽运到弯曲振动模式，并利用光学、微波和射频（RF）脉冲制备到单个超精细宇称双重态，如补充材料 [63]所述。我们选择完全拉伸宇称双重态，以最大化其相互作用强度。对于 $N=1$，我们将它们标记为 $|1\pm\rangle \equiv |N=1, J=3/2, F=2, m_F=2, p=\pm\rangle$。由于 $N=2$ 中的宇称双重态预期比 $N=1$具有更低的斯塔克灵敏度，我们还考察了这些 $N=2$态的相干性，标记为 $|2\pm\rangle \equiv |N=2, J=5/2, F=3, m_F=3, p=\pm\rangle$。这里，$N$是转动量子数，$J$ 是不含核自旋的总角动量，F 是包含核自旋的总角动量，p 是该态的宇称。所有态均可借助偏置磁场在光谱上分辨；在制备到宇称双重态之后，该磁场从3 G斜升到更高的场强。在进行相干时间的拉姆齐测量之前，阱深从 $U_0 \sim 640$ μK降低到 $U_0 \sim 40$ μK，从而将分子从 ~60 μK绝热冷却至 ~15 μK。

我们采用拉姆齐序列测量宇称双重态的相干时间 T_2^*。该序列由一对射频 $\pi/2$ 脉冲组成，两脉冲之间间隔一个拉姆齐保持时间 τ。对于 $N=1$ 和 $N=2$宇称双重态跃迁，分别使用两个真空内线圈在 ~43 MHz 和 ~129 MHz 施加射频（这些线圈也用于产生射频磁光阱场）。为方便技术操作，我们采用两种方式测量拉姆齐条纹对比度。对于图2所示的数据，射频失谐 1 kHz，进动时间为 $\tau+T$；扫描条纹测量时间 T，使其跨越 1 ms 的周期，以确定对比度。对于图3和图4所示的数据，射频处于共振状态；扫描第二个拉姆齐 $\pi/2$ 脉冲的相对相位，使其在 0 到 2π 的范围内变化，以测量拉姆齐条纹。拉姆齐测量后，由于黑体辐射和辐射衰变，分子布居除了可能处于$|+\rangle$ 或 $|-\rangle$ 宇称双重态之外，还可能分布于各种转动振动态。为了选择性地仅测量宇称双重态布居，我们施加一个共振光“推出”脉冲，将所有可探测到的分子从囚禁势阱中驱逐，包括处于 $|-\rangle$的分子。该脉冲不会作用于任何正宇称基态，因此 $|+\rangle$中的布居仍被搁置在暗态。从这里开始，我们再施加一个射频脉冲，将 $|+\rangle$ 布居转移回可探测态，然后进行再泵浦并施加 Λ冷却，对分子 [56]成像。有关读出方案的更多细节，请参见补充材料 [63]。我们针对多个拉姆齐自由进动时间 τ重复该序列。对拉姆齐条纹的衰减进行指数退相干模型拟合，从而提取相干时间 T_2^*。

˜分子在 $X(010)$态的 $1/e$寿命受黑体辐射、辐射衰变和真空损失的限制。在我们的系统中测得其寿命为 $0.36^{+0.11}_{-0.07}$ s [56, 64]。由于这一时间尺度与本工作测得的相干时间处于同一量级，因此在较长的拉姆齐保持时长内，相干分子会显著损失。为归一化扣除这一背景衰变，我们将弯曲模中的保持时间固定为与拉姆齐持续时间无关，并施加“推出”脉冲，从而只检测拉姆齐测量后仍留在 $|+\rangle$中的分子。通过这种方式，拉姆齐测量后平均可检测到的分子布居在所有数据中保持一致。

我们观测到相干时间为 $T_2^* = 0.8(2)$ s，位于$N=1$ 宇称双重态。图2 绘制了拉姆齐条纹对比度随自由进动时间的衰减，以及三个测量条纹示例。观测到的退相干归因于囚禁光引起的差分交流张量斯塔克频移，如后文所述。由于弯曲模式的寿命有限，观测长于该时间尺度的相干时间具有挑战性。对黑体环境和真空寿命的实验改进可将损失率降低至本征辐射寿命的

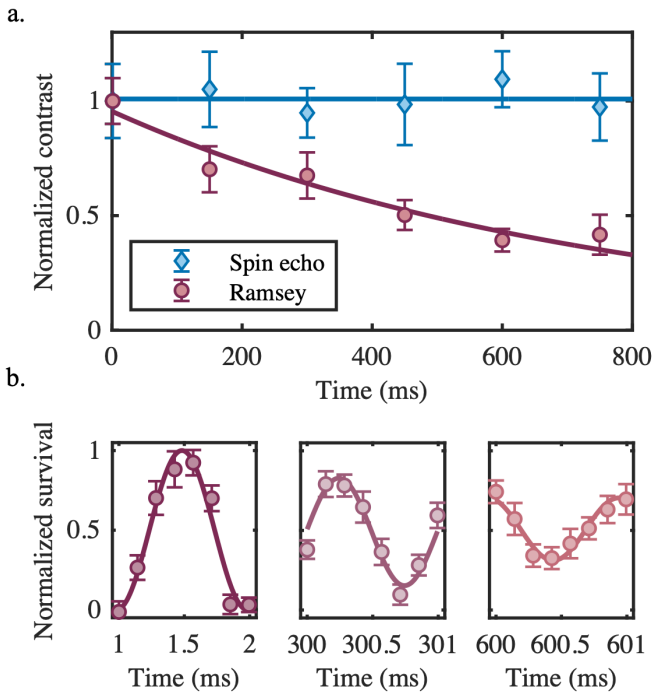

图2. a. $N = 1$中宇称双重态的相干时间。在拉姆齐测量中，两个 $\pi/2$射频脉冲之间间隔一个可变的保持时长。我们将射频频率失谐 1 kHz，从而可以在 1 ms 的时间范围内进行测量，以提取布洛赫球上完整进动一周的对比度。将对比度的衰减拟合到指数退相干模型，以确定相干时间；我们测得相干时间为 $T_2^* = 0.8(2)$ s。采用自旋回波时，在 95%置信水平下测得的相干时间为 >2.9 s。报告的误差来自对数据进行自助法抽样所得的样本。b. 下方相干衰减图展示了拉姆齐测量的三个示例，对应自由进动时长 τ 分别为 1 ms、300 ms 和 600 ms，并以测得的 1 ms 条纹对比度进行归一化。误差棒表示 68%置信区间。

