

光缔合制备超冷铯分子的温度测量*

赵延霆¹⁾ 元晋鹏¹⁾ 姬中华^{1)†} 李中豪¹⁾ 孟腾飞¹⁾ 刘涛²⁾
肖连团¹⁾ 贾锁堂¹⁾

1) (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)

2) (中国科学院国家授时中心, 中国科学院时间频率基准重点实验室, 西安 710600)

(2014年3月28日收到; 2014年6月5日收到修改稿)

利用光缔合超冷 Cs 原子形成超冷 Cs₂ 分子, 采用多光子电离方法对超冷 Cs₂ 分子进行探测, 对分子扩散过程中分子密度随时间的演化进行测量, 获得了超冷 Cs₂ 分子的弛豫曲线. 基于一个简单的模型即原子、分子样品的初始分布是位置和速度的高斯函数, 通过理论模拟获得了超冷原子、分子样品的温度, 测得的原子温度与释放-再俘获方法获得的结果相符合, 这种方法避免了通过探测微弱分子荧光来获得分子温度的弊端, 可广泛应用于超冷原子、分子样品的温度测量.

关键词: 光缔合, 超冷分子, 温度测量, 光电离

PACS: 37.10.Mn, 67.85.-d, 34.80.Gs

DOI: 10.7498/aps.63.193701

1 引言

近年来, 激光冷却与俘获中性原子技术在原子、分子和光物理领域得到了迅速发展. 磁光阱已成为制备冷原子样品的标准技术, 因而在冷原子物理^[1]、玻色-爱因斯坦凝聚^[2]、超冷分子^[3]等方面获得了广泛的应用. 基于超冷原子形成的超冷分子, 因其具有丰富的内在结构和复杂的相互作用, 因此在高分辨率光谱^[4]、超冷碰撞^[5]、超冷化学^[6]、量子模拟^[7]及量子计算^[8]等有着潜在的应用前景. 超冷分子的寿命及特性强烈地依赖于制备这些分子的方法以及对分子碰撞中能量转移的控制. 磁缔合方法^[9]制备的分子温度在微开量级, 光缔合(PA)方法^[10]制备的分子温度在百微开量级, 而通过 Stark 减速^[11]获得的分子温度在几十毫开量级. 在这些基于超冷原子和分子的应用中, 温度作为描述超冷物质特性的重要参数, 表征了原子分子相互作用过程中的平动动能, 低的温度意味着低的运动

速度和弱的相互作用. 对于精确确定散射长度和对增强原子-原子相互作用产生的高阶粒子波散射, 温度的测量有非常重要的意义, 研究人员已经观察到温度的改变引起的原子碰撞变化对超冷分子形成的影响^[12].

对于原子样品, 人们已发展了若干种方法进行温度测量, 比如释放-再俘获方法(R&R)^[13]、时间飞行法(TOF)^[14]、回弹诱导共振法^[15]、四波混频法^[16]、电磁诱导透明法^[17]. R&R 和 TOF 是两种公认而可靠的温度测量方法, 通过测量原子荧光成像或共振吸收来探测原子云的时间演化, 从而获得原子团的温度. 与原子相比, 分子具有丰富的振转自由度, 没有像原子那样的闭合跃迁循环, 而且基态与激发态间的波函数重叠(弗兰克-康登因子)很小, 导致激发态到基态的跃迁概率较小, 因而分子吸收和分子荧光相对较弱, 采用 R&R 或 TOF 方法不能有效地对温度进行直接测量. 虽然有研究小组对分子直接吸收成像进行了研究^[18], 但这种方法仅限于特定的分子跃迁能级. 人们也通过解离分

* 国家重点基础研究发展计划(批准号: 2012CB921603, 2010CB923103)、国家自然科学基金(批准号: 61275209, 10934004, 61378015, 11304189)、国家高技术研究发展计划(批准号: 2011AA010801)、国家国际科技合作专项(批准号: 2001DFA12490)、国家基金创新团队(批准号: 61121064)和教育部长江学者和创新团队(批准号: IRT13076)资助的课题.

