



基于跃迁的CaH分子激光冷却光谱理论研究

尹俊豪 杨涛 印建平

Theoretical investigation into spectrum of transition for CaH molecule toward laser cooling

Yin Jun-Hao Yang Tao Yin Jian-Ping

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 70, 163302 (2021) DOI: 10.7498/aps.70.20210522

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210522>

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

激光冷却SH阴离子的理论研究

Theoretical study of laser-cooled SH anion

物理学报. 2019, 68(6): 063103 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20182039>

极性分子的激光冷却及囚禁技术

Laser cooling and trapping of polar molecules

物理学报. 2019, 68(4): 043701 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20181655>

激光冷却KCl阴离子的理论研究

Theoretical study of laser cooling of potassium chloride anion

物理学报. 2019, 68(17): 173102 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190869>

激光冷却OH分子的理论研究

Laser cooling of OH molecules in theoretical approach

物理学报. 2017, 66(23): 233101 <https://doi.org/10.7498/aps.66.233101>

考虑自旋-轨道耦合效应下SeH阴离子的光谱和跃迁性质

Spectroscopic and transition properties of SeH anion including spin-orbit coupling

物理学报. 2021, 70(3): 033101 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20201413>

基于 $A^2\Pi_{1/2} \leftarrow X^2\Sigma_{1/2}$ 跃迁的 CaH 分子 激光冷却光谱理论研究*

尹俊豪 杨涛[†] 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)

(2021 年 3 月 18 日收到; 2021 年 4 月 12 日收到修改稿)

冷分子是当下物理学的前沿领域和热点研究方向之一, 早在 2004 年就有科学家提出将 CaH 分子作为激光冷却与磁光囚禁的候选分子. 本文首先用三种方法 (莫尔斯势法、闭合近似法和 RKR 反演法) 计算 CaH 分子的弗兰克-康登因子, 证实了 CaH 的 $X^2\Sigma_{1/2}$ 态和 $A^2\Pi_{1/2}$ 态之间具有高度对角化的弗兰克-康登因子矩阵. 随后, 采用有效哈密顿量的方法研究了基态 $X^2\Sigma_{1/2}$ 的超精细能级结构和 $A^2\Pi_{1/2} (J = 1/2, +) \leftarrow X^2\Sigma_{1/2} (N = 1, -)$ 跃迁的超精细跃迁分支比, 并提出可同时覆盖超精细能级的边带调制方案. 最后, 为探究 CaH 分子磁光囚禁的相关性质, 计算了 $|X, N = 1, -\rangle$ 态的塞曼效应和 J 混合下的朗德 g 因子. 以上工作不仅证明了激光冷却和磁光囚禁 CaH 分子的可行性, 而且对天体物理学中的光谱分析、超冷分子碰撞以及探索基本对称性破缺等基础物理学的相关研究也具有一定的参考意义.

关键词: 冷分子, 激光冷却, CaH 分子, 弗兰克-康登因子**PACS:** 33.20.-t, 33.15.Pw, 37.10.Mn, 33.70.Ca**DOI:** 10.7498/aps.70.20210522

1 引言

近三十年来, 激光冷却和俘获原子是物理科学的热点研究方向之一, 将原子系统冷却到超冷温度并控制其量子态的技术已经在物理科学领域取得了诸多进展, 包括冷原子钟^[1–3]、量子简并气体^[4–7]、基础物理精密测量^[8–12]、微小力的传感器^[13,14]以及量子模拟和计算的新平台^[15,16]等. 与原子相比, 分子的自由度更多, 这直接导致了其更复杂的内部能级结构. 科学家们提出了许多设想, 希望利用这种更丰富的分子能级结构, 对超冷原子的工作进行扩展并开辟通向全新研究领域的途径. 相较于原子体系, 超冷分子在一些领域具有一定关键优势, 比如冷分子碰撞、冷化学、多体相互作用

和基础物理中如寻找基本对称破缺等^[17–26].

早在 2004 年, Di Rosa^[27] 指出某些分子的特定电子态之间可以形成有效的封闭循环, 进而存在进行分子激光冷却的可能性, 这拉开了分子激光冷却研究的序幕. 2009 年美国耶鲁大学的 DeMille 课题组演示了 SrF 分子束的横向偏转^[28], 随后在 2010 年进行了横向激光冷却^[29]. 他们又在 2012 年继续演示了纵向激光冷却实验, 将 SrF 分子的速度减小至 50 m/s^[30]. 2013 年, 美国实验天体物理联合研究所 (JILA) 的 Ye 小组^[31] 报道了横向激光冷却 YO 的实验结果. 2014 年, 英国帝国理工学院的 Hinds 小组^[32] 演示了纵向激光对 CaF 分子的减速和冷却实验. 美国哈佛大学的 Doyle 小组与 Hinds 小组合作, 在 2016 年实现了将 CaF 分子减速到 15 m/s 以下的效果^[33,34]. 激光冷却 BaH^[35],

* 国家自然科学基金 (批准号: 11834003, 11874151) 资助的课题.

[†] 通信作者. E-mail: tyang@lps.ecnu.edu.cn[‡] 通信作者. E-mail: jpyin@phy.ecnu.edu.cn

BaF^[36] 和 YbF^[37] 也有新的实验进展. 此外, 最近也有一些科研团队将激光冷却的对象从双原子分子扩展到多原子分子, 比如 Doyle 小组^[38] 已经实现了 SrOH 的一维激光冷却, 分子的横向温度能降低到 750 μK .

CaH 广泛存在于太阳黑子、恒星、星云和星际介质中, 其光谱数据在天体物理分析和模拟中非常重要^[39–42]. 例如对于矮星的光谱分析中, 科学家们利用 CaH 低重力光谱特征作为年龄指标, 观察并分析各种矮星的光谱以研究其剩余年龄上限^[43]. 此外, CaH 分子等碱土金属氢化物类型分子有不可忽视的永久电偶极矩贡献 ($X^2\Sigma_{1/2}$ 态, CaH ~ 2.94 Debye, SrH ~ 3.296 Debye, BaH ~ 3.698 Debye), 这使得它们能够在磁光囚禁 (MOT) 获得的长相干测量时间下的精密测量实验中灵敏度大大提高, 例如电子电偶极矩 (eEDM) 的精密测量^[44,45]. 更重要的是, CaH 被提出可以作为激光冷却的候选分子^[27]. 近些年来科学家们对于 CaH 的光谱进行了广泛的研究和分析^[40,46–50]. 其中针对分子激光冷却, 有科学家使用从头算法 (*ab initio*) 研究了 CaH 分子的相关性质^[50], 结果表明 CaH 分子具有进行激光冷却实验的基本条件: 1) CaH 分子的 $A^2\Pi_{1/2} \leftarrow X^2\Sigma_{1/2}$ 跃迁具有高度对角化的弗兰克-康登 (Franck-Condon, F-C) 因子; 2) 短的激发态 $A^2\Pi_{1/2}$ 态寿命 (33.2 ns)^[49]; 3) 没有中间态的干扰. 但是, 这也只是初步判断 CaH 分子存在作为激光冷却实验候选分子的可能性, 要进行分子激光冷却深度理论模拟甚至实验仅仅有这些数据是远远不够的. 本文因此对 CaH 分子 $X^2\Sigma_{1/2}$ 态的超精细能级、 $A^2\Pi_{1/2} \leftarrow X^2\Sigma_{1/2}$ 跃迁的超精细跃迁分支比和塞曼效应等分子激光冷却的关键信息进行了较为深入的研究.

