

线性 Paul 阱扩展稳定区和双射频场中多组分铷离子与冷铷原子碰撞动力学的频率依赖性 *

钱镜宇 ¹⁾ 王飞 ²⁾ 殷伟博 ¹⁾ 贾凤东 ¹⁾ 薛平 ^{2)†} 钟志萍 ^{1)‡}

1) (中国科学院大学物理科学学院, 北京 100049)

2) (清华大学物理系, 低维量子物理国家重点实验室, 北京 100084)

冷原子-离子混合体系中的碰撞动力学不仅由自由空间短程相互作用决定, 也会受到线性 Paul 阱时间依赖射频场的影响。近期提出的阱辅助离子-原子瞬态复合物图像表明, 射频阱势可通过能量和动量交换改变离子-原子短程相遇次数及非弹性衰变概率。本文基于多组分铷离子-冷铷原子混合阱平台, 通过连续光电离冷 ^{87}Rb 原子制备了包含原子离子和分子离子的多组分离子云, 并从两个互补实验模式研究射频场对碰撞动力学的影响: 一是在单射频场中进入线性 Paul 阱协同囚禁扩展稳定区, 二是在主射频场固定条件下引入弱辅助射频场。在单射频模式中, 我们将离子阱射频场频率降低至传统单组分稳定区之外, 利用多组分离子的协同囚禁效应维持离子云存在, 并通过原子数和离子数时间演化提取在固定参考离子云体积下定义的表观离子-原子总碰撞速率系数。这不是自由空间中单次二体碰撞的微观速率系数。实验表明, 低频扩展稳定区中原子离子-原子放热非弹性碰撞显著增强, 说明传统稳定区之外的协同囚禁区域为研究射频场参与碰撞动力学提供了新的参数空间。在双射频模式中, 主射频场用于维持稳定囚禁, 弱辅助射频场作为独立周期扰动扫描原子离子的边带区域。相应的表观离子-原子总碰撞速率系数表现出非单调的辅助频率依赖, 说明弱辅助射频场并非简单增强碰撞, 而是能够以频率选择性的方式改变离子云演化和离子-原子碰撞响应。这两种实验模式共同表明, 线性 Paul 阱射频场不是被动囚禁背景, 而是能够通过改变离子运动、能量-动量交换和阱辅助离子-原子瞬态复合物动力学, 影响多组分离子-原子碰撞过程。

关键词: 阱辅助离子-原子瞬态复合物, 离子-原子混合阱, 表观离子-原子总碰撞速率系数

† Corresponding author. E-mail: xuep@tsinghua.edu.cn †(通信作者)

‡ Corresponding author. E-mail: zpzhang@ucas.ac.cn ‡(通信作者)

* 北京市自然科学基金 (批准号: 1262044, 1252033) 和国家自然科学基金 (批准号: 61975091, 61575108) 资助的课题。

1 引言

冷原子-离子混合体系为低温碰撞、冷化学反应、分子离子形成以及量子调控提供了独特的研究条件^[1,2]。与中性原子体系不同，离子通常需要通过线性 Paul 阱中的射频电场进行囚禁，因此离子-原子碰撞并不发生在自由空间中，而是在时间依赖的外部势场内进行。传统上，线性 Paul 阱射频场主要被视为进入超冷量子碰撞区间的限制因素：离子的微运动会产生非热平衡能量分布，并在碰撞过程中向体系注入能量，从而限制协同冷却和单分波碰撞的实现。Cetina 等^[3]指出，即使在理想补偿的线性 Paul 阱中，长程离子-原子相互作用也会使离子偏离射频零点，导致射频场在碰撞过程中对体系做功；在特定射频相位下，射频场也可做负功，使原子短暂束缚在离子附近并经历多次近距离相遇。这一结果说明，射频场在碰撞中既可导致加热，也可通过能量交换改变离子-原子的相对运动轨迹。

这一认识随后发展为“阱辅助离子-原子瞬态复合物”图像。Hirzler 等^[4]在理论上系统研究了受囚禁离子与原子的碰撞，指出线性 Paul 阱的时间依赖势可以降低原子在相对坐标中的能量，使其暂时滞留在离子-原子吸引势中，形成瞬态复合物；该复合物会改变三体复合等反应过程，其形成概率与原子质量、碰撞能量以及离子微运动幅度有关。他们还指出，类似的复合物在静态谐振子阱中也可形成，说明其本质机制是外部囚禁势破坏平移对称性并耦合质心运动与相对运动，而不完全依赖于线性 Paul 阱的时间依赖电场。实验和数值模拟验证了这一图像。Pinkas 等^[5]在单个 $^{88}\text{Sr}^+$ 离子与超冷 ^{87}Rb 原子的碰撞中，通过测量自旋交换概率获得了阱辅助离子-原子瞬态复合物的证据。该工作不仅测量了自旋交换随碰撞能量和磁场的变化，还利用分子动力学模拟分析了碰撞过程中的多次短程相遇。基于经典分子动力学（MD）轨迹模拟，在补偿微运动条件下，一次 Langevin 碰撞中即可高效形成束缚态，短程相遇次数和束缚态寿命呈长尾分布；随着额外微运动能量增加，束缚态形成概率降低但并非完全消失。实验拟合得到的平均短程相遇次数和分子寿命与模拟结果相符，说明阱参数可以调控复合物形成和非弹性过程。

近期理论研究进一步将这一图像与混沌散射、束缚态寿命分布和陷阱诱导反应增强联系起来^[6,7]。数值模拟表明，受囚禁离子与自由原子之间的超冷散射可对初始条件高度敏感，表现出经典混沌特征；这种混沌行为与多次短程相遇和瞬态复合物形成密切相关。进一步的时间无关理论方法将受囚禁离子等效为由其基态波函数空间分布决定的电荷分布，并研究原子在该静态有效势中的散射动力学；结果显示，阱参数、原子种类、碰撞能量和相互作用各向异性均会影响复合物形成与混沌散射，而复合物形成概率本身可以作为表征动力学混沌的实验可观测量^[7]。这些研究说明，原子-离子碰撞中的非弹性过程不应仅由自由空间短程反应概率决定，还必须考虑外部囚禁势对相对运动、多次短程相遇次数和复合物寿命的影响。

然而，现有关于阱辅助离子-原子瞬态复合物的理论和实验研究主要集中在单个原子离子与中性原子的二体碰撞，通常只涉及一个主要短程反应通道。对于多组分离子体系，不同离子物种可与原子形成不同类型的复合物，例如 $^{87}\text{Rb}^+-\text{Rb}$ 与 $^{87}\text{Rb}_2^+-\text{Rb}$ 复合物。这些离子物种具有不同的质量、质荷比、微运动响应、短程势能面和非弹性衰变通道，其复合物形成概率、寿命和反应分支也可能对射频场参数有不同的响应。因此，将阱辅助离子-原子瞬态复合物图像从单一离子种类、单一非弹性过程推广到多组分离子体系，既可检验该图像的普适性，也可用于研究外部射频场对多通道碰撞动力学的频率选择性影响。

在这一背景下，我们课题组基于离子-原子混合阱平台，通过连续光电离激光冷却的 ^{87}Rb 原子，制备了同时包含 $^{87}\text{Rb}^+$ 、 $^{87}\text{Rb}_2^+$ 、 $^{87}\text{Rb}_3^+$ 等原子离子和分子离子的多组分离子体系^[8]。该体系包含不同质荷比、不同宏运动频率和不同微运动响应的共存离子组分，同时也包含多条离子-原子碰撞与非弹性衰变通道。利用这一平台，我们此前观察到射频频率对碰撞过程的影响具有选择性^[9]：低射频频率下原子离子-原子放热非弹性碰撞占主导，而较高射频频率下分子离子-原子淬灭过程更加显著。该结果表明，阱辅助离子-原子瞬态复合物的物理图像可以从单一离子种类、单一非弹性过程的验证，进一步扩展到多组分、多通道以及频率选择性影响的情形。

除碰撞通道的多样性外，多组分离子之间的集体相互作用还会改变线性 Paul 阱的实际稳定性。我们此前在线性 Paul 阱中发现^[10]，由 $^{87}\text{Rb}_N^+$ ($N = 1, 2, \dots$) 构成的多组分离子团簇可以在单组分 Mathieu 理论预言的不稳定区内保持囚禁，即在 $q_r(^{87}\text{Rb}^+) > 0.908$ ($r = x, y$) 后仍可观测到稳定离子信号。这一现象源于具有分谐波频率关系的多组分离子之间的协同囚禁效应。因此，扩展稳定区并非简单的低频囚禁区间，而是一个由多组分集体动力学支持的新参数空间。将离子-原子碰撞研究推进到该区域，可以检验阱辅助离子-原子瞬态复合物图像在传统单组分稳定区之外是否仍然适用。