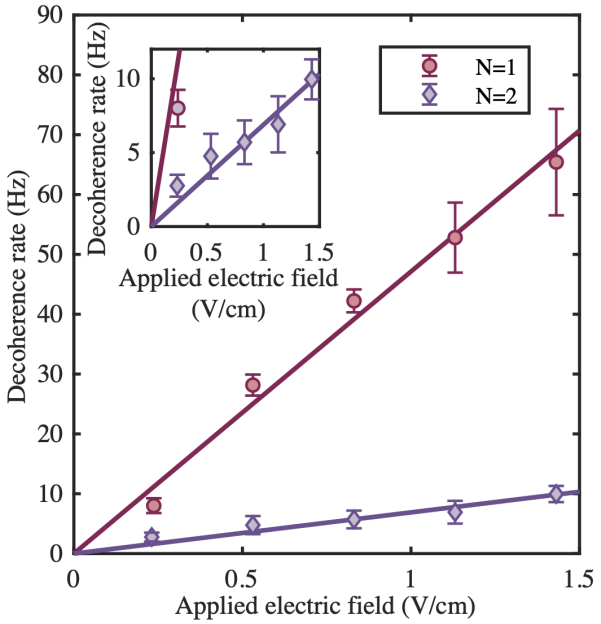

图 3. 退相干率对电场的依赖关系。我们测量了几种电场环境下，$N = 1$ 和 $N = 2$ 转动态中宇称双重态的 Ramsey 相干时间。图中所示的退相干率已扣除零外加电场时的退相干率；后者受光阱频移限制。由于存在二次斯塔克位移，退相干率的依赖关系以直线拟合，因为它反映了斯塔克位移的变化。 $N = 1$和 $N = 2$ 的拟合斜率之比为 7(1)，与根据这些态的频率分裂和偶极矩得到的预测值 6.75 一致。更多详情请参见补充材料 [63]。误差棒表示 68%置信区间。

弯曲模， $0.72^{+0.25}_{-0.13}$ 秒 [56, 65]。一

t宇称双重态的Ba+离子斯塔克灵敏度会产生二次频移 [63]。为了营造低电场环境，我们通过向真空内线圈和杆电极施加偏置电压，抵消真空腔内静态的环境电场。有关抵消过程的详情（该过程利用了 $|1+\rangle$ 和 $|1-\rangle$的斯塔克灵敏度），请参阅补充材料 [63]。电场环境也可能在不同实验周期之间波动，这可能是低温束源烧蚀羽流产生的离子附着在绝缘表面所致。研究发现，在大部分实验序列期间，施加 >100毫瓦、波长为 275 nm 和 365 nm 的紫外发光二极管所发出的紫外光，可使瞬态电场趋于稳定；这样做旨在促使离子从这些表面解吸。

我们通过施加直流电压，测绘了 $N = 1$ 和 $N = 2$ 中量子比特态对

在拉姆齐测量期间穿过真空内磁光阱线圈的变化。图 3 绘出了测得的相干时间随所施加电场的变化关系。由于量子比特在低电场下经历二次差分斯塔克位移，退相干率随所施加电场线性变化。与 $N = 1$ 中的宇称双重态相比， $N = 2$双重态中的宇称双重态态由于能级间距更小、偶极矩更大，在较低电场下混合得更强（见补充材料 [63]）。因此，预计 $N = 1$ 双重态对电场环境中的波动和偏置更加敏感，这一点已由图 3中的实验结果验证。图3中的拟合斜率反映了本系统电场环境的稳定性，据此我们推断其为~4mV/cm [63]。考虑到 ~6.3 $\mathrm{kHz/(V/cm)^2}$ 的差分二次频移存在于 $N = 1$中的宇称双重态之间，我们估计环境电场的总体绝对抵消精度在 20 mV/cm 以内。这些数据表明，外部电场环境并非本系统观测到的退相干的主要来源。相反，我们将退相干归因于

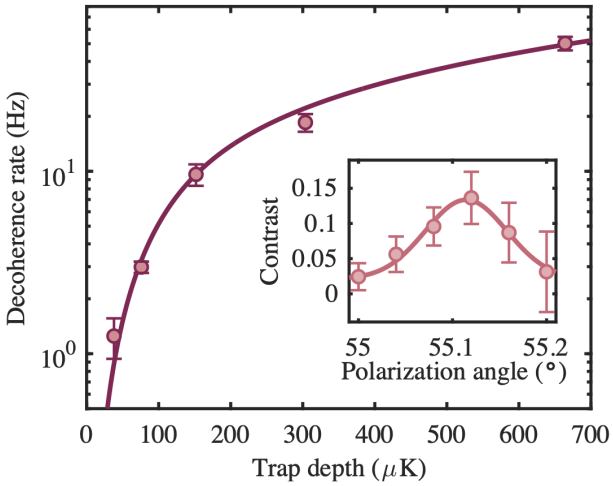

图 4. 退相干率对阱深的依赖关系。在多个阱深下测量了 $|1+\rangle$和 $|1-\rangle$的拉姆齐序列对比度衰减。由于绝热冷却，拉姆齐测量期间分子的温度取决于阱深，且随$\propto \sqrt{U_0}$变化。通过数值拟合模型，研究退相干率对阱深的敏感性；该模型考虑了分子所经历的光强分布以及光阱频移依赖性（见补充材料 [63]）。插图：魔角扫描。我们测量了 $\tau = 0.45$ s 后的 Ramsey 对比度随光阱偏振角的变化。此处所示数据对应的阱深为 $U_0 \sim 40$ μK。角度校准偏差最高可达 0。2°。误差棒表示 68%置信区间。

图 2 中测得的囚禁光导致的宇称依赖交流斯塔克频移。

尽管光学阱对于维持长寿命的分子群体至关重要，但光频移给实现宇称双重态的长相干时间带来了挑战。光学阱产生的束缚力与分子的极化率和光强梯度成正比。在拉姆齐测量期间，由于分子温度有限，分子会经历阱中不同的光强。这种光强分布，加上宇称双重态之间的差分极化率，会导致退相干。由于分子的电子波函数具有各向异性，分子的差分极化率通常很大，因此需要谨慎采取策略以最大程度地降低退相干 [31, 38–45, 66]。然而，在 ℓ 型宇称双重态态中，所有角动量都相同，从而消除了与差分角动量耦合相关的交流斯塔克频移。剩余的宇称依赖频移主要源于电子激发态中的振电耦合 [63]。值得注意的是，这些频移比双原子分子的转动态量子比特中的频移弱一个数量级以上 [31]。

