

超冷 ($36D_{5/2}+6S_{1/2}$) 里德伯分子的制备及其电偶极矩的测量*

焦月春¹⁾²⁾ 白景旭¹⁾ 宋蓉¹⁾ 韩小萱³⁾ 赵建明^{1)2)†}

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

2) (山西大学, 极端光学协同创新中心, 太原 030006)

3) (太原师范学院物理系, 晋中 030619)

(2022年9月24日收到; 2022年10月22日收到修改稿)

里德伯-基态分子由一个里德伯原子和一个基态原子组成, 束缚机制是里德伯电子与基态原子的低能电子散射相互作用. 理论上, 通过低能电子散射 Fermi 赝势模型, 数值计算了铯 ($36D_{5/2}+6S_{1/2}$) 里德伯-基态分子的绝热势能曲线, 提取了里德伯分子的束缚能和平衡核间距等光谱参数. 实验上, 利用双光子光缔合技术成功制备了散射三重态 ($^3\Sigma$, Triplet) 和散射单重态-三重态混合 ($^3\Sigma$, Mixed) 形成的里德伯-基态分子, 获得了里德伯分子的光缔合光谱, 测量的势阱深度与理论计算结果相吻合. 另外, 以散射三重态为例, 分析了里德伯分子的光缔合光谱在外加电场中的展宽现象, 获得其平均永久电偶极矩 $|\bar{d}|$ 为 (12.10 ± 1.65) Debye ($(4.76 \pm 0.65) e a_0$), 与理论计算结果保持一致. 该研究为实验上制备 D 态里德伯-基态分子提供了可行的实验方案, 对理解里德伯分子的光谱特性具有重要意义.

关键词: 超冷里德伯-基态分子, 光缔合光谱, 绝热势能曲线, 电偶极矩

PACS: 32.80.Ee, 36.20.-r, 33.20.-t, 31.50.Df

DOI: 10.7498/aps.72.20221865

1 引言

正负电荷中心不重合的分子称为极性分子, 具有固有电偶极矩, 易于被外场操控. 不同于其他由异核原子构成的分子, 里德伯-基态分子是一种特殊的由同核原子构成且具有永久电偶极矩的分子, 具有尺寸大和振动能级丰富等优良特性. 里德伯-基态分子通常由一个里德伯原子和一个或多个基态原子通过低能电子散射相互作用束缚形成, 不同于常规的共价键和离子键等, 是一种全新的束缚机制. 里德伯-基态分子的特殊性相对于普通极性分子而言是独一无二的, 引起了国内外研究学者的广

泛关注.

里德伯-基态分子的研究可追溯到 20 世纪 70 年代, Omont^[1] 在 s-波散射的基础上, 提出了里德伯电子可通过低能电子散射将基态原子束缚在电子轨道上形成分子的模型. 2000 年, Greene 等^[2] 进一步完善了低能电子散射理论, 计算了分子的势能曲线和振动波函数, 首次预言了里德伯-基态分子的存在. 之后, Khuskivadze 等同样计算了由 s-波散射主导形成的“三叶虫”型里德伯-基态分子^[3] 和由 p-波散射主导形成的“蝴蝶”型里德伯-基态分子^[4] 的波函数, 在此基础上人们详细研究了其绝热势能曲线、振动波函数以及电偶极矩等^[5,6]. 2009 年, Pfau 研究组^[7] 在实验上首次实现了铷原

* 国家自然科学基金 (批准号: 61835007, 12120101004, 62175136, 12104337)、长江学者和创新团队发展计划 (批准号: RTIRT_17R70)、山西省“1331 工程”重点学科建设计划和山西省科技合作交流专项 (批准号: 202104041101015) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: zhaojm@sxu.edu.cn

子 S 态里德伯-基态分子的制备和观测, 并对其 Stark 光谱和分子振动基态的寿命进行了测量. 随后, 人们成功地观察到铷原子 nP ^[8], nD ^[9–11], 铯原子 nS ^[12,13], nP ^[14], nD ^[15–17] 态里德伯-基态分子的光缔合光谱. 除了上述的里德伯-基态分子之外, 束缚机制为电多极相互作用形成的混合宇称的里德伯巨型分子^[18,19]和由电单(多)极相互作用束缚形成的里德伯-离子分子^[20–22]也是具有永久电偶极矩的特殊极性分子. 这里我们主要研究铯原子里德伯和基态原子组成的双原子分子, 对其余两种里德伯分子不做过多的描述.