† 通讯作者. E-mail: jzh@sxu.edu.cn

子形成原子从而对获得的原子进行吸收成像来间接获得分子的温度,但技术手段相对复杂且不具有普适性^[19].相比于这两种方法,与高灵敏的离子探测技术相结合,飞行时间质谱法被广泛应用于分子温度的测量.可使用电离激光对不同空间位置的分子进行电离测量,进而分析推导出分子温度^[20].这种方法要求电离激光在空间上精确地改变位移,但这种使分子与电离激光具有良好相互作用的精确位移在操作上并不容易.

本文采用一种简单实用的电离方法去测量超冷分子温度,这种方法是基于原子或分子在初始状态的分布是位置和速度的高斯函数.通过定量分析原子-分子系统在扩散和下落过程中有效密度的时间演化,经过理论拟合获得了原子-分子的平均速度进而获得其温度.对比采用R&R方法测得的原子温度结果,两者获得了很好的一致性,因此这种方法可以方便地应用于超冷原子-分子实验系统的温度测量.

2 理论模型

假设自由下落的超冷原子-分子样品的密度分布为高斯分布.这时可以用一个关于位置 $\mathbf{r}(r_x, r_y, r_z)$ 、速度 $\mathbf{v}(v_x, v_y, v_z)$ 和时刻 $t = 0$ 的相空间分布函数 $W(\mathbf{r}, \mathbf{v}, 0)$ 来描述样品的分布.零时刻的原子-分子样品空间分布可以表示为^[21]

$$W(\mathbf{r}, \mathbf{v}, 0) = \frac{N_0}{2\pi r_0 v_0} \exp\left(-\frac{\mathbf{r}^2}{2\sigma_0^2} - \frac{\mathbf{v}^2}{2v_0^2}\right), \quad (1)$$

这里, N_0 是指初始测量的总的原子或分子数目, σ_0 是指样品的初始半径, v_0 指温度为 T 下的平均热运动速度.

在飞行时间质谱装置中,原子或分子样品首先是被一束电离激光电离为离子,随后在电场的作用下,产生的离子信号被加速飞行至微通道板(MCP)并被探测^[22].我们保持电离激光始终在样品的初始中心,同时在水平方向传播.

设定 $t = 0$ 时刻为样品自由下落的零时刻,由刘维尔定理可以知道,当假设样品粒子总数 N_0 不变时,相空间分布 $W(\mathbf{r}, \mathbf{v}, t)$ 的时间演化可以表示为

$$W(\mathbf{r} + \mathbf{v}t + \frac{1}{2}\mathbf{g}t^2, \mathbf{v} + \mathbf{g}t, t) = W(\mathbf{r}, \mathbf{v}, 0), \quad (2)$$

其中, t 为样品扩散时间.这个演化式也可以写为

$$W(\mathbf{r}, \mathbf{v}, t) = W(\mathbf{r} - \mathbf{v}t - \frac{1}{2}\mathbf{g}t^2, -\mathbf{g}t, 0), \quad (3)$$

公式中 \mathbf{g} 指的是重力加速度.

我们通过对相空间函数的速度积分来获得自由下落样品的密度分布:

$$\rho(\mathbf{r}, t) = \int W(\mathbf{r}, \mathbf{v}, t) d\mathbf{v}. \quad (4)$$

这个积分式最终可以表示为

$$\rho(\mathbf{r}, t) = \frac{N_0}{[2\pi(\sigma_0^2 + v_0^2 t^2)]^{3/2}} \times \exp\left[-\frac{(\mathbf{r} - \frac{1}{2}\mathbf{g}t^2)^2}{2(\sigma_0^2 + v_0^2 t^2)}\right], \quad (5)$$

在 $\mathbf{r} = 0$,即在样品自由下落的初始中心位置,样品密度的时间演化可以表示为

$$\rho(0, t) = \frac{N_0}{[2\pi\sigma_0^2]^{3/2}} \left[\frac{\tau_r^2}{\tau_r^2 + t^2}\right]^{3/2} \times \exp\left[\frac{-t^4}{\tau_g^2(\tau_r^2 + t^2)}\right], \quad (6)$$

式中 $\tau_r = \sigma_0/v_0$, $\tau_g = 2\sqrt{2}v_0/|g|$.如果 $\tau_g > \tau_r$,重力作用产生的变化在 $t \ll \tau_g$ 时可以被忽略,样品密度的变化主要由扩散引起,在 $t \gg \tau_g$ 时重力作用可导致样品密度的指数衰减.

