铯 $31D_{5/2}+6S_{1/2}(F=4)$ 长程里德伯分子的光缔合光谱*

白素英[1)] 韩小萱[2)] 郝丽萍[3)] 焦月春[4)] 赵建明[4)†]

1) (山西师范大学物理与信息工程学院, 太原 030031)
2) (太原师范学院物理系, 晋中 030619)
3) (太原学院材料与化学工程系, 太原 030032)
4) (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)

(2023 年 4 月 4 日收到; 2023 年 5 月 10 日收到修改稿)

长程里德伯分子由一个里德伯原子与一个或多个基态原子组成, 此类分子通过里德伯电子与基态原子间的低能电子散射相互作用束缚形成. 本文采用双光子光缔合的实验方案成功制备了由一个铯里德伯原子与一个铯基态原子形成的 $31D_{5/2}+6S_{1/2}(F=4)$ 双原子长程里德伯分子. 实验采集的光缔合光谱在原子共振线负失谐–162.8 MHz 和–66.6 MHz 处有两个明显的分子信号, 分别是由 s-波纯三重态散射和 s-波单重态-三重态混合散射形成. 使用 Fermi 赝势理论对实验结果进行模拟, 计算得到分子的绝热势能曲线, 并由分子哈密顿理论获得了 $v=0$ 分子振动基态波函数和束缚能. 理论计算与实验测量值符合得很好, 并由此得到 s-波纯三重态和单重态零能散射长度为 $a_s^T(0)=-19.16a_0$ 和 $a_s^S(0)=-1.92a_0$. 此类分子具有尺寸大、振动能级丰富和永久电偶极矩大等优良性质, 是研究低能碰撞极好的候选介质. 对此类分子的研究将进一步加深和丰富对长程里德伯分子特殊束缚机制和奇异性质的认识.

关键词: 长程里德伯分子, 低能电子散射, 绝热势能曲线, 分子振动态

PACS: 34.50.Cx, 32.80.Ee, 33.20.–t, 34.20.Cf **DOI:** 10.7498/aps.72.20230520

1 引 言

当原子中的电子处于主量子数 n 很大的高激发态时, 其是一个弱束缚系统, 对周围环境极其敏感, 这类原子被称为里德伯原子. 1934 年, Amaldi 和 Segrè[1] 在气室中观察到一系列碱金属里德伯原子, 其依赖于外部气体压力产生的频移和展宽, Fermi[2] 采用赝势理论解释了这种现象来源于里德伯原子的价电子与里德伯轨道内的基态原子间的弹性散射相互作用. Fermi 赝势理论暗示了里德伯原子与基态原子间存在振荡的相互作用势[3,4], 这种势能可以束缚基态原子形成长程里德伯分子, 这一概念由 Greene 等[5] 首次在理论上提出. 2009 年, Bendkowsky 等[6] 首次在实验上观测到 s-波散射的铷原子 $nS_{1/2}(n=34—40)$ 态长程里德伯分子, 并对分子寿命及分子在电场作用下分子的 Stark 谱进行了测量. 之后, 有研究小组对铷原子 $nP_{1/2,\,3/2}$[7] 和 $nD_{3/2,\,5/2}$[8,9] 态以及铯原子 $nS_{1/2}$[10,11] 的长程里德伯分子进行了研究. 对实验数据的分析证实了 Fermi 赝势理论的有效性, 揭示了三重态 p-波散射通道的贡献, 并且能够从数据中确定三重态 s-波和 p-波的散射长度, 从而证实了理论预测[12]. 由不同主量子数和角量子数的里德伯原子形成的里德伯分子的绝热势能曲线和特性不完全相同, 研究这些分子有助于进一步理解长程里德伯分子的特殊

* 国家自然科学基金 (批准号: 12204292, 12104337, 12120101004, 12241408)、山西省基础研究计划 (批准号: 202203021212405, 202203021212018) 和山西省高等学校科技创新计划 (批准号: 2022L268, 2021L438) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: zhaojm@sxu.edu.cn

束缚机制和奇异特性.

单重态 s-波散射长度一般为正值或远小于三重态散射长度[13,14], 因此单重态通道的散射长度未包含在以上的实验数据分析中. 2014 年, Anderson 等[15] 预测, 基态原子的超精细耦合可以有效地混合三重态和单重态散射通道并产生浅束缚势阱, 这是除了纯三重态散射产生的深束缚势阱外的另一个新势阱. 这一新奇理论被 Saßmannshausen 等[16] 的实验所验证, 随后研究者们又在铷和铯的长程里德伯分子中观察到浅势阱所产生的分子信号[17,18].

