

亚声速 NH_3 分子束静电 Stark 减速的理论研究

刘建平 侯顺永 魏斌 印建平

Theoretical studies of electrostatic Stark deceleration for subsonic NH_3 molecular beams

Liu Jian-Ping Hou Shun-Yong Wei Bin Yin Jian-Ping

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 64, 173701 (2015) DOI: 10.7498/aps.64.173701

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.173701>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2015/V64/I17>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

光缔合制备超冷铯分子的温度测量

The temperature measurement for the ultracold Cs_2 molecules formed by photoassociation

物理学报.2014, 63(19): 193701 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.193701>

锶热原子束二维准直的动力学过程的蒙特卡罗模拟及实验研究

Simulations using Monte Carlo method and experiment on dynamics of two-dimensional collimated thermal atomic beam of strontium

物理学报.2013, 62(15): 153702 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.153702>

实现冷原子、冷分子光学囚禁的组合三光学势阱方案

A combinative triple-well optical trap for three-species cold atoms or molecules

物理学报.2011, 60(6): 063701 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.60.063701>

亚声速NH₃分子束静电Stark减速的理论研究*

刘建平 侯顺永 魏斌 印建平†

(华东师范大学, 精密光谱科学与技术国家重点实验室, 上海 200062)

(2015年2月4日收到; 2015年5月15日收到修改稿)

本文基于自行研制的第二代(180级)静电Stark减速器, 展开了对NH₃的有效减速与冷却的理论研究. 首先, 计算了NH₃分子在 $|J=1, K=1\rangle$ 量子态的Stark分裂, 研究了不同的同步相位角下, 减速器中NH₃分子的纵向相空间稳定区域; 接着, 采用Monte-Carlo方法研究了该分子在传统工作模式下的减速效果, 并讨论了该减速模式下多个参数(包括每级损失动能、分子波包末速度和相对减速效率)与同步相位角的依赖关系, 以及减速波包末速度与减速电压的关系, 研究发现: 采用传统的Stark减速模式, 当减速电压为 ± 13 kV、同步相位角 $\phi_0 = 26.08^\circ$ 时, 即可实现NH₃从280 m/s到6.7 m/s的有效减速, 对应平动动能减少了99.9%, 其波包温度由1.34 K降至80 mK; 最后, 研究了先聚束后减速模式下NH₃分子的减速效果, 以及该减速模式下减速波包末速度与同步相位角的依赖关系, 结果表明: 当减速电压为 ± 6.5 kV, 采用前15级电极作为聚束电极, 后165级作为减速电极时, 可将NH₃分子波包的中心速度由280 m/s减至20.7 m/s, 平动动能减少了99.4%, 温度由1.34 K降至1.6 mK, 与传统减速模式相比, 冷分子波包温度降低至1/50. 由此可见, 采用180级的传统Stark减速器完全可以实现具有较低Stark势能的NH₃分子的有效减速与冷却, 并获得温度约为1 mK的冷分子波包, 为进一步的实验研究提供了可靠的理论依据.

关键词: 冷分子, Stark减速, 氨分子

PACS: 37.10.Mn, 37.10.-x, 37.10.Pq, 37.20.+j

DOI: 10.7498/aps.64.173701

1 引言

近年来, 冷分子物理作为一门新兴学科, 受到了人们的广泛关注^[1,2]. 冷分子(尤其是冷的极性气相分子)之所以如此吸引人, 是因为它有着广阔的应用前景, 例如: 冷分子可以用于研究分子玻色-爱因斯坦凝聚形成过程中电偶极矩的各向异性相互作用^[3]、超流体相变^[4]、高分辨率光谱^[5]、精密测量(如基本物理常数的精密测量^[6]、电子电偶极矩的精密测量等^[7])、量子信息和量子计算^[8], 还可用于研究冷化学^[9]和冷碰撞^[10]. 目前, 制备冷分子的方法可以分成两类: 直接制备和间接制备. 直接制备包括缓冲气体冷却^[11]、静电Stark减速^[12]、Zeeman减速^[13]、光学Stark减速^[14-17]以及最近

实现的激光冷却^[18]等; 间接制备主要包括光子缔合技术^[19]和磁场的Feshbach共振技术^[20]等. 1999年, Meijer小组率先在实验上实现极性分子的静电Stark减速^[12]. 他们利用63级Stark减速器, 将CO分子波包的纵向中心速度由225 m/s减至98 m/s. 自此, 人们在实验上相继实现了NH等^[21], OH^[22], YbF^[23], SO₂^[24], CaF^[25], H₂CO^[26]等样品分子的静电Stark减速.

采用静电Stark技术获得的冷分子波包具有速度可调谐、高能量分辨率(速度分布宽度窄)、高量子态纯度等优点, 因此已广泛应用于分子的静电囚禁^[27-32]、精密测量^[6]、冷碰撞^[33-36]等研究领域. 为了进一步提高分子波包的能量分辨率, Meijer小组利用Stark减速器先将亚声速的ND₃分子减至

* 国家自然科学基金(批准号: 10674047, 10804031, 10904037, 10974055, 11034002, 11274114)、国家重点基础研究发展计划(批准号: 2006CB921604, 2011CB921602)、上海市基础重点项目(批准号: 07JC14017)和上海市重点学科建设项目(批准号: B408)资助的课题.

† 通信作者. E-mail: jpyin@phy.ecnu.edu.cn

理想速度,再使减速波包经六级杆聚焦进入5级聚束电极(结构类似于Stark减速器,但尺寸加倍).经聚束后的波包其纵向速度分布宽度为0.76 m/s对应运动坐标系下的平动温度为0.25 mK^[37].这是迄今为止静电Stark减速获得的温度最低的冷分子样品.