在上式中, $\rho(0, t)$ 正比我们测得的信号强度, t 为我们实验中的变量,而其他物理量中只有初始速度 v_0 为未知量.以(6)式对实验数据进行拟合可以使我们获得样品的初始速度 v_0 .

在磁光阱中,原子-分子服从麦克斯韦-玻尔兹曼分布.由能量均分定理可知,样品的速度和温度的关系可以通过 $v_0^2 = \frac{k_B T}{m}$ 来表示. k_B 是玻尔兹曼常数, m 是组成样品的原子或分子的质量.通过以上分析,我们最终可获得所测样品的温度.

3 实验装置及时序控制

实验装置如图1所示, ^{133}Cs 原子的冷却和俘获在一个背景真空压强约为 6×10^{-7} Pa的金属腔磁光阱中实现.俘获光和再抽运光均由可调谐外腔式半导体激光器(Toptica, DL100)输出,其典型线宽为1 MHz.实验中激光频率通过饱和和吸收光谱(SAS)方法进行锁定.俘获光通过声光调制器(AOM)偏频调节使频率位于Cs原子超精细跃迁线 $6S_{1/2}(F = 4) \rightarrow 6P_{3/2}(F' = 5)$ 红失谐15 MHz的位置,光束直径为15 mm,每束光的功率约为6 mW.再抽运光被锁定在 $6S_{1/2}(F = 3) \rightarrow 6P_{3/2}(F' = 4)$ 超精细共振跃迁线上,扩束后的光束直径为15 mm,功率约为5 mW.四极磁场梯度约为12 Gauss/cm. PA激光是一个可以大范围调

谐的钛宝石激光器 (Coherent, MBR110), 它的典型线宽小于 100 kHz, 输出功率约为 600 mW, 通过透镜组将其聚焦于磁光阱的中心进行 PA 过程, 光束腰斑直径约为 1 mm. 两个基态 Cs 原子在 PA 光的作用下吸收一个光子形成弱束缚激发态 Cs₂ 分子, 这个激发态的分子会自发辐射形成基态分子或离解成原子. 基态分子通过共振增强多光子电离和时间飞行质谱法被探测^[23]. 用于电离基态原子和分子的脉冲染料激光 (Spectra Physics, CBR-G-18EG) 由 Nd:YAG 激光 (Spectra Physics, INDI-

40-10-HG) 抽运, 工作波长为 705 nm, 脉冲宽度为 8 ns, 脉冲能量约为 2 mJ, 经聚焦透镜会聚于原子团上, 腰斑直径大小约为 0.15 mm. 两个延迟/脉冲信号发生器 (SRS, DG535) 用于实验中的时序控制. 飞行时间质谱装置包含一个用于加速原子-分子离子的栅网和一个用于探测离子的微通道板 (MCP). 栅网间的电场强度为 105 V/cm, MCP 探测到的微弱离子信号放大后经多通道取样平均器 (Boxcar, SRS-250) 进行采集.