射频频率是研究这一问题的关键控制参数。改变单一射频场频率会同时改变 Mathieu 参数、宏运动频率、微运动幅度、阱深、离子云分布以及离子-原子重叠条件。因此，单射频扫描可以揭示碰撞损失对射频场的总体响应，但难以区分这种响应来自囚禁条件变化还是碰撞过程本身的调制。其根本困难在于：在单射频场中，稳定囚禁和碰撞响应共用同一个场，二者不可避免地强耦合。解决这一耦合问题的方案是可引入第二个独立的射频自由度，即双射频场模式。双射频场将“稳定囚禁”与“碰撞响应”部分分离：主射频场用于维持离子的宏观稳定囚禁，决定离子云的稳定存在和主要势阱结构；辅助射频场采用与主射频场相同的四极对称电极加载方式，但其频率可独立扫描，在固定主囚禁条件下引入一个独立的弱周期扰动。通过调制离子运动，辅助射频场可影响离子-原子短程相遇概率或复合物衰变分支。若在主射频场固定时，

辅助射频频率扫描仍引起碰撞信号的可重复变化, 即使其幅度低于仅有主射频场时的结果, 也表明辅助射频场可作为独立射频自由度影响碰撞过程。

本文研究多组分铷离子与冷铷原子在单射频扩展稳定区和双射频场中的碰撞动力学, 聚焦三个具体问题。第一, 在单射频场中, 当 $q_r(^{87}\text{Rb}^+)$ 进入 $q_r(^{87}\text{Rb}^+) > 0.908$ 的协同囚禁扩展稳定区时, 原子离子-原子放热非弹性碰撞是否发生系统性变化。第二, 在双射频场中, 当强主射频场固定、弱辅助射频场频率扫描时, 离子-原子总碰撞响应是否出现对辅助场频率的依赖关系, 从而表明碰撞动力学可以在稳定囚禁背景上被额外调节。第三, 这些实验现象是否支持以阱辅助离子-原子瞬态复合物作为统一的物理图像, 即射频场通过调节能量-动量交换和多次短程相遇次数, 以频率选择性的方式影响不同复合物通道的形成、寿命或衰变。

2 实验方法

2.1 实验装置与多组分离子制备

本实验采用离子-原子混合阱平台, 装置细节见文献^[11]和^[10]。线性 Paul 阱的径向囚禁由四极杆上的射频场提供, 轴向约束由端电极直流电压提供。四极杆距中心轴的最小距离为 $r_0 = 9.1 \text{ mm}$, 端电极距阱中心的最小距离为 $z_0 = 50 \text{ mm}$ 。在典型实验条件下, 射频场频率为 $\Omega_{\text{RF}}/2\pi = 550 \text{ kHz}$, 峰值电压为 $U_{\text{RF}} = 140 \text{ V}$ 。

多组分铷离子的制备方法与我们此前工作相同^[8], 这里仅作简要说明。首先, 我们在磁光阱中装载并冷却 ^{87}Rb 原子, 待磁光阱中的原子数达到稳态后, 利用冷却光和 478.8 nm 连续电离光进行两步光电离, 产生初始 $^{87}\text{Rb}^+$ 原子离子。由于电离初期离子密度较高, 且离子云与冷原子云在空间上重叠, $^{87}\text{Rb}^+$ 可通过级联离子-原子反应形成 $^{87}\text{Rb}_2^+$ 、 $^{87}\text{Rb}_3^+$ 等分子离子, 从而得到包含原子离子和分子离子的多组分铷离子云。

原子云温度约为 $200 \text{ } \mu\text{K}$, 其 $1/e$ 半径约为 0.5 mm 。离子云则明显更大: 在 $\Omega_{\text{RF}}/2\pi = 550 \text{ kHz}$ 、 $U_{\text{RF}} = 140 \text{ V}$ 条件下, 实验测得其径向半径约为 2.32 mm ^[12], 仿真得到的轴向半径约为 22.04 mm 。因此, 离子云只有部分区域与冷原子云有效重叠, 并且大量离子偏离射频零点。

关于离子动能, 假设阱中离子的速度分布可近似为受有效阱深限制的截断 Maxwell-Boltzmann 分布。对于固定射频振幅 $U_{\text{RF}} = 140 \text{ V}$, 阱深近似满足 $D \propto 1/(mf^2)$, 并以 $^{87}\text{Rb}^+$ 在 550 kHz 时的阱深 $D = 0.7 \text{ eV}$ 作为参考。由此得到 $^{87}\text{Rb}^+$ 在 $450\text{--}800 \text{ kHz}$ 范围内的最概然动能约从 120 meV 降至 40 meV ,

对应温度约 1400–460 K。在本工作典型频率 550 kHz 下， $^{87}\text{Rb}^+$ 的最概然动能约为 100 meV（约 950 K）。对于分子离子 $^{87}\text{Rb}_M^+$ ，其动能按 $1/M$ 相对于 $^{87}\text{Rb}^+$ 缩放，在 550 kHz 时的最概然动能对应温度约为 $950/M$ K [9]。此前实验表明，通过与冷原子碰撞，体系中可形成低温离子子群 [9]。

2.2 双射频场设置与共振激发探测

为研究离子云对外部周期场的频率响应，并利用额外射频自由度调控离子运动和离子-原子碰撞动力学，我们在离子阱射频场（主射频场）之外叠加一个弱辅助射频场。该辅助射频场一方面可作为频率可调的周期扰动，用于探测离子云中不同组分的频率响应；另一方面，在主射频场参数固定时，辅助射频场可作为独立调控自由度改变离子演化过程，从而影响离子-原子碰撞响应。辅助射频场以与主射频场相同的四极对称方式加载到四极杆上，即一对径向电极接 $+U_{\text{aux}} \cos(\Omega_{\text{aux}}t)$ ，另一对径向电极接 $-U_{\text{aux}} \cos(\Omega_{\text{aux}}t)$ ，其中 $U_{\text{aux}} \ll U_{\text{RF}}$ 。辅助射频场作为弱周期扰动，主射频场仍决定离子的稳定囚禁条件。忽略高阶修正时，径向四极势可写为

$$\Phi(x, y, t) \approx \frac{x^2 - y^2}{r_0^2} [U_{\text{RF}} \cos(\Omega_{\text{RF}}t) + U_{\text{aux}} \cos(\Omega_{\text{aux}}t)] + \Phi_{\text{dc}}(x, y, z). \quad (1)$$

其中 Φ_{dc} 为端电极产生的轴向约束势。

共振激发质谱是诊断离子运动频率和离子组分的常规方法。其原理如下：不同质荷比的离子在线性 Paul 阱中具有不同的宏运动频率（径向 ω_r ，轴向 ω_z ）；当外加交流场频率与某一离子组分的运动频率或相关边带共振时，该离子可从外场吸收能量，导致运动振幅增大、加热甚至逃逸。因此，通过扫描外加激发场频率并记录激发后剩余离子数，可获得反映离子运动共振响应的谱线。类似的共振激发方法已用于冷分子离子的非破坏性质量识别以及离子-原子混合阱中反应产物分析 [13,14]。

在理想单离子且离子位于射频零点的近似下，四极对称的辅助场主要调制阱势曲率，属于参数调制；其主参数共振条件为 $\Omega_{\text{aux}} \approx 2\omega_r$ 。这种机制已被用于线性 Paul 阱中离子的质量选择性移除，即在 $2\omega_{\text{sec}}$ 附近实现高效参数激发 [15]。然而，本实验中的离子云具有毫米量级空间尺度，大部分离子并不严格位于射频零点。对于本实验的离子云，大量离子平衡位置偏离阱中心的距离与阱半径可比拟（ $r_0 = 9.1$ mm），因此偶极驱动效应不可忽略。对于平衡位置偏离阱中心的离子，四极辅助场可在局域位置展开出一阶受迫驱动力。例如令 $x = x_0 + \delta x$ ，则辅助势中的 $x^2 \cos(\Omega_{\text{aux}}t)$ 项包含 $2x_0\delta x \cos(\Omega_{\text{aux}}t)$ ，从而产生等效偶极力 $F \propto -x_0 \cos(\Omega_{\text{aux}}t)$ 。因此，在有限尺寸离子云中，辅助场不仅可调制阱曲率，也可对偏离射频零点的离子产生显著位移驱动。这一图像与线性 Paul 阱中过量微运动的标准描述一致：离子在偏离射频零点时会