在制备里德伯-基态分子的基础上, 人们利用分子在外电场中的谱线展宽获得了里德伯分子的永久电偶极矩. Li 等^[23]首次测量了铷原子 35S 里德伯-基态分子的永久电偶极矩为 1 Debye. Niederprüm 等^[24]测量了铷原子 25 P 态里德伯-基态分子的永久电偶极矩约为 500 Debye. 不同于铷原子, 铯原子 S 态里德伯-基态分子的永久电偶极矩高达约 2000 Debye^[12]. 由于里德伯-基态分子具有上述优良特性, 因而成为研究多体气体的强相关^[25]和量子信息处理^[26]等的理想载体; 另外, 里德伯分子与负离子共振造成的 DNA 链断裂^[27]在医学上也有巨大的应用价值.

本文主要从理论和实验上研究了超冷铯 ($36D_{5/2} + 6S_{1/2}$) 里德伯-基态分子的光缔合光谱. 首先, 利用低能电子散射理论计算了里德伯-基态分子的绝热势能曲线和振动波函数. 其次, 在实验上利用光缔合的方法实现了里德伯-基态分子的制备, 并测量了其光缔合光谱, 获得的束缚能与理论计算结果相吻合. 最后, 通过分子光谱在外加电场中的展宽, 获得极性里德伯-基态分子散射三重态的平均永久电偶极矩 $|\vec{d}|$ 为 (12.10 ± 1.65) Debye ($(4.76 \pm 0.65) e a_0$), 与理论计算值保持一致.

2 理论模型

图 1 所示为里德伯-基态分子的理论模型. 考虑包含基态原子和里德伯原子的双原子体系, 为了简化计算, 假设里德伯原子核和基态原子轴矢量 \mathbf{R} 的方向即为量子化轴的方向. 里德伯-基态分子是由里德伯电子与基态原子通过低能电子散射相互作用束缚而形成, 由 Fermi 赝势描述, 对应的哈密顿量表示为^[9]

$$\hat{H}(\mathbf{r}, \mathbf{R}) = \hat{H}_0 + \sum_{i=S,T} \hat{V}(\mathbf{r}, \mathbf{R}) \hat{P}(i) + A_{\text{HFS}} \hat{S}_2 \cdot \hat{I}_2, \quad (1)$$

式中 \mathbf{r} 和 \mathbf{R} 分别表示里德伯电子和基态原子的位置矢量; \hat{H} 为系统的总哈密顿量; $\hat{H}_0 = -\frac{\nabla^2}{2} + V_{e\text{Cs}^+}(r)$ 为非微扰里德伯原子的哈密顿量, 其中考虑了里德伯原子的量子亏损和精细结构, $V_{e\text{Cs}^+}(r)$ 为里德伯电子和原子核的库仑势; $\hat{V}(\mathbf{r}, \mathbf{R})$ 表示里德伯电子和基态原子的散射相互作用; 用投影算符 $\hat{P}(i)$ 表示里德伯电子自旋 \hat{S}_1 和基态原子自旋 \hat{S}_2 的耦合, 具体表示为 $\hat{P}(T) = \hat{S}_1 \cdot \hat{S}_2 + 3/4$, $\hat{P}(S) = 1 - \hat{P}(T)$, $i = S, T$ 分别表示自旋单重态 (S) 和自旋三重态 (T), 对应自旋耦合为 0 和 1 的散射通道; 式中的最后一项表示基态原子的自旋 \hat{S}_2 和核自旋 \hat{I}_2 的超精细相互作用, A_{HFS} 为超精细结构常数.

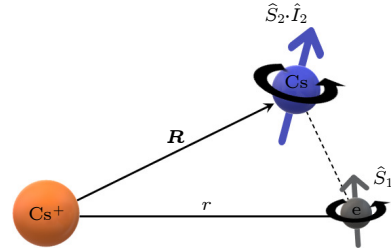


图 1 里德伯-基态分子模型. 以里德伯离子核为中心, 基态原子位于轴矢量 \mathbf{R} 的位置, 里德伯电子距离核的距离为 r . \hat{S}_1 为里德伯电子自旋, \hat{S}_2 和 \hat{I}_2 分别对应基态原子的电子自旋和核自旋

Fig. 1. Model of a Rydberg-ground molecule. The Rydberg core is located in the center, the ground atom is located at the position of the axial vector \mathbf{R} , and the distance between the Rydberg electron and the core is r . \hat{S}_1 is the spin of Rydberg electron, and \hat{S}_2 and \hat{I}_2 are the spin of the electron and nuclear of the ground atom.

