

专题: 超冷原子分子物理

超冷极性 $^{23}\text{Na}^{40}\text{K}$ 分子第一转动态的研究*陈卫¹⁾²⁾ 顾正宇¹⁾²⁾ 周暄胜¹⁾²⁾ 王鹏军^{1)2)†}

1) (山西大学光电研究所, 光量子技术与器件全国重点实验室, 太原 030006)

2) (极端光学协同创新中心, 太原 030006)

(2026年2月11日收到; 2026年3月19日收到修改稿)

超冷极性分子具有长程电偶极相互作用与丰富的内部自由度, 在多个前沿研究领域具有巨大的应用潜力. 第一转动态作为核心的旋转自由度, 是实现分子量子态操控的首要选择, 可以用来精确调控极性分子的长程相互作用强度, 或者作为量子信息处理中的量子态. 本文以超冷 $^{23}\text{Na}^{40}\text{K}$ 分子为研究对象, 开展了两个超精细基态对应的不同第一转动激发态能级结构的研究, 并且实现了超冷分子在基态和第一转动激发态之间的相干操控. 首先通过理论计算标定了第一转动态中的不同超精细能级以及基态到激发态跃迁频率随外磁场的变化, 随后实验上通过测量基态分子损耗谱的方法确定了第一转动激发态的共振频率. 结果表明, 理论计算与实验数据呈现出高度一致性. 进一步利用微波场驱动实现了分子在基态和第一转动激发态之间的拉比振荡. 该研究为后续基于超冷极性分子第一转动态的研究提供了基础.

关键词: 超冷分子, 超精细能级, 微波激发谱, 拉比振荡**DOI:** 10.7498/aps.75.20260232**CSTR:** 32037.14.aps.75.20260232

1 引言

超冷极性分子具有可调的长程电偶极-偶极相互作用和丰富的内部自由度, 包括分子的电子态、振动态、转动态以及超精细能态等自由度^[1]. 在超冷温度下, 分子的外部自由度被完全冻结, 从而可以实现大量制备分子的单一量子态以及对分子量子态的精准操控. 这些研究特性使得超冷分子在精密测量^[2-5]、量子模拟^[6,7]、量子计算^[8]、量子化学^[9,10]以及多体物理^[11-13]等领域展现出巨大的应用潜力, 为探索新颖的量子物态和实现多自由度调控提供了理想的平台.

对超冷分子量子态的精准操控是实现科学应用的基础. 对于制备在最低振转能态的超冷分子, 第一转动态是操控极性分子的首选自由度^[8,14-19],

转动态的跃迁频率处于微波频段. 在无外场时, 分子电偶极矩的期望值为零, 不存在长程相互作用^[20]. 施加外电场或微波场后, 转动态与分子固有电偶极矩发生耦合, 导致转动态的宇称混合并改变了分子轴的取向, 此时分子电偶极矩的期望值不再为零, 从而可以通过施加外场来调控分子间的有效相互作用^[21,22]. 在最近微波屏蔽技术对超冷极性分子中的成功应用中^[23-27], 使用蓝失谐的圆偏振微波场, 将基态分子制备在基态和第一转动态的叠加态上, 微波场的引入诱导了分子间的长程偶极相互作用, 可以通过调控微波场的参数来精确设计长程相互作用, 从而产生分子之间的长程势垒^[28-30]. 该技术进一步结合蒸发冷却手段, 将极性分子制备到玻色爱因斯坦凝聚体^[26,27]和费米量子简并^[23]. 在量子信息处理应用中, 第一转动态既可作为量子比特, 又可以作为调控分子间相互作用的开关. 实验

* 国家重点研发计划 (批准号: 2021YFA1401700, 2022YFA1404101) 和国家自然科学基金 (批准号: U23A6004, 12488301, 12322409, 12474252, 12474266, 12374245, 12504336) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: pengjun_wang@sxu.edu.cn

上人们将第一转动态作为中间态, 实现了两个基态超精细能级间的秒量级相干^[31]. 进一步通过构建超冷玻色极性分子的基态与第一转动态形成纠缠态, 观测到相干时间达到了 500 ms^[32]. 在波长为魔术波长的光镊中, 实现了对分子基态、第一转动态和第二转动态的操控, 开展了编码在这 3 个转动能态上的秒量级相干动力学研究, 并预测可以扩展至 10 个转动态间的秒量级相干演化^[33].

双原子分子转动态中包含大量的超精细态 $|N, m_N, I_{\text{Na}}, m_{I_{\text{Na}}}, I_{\text{K}}, m_{I_{\text{K}}}\rangle$, 复杂的结构来源于分子转动和原子核自旋间的多种相互作用, 可以通过哈密顿量精确描述^[34,35]. 以 $^{23}\text{Na}^{40}\text{K}$ 分子为例, 其基态包含 36 个超精细态, 第一转动态具有 108 个超精细态. 复杂的能态结构对超冷分子的研究产生了很大影响, 比如在基态分子制备过程中, 密集能态导致的干涉现象^[36]. 因此, 精确标定超冷 $^{23}\text{Na}^{40}\text{K}$ 分子的超精细态, 有助于实验上实现量子态的精确操控.

本文以制备在振转基态的超冷 $^{23}\text{Na}^{40}\text{K}$ 分子为研究对象, 通过理论计算和实验测量标定了两个超精细态 $G_1 |0, 0, 3/2, 3/2, 4, -4\rangle$ 与 $G_2 |0, 0, 3/2, 1/2, 4, -4\rangle$ 分别到其对应第一转动激发态的跃迁频率. 实验上通过标定基态分子的损耗谱确定了对应的第一转动激发态能级的位置. 理论计算结果和实验数据高度吻合. 进一步通过微波操控, 观测到分子在基态和第一转动激发态之间的拉比振荡, 表明实现了超冷极性分子在基态和转动态上的相干操控. 该研究成果加深了对分子内部能级结构与不同内部自由度耦合机制的理解, 为后续开展基于超冷分子量子态调控的量子化学以及量子信息处理等研究奠定了重要基础.

2 理 论

2.1 双原子分子哈密顿量

由于 $^{23}\text{Na}^{40}\text{K}$ 分子的振转基态为电子自旋单重态, 其超精细能态结构只与核自旋和分子转动的相互作用有关. 钠核自旋 ($I_{\text{Na}} = 3/2$), 钾核自旋 ($I_{\text{K}} = 4$), 在绝对转动基态 ($N = 0$) 的超精细态 $|N, m_N, I_{\text{Na}}, m_{I_{\text{Na}}}, I_{\text{K}}, m_{I_{\text{K}}}\rangle$ 数量为 $(2I_{\text{Na}}+1)(2I_{\text{K}}+1) = 36$ 个. 在第一转动激发态 ($N = 1$) 考虑分子转动和核自旋的耦合时, 超精细能态数量为 $(2I_{\text{Na}}+1)(2I_{\text{K}}+1) \times (2N+1) = 108$ 个. 在外部磁场下, 双原子分子的

振转能级包含丰富的超精细结构, 分子的哈密顿量^[34,37] 可以表示为

$$H_{\text{T}} = H_{\text{rot}} + H_{\text{spin-rot}} + H_{\text{spin-spin}} + H_{\text{quad}} + H_{\text{Zeeman}}, \quad (1)$$

其中前 4 项是外部磁场为零时的哈密顿量, $H_{\text{rot}} = B_{\text{rot}}N^2$ 表示分子转动能项, 描述了分子基于刚性转子模型时的转动贡献, N 为分子的转动角动量算符.