为表征光阱频移对宇称双重态相干性的影响，我们在不同光学阱深度下进行拉姆齐测量。退—相干率随阱深的变化关系绘于图 4。值得注意的是，测量期间分子的温度取决于光学阱深度，这是光阱渐变过程中发生绝热冷却所致。通过调节光学阱相对于由所施加偏置磁场确定的量子化轴的偏振角，可以减小差分光频移 [31]。在“魔角”处，宇称双重态之间的差分张量极化率最小。为获得明确的魔角条件，我们在测量前将偏置磁场渐升至 15–30 G。魔角条件取决于光学阱深度。因此，对于图 4所示的每次相干时间测量，我们都针对相应阱深优化偏振角。图 4 中的插图展示了阱深为 $U_0 \sim 40$ μK 时的魔角优化示例。我们用一个模型对退相干率对阱深的敏感性进行数值拟合；该模型除了包含魔角条件带来的二次贡献外，还包含一个与温度相关的效应，用以反映囚禁分子所经历的光强分布范围 [63]。

环境中的横向磁场会改变最佳魔角。未来若能更有效地抵消横向磁场，应可延长测得的相干时间。此外，增大施加的偏置磁场也能进一步降低对横向磁场的敏感性。改善分子的冷却效果将大幅延长相干时间。较冷的分子所经历的阱深变化较小，因此可以将囚禁势阱强度降至更低，同时减少分子损失。

我们通过引入单个自旋回波脉冲来延长观测到的相干时间。在拉姆齐保持时间的中点，我们施加一个 π 脉冲，以抵消静态非均匀性导致的退相位；如图2所示，在 0.75 s 时未观察到对比度损失。我们测得相干时间为 $>$2.9 s，置信水平为 95%。由于剩余粒子数受弯曲模有限寿命的限制，我们未测量超过这一时长的相干性。

总之，我们展示了光阱中的 CaOH 分子具有较长的宇称双重态相干时间。我们观察到宇称双重态量子比特态之间存在二次斯塔克灵敏度，且可通过选择转动能级进行调节。这些态的差分磁场灵敏度极低，在本研究中并非限制因素。观测到的宇称双重态退相干由宇称依赖的阱位移引起，该位移可通过魔偏振角加以抑制。残余的环境横向磁场限制了当前系统可实现的相干性。我们预计，增大偏置磁场并改善横向磁场稳定性，可实现更长的相干时间。将囚禁光调至魔波长（例如接近某个弱振动态跃迁的波长），可进一步抵消宇称依赖的光移，并延长双重态的相干时间 [40, 44, 45]。

本工作中较长的宇称双重态相干时间可从大型光学阱自然延伸

至此处所用的光镊阵列，这一平台已用CaOH分子得到验证 [59]。光镊阵列的单粒子操控使下一步能够在处于宇称双重态的单分子之间实现可设计的偶极自旋交换相互作用。多原子分子之间在远短于量子比特退相干的时间尺度上产生纠缠，是多项应用的关键前提，从而将双原子分子方面的工作拓展到新的复杂性范畴 [32–35]。被钉扎在光晶格中的宇称双重态分子构成了用于整数自旋模型新型量子模拟的天然模拟系统 [46]。本工作中观测到的长相干时间使这些研究尤其具有前景。此外，较长的裸相干时间，例如在SrOH和RaOH等重分子中，[8, 9, 11, 67, 68], 有望成为对超出标准模型物理进行精密搜寻的有力工具。最终，线性三原子分子中宇称双重态的效用受弯曲模有限有效寿命的限制 [56, 64]。对该寿命有贡献的黑体损耗可在低温实验环境中得到抑制 [65]。

不对称陀螺分子（ATM）展现了另一片更为丰富的复杂性前沿。宇称双重态是 ATM 振动态基态中的普遍特征，并具有长达 $\gg 10$ 的寿命。近期研究已发现若干 ATM 是激光冷却的有前景候选者 [69–72]。它们较大的本征电偶极矩使其能够实现时间尺度远短于单粒子相干时间的纠缠门，因此，ATM 中的宇称双重态是量子科学及搜寻超出标准模型物理的精密搜寻的另一有前景方向 [10, 69, 70]。

感谢 Avikar Periwal 和 Abdullah Nasir 提供的宝贵讨论。本研究得到美国空军科学研究办公室（资助编号 FA9550-22-1-0228 和 FA2386-24-1-4070）、美国国家科学基金会（PHY-2409404 和 NSF 物理前沿中心 PHY-2317134）以及美国陆军研究办公室（W911NF1910283）的支持。此外，也感谢美国能源部科学办公室国家量子信息科学研究中心量子系统加速器的支持。

P.R.、C.H.、J.T.、G.L. 和 N.B.V. 完成了实验并分析了数据。J.M.D. 主导了这项研究。所有作者均讨论并深化了对结果的理解，并参与撰写了论文。

[1]M. Wall、K. Hazzard 和 A. M. Rey，《超冷分子的量子磁性》，载于 *From Atomic To Mesoscale: The Role of Quantum Coherence in Systems of Various Complexities* 2015 3 (World Scientific,) 第 – 37 页。[2] A. Micheli、G. K. Brennen 和 P. Zoller，《极性分子晶格自旋模型工具箱》，《自然·物理》2，341（2006）。[3] A. V. Gorshkov、S. R. Manmana、G. Chen、J. Ye、E. Demler、M. D. Lukin 和 A. M. Rey，《超冷极性分子的可调超流性与量子磁性》，物理评论快报 107，115301（2011）。[4] D. DeMille，《囚禁极性分子的量子计算》，物理评论快报 88，067901（2002）。[5] C. M. Tesch 和 R. de Vivie-Riedle，《振动态激发分子的量子计算》，物理评论快报 89，157901（2002）。[6] Q. Wei、S. Kais、B. Friedrich 和 D. Herschbach，《作为候选量子比特的极性对称陀螺分子的纠缠》，《化学物理学杂志》135，154102（2011）。[7] P. Yu、L. W. Cheuk、I. Kozyryev 和 J. M. Doyle，《利用对称陀螺分子的可扩展量子计算平台》，新物理学杂志 21，093049（2019年）。[8] I. Kozyryev 和 N. R. Hutzler，《利用激光冷却多原子分子精密测量时间反演对称性破缺》，物理评论快报 119，133002（2017）。[9] E. B. Norrgard、D. S. Barker、S. Eckel、J. A. Fedchak、N. N. Klimov 和 J. Scherschligt，《光学囚禁多原子分子中的核自旋依赖宇称破坏》，《通讯物理》2（2019年）。[10] N. R. Hutzler，《作为基础物理量子传感器的多原子分子》，量子科学与技术 5，044011（2020年）。[11] I. Kozyryev、Z. Lasner 和 J. M. Doyle，《增强的传感对线性自由基 SrOH 光谱中的超轻玻色子暗物质的灵敏度，物理评论A 103, 043313 (2021). [12] D. DeMille, N. R. Hutzler, A. M. Rey, and T. Zelevinsky，分子基础物理的量子传感与计量学，《自然物理学》20, 741 (2024). [13] J. Barry, D. McCarron, E. Norrgard, M. Steinecker, and D. De Mille，双原子分子的磁光囚禁，《自然》512, 286 (2014). [14] L. Anderegg, B. L. Augenbraun, E. Chae, B. Hemmerling, N. R. Hutzler, A. Ravi, A. L. Collopy, J. Ye, W. Ketterle, and J. M. Doyle，高密度 CaF 射频磁光囚禁，物理评论快报 119, 103201 2017( ). [15] S. Truppe, H. J. Williams, M. Hambach, L. Caldwell, N. J. Fitch, E. A. Hinds, B. E. Sauer, and M. R. Tarbutt，冷却至多普勒极限以下的分子，Nat. Phys. 13, 1173 1176 2017– ( ). [16] A. L. Collopy, S. Ding, Y. Wu, I. A. Finneran, L. An- deregg, B. L. Augenbraun, J. M. Doyle, and J. Ye，一氧化钇的三维磁光阱，物理评论快报 121, 213201 (2018). [17] Z. Zeng, S. Deng, S. Yang, and B. Yan，一氟化钡的三维磁光囚禁，物理评论快报 133, 143404 (2024). [18] 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，高相空间密度的极性分子气体，《科学》322, 231 (2008). [19] M. P. K¨oppinger, D. J. McCarron, D. L. Jenkin, P. K. Molony, H.-W. Cho, S. L. Cornish, C. R. Le Sueur, C. L. Blackley, and J. M. Hutson，光学囚禁费什巴赫分子 ^{87}RbCs 的制备，物理评论A 89, 033604 (2014)。