里德伯电子和基态原子的散射相互作用势 $\hat{V}(\mathbf{r}, \mathbf{R})$ 表示为^[1]

$$\hat{V}(\mathbf{r}, \mathbf{R}) = 2\pi\alpha_s(k) \delta^3(\mathbf{r} - R\hat{z}) + 6\pi[\alpha_p(k)]^3 \delta^3(\mathbf{r} - R\hat{z}) \hat{\nabla} \cdot \hat{\nabla}, \quad (2)$$

式中 $\alpha_l(k) = -\tan\eta_l(k)/k$ 表示散射长度, η_l 为与 l 和能量相关的散射相移, l 为轨道角动量, l 等于 0 和 1 分别对应 s-波散射和 p-波散射, δ 为 δ 函数; 在电子允许的范围 r 内, 里德伯电子动量的半经典表达式为 $k(r) = \sqrt{2E_{\text{kin}}} = \sqrt{2(E_{nl} + 1/r)}$, 其中 E_{kin} 为电子动能, $E_{nl} = -1/2(n - \delta_{nl})^2$ 为里德伯能级的能量, n 为主量子数, δ_{nl} 为里德伯态的量子亏损.

将总哈密顿量对角化便可获得里德伯-基态分

子的绝热势能曲线 $W(R)$. 进一步由于转动能级间隔远小于激发光线宽, 我们忽略分子的旋转运动, 利用分子哈密顿理论, 通过势能曲线, 可以精确地计算双原子里德伯-基态分子的振动波函数.

我们已经详细地研究了散射长度的大小、散射分波以及精细结构对绝热势能曲线和束缚势阱的影响, 参见文献 [16, 17], 这里不再赘述. 图 2 为数值计算的铯原子 $36D_{5/2} + 6S_{1/2}(F=4)$ 里德伯-基态分子的绝热势能曲线, 计算中采用的单重态 (S) 和三重态 (T) 的零能散射长度分别为 $\alpha_s^S(k=0) = -1.92a_0$ 和 $\alpha_s^T(k=0) = -19.16a_0$ [17], 其中 a_0 为玻尔半径. 在计算中, 考虑了 p-波散射以及超精细结构对势能曲线的影响, 图中黑色虚线是三重态散射相互作用为主形成的深势阱 (${}^T\Sigma$, Triplet), 红色实线是由单重态和三重态散射相互作用混合作用产生的浅势阱 (${}^{S,T}\Sigma$, Mixed). 由图 2 的势能曲线可知: 当 $R \approx 2100a_0$ 时, 势能曲线具有最小值形成束缚势阱, 可以束缚基态原子形成里德伯-基态分子; 当 $R > 2600a_0$ 时, 散射相互作用趋近于零, 为里德伯-基态分子的解离极限 (图中黑色虚直线); 当 $R < 1600a_0$ 时, 由于 p-波散射的影响, 势能曲线会向内层挤压, 形成 GHz 量级的深势阱, 可形成蝴蝶型里德伯-基态分子.

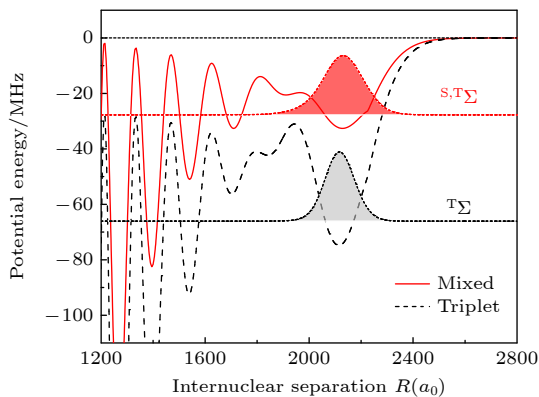


图 2 数值计算的铯 ($36D_{5/2}+6S_{1/2}$) 分子的势能曲线, 彩色的波包为最外层势阱中基态 $v=0$ 的振动波函数

Fig. 2. Calculated adiabatic potentials for cesium Rydberg-ground molecule of ($36D_{5/2}+6S_{1/2}$). The color filled wave packet is the vibration wave function of the outermost potential for $v=0$.

根据图 2 计算的 $36D_{5/2} + 6S_{1/2}$ 里德伯-基态分子的绝热势能曲线, 进一步计算了里德伯-基态分子的振动波函数, 如图中黑色 (三重态) 和红色 (混合态) 虚线包络的高斯型波包所示为基态 $v=0$ 的振动波函数: 对于三重态形成的深势阱, 最外层

势阱势能最小值为 $V_{\min}^T = -74.69$ MHz, 其包含的振动基态 $v=0$ 的束缚能为 $W_{v=0}^T = -65.99$ MHz; 对于超精细混合形成的浅势阱, 最外层势阱势能最小值为 $V_{\min}^{S,T} = -32.65$ MHz, 其对应振动基态 $v=0$ 的束缚能为 $W_{v=0}^{S,T} = -27.79$ MHz.

由上述可知, 束缚能和平衡核间距是描述里德伯-基态分子的重要光谱参数, 基于上述计算结果和光谱特征, 我们在实验中对其进行详细的研究, 以便更好地了解 and 掌握分子的构成, 理解其独特的束缚机制和奇特的光谱特性.

