

超冷铯分子纯长程态转动常数的精密测量*

马杰 陈鹏 刘文良 冯国胜 李玉清 武寄洲[†] 肖连团 贾锁堂

(量子光学与光量子器件国家重点实验室, 山西大学激光光谱研究所, 太原 030006)

(2013年6月16日收到; 2013年8月21日收到修改稿)

利用调制的俘获损耗光谱技术实验测量了超冷铯分子纯长程 0_g^- 态的高分辨光谱. 采用双光缔合光谱技术构建了精确的频率差参考信号, 对转动能级的共振频率间隔进行了精确的标定, 获得了转动能级频率间隔与转动量子数的关系. 通过将实验数据拟合到非刚性转动模型, 获得了超冷铯分子纯长程 0_g^- 态不同振动态的转动常数. 实验结果表明转动常数随振动量子数的增加而线性减小, 线性递减率为 $-0.41 \text{ MHz} \pm 0.01 \text{ MHz}$.

关键词: 双光缔合光谱技术, 超冷铯分子, 转动常数, 纯长程态

PACS: 33.20.-t, 33.15.Pw, 37.10.Mn, 34.80.Gs

DOI: 10.7498/aps.62.223301

1 引言

超冷分子的理论 and 实验研究在过去的十年间受到了极大关注, 从高效率制备到精密操控等一系列问题已经取得了令人瞩目的研究成果 [1]. 由于超冷分子在很多原子分子光物理前沿研究领域, 如量子计算、少体物理和超冷化学等方面表现出了巨大的应用潜力, 因此激发了越来越多的研究热情 [2-5]. 目前实验上产生超冷分子的研究方案主要有两种, 即费氏巴赫共振技术 [6] 和光缔合技术. 这两种方案是获得温度低于 1 毫开尔文 (mK) 超冷分子的主要手段. 相比费氏巴赫共振技术, 光缔合技术具有起始原子样品温度要求低、形成分子数目多、实验操作简便等优势, 在碱金属元素和碱土金属元素的超冷分子制备中被广泛采用 [7-8]. 同时, 光缔合技术产生的超冷激发态双原子分子通常具有很大的核间距, 为研究激发态长程分子的性质提供了可能, 填补了传统分子光谱研究在该领域的空白. 其中在长程分子中有一类特殊的分子, 其势能曲线几乎全部位于长程区域, 被称为纯长程分子 [9]. 由于核外电子云几乎完全没有叠加, 短程相互作用可以被忽略, 因此对纯长程分子的研究有助于了解

分子长程核间相互作用, 以及理解从束缚态到自由态的过渡过程.

在光缔合制备超冷铯分子的实验中, 由于电子激发态 $0_g^- (6S_{1/2} + 6P_{3/2})$ 态具有特殊的双阱结构 (其外阱为纯长程态), 在制备基态超冷铯分子过程中可以作为关键的过渡中间态, 因而受到了普遍关注. 部分光缔合形成的纯长程 0_g^- 态铯分子可以通过外阱隧穿到内阱成为短程铯分子, 进而通过自发辐射或受激辐射跃迁形成稳定的超冷基态铯分子. 此外, 铯分子纯长程 0_g^- 态在很多精密测量和应用中也扮演着重要的角色, 例如: 测量超冷铯分子光致频移率和将半导体激光器输出频率锁定到原子分子共振线 [10]. 超冷铯分子纯长程 0_g^- 态的振动光谱在 1999 年被法国国家科学中心的 Pilet 教授小组 [11] 通过离子光谱技术首次实验获得. 2004 年美国康州州立大学 Pichler 等 [12] 使用俘获损耗荧光光谱技术也获得了纯长程 0_g^- 态的振动光谱. 最近, 纯长程 0_g^- 态最低振动能级 ($v=0$) 在实验上被观察到, 与理论预言相符合 [13], 从获得的光缔合光谱可以清晰地辨识出纯长程 0_g^- 态的振转结构. 由于超冷铯分子纯长程 0_g^- 态高分辨振动光谱中蕴含着丰富的低转动光谱数据, 为获得精确的纯长程分子转

* 国家重点基础研究发展计划 (批准号: 2012CB921603)、国家自然科学基金 (批准号: 61008012, 10934004)、国家高技术研究发展计划 (批准号: 2011AA010801)、国家自然科学基金国际 (地区) 合作与交流项目 (批准号: 2011DFA12490)、教育部新教师基金 (批准号: 20101401120004) 和山西省青年科技研究基金 (批准号: 2013021005-1) 资助的课题.