$H_{\text{spin-rot}} = c_1 N \cdot I_{\text{Na}} + c_2 N \cdot I_{\text{K}}$ 描述核自旋-转动的相互作用, 反映原子核自旋与分子转动角动量之间的耦合作用, 其中 $I_{\text{Na}}, I_{\text{K}}$ 代表钠和钾的核自旋算符.

核自旋-自旋相互作用的哈密顿量表示为 $H_{\text{spin-spin}} = c_4 I_{\text{Na}} \cdot I_{\text{K}} - c_3 \sqrt{6} T^2(C) \cdot T^2(I_{\text{Na}}, I_{\text{K}})$, 其中第 1 项为标量部分, 反映两个核自旋磁矩的平均耦合强度, 第 2 项为张量项, 其强度取决于两个核自旋的相对取向, 空间部分 $T_q^2(C) = C_q^2(\theta, \phi) = \sqrt{\frac{4\pi}{5}} Y_q^2(\theta, \phi)$. 当分子处于基态 ($N = 0$) 时,

$$\begin{aligned} & \langle 0, 0 | C_q^2 | 0, 0 \rangle \\ &= \sqrt{\frac{4\pi}{5}} \int Y_0^0(\theta, \phi) Y_q^2(\theta, \phi) Y_0^0(\theta, \phi) d\Omega \\ &= \sqrt{\frac{4\pi}{5}} \frac{1}{4\pi} \int Y_q^2(\theta, \phi) d\Omega = 0, \end{aligned}$$

表明分子处在基态时, 分子轴在所有方向上均匀分布, 分子轴的指向在所有方向的概率相等, 相互作用只剩标量项的贡献. 当分子处于第一转动态 ($N = 1$) 时,

$$\begin{aligned} & \langle 1, m_N | C_q^2 | 1, m_N \rangle \\ &= \sqrt{\frac{4\pi}{5}} \int Y_{m_N}^1(\theta, \phi) Y_q^2(\theta, \phi) Y_{m_N}^1(\theta, \phi) d\Omega \neq 0, \end{aligned}$$

表明分子轴空间分布的各向异性, 核自旋-自旋相互作用包含了标量项和张量项的贡献.

核电四极矩相互作用的哈密顿量表示为 $H_{\text{quad}} = -e \sum_{i=\text{Na}, \text{K}} T^2(Q_i) \cdot T^2(\nabla E_i)$, 相互作用强度由耦合常数 $(eQq)_i$ 决定. $T^2(Q_i)$ 和 $T^2(\nabla E_i)$ 分别代表原子核固有核电四极矩张量以及在核位置处电场梯度张量. 与前面分析类似, 分子处于基态 ($N = 0$) 时, 空间波函数各向同性, 核电四极矩相互作用的一阶贡献为零. 分子处于激发态 ($N = 1$) 时, 空间波函数的各向异性导致张量项的贡献不为零.

塞曼效应哈密顿量表示为 $H_{\text{Zeeman}} = -\mu_N g_{\text{rot}} \times N \cdot B - \mu_N g_{\text{Na}} I_{\text{Na}} \cdot B - \mu_N g_{\text{K}} I_{\text{K}} \cdot B$, 描述外加磁场

与分子磁矩之间的相互作用, 是在外部磁场作用下影响分子能级分裂的决定性因素, $g_{\text{rot}}, g_{\text{Na}}, g_{\text{K}}$ 分别表示分子转动、钠、钾原子的朗德因子, μ_N 是核磁子、 \mathbf{B} 为外磁场矢量. 表 1 总结了计算哈密顿量所用常数, 其中, $1 \text{ Debye} = 3.33564 \times 10^{-30} \text{ C} \cdot \text{m}$.

在分子体系中, 主要包含了分子的转动自由度以及两个原子核的自旋自由度. 在非耦合表象下, 基矢由三者的共同本征态组成: $|N, m_N, I_{\text{Na}}, m_{I_{\text{Na}}}, I_{\text{K}}, m_{I_{\text{K}}}\rangle$. 考虑到 $^{23}\text{Na}^{40}\text{K}$ 分子的转动 (N) 与原子核自旋 ($I_{\text{Na}}, I_{\text{K}}$) 自由度, 构建了总维度为: $\text{dim} = \sum_{N=0}^{N=\max} (2N+1) \cdot (2I_{\text{Na}}+1) \cdot (2I_{\text{K}}+1)$ 的态空间.

表 1 计算分子哈密顿量中所用到的常数
Table 1. Constants used in the molecular Hamiltonian calculation.

符号	物理含义	数值	单位	符号	物理含义	数值	单位
B_{rot}	转动常数	2.821735 ^[16]	GHz	$(eQq)_{\text{K}}$	钾核电四极矩耦合常数	0.899 ^[16]	MHz
C_1	钠原子核自旋-转动相互作用常数	117.4 ^[38]	Hz	d_0	分子固有电偶极矩	2.72 ^[41]	Debye
C_2	钾原子核自旋-转动相互作用常数	-97 ^[38]	Hz	g_{rot}	分子转动朗德因子	0.0253 ^[39]	—
C_3	张量核自旋-自旋相互作用常数	-48.4 ^[38]	Hz	g_{Na}	钠核朗德因子	1.477 ^[40]	—
C_4	标量核自旋-自旋相互作用常数	-409 ^[16]	Hz	g_{K}	钾核朗德因子	0.324 ^[40]	—
$(eQq)_{\text{Na}}$	钠核电四极矩耦合常数	-0.187 ^[16]	MHz				