3 实验装置

图 3(a) 展示了双光子光缔合制备里德伯-基态分子的能级示意图. 第一个波长为 852 nm (Topica DL pro) 的光子实现基态 $6S_{1/2} \rightarrow 6P_{3/2}$ 的跃迁, 对应的失谐量 $\delta_{852} = 2\pi \times 360$ MHz, 第二个波长为 510 nm (Topica TA SHG110) 的光子实现里德伯激发 $6P_{3/2} \rightarrow nD_{5/2}$. 当第二个光子的频率调谐至里德伯-基态分子的束缚能时, 里德伯电子便可束缚基态原子形成里德伯-基态分子.

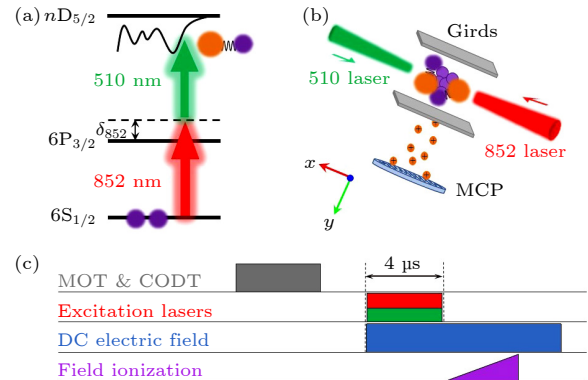


图 3 (a) 双光子激发能级示意图; (b) 两束激发光反向传播作用于 MOT&ODT 中心; 里德堡原子和分子由脉冲电场电离后到达 MCP, 由 boxcar 采集和计算机记录; (c) 实验时序图; 关断 MOT&ODT 光之后, 同时打开两束激发光, 之后由斜坡脉冲电离电场电离里德堡原子和分子, 直流电场用于电偶极矩的研究

Fig. 3. (a) Schematic diagram of two photon excitation. (b) Schematic diagram of experimental set up. Two excitation lasers overlap in the center of MOT&ODT. Rydberg atoms and molecules ionized by a pulsed electric field arriving at MCP, which is collected with boxcar and recorded by computer. (c) Experimental sequence diagram. After turning off the MOT&ODT, two excitation lasers are turned on at the same time, and the Rydberg atoms and molecules were ionized by a ramp pulse ionization electric field. The direct current electric field is used to study the electric dipole moment.

我们的实验在一个交叉光学偶极阱 (crossed optical dipole trap, CODT) 中进行, 其装载于一个标准的金属磁光阱 (magneto-optical trap, MOT) 中. 金属腔内真空气压为 2×10^{-7} Pa, 通过吸收成像测得的基态铯原子团的峰值密度约为 2×10^{11} cm $^{-3}$, 温度约为 100 μ K. 图 3(b) 为实验装置示意图. 腰斑为 80 μ m 的 852 nm 的激光和腰斑为 40 μ m 的 510 nm 的激光相向入射通过 MOT 中心的原子团, 形成长度约 600 μ m 的圆柱形激发区域. 利用偏振光谱稳频技术将 852 nm 的激光频率精确锁定在 $|6S_{1/2}, F=4\rangle \rightarrow |6P_{3/2}, F'=5\rangle$ 的共振跃迁线上, 由声光调制器 (AOM) 将其频率调谐至蓝失谐 360 MHz; 其次, 利用 Pound-Drever-Hall (PDH) 稳频技术将 510 nm 激光的频率锁定在精细度为 15000 的 Fabry-Pérot 腔上, 改变电光调制器 (EOM) 的射频输入频率实现激发光频率的扫描. 在磁光阱中心激发区域的两侧沿 x, y, z 三个方向各放置一对电极, 其中 y 方向用于施加电离里德伯原子和分子的斜坡脉冲电离电场, 产生的离子信号经电场加速之后到达微通道板 (microchannel plate, MCP), 并经过门积分器 (boxcar) 和数据采集卡 (PCI-6733) 完成离子信号的采集和记录. 此外, 三对电极上还施加额外的电场用于补偿系统周围的杂散电场.

为了实现里德伯-基态分子的制备, 设计了如图 3(c) 所示的实验时序. 一次实验的周期为 25 ms, MOT 和 ODT 光的装载时间为 24.8 ms, 关断 MOT 和 ODT 光间隔 10 μ s 后, 打开第一步和第二步激发光, 完成里德伯原子的制备, 与此同时, 对第二步激发光的频率进行扫描. 激发光的脉冲时间设置为 4 μ s, 既能使光与原子具有充分的相互作用时间, 又能避免因相互作用时间过长而导致的谱线展宽和饱和效应. 激发光关断之后, 立即施加斜坡脉冲电离电场对里德伯分子和原子进行电离, 并由 MCP 进行离子探测, 电离电场的上升沿为 3 μ s.