[†] 通讯作者. E-mail: wujz@sxu.edu.cn

动常数提供了可能^[14]. 转动常数作为重要的分子参数, 对于推测未观测到的分子能级和拟合分子势能曲线具有重要价值.

通过前期实验研究发现, 超冷铯分子纯长程 0_g^- 态的转动常数较小, 特别是高振动能级的转动常数在 ~ 10 MHz 量级. 同一振动能级中相邻转动能级间隔通常为 30—200 MHz, 使用超高分辨率的波长计 (精度 60 MHz) 难以直接测量. 法布里-珀罗干涉腔技术通常是精确测量光频率变化的主要手段之一. 但是, 在光缔合形成超冷分子的实验中, 为了获得高分辨的分子光谱, 光缔合激光频率的扫描率必须很慢 (~ 5 MHz/s), 因此低频噪声较大, 以致于大大降低了法布里-珀罗干涉腔技术的频率分辨精度. 此外高品质的法布里-珀罗干涉腔还存在不

易操作和价格昂贵等缺点. 本文采用一种简便有效的频率测量技术, 精密测量了转动能级间的频率间隔^[15], 通过非刚性转子理论模型拟合实验数据, 获得了超冷铯分子纯长程 0_g^- 态部分振动能级的转动常数, 研究了转动常数随振动量子数变化的依赖关系.

2 实验装置

实验装置如图 1 所示. 超冷铯原子样品通过一个标准的蒸汽装载的磁光阱系统 (MOT) 获得, 其温度利用飞行时间方法测得约为 $200 \mu\text{K}$, 其数目利用吸收光谱方法测得约为 5×10^7 , 其直径约为 $800 \mu\text{m}$. 有关超冷原子样品制备的详细描述可参考文献 [8].