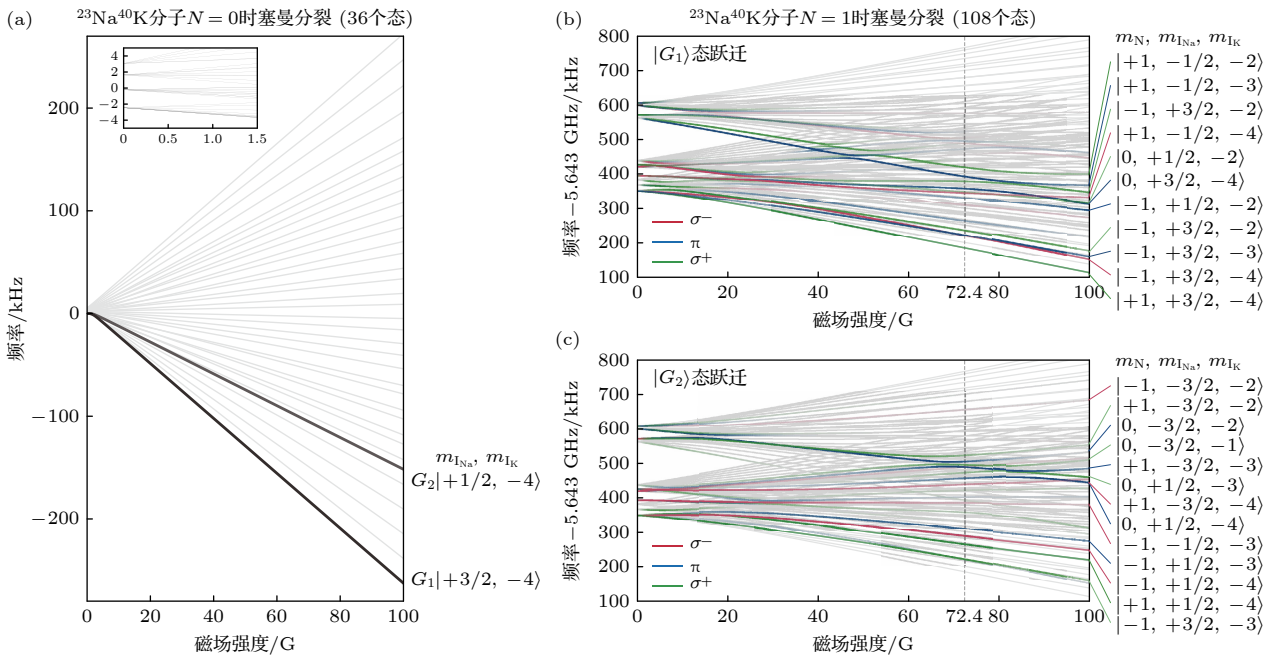


图 1 $^{23}\text{Na}^{40}\text{K}$ 塞曼分裂示意图 (a) 基态 ($N=0$) 在外磁场中的塞曼能级分裂, 加粗标记了超精细能级分别为 $|G_1\rangle$ $|+3/2, -4\rangle$ 和 $|G_2\rangle$ $|+1/2, -4\rangle$; (b), (c) 第一转动 ($N=1$) 激发态在外磁场下的塞曼能级分裂, 彩色实线标注了从基态 $|G_1\rangle$ 和 $|G_2\rangle$ 符合跃迁选择定则的激发态能级, 后面标注了该能级中占主导的非耦合基矢

Fig. 1. Zeeman splitting and transition spectra of $^{23}\text{Na}^{40}\text{K}$: (a) Zeeman splitting of the ground state ($N=0$) in a magnetic field, the labeled levels $|G_1\rangle$ and $|G_2\rangle$ correspond to $|+3/2, -4\rangle$ and $|+1/2, -4\rangle$, respectively; (b), (c) Zeeman splitting of the first rotational excited state ($N=1$), colored solid lines denote the excited states accessible from the ground states of $|G_1\rangle$ and $|G_2\rangle$, the dominant uncoupled basis in this energy level is marked below.

核塞曼项逐渐占据主导地位, 由于钠核的磁矩远远大于钾核, 所以能级演化斜率主要由钠核决定, 并且每个簇内由钾核贡献了九重细微分裂.

对于第一转动激发态 ($N = 1$), 核电四极矩相互作用在零场下打破了转动投影的简并, 将能级按照 3 个在量子化轴的转动投影 $m_N = 0, \pm 1$ 分裂为 3 个分支. 随着磁场增大, 能级演化逐渐由核塞曼项主导. 由于第一转动激发态 ($N = 1$) 打破空间各向同性, 所有的超精细相互作用都参与能级解耦过程. 其中核自旋-转动耦合 (c_1, c_2) 与核自旋-自旋 (c_3) 相互作用的参与, 使得能级在相互接近时产生强烈的态混合, 进一步与核自旋-自旋标量项 (c_4) 以及核电四极矩的预分裂, 共同构成了第一转动激发态 ($N = 1$) 在外磁场下复杂的塞曼能级分布.

2.3 塞曼能级跃迁频谱

图 2(a), (b) 分别表示基态 $G_1 |0, 0, 3/2, 3/2, 4, -4\rangle$ 和基态 $G_2 |0, 0, 3/2, 1/2, 4, -4\rangle$ 分别到第一转动激发态的跃迁频率随外部磁场的变化. 对于满足选择定则的基态和激发态之间的跃迁, 其共振频率可由对应的本征能量差计算得到. 图中灰色线表示禁戒跃迁, 3 种颜色线对应 3 种不同微波偏振下允许的能态跃迁通道, 颜色深浅代表对应跃迁的耦合

强度. 图中直观地展示在给定磁场条件下允许跃迁的超精细态能够被微波场有效耦合, 为实验中复杂的微波跃迁选择提供了理论参考.

2.4 塞曼能级跃迁偶极矩

在微波场作用下, 微波光子仅与分子转动自由度发生耦合作用, 因此分子在转动态之间跃迁时仅转动量子数 m_N 会改变, 而核自旋磁量子数 $m_{I_{Na}}$, m_{I_K} 保持守恒. 在计算跃迁偶极矩 (transition dipole moment, TDM) 时, 仅考虑分子转动自由度的理想情况下, 分子电偶极算符可写为一阶球张量形式:

$$\mathbf{d}_q = d_0 \mathbf{T}_q^1(C), \quad (2)$$

其中 d_0 表示分子永久电偶极矩, $\mathbf{T}_q^1(C)$ 为描述分子空间取向特性的一阶球谐张量算符. 利用 Wigner-Eckart 定理, 转动电偶极矩在空间固定坐标系中的矩阵元表示为

$$\begin{aligned} & \langle N', m'_N | \mathbf{d}_q | N, m_N \rangle \\ &= (-1)^{m'_N} d_0 \sqrt{(2N'+1)(2N+1)} \\ & \times \begin{pmatrix} N' & 1 & N \\ -m'_N & q & m_N \end{pmatrix} \begin{pmatrix} N' & 1 & N \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}, \quad (3) \end{aligned}$$