4 实验结果与分析

如图 4 所示为实验测量的铯原子 ($36D_{5/2} + 6S_{1/2}$) 里德伯-基态分子的双光子光缔合光谱. 图 4 中零失谐的位置对应 $36D_{5/2}$ 里德伯原子的共振跃迁位置 (即图 2 中黑色虚线所示的零势能点), 横坐标为 510 nm 激光相对于共振跃迁位置的失谐量.

实验数据是 5 次独立测量的平均结果, 误差棒为 5 次测量的标准偏差. 由于 Franck-Condon 因子较小, 测量的里德伯分子信号远小于里德伯原子信号. 为了更加清晰地展示分子信号, 对光谱的红失谐部分放大, 如插图所示, 可以清晰地看到两个里德伯-基态分子的信号, 即振动基态 $v=0$ 的分子信号, 由红色的倒三角标记. 高斯拟合可以获得分子信号的中心频率, 即振动基态的束缚能为 (-64.62 ± 0.18) MHz ($^T\Sigma$) 和 (-27.62 ± 0.14) MHz ($^S,^T\Sigma$). 图 4 中竖直的蓝线标记为理论计算的里德伯-基态分子振动基态的束缚能大小, 实验测量结果与理论计算值吻合的很好, 相对误差小于 2.1%. 实验与理论的偏差主要来源于激光的线宽, 频率的校准以及系统的不确定性.

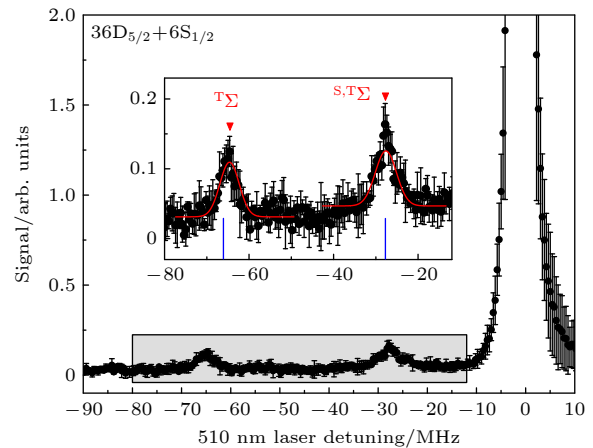


图 4 铯 ($36D_{5/2} + 6S_{1/2}$) 里德伯-基态分子的双光子光缔合光谱. 红色三角形标记的峰为振动基态 $v=0$ 的里德堡分子信号. 蓝色的短线标记了理论计算的束缚势阱. 插图为阴影区域的放大

Fig. 4. Two-color photoassociation spectra of Cs ($36D_{5/2} + 6S_{1/2}$) Rydberg-ground molecule. The short blue line marks the theoretically calculated bound potential well. Red triangles denote the Rydberg-molecular signal for $v=0$. Inset is an enlargement of the shaded area.

图 4 表明在实验上成功地实现了铯原子 D 态里德伯-基态分子的制备. 由于能级结构以及构型的独特性, 同核里德伯-基态分子具有永久电偶极矩. 在弱场条件下, 里德伯分子的电偶极矩 $|d|$ 可以由分子谱线的展宽而获得.

为了研究里德伯-基态分子光谱在外加电场中的展宽特性, 只在分子束缚能附近扫描第二步激发光的频率, 且在双光子激发的同时施加一个静电场, 通过观察分子谱线在电场中的展宽特性, 对其独特的电偶极矩进行了详细的实验研究. 以散射三

重态形成的里德伯-基态分子 ($T\Sigma$) 为例, 图 5 展示了电场为 0.09 和 0.37 V/cm 时测量的分子光缔合光谱, 误差棒显示了 5 次独立实验的平均偏差. 同图 4 中无电场时的分子光谱相比, 电场中的里德伯分子光谱产生了明显的谱线展宽.

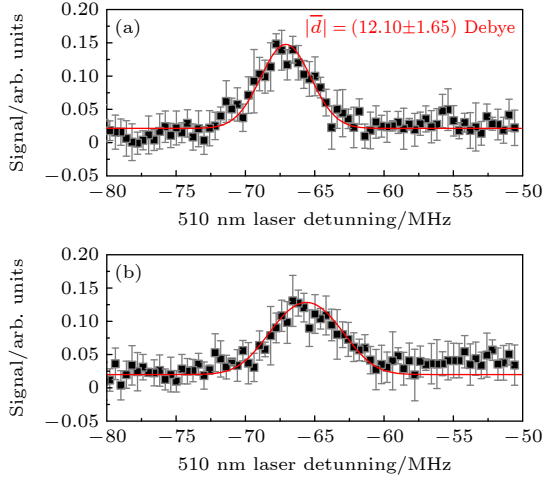


图 5 电场为 0.09 (a) 和 0.37 V/cm (b) 时, 三重态相互作用形成的里德伯-基态分子的光缔合光谱. 红色实线为理论拟合的分子电偶极矩

Fig. 5. Photoassociation spectra of Rydberg ground molecules formed by triplet interaction when the electric field is 0.09 (a) and 0.37 V/cm (b). Red solid line are the theoretical fitting of molecular electric dipole moment.