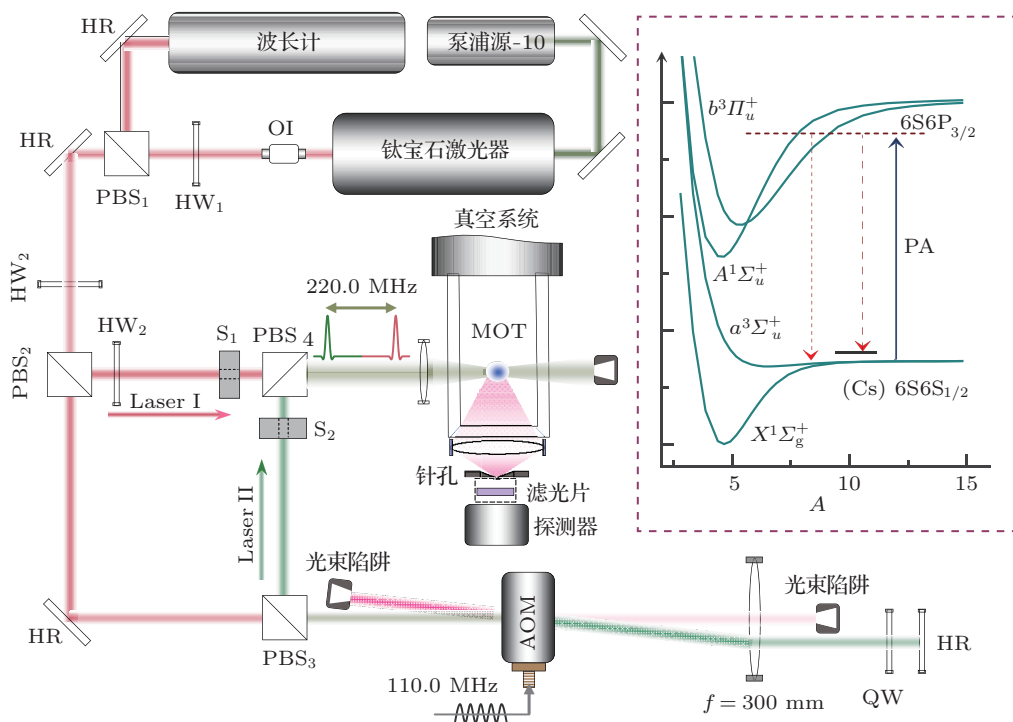


图 1 实验装置 OI, 光隔离器; HR, 宽带高反射镜; PBS, 偏振分束棱镜; HW, 二分之一波片; QW, 四分之一波片; AOM, 声光调制器; MOT, 磁光阱系统; S, 激光快门

超冷原子光缔合的概念最早于 1987 年由 Thorshiem 等^[16] 提出. 当一对碰撞的超冷原子对和光场相互作用时, 如果光缔合激光频率恰好等于原子-分子跃迁能级的共振频率, 那么这对超冷原子就会共振吸收一个光子光缔合为一个束缚激发态的超冷激发态分子, 如图 1 中虚线框内能级示意图所示. 激发态分子由于寿命较短 (10 ns 量级), 通过自发辐射发出一个光子后向下跃迁, 大部分重新成为两个自由的原子, 小部分成为稳定的超冷基态分子.

在我们的实验中, 光缔合激光由连续可调谐钛宝石激光器系统 (Ti: Sapphire Laser, MBR110) 提供, 输出激光的典型线宽小于 100 kHz, 最大输出功率约为 1.0 W, 抽运源由一台大功率固体激光器 (Verdi-10) 提供, 抽运功率可在 10.5 W 以下任意选择. 光缔合激光的绝对频率通过一台超高精度波长计 (High Finesse-Angstrom, WS/7S) 进行监视和记录, 测量频率精度可达到 60 MHz. 波长计在使用前通过高稳定氦氖激光器的输出光进行校准, 以保证

其准确度.

在光缔合过程中, 当光缔合激光频率与原子-分子跃迁频率共振时, 形成超冷分子, 同时超冷原子数目减少. 因此我们可以通过测量超冷原子团发出的荧光的变化以获得超冷分子光谱, 此即俘获损耗光谱技术. 超冷原子样品的荧光被一个聚焦透镜 ($f = 50$ mm) 收集后经过针孔 (直径 500 μm) 进行空间滤波, 再经过窄带带通滤波片 (中心波长 850 nm, 带宽 10 nm) 滤掉杂散光, 最后被带制冷器的雪崩光电二极管 (Licel APD module) 探测. 直接的荧光光谱通常表现出信噪比差、探测灵敏度低等缺点. 为了获得高灵敏、高分辨的超冷铯分子俘获损耗光谱, 我们在实验中采用了一种新型的荧光调制光谱技术^[17], 即: 首先通过调制冷却光频率实现对超冷原子荧光光强的快速调制, 然后利用锁相放大器对探测到的荧光信号进行解调, 解调后的荧光信号信噪比大幅提升 (~ 20 倍), 探测灵敏度也获得了显著的提高. 图 2 所示为超冷铯分子纯长程 0_g^- 态 4 个典型的不同的振动态的高分辨转动光谱, 由下至上四条曲线表示振动量子数为 3, 17, 55 和 74 的振转光谱, 对应于铯分子离解限 ($6S_{1/2} + 6P_{3/2}$) 的失谐分别为 -72 , -51 , -16 和 -8 cm^{-1} .