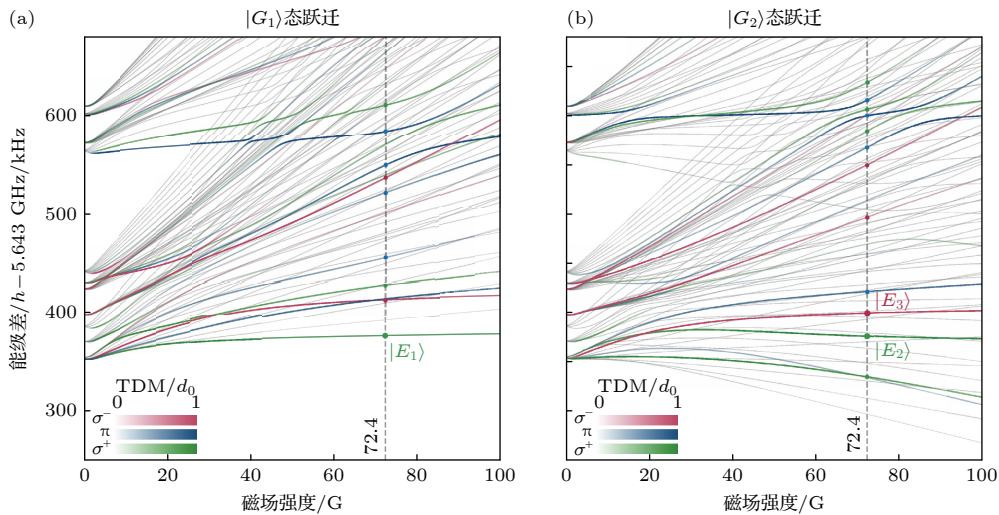


图 2 $^{23}\text{Na}^{40}\text{K}$ 塞曼能级跃迁频谱, 从基态 $|G_1\rangle$ (a) 和 $|G_2\rangle$ (b) 到第一转动激发态的跃迁频率随外部磁场的变化, 红色、蓝色和绿色曲线对应 σ^- , π 和 σ^+ 微波驱动的跃迁, 颜色深浅对应跃迁偶极矩强度, 实点标记了实验中 72.4 G ($1 \text{ G} = 10^{-4} \text{ T}$) 磁场下的共振跃迁频率

Fig. 2. Microwave transition spectra between Zeeman sublevels of $^{23}\text{Na}^{40}\text{K}$, transition frequencies from ground states $|G_1\rangle$ (a) and $|G_2\rangle$ (b) to the first rotationally excited state vary with the external magnetic field, red, blue, and green curves correspond to transitions driven by σ^- , π and σ^+ microwave radiation, respectively, with color intensity reflecting the strength of the transition dipole moment, solid dots mark the resonant transition frequencies measured experimentally at a magnetic field of 72.4 G ($1 \text{ G} = 10^{-4} \text{ T}$).

$\begin{pmatrix} N' & 1 & N \\ -m'_N & q & m_N \end{pmatrix}$ 决定了磁子能级间的选择定则, 只有当 $-m'_N + q + m_N = 0$ 时该项才不为 0, 推出 $\Delta M_N = q$, $q = 0, \pm 1$ 对应微波场 π, σ^\pm 三种偏振方向. $\begin{pmatrix} N' & 1 & N \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$ 可以反映出空间旋转对称性对转动跃迁的限制, 允许的转动态跃迁为: $\Delta N = \pm 1$.

从基态 ($N = 0$) 到第一转动激发态 ($N = 1$) 转动跃迁的偶极矩值为

$$|d_{\text{rot}}| = |\langle 1, M'_N | \mathbf{d}_q | 0, 0 \rangle| = d_0 / \sqrt{3}. \quad (4)$$

当外部磁场不为零时, 超精细相互作用与塞曼相互作用共同决定了核自旋-转动耦合体系的能级结构, 此时分子的量子态 $|\varphi\rangle$ 表示为非耦合基矢的线性叠加:

$$|\varphi\rangle = \sum_l C_l |l\rangle, \quad (5)$$

其中非耦合基矢 $|l\rangle = |N, m_N, I_{Na}, m_{I_{Na}}, I_K, m_{I_K}\rangle$, C_l 为其对应的展开系数. 基态 $|\varphi_e\rangle$ 到激发态 $|\varphi_g\rangle$ 跃迁的偶极矩为

$$\text{TDM} = \langle \varphi_e | \mathbf{d}_q | \varphi_g \rangle = \sum_k C_k^* C_l \langle k | \mathbf{d}_q | l \rangle. \quad (6)$$

由于电偶极矩算符 \mathbf{d}_q 仅作用于空间转动部分, 所以从基态 $|0, 0\rangle$ 到第一转动激发态 $|1, M_N\rangle$ 跃迁的偶极矩为

$$\begin{aligned} \text{TDM} &= \sum_k C_k^* C_l \langle 1, m'_N | \mathbf{d}_q | 0, 0 \rangle \delta_{m'_{I_{Na}}, m_{I_{Na}}} \delta_{m'_{I_K}, m_{I_K}} \\ &= \frac{d_0}{\sqrt{3}} \sum_k C_k^* C_l. \end{aligned} \quad (7)$$

结果表明, 转动跃迁的偶极矩是以 $d_0/\sqrt{3}$ 尺度的加权叠加.

选取外磁场为 72.4 G 下, 对基态 $|G_1\rangle$ 与激发态 $|E_1\rangle$ 之间的跃迁为例进行分析. $|G_1\rangle$ 的量子态波函数在非耦合基组下表示为: $|G_1\rangle = -0.9999 \times |0, 0, 3/2, -4\rangle - 0.0106 |0, 0, 1/2, -3\rangle$, 基态可近似看作非耦合基矢 $|0, 0, 3/2, -4\rangle$ 所构成的纯态. 考虑偏振为 σ^+ 的微波驱动 $|G_1\rangle$ 到激发态 $|E_1\rangle$ 的跃迁, $|E_1\rangle$ 波函数在非耦合基组下表示为

$$\begin{aligned} |E_1\rangle &= -0.8365 |1, 1, 3/2, -4\rangle - 0.1104 |1, 1, 1/2, -3\rangle \\ &- 0.0590 |1, -1, 3/2, -2\rangle - 0.0324 |1, -1, 1/2, -1\rangle \\ &+ 0.0263 |1, 0, 1/2, -2\rangle + 0.0070 |1, 1, -1/2, -2\rangle \\ &+ 0.0028 |1, 1, -3/2, -1\rangle + 0.0018 |1, -1, -1/2, 0\rangle \\ &+ 0.5318 |1, 0, 3/2, -3\rangle. \end{aligned} \quad (8)$$

微波跃迁严格遵循各自核自旋投影量子数守恒的选择定则, $|G_1\rangle$ 态仅能与 $|E_1\rangle$ 中前两项发生耦合, 所以 $|G_1\rangle$ 到 $|E_1\rangle$ 跃迁的偶极矩为

$$\begin{aligned} \text{TDM}_{G_1, E_1} &= |(-0.9999) \times (-0.8365) \\ &+ (-0.0106) \times (-0.1104)| \times \frac{d_0}{\sqrt{3}} \approx 0.4836 d_0. \end{aligned} \quad (9)$$