我们首先采用三种方法, 即莫尔斯势法、闭合近似法和 RKR 反演法 (Rydberg-Klein-Rees inversion), 证明了 CaH 的 F-C 因子矩阵是高度对角化的. 随后, 提出了相应的振动态激光冷却方案. 运用有效哈密顿量和矩阵对角化法计算 CaH 分子 $X^2\Sigma_{1/2}$ 态的超精细能级结构、 $X^2\Sigma_{1/2}(N=1, -)$ 态的 J 混合和 $A^2\Pi_{1/2}(J=1/2, +) \leftarrow X^2\Sigma_{1/2}(N=1, -)$ 跃迁的超精细跃迁分支比, 并设计了能同时覆盖 $X^2\Sigma_{1/2}(N=1, -)$ 态下的四个子能级的边带

调制方案. 最后, 为探究 CaH 分子应用磁光囚禁的特征, 计算了基态的塞曼能移和相应的朗德 g 因子.

2 $X^2\Sigma_{1/2}$ 与 $A^2\Pi_{1/2}$ 之间的振动态跃迁和 F-C 因子

在计算 $A^2\Pi_{1/2} \rightarrow X^2\Sigma_{1/2}$ 跃迁的 F-C 因子时, 采取了三种计算方法: 闭合近似法、莫尔斯势法和 RKR 反演法.

闭合近似是一种粗略估计双原子分子 (如 CeO, CrH, CrO, CuH, GeH, LaO, NiH, SnH 和 ZnH 等) F-C 因子的计算方法^[51], 它在天体物理学中被广泛使用; Morse 势是一种对双原子分子间势能的简易解析模型^[52], 其曲线的方程形式为 $V(r) = D_e[(1 - e^{-\alpha(r-r_e)})^2 - 1]$, 这里 r 是核间距, r_e 是平衡核间距, D_e 是平衡离能, α 是莫尔斯参量, $D_e = \hbar\omega_e^2/4\omega_e\chi_e$, $\omega_e\chi_e = \alpha^2\hbar/2\mu$, μ, ω_e 和 $\omega_e\chi_e$ 分别代表了约化质量 $\mu_1\mu_2/(\mu_1 + \mu_2)$ 、标准谐性常数和諧性常数; RKR 反演法^[53] 是利用 WKB 近似来获得不同振动能级的经典拐点, 并利用这些拐点的拟合势能曲线, 再通过解振动方程得到 F-C 因子, 该方法只能适用于双原子分子, 我们计算时使用到了 Roy 教授^[54] 开发的 Level 程序. 下面的计算中, 所有参数取值均来自于实验, 表 1 列出了 CaH 分子 $X^2\Sigma_{1/2}$ 态和 $A^2\Pi_{1/2}$ 态的相关参数.

表 1 CaH 分子相关电子态光谱学参数

Table 1. Parameters for involved electronic states of CaH.

态	T_e/cm^{-1}	ω_e/cm^{-1}	$\omega_e\chi_e/\text{cm}^{-1}$	$r_e/\text{\AA}$	τ/ns
$X^2\Sigma_{1/2}$	0	1298.34 ^a	19.1 ^a	2.0025 ^b	
$A^2\Pi_{1/2}$	14413.0 ^a	1333 ^a	20 ^a	1.9740 ^b	33.2 ^c

^aRef. [55]; ^bRef. [56]; ^cRef. [49].

在表 2 中列出了 CaH 分子的部分 F-C 因子, 发现三种方法得到的结果与参考文献中的结果几乎一致. 图 1 是将 F-C 因子矩阵可视化后的结果, 可以看到, 在低振动态的 F-C 因子矩阵的对角化程度是非常高的. 此外, 还计算了电子振动态的跃迁波长. 计算结果与实验结果符合得很好, 部分跃迁波长被列于表 3 中. 这里采用的跃迁频率计算公式为 $h\nu_{ji} = E_u(j) - E_l(i)$ 和 $E = T_e + hc\omega_e\left(v + \frac{1}{2}\right) - hc\omega_e\chi_e\left(v + \frac{1}{2}\right)^2$, 其中下角标“u”和“l”分别表示

上态与下态, T_e 为相应电子态的最低能量, 而 v 代表振动量子数. 注意这里标准谐性常数 ω_e 和非谐性常数 $\omega_e x_e$ 的单位为 cm^{-1} .

表 2 用三种方法 (闭合近似法、莫尔斯势法和 RKR 反演法) 计算的 CaH 分子的部分 F-C 因子
Table 2. Calculated Franck-Condon factors of CaH by the closed-form approximation method, the Morse potential method and the RKR inversion method.

方法	f_{00}	f_{01}	f_{02}	f_{11}	f_{13}
闭合近似	0.9846	0.0152	0.0001	0.9545	0.00035
莫尔斯势	0.9850	0.0146	0.0004	0.9560	0.0014
RKR反演	0.99542	0.00454	0.00004	0.98631	0.00012
Ref. [50]	0.961	0.038	0.002	0.885	0.005

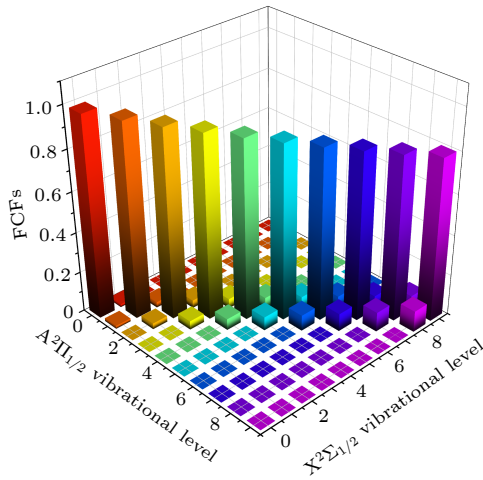


图 1 CaH 分子高度对角化的 F-C 因子矩阵

Fig. 1. Highly diagonalized F-C factor matrix of CaH.

表 3 CaH 分子 $X^2\Sigma_{1/2}$ 态和 $A^2\Pi_{1/2}$ 态间跃迁波长的计算值和实验值, 括号内的数值代表最后位的不确定度 (标准偏差)

Table 3. Comparison between the calculated and experimental results of the transition wavelengths between $X^2\Sigma_{1/2}$ and $A^2\Pi_{1/2}$ states of CaH. Numbers in parentheses indicate the uncertainty (standard deviation) in the last figures.

跃迁波长/nm	本文	实验值[55]	Ref. [50]
λ_{00}	692.996 (4)	693.0	675.4
λ_{10}	759.303 (8)	759.3	738.0
λ_{21}	755.229 (20)		732.0

根据上面的讨论, 我们确定了 CaH 在 $A^2\Pi_{1/2} \rightarrow X^2\Sigma_{1/2}$ 跃迁上具有高度对角化的 F-C 因子. 因此, 我们选择 $A^2\Pi_{1/2}$ 态与 $X^2\Sigma_{1/2}$ 态为构建激光冷却准封闭跃迁循环的上下两个电子态. 图 2 是本文设计的电子振动态激光冷却方案, 其中的蓝线表示泵浦

激光, 绿色虚线表示从 $A^2\Pi_{1/2}$ 态自发辐射回 $X^2\Sigma_{1/2}$ 态各振动能级的衰变率, 即 F-C 因子. 由于 $f_{00} + f_{01} + f_{02} > 0.9999$, 在这个准封闭跃迁循环当中可以散射几乎 1×10^4 个光子. 这里, $\lambda_{vv'}$ 表示从 $X^2\Sigma_{1/2}$ 态到 $A^2\Pi_{1/2}$ 态不同振动能级的跃迁波长, 其中主跃迁 $\lambda_{00} = 692.996 \text{ nm}$.