电场 E 和电偶极矩 d 的相互作用能表示为 $W = -d \cdot E$, 当偶极相互作用 W 远小于分子的束缚能时, 电场的作用使分子光谱以束缚能频率为中心的非均匀展宽, 表示为宽度为 $2d \cdot E/h$ 的矩形函数. 而实际的光谱展宽并不仅有上述的矩形展宽. 由激光线宽和杂散电磁场导致的谱线展宽可由高斯线型函数描述, 通过拟合无电场时的分子谱线获得. 为了更好地拟合实验测量的分子光谱, 将上述矩形函数和高斯函数进行卷积, 获得有电场作用时的分子谱线为^[17]

$$S(\Delta f) = \frac{h}{2|d|E} \left[\operatorname{erf} \left(\frac{\Delta f + |d|E/h}{\sqrt{2}\sigma_f} \right) - \operatorname{erf} \left(\frac{\Delta f - |d|E/h}{\sqrt{2}\sigma_f} \right) \right], \quad (3)$$

其中 h 为普朗克常数, Δf 为相对于分子共振位置的频率失谐, erf 为误差函数, σ_f 为高斯线型的标准差. 当电场 E 值为已知时, 上述方程 (3) 中只有一个未知参数电偶极矩 $|d|$, 通过此方程拟合测量的分子光谱即可获得电偶极矩 $|d|$ 的值.

用上述 (3) 式对图 5 中测量的电场为 0.09 和 0.37 V/cm 时的分子谱线进行拟合, 参见图中红色实线所示, 分别获得散射三重态形成的里德伯-基态分子 (Triplet) 的电偶极矩 $|d|$ 为 11.03 Debye ($4.34 e a_0$) 和 14.51 Debye ($5.71 e a_0$). 此外, 还对电场为 0.18 和 0.27 V/cm 作用时的分子谱线进行拟合, 最终获得三重态里德伯-基态分子的平均电偶极矩 $|d|$ 为 (12.10 ± 1.65) Debye ($(4.76 \pm 0.65) e a_0$). 偶极矩的测量误差较大的主要原因是, 在相同的实验条件下, 随着电场增加, 不仅会出现由于永久偶极矩产生的谱线展宽, 同时还会出现由于 Stark 效应导致的分子谱线的 Stark 展宽和 Stark 分裂, 导致在较大电场条件下测量的偶极矩偏大, 进而导致了平均测量误差较大. 为了验证我们的测量结果, 依据分子的绝热势能曲线, 提取了径向电子绝热偶极矩 $D(R)$ 和振动波函数 $\Psi(R)$, 利用公式 $|d| = \left| \int |\Psi(R)|^2 D(R) dR \right|$ 计算得到三重态里德伯-基态分子的电偶极矩 $|d|$ 为 11.92 Debye ($4.69 e a_0$), 与实验测量结果相吻合.

5 结论

本文主要研究了超冷铯原子 ($36D_{5/2} + 6S_{1/2}$) 里德伯-基态分子的双光子光缔合光谱. 理论上计算了里德伯分子的绝热势能曲线, 获得了由散射三重态和散射单重态-三重态混合形成的分子束缚势阱深度和平衡核间距. 实验上利用双光子光缔合的方法成功制备了 ($36D_{5/2} + 6S_{1/2}$) 里德伯-基态分子, 获得了高分辨率的分子光缔合光谱, 获得了两种不同构型分子的振动基态的束缚能, 实验测量结果与理论相吻合. 最后, 以散射三重态形成的里德伯-基态分子为例, 研究了弱电场作用下的里德伯-基态分子的光谱展宽, 与铯原子 S 型里德伯分子 (约 kilo Debye) 不同, D 型里德伯-基态分子的偶极矩达 (12.10 ± 1.65) Debye ($(4.76 \pm 0.65) e a_0$). 这种不同主要归因于分子与里德伯电子不同轨道角动量的耦合几率不同. 同核极性里德伯-基态分子展现了不同于普通极性分子的特殊性质和光谱特征, 对研究里德伯分子特殊的束缚机制和奇特的性质具有重要意义.