受到局域射频电场的作用，并产生与位移成正比的驱动微运动^[16]。

此外，主射频场会将离子的宏运动调制成含有微运动边带的形式。对于 $q \ll 1$ 的线性 Paul 阱，一阶近似解可写为

$$x(t) \simeq X \cos(\omega_r t + \phi) \left[1 + \frac{q}{2} \cos(\Omega_{\text{RF}} t) \right]. \quad (2)$$

因此运动谱中除 ω_r 外，还包含 $\Omega_{\text{RF}} \pm \omega_r$ 的边带分量^[16,17]。由此，在实际多组分离子云中，辅助场的作用不能简单归结为理想单离子的纯参数调制。可观测的主要共振频率包括 $\Omega_{\text{aux}} \approx \omega_r$ 、与主射频场相关的边带 $\Omega_{\text{aux}} \approx \Omega_{\text{RF}} \pm \omega_r$ 。而 $\Omega_{\text{aux}} \approx 2\omega_r$ 的参数共振因受离子云空间电荷效应和有限尺寸引起的非协同调制影响，在本实验条件下被显著抑制，实验中未观察到明显响应。

上述频率仅给出了弱激发条件下的主要共振位置。在实际离子云中，辅助场振幅、作用时间、空间电荷效应、阱势非理想性以及多组分离子之间的非线性耦合都会影响谱线结构。已有线性 Paul 阱离子云实验表明，除基本宏运动频率和二倍频参数共振外，还可观察到高阶谐波、径向-轴向耦合模以及与主射频场相关的组合频率，例如 $m\Omega_{\text{RF}} \pm n\omega_{z,r}$ ^[18]。离子云的集体参数共振还存在阈值行为，只有当激发电压超过临界值时才会出现窄的集体共振，其线宽和可见性随激发振幅变化^[19]。此外，分数阶参数共振也可能出现，其条件可写为 $\Omega_{\text{aux}} \simeq 2\omega_{z,r}/n$ ($n = 1, 2, 3, \dots$)，并同样依赖于激发强度、阶数和阻尼条件^[20]。因此，本文对共振位置的指认主要作为频率标尺和物理解释，而不将观测谱线限制为单一理想 Mathieu 模式。

本文使用两种辅助射频扫描时序。第一种为短脉冲共振激发质谱，用于诊断离子云的运动共振频率。具体而言，首先仅开启主射频场，在固定主射频场参数下通过连续光电离制备并囚禁多组分铷离子团簇，制备时间为 750 ms。随后关闭光电离激光和冷原子源，仅保留被囚禁的离子云，施加强辅助射频场，作用时间为 1 ms 或更短，并逐点扫描辅助射频场频率 Ω_{aux} 。在每一个频率点，辅助场作用时间和其他实验参数保持不变。辅助场作用结束后，关闭囚禁场并将剩余离子导出至微通道板探测器，利用飞行时间质谱分别记录原子离子和分子离子的剩余数，同时得到总离子数。当辅助射频频率与离子运动频率、边带频率或高阶组合频率共振时，对应离子组分可在短时间内吸收能量并发生逃逸，从而在相应的离子数谱中产生凹陷。

第二种为双射频演化谱，是本文研究双射频场下离子-原子碰撞动力学的主要实验时序。在该方法中，主射频场和弱辅助射频场在离子产生、囚禁以及与冷原子碰撞演化过程中同时开启。具体而言，在 750 ms 的光电离制备和囚禁阶段，主射频场和辅助射频场均保持开启，冷原子云也持续存在并与离子相互作用；实验固定主射频场的频率和振幅以及辅助射频场振幅，逐点扫描 Ω_{aux} 。因此，在每一个辅助射频频率点，

离子的产生、加载、囚禁和与冷原子的碰撞演化均发生在同一组双射频场条件下。随后利用飞行时间质谱测量该条件下剩余的原子离子数和分子离子数，以分析辅助场对离子-原子总碰撞响应的影响。

这两种谱线的物理含义不同。短脉冲共振激发质谱反映的是已经形成的离子云在短时间弱激发下的运动共振响应，且激发阶段不存在冷原子，避免了碰撞冷却的干扰，主要用作频率诊断工具。双射频演化谱则包含辅助射频场对离子生成、初始俘获、长期加热、空间电荷平衡、多组分协同囚禁以及离子-原子碰撞过程的累积影响。因此，双射频演化谱不能简单视为短脉冲共振激发质谱在长时间下的延伸。在较长辅助场作用时间下，短脉冲谱中较弱或不明显的边带响应、组合频率响应或集体模响应可能被累积放大，并在双射频演化谱中表现为额外的离子损失结构。

2.3 表观离子-原子总碰撞速率系数的获取

为定量分析离子-原子总碰撞响应，我们通过测量冷原子数和离子数随时间的演化提取表观离子-原子总碰撞速率系数。该方法的物理基础是：由于磁光阱（MOT）势阱深度极浅，而线性 Paul 阱中离子动能远高于 MOT 阱深，离子-原子碰撞通常会使参与碰撞的冷原子逃逸出磁光阱。因此，冷原子损失可以作为离子-原子总碰撞事件数的实验探针。由原子数衰减提取的 k_{app} 是表观离子-原子总碰撞速率系数，包含弹性碰撞、非弹性碰撞以及少量反应过程等综合贡献。该方法与前期 $q_r(^{87}\text{Rb}^+) < 1$ 条件下的测量方法一致^[9]。具体说，实验中，首先制备多组分铷离子云，随后关闭电离光，以避免持续产生新离子对碰撞测量的影响。在保持磁光阱和离子阱工作的条件下，记录冷原子数和离子数随保持时间的变化。原子数和原子密度通过常规吸收成像获得。离子数通过飞行时间质谱测量。实验结束时关闭靠近微通道板一侧的端电极，将囚禁离子沿轴向导出至微通道板探测器。典型飞行时间谱包含两个主要非对称峰：飞行时间较短、较窄的峰对应 $^{87}\text{Rb}^+$ 原子离子；飞行时间较长、较宽的峰对应 $^{87}\text{Rb}_M^+ (M = 2, 3, \dots)$ 分子离子的合并信号。受限于探测器的时间响应，质谱信号可可靠区分为原子离子和分子离子两个通道，分子离子各组分无法单独分辨。各峰强度通过 Gumbel 型极值分布函数拟合获得，并分别作为原子离子数和分子离子数的相对表征量。总离子数定义为两类信号的积分和。飞行时间相对信号到离子数的换算沿用前期工作中的标定方法，即基于离子阱空间电荷饱和密度和参考条件下的 COMSOL 离子云体积获得标定因子^[9]。

由于协同囚禁扩展稳定区和双射频场条件下的离子云体积及离子-原子重叠体积目前难以可靠仿真，本文在不同实验模式下采用不同的固定参考离子云体积 V_0 。对于单射频扩展稳定区的测量，离子阱射频场振幅固定为 $U_{\text{RF}} = 140 \text{ V}$ ，频率处于 330–400 kHz 区间。该区间内多组分离子云位于协同囚禁扩展稳定

区，因此本文采用前期工作中在离子阱射频场频率 450 kHz、振幅 140 V 条件下得到的仿真离子云体积作为参考体积 V_0 。对于双射频场测量，主射频场固定为 $(\Omega_{\text{RF}}/2\pi = 550 \text{ kHz})$ ($U_{\text{RF}} = 140 \text{ V}$)，辅助射频场作为弱周期扰动叠加其上。由于双射频场下离子云体积和离子-原子重叠体积同样缺乏可靠仿真，本文采用仅有主射频场 (550 kHz, 140 V) 条件下的仿真离子云体积作为双射频测量的参考体积。上述离子云仿真体积均取自文献 [9]。

因此，本文得到的 k_{app} 均应理解为在相应固定参考体积下定义的表观离子-原子总碰撞速率系数，主要用于比较不同射频参数下碰撞响应的相对变化。参考体积的选择会影响 k_{app} 的绝对标度，但不改变原子损失实验直接反映的频率依赖趋势。

原子数 $N_a(t)$ 的演化可写为 [9]

$$\frac{dN_a}{dt} = L - \Gamma_a N_a - k_{\text{app}} \int n_i(\mathbf{r}, t) n_a(\mathbf{r}, t) d^3r. \quad (3)$$

其中 L 为磁光阱装载率， Γ_a 为无离子条件下 MOT 的有效原子损失率，主要反映冷原子间碰撞、光辅助碰撞等磁光阱本征损失过程， $n_i(\mathbf{r}, t)$ 和 $n_a(\mathbf{r}, t)$ 分别为离子和原子的密度分布。 k_{app} 为表观离子-原子总碰撞速率系数。这里的 k_{app} 是宏观有效量。由于线性 Paul 阱中的时间依赖势场可能导致一次初始离子-原子俘获事件中发生多次短程碰撞，并伴随阱辅助离子-原子瞬态复合物形成与解离，实验上无法直接分辨单次俘获事件中的实际短程碰撞次数，也无法区分弹性、非弹性和反应通道的分支比例。因此，测得的速率系数应理解为表观离子-原子总碰撞速率系数，而不是自由空间中单一微观通道的二体反应速率系数。