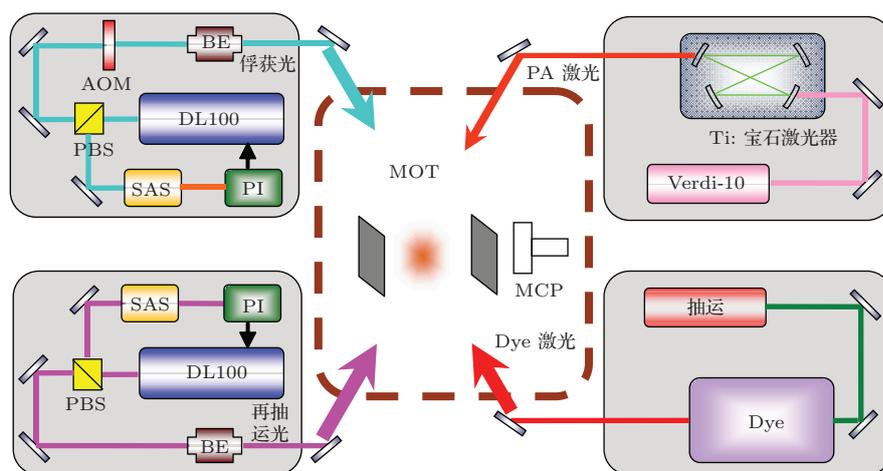


图1 实验装置 (BE 为光扩束器; AOM 为声光调制器; PBS 为偏振分束棱镜; SAS 为饱和和吸收光谱; PI 为比例积分电路; MOT 为磁光阱系统; MCP 为微通道板探测器)

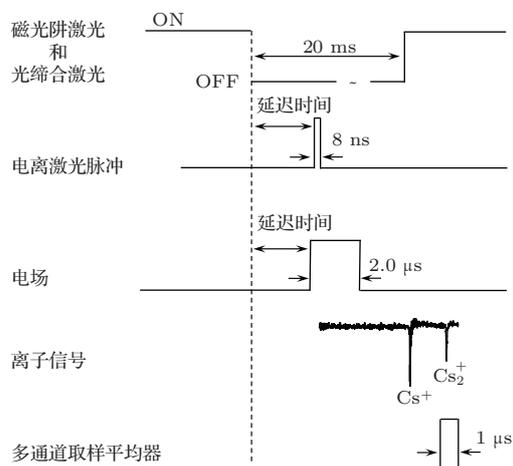


图2 磁光阱中分子离子信号探测时序图 (时序的重复频率为 10 Hz)

我们采用如图 2 所示的实验控制时序, 磁光阱激光和 PA 激光的关断与电离光的作用之间有一个延迟时间, 这个延迟时间就是样品产生与探测之间的时间. 通过测量不同延迟时间下的原子、分子离子信号从而实现原子、分子温度的测量. 为了降低

Cs⁺ 原子离子信号强度, 提高 Cs₂⁺ 分子离子的探测效率, 我们通过控制声光调制器对俘获光和再抽运光进行关断. 100 μs 后脉冲电离激光作用到原子-分子样品上, 同时栅网提供 105 V/cm 的高压加速电场作用在被电离的样品上, 持续时间 2.0 μs. 在加速电场作用下, Cs⁺ 和 Cs₂⁺ 由于质量不同到达微通道板的时间也有差异, 在我们的实验参数中到达时间分别为 5.88 μs 和 8.24 μs, 符合理论计算的位置. 将 BOXcar 在 8.24 μs 处开启, 开启时间为 200 μs, 此时, 如果 PA 激光频率设定在某个对应的分子态, 就可获得 Cs₂⁺ 分子离子信号的强度值, 进而推导出被电离的分子离子密度.

4 实验结果

图 3 所示是 Cs₂ 分子在 0_g⁻ 态 v = 6 的高分辨转动光谱图. PA 激光波数在 11665.2 cm⁻¹ 附近, 这个频率下的钛宝石激光没有稳定的频率参考, 因此我们通过一种基于 Labview 的数字伺服系统将激

光器频率锁定在 $11665.205 \text{ cm}^{-1}$ [24], 对应的转动态为 $J = 2$, 这时获得的离子信号最强. 因为我们在使用电离脉冲前 $100 \text{ }\mu\text{s}$ 关断了俘获光场和 PA 光场, 这时的原子和分子都将弛豫到基态, 因此我们所获得的离子信号为双光子或三光子电离信号. 通过对获得的飞行时间质谱信号进行拟合, 我们获得了对应的信号面积, 信号的面积代表所探测的离子数目, 且正比于电离区域分子离子密度.