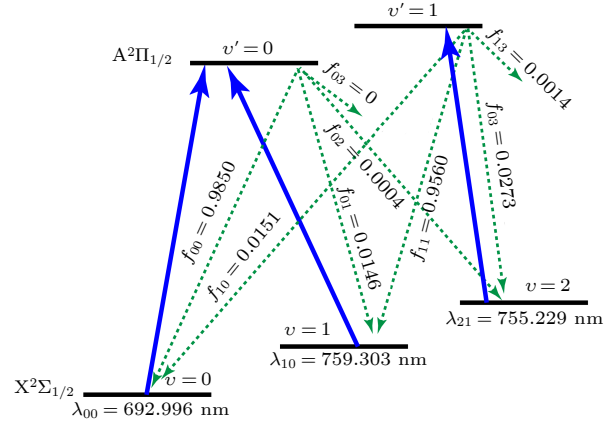


图 2 CaH 分子准封闭跃迁循环的激光冷却方案. 其中的蓝线表示泵浦激光, $\lambda_{vv'}$ 表示泵浦激光的跃迁波长, 绿色虚线表示从 $A^2\Pi_{1/2}$ 态自发辐射的衰变率, 即 F-C 因子 $f_{v'v}$.

Fig. 2. Proposed scheme to create a quasi-closed cycling transition for laser cooling of CaH. Blue solid lines indicate the laser-driven transitions at the wavelengths $\lambda_{vv'}$, while green dotted lines indicate the spontaneous decays from the $A^2\Pi_{1/2}$ state along with the corresponding F-C factors $f_{v'v}$.

3 ^{40}CaH 分子超精细能级结构

为了构建一个准封闭的跃迁循环, 需要深入分析 ^{40}CaH 分子基态 $X^2\Sigma_{1/2}$ 的超精细能级结构. 有效哈密顿量是一种能够描述一个双原子分子系统内部能级结构的有效方法, 相较于从头算法, 有效哈密顿量法更加准确, 并且能够描述精细甚至超精细结构. 双原子分子在无外场条件下的有效哈密顿量的一般形式可以写成

$$H_{\text{eff}} = H_{\text{rot}} + H_{\text{SO}} + H_{\text{SS}} + H_{\text{SR}} + H_{\text{AD}} + H_{\text{Q}} + H_{\text{HFS}}, \quad (1)$$

其中, H_{rot} 是分子转动哈密顿量, H_{HFS} 表示超精细结构的哈密顿量; 余下的几项分别是自旋-轨道耦合项 H_{SO} , 电子自旋-自旋耦合项 H_{SS} , 电子自旋与核转动相互作用项 H_{SR} , 双分裂项 H_{AD} , 电四极相互作用项 H_{Q} .

选择 $A^2\Pi_{1/2} - X^2\Sigma_{1/2}$ 体系作为激光冷却的闭合跃迁循环系统. $X^2\Sigma_{1/2}$ 态属于洪特情况 (b), 而

$A^2\Pi_{1/2}$ 态属于洪特情况 (a), 那么对 $X^2\Sigma_{1/2}$ 态来说 N 是好量子数, 而对 $A^2\Pi_{1/2}$ 态来说 J 是好量子数. 选择 $|X, v=0, N=1, -\rangle$ 态作为激光冷却的下态, 选择 $|A, v'=0, J'=1/2, +\rangle$ 态作为激光冷却的上态. 洪特情况 (b) 体系下没有 Λ 双分裂 (即 $H_{\Lambda D}=0$), 因此能级结构相对简单, 有利于激光冷却的实验. 在该条件下, 电子总自旋 $S=1/2$, 电子轨道沿核间轴投影 $\Lambda=0$, 所以 H_{SO} 和 H_{SS} 也可以去除. 电四极相互作用项 $H_Q \propto \sqrt{\frac{(2I+1)(I+1)(2I+3)}{I(2I-1)}}$, 核自旋 I 必须大于 $1/2$, 但在本文的研究中, ^{40}Ca 的核自旋为 0 而 H 的核自旋为 $1/2$, 所以 ^{40}CaH 的总核自旋为 $1/2$. 显然, 在计算 ^{40}CaH 分子的超精细结构时是不用考虑 H_Q 的. 那么, 在不考虑振动能级的条件下, 结合 Frosch 和 Foley 常量和球张量法 [57,58], 可以把 CaH 分子基态 $X^2\Sigma_{1/2}$ 态的有效哈密顿量写成

$$H_{\text{eff}} = H_{\text{rot}} + H_{\text{SR}} + H_{\text{HFS}}, \quad (2)$$

$$H_{\text{rot}} = B_v \hat{N}^2 - D_v \hat{N}^4, \quad (3)$$

$$H_{\text{SR}} = \gamma_v T^1(\hat{S}) T^1(\hat{N}), \quad (4)$$

$$H_{\text{HFS}} = b_v T^1(\hat{I}) T^1(\hat{S}) + c_v T_{q=0}^1(\hat{I}) T_{q=0}^1(\hat{S}) + C_{vN} T^1(\hat{I}) T^1(\hat{N}), \quad (5)$$

$$b_{Fv} = b_v + c_v/3, \quad (6)$$

其中, B_v , D_v 和 γ_v 分别是分子转动常数、离心畸变常数和自旋-转动耦合常数; $b_{Fv} = b_v + c_v/3$, 为费米接触相互作用常量. 而 b_v 和 c_v 则与 Frosch 和 Foley 常量有关, 对于纯 $\Sigma_{1/2}$ 态来说, $b_v = A_{\parallel}$ 而 $c_v = A_{\parallel} - A_{\perp}$; 此外, $C_{vN} T^1(\hat{I}) T^1(\hat{N})$ 这一项与其他几项相比非常小, 因此可以忽略. 计算所需的参数均列在表 4 中.