由于NH₃分子具有较小的有效电偶极矩,故采用传统100级左右的Stark减速器难以实现NH₃分子的有效减速.例如,Meijer小组利用63级减速电极,在同步相位角 $\phi_0 = 70^\circ$ 时,仅将NH₃分子波包中心速度由255 m/s减至100 m/s^[38].显然,在如此大的同步相位角下,分子数目损失严重,获得的减速效果并不理想.又如,2013年Bethlem小组首先采用100级传统减速器将NH₃分子减至90 m/s(波包温度为20 mK),然后利用行波减速器才实现了NH₃分子的减速与囚禁^[39].然而,采用两个减速器大大增加了实验难度.由此可见,采用传统的200级左右的静电Stark减速器实现具有较低Stark势能(如NH₃)或小电偶极矩分子的有效减速有着重要的应用前景.为此,我们自行研制了第二代180级的静电Stark减速器,并以NH₃作为样品分子,采用蒙特卡罗模拟方法研究了传统Stark减速操控模式^[40-42]和先聚束后减速操控模式^[43,44]的动力学过程,由此获得了一些新的模拟结果和最佳参数,为下一步开展NH₃分子Stark减速的实验研究提供了理论依据.

2 NH₃分子Stark分裂的理论计算

具有固有电偶极矩的极性分子与非均匀电场相互作用的Stark势能可表示为

$$W = -\mu_{\text{eff}} |\mathbf{E}(\mathbf{r})|, \quad (1)$$

式中 $\mu_{\text{eff}} = \mu \langle \cos \theta \rangle$ 为有效电偶极矩(μ 为分子的固有电偶极矩), θ 为电偶极矩与外电场的夹角, $\langle \cos \theta \rangle$ 为分子所处量子态的量子力学平均值, $|\mathbf{E}(\mathbf{r})|$ 为电场的大小.当电偶极矩平行于外电场时,分子将被吸引到电场最强处,此类分子所处的量子态称为强场搜寻态;而当电偶极矩反平行于外电场时,分子将被排斥到电场最弱处,此类分子所处的量子态称为弱场搜寻态.

氨气是工业上常用的气体之一,这样以NH₃作为Stark减速的母体分子省去了相对复杂的制备过程.NH₃是金字塔构型的对称陀螺分子,属于C_{3v}群,其电偶极矩为1.47D.当氮原子穿过三个氢

原子所在平面时,就获得了NH₃的反演构型(三个氢原子朝上).这一特性使得该分子的 ν_2 振动模式具有两个最低能级(分别处于对称态和反对称态),这两个最低能态之间的能级分裂称为反演分裂.对于基态NH₃分子其反演分裂为0.79 cm⁻¹^[45].NH₃分子的转动能级用量子数 J, K, M 来描述,其中 J 是总角动量, K 是 J 在分子轴上的投影, M 是 J 在外场方向上的投影.当NH₃分子处在较弱电场中(小于150 kV/cm),不同 J 能级之间的相互作用可以忽略,其Stark势能可近似为

$$W = \pm \sqrt{\left(\frac{W_{\text{inv}}}{2}\right)^2 + \left(-\mu |\mathbf{E}(\mathbf{r})| \frac{KM}{J(J+1)}\right)^2}, \quad (2)$$

式中正号和负号分别对应处于弱场搜寻态和强场搜寻态的NH₃分子, W_{inv} 是零电场下NH₃的反演分裂.

图1给出了NH₃在电子基态的振动基态的转动能级 $J = 1$ 的Stark分裂.从图1可以看出:处于弱场搜寻态 $|J = 1, KM = -1\rangle$ 的NH₃分子,其Stark势能随着电场强度的增加而增加;而处于强场搜寻态 $|J = 1, KM = 1\rangle$ 的分子,其Stark势能随着电场的增加而减少.在较弱电场下,NH₃分子的Stark分裂之所以呈显出非线性特点,主要是因为零电场下反演分裂的存在,即(2)式中的 W_{inv} .

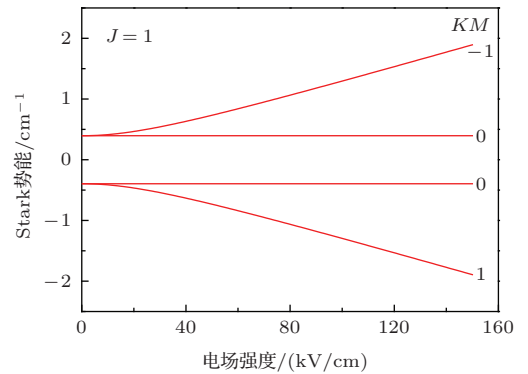


图1 处于 $|J = 1, K = 1\rangle$ 量子态NH₃分子的Stark分裂

Fig. 1. The Stark shift of NH₃ in the $|J = 1, K = 1\rangle$ state.

根据(1)式,极性分子在非均匀电场中受到的偶极力 $\mathbf{F}(\mathbf{r})$ 为

$$\mathbf{F}(\mathbf{r}) = \mu_{\text{eff}} \nabla |\mathbf{E}(\mathbf{r})|. \quad (3)$$

显然,当 μ_{eff} 小于零,偶极力为负,弱场搜寻态的分子被推到电场最弱处.静电Stark减速正是利用此力来实现弱场搜寻态分子的Stark减速.

3 实验装置及 Stark 减速的原理

我们小组自行研制的第二代静电 Stark 减速系统如图 2 所示. 以 NH_3 为母体分子、氙气为载气的混合气体 ($\text{Xe}:\text{NH}_3$ 为 0.95 : 0.05) 经由液氮冷却的脉冲阀装置形成亚声速分子束源. 六极杆到漏勺的距离为 31 mm, 它由六根长 40 mm、半径 1.5 mm 金属柱状电极构成, 此六根柱状电极在空间中平行等间距放置并围成一个半径为 3 mm 的圆. 六极

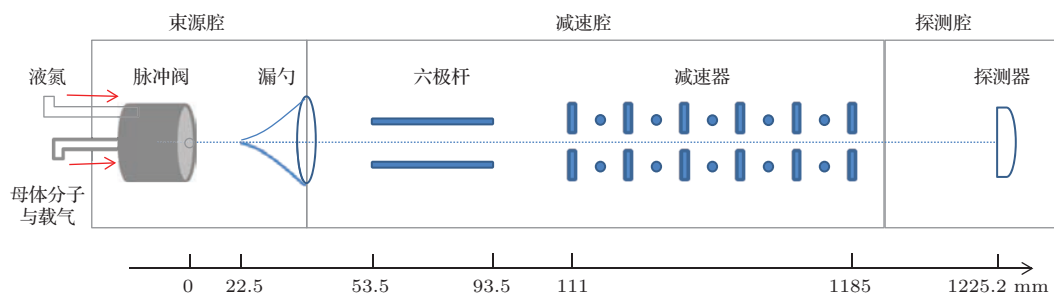


图 2 第二代静电 Stark 减速系统, 包括亚声速分子束源、六极杆、减速器和探测系统

Fig. 2. Configuration of Stark deceleration system, including the generation of subsonic molecular beams, hexapole, decelerator and its detecting system.