本文报道了在超冷铯原子样品中对 $31D_{5/2}+6S_{1/2}(F=4)$ 长程里德伯分子的实验观测和分析. 实验采集的光缔合光谱在原子共振线负失谐 –162.8 MHz 和–66.6 MHz 处有两个明显的分子信号, 分别由 s-波纯三重态势阱和 s-波混合单重态-三重态势阱形成. 采用 Fermi 赝势理论模型计算了 $31D_{5/2}+6S_{1/2}(F=4)$ 长程里德伯分子的绝热势能曲线和分子振动能级, 并与实验测量值进行比较, 两者符合得很好. 与之前研究的铯原子主量子数 $n=33D$—$39D$ 态长程里德伯分子[18] 相比, $31D_{5/2}$ 长程里德伯分子束缚键长减小, 形成分子的两个原子的平衡核间距变小, 实验制备时需要更大的原子密度; 同时, 主量子数 n 越小, 对应的分子束缚势阱越深, 结合能越大.

2 实验方案

长程里德伯分子的结合能低至兆赫兹量级, 为保证里德伯原子和基态原子的热运动能量小于分子结合能, 必须确保实验在低温高密度环境下进行, 同时这样的实验条件又保证了分子形成所需的另一必要条件——适当的核间距. 实验中, 俘获到磁光阱 (magneto optical trap, MOT) 中的铯基态原子被装载到交叉偶极阱 (optical dipole trap, ODT) 中, 如图 1(c) 所示. 使用吸收成像测得偶极阱中的原子密度约为 4×10^{11} cm^{-3}, 温度估算在 100 μK

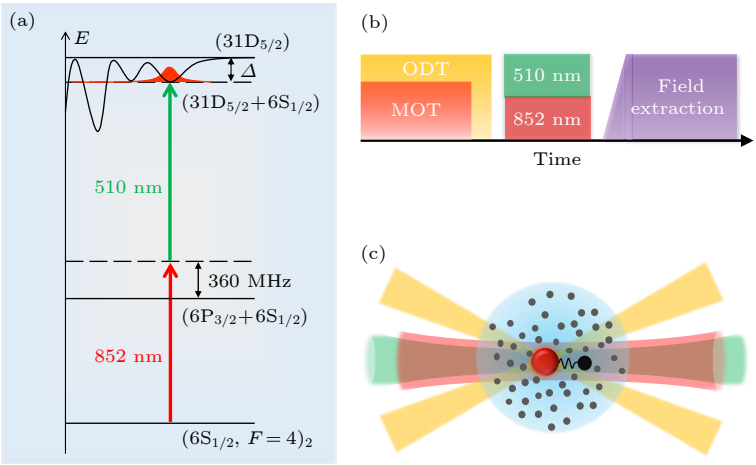

图 1 (a) 双光子光缔合激发示意图, 第 1 个 852 nm 的光子完成 $|6S_{1/2},F{=}4\rangle \rightarrow |6P_{3/2},F'{=}5\rangle$ 的原子跃迁, 第 2 个 510 nm 光子将 $|6P_{3/2},F'{=}5\rangle$ 态的原子激发到 $|31D_{5/2}\rangle$ 态, 使用双通声光调制器 (AOM) 将 852 nm 激光频率从 $|6P_{3/2},F'{=}5\rangle$ 能级向蓝失谐方向频移 360 MHz, 510 nm 激光频率从 $31D_{5/2}$ 里德伯原子能级共振线向红失谐方向扫描, 当激光能量与分子能级匹配时就形成了长程里德伯分子; (b) 时序图, MOT 光和 ODT 光关断后, 打开 852 nm 和 510 nm 激发光来制备里德伯原子和长程里德伯分子, 随后施加斜坡电离电场使得里德伯原子和分子自电离产生的离子加速到达 MCP 进行收集探测; (c) 实验制备长程里德伯分子示意图, 852 nm(红色光束) 和 510 nm(绿色光束) 激发光反向传播通过装载于偶极阱 (黄色光束) 中的铯冷原子团中心, 并将基态原子激发形成里德伯原子和分子

Fig. 1. (a) Two-photon potoassociation excitation diagram, the first photon, 852 nm laser, drives the $|6S_{1/2},F=4\rangle \rightarrow |6P_{3/2},F'=5\rangle$ transition, and the second photon, 510 nm laser, drives the $|6P_{3/2},F'{=}5\rangle \rightarrow |31D_{5/2}\rangle$ transition, the 852 nm laser frequency is blue shifted from $|6P_{3/2},F'{=}5\rangle$ by 360 MHz using a double-pass acousto-optic modulator (AOM), the 510 nm laser frequency is scanned to red detuning from the $31D_{5/2}$ Rydberg atomic line, Rydberg molecules are formed when the detuning from the atomic line matches a molecular binding energy; (b) timing sequence, after switching off the MOT and ODT beams, the 852 nm and 510 nm lasers are used to excite ground state cesium atoms to form the Rydberg atoms and molecules, a ramped electric field is finally applied to accelerate the ions that are produced by autoionization to MCP for collection and detection; (c) experimental schematic of ultralong-range Rydberg molecules, the 852 nm (red beam) and 510 nm (green beam) lasers counterpropagate through a cold Cs atom cloud located in a crossed optical dipole trap (yellow beams) and excite ground state atoms to form Rydberg atoms and molecules.