洪特情况 (b) 体系下的基矢可以写作 $|\eta, N, S, J, I, F, M_F\rangle$, N 表示除了电子自旋外的总角动量, S 表示总的电子自旋, J 表示包含电子自旋的总角动量, I 表示核自旋, F 表示包含核自旋后的总角动量, M_F 表示 F 在 z 轴方向的投影, η 表示其余的量子数. H_{eff} 的每一项矩阵元在该表象下可以表示为

$$\begin{aligned} & \langle \eta, N', S, J', I, F', M_F' | B_v \hat{N}^2 - D_v \hat{N}^4 | \eta, N, S, J, I, F, M_F \rangle \\ &= \delta_{N'N} \delta_{J'J} \delta_{F'F} \delta_{M_F' M_F} N(N+1) [B_v - D_v N(N+1)], \end{aligned} \quad (7)$$

$$\langle \eta, N', S, J', I, F', M_F' | \gamma_v T^1(\hat{S}) T^1(\hat{N}) | \eta, N, S, J, I, F, M_F \rangle = \delta_{N'N} \delta_{J'J} \delta_{F'F} \delta_{M_F' M_F} \quad (8)$$

$$\gamma_v (-1)^{N+J+S} [S(S+1)(2S+1)]^{\frac{1}{2}} [N(N+1)(2N+1)]^{\frac{1}{2}} \begin{Bmatrix} S & N & J \\ N & S & 1 \end{Bmatrix}, \quad (9)$$

$$\begin{aligned} & \langle \eta, N', S, J', I, F', M_F' | c_v T_{q=0}^1(\hat{I}) T_{q=0}^1(\hat{S}) | \eta, N, S, J, I, F, M_F \rangle \\ &= \delta_{N'N} \delta_{F'F} \delta_{M_F' M_F} \left(-\frac{\sqrt{30}}{3} \right) c_v (-1)^{J'+F+I+N} [(2J'+1)(2J+1)]^{\frac{1}{2}} [S(S+1) \\ & \times (2S+1)]^{\frac{1}{2}} [I(I+1)(2I+1)]^{\frac{1}{2}} (2N+1) \begin{pmatrix} N & 2 & N \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{Bmatrix} I & J' & F \\ J & I & 1 \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} J & J' & 1 \\ N & N & 2 \\ S & S & 1 \end{Bmatrix}, \end{aligned} \quad (10)$$

$$\begin{aligned} & \langle \eta, N', S, J', I, F', M_F' | C_{vN} T^1(\hat{I}) T^1(\hat{N}) | \eta, N, S, J, I, F, M_F \rangle \\ &= \delta_{N'N} \delta_{F'F} \delta_{M_F' M_F} C_{vN} (-1)^{2J+F'+I+N'+S+1} [N(N+1)(2N+1)]^{1/2} [I(I+1)(2I \\ & +1)]^{1/2} [(2J'+1)(2J+1)]^{1/2} \begin{Bmatrix} I & J & F' \\ J' & I & 1 \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} N & J & S \\ J' & N' & 1 \end{Bmatrix}. \end{aligned} \quad (11)$$

表 4 CaH 分子 $X^2\Sigma_{1/2}$ 态的转动常数和超精细结构常数Table 4. Rotational and hyperfine structure parameters for the $X^2\Sigma_{1/2}$ state of CaH.

参数	Ref. [59]
B_v/MHz	126772.935
D_v/MHz	5.546
γ_v/MHz	1305.755
b_v/MHz	155.785
c_v/MHz	4.74

有了具体的哈密顿量矩阵元和表 4 中的转动常数和超精细结构常数, 利用有效哈密顿量的方法计算了 $X^2\Sigma_{1/2}$ 态的相关超精细能级. 如图 3 所示, 主冷却光泵浦的是 $|X, v=0, N=1, -\rangle$ 态, 由于 CaH 分子的总角动量 $F = N + S + I$, 在超精细结构下 $|X, v=0, N=1, -\rangle$ 态会分裂成四个超精细子能级, 即 $|J=1/2, F=0\rangle$, $|J=1/2, F=1\rangle$, $|J=3/2, F=1\rangle$ 和 $|J=3/2, F=2\rangle$. 根据角动量和宇称选择定则, 被泵浦到 $|A, v'=0, J'=1/2, +\rangle$ 态的分子会自发辐射回 $|X, v=0, N=1, -\rangle$ 态, 从而形成一个准封闭的跃迁循环. ^{40}CaH 在 $X^2\Sigma_{1/2}(v=0)$ 态的超精细跃迁数据以及与实验值的比较列在表 5 中, N, J 和 F 表示下态, N', J' 和 F' 表示上态. 结果显示理论值与实验值符合得非常好 (ν_{cal} 表示理论值, ν_{exp} 表示实验值), 这证明本文的方法和结果是正确的.

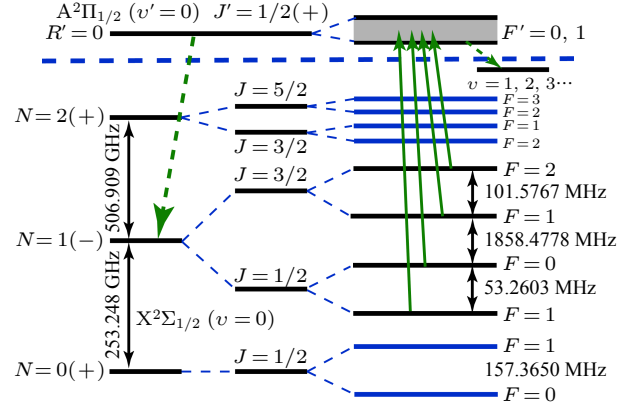


图 3 CaH 转动能级和超精细能级的能级分裂以及准封闭的跃迁循环. 根据选择定则, 由 $|A, v'=0, J'=1/2, +\rangle \leftarrow |X, v=0, N=1, -\rangle$ 跃迁 (绿色实线) 被泵浦到上能级的分子将会自发辐射回 $N=1$ 的基态

Fig. 3. Energy splitting between different rotational hyperfine levels and the closure of the rotational structures for CaH. Due to selection rules, driving the $|A, v'=0, J'=1/2, +\rangle \leftarrow |X, v=0, N=1, -\rangle$ transition (green solid upward lines) will allow a spontaneous decay (green dotted downward line) that goes back to $N=1$ state.

4 $A^2\Pi_{1/2} \leftarrow X^2\Sigma_{1/2}$ 跃迁的超精细分支比

接下来计算 CaH 分子在 $A^2\Pi_{1/2}(J=\frac{1}{2}, +) \leftarrow X^2\Sigma_{1/2}(N=1, -)$ 跃迁的超精细跃迁分支比, 它反映了超精细衰减路径的跃迁强度分布. 首先, 需要计算 $X^2\Sigma_{1/2}$ 态洪特情况 (b) 下的 J 混合, 计算时用到了 (12) 式和 (13) 式^[60].

$$|F = N^\pm, M\rangle = x^\pm |J = N + \frac{1}{2}, F = N, M\rangle + y^\pm |J = N - \frac{1}{2}, F = N, M\rangle, \quad (12)$$

$$\frac{x^\pm}{y^\pm} = - \frac{\langle J = N + \frac{1}{2}, F = N, M | H | J = N - \frac{1}{2}, F = N, M \rangle}{\langle J = N + \frac{1}{2}, F = N, M | H | J = N + \frac{1}{2}, F = N, M \rangle - E_N^\pm}, \quad (13)$$

表 5 CaH 分子 $A^2\Pi_{1/2} \leftarrow X^2\Sigma_{1/2}$ 的超精细跃迁频率 ($\Delta J = 0$ 和 1, $\Delta F = \pm 1$ 和 0).Table 5. Calculated frequencies for hyperfine transitions $A^2\Pi_{1/2} \leftarrow X^2\Sigma_{1/2}$ ($\Delta J = 0$ and 1, $\Delta F = \pm 1$ and 0) for CaH.