第二代静电 Stark 减速器有 180 级, 由一系列周期 $L = 6$ mm、奇数级与偶数级相互垂直放置的电极组成. 每一级由一对平行金属杆构成, 金属杆直径为 3 mm, 间距为 5 mm, 其中一个加正高压, 另一个加负高压. 奇数级电极连在一起, 偶数级电极连在一起. 我们用四个高压电源给减速器供电, 同时用四个高压开关来实现脉冲分子束和减速器的时序同步与控制.

该减速器在纵向产生类似正弦曲线的电场分布; 在垂直于电极的横向, 产生马鞍形的电场分布 (即中间电场弱, 越靠近电极电场越强), 因而对弱场搜寻态的 NH_3 分子有聚焦作用, 而在平行于电极的横向, 则不具备聚焦作用. 如图 3 所示, 处于弱场搜寻态的 NH_3 分子沿着减速器的轴向进入减速器后, 其 Stark 势能随着电场的增加而增加, 动能随之减小, 分子被减速; 离开电场最大处时, 分子的 Stark 势能减小, 动能增加, 分子被加速. 如果我们不对电场进行操控, 分子的动能将保持不变; 如果在分子离开电场最大处之前, 瞬间关闭电场, 分子将不会得到失去的动能, 也就是分子被减速了. 假如在关闭电场的同时, 打开下一级电场, 分子将继续被减速, 多次重复这一过程, 分子的动能将不断减小. 取分子束轴向为 Z 方向, 图 3 给出了 Stark 势能 $W(Z)$ 与分子束轴向位置 Z 的关系.

杆作为分子静电透镜, 可对弱场搜寻态的分子进行聚焦. 减速器位于六极杆后端 17.5 mm 处, 其总长度为 1074 mm. 探测器位于减速器后 40.2 mm 处. 分子束形成后, 通过漏勺准直, 其中处于弱场搜寻态 $|J = 1, KM = -1\rangle$ 的 NH_3 分子被六极杆横向聚焦, 再通过减速器减速, 最后到达探测区域. 分子束纵向中心速度为 280 m/s, 纵向速度分布半高宽 ΔV_Z 为 60 m/s, 对应移动坐标系中的平动温度为 1.34 K.

分子经过每一级所损失的动能与电场切换瞬间分子所处的位置有关. 为了描述此位置, 引入相位角 $\phi = (Z/L)\pi$, 其周期为 2π . 我们把每次切换电场时处于相同相位角的分子称为同步分子 (此时相位角即为同步相位角, 用 ϕ_0 表示). 将两级电极的中心位置定义为 $\phi_0 = 0^\circ$, 在此相位角下对分子进行操控, 分子既不减速也不加速, 我们称之为聚束. 将 Stark 势能最大处定义为 $\phi_0 = 90^\circ$, 在 $0^\circ < \phi_0 < 90^\circ$ 范围内即可实现分子的减速.

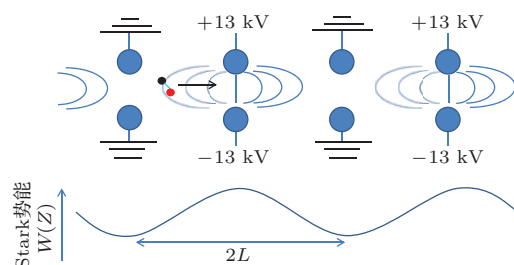


图 3 (网刊彩色) 静电 Stark 减速器的电极结构以及处于弱场搜寻态分子的 Stark 势能 $W(Z)$ 与分子束轴向位置 Z 的关系

Fig. 3. (color online) Scheme of Stark decelerator, together with the Stark energy $W(Z)$ of a molecular in low-field-seeking states as a function of position Z along the molecular beam axis.

分子在电极两侧的 Stark 势能 $W(Z)$ 具有对称性 (见图 3), 由此, 可对 Stark 势能 $W(\phi_0)$ 进行傅

里叶展开^[46]:

$$\begin{aligned}
 W(\phi_0) &= \frac{a_0}{2} + \sum_{n=0}^{\infty} a_n \cos(n(\phi_0 + \pi/2)) \\
 &= \frac{a_0}{2} - a_1 \sin \phi_0 - a_2 \cos(2\phi_0) \\
 &\quad + a_3 \sin(3\phi_0), \tag{4}
 \end{aligned}$$

即可得到同步分子每级损失动能 $\Delta E_k = W(\phi_0) - W(\phi_0 + \pi)$. 将(4)式取到 a_3 项, 则每级损失动能可以简化为 $\Delta E_k = 2a_1 \sin(\phi_0) + 2a_3 \sin(3\phi_0)$, 式中 a_1, a_3 为傅里叶展开系数. 对非同步分子, 其相位角和速度与同步分子的差(即相对相位角和相对纵向速度)可分别表示为: $\Delta\phi = \phi - \phi_0$, $\Delta V = V - V_0$ (ϕ 为非同步分子的相位角, V 为非同步分子纵向速度, V_0 为同步分子的纵向速度). 用 $\bar{F}(\phi_0)$ 来表示同步分子在每一级受到的平均作用力. 当 $\Delta V \ll V_0$, 作用同步分子的平均作用力可表示为 $\bar{F}(\phi_0) = -\Delta E_k(\phi_0)/L$, 那么作用于非同步分子的平均力为 $\bar{F}(\phi_0 + \Delta\phi) = -\Delta E_k(\phi_0 + \Delta\phi)/L$. 由此, 非同步分子相对于同步分子在减速器中的运动方程为

$$\begin{aligned}
 \frac{mL}{\pi} \frac{d^2 \Delta\phi}{dt^2} + \frac{2a_1}{L} (\sin(\phi_0 + \Delta\phi) - \sin(\phi_0)) \\
 = 0, \tag{5}
 \end{aligned}$$