参考文献

- [1] Omont A 1977 *J. de Phys.* **38** 1343

- [2] Greene C H, Dickinson A S, Sadeghpour H R 2000 *Phys. Rev. Lett.* **85** 2458
- [3] Khuskivadze A A, Chibisov M I, Fabrikant I I 2002 *Phys. Rev. A* **66** 042709
- [4] Chibisov M I, Khuskivadze A A, Fabrikant I I 2002 *J. Phys. B* **35** L193
- [5] Hamilton E L, Greene C H, Sadeghpour H R 2002 *J. Phys. B* **35** L199
- [6] Lesanovsky I, Schmelcher P, Sadeghpour H R 2006 *J. Phys. B* **39** L69
- [7] Bendkowsky V, Bjoern B, Nipper J, Shaffer J P, Robert L, Pfau T 2009 *Nature* **458** 1005
- [8] Bellos M A, Carollo R, Banerjee J, Eyler E E, Gould P L 2013 *Phys. Rev. Lett.* **111** 053001
- [9] Anderson D A, Miller S A, Raithel G 2014 *Phys. Rev. Lett.* **112** 163201
- [10] Krupp A T, Gaj A, Balewski J B, Ilzhöfer P, Hofferberth S, Löw R, Pfau T, Kurz M, Schmelcher P 2014 *Phys. Rev. Lett.* **112** 143008
- [11] Maclellan J L, Chen Y J, Raithel G 2019 *Phys. Rev. A* **99** 033407
- [12] Booth D, Rittenhouse S T, Yang J, Sadeghpour H R, Shaffer J P 2015 *Science* **348** 99
- [13] Tallant J, Rittenhouse S T, Booth D, Sadeghpour H R, Shaffer J P 2012 *Phys. Rev. Lett.* **109** 173202
- [14] Sassmannshausen H, Merkt F, Deiglmayr J 2015 *Phys. Rev. Lett.* **114** 133201
- [15] Fey C, Hummel F, Schmelcher P 2019 *Phys. Rev. A* **99** 022506
- [16] Bai S, Han X, Bai J, Jiao Y, Wang H, Zhao J, Jia S 2020 *J. Chem. Phys.* **152** 084302
- [17] Bai S, Han X, Bai J, Jiao Y, Zhao J, Jia S, Raithel G 2020 *Phys. Rev. Res.* **2** 033525
- [18] Overstreet K R, Schwettmann A, Tallant J, Booth D, Shaffer J P 2009 *Nat. Phys.* **5** 581
- [19] Han X, Bai S, Jiao Y, Hao L, Xue Y, Zhao J, Jia S, Raithel G 2018 *Phys. Rev. A* **97** 031403(R)
- [20] Duspayev A, Han X, Viray M A, Ma L, Zhao J, Raithel G 2021 *Phys. Rev. Res.* **3** 023114
- [21] Deiß M, Haze S, Denschlag J H 2021 *Atoms* **9** 34
- [22] Zuber N, Anasuri V S V, Berngruber M, Zou Y Q, Meinert F, Löw R, Pfau T 2022 *Nature* **605** 453
- [23] Li W, Pohl T, Rost J M, Rittenhouse S T, Sadeghpour H R, Nipper J, Butscher B, Balewski J B, Bendkowsky V, Löw R 2011 *Science* **334** 1110
- [24] Niederprüm T, Thomas O, Eichert T, Lippe C, Pérez-Ríos J, Greene C H, Ott H 2016 *Nat. Commun.* **7** 12820
- [25] Weimer H, Müller M, Lesanovsky I, Zoller P, Büchler H 2010 *Nat. Phys.* **6** 382
- [26] Lukin M D, Fleischhauer M, Côté R, Duan L M, Jaksch D, Cirac J I, Zoller P 2001 *Phys. Rev. Lett.* **87** 037901
- [27] Alizadeh E, Orlando T M, Sanche L 2015 *Annu. Rev. Phys. Chem.* **66** 379

Preparation of ultra-cold ($36D_{5/2}+6S_{1/2}$) Rydberg molecule and measurement of its permanent electric dipole moment*

Jiao Yue-Chun¹⁾²⁾ Bai Jing-Xu¹⁾ Song Rong¹⁾

Han Xiao-Xuan³⁾ Zhao Jian-Ming^{1)2)†}

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

2) (*Collaborative Innovation Center of Extreme Optics, Shanxi University, Taiyuan 030006, China*)

3) (*Department of Physics, Taiyuan Normal University, Jinzhong 030619, China*)

(Received 24 September 2022; revised manuscript received 22 October 2022)

Abstract

Ultra-cold long-range Rydberg molecules, consisting of a Rydberg atom and a ground-state atom or another Rydberg atom or ion, have attracted considerable attention due to their exaggerated properties, such as huge size, long chemical bond, large polarization and electric dipole moment, abundant vibrational states and exotic adiabatic potentials. The binding mechanism of Rydberg molecules is a low-energy scattering interaction between the Rydberg electron and the ground state atom for ground-Rydberg molecules or long-range multipole interaction for Rydberg-atom macrodimers and Rydberg-ion molecules, in contrast to covalent bonds, ionic bonds of normal and van der Waals interaction. Owing to its huge size, the dynamic evolution becomes slow compared with normal diatomic molecules and the ultra-long chemical bonds allow being imaged directly by high resolution imaging technology, which makes it convenient to observe the molecular dynamics process chemical reaction process in real time. The investigation of Rydberg molecules will be significant for understanding the mechanism of molecular collision and quantum chemical reaction.