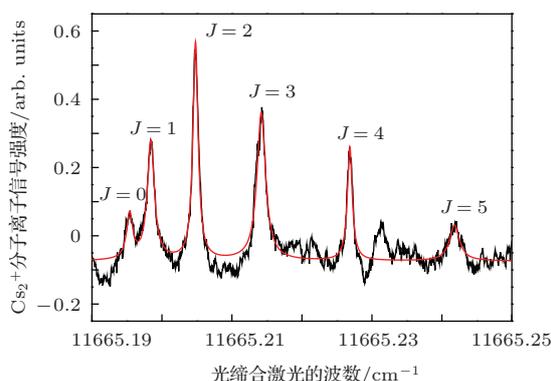


图3 Cs_2 分子在 0_g^- 态 $v = 6$ 的高分辨转动光谱图(六个峰分别对应 $J = 0 - J = 5$ 转动能级)

为了验证这种通过电离信号演化获得分子温度的方法的可靠性, 我们首先使用两种不同方法在无 PA 光的条件下测量了磁光阱中超冷 Cs 原子的温度: R&R 法和这里用到的分析光电离信号时间演化的方法. 图 4 中的圆点 (●) 表示 Cs 原子利用 R&R 的方法获得的不同释放时间下原子云半径的演化数据. 在原子样品制备完成以后, 我们将冷却光关断, 同时, 原子云开始自由下落和膨胀. 一段时间后我们再将冷却激光开启, 同时利用一台 CCD 相机记录此时的原子云尺寸. 通过改变冷却光开启的时间, 我们就获得了对应的演化数据. 利用方程 $\sigma_i^2(t) = \sigma_i^2(0) + k_B T t^2 / m$ [25], 对获得原子半径演化数据进行拟合 (图中黑色实线), 我们最终确定的 Cs 原子云样品的初始温度为 $84(3) \text{ }\mu\text{K}$.

图 4 中的方框 (■) 表示 Cs 原子离子信号强度随电离光延迟时间的演化数据. 图中的蓝色实线指的是通过 (6) 式获得的拟合曲线. 图中可以看出, 随着延迟时间的增加, 离子信号强度逐渐减小, 在延迟时间较短时, 离子信号强度的变化较慢, 这个现象与理论模型相符合. 造成这个现象的原因是在较短的原子云自由下落时间内, 重力对原子云的作用效果可以忽略不计; 在延迟时间较长时, 原子离子信号的衰减呈类指数衰减. 最终我们获得的 Cs 原子云的初始温度为 $78(4) \text{ }\mu\text{K}$. 为了提高实验测量

的精度, 图 4 中每个数据点都是由三次测量平均后得到, 图中的误差指的是测量的标准差. 比较上述两种方法获得的原子温度可知, 通过分析光电离信号时间演化的方法同样是可靠的, 可以用于分子温度的测量.

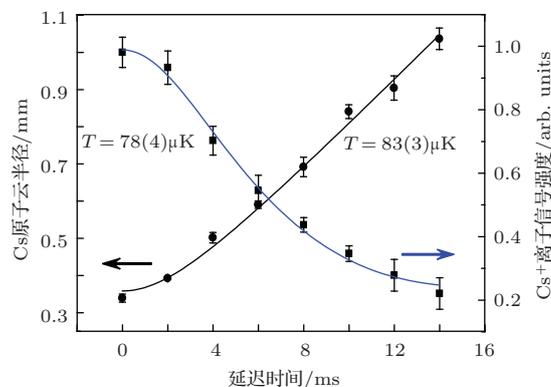


图4 采用 R&R 法和离子信号演化法对 MOT 中 Cs 原子温度的测量对比 (● 和 ■ 为实验数据点, 实线为相应的理论拟合曲线)

图 5 是电离信号演化法应用于光缔合方法制备的超冷 Cs_2 分子温度的测量结果. 从图中我们可以看出, Cs_2^+ 分子离子信号的衰减时间超过了毫秒量级, 这个时间比激发态分子的辐射寿命长很多, 这证明这些分子离子信号是由长寿命的 Cs_2 分子形成的, 我们最终测得的超冷系统中 Cs_2 分子的温度为 $135(6) \text{ }\mu\text{K}$. 与原子温度相比, 获得的分子温度要略高于获得的原子温度. 需要指出的是, 由于强的 PA 光作用于原子团, 且 PA 光频率非常接近原子共振跃迁线 (Cs 原子的 D_2 跃迁线), 因此原子团将会产生加热效应. 如果这种加热效应很明显, 当通过 PA 过程获得的超冷分子温度将变得更高, 因此分子温度不但决定于初始原子温度, 也决定于整个 PA 过程 [26].