若采用参考离子云体积 V_0 ，并近似认为离子云在有效重叠区域内具有均匀密度 $n_i(t) \simeq N_i(t)/V_0$ ，则碰撞项可化为 [9]

$$k_{\text{app}} \int n_i(\mathbf{r}, t) n_a(\mathbf{r}, t) d^3r \simeq \frac{k_{\text{app}}}{V_0} N_i(t) N_a(t). \quad (4)$$

因此，用于拟合的速率方程为 [9]

$$\frac{dN_a}{dt} = L - \Gamma_a N_a - \frac{k_{\text{app}}}{V_0} N_i(t) N_a(t). \quad (5)$$

其中 $N_i(t)$ 由飞行时间总离子信号给出。

在拟合过程中，实验测得的 $N_i(t)$ 被代入上述方程， k_{app} 和 L 作为拟合参数，由 $N_a(t)$ 的时间演化提取。另一方面，我们在离子阱关闭，无离子条件下独立测量 MOT 装载曲线，并由

$$\frac{dN_a}{dt} = L_{\text{MOT}} - \Gamma_a N_a \quad (6)$$

得到参考装载率 L_{MOT} 和有效原子损失率 Γ_a 。因此，拟合得到的 L_{fit} 是否接近独立测得的 L_{MOT} ，可作为判断简化速率模型在不同射频条件下是否自治的辅助判据。若 L_{fit} 与 L_{MOT} 接近，说明原子数演化主要可由 MOT 装载、本征原子损失和离子诱导总碰撞损失共同描述；若 L_{fit} 明显偏离 L_{MOT} ，则提示离子云非平稳演化、离子-原子重叠体积变化或局域原子分布变化可能已超出该简化模型的适用范围。

本文中使用的各数据点均由多次重复测量取平均值得到，其误差棒由该组数据的标准偏差给出，反映了测量过程中的随机误差。基于这些数据点，依据相应的物理模型进行最小二乘拟合时，拟合所得物理量，如表观离子-原子总碰撞速率系数和装载率的标准不确定度，由拟合算法输出的参数协方差矩阵对角元素的平方根给出。该标准不确定度的来源是原始数据点的标准偏差，通过拟合函数进行误差传递。

3 结果

3.1 扩展稳定区中表观离子-原子总碰撞速率系数的频率依赖

本节研究单射频场扩展稳定区内多组分铷离子与冷铷原子的碰撞动力学。与前期 $q_r(^{87}\text{Rb}^+) < 1$ 的工作类似，通过关闭电离光后同时记录原子数 $N_a(t)$ 和总离子数 $N_i(t)$ 的演化，提取在固定参考离子云体积下定义的表观离子-原子总碰撞速率系数 k_{app} [9]，这主要用于比较同一实验模式内不同射频参数下的相对响应，不是自由空间中单次二体碰撞的微观速率系数。本节所考察的离子阱射频场频率范围为 330–400 kHz，此时原子离子 $^{87}\text{Rb}^+$ 的径向 Mathieu 参数已超过单组分线性 Paul 阱第一稳定区边界 ($q_r(^{87}\text{Rb}^+) > 1$)。按单组分理论，原子离子应无法稳定囚禁；但因多组分协同囚禁效应，体系中仍可保持可观测的离子信号。因此，该频率区间为研究传统稳定区以外的离子-原子碰撞提供了实验条件。

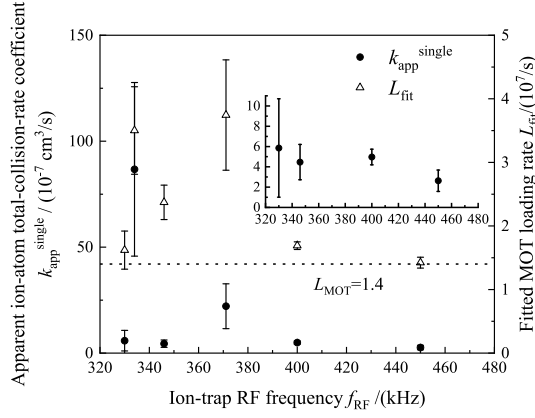


图 1 线性 Paul 阱扩展稳定区中表观离子-原子总碰撞速率系数和拟合装载率随离子阱射频频率的变化。离子阱射频场振幅固定为 $U_{\text{RF}} = 140$ V。左轴为在固定参考离子云体积下得到的表观离子-原子总碰撞速率系数 $k_{\text{app}}^{\text{single}}$ ，右轴为由原子数演化拟合得到的 MOT 装载率 L_{fit} 。水平虚线表示通过无离子条件下 MOT 装载曲线独立测得的装载率 L_{MOT} 。

Fig. 1. Apparent ion-atom total-collision-rate coefficient and fitted loading rate as functions of the ion-trap RF frequency in the extended stability region of the linear Paul trap. The ion-trap RF amplitude is fixed at $U_{\text{RF}} = 140$ V. The left axis shows the apparent ion-atom total-collision-rate coefficient $k_{\text{app}}^{\text{single}}$, extracted using a fixed reference ion-cloud volume, and the right axis shows the MOT loading rate L_{fit} obtained from fitting the atom-number evolution. The horizontal dashed line indicates the independently measured MOT loading rate L_{MOT} obtained from the MOT loading curve without ions.

图 1 给出了 330–400 kHz 区间内拟合得到的表观离子-原子总碰撞速率系数 $k_{\text{app}}^{\text{single}}$ 和装载率 L_{fit} 。可以看到，拟合结果在不同频率区域表现出明显差异：在靠近参数共振的频率点附近，即此前工作中识别出的两个参数共振特征频率约 336 kHz 和 371 kHz 附近^[10]， $k_{\text{app}}^{\text{single}}$ 的拟合不确定度显著增大，部分频率点甚至给出异常偏大的表观离子-原子总碰撞速率系数；同时， L_{fit} 也明显偏离由独立 MOT 装载曲线测得的 L_{MOT} 。相比之下，在远离参数共振结构的频率点，例如 346 kHz、400 kHz 以及作为参考的 450 kHz， $k_{\text{app}}^{\text{single}}$ 的误差明显减小， L_{fit} 也更接近 L_{MOT} ，说明这些频率点的原子数演化能够被简化速率方程较好描述。

这种频率依赖的拟合稳定性与扩展稳定区中的离子云动力学密切相关。该频率范围并非普通单组分稳

定囚禁区,而是由多组分离子协同囚禁支撑的扩展稳定区。此前研究表明,在参数共振附近,由于势阱非理想性、空间电荷效应以及不同方向振荡模式之间的耦合,原本单一的参数共振可分裂为两个特征频率^[10]。在本文的碰撞测量中,电离光关闭后离子数随时间逐渐减小,空间电荷效应随之减弱,离子云的集体模频率和参数共振位置也可能发生漂移。因此,靠近参数共振的频率点处,离子数 $N_i(t)$ 、离子云空间分布以及离子-原子重叠体积都可能呈现非平稳演化,难以由固定体积和缓变离子数的简化速率模型充分描述。此时,拟合过程可能将这些非平稳离子动力学误差部分吸收到 $k_{\text{app}}^{\text{single}}$ 和 L_{fit} 中,从而导致表观离子-原子总碰撞速率系数异常偏大、误差增大以及 L_{fit} 偏离 L_{MOT} 。

因此,本文不将参数共振附近得到的巨大 $k_{\text{app}}^{\text{single}}$ 直接解释为真实碰撞概率的定量增强,而将其视为扩展稳定区内强非平稳离子动力学对简化速率模型的影响。相反,远离参数共振点的 346 kHz 和 400 kHz 频率点具有更小的拟合误差,并且 L_{fit} 与独立测得的 L_{MOT} 更接近,因此更适合用于定量比较扩展稳定区中的表观碰撞响应。基于这些相对可靠的频点,346 kHz 处的 $k_{\text{app}}^{\text{single}}$ 高于 400 kHz,且二者均高于 450 kHz 的参考结果,表明在远离参数共振奇异点的低频扩展稳定区内,表观离子-原子总碰撞响应仍呈现增强趋势。