$N \rightarrow N'$	$J \rightarrow J'$	$F \rightarrow F'$	$\nu_{\text{cal}}/\text{MHz}$	$\nu_{\text{exp}}^a/\text{MHz}$	$\nu_{\text{cal}} - \nu_{\text{exp}}/\text{MHz}$
$0 \rightarrow 1$	$1/2 \rightarrow 1/2$	$1 \rightarrow 1$	252163.0907	252163.082	0.0087
		$1 \rightarrow 0$	252216.3510	252216.347	0.004
		$0 \rightarrow 1$	252320.4557	252320.467	-0.0113
	$1/2 \rightarrow 3/2$	$1 \rightarrow 1$	254074.8288	254074.834	-0.0052
		$1 \rightarrow 2$	254176.4055	254176.415	-0.0095
		$0 \rightarrow 1$	254232.1938	254232.179	0.0148

^aRef. [59]

这里的 x 和 y 表示纯 J 态的叠加系数. 相关结果列于表 6 中, 可以看到 J 混合只存在于 $|N = 1, F = 1\rangle$ 的两个态.

表 6 CaH 分子 $|X, v = 0, N = 1, -\rangle$ 态理想的组分和考虑 J 混合的组分

Table 6. Nominal labels and actual labels due to J mixing for the $|X, N = 1, -\rangle$ state of CaH molecules.

理想的组分	考虑 J 混合后真实的组分
$ J = 3/2, F = 2\rangle$	$ J = 3/2, F = 2\rangle$
$ J = 3/2, F = 1\rangle$	$0.999238 J = 3/2, F = 1\rangle + 0.039028 J = 1/2, F = 1\rangle$
$ J = 1/2, F = 1\rangle$	$-0.039028 J = 3/2, F = 1\rangle + 0.999238 J = 1/2, F = 1\rangle$
$ J = 1/2, F = 0\rangle$	$ J = 1/2, F = 0\rangle$

计算超精细跃迁分支比需要采用基于洪特情况 (a) 体系的表象, 根据 Brown^[61] 在 *Rotational Spectroscopy of Diatomic Molecules* 第六章 (Equation 6.149 和 6.234) 中的描述, 可以利用 (14) 式将 $|X, N, J, F, -\rangle$ 态变换到洪特情况 (a) 基矢 $|\Lambda, S, \Sigma, \Omega, J, I, F, M_F\rangle$ 下. 洪特情况 (a) 体系下 $|A, J = 1/2, +\rangle$ 态可用 (15) 式表示. 电偶极矩阵元由 (16) 式给出, $T^{(1)}(d)$ 是电偶极算子在球谐张量形式下的表示. 类似的计算过程在之前的 BaF^[62] 和 MgF^[63]

表 7 CaH 分子 $|A, J' = 1/2, +\rangle$ 态跃迁到 $|X, N = 1, -\rangle$ 态的超精细跃迁分支比

Table 7. Calculated hyperfine branching ratios for decays from $|A, J' = 1/2, +\rangle$ to $|X, N = 1, -\rangle$ for CaH molecules.

J	F	M_F	$F' = 0$	$F' = 1$	
			$M'_F = 0$	$M'_F = -1$	$M'_F = 1$
3/2	-2	0	0.000000	0.166667	0.000000
		-1	0.000000	0.083333	0.000000
		0	0.000000	0.027778	0.111111
		1	0.000000	0.000000	0.083333
3/2	-1	0	0.000000	0.000000	0.166667
		-1	0.099024	0.034202	0.000000
		0	0.099024	0.034202	0.000000
		1	0.099024	0.000000	0.034202
1/2	-1	0	0.234309	0.215798	0.000000
		-1	0.234309	0.215798	0.000000
		0	0.234309	0.000000	0.215798
		1	0.234309	0.000000	0.215798
1/2	0	0	0.000000	0.222222	0.222222
		0	0.000000	0.222222	0.222222

也用到过. 计算结果列于表 7 中, $|A, J' = 1/2, +\rangle$ 态的四个超精细磁亚能级均自发跃迁到 $|X, N = 1, -\rangle$ 态的 12 个超精细磁亚能级 (上角标带有 “ $'$ ” 表示 A 态), 表的每一列都是归一化的.

$$|A, N, S, J\rangle = \sum_{\Omega} \sum_{\Sigma} (-1)^{J+\Omega} \sqrt{2N+1} \begin{pmatrix} S & N & F \\ \Sigma & \Lambda & -\Omega \end{pmatrix} |A, S, \Sigma, \Omega, J, F\rangle, \quad (14)$$

$$|A^s, J, M, \pm\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (|A^s, S, \Sigma, J, \Omega, M\rangle \pm (-1)^{J-S} |A^s, S, -\Sigma, J, -\Omega, M\rangle), \quad (15)$$

$$\begin{aligned} m_{ij} &= \langle i | T^{(1)}(d) | j \rangle \\ &= \sum_{p=-1}^1 (-1)^{F'-M'_F} \begin{pmatrix} F' & 1 & F \\ -M'_F & p & M_F \end{pmatrix} (-1)^{F+J'+I+1} \sqrt{(2F'+1)(2F+1)} \begin{Bmatrix} J & F & I \\ F' & J' & 1 \end{Bmatrix} \\ &\quad \times \sum_{q=-1}^1 (-1)^{J'-\Omega'} \begin{pmatrix} J' & 1 & J \\ -\Omega' & q & \Omega \end{pmatrix} \sqrt{(2J'+1)(2J+1)} \times \langle A', S, \Sigma' | T_q^{(1)}(d) | A, S, \Sigma \rangle. \end{aligned} \quad (16)$$

为了构建准封闭的跃迁循环, 需要同时泵浦 $|X, v = 0, N = 1, -\rangle$ 态下的四个子能级, 四束泵浦光的相对强度对应于表 7 中 $|A, v = 0, R = 0, J = 1/2\rangle$ 态自发辐射到 $|J = 1/2, F = 0\rangle$ 态、 $|J = 1/2, F = 1\rangle$ 态、 $|J = 3/2, F = 1\rangle$ 态和 $|J = 3/2, F = 2\rangle$ 态的相对概率. 得到了相应能级的超精细结构和跃迁分支比后, 便可以设计边带调制方案使主冷却光同时覆

盖 $|X, v = 0, N = 1, -\rangle$ 态的四个子能级. 对于 CaH 分子, 衰减率 $\Gamma = 1/\tau = 2\pi \times 4.794$ MHz, 而饱和光强 $I_s = \pi \hbar c \Gamma / (3\lambda^3) = 1.88$ mW/cm². 之前被研究比较多的 CaF 分子具有更小的激发态寿命 (19.2 ns) 和更短的波长 (606 nm)^[32]. 因此相较于 CaF 的 4.87 mW/cm² 的饱和光强, 本文研究的 CaH 的饱和光强更小, 其用于磁光囚禁所需要的

激光器功率要求就更小. 此外, CaF 所需的波段 ($\lambda_{00} \sim 606$ nm) 还没有容易获得的二极管激光器, 仍需要在泵浦激光作用下产生, 因而代价较高, 而 CaH 所需的波长 ($\lambda_{00} \sim 693$ nm) 对应的二极管激光器性价比, 且已经实现商用化.