量级. 在金属 MOT 中有 3 对电极板用于对周围环境杂散电场补偿, 尽可能消除杂散电场对里德伯原子分子的影响, 补偿后的原子周围杂散电场小于 50 mV/cm, 产生的原子分子信号频移小于 0.5 MHz, 满足本工作实验条件.

实验中使用双光子光缔合的实验方案制备长程里德伯分子. 第 1 步 852 nm(Toptical DLpro) 和第 2 步 510 nm(由 Toptical DLpro 1020 nm 激光倍频得到) 激发光对向传播通过冷原子团中心, 激光腰斑分别为$\omega_{852}=80$ μm和$\omega_{510}=40$ μm. 852 nm 激光通过偏振谱稳频技术将频率锁定到$|6S_{1/2}, F=4\rangle \rightarrow |6P_{3/2}, F'=5\rangle$跃迁, 并使用双通声光调制器 (AOM)使频率从$|6P_{3/2}, F'=5\rangle$能级向蓝失谐方向频移360 MHz. 利用 PDH 稳频技术将 1020 nm 种子光通过光纤相位调制器 (EOM) 锁定到超稳腔 (Fabry-Pérot cavity) 上, 实现 510 nm激光$|6P_{3/2}, F'=5\rangle \rightarrow |31D_{5/2}\rangle$的原子跃迁频率的锁定, 锁定后的激光线宽小于 500 kHz. 通过扫描施加到 EOM 上的射频信号完成第 2 步 510 nm 激发光向 $31D_{5/2}$ 里德伯原子共振线红失谐方向的频率扫描, 当激光能量与分子能级匹配时就形成长程里德伯分子, 具体能级如图 1(a) 所示.

为了观测铯原子 $31D_{5/2}$ 里德伯态光缔合光谱, 在 MOT 光和 ODT 光关断后, 打开 852 nm 和 510 nm 两束激发光并与基态原子作用 4 μs, 随后打开斜坡脉冲电离电场使得里德伯原子和分子自电离产生的离子加速到达微通道板 (MCP) 进行收集探测, 时序如图 1(b) 所示, 实验中使用的两束激发光功率分别为 $P_{852}=100$ μW 和 $P_{510}=18$ mW. 两个自由的基态原子被光缔合激光制备到分子束缚态, 其中一个原子被激发到里德伯态, 另一个原子仍处于基态, 这两个原子形成长程里德伯分子需满足以下两个条件: 1) 两个原子的核间距与分子束缚键长匹配; 2) 光缔合激光频率距里德伯原子共振线的失谐量与分子束缚能匹配. 可以直接在光缔合光谱中得到长程里德伯分子信号, 通过测量分子信号与里德伯原子共振线间的失谐量获得分子束缚能.

图 2 所示为由 $31D_{5/2}$ 里德伯原子与 $6S_{1/2}(F=4)$ 基态原子结合形成的长程里德伯分子光缔合光谱. 图 2 中的分子光谱由以 $31D_{5/2}$ 里德伯原子共振线为零点的 6 组独立测量数据平均后得到, 误差来自 6 组独立数据的标准误差. 黑色圆点和误差是平均后得到的实验数据, 红色实线是对实验数据平滑后的结果. 在原子共振线负失谐–162.8 MHz 和–66.6 MHz 处具有两个明显的分子信号, 如图中箭头标注所示. 失谐–162.8 MHz 处的分子信号由 s-波纯三重态散射束缚形成. 考虑基态原子的超精细结构会产生混合单重态-三重态势阱, 这将导致混合分子信号的出现, 如图 2 中–66.6 MHz 失谐处的小峰所示. s-波纯三重态散射形成的分子束缚势阱比 s-波混合单重态-三重态散射形成的势阱更深, 束缚能更大, 分子结合的更牢固, 因此三重态分子信号较混合态分子信号更大, 图 2 中可以明显的看到这一点.

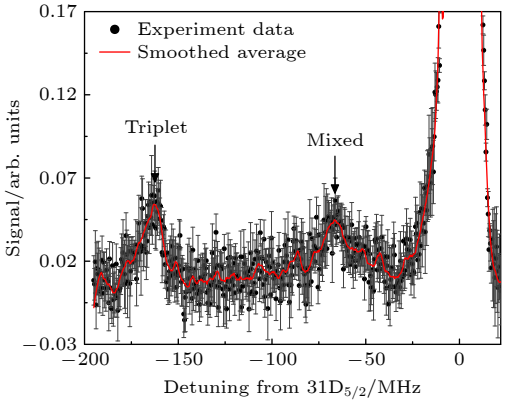

图 2 实验测量的 $31D_{5/2}+6S_{1/2}(F=4)$ 长程里德伯分子光缔合光谱. 0 MHz 处是 $31D_{5/2}$ 里德伯原子共振线, 失谐–162.8 MHz 和–66.6 MHz 处的两个小峰分别来自纯三重态势阱和混合单重态-三重态势阱形成的长程里德伯分子信号. 黑色圆点是实验测量值, 由 6 组独立实验数据平均后得到, 误差是 6 组独立测量的标准误差, 红色实线是对数据平滑后的结果