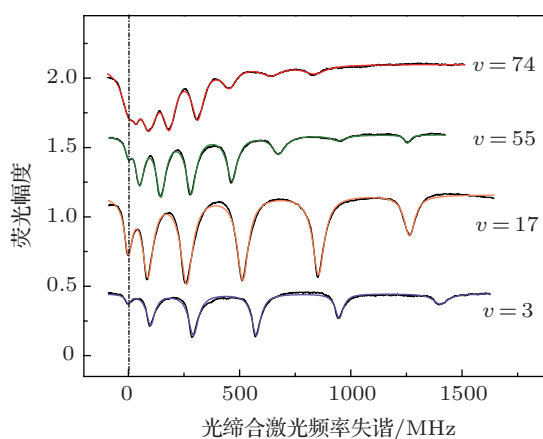


图 2 超冷铯分子纯长程 0_g^- 态部分振动态转动光谱

这些高分辨转动光谱具有丰富的转动能级信息, 转动级数为 $J = 0-7$ 的八条共振峰可以被清楚地观察到. 这些级数较大的转动能级是由除 c 波之外的其他高次分波共同作用导致, 如 p 波和 d 波等. 转动光谱的强度出现了相似变化趋势, 即从 $J = 0$ 开始逐渐变大, 到 $J = 2$ 出现极值后逐渐变小, 这是由于对应于从初始的原子基态到长程分子激发态的振转能级末态的弗兰克-康登跃迁因子的不同而导致的^[11].

为了获得超冷铯分子纯长程 0_g^- 态的转动常数, 我们通过双光缔合光谱构造了一个精确的频率间隔参考作为标准去测量其他的相邻转动能级频率间隔. 如图 1 所示, 光缔合激光在通过二分之一波片 (HW_2) 和偏振分束棱镜 (PBS_2) 后按照偏振方向被分为两束, 其中一束激光 (Laser I) 通过一个二分之一波片 (HW_3) 改变偏振方向 90° 后到达偏振分束棱镜 (PBS_4), 其频率表示为 ν . 另一束激光 (Laser II) 则采用双通 (double pass) 声光调制器 (AOM, 中心偏频 110.0 MHz) 的方案, 其频率由 ν 改变为 $\nu - 220.0$ MHz, 最后由偏振分束棱镜 (PBS_3) 出射. 两束激光通过偏振分束棱镜 (PBS_4) 后出射方向严格重合, 频率相差 220.0 MHz. 将两束激光同时经过一个聚焦透镜 ($f = 200$ mm) 后聚焦进 MOT, 通过改变聚焦透镜的轴向位置使其刚好覆盖超冷原子样品. 扫描光缔合激光器输出频率, 监视并记录荧光解调信号, 即可获得由两束激光 (Laser I 和 Laser II) 分别与超冷铯原子作用的光缔合光谱. 对于同一振转能级, 两束激光分别获得的共振峰频率间隔严格等于其频率差 220.0 MHz, 即获得了精确的频率差参考信号.

3 实验结果与分析

在测量同一振动能级的转动光谱的过程中, 在保持光缔合激光频率线型扫描条件下, 只需要获得一个频率差参考信号即可将所有振动能级频率间隔精确地标定出. 首先通过打开激光快门 (S_1) 同时保持激光快门 (S_2) 关闭, 使单束激光 (Laser I) 与超冷原子样品进行光缔合作用获得超冷分子高分辨转动光谱. 然后当获得转动能级 ($J = 7$) 的完整谱线后, 关闭激光快门 (S_1) 并打开激光快门 (S_2), 使另一束激光 (Laser II) 与超冷原子样品单独作用获得相同转动能级 ($J' = 7$) 的完整谱线. 最后通过标记两共振峰 ($J = 7$) 和 ($J' = 7$) 的间隔为 220.0 MHz, 将所有被激光 (Laser I) 单独作用获得的光缔合光谱中转动能级频率间隔精确标定. 图 3 所示为振动量子数为 3, 17, 55 和 74 的具有频率差参考信号的转动光谱, 其中彩色的实线为洛伦兹多峰拟合的结果. 相比超冷原子在 MOT 系统中的装载时间 (~ 5 s), 操纵两个激光快门的时间 (< 100 ms) 足够短, 因此对整个光谱记录过程中的衔接几乎没有影响, 只在两共振峰 ($J = 7$) 和 ($J' = 7$) 之间, S_1 关闭和 S_2 开启的瞬间, 原子的荧光光谱出现很细微的尖

峰. 光缔合光谱共振频率位置随光缔合激光强度的变化出现线性红移的现象, 称为光缔合中激光诱导能级频率偏移 (laser-induced frequency shift)^[18]. 因此, 为了避免两束激光功率不一致导致频移量不同, 进而导致频率差变化, 两束激光的光强需要保持严格一致, 在本文的实验中为 40 W/cm^2 .