需要指出的是, L_{fit} 与 L_{MOT} 的比较在这里主要作为拟合自治性的辅助判据。若 L_{fit} 与无离子条件下独立测得的 L_{MOT} 接近,说明原子数演化主要可由 MOT 装载、本征原子损失和离子诱导总碰撞损失共同描述;若 L_{fit} 明显偏离 L_{MOT} ,则提示离子云演化、重叠体积变化或局域原子分布变化可能已超出简化模型的适用范围。离子存在是否会改变局域冷原子装载率、光场平衡或原子云空间分布仍是一个开放问题,本文不将 $L_{\text{fit}} > L_{\text{MOT}}$ 本身作为新的物理效应,而是用其判断速率方程拟合结果的可靠性。

在固定参考离子云体积 V_0 的前提下,拟合结果显示 346 kHz 处的 $k_{\text{app}}^{\text{single}}$ 大于 400 kHz,且二者均高于前期在 450 kHz 处得到的值^[9]。该趋势表明,随着离子阱射频场频率降低并进入 $q_r(^{87}\text{Rb}^+) > 1$ 的协同囚禁区,离子引起的原子损失显著增强。

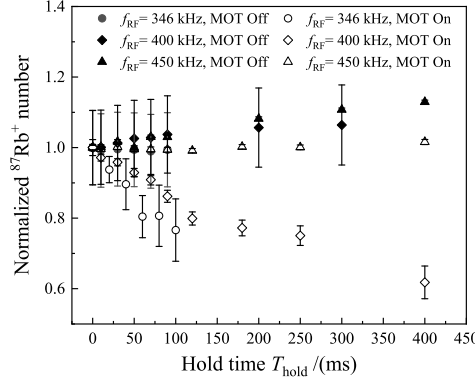


图 2 不同离子阱射频场频率下有无冷原子时 $^{87}\text{Rb}^+$ 信号的时间演化。离子阱射频场振幅固定为 $U_{\text{RF}} = 140 \text{ V}$ ，频率分别为 450 kHz、400 kHz 和 346 kHz。在完成离子制备后关闭电离光，并比较磁光阱开启（MOT on，有冷原子）和关闭（MOT off，无冷原子）条件下 $^{87}\text{Rb}^+$ 信号随保持时间的变化。

Fig. 2. Time evolution of the $^{87}\text{Rb}^+$ signal with and without cold atoms at different ion-trap RF frequencies. The ion-trap RF amplitude is fixed at $U_{\text{RF}} = 140 \text{ V}$, and the RF frequencies are 450 kHz, 400 kHz, and 346 kHz. After ion production, the ionization laser is switched off, and the $^{87}\text{Rb}^+$ signal is recorded as a function of hold time with the magneto-optical trap on (MOT on, with cold atoms) and off (MOT off, without cold atoms).

为进一步验证这一趋势，图2直接比较了有、无冷原子存在条件下原子离子 $^{87}\text{Rb}^+$ 信号随时间的演化，选取 450 kHz、400 kHz 和 346 kHz 三个代表性频率。无冷原子时，原子离子数的变化主要反映自身阱损失、分子离子解离及多组分离子云内部演化；有冷原子时，额外的离子-原子碰撞改变 $^{87}\text{Rb}^+$ 的演化。结果显示，随着离子阱射频场频率从 450 kHz 降至 400 kHz 和 346 kHz，有冷原子存在时原子离子的损失显著加快，而无冷原子条件下的变化相对较小。这一对比直接说明，低频射频场下原子离子-原子碰撞引起的损失过程明显增强。

上述现象与前期在 450 kHz 观测到的原子离子-原子放热非弹性碰撞增强一致^[9]，且在更低频的扩展稳定区中更加显著。对此可作如下解释：低频射频场可能提高了阱辅助离子-原子瞬态复合物的形成概率。在线性 Paul 阱中，时间依赖射频场可与离子-原子相对运动交换能量和动量；当射频场在碰撞过程中有效降低相对运动能量时，原子可被更长时间地束缚在离子-原子吸引势中，形成瞬态复合物并经历多次短程相遇。随着射频频率降低，原子离子的 Mathieu 参数和微运动幅度增大，射频场参与能量-动量交换的效

率增强，从而可能提高了复合物形成概率或延长了其寿命。多次短程相遇可能增加放热非弹性通道的发生概率，最终表现为原子离子损失增强和表观离子-原子总碰撞速率系数升高。

综上，扩展稳定区中的测量给出两点结论。第一，协同囚禁效应不仅使多组分铷离子在单组分不稳定区内保持存在，也使该区域成为研究射频场影响碰撞动力学的新参数空间。第二，随着射频频率降低，原子离子-冷原子放热非弹性碰撞显著增强，符合低频射频场有利于形成阱辅助离子-原子瞬态复合物、并通过增加多次短程相遇概率增强非弹性衰变的物理图像。

3.2 双射频场中表观离子-原子总碰撞速率系数的辅助频率依赖

在单射频扩展稳定区的测量之后，本节讨论双射频场条件下多组分铷离子与冷铷原子的碰撞动力学。主射频场参数固定为 ($\Omega_{\text{RF}}/2\pi = 550$ kHz, $U_{\text{RF}} = 140$ V)，该条件对应前期工作中较稳定的单射频囚禁与碰撞测量区域。辅助射频场振幅固定为 $U_{\text{aux}} = 1$ V，扫描频率范围为 380–480 kHz，主要覆盖原子离子 $^{87}\text{Rb}^+$ 的低频边带区域，即 $\Omega_{\text{RF}} - \omega_r(^{87}\text{Rb}^+)$ 附近。

在相同双射频条件下，我们测量了冷原子数和离子数的时间演化，并采用与单射频测量相同的速率方程提取在固定参考离子云体积下定义的表观离子-原子总碰撞速率系数 k_{app} ，这主要用于比较同一实验模式内不同射频参数下的相对响应，不是自由空间中单次二体碰撞的微观速率系数。对于双射频场测量，参考离子云体积采用仅有主射频场 (550 kHz, 140 V) 条件下的仿真离子云体积。由于辅助射频场可能改变离子云空间分布和离子-原子重叠体积，所得 $k_{\text{app}}^{\text{dual}}$ 仍应理解为固定参考体积下的表观量，主要用于比较不同辅助射频频率下的相对变化。

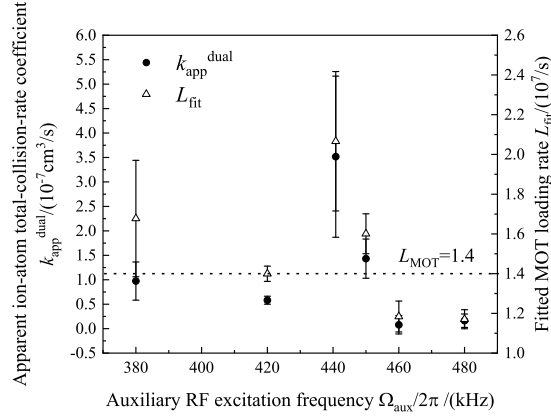


图 3 双射频场中表观离子-原子总碰撞速率系数 $k_{\text{app}}^{\text{dual}}$ 和拟合装载率 L_{fit} 随辅助射频频率的变化。主射频场参数固定为 $\Omega_{\text{RF}}/2\pi = 550$ kHz、 $U_{\text{RF}} = 140$ V，辅助射频场振幅固定为 $U_{\text{aux}} = 1$ V，辅助射频频率扫描范围为 380–480 kHz。左轴为在固定参考离子云体积下得到的表观离子-原子总碰撞速率系数 $k_{\text{app}}^{\text{dual}}$ ，右轴为由原子数演化拟合得到的 MOT 装载率 L_{fit} 。水平虚线表示通过无离子条件下 MOT 装载曲线独立测得的装载率 L_{MOT} 。

Fig. 3. Apparent ion-atom total-collision-rate coefficient $k_{\text{app}}^{\text{dual}}$ and fitted loading rate L_{fit} as functions of the auxiliary RF frequency in the dual-RF configuration. The main RF field is fixed at $\Omega_{\text{RF}}/2\pi = 550$ kHz and $U_{\text{RF}} = 140$ V, while the auxiliary RF amplitude is fixed at $U_{\text{aux}} = 1$ V. The auxiliary RF frequency is scanned over 380–480 kHz. The left axis shows the apparent ion-atom total-collision-rate coefficient $k_{\text{app}}^{\text{dual}}$, extracted using a fixed reference ion-cloud volume, and the right axis shows the MOT loading rate L_{fit} obtained from fitting the atom-number evolution. The horizontal dashed line indicates the independently measured MOT loading rate L_{MOT} obtained from the MOT loading curve without ions.