式中 m 为分子质量. 当减速电压为 ± 13 kV 时, 对(5)式进行数值积分可以获得不同 ϕ_0 值的相空间稳定区域, 如图4所示. 该区域表示了 Stark 减速器的纵向接受区域的大小, 原则上处于相空间稳定区域内的 NH_3 分子可以无损耗地被传输到减速器末端. 由图4可以看出: 随着同步相位角的增大, 纵向相

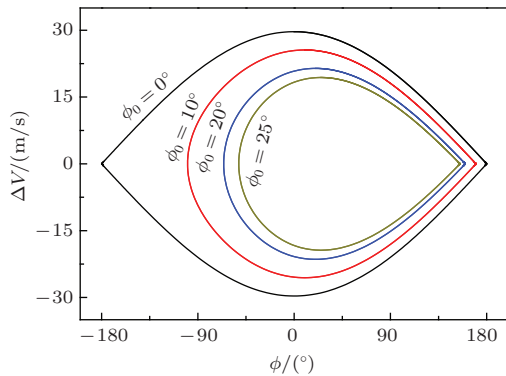


图4 (网刊彩色) 不同 ϕ_0 值时 NH_3 分子的纵向相空间稳定区域 (ΔV 为相对纵向速度)

Fig. 4. (color online) The longitudinal phase stable separatrix for different phase angles. ΔV is the relative longitudinal velocity of molecules. Some other parameters are given in the text.

空间区域变小. 这也意味着随着同步相位角的增大, 能被传输到减速器末端的分子数目将减少.

4 减速结果与分析

4.1 传统减速模式的结果与分析

图5为减速级数为180级、所加电压为 ± 13 kV 时, 用300万个分子进行蒙特卡罗模拟得到的飞行时间谱(time of flight, TOF). 从图5可知减速效果与同步相位角的依赖关系: 随着同步相位角的增大, NH_3 分子波包的末速度 (V_{final}) 逐渐减小. 当 ϕ_0 为 $5^\circ, 15^\circ$ 和 25° 时, 分子波包的末速度 V_{final} 分别为 253.2 m/s, 186.5 m/s 和 60.3 m/s. 特别地, 当同步相位角 $\phi_0 = 26.08^\circ$ 时, 分子波包的中心速度由 280 m/s 减至 6.7 m/s, 动能减少了 99.9%, 从而获得平动温度为 80 mK 的冷分子波包. 如此低速的冷分子波包可被静电囚禁, 也可用于绝热冷却或蒸发冷却, 来获得温度更低的冷分子源, 还可用来研究低温、低速下分子与分子或分子与原子间的冷碰撞机理. 若同步相位角增大到 27° , 分子波包的中心速度将变为负值. 在如此小的同步相位角下, 却能够实现 NH_3 分子的有效减速与冷却, 是该减速器的一大优势.

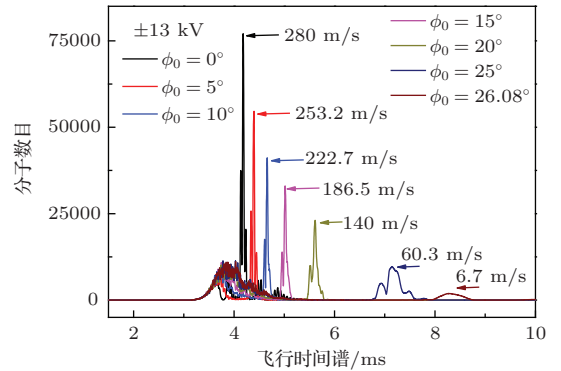


图5 (网刊彩色) 当减速级数为180级、减速电压为 ± 13 kV 时, 模拟得到不同 ϕ_0 值下的 TOF 信号

Fig. 5. (color online) Simulated time-of-flight signal profiles for different synchronous phase angles. The number of decelerating stages is 180, and the voltages applied to the electrodes are ± 13 kV. Some other parameters in our simulation are given in the text.

紧接着, 我们研究了与图5相同参数(减速级数为180级、减速电压为 ± 13 kV)下, NH_3 分子每级损失动能和分子波包末速度 V_{final} 分别与同步相位角的依赖关系, 模拟结果如图6所示. 图6(a)描述了在该减速模式下, ϕ_0 取不同值时, NH_3 分子通过每级减速电极所损失的平动动能. 不难看出: 随着

ϕ_0 的值由 0° 增加到 25° , NH_3 分子每级损失的动能从 0 cm^{-1} 近似线性地增加到接近 0.3 cm^{-1} . 由此可见: 同步相位角越大, 分子每级损失的动能越多.

正因为如此, 在图 6(b) 中同步相位角由 0° 增加到 25° 时, 分子波包末速度 V_{final} 由 280 m/s 很快降到 60.3 m/s , 减速效果相当明显.

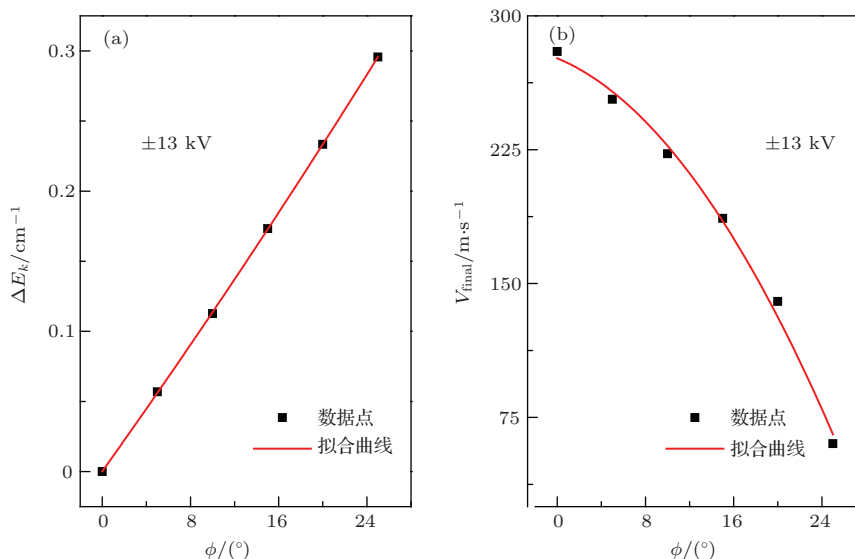


图 6 (a) 每级损失动能 ΔE_k 与同步相位角的依赖关系; (b) V_{final} 与 ϕ_0 的依赖关系

Fig. 6. (a) Kinetic energy loss per stage ΔE_k for NH_3 as a function of the synchronous phase angle; (b) the dependence of the final central velocity of the slowed packets on the synchronous phase angle. The black squares are the calculated result, and the red lines are fitting cures. The parameters in our calculation are given in the text.