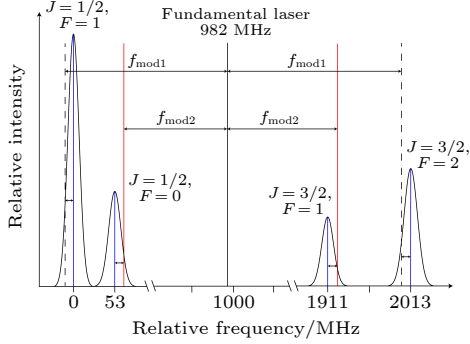


图 4 能同时覆盖 CaH 分子 $|X, N=1, -\rangle$ 态下四个子能级的边带调制方案. 中间的黑实线表示基频光; 蓝色实线表示超精细能级的中心频率; 黑色虚线与红色实线分别表示两个 EOM 的边带, 调制频率分别为 $f_{\text{mod1}} = 994.25$ MHz 和 $f_{\text{mod2}} = 941.25$ MHz. 每个边带的失谐量均控制在 3Γ 内

Fig. 4. Proposed sideband modulation scheme to simultaneously cover all hyperfine transitions originating from the $|X, N=1, -\rangle$ state of CaH. The black solid line in the middle indicates the fundamental laser frequency, while the blue solid line corresponds to the central frequency of the hyperfine transitions. The black dash line and the red solid line represent the sidebands of two EOMs respectively with the modulating frequencies $f_{\text{mod1}} = 994.25$ MHz and $f_{\text{mod2}} = 941.25$ MHz. All the hyperfine levels are well addressed for detuning within 3Γ of the respective hyperfine transition.

边带调制方案如图 4 所示, 黑实线表示基频光, 蓝线对应四个子能级的中心频率. 该方案需要用到两个电光调制器 (EOM), 图中的红色实线和黑色虚线分别对应了两个 EOM 产生的边带, 调制频率为: $f_{\text{mod1}} = 994.25$ MHz 和 $f_{\text{mod2}} = 941.25$ MHz, 失谐量都在 3Γ 内.

5 基态 $|X, v=0, N=1, -\rangle$ 的塞曼效应

本节讨论 CaH 分子磁光囚禁的相关特性. 基态 $|X, v=0, N=1, -\rangle$ 的塞曼效应对于磁光囚禁来说有着重要的意义. 对于一个双原子分子系统, 外磁场下有效哈密顿量增加了一项, 可以写作

$$\begin{aligned} \hat{H}_{\text{Zeeman}} = & g_s \mu_B T^1(\hat{S}) T_{p=0}^1(\hat{B}) \\ & + g_L \mu_L T^1(\hat{L}) T_{p=0}^1(\hat{B}) \\ & - g_I \mu_N T^1(\hat{I}) T_{p=0}^1(\hat{B}), \end{aligned} \quad (17)$$

其中, μ_B 和 μ_N 分别表示玻尔磁子和核磁子. g_s , g_L 和 g_I 分别为电子、电子轨道和核 g 因子, 它们的值分别为 2.002, 1 和 5.585. 由于 $\mu_B/\mu_N = 1836$ 且 $\Lambda=0$, 第一项 $g_s \mu_B T^1(\hat{S}) T_{p=0}^1(\hat{B})$ 远大于后面两项, 因此塞曼相互作用的有效哈密顿量在洪特情况 (b) 体系下的矩阵形式可以写成

$$\begin{aligned} & \langle \eta, N', S, J', I, F', M_F' | g_s \mu_B T^1(\hat{S}) T_{p=0}^1(\hat{B}) | \eta, N, S, J, I, F, M_F \rangle \\ & = \delta_{N'N} \delta_{M_F' M_F} g_s \mu_B B_Z (-1)^{F-M_F+F'+2J+I+N+S} [(2J+1)(2J'+1)(2F+1)(2F'+1)]^{1/2} \\ & \quad [S(S+1)(2S+1)]^{1/2} \begin{Bmatrix} J & S & N \\ S & J' & 1 \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} F & J & I \\ J' & F' & 1 \end{Bmatrix} \begin{pmatrix} F & 1 & F' \\ -M_F & 0 & M_F \end{pmatrix}. \end{aligned} \quad (18)$$

由此获得的 CaH 分子 $|X, N=1, -\rangle$ 态的塞曼效应如图 5 所示. 可以看出, 随着磁场的增大, $|X, N=1, -\rangle$ 态的四个子能级 $|J=1/2, F=0\rangle$, $|J=1/2, F=1\rangle$, $|J=3/2, F=1\rangle$ 和 $|J=3/2, F=2\rangle$ 分裂成十二个磁亚能级. 这几个能级在弱磁场下 (小于 10 G (1 G=10⁻⁴T)) 几乎是线性的塞曼效应, 这对于一般只使用几高斯的 MOT 实验来说是非常好的. 接着, 利用公式 $g_F = \Delta U / (M_F \mu_B B)$ 计算了考虑 J 混合后真实的 g 因子, 并将其与理想的 g 因子进行对比. 如表 8 所列, $|J=1/2, F=0\rangle$ 与 $|J=$

$3/2, F=2\rangle$ 这两个态真实的 g 因子与理想的 g 因子是一致的; 而对于 $|J=3/2, F=1\rangle$ 与 $|J=1/2, F=1\rangle$ 这两个态, 虽然真实的 g 因子与理想的 g 因子不同, 但它们的和都为 0.5, 这进一步说明对于基态 $X^2\Sigma_{1/2}$ 而言 J 不是好量子数, 但 N 仍然是好量子数. 此外, CaH 的 $A^2\Pi_{1/2}(J=1/2, F=1)$ 态的等效 g 因子为 $g = -0.034$, 而 CaF 的等效 g 因子为 $g = -0.0211$. 一般而言, 上能级 g_u 的大小决定了磁光囚禁力的大小, 对 MOT 来说 g_u 越大越好. 因此从这个角度来看, CaH 的磁光囚禁效果可能会好于 CaF.

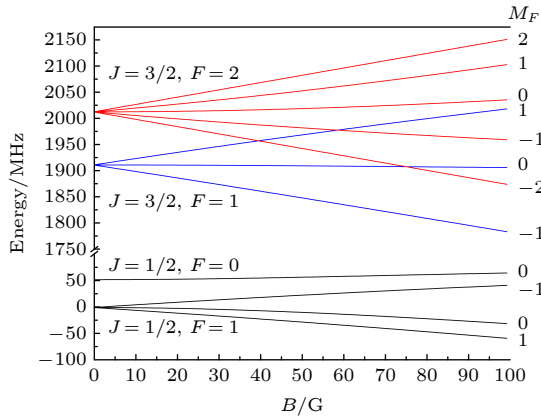


图 5 CaH 在 $|X, N=1, -\rangle$ 态的塞曼能移. 红线和蓝线分别表示 $|J=3/2, F=2\rangle$ 态和 $|J=3/2, F=1\rangle$ 态, 黑线代表了 $|J=1/2, F=0\rangle$ 态和 $|J=1/2, F=1\rangle$ 态

Fig. 5. Zeeman structures for the $|X, N=1, -\rangle$ state of CaH. The red and blue lines indicate the energy levels for $|J=3/2, F=2\rangle$ and $|J=3/2, F=1\rangle$ states, while the black lines represent the energy levels for $|J=1/2, F=0\rangle$ and $|J=1/2, F=1\rangle$ states, respectively.

表 8 CaH 分子 $X^2\Sigma_{1/2}$ ($v=0, N=1$) 态的朗德 g 因子

Table 8. The g factors for the $X^2\Sigma_{1/2}$ ($v=0, N=1$) state of CaH molecules.