[20] T. Takekoshi, L. Reichs¨ollner, A. Schindewolf, J. M. Hut- son, C. R. Le Sueur, O. Dulieu, F. Ferlaino, R. Grimm, and H.-C. N¨agerl，转动振动基态和超精细基态的超冷致密偶极 RbCs 分子样品，物理评论快报 113, 205301 (2014). [21] J. W. Park, S. A. Will, and M. W. Zwierlein，处于绝对基态的超冷偶极费米 $Na^{40}K$ 分子气体，物理评论快报 114, 205302 (2015年). [22] M. Guo, B. Zhu, B. Lu, X. Ye, F. Wang, R. Vex- iau, N. Bouloufa-Maafa, G. Qu´em´ener, O. Dulieu, and D. Wang，超冷基态偶极 $Na^{23}Rb^{87}$ 分子气体的制备，物理评论快报 116, 205303 2016年( ). [23] T. M. Rvachov, H. Son, A. T. Sommer, S. Ebadi, J. J. Park, M. W. Zwierlein, W. Ketterle, and A. 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). [24] K. K. Voges, P. Gersema, M. Meyer zum Alten Borgloh, T. A. Schulze, T. Hartmann, A. Zenesini, and S. Os- pelkaus，超冷玻色 Na $^{23}K^{39}$基态分子气体，物理评论快报 125, 083401 (2020年). [25] W. B. Cairncross, J. T. Zhang, L. R. B. Picard, Y. Yu, K. Wang, and K.-K. Ni，在光镊中组装转动振动基态分子，物理评论快报 126, 123402 (2021). [26] L. Anderegg, L. W. Cheuk, Y. Bao, S. Burchesky, W. Ketterle, K.-K. Ni, and J. M. Doyle，超冷分子光镊阵列，《科学》365, 1156 (2019). [27] J. T. Zhang, L. R. B. Picard, W. B. Cairncross, K. Wang, Y. Yu, F. Fang, and K.-K. Ni，基态极性分子的光镊阵列，《量子科学与技术》7, 035006 (2022). [28] D. K. Ruttley, A. Guttridge, S. Spence, R. C. Bird, C. R. Le Sueur, J. M. Hutson, and S. L. Cornish，通过合并光镊形成超冷分子，物理评论快报 130, 223401 (2023). [29] C. M. Holland, Y. Lu, and L. W. Cheuk，光镊阵列中单分子的双色成像，物理评论快报 131, 053202 (2023). [30] J. W. Park, Z. Z. Yan, H. Loh, S. A. Will, and M. W. Zwierlein，超冷 NaK 分子的秒级核自旋相干时间，《科学》357, 372 (2017). [31] S. Burchesky, L. Anderegg, Y. Bao, S. S. Yu, E. Chae, W. Ketterle, K.-K. Ni, and J. M. Doyle，光镊中极性分子的转动相干时间，物理评论快报 127, 123202 (2021). [32] C. M. Holland, Y. Lu, and L. W. Cheuk，可重构光镊阵列中分子的按需纠缠，《科学》382, 1143 (2023). [33] Y. Bao, S. S. Yu, L. Anderegg, E. Chae, W. Ketterle, K.-K. Ni, and J. M. Doyle，光镊阵列中分子间的偶极自旋交换与纠缠，《科学》382, 1138 (2023). [34] L. R. B. Picard, A. J. Park, G. E. Patenotte, S. Gebret- sadkan, D. Wellnitz, A. M. Rey, and K.-K. Ni，分子量子比特间的纠缠与 iSWAP 门，《自然》637, 821–826 (2025年). [35] D. K. Ruttley, T. R. Hepworth, A. Guttridge, and S. L. Cornish，魔术波长光镊中分子的长寿命纠缠，《自然》637, 827–832 (2025年). [36] R. Sawant, J. A. Blackmore, P. D. Gregory, J. Mur-Petit, D. Jaksch, J. Aldegunde, J. M. Hutson, M. R. Tarbutt, and S. L. Cornish 新物理学杂志 22, 013027 (2019). [37] V. V. Albert, J. P. Covey, and J. Preskill, 分子中量子比特的鲁棒编码, Phys. Rev. X 10, 031050 (2020). [38] P. D. Gregory, J. A. Blackmore, S. L. Bromley, J. M. Hutson, and S. L. Cornish, 超冷极性分子中的鲁棒存储量子比特, 自然物理学 17, 1149–1153 (2021). [39] A. J. Park, L. R. B. Picard, G. E. Patenotte, J. T. Zhang, T. Rosenband, and K.-K. Ni, 椭圆偏振阱中极性分子转动相干性的延长, 物理评论快报 131, 183401 (2023). [40] P. D. Gregory, L. M. Fernley, A. L. Tao, S. L. Bromley, J. Stepp, Z. Zhang, S. Kotochigova, K. R. A. Hazzard, and S. L. Cornish, 超冷极性分子气体中的秒级转动相干性与偶极相互作用, 自然物理学 20, 415–421 (2024). [41] B. Neyenhuis, B. Yan, S. A. Moses, J. P. Covey, A. Chotia, A. Petrov, S. Kotochigova, J. Ye, and D. S. Jin, 超冷极性 $^{40}K^{87}Rb$分子的各向异性极化率, 物理评论快报 109, 230403 (2012). [42] F. Seeßelberg, X.-Y. Luo, M. Li, R. Bause, S. Ko- tochigova, I. Bloch, and C. Gohle, 在自旋解耦魔阱中延长相互作用极性分子的转动相干性, 物理评论快报 121, 253401 (2018). [43] J. A. Blackmore, L. Caldwell, P. D. Gregory, E. M. Bridge, R. Sawant, J. Aldegunde, J. Mur-Petit, D. Jaksch, J. M. Hutson, B. E. Sauer, M. R. Tarbutt, and S. L. Cornish, 用于量子模拟的超冷分子：CaF和RbCs中的转动相干性, 量子科学与技术 4, 014010 (2018). [44] R. Bause, M. Li, A. Schindewolf, X.-Y. Chen, M. Duda, S. Kotochigova, I. Bloch, and X.-Y. Luo, 基态 $^{23}Na^{40}K$分子的零点和魔术波长, 物理评论快报 125, 023201 (2020). [45] Q. Guan, S. L. Cornish, and S. Kotochigova, 光学晶格中双碱金属分子多个转动态的魔条件, 物理评论A 103, 043311 (2021). [46] M. L. Wall, K. Maeda, and L. D. Carr, 用对称陀螺分子模拟量子磁体, 物理年鉴（柏林）525, 845 (2013). [47] M. L. Wall, K. Maeda, and L. D. Carr, 利用对称陀螺分子实现非常规量子磁性, 新物理学杂志 17, 025001 (2015). [48] Y. Takahashi, C. Zhang, A. Jadbabaie, and N. R. Hut- zler, 为对称性破缺搜索设计对场不敏感的分子钟跃迁, 物理评论快报 131, 183003 (2023). [49] Y. Takahashi, H. D. Ramachandran, A. Jadbabaie, Y. Zeng, C. Zhang, and N. R. Hutzler, 为对称性破缺搜索设计分子钟跃迁, arXiv预印本 (2025年), arXiv:2508.06787 [physics.atom- ph]. [50] I. Kozyryev, L. Baum, K. Matsuda, B. L. Augenbraun, L. Anderegg, A. P. Sedlack, and J. M. Doyle, 多原子分子的西西弗斯激光冷却, 物理评论快报 118, 173201 (2017). [51] B. L. Augenbraun, L. Anderegg, C. Hallas, Z. D. Las- ner, N. B. Vilas, and J. M. Doyle, 第二章——多原子分子的直接激光冷却，载于 *Advancesin Atomic, Molecular, and Optical Physics*,《原子、分子与光学物理进展》第72卷, 由 L. F. DiMauro 编