类似上述计算过程, 对于基态 $|G_2\rangle$ 的波函数在非耦合基组下表示为 $|G_2\rangle = 0.9999 |0, 0, 1/2, -4\rangle + 0.0122 |0, 0, -1/2, -3\rangle$, $|E_2\rangle$ 在该基组下可表示为 $|E_2\rangle = -0.8111 |1, 1, 1/2, -4\rangle + 0.1139 |1, 1, -1/2, -3\rangle + \dots$ 当使用偏振为 σ^+ 微波驱动 $|G_2\rangle$ 到激发态 $|E_2\rangle$ 跃迁的偶极矩为

$$\begin{aligned} \text{TDM}_{G_2, E_2} &= |0.9999 \times (-0.8111) + 0.0122 \times 0.1139| \\ &\times \frac{d_0}{\sqrt{3}} \approx 0.4674 d_0. \end{aligned} \quad (10)$$

同样 $|E_3\rangle$ 在该基组下可表示为: $|E_3\rangle = 0.9759 \times |1, -1, 1/2, -4\rangle - 0.0126 |1, -1, -1/2, -3\rangle + \dots$, 当使用偏振为 σ^- 微波驱动 $|G_2\rangle$ 到激发态 $|E_3\rangle$ 跃迁的偶极矩为

$$\begin{aligned} \text{TDM}_{G_2, E_3} &= |0.9999 \times 0.9759 + (-0.0126) \times 0.0122| \\ &\times \frac{d_0}{\sqrt{3}} \approx 0.5633 d_0. \end{aligned} \quad (11)$$

3 实验测量

在远失谐交叉光学偶极阱中, 制备了温度约为 300 nK 的 ^{23}Na 和 ^{40}K 的量子简并混合气体, 两种原子数目分别约为 2×10^5 个和 4×10^5 个 [42-44]. 图 3(a) 中展示了真空玻璃腔外部线圈, 用于提供实验中所需磁场.

利用磁缔合技术合成约 3×10^4 个 Feshbach 分子, 温度约为 251 nK. 具体实验流程为: 在 2.5 ms 内将磁场从 80.3 G 绝热扫描至 77.5 G, 原子跨越 78.3 G 处 Feshbach 共振点, 实现从自由原子态绝热地转移到分子态. 为了抑制原子和 Feshbach 分子间的非弹性碰撞损耗, 随后磁场在 0.1 ms 内进一步降至 72.6 G, 并施加 35 G/cm 的梯度磁场持续 25 ms 以清除残余原子, 同时降低光阱深度以减小对原子的束缚, 磁场时序如图 3(b) 所示. 随后, 利用受激拉曼绝热转移通道 (stimulated raman adiabatic passage, STIRAP) 技术实现 Feshbach 分子向最低振转基态转移. 通过精确设计 STIRAP

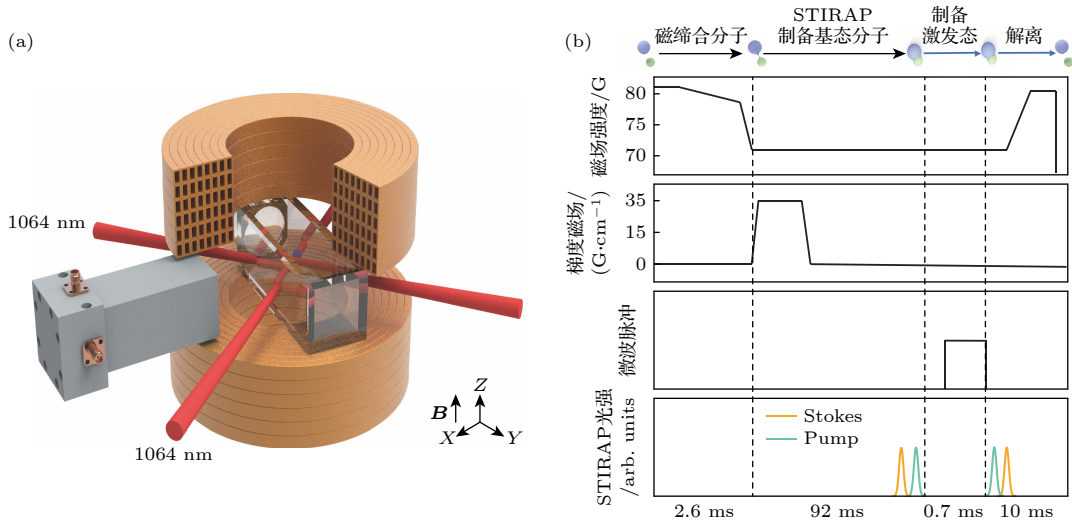


图 3 (a) 实验装置图, 交叉红色光束为 1064 nm 光学偶极阱, 波导天线沿水平方向放置, 磁场方向沿 Z 轴竖直向上; (b) 时序图
 Fig. 3. (a) Experimental setup diagram, the intersecting red beams are a 1064 nm optical dipole trap, and the waveguide antenna is placed along the horizontal direction, with the magnetic field direction vertically upward along the Z-axis; (b) timing diagram.

两束光的时序, 使得单次 STIRAP 效率达 75%, 在光学偶极阱中制备了约 2.25×10^4 个基态分子, 温度约为 247 nK^[45]. 在此过程中, 先开启 Stokes 光耦合基态与激发态, 后开启 Pump 光耦合 Feshbach 态与激发态, 从而实现了将 Feshbach 分子绝热转移至振转能级为零的基态. 实验上通过调节 Stokes 光的偏振方向, 可以实现分子在 $G_1 |0, 0, 3/2, 3/2, 4, -4\rangle$ 和 $G_2 |0, 0, 3/2, 1/2, 4, -4\rangle$ 两个基态上的选择性制备. STIRAP 激光的相位噪声基底是影响其分子转移效率的主要因素. 最近人们通过采用外加滤波腔^[46]、延长半导体激光器腔长^[47]以及前置反馈技术^[48]将单次 STIRAP 效率提高到 95%.

为了探测分子基态 ($N = 0$) 到第一转动激发态 ($N = 1$) 的转动跃迁, 实验中波导天线沿水平方向放置于玻璃腔一侧, 用来辐射驱动分子转动跃迁的微波场, 如图 3(a) 所示. 实验中, 首先关闭光学偶极阱并稳定 0.2 ms, 可以避免外部光场影响分子转动谱的频移, 然后通过波导天线发射矩形微波脉冲, 作用时间是 0.5 ms. 通过扫描微波频率并测量剩余基态分子数, 实现分子第一转动激发谱的测量.