Fig. 2. The photoassosiation spectra of $31D_{5/2}+6S_{1/2}(F=4)$ long-range Rydberg molecules. The position of 0-detuning resonant excitation is $31D_{5/2}$ atoms signal. The two small peaks at detuning, –162.8 MHz and –66.6 MHz, are the long-range Rydberg molecules signals, and they are induced due to the pure triplet potential and mixed singlet and triplet potential. The black symbols show the experimental measurement of six groups of indepenent data, and the error bars are the standard errors of six independent measurements. The red solid line displays smoothed average.

3 理论模型

本文讨论的是由一个里德伯原子和一个基态原子通过里德伯电子与基态原子间的低能散射相互作用形成的长程里德伯分子, 此类分子通常使用费米赝势 (Fermi pseudopotential) 理论 [2,19] 来描述. 理论模型的详细阐述参见文献 [20, 21], 此处仅进行如下简述: 在费米模型中, 基态原子被视为微

扰, 微扰强度由与能量相关的散射长度 $a_l(k)$ 描述. 散射长度 $a_l(k)$ 与散射相移 $\eta_l(k)$ 有关, 具体表示为: $a_l(k)^{2l+1} = -\tan\left[\dfrac{\eta_l(k)}{k^{2l+1}}\right]$, 其中, k 是电子动量, l 是散射波阶数 (s, p, ···). 以铯里德伯原子实为参考坐标系, 里德伯电子与基态原子间的散射相互作用表示为[19]

$$\begin{aligned}\widehat{V}(\boldsymbol{r};R) &= 2\pi a_s(k)\,\delta^3(\boldsymbol{r}-R\hat{\boldsymbol{z}}) \\ &+ 6\pi[a_p(k)]^3\delta^3(\boldsymbol{r}-R\hat{\boldsymbol{z}})\overleftarrow{\nabla}\cdot\overrightarrow{\nabla},\end{aligned} \tag{1}$$

方程 (1) 中的 $\boldsymbol{r}$ 和 $R\hat{\boldsymbol{z}}$ 分别是里德伯电子和基态原子相对于里德伯离子核的位置.

分子系统总哈密顿量表示为[15]

$$\widehat{H}(\boldsymbol{r};R) = \widehat{H}_0 + \sum_{i=\mathrm{S,T}}\widehat{V}(\boldsymbol{r};R)\,\widehat{\boldsymbol{P}}(i) + A_{\mathrm{HFS}}\widehat{\boldsymbol{S}}_2\cdot\widehat{\boldsymbol{I}}_2, \tag{2}$$

其中, $\widehat{H}_0$ 是里德伯原子哈密顿量. 对于本文中由碱金属铯原子形成的长程里德伯分子来说, 散射相互作用涉及两个自旋为 1/2 的粒子, 即里德伯电子和基态原子. 里德伯电子自旋 S_1 和基态原子自旋 S_2 耦合形成自旋单态 $\mathrm{S}(S_1{+}S_2=0)$ 和自旋三重态 $\mathrm{T}(S_1{+}S_2=1)$. 方程 (2) 中的第 2 项是对自旋单重态 (S) 和自旋三重态 (T) 的散射通道求和, $\widehat{\boldsymbol{P}}(i)$ 是投影算符, $\widehat{\boldsymbol{P}}(T) = \widehat{\boldsymbol{S}}_1\cdot\widehat{\boldsymbol{S}}_2 + 3/4$ 且 $\widehat{\boldsymbol{P}}(S) = 1-\widehat{\boldsymbol{P}}(T)$. 方程 (2) 的最后一项描述了基态原子的电子自旋 $\widehat{\boldsymbol{S}}_2$ 与核自旋 $\widehat{\boldsymbol{I}}_2$ 耦合的超精细相互作用, A_{HFS} 为超精细结构常数.

将方程 (2) 进行对角化[5,6] 可以获得分子绝热势能曲线, 如图 3 中黑色虚线 (混合态势阱) 和黑色实线 (三重态势阱) 所示. 分子的振动态可以通过分子哈密顿理论[22–24] 计算获得, 对于双原子的长程里德伯分子来说, 通过相应的绝热势能曲线可以准确获得分子振动态和振动波函数. 图 3 是理论计算的 $31\mathrm{D}_{5/2}{+}6\mathrm{S}_{1/2}(F=4)$ 长程里德伯分子绝热势能曲线, 黑色虚线是由单重态-三重态超精细混合 (Mixed) 产生的浅势阱, 黑色实线是纯三重态散射形成的深势阱. 本实验观察到的分子信号是由势能曲线最外层势阱束缚形成, 因此将最外层势能曲线部分放大进行研究, 图 3 插图即为橙色虚线方框部分放大的结果, 绿色和粉色填充线分别是浅势阱和深势阱 $v=0$ 的分子振动波函数. 由于分子的转动能级与自然线宽相比小很多, 因此在计算中忽略了分子的转动运动.