，超冷极性分子作为量子位 ， ，H. Perrin ，以及 S. F. Yelin（学术

出版社，2023年），第 89–182 页。[52] M. Zeppenfeld, B. G. U. Englert, R. Gl¨ockner, A. Prehn, M. Mielenz, C. Sommer, L. D. van Buuren, M. Motsch 和 G. Rempe，《电囚禁多原子分子的西西弗斯冷却》，《自然》491，570（2012）。[53] A. Prehn, M. Ibr¨ugger, R. Gl¨ockner, G. Rempe 和 M. Zeppenfeld，《将极性分子光电冷却至亚毫开尔文温度》，物理评论快报 116，063005（2016）。[54] Y. Liu, M. Vashishta, P. Djuricanin, S. Zhou, W. Zhong, T. Mittertreiner, D. Carty 和 T. Momose，《冷甲基自由基的磁囚禁》，物理评论快报 118，093201（2017）。[55] N. B. Vilas, C. Hallas, L. Anderegg, P. Robichaud, A. Winnicki, D. Mitra 和 J. M. Doyle，《多原子分子的磁光囚禁与亚多普勒冷却》，《自然》606，70（2022）。[56] C. Hallas, N. B. Vilas, L. Anderegg, P. Robichaud, A. Winnicki, C. Zhang, L. Cheng 和 J. M. Doyle，《在 ℓ型宇称双重态中的多原子分子光囚禁》，物理评论快报 130，153202（2023）。[57] Z. D. Lasner, A. Frenett, H. Sawaoka, L. Anderegg, B. Augenbraun, H. Lampson, M. Li, A. Lunstad, J. Mango, A. Nasir, T. Ono, T. Sakamoto 和 J. M. Doyle，《用于精密测量的重多原子分子磁光囚禁》，物理评论快报 134，083401（2025年）。[58] H. Sawaoka, A. Nasir, A. Lunstad, M. Li, J. Mango, Z. D. Lasner 和 J. M. Doyle，《用于暗物质与T破坏搜寻的SrOH分子光囚禁》，arXiv预印本（2025年），arXiv:2509.01618 [physics.atom-ph]。[59] N. B. Vilas, P. Robichaud, C. Hallas, G. K. Li, L. An- deregg 和 J. M. Doyle，《超冷多原子分子的光镊阵列》，《自然》628，282（2024）。[60] L. Anderegg, N. B. Vilas, C. Hallas, P. Robichaud, A. Jadbabaie, J. M. Doyle 和 N. R. Hutzler，《为eEDM搜寻量子调控囚禁的多原子分子》，《科学》382，665（2023）。[61] M. L¨ow, M. Ibr¨ugger, G. Rempe 和 M. Zeppenfeld，《冷多原子分子中对称性保护转动量子比特的相干性》，物理评论快报 134，113402（2025年）。[62] C. Hallas, G. K. Li, N. B. Vilas, P. Robichaud, L. An- deregg 和 J. M. Doyle，《高压缩蓝失谐多原子分子磁光阱》，arXiv预印本（2024），arXiv:2404.03636。[63] 更多详情请参阅补充材料。[64] N. B. Vilas, C. Hallas, L. Anderegg, P. Robichaud, C. Zhang, S. Dawley, L. Cheng 和 J. M. Doyle，《囚禁多原子分子的黑体热化与振动寿命》，物理评论A 107，062802（2023）。[65] Z. Zhang, T.-W. Hsu, T. Y. Tan, D. H. Slichter, A. M. Kaufman, M. Marinelli 和 C. A. Regal，《用于里德伯原子阵列、具有3000秒囚禁寿命的高光学通达低温系统》，PRX Quantum 6，020337（2025年）。[66] P. D. Gregory, J. A. Blackmore, J. Aldegunde, J. M. Hut- son 和 S. L. Cornish，《超冷极性 ^{87}Rb^{133}Cs 分子中的交流斯塔克效应》，物理评论A 96，021402（2017）。[67] C. Zhang, P. Yu, C. J. Conn, N. R. Hutzler 和 L. Cheng，《与光谱探测和激光冷却相关的RaOH相对论耦合簇计算》，Phys. Chem. Chem. Phys. 25，32613（2023）。[68] G. Arrowsmith-Kron, M. Athanasakis-Kaklamanakis, M. Au、J. Ballof、R. Berger、A. Borschevsky、A. A. Breier、F. Buchinger、D. Budker、L. Caldwell、C. Charles、N. Dattani、R. P. de Groote、D. DeMille、T. Dickel、J. Dobaczewski、C. E. D¨ullmann、E. Eliav、J. Engel、M. Fan、V. Flambaum、K. T. Flanagan、A. N. Gaiser、R. F. Garcia Ruiz、K. Gaul、T. F. Giesen、J. S. M. Ginges、A. Gottberg、G. Gwinner、R. Heinke、S. Hoekstra、J. D. Holt、N. R. Hutzler、A. Jayich、J. Karthein、K. G. Leach、K. W. Madison、S. Malbrunot-Ettenauer、T. Miyagi、I. D. Moore、S. Moroch、P. Navratil、W. Nazarewicz、G. Neyens、E. B. Norrgard、N. Nusgart、L. F. Pa˘steka、A. N Petrov、W. R. Plaß、R. A. Ready、M. Pascal Re- iter、M. Reponen、S. Rothe、M. S. Safronova、C. Schei- denerger、A. Shindler、J. T. Singh、L. V. Skripnikov、A. V. Titov、S.-M. Udrescu、S. G. Wilkins和X. Yang，《利用放射性分子开展基础物理研究的机遇》，Reports on Progress in Physics 87, 084301 2024( )。[69] I. Kozyryev、L. Baum、K. Matsuda和J. M. Doyle，《复杂多原子分子的激光冷却方案》，ChemPhysChem 17, 3641 (2016)。[70] B. L. Augenbraun、J. M. Doyle、T. Zelevinsky和I. Kozyryev，《分子不对称性与光学循环：不对称陀螺分子的激光冷却》，Phys. Rev. X 10, 031022 (2020)。[71] S. Burchesky, *Engineered Collisions, Molecular Qubits, and Laser Cooling of Asymmetric Top Molecules*，博士论文，哈佛大学 (2023)。[72] A. Frenett、Z. Lasner、L. Cheng和J. M. Doyle，《非线性含锶分子激光冷却的振动分支比》，Physical Review A 110, 022811 2024( )。[73] N. B. Vilas、P. Robichaud、C. Hallas、J. Tao、L. An- deregg、G. K. Li、H. Lampson、L. D. Augustovi˘cov´a、J. L. Bohn和J. M. Doyle，《超冷多原子分子的量子态控制碰撞》，arXiv预印本 (2025)，arXiv:2505.09592。[74] E. Hirota, *High-Resolution Spectroscopy of Transient Molecules* 1985 (Springer Berlin Heidelberg,)。[75] J. A. Coxon、M. Li和P. I. Presunka，《CaOH的 $\tilde{A}^2\Pi$-$\tilde{X}^2\Sigma^+$ 体系中(010)$^2\Sigma^{(+)}$, $^2\Sigma^{(-)}$-(000) $^2\Sigma^+$ 平行带的激光光谱》，J. Mol. Spectrosc. 164, 118 (1994)。[76] M. Li, *High-resolution laser spectroscopy of the $\tilde{A}^2\Pi$, $\tilde{X}^2\Sigma^+$ system of calcium hydroxyl and calcium hydroxyl-d radicals* 1995 ，博士论文，达尔豪斯大学 ( )。[77] S. Kuhr、W. Alt、D. Schrader、I. Dotsenko、Y. Miroshny- chenko、A. Rauschenbeutel和D. Meschede，《驻波偶极阱中的退相干机制分析》，物理评论A 72, 023406 (2005)。[78] C. Tuchendler、A. M. Lance、A. Browaeys、Y. R. P. Sor- tais和P. Grangier，《光镊中单原子的能量分布与冷却》，物理评论A 78, 033425 2008( )。