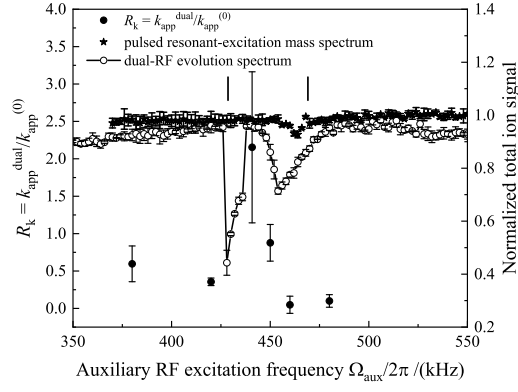


图 4 辅助射频频率扫描下的归一化表观离子-原子总碰撞速率系数、短脉冲共振激发质谱和双射频演化谱。左轴为归一化表观离子-原子总碰撞速率系数 $k_{\text{app}}^{\text{dual}}/k_{\text{app}}^{(0)}$ ，其中 $k_{\text{app}}^{(0)}$ 为仅施加主射频场 ($\Omega_{\text{RF}}/2\pi = 550$ kHz, $U_{\text{RF}} = 140$ V) 时得到的表观离子-原子总碰撞速率系数。右轴为归一化总离子数信号，分别对应短脉冲共振激发质谱和双射频演化谱；其中总离子数均以仅施加主射频场 ($\Omega_{\text{RF}}/2\pi = 550$ kHz, $U_{\text{RF}} = 140$ V) 时测得的最大总离子数进行归一化。短脉冲共振激发质谱中，离子首先在主射频场 (550 kHz, 140 V) 下制备并囚禁 750 ms，随后施加振幅为 4 V、作用时间为 1 ms 的辅助射频场并扫描其频率。双射频演化谱中，主射频场 (550 kHz, 140 V) 与振幅为 1 V 的辅助射频场在整个 750 ms 离子制备和演化过程中同时开启。竖直实线标示 $^{87}\text{Rb}^+$ 的低频边带 $\Omega_{\text{RF}} - \omega_r$ 和分数阶参数共振边带 $\Omega_{\text{RF}} - 2\omega_r/3$ 的理论位置。

Fig. 4. The left axis shows $k_{\text{app}}^{\text{dual}}/k_{\text{app}}^{(0)}$, where $k_{\text{app}}^{(0)}$ is measured with only the main RF field ($\Omega_{\text{RF}}/2\pi = 550$ kHz, $U_{\text{RF}} = 140$ V). The right axis shows the normalized total ion signal for the short-pulse resonant-excitation mass spectrum and the dual-RF evolution spectrum, normalized to the maximum ion number obtained under the main RF field alone. For the short-pulse resonant-excitation mass spectrum, ions are produced and trapped for 750 ms with the main RF field, followed by a 1 ms, 4 V auxiliary RF pulse whose frequency is scanned. For the dual-RF evolution spectrum, the main RF field and a 1 V auxiliary RF field are applied simultaneously during the entire 750 ms ion-production and evolution period. The vertical solid lines indicate the theoretical positions of the $^{87}\text{Rb}^+$ low-frequency sideband, $\Omega_{\text{RF}} - \omega_r$, and the fractional-parametric-resonance sideband, $\Omega_{\text{RF}} - 2\omega_r/3$.

图3 给出了固定参考体积下提取的 $k_{\text{app}}^{\text{dual}}$ 以及拟合得到的装载率 L_{fit} 随辅助射频频率的变化。可以看到， L_{fit} 与无离子条件下独立测得的 L_{MOT} 基本处于同一量级，说明速率方程拟合在当前频率范围内具有

一定自洽性；但由于双射频场下离子云体积和重叠体积未知， $k_{\text{app}}^{\text{dual}}$ 仍主要用于相对比较。同时， $k_{\text{app}}^{\text{dual}}$ 对辅助射频频率表现出显著的非单调依赖。在主射频场保持不变时，弱辅助射频场可使表观碰撞响应产生频率选择性的起伏。这说明即使主射频场保持不变，弱辅助射频场也能显著改变表观离子-原子总碰撞响应。

为区分辅助射频场的短时运动激发与长期双射频演化两种效应，我们进一步比较短脉冲共振激发质谱和双射频演化谱，并将归一化表观离子-原子总碰撞速率系数 $R_k = k_{\text{app}}^{\text{dual}}/k_{\text{app}}^{(0)}$ 与两类谱线一并绘于图4中。这里 $k_{\text{app}}^{(0)}$ 为仅施加主射频场 (550 kHz, 140 V) 时得到的表观离子-原子总碰撞速率系数。短脉冲共振激发质谱中，辅助射频场仅在离子云制备完成后作用 1 ms 或更短，主要反映已形成离子云对辅助场的快速运动共振响应。该谱线在约 464 kHz 处出现一个明显凹陷。双射频演化谱中，主射频场和辅助射频场从离子产生阶段起同时开启，并共同作用于 750 ms 的离子生成、加载、囚禁和多组分演化过程，总离子数随辅助射频频率的变化出现两个凹陷，分别位于约 428 kHz 和 455 kHz。

双射频演化谱的 428 kHz 和 455 kHz 这两个凹陷可能与原子离子的边带响应相关联。因为一阶低频边带位置为 $(\Omega_{\text{RF}} - \omega_r)$ ，根据主射频场条件下 $^{87}\text{Rb}^+$ 的理论径向宏运动频率 $\omega_r/2\pi \approx 121$ kHz，其分数阶参数共振 $\frac{2}{3}\omega_r/2\pi$ 约为 80 kHz，相应的一阶低频边带位置约为 429 kHz 和 470 kHz，与这两个凹陷基本对应。其与理论值的偏移可能来源于空间电荷效应、阱势非理想性、多组分离子耦合以及长时间演化中离子数变化引起的共振频率漂移。

短脉冲激发谱出现的 464 kHz 的凹陷，它更接近 $^{87}\text{Rb}^+$ 的分数阶参数共振 $\frac{2}{3}\omega_r/2\pi$ 的一阶低频边带位置 470 kHz。这可能是因为短脉冲共振激发谱中，辅助射频场作用时间很短，对离子云的干扰更小。短脉冲激发谱没有出现双射频演化谱中出现的 428 kHz 凹陷，我们猜测，在短脉冲条件下不明显的弱边带或集体响应，经过 750 ms 的双射频持续作用后可能被累积增强，并最终表现为可观测的离子损失结构。事实上，已有线性 Paul 阱离子云研究表明^[20]，分数阶参数共振 (Fractional parametric resonances) 的激发存在明确的阈值行为 (threshold behavior)，只有当外加的激发场 (射频场) 场强超过某个临界值 (critical strength / critical voltage) 时，才能被观察到。

图4进一步显示，表观离子-原子总碰撞速率系数的辅助频率依赖与这些共振结构存在明显关联。当辅助射频频率远离主要共振结构时，例如 380 kHz，表观离子-原子总碰撞速率系数接近仅施加主射频场时的结果，归一化比值为 $R_k(380 \text{ kHz}) = 0.97 \pm 0.39$ 。当辅助射频频率接近原子离子低频边带 $\Omega_{\text{RF}} - \omega_r$ 时，表观碰撞响应明显降低。例如在 420 kHz，有 $R_k(420 \text{ kHz}) = 0.58 \pm 0.08$ 。当辅助射频频率接近分数阶参数共振边带 $\Omega_{\text{RF}} - 2\omega_r/3$ 时，表观碰撞响应进一步减小。例如在 460 kHz，拟合中心值在 460 kHz 附近达

到最小, $R_k(460 \text{ kHz}) = 0.079 \pm 0.19$, 但由于该点相对不确定度较大, 其绝对数值应谨慎理解。相反, 在两个共振区域之间, 表观碰撞响应显著增强。例如在 440.8 kHz , $R_k(440.8 \text{ kHz}) = 3.52 \pm 1.65$ 。因此, 辅助射频场对表观离子-原子总碰撞速率系数的影响并非简单的单调增强或抑制, 而是在不同共振结构附近表现出强烈的频率选择性。

这一结果与单射频扩展稳定区中的低频增强现象形成对比。在单射频扫描中, 降低离子阱射频场频率会同时改变 Mathieu 参数、微运动幅度、阱深、离子云分布以及离子-原子重叠条件, 因此观测到的是射频场整体改变后的碰撞响应。双射频实验中, 主射频场固定, 辅助射频场仅作为弱周期扰动参与离子运动和碰撞演化。实验结果表明, 辅助射频场在接近不同运动共振结构时可显著改变表观碰撞响应: 在低频边带和分数阶参数共振边带附近, R_k 明显降低; 而在两个共振结构之间, R_k 出现局部增强。这说明辅助射频场并非简单促进或抑制阱辅助离子-原子瞬态复合物形成, 而可能通过改变离子运动能量分布、扰动低能离子子群、改变多次短程相遇条件以及影响瞬态复合物寿命和衰变分支, 对离子-原子碰撞动力学产生频率选择性影响。