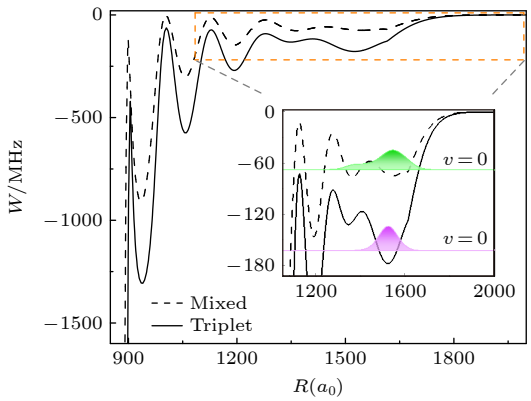

图 3 理论计算的 $31\mathrm{D}_{5/2}{+}6\mathrm{S}_{1/2}(F=4)$ 长程里德伯分子绝热势能曲线, 黑色虚线是由单重态-三重态超精细混合产生的浅势阱, 黑色实线是纯三重态散射形成的深势阱. 插图是橙色虚线方框部分放大后的结果, 绿色和粉色填充线分别是浅势阱和深势阱 $v=0$ 的分子振动波函数

Fig. 3. The calculations of potential energy curves of $31\mathrm{D}_{5/2}{+}6\mathrm{S}_{1/2}(F=4)$ long-range Rydberg molecules. The shallow potential (dashed black) comes from hyperfine-mixed singlet-triplet scattering, and the deep potential (solid black) is due to the pure triplet scattering. The inset is an enlargement of orange region. The vibrational wave functions in the outermost wells are indicated in color filled curves for $v=0$ of shallow (green) and deep (pink) potential.

4 讨论分析

零能散射长度是计算长程里德伯分子势能曲线非常重要的参数. 不同的零能散射长度会导致分子势能曲线以及分子振动能级的不同. 计算中我们同时考虑了 s-波和 p-波散射对分子势能曲线的影响. 势能曲线的最外层势阱主要由 s-波散射产生, p-波散射会使分子内层势阱加深但对最外层势阱几乎没有影响[25] . 因此对于本实验研究的由最外层势阱束缚形成的长程里德伯分子来说, 只需调节 s-波单重态和三重态零能散射长度函数 $a_{\mathrm{s}}^{\mathrm{S}}(0)$ 和 $a_{\mathrm{s}}^{\mathrm{T}}(0)$ 来对实验测量的分子束缚势阱深度进行模拟即可, p-波散射长度仍使用 Khuskivadze 等[26] 提供的非相对论函数, 没有进行进一步调整. 通过在距散射中心 $0.1a_0$ 处对电子散射波函数进行少量相移来实现 s-波散射长度函数的调整. 图 4 是铯电子-原子 (6S) 低能散射相移图, 红色实线和黑色虚线是调整后的 s-波单重态 ^{1}s 和三重态 ^{3}s 散射相移, 蓝色点划线和橙色双点划线是 p-波单重态 ^{1}p 和三重态 ^{3}p 散射相移 (仍使用 Khuskivadze 等[26] 提供的非相对论函数).

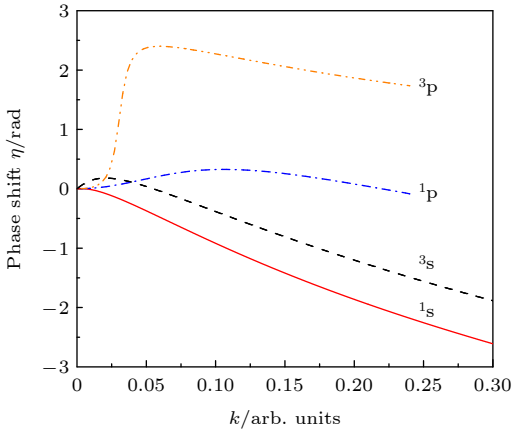

图 4 铯电子-原子 (6S) 低能散射相移, ^{1}s 和 ^{3}s 是调整后的 s-波单重态和三重态散射相移, p-波散射相移仍使用 Khuskivadze 等[26] 提供的非相对论函数

Fig. 4. Phase shifts for low-energy electron scattering from Cs. The ^{1}s and ^{3}s are adjusted s-wave singlet and triplet scattering phase shift, respectively. For p-wave phase shifts we still used nonrelativistic functions provided by Khuskivadze et al.[26].