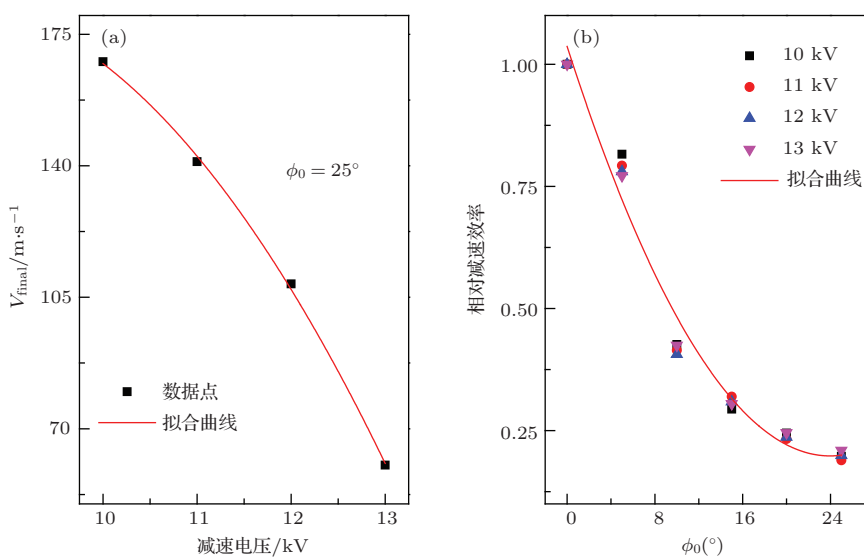


图 7 (网刊彩色) (a) 减速电压与分子波包末速度 V_{final} 的关系; (b) 不同电压下, 相对减速效率与同步相位角的关系

Fig. 7. (color online) (a) The dependence of the final central velocity of the slowed packets on the decelerating voltage for $\phi_0 = 25^\circ$; (b) the relative slowing efficiency as a function of the synchronous phase angle for different decelerating voltages. The black squares, red dots, blue triangle and pink inverted triangle are the calculated results, and the red lines are the fitting cures. Some other parameters in our calculation are given in the text.

在传统减速模式下, 我们还研究了不同电压下 NH_3 分子的减速效果, 如图 7 所示. 图 7 (a) 给出了减速级数为 180 级, ϕ_0 取相同值时, 分子波包末速度 V_{final} 与减速电压的关系. 当同步相位角

$\phi_0 = 25^\circ$, 减速电压为 $\pm 10 \text{ kV}$, $\pm 11 \text{ kV}$, $\pm 12 \text{ kV}$ 和 $\pm 13 \text{ kV}$ 时, 对应的 NH_3 分子波包末速度 V_{final} 分别为 167.7 m/s , 141.1 m/s , 108.5 m/s 和 60.3 m/s . 由此可知: 当减速级数为 180 级, ϕ_0 取相同值时, 所

加减速电压越大, 分子波包末速度 V_{final} 越小. 图 7 (b) 为采用不同减速电压时, 相对减速效率 (减速波包分子数目与聚束波包分子数目的比值) 与同步相位角的依赖关系. 由参考文献 [29] 可知, 同步相位角越大, 纵向相空间稳定区域越小, 即能被减速器势阱俘获的分子数目越少. 由图 7 (b) 可得相同结论: 尽管采用了不同的电压, 但是相对减速效率总是随着同步相位角的增大而减小, 即减速波包的分子数目随着 ϕ_0 值的增大而减少.

4.2 先聚束后减速模式的结果与分析

我们第二代减速器具有 180 级, 这就为多种操控模式的 Stark 减速提供了可能. 这里研究一种先聚束后减速的操控模式. 这种操控模式具体的步骤是: 首先利用一定数量的减速级对 NH_3 分子进行聚束 ($\phi_0 = 0^\circ$), 然后用剩余的减速级在大的同步相位角下将分子减到理想的速度. 图 8 为模拟 300 万 NH_3 分子、减速电压为 ± 6.5 kV 时, 采用前 15 级聚束, 后 165 级减速所得到的 TOF 信号. 由图 8 可看出: 后 165 级采用 $0^\circ, 20^\circ, 40^\circ$ 和 60° 同步相位角时, 对应 NH_3 分子波包末速度 (V_{final}) 分别为 280 m/s, 247.2 m/s, 195.8 m/s 和 92.7 m/s, 而当同步相位角增大至 65.4° 时, NH_3 分子波包的中心速度由 280 m/s 减至 20.7 m/s, 对应平动动能减少了 99.4%.

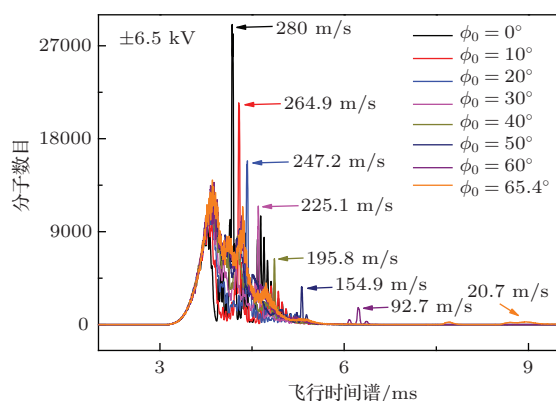


图 8 (网刊彩色) 当减速电压为 ± 6.5 kV 时, 采用前 15 级聚束, 后 165 级减速模拟所得到的 TOF 信号

Fig. 8. (color online) Simulated time-of-flight signal profiles for different synchronous phase angles. The voltages applied to the electrodes are ± 6.5 kV, and the incident molecular beam is first bunched ($\phi_0 = 0^\circ$) by using 15 stages and then slowed down to desired velocity at high synchronous phase angle by using 165 stages. Some other parameters in our calculation are given in the text.