态	g (没有 J 混合)	g (有 J 混合)
$ J=3/2, F=2\rangle$	0.50	0.50
$ J=3/2, F=1\rangle$	0.83	0.865
$ J=1/2, F=1\rangle$	-0.33	-0.365
$ J=1/2, F=0\rangle$	0.00	0.000

6 结 论

本文在理论上研究了 CaH 分子激光冷却和磁光囚禁的相关性质. 首先使用三种方法 (莫尔斯势法、闭合近似法和 RKR 反演法) 证实了 $X^2\Sigma_{1/2} - A^2\Pi_{1/2}$ 跃迁的 F-C 因子矩阵是高度对角化的, $f_{00} + f_{01} + f_{02} > 0.9999$, 说明用三束激光就可以散射几乎 1×10^4 的光子. 使用有效哈密顿量的方法计算了 CaH 分子 $X^2\Sigma_{1/2}$ 态的超精细能级结构和 $A^2\Pi_{1/2} (J'=1/2, +) \leftarrow X^2\Sigma_{1/2} (N=1, -)$ 跃迁的超精细跃迁分支比, 并且提出了能同时覆盖 $|X, v=0, N=1, -\rangle$ 态下四个子能级的边带调制方案. 最后, 研究了 $|X, v=0, N=1, -\rangle$ 态的塞曼能移, 结果显示该态在弱磁场下的塞曼效应几乎是线性的, 这对磁光囚禁来说是十分有利的. 与 CaF 分子相比, CaH 的饱和光强要小很多, 因此其对于激光器的功率要求就更小. 此外, CaH 分子等碱土金属氢化

物类型分子有不可忽视的永久电偶极矩贡献, 这使得它们能够在磁光囚禁获得的长相干测量时间下的精密测量实验中灵敏度大大提高, 例如电子电偶极矩的精密测量. 因此, 本文的工作一方面能够为 CaH 分子等碱土金属氢化物在天体物理光谱分析与观测中提供必要的光谱学信息, 另一方面为相关分子的激光冷却与囚禁提供设计参考, 从而能够促进超冷分子碰撞以及基础物理精密测量方面的研究工作.

参考文献

- [1] Schioppo M, Brown R C, McGrew W F, Hinkley N, Fasano R J, Beloy K, Yoon T H, Milani G, Nicolodi D, Sherman J A, Phillips N B, Oates C W, Ludlow A D 2016 *Nat. Photonics* **11** 48
- [2] Brewer S M, Chen J S, Hankin A M, Clements E R, Chou C W, Wineland D J, Hume D B, Leibbrandt D R 2019 *Phys. Rev. Lett.* **123** 033201
- [3] Nicholson T L, Campbell S L, Hutson R B, Marti G E, Bloom B J, McNally R L, Zhang W, Barrett M D, Safronova M S, Strouse G F, Tew W L, Ye J 2015 *Nat. Commun.* **6** 6896
- [4] Davis K B, Mewes M O, Andrews M R, van Druten N J, Durfee D S, Kurn D M, Ketterle W 1995 *Phys. Rev. Lett.* **75** 3969
- [5] Greiner M, Mandel O, Esslinger T, Hänsch T W, Bloch I 2002 *Nature* **415** 39
- [6] Anderson M H, Ensher J R, Matthews M R, Wieman C E, Cornell E A 1995 *Science* **269** 198
- [7] Hadzibabic Z, Krüger P, Cheneau M, Battelier B, Dalibard J 2006 *Nature* **441** 1118
- [8] Müller H, Peters A, Chu S 2010 *Nature* **463** 926
- [9] Huntemann N, Lipphardt B, Tamm C, Gerginov V, Weyers S, Peik E 2014 *Phys. Rev. Lett.* **113** 210802
- [10] Bouchendira R, Cladé P, Guellati-Khélifa S, Nez F, Biraben F 2011 *Phys. Rev. Lett.* **106** 080801
- [11] Parker R H, Yu C, Zhong W, Estey B, Müller H 2018 *Science* **360** 191
- [12] Godun R M, Nisbet-Jones P B R, Jones J M, King S A, Johnson L A M, Margolis H S, Szymaniec K, Lea S N, Bongs K, Gill P 2014 *Phys. Rev. Lett.* **113** 210801
- [13] Jaffe M, Haslinger P, Xu V, Hamilton P, Upadhye A, Elder B, Khoury J, Müller H 2017 *Nat. Phys.* **13** 938
- [14] Asenbaum P, Overstreet C, Kovachy T, Brown D D, Hogan J M, Kasevich M A 2017 *Phys. Rev. Lett.* **118** 183602
- [15] Omran A, Levine H, Keesling A, Semeghini G, Wang T T, Ebadi S, Bernien H, Zibrov A S, Pichler H, Choi S, Cui J, Rossignolo M, Rembold P, Montangero S, Calarco T, Endres M, Greiner M, Vuletić V, Lukin M D 2019 *Science* **365** 570
- [16] Friis N, Marty O, Maier C, Hempel C, Holzäpfel M, Jurcevic P, Plenio M B, Huber M, Roos C, Blatt R, Lanyon B 2018 *Phys. Rev. X* **8** 021012
- [17] Chin C, Flambaum V V, Kozlov M G 2009 *New J. Phys.* **11**
- [18] DeMille D, Cahn S B, Murphree D, Rahmlow D A, Kozlov M G 2008 *Phys. Rev. Lett.* **100** 023003
- [19] Baron J, Campbell W C, DeMille D, Doyle J M, Gabrielse G, Gurevich Y V, Hess P W, Hutzler N R, Kirilov E, Kozryev