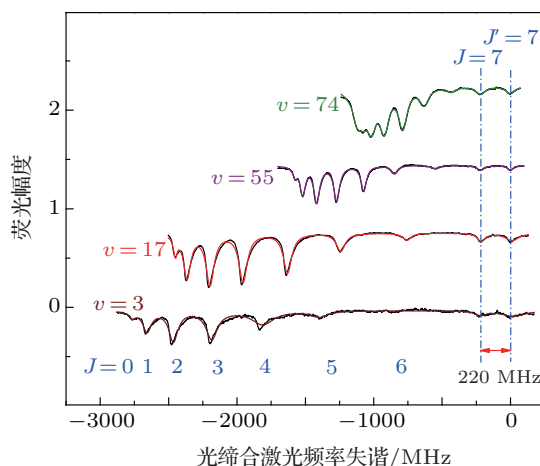


图3 超冷铯分子纯长程 0_g^- 态具有频率差参考信号转动光谱

通过精确的频率差参考信号 (220.0 MHz), 即可标定所有转动能级频率间隔. 如图4所示, 圆点代表我们获得实验数据值.

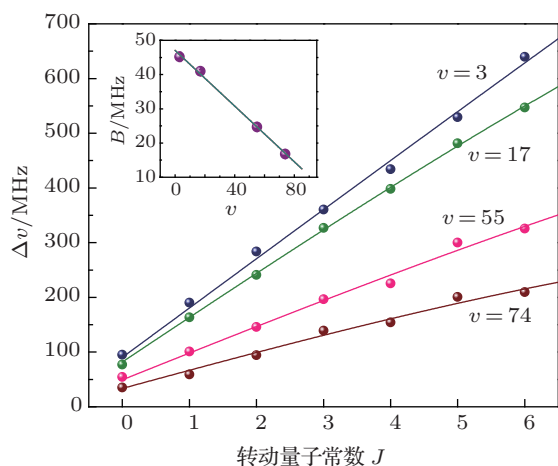


图4 非刚性转动模型拟合转动常数

通过光缔合形成的超冷铯分子纯长程 0_g^- 态分子由两个铯原子组成, 它们之间的长程相互作用相比于通常的短程相互作用 (如化学键) 是很弱的. 因此, 在研究长程激发态分子的转动运动时, 简单的刚性转动理论模型已经不再适用, 需要考虑非刚性转动模型^[19]:

$$E/hc = BJ(J+1) - DJ^2(J+1)^2, \quad (1)$$

其中, E 是转动本征值, h 是普朗克常量, c 代表光速, B 是转动常数 (单位 MHz), D 是离心畸变常数 (单位 MHz), J 是转动量子数. 通常, 离心畸变常数比转动常数要小几个数量级, 但是在弱相互作用情况下考虑它会使得计算结果更加接近真实值. 对于相同的振动能级, 相邻的转动能级的频率间隔为

$$\begin{aligned} \Delta\nu &= [E(J+1) - E(J)]/hc \\ &= 2B(J+1) - 4D(J+1)^3, \end{aligned} \quad (2)$$

通过将实验获得转动能级数据采用 (2) 式拟合, 可以获得铯分子长程 0_g^- 态的转动常数 B 和离心畸变常数 D 的值. 图4中4条彩色实线即为对应不同振动能级的转动常数拟合曲线. 表1中给出了获得的不同振动能级的转动常数 B 和离心畸变常数 D . 结果的误差值主要来自拟合过程中的系统误差和决定共振峰值位置时的误差.