在非相对论近似中, 使用有限范围模型势 (finite-range model potentials)[26] 来计算里德伯电子与基态原子间的低能散射相互作用. 在电子动量 k 处于 0.0003—0.3 (原子单位 a.u.) 范围内, 对 s-波单重态和三重态散射波函数进行数值积分, 并在距离基态原子 $1000a_0$ 处进行评估, 来确定单重态 $a_{\rm s}^{\rm S}(k)$ 和三重态 $a_{\rm s}^{\rm T}(k)$ 散射长度函数. 得到散射长度函数后, 将其代入分子系统哈密顿量 (方程 (2)) 中进行求解, 可以获得长程里德伯分子的绝热势能曲线, 进而由分子哈密顿理论得出分子振动态波函数及束缚能.

计算表明, s-波单重态零能散射长度 $a_{\rm s}^{\rm S}(0)$ 对纯三重态势阱没有影响, 但混合态势阱与单重态和三重态零能散射长度 $a_{\rm s}^{\rm S}(0)$ 和 $a_{\rm s}^{\rm T}(0)$ 都有关系. 因此在对实验测量的分子束缚能进行理论模拟时, 首先调节 s-波三重态零能散射长度 $a_{\rm s}^{\rm T}(0)$ 来计算三重态深势阱的分子势能曲线和分子振动基态 $v=0$ 束缚能, 当理论计算的分子束缚能与实验测量值相一致时, 可得到 s-波三重态零能散射长度 $a_{\rm s}^{\rm T}(0)=-19.16a_0$. 进而固定 $a_{\rm s}^{\rm T}(0)$, 调节 $a_{\rm s}^{\rm S}(0)$, 计算的混合态分子束缚能与实验测量值吻合时得到 $a_{\rm s}^{\rm S}(0)=-1.92a_0$. 研究报道的铯长程里德伯分子 s-波三重态和单重态零能散射长度取值范围为 $-17a_0$—$-22.7a_0$ [13,14,16,27,28] 和 $-1.33a_0$— $-3.5a_0$ [13,14,16], 得到的 s-波零能散射长度值位于它们之间.

图 5(a) 所示为以 s-波零能散射长度 $a_{\rm s}^{\rm T}(0)=-19.16a_0$ 和 $a_{\rm s}^{\rm S}(0)=-1.92a_0$ 计算的 $31{\rm D}_{5/2}$+$6{\rm S}_{1/2}$ ($F=4$) 长程里德伯分子势能曲线, 粉色和绿色填充线分别是三重态和混合态分子振动波函数, 对应的分子束缚能分别为–162.4 MHz 和–67.7 MHz. 为了方便对比, 图 5(b) 中展示了分子的光缔合光谱, 三重态和混合态分子信号分别用粉色和绿色三角形标记, 蓝色线是对分子信号的高斯拟合, 拟合得到分子束缚能为 (–162.8 ± 0.4) MHz 和 (–66.6 ± 0.6) MHz, 这与理论计算值吻合得很好, 误差在 1.6% 以内. 同时, 表 1 对 $31{\rm D}_{5/2}$+$6{\rm S}_{1/2}$($F=4$) 长程里德伯分子振动基态 $v=0$ 的理论计算与实验测量值进行了比较.

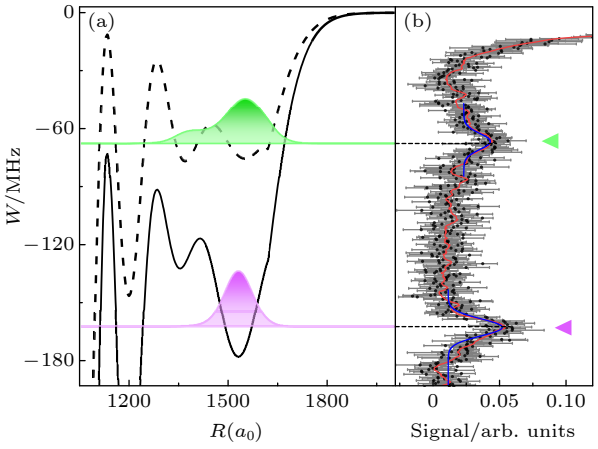

图 5 $31{\rm D}_{5/2}$+$6{\rm S}_{1/2}$($F=4$) 长程里德伯分子理论计算与实验测量的比较 (a) 理论计算的 $31{\rm D}_{5/2}$+$6{\rm S}_{1/2}$($F=4$) 长程里德伯分子绝热势能曲线和最外层势阱的分子振动基态波函数, 绿色和粉色填充线分别是单重态-三重态超精细混合浅势阱 (虚线) 和纯三重态散射深势阱 (实线) $v=0$ 的振动波函数; (b) 实验测量的 $31{\rm D}_{5/2}$+$6{\rm S}_{1/2}$($F=4$) 长程里德伯分子光谱, 绿色和粉色三角标注的两个小峰分别来自混合单重态-三重态势阱和纯三重态势阱形成的长程里德伯分子信号, 图中的蓝色曲线是对分子信号进行高斯拟合后的结果