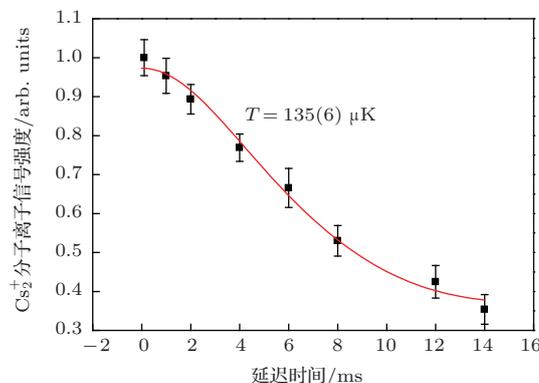


图5 Cs_2^+ 分子离子信号强度的时间演化 (实线为理论拟合曲线, ■ 为实验数据点)

5 结 论

从以上实验分析过程我们可以知道, 通过在电离激光不同延迟时间下测量的原子或分子的电离信号强度变化, 我们可以获得原子或分子的密度演化过程. 采用理论模型对获得的数据进行拟合, 可以获得原子或分子的平均热运动速度, 并最终获得原子或分子的温度. 采用两种不同方法对测量的原子温度进行比较, 我们发现两个实验结果符合的很好. 这表明分析光电离信号随时间演化的方法是可靠的. 采用这种方法, 我们可以方便地获得超冷分子的温度, 克服了通过探测微弱分子荧光来获得分子温度的弊端, 可广泛应用于超冷原子、分子样品的温度测量.

参考文献

- [1] Zhou S Y, Xu Z, Qu Q Z, Zhou S Y, Liu L, Wang Y Z 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 1590 (in Chinese) [周蜀渝, 徐震, 屈求智, 周善钰, 刘亮, 王育竹 2009 物理学报 **58** 1590]
- [2] Anderson M H, Ensher J R, Matthews M R, Wieman C E, Cornell E A 1995 *Science* **269** 198
- [3] Ma J, Cheng P, Liu W L, Feng G S, Li Y Q, Wu J Z, Xiao L T, Jia S T 2013 *Acta Phys. Sin.* **62** 223301 (in Chinese) [马杰, 陈鹏, 刘文良, 冯国胜, 李玉清, 武奇洲, 肖连团, 贾锁堂 2013 物理学报 **62** 223301]
- [4] Semczuk M, Li X, Gunton W, Haw M, Dattani N S, Witz J, Mills A K, Jones D J, Madison K W 2013 *Phys. Rev. A* **87** 052505
- [5] John W, Bagnato V S, Sergio Z, Julienne P S 1999 *Rev. Mod. Phys.* **71** 1
- [6] Jin D S, Ye J 2012 *Chemical Reviews* **112** 4801
- [7] Georgescu I M, Ashhab S, Nori F 2014 *Rev. Mod. Phys.* **86** 153
- [8] DeMille D 2002 *Phys. Rev. Lett.* **88** 067901
- [9] Theis M, Thalhammer G, Winkler K, Hellwig M, Ruff G, Grimm R, Hecker Denschlag J 2004 *Phys. Rev. Lett.* **93** 123001
- [10] Jones K M, Tiesinga E, Paul D L, Julienne P S 2006 *Rev. Mod. Phys.* **78** 483
- [11] Xia Y, Yin Y, Chen H, Deng L, Yin J 2008 *Phys. Rev. Lett.* **100** 043003
- [12] Marangoni B S, Menegatti C R, Marcassa L G 2010 *Laser Physics* **20** 557
- [13] Lett P D, Watts R N, Westbrook C I, Phillips W D, Gould P L, Metcalf H J 1988 *Phys. Rev. Lett.* **61** 169
- [14] He J, Wang J, Qiu Y, Wang Y H, Zhang T C, Wang J M 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 6221 (in Chinese) [何军, 王婧, 邱英, 王彦华, 张天才, 王军民 2008 物理学报 **57** 6221]
- [15] Courtois J Y, Grynberg G, Lounis B, Verkerk P 1994 *Phys. Rev. Lett.* **72** 3017
- [16] Mitsunaga M, Yamashita M, Koashi M, Iomoto N 1998 *Opt. Lett.* **23** 840
- [17] Peters T, Wittrock B, Blatt F, Halfmann T, Yatsenko L P 2012 *Phys. Rev. A* **85** 063416
- [18] Wang D, Neyenhuis B, de Miranda M H G, Ni K K, Ospelkaus S, Jin D S, Ye J 2010 *Phys. Rev. A* **81** 061404
- [19] Greiner M, Regal C A, Jin D S 2003 *Nature* **426** 537
- [20] Fioretti A, Comparat D, Crubellier A, Dulieu O, Masnou-Seeuws F, Pillet P 1998 *Phys. Rev. Lett.* **80** 4402
- [21] Lambrecht A, Giacobino E, Reynaud S 1996 *Quantum Semiclass. Opt.* **8** 457
- [22] Chang X F, Ji Z H, Yuan J P, Zhao Y T, Yang Y G, Xiao L T, Jia S T 2013 *Chin. Phys. B* **22** 093701
- [23] Ji Z H, Wu J Z, Ma J, Feng Z G, Zhang L J, Zhao Y T, Wang L R, Xiao L T, Jia S T 2010 *Chin. Phys. Lett.* **27** 053701
- [24] Ji Z H, Zhang R R, Ma J, Dong L, Zhao Y T, Jia S T 2009 *Chinese Journal of Lasers* **36** 804 (in Chinese) [姬中华, 张冉冉, 马杰, 董磊, 赵延霆, 贾锁堂 2009 中国激光 **36** 804]
- [25] Wang Y Q 2007 *Laser Cooling and Trapping of Atoms* (Beijing: Peking University Press) p178 (in Chinese) [王义道 2007 原子的激光冷却与陷阱 (北京: 北京大学出版社) 第178页]
- [26] Jin L, Feng G S, Wu J Z, Ma J, Wang L R, Xiao L T, Jia S T 2013 *Chin. Phys. B* **22** 088701