单独取出 $\phi_0 = 65.4^\circ$ 的 TOF 信号, 并把时间坐标转换成速度坐标便可得到该同步相位角下被减速分子波包的纵向速度分布, 如图 9 黑色曲线所示. 采用高斯函数对曲线进行拟合, 得到速度分布半高宽 ΔV_Z 为 2.1 m/s, 对应分子波包的温度为 1.6 mK. 此温度相比于传统减速模式得到的分子波包温度降低至 1/50.

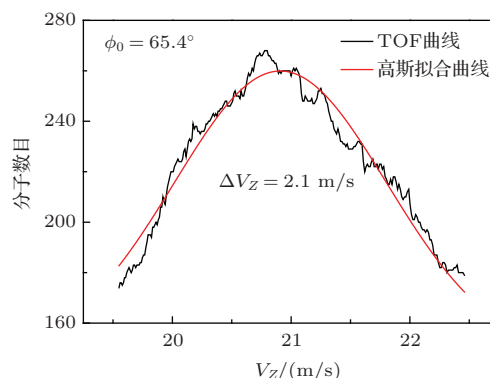


图 9 (网刊彩色) $\phi_0 = 65.4^\circ$ 时, 被减速分子波包的纵向速度分布曲线, 对应的速度分布宽度为 $\Delta V_Z = 2.1$ m/s

Fig. 9. (color online) The black curve shows the velocity spread of the synchronous packets for $\phi_0 = 65.4^\circ$. The red curve is the Gaussian fitting curve. The velocity spread of $\Delta V_Z = 2.1$ m/s is given in the picture. Some other parameters in our calculation are given in the text.

图 10 (a) 给出了 $\phi_0 = 65.4^\circ$ 时, 减速器末端输出的 NH_3 分子在纵向相空间的分布情况. 从图 10 (a) 可看出: 相空间边缘区域分子分布较为稀疏, 中间区域分子分布较为密集, 在两者之间出现了一个几乎没有分子分布的椭圆型空白“光环”. 此“光环”是由 NH_3 分子横向与纵向运动耦合所导致的. 此相空间区域内分子的纵向速度 (V_Z) 分布如图 10 (b) 所示. 图 10 (b) 中黑色正方形为统计数据, 用高斯函数对其进行拟合 (图中红色曲线所示), 便可得到该同步相位角下相空间区域内分子纵向速度分布的半高宽 ΔV_Z , 其值也为 2.1 m/s, 与图 9 所得到的结果完全一致.

最后, 图 11 给出了该操控模式下, 减速电压为 ± 6.5 kV 时, 分子波包末速度与同步相位角的依赖关系. 图中黑色小方块为模拟数据, 红色曲线为拟合结果. 图 11 显示: 当同步相位角小于 40° 时, 随着同步相位角的增大, 分子波包末速度下降并不明显; 而当同步相位角大于 40° 时, 随着同步相位角的增大, 分子波包末速度快速下降.

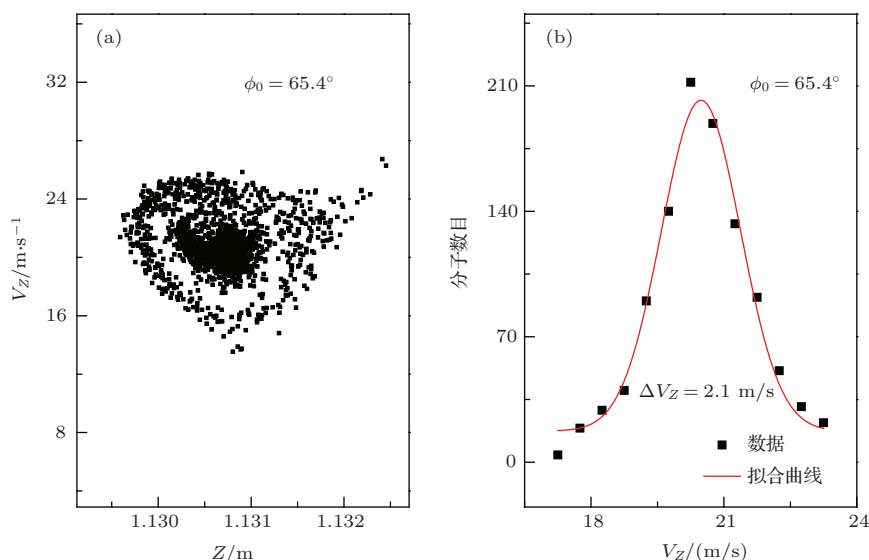


图 10 (a) $\phi_0 = 65.4^\circ$ 时, 减速器末端输出的 NH_3 分子纵向相空间的分布情况; (b) 相空间中心区域内分子的纵向速度分布

Fig. 10. The longitudinal phase space distribution of NH_3 molecules for $\phi_0 = 65.4^\circ$ at the exit of the Stark decelerator is given in figure (a). (b) is the velocity distribution for molecules in the longitudinal phase stable area.

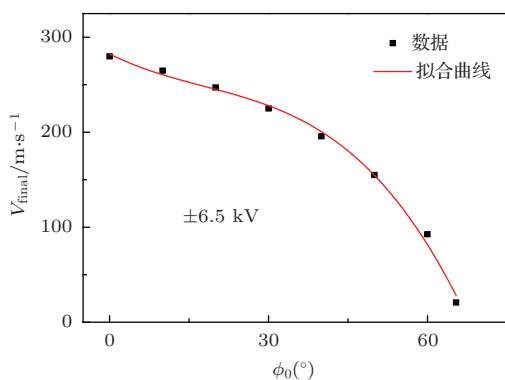


图 11 当减速电压为 ± 6.5 kV 时, 分子波包末速度 V_{final} 与同步相位角的关系

Fig. 11. The dependence of the final velocity of the slowed packets on the synchronous phase angle. The voltages applied to the electrodes are ± 6.5 kV. Some other parameters in our calculation are given in the text.