Fig. 5. Comparison between calculated potential energy curves and experimental measurement of $31{\rm D}_{5/2}$+$6{\rm S}_{1/2}$($F=4$) long-range Rydberg molecules: (a) The calculations of $31{\rm D}_{5/2}$+$6{\rm S}_{1/2}$($F=4$) long-range Rydberg molecules potential energy curves and the vibrational wave functions in the outermost wells, the green and pink color filled curves are $v=0$ vibrational wave functions of hyperfine-mixed singlet-triplet potential and pure triplet potential, respectively; (b) the measurments of $31{\rm D}_{5/2}$+$6{\rm S}_{1/2}$($F=4$) long-range Rydberg molecules, the two peaks marked with green and pink triangles are mixed and triplet molecules signals, respectively, the blue solid lines are Gaussian fittings to the molecular peaks.

表 1 理论计算与实验测量的混合态和三重态分子 $v=0$ 振动基态束缚能的比较, 计算中使用 s-波零能散射长度 $a_{\rm s}^{\rm S}(0)=-1.92a_0$ 和 $a_{\rm s}^{\rm T}(0)=-19.16a_0$

Table 1. Comparison of theoretical calculation and experimental measurement of the ground state binding energy of mixed state and triplet state molecule with $v=0$ vibration, the s-wave zero energy scattering length of $a_{\rm s}^{\rm S}(0)=-1.92a_0$ and $a_{\rm s}^{\rm T}(0)=-19.16a_0$ is used in the calculation.

	Mixed/MHz	Triplet/MHz
Theo.	–67.7	–162.4
Exp.	–66.6 ± 0.6	–162.8 ± 0.4

5 结 论

在超冷铯原子系统中成功制备了 $31{\rm D}_{5/2}+6{\rm S}_{1/2}$ $(F=4)$ 长程里德伯分子, 并在光缔合光谱共振位置负失谐–162.8 MHz 和–66.6 MHz 处观测到两个明显的分子信号, 它们分别由 s-波纯三重态散射相互作用和超精细混合单重态-三重态散射相互作用形成. 使用里德伯电子与基态原子间的低能散射相互作用理论模型 (Fermi 赝势理论) 对实验结果进行模拟, 计算得到了分子的绝热势能曲线, 并由分子哈密顿理论获得了分子基态 $v=0$ 振动波函数和束缚能, 理论计算与实验测量值进行比较, 得到 s-波零能散射长度为 $a_{\rm s}^{\rm T}(0)=-19.16a_0$ 和 $a_{\rm s}^{\rm S}(0)=-1.92a_0$, 得到的 s-波零能散射长度值在理论预测的范围之内. 在未来的工作中, 将继续对长程里德伯分子的寿命以及永久电偶极矩等光谱参数进行研究. 同时, 在现有冷原子系统基础上可以进一步提高铯冷原子样品密度来观测由 p-波主导的内层势阱束缚产生的分子信号.

参考文献

[1] Amaldi E, Segrè E 1934 *Il Nuovo Cimento* **11** 145

[2] Fermi E 1934 *Il Nuovo Cimento* **11** 157

[3] Valiron P, Roche A L, Masnou-Seeuws F, Dolan M E 1984 *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* **17** 2803

[4] de Prunelé E 1987 *Phys. Rev. A* **35** 496

[5] Greene C H, Dickinson A S, Sadeghpour H R 2000 *Phys. Rev. Lett.* **85** 2458

[6] Bendkowsky V, Butscher B, Nipper J, Shaffer J P, Löw R, Pfau T 2009 *Nature* **458** 1005

[7] Bellos M A, Carollo R, Banerjee J, Eyler E E, Gould P L, Stwalley W C 2013 *Phys. Rev. Lett.* **111** 053001

[8] Anderson D A, Miller S A, Raithel G 2014 *Phys. Rev. Lett.* **112** 163201

[9] 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

[10] Tallant J, Rittenhouse S T, Booth D, Sadeghpour H R, Shaffer J P 2012 *Phys. Rev. Lett.* **109** 173202

[11] Booth D, Rittenhouse S T, Yang J, Sadeghpour H R, Shaffer J P 2015 *Science* **348** 99

[12] Bendkowsky V, Butscher B, Nipper J, Balewski J B, Shaffer J P, Löw R, Pfau T 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 163201

[13] Fabrikant I I 1986 *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* **19** 1527

[14] Bahrim C, Thumm U, Fabrikant I I 2001 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **34** L195

[15] Anderson D A, Miller S A, Raithel G 2014 *Phys. Rev. A* **90** 062518

[16] Saßmannshausen H, Merkt F, Deiglmayr J 2015 *Phys. Rev. Lett.* **114** 133201