In this work, we study the ultra-cold Rydberg-ground state molecules theoretically and experimentally. Theoretically, we calculate the adiabatic potential energy curve of cesium ($36D_{5/2}+6S_{1/2}$) Rydberg molecule based on the Fermi model of low energy electron scattering by numerically solving the Hamiltonian of Rydberg molecules. And also, we obtain its characteristic parameters, such as the potential depth, binding energy and equilibrium nuclear distance of Rydberg molecule. Experimentally, the Rydberg-ground molecules are investigated by a photoassociation spectroscopy, where two laser pulses are used to achieve a two-photon transition, and their spectra are obtained by ion detection technology. We successfully observe the Rydberg-ground state molecular spectra that correspond to a scattering triplet and a scattering single-triplet mixture ($^S\text{T}\Sigma$). The measured binding energy of Rydberg-ground state molecules is in good agreement with the theoretical result. In addition, taking the Rydberg-ground state molecules formed by scattering triplet ($^T\Sigma$) for example, we demonstrate the spectrum broadening of Rydberg molecules in a weak electric field, from which we obtain the permanent electric dipole moments $|\bar{d}|$ of polar Rydberg-ground state molecules about (12.10 ± 1.65) Debye ($(4.76 \pm 0.65) e a_0$). The results are consistent with the theoretical calculations. Our study provides a feasible scheme for the experimental preparation of D-type Rydberg-ground molecules, which is of great significance in studying the binding mechanism and the spectral characteristics of polar Rydberg molecules.

Keywords: ultra-cold Rydberg-ground molecule, photoassociation spectrum, adiabatic potential energy curve, permanent electric dipole moment

PACS: 32.80.Ee, 36.20.-r, 33.20.-t, 31.50.Df

DOI: 10.7498/aps.72.20221865

* Project supported by the National Nature Science Foundation of China (Grant Nos. 61835007, 12120101004, 62175136, 12104337), the Changjiang Scholars and Innovative Research Team in University of Ministry of Education of China (Grant No. RTIRT_17R70), the 1331 project of Shanxi Province, China, and the Scientific Cooperation Exchanges Project of Shanxi Province, China (Grant No. 202104041101015).

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

超冷 ($36D_{5/2}+6S_{1/2}$) 里德伯分子的制备及其电偶极矩的测量

焦月春 白景旭 宋蓉 韩小萱 赵建明

Preparation of ultra-cold ($36D_{5/2}+6S_{1/2}$) Rydberg molecule and measurement of its permanent electric dipole moment

Jiao Yue-Chun Bai Jing-Xu Song Rong Han Xiao-Xuan Zhao Jian-Ming

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 72, 033202 (2023) DOI: 10.7498/aps.72.20221865

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.72.20221865>

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

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

超冷长程Rydberg-基态分子

Ultra-cold long-range Rydberg-ground molecules

物理学报. 2021, 70(12): 123201 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20202229>

超冷铯($60D_{5/2}$)₂ Rydberg分子的双色光缔合光谱

Two-color photoassociation spectra of ultra-cold Cs ($60D_{5/2}$)₂ Rydberg molecule

物理学报. 2018, 67(23): 233201 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20181743>

超快强激光场中原子分子的里德伯态激发

Rydberg state excitation of atoms and molecules in ultrafast intense laser field

物理学报. 2022, 71(23): 233202 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20221258>

铥原子收敛于 $4f13(2F7/2_o)6s(7/2,1/2)4_o$ 和 $4f13(2F7/2_o)6s(7/2,1/2)3_o$ 偶宇称里德伯系列能级的电子关联效应

Electron correlation effects in even Rydberg series converging to $4f13(2F7/2_o)6s(7/2, 1/2)4_o$ and $4f13(2F7/2_o)6s(7/2, 1/2)3_o$ of thulium atom

物理学报. 2018, 67(18): 183102 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180797>

铯原子 $nP_{3/2}$ ($n = 70-94$)里德伯态的紫外单光子激发及量子亏损测量

Measurement of quantum defect of cesium $nP_{3/2}$ ($n = 70-94$) Rydberg states by using ultraviolet single-photon Rydberg excitation

物理学报. 2019, 68(7): 073201 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20182283>

一价镧离子高 n 里德伯态

The study on high n Rydberg state of La II

物理学报. 2019, 68(4): 043201 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20181980>