4 实验结果与讨论

图 4(c), (d) 分别展示了测量得出的 $|G_1\rangle$ 与 $|G_2\rangle$ 态分子的第一转动激发谱. 实验结果显示, 在所测量的频率范围内出现了丰富的能谱结构. 通过

对比实验测量数据与理论计算结果, 实现了分子第一转动激发态具体能级频率的精确标定. 结果表明振转能级为零的不同超精细态具有不同的激发态谱, 独特的谱线结构组成了各能态的特征“指纹”, 为实验中精确辨识超精细态提供了关键判据. 实验上进一步选定分子谱线中的共振峰进行能级间相干操控. 图 4(e), (f) 展示了基态分子数的拉比振荡曲线, 代表分子数随微波作用时间的演化过程, 可以通过拟合得到对应的拉比频率. 拉比频率的不同反映了各超精细结构间耦合强度的差异.

在固定的微波功率下, 研究了不同能级跃迁的拉比振荡. 理论上, 拉比频率 Ω 与 TDM 满足关系为: $\hbar\Omega = \text{TDM} \times |\mathbf{E}|$, 其中 $|\mathbf{E}|$ 为微波作用在分子处的电场强度. 实验中, 微波沿波导天线水平 Y 轴方向的偏振轴注入, 此时近似认为在 σ^+ , σ^- 方向上具有相同的电场分量. 图 4(f) 中展示了 $|G_2\rangle$ 态到 $|E_2\rangle$ 和 $|E_3\rangle$ 的拉比振荡, 在相同驱动场强下表现出较大的拉比频率. 实验得到的拉比频率 Ω_{G_2, E_3} 与 Ω_{G_2, E_2} 的比值为 $23.486/18.366 = 1.28$, 与理论计算的跃迁偶极矩比 $0.56/0.47 = 1.19$ 基本符合. 同样, 对于 $|G_1\rangle$ 态到 $|E_1\rangle$ 的拉比振荡, 其实验测得的拉比频率 Ω_{G_1, E_1} 与 Ω_{G_2, E_2} 的比值为 $13.218/18.366 = 0.72$, 略小于理论预测的跃迁偶极矩比值 $0.48/0.47 = 1.02$. 这个理论和实验的偏差, 可以归因于实验中微波场偏振与理想化偏振的不一致. 实验上在微波驱动下, 基态 ($N = 0$) 和第一转动激发态 ($N = 1$) 进行量子相干布居数转移时, 微波驱动导致的分子

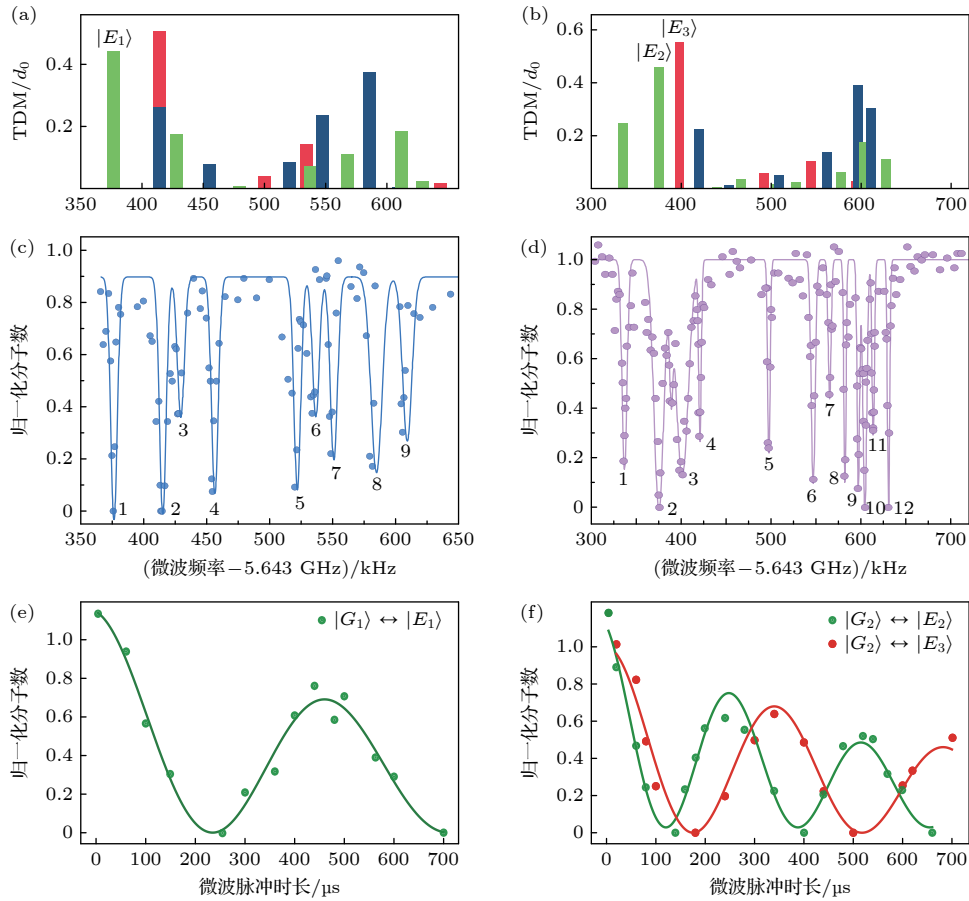


图 4 $^{23}\text{Na}^{40}\text{K}$ 分子 $N = 0$ 至 $N = 1$ 转动跃迁谱 (a), (b) 基态 $|G_1\rangle$ 和 $|G_2\rangle$ 跃迁至第一转动激发态的跃迁偶极矩计算结果, $^{23}\text{Na}^{40}\text{K}$ 分子固有电偶极矩为 2.72 Debye; (c), (d) 对应 $|G_1\rangle$ 和 $|G_2\rangle$ 态的第一转动激发谱实验数据, 横轴表示相对于中心频率 5.643 GHz 的频率失谐; (e) 在 $|G_1\rangle$ 态和 $|E_1\rangle$ 态的共振频率处测得的分子数的拉比振荡曲线; (f) 在 $|G_2\rangle$ 态的共振跃迁频率处测得的拉比振荡曲线, 其中绿色和红色曲线分别对应到 $|E_2\rangle$ 和 $|E_3\rangle$ 跃迁

Fig. 4. Rotational transitions of $^{23}\text{Na}^{40}\text{K}$ from $N = 0$ to $N = 1$: (a), (b) Theoretically calculated transition dipole moments for transitions from ground states $|G_1\rangle$ and $|G_2\rangle$ to the first rotational excited state, the permanent electric dipole moment of the $^{23}\text{Na}^{40}\text{K}$ molecule is 2.72 Debye; (c), (d) experimental data of the first rotational excitation spectra for states $|G_1\rangle$ and $|G_2\rangle$, the horizontal axis represents the frequency detuning relative to the center frequency of 5.643 GHz; (e) Rabi oscillations measured at the selected transition between the $|G_1\rangle$ state and $|E_1\rangle$ state; (f) Rabi oscillations measured at the selected transitions between the $|G_2\rangle$ state and $|E_2\rangle$ state (green curve) and $|E_3\rangle$ state (red curve).