表1 超冷铯分子纯长程 0_g^- 态转动常数和离心畸变常数

振动能级	转动常数 B/MHz		离心畸变常数 $D/10^{-3} \text{ MHz}$	
	拟合值	误差	拟合值	误差
$v=3$	45.15	± 1.34	2.6	± 18.4
$v=17$	40.97	± 0.44	17.4	± 6.1
$v=55$	24.64	± 1.06	11.2	± 14.6
$v=74$	16.79	± 0.93	14.4	± 12.7

为了便于观察转动常数与振动量子数之间的依赖关系, 图4左上方插图中给出了转动常数随振动量子数的变化. 我们发现: 转动常数随振动量子数的增大而减小, 且为线性衰减, 线性系数为 $-0.41 \text{ MHz} \pm 0.01 \text{ MHz}$. 分子的转动常数 B 可以表示为 $B = h/8\pi I c$, 其中 I 表示分子的转动惯量. 对于双原子分子, I 可以表示为 $I = r\mu^2$, 其中 μ 是分子的约化质量, r 是分子中两原子的间距. 由于 h, c 和 μ 是常数, 因此, 转动常数 B 依赖于分子中原子核间距 r . 对于超冷纯长程分子, 振动量子数越大, 核间距越大, 而转动常数就越小.

4 结论

本文利用调制光缔合光谱技术, 观测了超冷铯分子纯长程 0_g^- 态的高灵敏、高分辨振转光谱. 针对在决定转动常数时利用波长计无法直接获得相邻转动能级频率差的问题, 发展了一种基于双光缔合光谱构造的精确频率差参考信号技术, 获得了相邻转动能级频率差值 ($30\text{--}200 \text{ MHz}$). 利用非刚性转动模型对实验数据进行了拟合, 获得

了四个振动能级 ($v = 3, 17, 55, 74$) 对应的转动常数分别为 (45.15 ± 1.34) MHz, (40.97 ± 0.44) MHz, (24.64 ± 1.06) MHz, (16.79 ± 0.93) MHz. 实验结果表明转动常数随振量子数的增加而减小, 呈现线性减小的特征, 拟合获得线性系数为 (-0.41 ± 0.01) MHz. 研究结果对于推测超冷铯分子纯长程 0_g^- 态

未观测到的分子能级和拟合分子势能曲线具有重要意义.

感谢低维量子物理国家重点实验室、清华大学物理系戴星灿教授的有益讨论.