此外, $k_{\text{app}}^{\text{dual}}$ 的频率依赖与总离子数凹陷之间并非严格一一对应。 428 kHz 附近的窄深凹陷主要表现为离子云在长期辅助场作用下的强频率选择性损失, 对应原子离子低频边带; $455\text{--}464 \text{ kHz}$ 附近的宽凹陷则可能与分数阶参数共振边带或高阶组合响应有关。这些不同类型的共振可能分别改变离子云稳定性、离子能量分布、低能离子子群比例以及离子-原子重叠条件, 从而对 $k_{\text{app}}^{\text{dual}}$ 产生不同影响。因此, 辅助射频频率附近的离子损失结构和表观碰撞响应之间存在相关性, 但不能简单理解为总离子损失越强, 表观离子-原子总碰撞速率系数越大或越小。

综上, 双射频实验给出两点主要结论。第一, 在主射频场固定的条件下, 辅助射频场可显著改变多组分离子云的长期演化谱, 尤其在原子离子低频边带区域出现短脉冲谱中未显示的额外共振结构。第二, 辅助射频场对表观离子-原子总碰撞速率系数的影响具有强烈的频率依赖和非单调性: 远离共振时 $k_{\text{app}}^{\text{dual}}$ 接近单射频参考值, 在两个共振边带附近明显降低, 而在两个共振区域之间出现局部增强。该结果提示, 辅助射频场可通过改变离子运动、低能离子子群以及阱辅助离子-原子瞬态复合物的形成、寿命或衰变通道, 影响离子-原子碰撞动力学。后续需要系统改变辅助射频场振幅并扩大频率扫描范围, 以进一步区分边带共振、分数阶参数共振、高阶组合频率以及离子云体积变化对 $k_{\text{app}}^{\text{dual}}$ 的不同贡献。

4 讨论

本文测量的 k_{app} 是表观离子-原子总碰撞速率系数，而非自由空间中单次二体碰撞的微观速率系数。其表观性首先来自碰撞动力学本身：实验无法直接分辨一次初始俘获事件中发生了多少次短程相遇，也无法区分弹性碰撞、非弹性碰撞、复合物形成和解离等多步过程。其次， k_{app} 的绝对数值还依赖于离子云体积和离子-原子重叠体积。在扩展稳定区和双射频场中，离子云分布很可能随射频参数和演化时间变化，目前尚无法可靠仿真。因此，本文主要将 k_{app} 用作统一参考体积下比较不同射频条件时的表观碰撞响应，而不将其解释为严格绝对定标的微观速率系数。尽管如此， k_{app} 的频率依赖与离子演化谱、有无冷原子时原子离子损失对比之间表现出系统相关性，说明这些变化反映了真实的碰撞动力学特征，而非仅源于拟合或标定误差。下面讨论固定参考离子云体积假设对本文结论的影响。

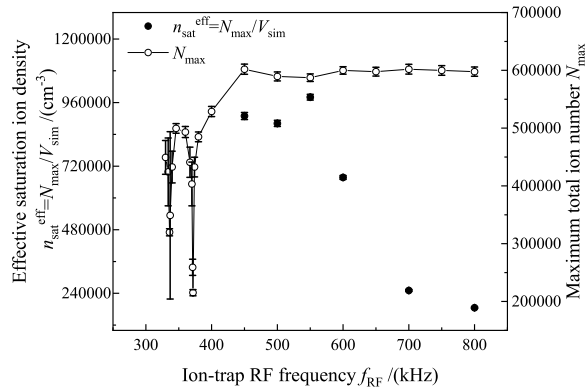


图 5 不同离子阱射频频率下的有效饱和离子密度和最大总离子数。离子阱射频场振幅固定为 $U_{\text{RF}} = 140$ V。左轴为有效饱和离子密度 $n_{\text{sat}}^{\text{eff}}(f) = \frac{N_{\text{max}}(f)}{V_{\text{sim}}(f)}$ ，右轴为实验测得的最大总离子数 $N_{\text{max}}(f)$ 。其中 $N_{\text{max}}(f)$ 和仿真离子云体积 $V_{\text{sim}}(f)$ 取自文献 [9]。

Fig. 5. Effective saturation ion density and maximum total ion number as functions of the ion-trap RF frequency. The ion-trap RF amplitude is fixed at $U_{\text{RF}} = 140$ V. The left axis shows the effective saturation ion density, $n_{\text{sat}}^{\text{eff}}(f) = \frac{N_{\text{max}}(f)}{V_{\text{sim}}(f)}$ and the right axis shows the experimentally measured maximum total ion number $N_{\text{max}}(f)$. Here, $N_{\text{max}}(f)$ and the simulated ion-cloud volume $V_{\text{sim}}(f)$ are taken from Ref. [9].

如前所述，随时间演化的原子数和离子数实验测量直接给出的量为 $k_{\text{app}}/V_{\text{eff}}$ 型的表观碰撞响应，其中 V_{eff} 表示由离子云体积及离子-原子重叠体积共同决定的有效体积。本文为比较不同射频条件下的碰撞

响应，采用固定参考体积 V_0 将其换算为表观离子-原子总碰撞速率系数 k_{app} 。若实际有效体积为 V_{eff} ，则体积修正后的表观速率标度满足 $k_{\text{app}}^{\text{true}} = k_{\text{app}} \cdot V_{\text{eff}}/V_0$ 。因此，固定体积假设影响的是速率系数的绝对标度，不改变原子损失实验直接给出的频率依赖特征。

在单射频扩展稳定区中，如图5所示，在 450–800 kHz 区间的实验和仿真结果表明^[9]，固定射频振幅时，最大离子数在较宽频率范围内近似相同，而离子云体积在 500–550 kHz 附近较小。这说明不同射频条件下的有效饱和密度并非常数，低频区域倾向于具有更大的离子云体积和更低的有效密度。尽管 346 kHz 和 400 kHz 处的最大离子数略小于 450 kHz 的结果，但若其有效饱和密度也随频率降低而减小，则实际离子云体积可能大于参考体积 V_0 。在此情形下，本文给出的 346 kHz 和 400 kHz 的表观离子-原子总碰撞速率系数应视为保守估计；体积修正不会削弱低频增强的结论，反而可能使低频下的表观离子-原子总碰撞速率系数进一步增大。

在双射频场中，如图4所示，远离辅助场共振频率时，归一化总离子数信号接近仅施加主射频场时的结果，表明弱辅助射频场对整体离子信号和平均离子云尺度的影响有限。因此，采用主射频场 550 kHz 条件下的参考体积进行相对比较可作为一阶近似。共振点附近的情况则不同：辅助射频场可引起频率选择性加热和离子损失，导致离子云体积、离子密度和离子-原子重叠体积均可能发生变化。若共振加热使实际有效体积 V_{eff} 大于参考体积 V_0 ，则固定体积假设下得到的 k_{app} 会低估体积修正后的表观离子-原子总碰撞速率。因此，共振点附近较小的拟合 k_{app} 不能直接解释为微观碰撞概率的降低，而应理解为辅助射频场同时改变了碰撞动力学和离子云空间分布的综合结果。

综上，本文关于频率依赖性的主要结论并不依赖于绝对离子云体积的精确定标。单射频实验的关键事实是：低频扩展稳定区内，有冷原子存在时原子离子损失显著增强，且固定参考体积下的 k_{app} 高于 450 kHz 的结果。双射频实验的关键事实是：主射频场固定时，辅助射频场引入了频率选择性的离子演化结构，并使表观碰撞响应呈现非单调变化。离子云体积的不确定性主要影响表观离子-原子总碰撞速率系数的绝对标度和共振点附近的定量解释，而不改变射频场频率显著影响多组分离子-原子碰撞动力学的实验结论。

5 结论

本文基于多组分铷离子-冷铷原子混合阱平台，围绕线性 Paul 阱协同囚禁扩展稳定区和双射频场两种条件，研究了射频场频率对离子-原子碰撞响应的影响。实验上，我们通过连续光电离冷 ^{87}Rb 原子制备了包含原子离子和分子离子的多组分铷离子云，并通过飞行时间质谱和原子吸收成像分别获得离子数和原子

数的时间演化,并结合速率方程模型提取在固定参考离子云体积下定义的表观离子-原子总碰撞速率系数,用以比较不同射频条件下的相对碰撞响应。该系数的绝对值不应理解为自由空间单一微观通道的二体速率系数。