电偶极取向并非严格的平行或垂直于量子化轴, 而是表现出不同程度的空间倾斜, 进而影响拉比频率。

5 总结

本研究以超冷 $^{23}\text{Na}^{40}\text{K}$ 基态分子为研究对象, 聚焦两个超精细基态 $|G_1\rangle$ 与 $|G_2\rangle$ 对应的激发态能谱结构, 通过理论计算与实验测量相结合的方式, 完成了第一转动激发态的能谱标定, 实验数据和理论计算结果高度吻合. 实验上通过精确调节微波场频率使其与分子能级共振, 观测到分子在基态和第一转动激发态之间的拉比振荡, 表明实现了超冷极

性分子在第一转动态和超精细基态间的相干操控. 该研究成果加深了对极性分子内部转动能级结构与其他内部自由度耦合机制的理解, 为后续制备超冷分子到不同量子态并且研究两体与三体损耗提供了基础, 对基于超冷极性分子的量子计算、精密测量以及量子化学等领域的应用具有参考价值。

参考文献

- [1] Quémener G, Julienne P S 2012 *Chem. Rev.* **112** 4949
- [2] ACME Collaboration, Baron J, Campbell W C, DeMille D, Doyle M J, Gabrielse G, Gurevich Y V, Hess P W, Hutzler N R, Kirilov E, Kozyryev I, O'Leary B R, Panda C D, Parsons M F, Petrik E S, Spaun B, Vutha A C, West A D 2014 *Science* **343** 269

- [3] Ye J, Zoller P 2024 *Phys. Rev. Lett.* **132** 190001
- [4] Zelevinsky T, Kotochigova S, Ye J 2008 *Phys. Rev. Lett.* **100** 043201
- [5] DeMille D, Hutzler N R, Rey A M, Zelevinsky T 2024 *Nat. Phys.* **20** 741
- [6] Carr L D, DeMille D, Kreams R V, Ye J 2009 *New J. Phys.* **11** 055049
- [7] Baranov M A, Dalmonte M, Pupillo G, Zoller P 2012 *Chem. Rev.* **112** 5012
- [8] Holland C M, Lu Y, Cheuk L W 2023 *Science* **382** 1143
- [9] Liu Y, Ni K K 2022 *Annu. Rev. Phys. Chem.* **73** 73
- [10] Karman T, Tomza M, Pérez-Ríos J 2024 *Nat. Phys.* **20** 722
- [11] Kruckenhauser A, Sieberer L M, Marco L D, Li J R, Matsuda K, Tobias W G, Valtolina G, Ye J, Rey A M, Baranov M A, Zoller P 2020 *Phys. Rev. A* **102** 023320
- [12] Moses S A, Covey J P, Miccnikowski M T, Jin D S, Ye J 2017 *Nat. Phys.* **13** 13
- [13] Lu B, Wang D J 2019 *Acta Phys. Sin.* **68** 043301 (in Chinese) [鹿博, 王大军 2019 物理学报 **68** 043301]
- [14] Barnett R, Petrov D, Lukin M, Demler E 2006 *Phys. Rev. Lett.* **96** 190401
- [15] Yan B, Moses S A, Gadway B, Covey J P, Hazzard K R A, Rey A M, Jin D S, Ye J 2013 *Nature* **501** 521
- [16] Will S A, Park J W, Yan Z Z, Loh H, Zwierlein M W 2016 *Phys. Rev. Lett.* **116** 225306
- [17] Hughes M, Frye M D, Sawant R, Bhole G, Jones J A, Cornish S L, Tarbutt M R, Hutson J M, Jaksch D, Mur-Petit J 2020 *Phys. Rev. A* **101** 062308
- [18] Bao Y, Yu S S, Anderegg L, Chae E, Ketterle W, Ni K K, Doyle J M 2023 *Science* **382** 1138
- [19] Gregory P D, Fernley L M, Tao A L, Bromley S L, Stepp J, Zhang Z W, Kotochigova S, Hazzard K R A, Cornish S L 2024 *Nat. Phys.* **20** 415
- [20] Ni K K, Ospelkaus S, Wang D, Quéméner G, Neyenhuis B, de Miranda M H G, Bohn J L, Ye J, Jin D S 2010 *Nature* **464** 1324
- [21] Karman T, Yan Z Z, Zwierlein M 2022 *Phys. Rev. A* **105** 013321
- [22] Yan Z Z, Park J W, Ni Y, Loh H, Will S, Karman T, Zwierlein M 2020 *Phys. Rev. Lett.* **125** 063401
- [23] Schindewolf A, Bause R, Chen X Y, Duda M, Karman T, Bloch I, Luo X Y 2022 *Nature* **607** 677
- [24] Bigagli N, Warner C, Yuan W J, Zhang S W, Stevenson I, Karman T, Will S 2023 *Nat. Phys.* **19** 1579
- [25] Lin J Y, Chen G H, Jin M, Shi Z P, Deng F L, Zhang W X, Quéméner G, Shi T, Yi S, Wang D J 2023 *Phys. Rev. X* **13** 031032
- [26] Bigagli N, Yuan W J, Zhang S W, Bulatovic B, Karman T, Stevenson I, Will S 2024 *Nature* **631** 289
- [27] Shi Z P, Huang Z R, Deng F L, Jin W J, Yi S, Shi T, Wang D J 2025 arXiv: 2508.20518 v1 [cond-mat. quant-gas]
- [28] Karman T, Hutson J M 2018 *Phys. Rev. Lett.* **121** 163401
- [29] Lassablière L, Quéméner G 2018 *Phys. Rev. Lett.* **121** 163402
- [30] Deng F L, Chen X Y, Luo X Y, Zhang W X, Yi S, Shi T 2023 *Phys. Rev. Lett.* **130** 183001
- [31] Park J W, Yan Z Z, Loh H, Will S A, Zwierlein M W 2017 *Science* **357** 372
- [32] Ruttley D K, Hepworth T R, Guttridge A, Cornish S L 2025 *Nature* **637** 827
- [33] Hepworth T R, Ruttley D K, Gierke F V, Gregory P D, Guttridge A, Cornish S L 2025 *Nat. Commun.* **16** 7131
- [34] Blackmore J A, Gregory P D, Hutson J M, Cornish S L 2023 *Comput. Phys. Commun.* **282** 108512
- [35] Aldegunde J, Rivington B A, Zuchowski P S, Hutson J M 2008 *Phys. Rev. A* **78** 033434
- [36] Liu L, Zhang D C, Yang H, Liu Y X, Nan J, Rui J, Zhao B, Pan J W 2019 *Phys. Rev. Lett.* **122** 253201
- [37] Brown J M, Carrington A 2003 *Rotational Spectroscopy of Diatomic Molecules* (Cambridge: Cambridge University Press) pp331–332
- [38] Aldegunde J, Hutson J M 2017 *Phys. Rev. A* **96** 042506
- [39] Brooks R A, Anderson C H, Ramsey N F 1972 *J. Chem. Phys.* **56** 5193
- [40] Arimondo E, Inguscio M, Violino P 1977 *Rev. Mod. Phys.* **49** 31
- [41] Gerdes A, Dulieu O, Knöckel H, Tiemann E 2011 *Eur. Phys. J. D* **65** 105
- [42] Li Z L, Gu Z Y, Shi Z L, Wang P J, Zhang J 2023 *Chin. Phys. B* **32** 023701
- [43] Li Z L, Shi Z L, Wang P J 2020 *Acta Phys. Sin.* **69** 126701 (in Chinese) [李子亮, 师振莲, 王鹏军 2020 物理学报 **69** 126701]
- [44] Jia T, Gu Z Y, Wang P J 2025 *J. Quantum Opt.* **31** 020601 (in Chinese) [贾甜, 顾正宇, 王鹏军 2025 量子光学学报 **31** 020601]
- [45] Li Z L, Gu Z Y, Wang P J, Zhang J 2023 *Sci. China Phys.* **66** 293011
- [46] Bause R, Kamijo A, Chen X Y, Duda M, Schindewolf A, Bloch I, Luo X Y 2021 *Phys. Rev. A* **104** 043321
- [47] Yang A B, He C, Nie X Y, Avalos V, Botsi S, Kumar S, Dieckmann K 2025 *Commun. Phys.* **8** 399
- [48] Maddox B P, Mortlock J M, Hepworth T R, Raghuram A P, Gregory P D, Guttridge A, Cornish S L 2024 *Phys. Rev. Lett.* **133** 253202