- 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
- [20] Hudson J J, Sauer B E, Tarbutt M R, Hinds E A 2002 *Phys. Rev. Lett.* **89** 023003
- [21] Bohn J L, Rey A M, Ye J 2017 *Science* **357** 1002
- [22] Baranov M A, Dalmonte M, Pupillo G, Zoller P 2012 *Chem. Rev.* **112** 5012
- [23] Kotochigova S, Zelevinsky T, Ye J 2009 *Phys. Rev. A* **79** 012504
- [24] Murphy T M, Flambaum V V, Muller S, Henkel C 2008 *Science* **320** 1611
- [25] Zelevinsky T, Kotochigova S, Ye J 2008 *Phys. Rev. Lett.* **100** 043201
- [26] Cairncross W B, Gresh D N, Grau M, Cossel K C, Roussy T S, Ni Y, Zhou Y, Ye J, Cornell E A 2017 *Phys. Rev. Lett.* **119** 153001
- [27] Di Rosa M D 2004 *Eur. Phys. J. D* **31** 395
- [28] Shuman E S, Barry J F, Glenn D R, DeMille D 2009 *Phys. Rev. Lett.* **103** 1
- [29] Shuman E S, Barry J F, DeMille D 2010 *Nature* **467** 820
- [30] Barry J F, Shuman E S, Norrgard E B, DeMille D 2012 *Phys. Rev. Lett.* **108** 103002
- [31] Hummon M T, Yeo M, Stuhl B K, Collopy A L, Xia Y, Ye J 2013 *Phys. Rev. Lett.* **110** 143001
- [32] Zhelyazkova V, Cournol A, Wall T E, Matsushima A, Hudson J J, Hinds E A, Tarbutt M R, Sauer B E 2014 *Phys. Rev. A* **89** 053416
- [33] Hemmerling B, Chae E, Ravi A, Anderegg L, Drayna G K, Hutzler N R, Collopy A L, Ye J, Ketterle W, Doyle J M 2016 *J. Phys. B* **49** 174001
- [34] Truppe S, Williams H J, Fitch N J, Hambach M, Wall T E, Hinds E A 2017 *New J. Phys.* **19** 1
- [35] Iwata G Z, McNally R L, Zelevinsky T 2017 *Phys. Rev. A* **96** 022509
- [36] Bu W, Chen T, Lv G, Yan B 2017 *Phys. Rev. A* **95** 1
- [37] Lim J, Almond J R, Trigatzis M A, Devlin J A, Fitch N J, Sauer B E, Tarbutt R M, Hinds E A 2018 *Phys. Rev. Lett.* **120** 123201
- [38] Kozryyev I, Baum L, Matsuda K, Augenbraun B L, Anderegg L, Sedlack A P, Doyle J M 2017 *Phys. Rev. Lett.* **118** 173201
- [39] Burgasser A J, Kirkpatrick J D, Liebert J, Burrows A 2003 *Astrophys. J.* **594** 510
- [40] Yadin B, Veness T, Conti P, Hill C, Yurchenko S N, Tennyson J 2012 *Mon. Not. R. Astron. Soc.* **425** 34
- [41] Sotirowski P 1972 *Astron. Astrophys. Suppl. Ser.* **6** 85
- [42] Woolf V M, Wallerstein G, Month N R 2004 *Astron. Soc.* **350** 1365
- [43] Shkolnik E, Liu M C, Reid I N 2009 *Astrophys. J.* **699** 649
- [44] Habli H, Jellali S, Oujia B 2020 *Phys. Scr.* **95** 015403
- [45] Fazil N M, Prasanna V S, Latha K V P, Abe M, Das B P 2018 *Phys. Rev. A* **98** 032511
- [46] Shayesteh A, Ram R S, Bernath P F 2013 *J. Mol. Spectrosc.* **288** 46
- [47] GharibNezhad E, Shayesteh A, Bernath P F 2012 *J. Mol. Spectrosc.* **281** 47
- [48] Li G, Harrison J J, Ram R S, Western C M, Bernath P F 2012 *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* **113** 67
- [49] Liu M, Pauchard T, Sjödin M, Launila O, van der Meulen P, Berg L E 2009 *J. Mol. Spectrosc.* **257** 105
- [50] Gao Y, Gao T 2014 *Phys. Rev. A* **90** 052506
- [51] Nicholls R W 1981 *J. Suppl. Ser.* **47** 279
- [52] Frank A, Rivera A L, Wolf K B 2000 *Phys. Rev. A* **61** 054102
- [53] Rees A L G 1947 *Proc. Phys. Soc.* **59** 998
- [54] Roy R J L 2007 *LEVEL8.0: A Compute Program for Solving the Radial Schrödinger Equation for Bound and Quasibound Levels* (Waterloo: University of Waterloo) No. CP-663 [Chemical Physics Research Report]
- [55] Berg L E, Klynning L 1974 *Phys. Scr.* **10** 331
- [56] Knight L B, Weltner W 1971 *J. Chem. Phys.* **54** 3875
- [57] Frosch R A, Foley H M 1952 *Phys. Rev.* **88** 1337
- [58] Zare R N 1988 *Angular Momentum* (New York: A Wiley-Interscience Publication) pp186–191
- [59] Barclay W L, J r., Anderson M A, Ziurys L M 1993 *Astrophys. J.* **408** L65
- [60] Sauer B E, Wang J, Hinds E A 1996 *J. Chem. Phys.* **105** 7412
- [61] Brown J H, Carrington A 2012 *Rotational Spectroscopy of Diatomic Molecules* (Cambridge: Cambridge University Press) pp230–251
- [62] Chen T, Bu W, Yan B 2016 *Phys. Rev. A* **94** 063415
- [63] Xu L, Yin Y N, Wei B, Xia Y, Yin J P 2016 *Phys. Rev. A* **93** 013408

Theoretical investigation into spectrum of $A^2\Pi_{1/2} \leftarrow X^2\Sigma_{1/2}$ transition for CaH molecule toward laser cooling^{*}

Yin Jun-Hao Yang Tao[†] Yin Jian-Ping[‡]

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

(Received 18 March 2021; revised manuscript received 12 April 2021)

Abstract

Laser cooling and trapping of neutral molecules has made substantial progress in the past few years. On one hand, molecules have more complex energy level structures than atoms, thus bringing great challenges to direct laser cooling and trapping; on the other hand, cold molecules show great advantages in cold molecular collisions and cold chemistry, as well as the applications in many-body interactions and fundamental physics such as searching for fundamental symmetry violations. In recent years, polar diatomic molecules such as SrF, YO, and CaF have been demonstrated experimentally in direct laser cooling techniques and magneto-optic traps (MOTs), all of which require a comprehensive understanding of their molecular internal level structures. Other suitable candidates have also been proposed, such as YbF, MgF, BaF, HgF or even SrOH and YbOH, some of which are already found to play important roles in searching for variations of fundamental constants and the measurement of the electron's Electric Dipole Moment (*e*EDM). As early as 2004, the CaH molecule was selected as a good candidate for laser cooling and magneto-optical trapping. In this article, we first theoretically investigate the Franck-Condon factors of CaH in the $A^2\Pi_{1/2} \leftarrow X^2\Sigma_{1/2}$ transition by the Morse potential method, the closed-form approximation method and the Rydberg-Klein-Rees method separately, and prove that Franck-Condon factor matrix between $X^2\Sigma_{1/2}$ state and $A^2\Pi_{1/2}$ state is highly diagonalized, and indicate that sum of f_{00} , f_{01} and f_{02} for each molecule is greater than 0.9999 and almost 1×10^4 photons can be scattered to slow the molecules with merely three lasers. The molecular hyperfine structures of $X^2\Sigma_{1/2}$, as well as the transitions and associated hyperfine branching ratios in the $A^2\Pi_{1/2} (J = 1/2, +) \leftarrow X^2\Sigma_{1/2} (N = 1, -)$ transition of CaH, are examined via the effective Hamiltonian approach. According to these results, in order to fully cover the hyperfine manifold originating from $|X, N = 1, -\rangle$, we propose the sideband modulation scheme that at least two electro-optic modulators (EOMs) should be required for CaH when detuning within 3Γ of the respective hyperfine transition. In the end, we analyze the Zeeman structures and magnetic *g* factors with and without *J* mixing of the $|X, N = 1, -\rangle$ state to undercover more information about the magneto-optical trapping. Our work here not only demonstrates the feasibility of laser cooling and trapping of CaH, but also illuminates the studies related to spectral analysis in astrophysics, ultracold molecular collisions and fundamental physics such as exploring the fundamental symmetry violations.

Keywords: cold molecules, laser cooling, CaH molecule, Franck-Condon factors

PACS: 33.20.-t, 33.15.Pw, 37.10.Mn, 33.70.Ca

DOI: 10.7498/aps.70.20210522

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11834003, 11874151).

[†] Corresponding author. E-mail: tyang@lps.ecnu.edu.cn

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