在单射频场中,我们将离子阱射频场频率降低至 330–400 kHz 区间,使 $^{87}\text{Rb}^+$ 的 Mathieu 参数进入 $q_r(\text{Rb}^+) > 1$ 的传统单组分不稳定区。由于多组分离子之间的协同囚禁效应,离子云在该区域内仍可保持存在。远离参数共振点的 346 kHz 和 400 kHz 频率点给出了较可靠的表观离子-原子总碰撞速率系数,其中 346 kHz 的 k_{app} 高于 400 kHz,二者均高于 450 kHz 的结果。有无冷原子条件下原子离子演化的直接比较进一步表明,随着射频频率降低,原子离子-原子放热非弹性碰撞显著增强。该结果说明,协同囚禁扩展稳定区为研究射频场参与离子-原子碰撞动力学提供了新的参数空间。

在双射频场中,主射频场固定为 550 kHz、140 V,辅助射频场以 1 V 振幅扫描 380–480 kHz 区间。短脉冲共振激发质谱仅在约 464 kHz 附近出现一个凹陷,而双射频演化谱在约 428 kHz 和 455 kHz 附近出现两个凹陷,分别可与原子离子低频边带和分数阶参数共振边带相关联。双射频条件下的表观离子-原子总碰撞速率系数表现出强烈的辅助频率依赖:远离主要共振结构时接近仅有主射频场时的参考值,在低频边带和分数阶参数共振边带附近明显降低,而在两个共振区域之间出现局部增强。这表明辅助射频场对碰撞响应的影响不是简单的增强或抑制,而是与离子云运动共振结构密切相关。

总体来看,本文结果支持阱辅助离子-原子瞬态复合物作为理解多组分离子-原子碰撞动力学的统一物理图像。在单射频低频扩展稳定区中,射频场可能促进阱辅助离子-原子瞬态复合物形成并增加多次短程相遇概率,从而增强放热非弹性碰撞;在双射频场中,辅助射频场则可能通过改变离子运动、低能离子子群和复合物寿命,对表观碰撞响应产生频率选择性影响。未来工作需要进一步扩大辅助射频扫描范围,系统改变辅助射频振幅,并发展能够描述协同囚禁和双射频场中离子云体积、能量分布及离子-原子重叠的数值模型,以实现射频场影响碰撞动力学机制的更定量理解。

参考文献

- [1] Tomza M, Jachymski K, Gerritsma R, Negretti A, Calarco T, Idziaszek Z, Julienne P S 2019 *Rev. Mod. Phys.* **91** 035001
- [2] Deiß M, Willitsch S, Hecker Denschlag J 2024 *Nat. Phys.* **20** 713
- [3] Cetina M, Grier A T, Vuletić V 2012 *Phys. Rev. Lett.* **109** 253201

- [4] Hirzler H, Trimby E, Gerritsma R, Safavi-Naini A, Pérez-Ríos J 2023 *Phys. Rev. Lett.* **130** 143003
- [5] Pinkas M, Katz O, Wengrowicz J, Akerman N, Ozeri R 2023 *Nat. Phys.* **19** 1573
- [6] Chowdhury S, Pérez-Ríos J 2025 *Phys. Rev. A* **112** L061104
- [7] Liang Z, Shi R, Pérez-Ríos J 2025 *Phys. Rev. A* **112** 042815
- [8] Liang W C, Jia F D, Wang F, Zhang X, Wang Y H, Qian J Y, Hu X Q, Wu Y, Wang J G, Xue P, Zhong Z P 2024. arXiv:2303.10360 [physics.atom-ph]
- [9] Wang F, Liang W C, Yin W B, Qian J Y, Jia F D, Xue P, Zhong Z P 2026 *Phys. Rev. A* **113** 043105
- [10] Wang F, Qian J Y, Yin W B, Wang Y H, Liang W C, Jia F D, Xue P, Zhong Z P 2026 *Acta Phys. Sin.* **75** 070301. (in Chinese) [王飞, 钱镜宇, 殷伟博, 王昱寒, 梁玮宸, 贾凤东, 薛平, 钟志萍 2026 物理学报 75 070301]
- [11] Lv S F, Jia F D, Liu J Y, Xu X Y, Xue P, Zhong Z P 2017 *Chin. Phys. Lett.* **34** 013401
- [12] Li X K, Zhang D C, Lv S F, Liu J Y, Jia F D, Wu Y, Lin X H, Li R, Xu X Y, Xue P, Liu X J, Zhong Z P 2020 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **53** 219501
- [13] Drewsen M, Mortensen A, Martinussen R, Staannum P, Sørensen J L 2004 *Phys. Rev. Lett.* **93** 243201
- [14] Hall F H, Eberle P, Hegi G, Raoult M, Aymar M, Dulieu O, Willitsch S 2013 *Mol. Phys.* **111** 2020
- [15] Schmidt J, Honig D, Weckesser P, Thielemann F, Schaetz T, Karpa L 2020 *Appl. Phys. B* **126** 176
- [16] Berkeland D J, Miller J D, Bergquist J C, Itano W M, Wineland D J 1998 *J. Appl. Phys.* **83** 5025
- [17] Leibfried D, Blatt R, Monroe C, Wineland D 2003 *Rev. Mod. Phys.* **75** 281
- [18] Chu X Z, Holzki M, Alheit R, Weitha G 1998 *Int. J. Mass Spectrom. Ion Processes* **173** 107
- [19] Alheit R, Chu X Z, Hoefer M, Holzki M, Werth G, Blümel R 1997 *Phys. Rev. A* **56** 4023
- [20] Razvi M A N, Chu X Z, Alheit R, Werth G, Blümel R 1998 *Phys. Rev. A* **58** R34(R)

Frequency Dependence of Collision Dynamics between Multi-component Rubidium Ions and Cold Rubidium Atoms in the Extended Stability Region of a Linear Paul Trap and under Dual-RF Fields*

QIAN Jingyu¹⁾ WANG Fei²⁾ YIN Weibo¹⁾ JIA Fengdong¹⁾ XUE
Ping²⁾† ZHONG Zhiping¹⁾‡

1) (*School of Physical Sciences, University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China*)

2) (*State Key Laboratory of Low-Dimensional Quantum Physics, Department of Physics, Tsinghua University, Beijing 100084, China*)

Abstract

The collision dynamics in hybrid cold atom-ion systems is governed not only by short-range interactions in free space, but also by the time-dependent radio-frequency (RF) field of the linear Paul trap. The recently proposed picture of trap-assisted ion-atom transient complexes suggests that the RF trapping potential can modify the number of short-range ion-atom encounters and the probability of inelastic decay through energy and momentum exchange. In this work, based on a multispecies rubidium ion-cold rubidium atom hybrid trap, we prepare a multispecies ion cloud containing both atomic and molecular ions by continuous photoionization of cold ^{87}Rb atoms. We investigate the influence of the RF field on the collision dynamics in two complementary experimental configurations: one in which the system enters

* Project supported by the Natural Science Foundation of Beijing, China (Grant Nos. 1262044, 1252033), and the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 61975091, 61575108).

† Corresponding author. E-mail: xuep@tsinghua.edu.cn

‡ Corresponding author. E-mail: zpzhong@ucas.ac.cn

the cooperatively confined extended stability region of the linear Paul trap under a single RF field, and the other in which a weak auxiliary RF field is introduced while the main RF field is kept fixed.

In the single-RF configuration, the ion-trap RF frequency is reduced beyond the conventional single-species stability region. The multispecies ion cloud remains observable owing to cooperative confinement, and the apparent ion-atom total-collision-rate coefficient is extracted from the time evolution of the atom and ion numbers using a fixed reference ion-cloud volume. The results show that exothermic inelastic collisions between atomic ions and atoms are enhanced in the low-frequency extended stability region, indicating that the cooperatively confined region beyond the conventional stability boundary provides a new parameter space for studying RF-field-assisted collision dynamics.

In the dual-RF configuration, the main RF field maintains stable confinement, while the weak auxiliary RF field acts as an independent periodic perturbation and scans the sideband region of the atomic ions. The corresponding apparent ion-atom total-collision-rate coefficient shows a nonmonotonic dependence on the auxiliary RF frequency, indicating that the weak auxiliary RF field does not simply enhance collisions, but can modify the ion-cloud evolution and ion-atom collision response in a frequency-selective manner.

Together, these two experimental configurations show that the RF field of a linear Paul trap is not merely a passive confinement background, but can influence multispecies ion-atom collision processes by modifying ion motion, energy-momentum exchange, and the dynamics of trap-assisted ion-atom transient complexes.

Keywords: Trap-assisted ion-atom transient complexes, Hybrid ion-atom trap, Apparent ion-atom total-collision-rate coefficient