I. 实验细节

实验装置已在先前的出版物中介绍 [55]。在本工作中，我们首先利用单频灰色糖浆冷却，将蓝失谐磁光阱中的CaOH分子装载到光学偶极阱（ODT）中 [56, 62, 73]。ODT的阱深为 ∼640 μK。装载ODT后，我们用单频光对分子成像10 ms，以测量装载的分子数 [56]。随后使用一束经过优化、用于冷却而非成像的额外单频冷却光脉冲，将分子冷却至 ∼60 μK。冷却后的分子通过跃迁$\tilde{X}$光学泵浦至弯曲模 $\tilde{X}(000) \rightarrow \tilde{A}(010)\kappa^2\Sigma^{(-)}$ [60]，该弯曲模包含宇称双重态。随后，我们施加一系列调频微波和光脉冲，将粒子数布居制备到单一超精细态 $|J = 1/2,\ F = 0,\ m = 0,\ p = -\rangle$，具体方法如先前工作所述 [60]。图 $N = 1$展示了测量S1中宇称双重态相干性的实验序列示意图。

A. 态制备

在单一超精细态中，分子通过射频脉冲被驱动至 $|1+\rangle$ 态。由于跃迁 $|N = 1,\ J = 1/2,\ F = 0,\ m = 0,\ p = -\rangle \rightarrow |N =$1, $J = 3/2,\ F = 2,\ m = 2,\ p = +\rangle$ 仅因囚禁光引起的混合才允许发生，因此该跃迁相对较弱，且取决于囚禁光的特性，例如偏振角。为使态制备在本研究使用的魔法偏振角范围内保持稳健，我们采用绝热快速扫描（ARP）驱动该跃迁。通过将磁场从 0.9 G 扫至 3 G，并施加持续 10 ms 的射频脉冲，我们将 >95% 的粒子布居转移至 $|1+\rangle$态。剩余的 $|N = 1,\ J = 1/2,\ F = 0,\ p = -\rangle$态粒子布居则通过共振光和再泵浦光组成的“推出”脉冲耗尽。这里再次指出，振动态再泵浦激光均不会作用于正宇称基态。ARP 将粒子转移至 $|1+\rangle$后，我们通过将囚禁势阱调至所需阱深，同时将磁场调至 ∼ 30 G，为拉姆齐序列做好准备。在本研究考察的最低阱深 ∼40μK 下，阱深降低导致 ∼50% 的分子从囚禁势阱中流失。

对于 $N = 2$ 宇称双重态相干时间的测量，我们遵循上述相同的步骤。在囚禁势阱和磁场完成斜坡变化后，我们施加一个 MWπ脉冲，驱动 $|N = 1, J = 3/2^+, F = 2, m = 2\rangle \rightarrow |N = 2, J = 5/2^-, F = 3, m = 3\rangle$，制备 $|2-\rangle$态。