SPECIAL TOPIC—Ultracold atomic and molecular physics

Measurement of the first rotational excitation spectrum of ultracold ground-state $^{23}\text{Na}^{40}\text{K}$ molecules*CHEN Wei¹⁾²⁾ GU Zhengyu¹⁾²⁾ ZHOU Xuansheng¹⁾²⁾ WANG Pengjun^{1)2)†}1) (*State Key Laboratory of Quantum Optics Technologies and Devices, Institute of Opto-Electronics, Shanxi University, Taiyuan 030006, China*)2) (*Collaborative Innovation Center of Extreme Optics, Shanxi University, Taiyuan 030006, China*)

(Received 11 February 2026; revised manuscript received 19 March 2026)

Abstract

In this work, we present a detailed study of the microwave excitation spectra of ultracold $^{23}\text{Na}^{40}\text{K}$ molecules, focusing on rotational transitions from the ground state ($N = 0$) to the first excited state ($N = 1$). By combining precise theoretical calculations with experimental measurements, we achieve an accurate calibration of these transitions, which enables quantum control techniques such as microwave shielding to suppress collisional losses and facilitate cooling toward quantum degeneracy.

Theoretically, a comprehensive Hamiltonian is employed to describe the complex internal structure, including rotational contribution, nuclear spin-rotation interaction, nuclear spin-spin interaction, nuclear electric quadrupole interactions, and the Zeeman effect under an external magnetic field. The Hamiltonian is diagonalized within an extended Hilbert space (36 and 108 hyperfine states for $N = 0$ and $N = 1$, respectively) to determine the eigenvalues, eigenstates, transition frequencies, and transition dipole moments.

Experimentally, ground-state molecules were prepared in selected hyperfine levels via Feshbach association followed by STIRAP (Stimulated Raman Adiabatic Passage). By scanning the microwave frequency around 5.643 GHz, loss spectroscopy was performed to obtain the excitation spectra. At a magnetic field of 70 G (1 G = 10^{-4} T), the measured transition frequencies for the G_1 and G_2 states showed excellent agreement with theoretical predictions, enabling a definitive assignment of the hyperfine components within the ($N = 1$) rotational manifold. Furthermore, Rabi oscillations were measured at resonance to verify the calculated transition dipole moments via coherent population dynamics.

These findings provide a precise spectroscopic benchmark for the microwave control of ultracold molecules and lay the foundation for future research in quantum simulation and computation based on long-range dipolar interactions.

Keywords: ultracold molecules, hyperfine energy levels, microwave excitation spectrum, Rabi oscillations**DOI:** [10.7498/aps.75.20260232](https://doi.org/10.7498/aps.75.20260232)**CSTR:** [32037.14.aps.75.20260232](https://cstr.cn/32037.14.aps.75.20260232)

* Project supported by the National Key Research and Development Program of China (Grant Nos. 2021YFA1401700, 2022YFA1404101) and the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. U23A6004, 12488301, 12322409, 12474252, 12474266, 12374245, 12504336).

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



超冷极性 $^{23}\text{Na}^{40}\text{K}$ 分子第一转动态的研究

陈卫 顾正宇 周暄胜 王鹏军

Measurement of the first rotational excitation spectrum of ultracold ground-state $^{23}\text{Na}^{40}\text{K}$ molecules

CHEN Wei GU Zhengyu ZHOU Xuansheng WANG Pengjun

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 75, 110304 (2026) DOI: 10.7498/aps.75.20260232

CSTR: 32037.14.aps.75.20260232

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.75.20260232>

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

BrF分子电磁偶极跃迁转动超精细微波谱模拟

Simulation of hyperfine-rotational spectrum of electromagnetic dipole transition rotation of BrF molecules

物理学报. 2023, 72(4): 043301 <https://doi.org/10.7498/aps.72.20221957>

多目标多约束优化超冷分子有限转动态取向

Multi-objective and multi-constraint optimization of ultracold molecular orientation with limited rotational states

物理学报. 2025, 74(18): 183102 <https://doi.org/10.7498/aps.74.20250684>

标量-拉曼复合光晶格中超冷原子的拓扑性质

Ground state topological properties of ultracold atoms in composite scalar-Raman optical lattices

物理学报. 2025, 74(18): 180303 <https://doi.org/10.7498/aps.74.20250692>

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>

超冷离子源研究进展

Research progress of ultracold ion source

物理学报. 2024, 73(17): 173701 <https://doi.org/10.7498/aps.73.20240695>

基于多能级速率方程的CaH分子三维磁光囚禁模型

Three-dimensional magneto-optical trapping model of CaH molecule based on multi-energy-level rate equation

物理学报. 2022, 71(16): 163701 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220304>