5 结 论

我们计算了处于 $|J = 1, K = 1\rangle$ 量子态的 NH_3 分子的 Stark 分裂, 分析了不同的同步相位角下 NH_3 分子的纵向相空间稳定区域并模拟了 NH_3 分子在两种工作模式下的减速效果. 首先, 我们基于自行研制的第二代 180 级 Stark 减速器研究了传统减速模式下 NH_3 分子减速的动力学过程, 发现: 当减速电压为 ± 13 kV, 同步相位角 $\phi_0 = 26.08^\circ$ 时, 相对减速效率为 16.8%, 分子波包的中心速度由

280 m/s 减至 6.7 m/s, 平动动能减少了 99.9%, 平动温度降至 80 mK, 从而在较小的同步相位角下实现了 NH_3 分子的有效减速与冷却. 接着, 我们研究了该减速模式下多个参数 (包括每级损失动能、分子波包末速度、不同减速电压下的相对减速效率) 与同步相位角的关系以及 $\phi_0 = 25^\circ$ 时分子波包末速度与减速电压的关系. 最后, 我们研究了先聚束后减速这一操控模式的减速效果, 结果表明: 当减速电压为 ± 6.5 kV, 同步相位角 $\phi_0 = 65.4^\circ$ 时, 分子波包的中心速度由 280 m/s 减至 20.7 m/s, 平动动能减少了 99.4%, 平动温度降至 1.6 mK. 在此操控模式下, 同步相位角 $\phi_0 = 26.08^\circ$ 时, 减速效率为 17%, 与传统模式的减速效率相比差别并不大, 然而, 仅通过改变前 15 级的电场切换时间, 就获得了 1.6 mK 冷分子波包, 与传统减速模式获得的冷分子波包的温度相比, 下降到 1/50. 由此可见, 采用传统的 180 级静电 Stark 减速器完全能够实现具有较低 Stark 势能的 NH_3 分子的有效减速与冷却, 为下一步开展减速实验奠定了理论基础. 采用传统减速模式, 在较低的同步相位角下 (ϕ_0 小于 30°), 获得数目相对可观的低速冷 NH_3 分子, 可被存储在静电存储环中; 而速度更低 (小于 20 m/s) 的冷分子, 可用作静电囚禁甚至进一步用于绝热冷却与蒸发冷却, 获得温度更低的 NH_3 冷分子源. 采用先聚束后减速的操控模式, 获得温度约为 1 mK 的冷分子波包可用来研究冷分子物理、高分辨率光谱、冷碰

撞和冷化学等。

感谢华东师范大学精密光谱科学与技术国家重点实验室汪海玲老师、王琴和许亮同学的讨论。

参考文献

- [1] Doyle J M, Friedrich B 1999 *Nature* **401** 749
- [2] Williams C J, Julienne P S 2000 *Science* **287** 986
- [3] Santos L, Shlyapnikov G V, Zoller P, Lewenstein M 2000 *Phys. Rev. Lett.* **85** 1791
- [4] Baranov M A, Mar'enko M S, Rychkov V S, Shlyapnikov G V 2002 *Phys. Rev. A* **66** 013606
- [5] van Veldhoven J, Küpper J, Bethlem H L, Sartakov B, van Roij A J A, Meijer G 2004 *Eur. Phys. J. D* **31** 337
- [6] Hudson E R, Lewandowski H J, Sawyer B C, Ye J 2006 *Phys. Rev. Lett.* **96** 143004
- [7] Hudson J J, Kara D M, Smallman I J, Sauer B E, Tarbutt M R, Hinds E A 2011 *Nature* **473** 493
- [8] DeMille D 2002 *Phys. Rev. Lett.* **88** 067901
- [9] Ospelkaus S, Ni K K, Wang D, de Miranda M H G, Neyenhuis B, Quémener G, Julienne P S, Bohn J L, Jin D S, Ye J 2010 *Science* **327** 853
- [10] Gilijamse J J, Hoekstra S, van de Meerakker S Y T, Groenenboom G C, Meijer G 2006 *Science* **313** 1617
- [11] Weinstein J D, deCarvalho R, Guillet T, Friedrich B, Doyle J M 1998 *Nature* **395** 148
- [12] Bethlem H L, Berden G, Meijer G 1999 *Phys. Rev. Lett.* **83** 1558
- [13] Narevicius E, Libson A, Parthey C G, Chavez I, Narevicius J, Even U, Raizen M G 2008 *Phys. Rev. A* **77** 051401
- [14] Fulton R, Bishop A I, Barker P F 2004 *Phys. Rev. Lett.* **93** 243004
- [15] Yin Y L, Xia Y, Yin J P 2006 *Chin. Phys. Lett.* **23** 02737
- [16] Xia Y, Yin Y L, Ji X, Yin J P 2012 *Chin. Phys. Lett.* **29** 053701
- [17] Yin Y L, Xia Y, Yin J P 2008 *Chin. Phys. B* **17** 03672
- [18] Shuman E S, Barry J F, DeMille D 2010 *Nature* **467** 820
- [19] Miller J D, Cline R A, Heinzen D J 1993 *Phys. Rev. Lett.* **71** 2204
- [20] Jochim S, Bartenstein M, Altmeyer A, Hendl G, Riedl S, Chin C, Hecker Denschlag J, Grimm R 2003 *Science* **302** 2101
- [21] van de Meerakker S Y T, Labazan I, Hoekstra S, Küpper J, Meijer G 2006 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **39** S1077
- [22] Bochinski J R, Hudson E R, Lewandowski H J, Meijer G, Ye J 2003 *Phys. Rev. Lett.* **91** 243001
- [23] Tarbutt M R, Bethlem H L, Hudson J J, Ryabov V L, Ryzhov V A, Sauer B E, Meijer G, Hinds E A 2004 *Phys. Rev. Lett.* **92** 173002
- [24] Jung S, Tiemann E, Lisdat C 2006 *Phys. Rev. A* **74** 040701
- [25] Wall T E, Kanem J F, Dyne J M, Hudson J J, Sauer B E, Hinds E A, Tarbutt M R 2011 *Phys. Chem. Chem. Phys.* **13** 18991
- [26] Hudson E R, Ticknor C, Sawyer B C, Taatjes C A, Lewandowski H J, Bochinski J R, Bohn J L, Ye J 2006 *Phys. Rev. A* **73** 063404
- [27] Belthem H L, Berden G, Cromptvoets F M H, Jongma R T, van Roij A J A, Meijer G 2000 *Nature* **406** 491
- [28] van de Meerakker S Y T, Smeets P H M, Vanhaecke N, Jongma R T, Meijer G 2005 *Phys. Rev. Lett.* **94** 023004
- [29] Hoekstra S, Metsälä M, Zieger P C, Scharfenberg L, Gilijamse J J, Meijer G, van de Meerakker S Y T 2007 *Phys. Rev. A* **76** 063408
- [30] Wang Q, Li S Q, Hou S Y, Xia Y, Wang H L, Yin J P 2014 *Chin. Phys. B* **23** 013701
- [31] Li S Q, Xu L, Xia Y, Wang H L, Yin J P 2014 *Chin. Phys. B* **23** 123701
- [32] Wang Z X, Gu Z X, Deng L Z, Yin J P 2015 *Chin. Phys. B* **24** 053701
- [33] Gilijamse J J, Hoekstra S, van de Meerakker S Y T, Groenenboom G C, Meijer G 2006 *Science* **313** 1617
- [34] Kirste M, Wang X G, Schewe H C, Meijer G, Liu K, van der Avoird A, Janssen L M C, Gubbels K B, Groenenboom G C, van de Meerakker S Y T 2012 *Science* **338** 1060
- [35] von Zastrow A, Onvlee J, Vogels S N, Groenenboom G C, van der Avoird A, van de Meerakker S Y 2014 *Nature Chemistry* **6** 216
- [36] Tkáč O, Saha A K, Onvlee J, Chung-Hsin Yang, Sarma G, Bishwakarma C K, van de Meerakker S Y T, van der Avoird A, Parker D H, Orr-Ewing A J 2014 *Phys. Chem. Chem. Phys.* **16** 477
- [37] Cromptvoets F M H, Jongma R T, Bethlem H L, van Roij A J A, Meijer G 2002 *Phys. Rev. Lett.* **89** 093004
- [38] Bethlem H L, Cromptvoets F M H, Jongma R T, van de Meerakker S Y T, Meijer G 2002 *Phys. Rev. A* **65** 053416
- [39] Quintero-Pérez M, Jansen P, Wall T E, van den Berg J E, Hoekstra S, Bethlem H L 2013 *Phys. Rev. Lett.* **110** 133003
- [40] Fu G B, Deng L Z, Yin J P 2008 *Chin. Phys. Lett.* **25** 923
- [41] Deng L Z, Fu G B, Yin J P 2009 *Chin. Phys. B* **18** 0149
- [42] Deng L Z 2008 *Ph. D. Dissertation* (Shanghai: East China Normal University) (in Chinese) [邓联忠 2008 博士学位论文 (上海: 华东师范大学)]
- [43] Hou S Y, Li S Q, Deng L Z, Yin J P 2013 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **46** 045301
- [44] Hou S Y 2013 *Ph. D. Dissertation* (Shanghai: East China Normal University) (in Chinese) [侯顺永 2013 博士学位论文 (上海: 华东师范大学)]
- [45] Gordy W, Cook R 1970 *Microwave molecular spectra* (New York: John Wiley & Sons Inc) p187-188
- [46] van de Meerakker S Y T, Vanhaecke N, Meijer G 2006 *Annu. Rev. Phys. Chem.* **57** 159