The temperature measurement for the ultracold Cs₂ molecules formed by photoassociation*

Zhao Yan-Ting¹⁾ Yuan Jin-Peng¹⁾ Ji Zhong-Hua^{1)†} Li Zhong-Hao¹⁾ Meng Teng-Fei¹⁾
Liu Tao²⁾ Xiao Lian-Tuan¹⁾ Jia Suo-Tang¹⁾

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

2) (Key Laboratory of Time and Frequency Primary Standards, National Time Service Center, Chinese Academy of Science, Xi'an 710600, China)

(Received 28 March 2014; revised manuscript received 5 June 2014)

Abstract

Ultracold Cs₂ molecules have been formed by photoassociation. Using the multiphoton ionization technique, we measure the time-evolution of expanding process in ultracold Cs₂ molecule system and obtain the decay curve of photoionization signals. Based on a simple case, where the initial distribution of atomic or molecular sample is a Gaussian function of position and of velocity, we get the sample's temperature by theoretical simulation. The result shows a reasonable agreement with the result of release-recapture method in cold atom sample. This method avoids the disadvantage of detecting the weakly fluorescence and can be widely used for measuring the temperature in cold atom or cold molecule system.

Keywords: photoassociation, ultracold cesium molecules, temperature measurement, photoionization

PACS: 37.10.Mn, 67.85.-d, 34.80.Gs

DOI: [10.7498/aps.63.193701](https://doi.org/10.7498/aps.63.193701)

* Project supported by the National Basic Research Program of China (Grant Nos. 2012CB921603, 2010CB923103), the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 61275209, 10934004, 61378015, 11304189), the National High Technology Research and Development Program of China (Grant No. 2011AA010801), the International Science and Technology Cooperation Program of China (Grant No. 2001DFA12490), the NSFC Project for Excellent Research Team of China (Grant No. 61121064) and the Changjiang Scholars and Innovative Research Team in University, China (Grant No. IRT13076).

† Corresponding author. E-mail: jzh@sxu.edu.cn