- [1] Carr L D, DeMille D, Krems R V, Ye J 2009 *New J. Phys.* **11** 055049
- [2] DeMille D 2002 *Phys. Rev. Lett.* **88** 067901
- [3] Blume D 2012 *Rep. Prog. Phys.* **75** 046401
- [4] Yuan J P, Ji Z H, Yang Y, Zhang H S, Zhao Y T, Ma J, Wang L R, Xiao L T, Jia S T 2012 *Acta Phys. Sin.* **61** 183301 (in Chinese) [元晋鹏, 姬中华, 杨艳, 张洪山, 赵延霆, 马杰, 汪丽蓉, 肖连团, 贾锁堂 2012 物理学报 **61** 183301]
- [5] Wang L R, Ma J, Zhang L J, Xiao L T, Jia S T 2007 *Acta Phys. Sin.* **56** 6373 (in Chinese) [汪丽蓉, 马杰, 张临杰, 肖连团, 贾锁堂 2007 物理学报 **56** 6373]
- [6] Xie T, Wang G R, Zhang W, Huang Y, Cong S L 2012 *Phys. Rev. A* **86** 032713
- [7] Zhang W, Huang Y, Xie T, Wang G R, Cong S L 2010 *Phys. Rev. A* **82** 063411
- [8] Zhang Y C, Wu J Z, Ma J, Zhao Y T, Wang L R, Xiao L T, Jia S T 2010 *Acta Phys. Sin.* **59** 5418 (in Chinese) [张一驰, 武寄洲, 马杰, 赵延霆, 汪丽蓉, 肖连团, 贾锁堂 2010 物理学报 **59** 5418]
- [9] Stwalley W C, Uang Y, Pichler G 1978 *Phys. Rev. Lett.* **41** 1164
- [10] Ma J, Wang L R, Zhao Y T, Xiao L T, Jia S T 2007 *Appl. Phys. Lett.* **91** 161101
- [11] Fioretti A, Comparat D, Drag C, Amiot C, Dulieu O, Masnou-Seeuws F, Pillet P 1999 *Eur. Phys. J. D* **5** 389
- [12] Pichler M, Chen H M, Stwalley W C 2004 *J. Chem. Phys.* **121** 6779
- [13] Zhang Y C, Ma J, Wu J Z, Wang L R, Xiao L T, Jia S T 2013 *Phys. Rev. A* **87** 030503(R)
- [14] Ma J, Wu J Z, Zhao Y T, Xiao L T, Jia S T 2010 *Opt. Express* **18** 17089
- [15] Wu J Z, Ma J, Ji Z H, Zhang Y C, Li Y Q, Wang L R, Zhao Y T, Xiao L T, Jia S T 2012 *Chin. Phys. B* **21** 093701
- [16] Thorsheim H R, Weiner J, Julienne P S 1987 *Phys. Rev. Lett.* **58** 2420
- [17] Wu J Z, Ma J, Zhang Y C, Li Y Q, Wang L R, Zhao Y T, Chen G, Xiao L T, Jia S T 2011 *Phys. Chem. Chem. Phys.* **13** 18921
- [18] Zhang Y C, Ma J, Li Y Q, Wu J Z, Zhang L J, Chen G, Wang L R, Zhao Y T, Xiao L T, Jia S T 2012 *Appl. Phys. Lett.* **101** 131114
- [19] Bransden B H, Joachain C J 1983 *Physics of Atoms and Molecules* (Essex: Longman Publishing Group)

Precise measurements of rotational constants of the pure long range state of ultracold cesium molecules*

Ma Jie Cheng Peng Liu Wen-Liang Feng Guo-Sheng Li Yu-Qing
Wu Ji-Zhou[†] Xiao Lian-Tuan Jia Suo-Tang

(State Key Laboratory of Quantum Optics and Quantum Optics Devices, Institute of Laser Spectroscopy, Shanxi University, Taiyuan 030006, China)

(Received 16 June 2013; revised manuscript received 21 August 2013)

Abstract

The high resolution spectrum of ultracold Cs₂ pure long range 0_g⁻ state is experimentally measured using modulated trap loss spectroscopic technology. Based on Double photoassociation spectroscopic technique, precise frequency difference reference signals are constructed to accurately calibrate the resonant frequency intervals of the ro-vibrational levels, thus obtaining the relationship between the frequency interval of rotational level and the rotational quantum number. The experimental data are fitted by the non-rigid rotational model, and the molecular rotational constants corresponding to different vibrational levels in the ultracold Cs₂ pure long range 0_g⁻ state are acquired. The experimental results demonstrate a linear decrease of the rotational constant with the increase of vibrational quantum number, and the linear decreasing rate is $-0.41 \text{ MHz} \pm 0.01 \text{ MHz}$.

Keywords: double photoassociation spectroscopy technology, ultracold cesium molecules, rotational constants, pure long range state

PACS: 33.20.-t, 33.15.Pw, 37.10.Mn, 34.80.Gs

DOI: 10.7498/aps.62.223301

* Project supported by the National Basic Research Program of China (Grant No. 2012CB921603), the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 61008012, 10934004), the National High Technology Research and Development Program of China (Grant No. 2011AA010801), the Funds for International Cooperation and Exchange of the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 2011DFA12490), the New Teacher Fund of the Ministry of Education of China (Grant No. 20101401120004), and the Natural Science Foundation for Young Scientists of Shanxi Province, China (Grant No. 2013021005-1).

[†] Corresponding author. E-mail: wujz@sxu.edu.cn