B. 真空抵消

在拉姆齐序列之前，我们施加一段可变时长的保持时间，称之为“真空抵消”。设置这段保持时间旨在减轻黑体辐射和辐射衰变的不同影响，因为这些影响对较长拉姆齐保持时间的作用尤为显著。在先前的工作中，我们测量了 [56] 并表征了 [64]辐射衰变、黑体热化和真空损失对我们系统中 CaOH 弯曲模寿命的影响。该态的有效寿命为 $0.36^{+0.11}_{-0.07}$ 秒，其中最主要的贡献来自黑体辐射（$0.90^{+0.4}_{-0.16}$ 秒）和该态的辐射衰变（$0.72^{+0.25}_{-0.13}$ 秒）[56, 64]。因此，在约 100 ms 的保持时间内，我们观察到弯曲模中的分子显著损失。

若不对此效应进行修正，测得的 Ramsey 对比度衰减将同时反映宇称双重态的退相干以及分子布居的损失。这些贡献的时间尺度同为 ∼100 ms 量级。为修正我们系统中的损失，我们在拉姆齐测量之前实施一段可变的真空抵消保持，使弯曲模中的总保持时长固定，且与自由进动时间无关（见图 S1）。

C. 读出

在拉姆齐序列之后，我们将磁场回升至 3 G，并将阱深升至 $U \sim 640$ μK。随后施加推出脉冲，以耗尽 $|1-\rangle$中的分子布居。为探测仍留在 $|1+\rangle$ 中的布居，我们以反向射频绝热快速通过扫描将分子转移回 $|N = 1,\ J = 1/2^-,\ F = 0\rangle$。随后用 40 ms 的 Λ-冷却光 [56] 对分子进行成像。

对于 $N = 2$ 宇称双重态，我们最终检测 $|2+\rangle$中剩余的布居。尽管我们的光子循环方案既不涉及 $|2+\rangle$也不涉及 $|2-\rangle$，这些态中的布居仍可能衰变或受黑体辐射驱动而转移到可探测态。因此，我们先通过施加 MW π 脉冲将 $|2-\rangle$ 态的布居驱动至 $N = 1$，并反向执行 RF ARP，以耗尽该态中的布居，然后施加推出脉冲。随后，我们用 MW π 脉冲将 $|2+\rangle$布居驱动至 $|N = 1,\ J = 3/2^-\rangle$，然后进行成像。

II. 电场抵消

在低电场下，宇称双重态开始混合，从而产生二次斯塔克位移。为了在 CaOH 中实现长相干时间，必须通过构建近零电场环境来抑制斯塔克灵敏度。在我们的系统中，杂散电场可能源于真空腔内绝缘表面上的表面电荷，包括非球面透镜

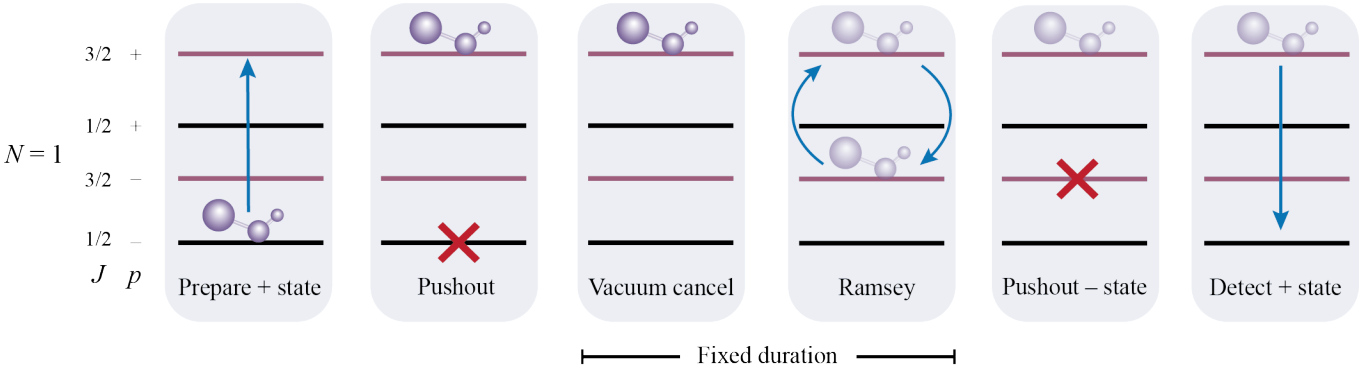

图 S1. 本研究用于测定 $N = 1$ 宇称双重态相干时间的实验序列，按从左到右的顺序排列。推出脉冲使用共振主线光，使负宇称基态中的所有分子耗尽。

和氮化铝磁光阱线圈板。通过向真空内的磁光阱线圈和四根真空内电极杆施加补偿电压，我们可以抵消这些电荷在各个方向产生的静电场。为了确定抵消电场环境所需的施加电压，我们利用宇称双重态的斯塔克灵敏度。斯塔克位移表现为宇称双重态之间跃迁频率的增加。因此，抵消环境电场就相当于将宇称双重态跃迁频率降至最低。

我们通过对囚禁分子进行高分辨率赫兹级光谱测量来抵消杂散电场，使用一个长时、低能量的 π 脉冲作用于 $N = 1$宇称双重态跃迁。在共振频率处可获得最大对比度，如图 S2a 所示。原则上，可以通过改变施加的电压，迭代测量光谱曲线。为提高效率，我们改为以低于测得共振频率的频率驱动 π 脉冲，并扫描补偿电压。这样，最小电场环境对应于最大对比度，如图 S2b 所示。我们迭代执行这一过程，发现由磁光阱线圈和两组互相正交的杆状电极确定的系统三个轴之间的耦合很小。为使整体电场环境最小化，每对杆状电极上的补偿电压大小相等、方向相反。

我们发现，系统的静电场环境在数小时至一天的时间尺度内基本稳定。虽然补偿场每天可能变化高达 ∼20 mV/cm，但我们能够始终将电场抵消到相同的共振跃迁频率，误差在 1 Hz 以内。真空腔内的电荷解吸可由 275 nm 和 365 nm、功率为 >100 mW 的紫外发光二极管诱发，有助于维持电场环境的稳定性。我们发现，增加紫外功率只会进一步提高系统的稳定性。图 3 中 $N = 1$宇称双重态的斜率拟合值为 46.81 Hz/V/cm。该值表明，我们系统中的电场环境波动为 ∼4 mV/cm。根据这一信息，我们推断分子处的电场为 <20 mV/cm。

III. 转动斯塔克灵敏度

本研究考察的完全伸展宇称双重态对电场的响应可简化为一个由电场 $\mathcal{E}$ 耦合、能级分裂为 Δ 的二能级系统。该系统的本征值为

$$E_{\pm} = \pm\frac{\hbar\Delta}{2}\sqrt{1 + 4\left(\frac{\mu\mathcal{E}}{\hbar\Delta}\right)^2},$$