Theoretical studies of electrostatic Stark deceleration for subsonic NH₃ molecular beams*

Liu Jian-Ping Hou Shun-Yong Wei Bin Yin Jian-Ping[†]

(State Key Laboratory of Precision spectroscopy, East China Normal University, Shanghai 200062, China)

(Received 4 February 2015; revised manuscript received 15 May 2015)

Abstract

In this paper, we investigate theoretically the Stark deceleration and cooling of subsonic NH₃ molecular beams based on our second-generation electrostatic Stark decelerator with 180 stages. Firstly, we calculate the Stark shifts of NH₃ molecules in the $|J = 1, K = 1\rangle$ states and show the stable area of longitudinal phase space for different synchronous phase angles. Secondly, we study the slowing performance of NH₃ molecular beams in the traditional mode, and discuss the relationships between various parameters (such as the kinetic energy loss per stage, final velocity and the slowing efficiency) and the synchronous phase angle ϕ_0 , as well as the dependence of final velocity on the applied voltages. It is found that a subsonic NH₃ molecular beam can be decelerated from 280 to 6.7 m/s at $\phi_0 = 26.08^\circ$ when the high voltages applied on the electrodes are ± 13 kV, corresponding to a removal of 99.9% kinetic energy. The translational temperature of the molecular packets in the moving frame is significantly reduced from 1.34 K to 80 mK. Finally, we study the slowing performance of NH₃ molecules and the dependence of final velocity on the synchronous phase angle in an alternate operation mode. In this mode, a synchronous phase angle $\phi_0 = 0^\circ$ is chosen to bunch the molecules by using the first 15 stages. The remaining 165 stages are then used to slow a subsonic molecular beam at a certain synchronous phase angle. Our result shows that a molecular beam with a mean velocity of 280 m/s can be decelerated to 20.7 m/s at $\phi_0 = 65.4^\circ$ when the voltages applied are ± 6.5 kV, indicating a 99.4% kinetic energy removal, and the translational temperature of the molecular packets can be reduced from 1.34 K to 1.6 mK. By comparing the results obtained from the two operational modes, the temperature of the slowed molecular packet in the alternate mode is 50 times lower than that in the traditional mode. It is shown that our second-generation 180-stage Stark decelerator can effectively produce slow and cold molecules with relatively small electric dipole moment like NH₃. These monochromatic NH₃ molecular beams offer a promising starting point for high resolution spectroscopy, precision measurement, cold collisions and cold chemistry. This theoretical work provides a reliable basis in our further experimental research.

Keywords: cold molecules, Stark deceleration, NH₃ molecules

PACS: 37.10.Mn, 37.10.-x, 37.10.Pq, 37.20.+j

DOI: 10.7498/aps.64.173701

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 10674047, 10804031, 10904037, 10974055, 11034002, 11274114), the National Basic Research Program of China (Grant Nos. 2006CB921604, 2011CB921602), the Basic Key Program of Shanghai Municipality, China (Grant No. 07JC14017), and the Shanghai Leading Academic Discipline Project, China (Grant No. B408).

[†] Corresponding author. E-mail: jpyin@phy.ecnu.edu.cn