[17] Maclennan J L, Chen Y J, Raithel G 2019 *Phys. Rev. A* **99** 033407

[18] Bai S, Han X, Bai J, Jiao Y, Zhao J, Jia S, Raithel G 2020 *Phys. Rev. Res.* **2** 033525

[19] Omont A 1977 *J. Phys.* **38** 1343

[20] Bai S Y, Bai J X, Han X X, Jiao Y C, Zhao J M, Jia S T 2020 *Chin. Phys. Lett.* **37** 123201

[21] Jiao Y C, Bai J X, Song R, Han X X, Zhao J M 2023 *Acta Phys. Sin.* **72** 033202 (in Chinese) [焦月春, 白景旭, 宋蓉, 韩小萱, 赵建明 2023 物理学报 **72** 033202]

[22] Yang Y, Kühn O 2008 *Mol. Phys.* **106** 2445

[23] Yang Y, Meuwly M 2010 *J. Chem. Phys.* **133** 064503

[24] Yang Y, Liu X, Meuwly M, Xiao L, Jia S 2012 *J. Phys. Chem. A* **116** 11134

[25] Hamilton E L, Greene C H, Sadeghpour H R 2002 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **35** L199

[26] Khuskivadze A A, Chibisov M I, Fabrikant I I 2002 *Phys. Rev. A* **66** 042709

[27] Bahrim C, Thumm U 2000 *Phys. Rev. A* **61** 022722

[28] Markson S, Rittenhouse S T, Schmidt R, Shaffer J P, Sadeghpour H R 2016 *Chemphyschem* **17** 3683

Photoassociation spectra of cesium $31D_{5/2}+6S_{1/2}(F=4)$ ultralong-range Rydberg molecules*

Bai Su-Ying [1)] Han Xiao-Xuan [2)] Hao Li-Ping [3)]

Jiao Yue-Chun [4)] Zhao Jian-Ming [4)†]

1) (*School of Physics and Information Engineering, Shanxi Normal University, Taiyuan* 030031, *China*)

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

3) (*Department of Materials and Chemical Engineering, Taiyuan University, Taiyuan* 030032, *China*)

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

(Received 4 April 2023; revised manuscript received 10 May 2023)

Abstract

In this paper, we conduct the experiment and simulation on $31D_{5/2}+6S_{1/2}(F=4)$ Cs_2 ultralong-range Rydberg molecules (ULRMs). These molecules are prepared by employing a two-photon photoassociation scheme. Two distinct ultralong-range Rydberg molecular signals are observed at the detuning –162.8 MHz and –66.6 MHz of $31D_{5/2}$ atomic resonant line, which are bound by the pure triplet potential and mixed singlet-triplet potential, respectively. We use the model of scattering interaction between the Rydberg electron and ground-state atom to perform the simulation. The molecular potential-energy curves are obtained by solving the Hamiltonian on a grid of intermolecular distances R. The calculations of the binding energy of pure triplet and mixed singlet-triplet $v=0$ vibrational states are compared with the experimental measurements. The calculated and measured values of the binding energy are in good agreement. The s-wave pure triplet and singlet zero-energy scattering length are obtained to be $a_s^{\mathrm{T}}(0)=-19.16a_0$ and $a_s^{\mathrm{S}}(0)=-1.92a_0$, respectively. This kind of molecule with large size, abundant vibrational states and large permanent electric dipole moment is an excellent candidate for studying low-energy collision dynamics. The study of these molecules will further deepen and enrich the understanding of the special binding mechanism and exotic properties of the ULRMs.

Keywords: ultralong-range Rydberg molecules, low energy electron scattering, adiabatic potential energy curves, molecular vibration states

PACS: 34.50.Cx, 32.80.Ee, 33.20.–t, 34.20.Cf **DOI:** 10.7498/aps.72.20230520

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 12204292, 12104337, 12120101004, 12241408), the Applied Basic Research Program of Shanxi Province, China (Grant Nos. 202203021212405, 202203021212018), and the Scientific and Technological Innovation Programs of Higher Education Institutions in Shanxi, China (Grant Nos. 2022L268, 2021L438).

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

物理学报 Acta Physica Sinica
Chinese Physical Society
Institute of Physics, CAS

铯$31D_{5/2}$+$6S_{1/2}$(F = 4)长程里德伯分子的光缔合光谱

白素英 韩小萱 郝丽萍 焦月春 赵建明

Photoassociation spectra of cesium $31D_{5/2}$+$6S_{1/2}$(F = 4) ultralong-range Rydberg molecules

Bai Su-Ying Han Xiao-Xuan Hao Li-Ping Jiao Yue-Chun Zhao Jian-Ming

引用信息 Citation: Acta Physica Sinica, 72, 143201 (2023) DOI: 10.7498/aps.72.20230520
在线阅读 View online: https://doi.org/10.7498/aps.72.20230520
当期内容 View table of contents: http://wulixb.iphy.ac.cn