其中，μ是宇称双重态之间的跃迁偶极矩。在低电场下（$\mu\mathcal{E} \ll \hbar\Delta$），这些能量可表示为 $E_{\pm} \approx \pm\hbar\Delta/2 \pm (\mu\mathcal{E})^2/\hbar\Delta$。图 3 中的斜率拟合与能量对电场的导数有关，该导数即为 $2|\mu|^2/\hbar\Delta$。直观而言，电场灵敏度取决于态间相互作用的强度及其能级分裂。

μ和 Δ 都取决于分子的转动态。在线性多原子分子的弯曲模完全伸展态中，[74],

$$\mu = \mu_{\rm el}\frac{|\ell|}{N+1}.$$

因此，$|\pm1\rangle$ 双重态的偶极矩为 $\mu_{\rm el}/2$ ，$|\pm2\rangle$对的偶极矩为 $\mu_{\rm el}/3$ 。CaOH中宇称双重态的能级分裂取决于 ℓ双重分裂参数 q 和转动量子数，并由 $qN(N+1)$ [75, 76] 给出。

采用这种方法，我们预测 N =1 中完全拉伸宇称双重态对 $N = 2$ 的电场灵敏度之比为 27/4 = 6.75，这与实验测得的 7(1) 一致，如图3所示。

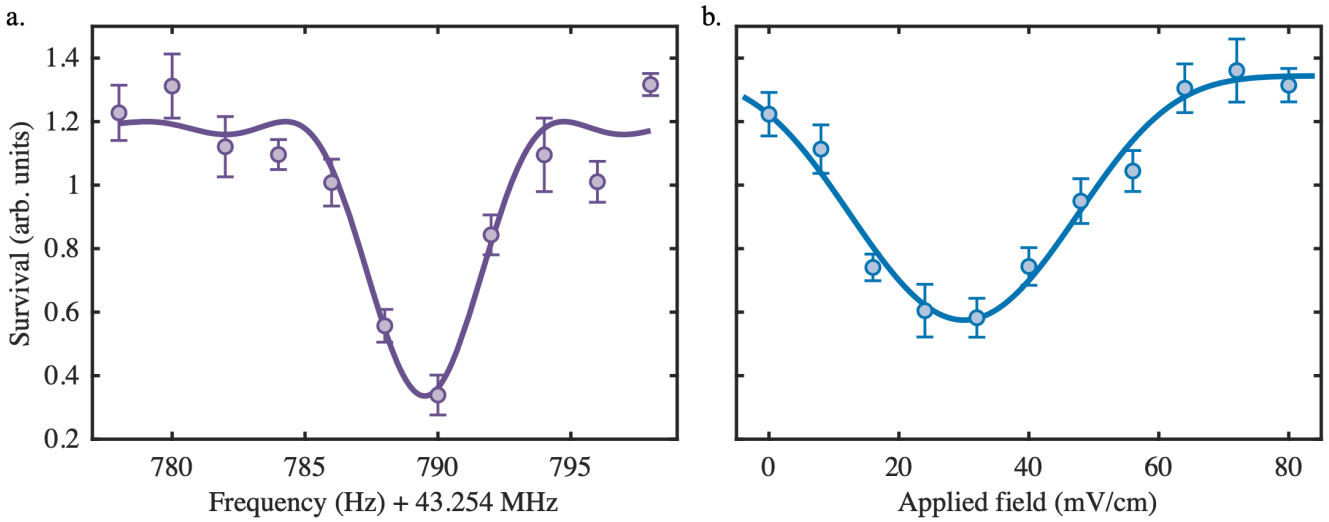

图 S2。a. 采用低能量驱动（$\Omega = 5.5$ Hz）对宇称双重态跃迁 $|1+\rangle \rightarrow |1-\rangle$ 进行的拉比光谱。该跃迁对电场环境中的涨落和偏移敏感。利用此处所示的赫兹量级拉比光谱，通过最小化跃迁频率，我们能够抵消腔内的静态环境场。b. 沿我们系统中 y轴对电场环境的最小化。射频跃迁频率被选为比由拉比光谱得到的共振频率低 2 Hz。这样，出现在最低跃迁频率处的电场最小值对应于图中的最低值。此处我们发现，30 mV/cm 的补偿场最能抵消沿 y方向的场。

IV. 阱频移灵敏度

此处我们推导退相干随阱强度的标度关系，并将其拟合到正文图4中的数据。根据包含光偶极阱光导致的交流斯塔克频移的分子哈密顿量解，我们发现宇称双重态之间存在微小的差分光频移，且该频移随阱强度呈二次变化。这种依赖关系与在 CaF 中观测到的差分光阱频移相似，其中线性极化率和超极化率的影响相互竞争 [31]。我们将差分光频移记为 Δf。

由于温度有限，囚禁分子会经历一系列不同的光偶极阱光强。在测量前的光阱渐变过程中，绝热冷却会导致温度变化，因此 Δf 的分布宽度取决于最终阱深（所有数据的初始阱深均固定）。由于二次差分频移和温度变化的共同作用，魔角条件也取决于最终阱深。为刻画这些效应对阱深的依赖关系，我们将退相干率估算为...
...的标准差

Δf, i.e., $1/T_2^* \propto \sigma(\Delta f)$. We parameterize Δf as

$$\Delta f(I) = a\left(2I_{\text{magic}}I - I^2\right),$$

其中， a是与分子极化率成正比的常数， I 是囚禁光的强度，I_{magic} 定义为差分频移斜率为零处的强度，即 $(d/dI)\Delta f(I_{\text{magic}}) = 0$。 I_{magic} 是 I_0的函数； I_0是囚禁光的最大强度，它与阱深的关系为

$$U_0 = -\frac{\alpha}{2\epsilon_0 c} I_0,$$

其中 α 为极化率， ϵ_0 为电常数， c 为光速。我们可以将分子所采样的 Δf 宽度表示为

$$\sigma(\Delta f) = \sqrt{\mathbb{E}[\Delta f^2] - \mathbb{E}[\Delta f]^2},$$

其中 $\mathbb{E}[\cdot]$ 是期望值算符。为计算$\sigma(\Delta f)$，我们利用能量的概率密度函数 p 由玻尔兹曼分布 [77, 78]给出这一事实。用阱强度表示时，该函数为

$$p(I) = \frac{2\eta^3}{\beta I_0}\left(1 - \frac{I}{I_0}\right)^2 \exp\left(-2\eta\left(1 - \frac{I}{I_0}\right)\right)$$

对于 $I > 0$，其中 $\beta = \alpha/2\epsilon_0 c$ 和 $\eta = U_0/k_B T$。使用自由参数 a对数据进行模型拟合。