

专题：冷原子-分子物理

极性分子的激光冷却及囚禁技术*

陈涛 颜波[†]

(浙江大学物理系, 现代光学仪器国家重点实验室, 杭州 310027)

(2018年9月5日收到; 2019年1月7日收到修改稿)

分子由于其不同于原子的特殊性质, 在原子、分子和光物理研究中有其独特的地位. 冷分子研究已经开展了二三十年, 取得了很多重大的进展. 但是以斯塔克减速器为代表的传统冷却方案遇到瓶颈, 很难进一步提高分子的相空间密度. 将原子中成熟的激光冷却技术扩展到极性分子中是本领域近年来的重大突破, 使得冷却和囚禁分子的范围得以大大扩展, 分子的相空间密度也得以提高. 本文对国内外激光冷却极性分子的最新成果进行综述, 并以 BaF 分子为例介绍激光冷却极性分子的相关理论和技术, 包括分子能级结构分析及精密光谱测量, 采用缓冲气体冷却进行态制备和预冷却, 以及通过冷分子束研究激光与 BaF 分子间的相互作用. 这些为后续开展激光冷却与囚禁实验研究奠定了基础, 也为开展其他新的分子冷却实验提供了参考.

关键词: 激光冷却, 冷分子, 缓冲气体冷却, 光与分子相互作用**PACS:** 37.10.De, 37.10.Mn**DOI:** 10.7498/aps.68.20181655

1 引言

在过去二三十年里, 激光冷却与囚禁相关实验技术的进步为原子、分子和光物理以及量子物理的发展开启了新的篇章, 深刻地改变了这些学科的面貌. 以激光冷却为代表的冷原子技术, 在许多方面找到了重要的科学应用, 包括基于冷原子的喷泉钟^[1]、光钟^[2]、物质波干涉仪^[3]等精密测量, 以及强关联简并量子气体在量子模拟方面^[4]的广泛应用. 自从第一次在实验上实现稀薄碱金属原子的玻色-爱因斯坦凝聚 (BEC) 以来^[5-7], 实现量子简并 (BEC 或简并费米气体) 的原子种类已经相当多, 包括碱金属原子的几乎所有同位素, 碱土金属原子和稀土金属原子, 如 Cr^[8,9]、Dy^[10,11]、Er^[12] 原子等. 在超冷原子中, 系统的各个自由度可以进行精确的调控, 使得基于超冷原子的量子模拟成为新的热点研究方向. 可以说, 冷原子及超冷原子技术的发展已经到

了非常成熟的阶段, 怎么应用和拓展这些技术是今后需要重点考虑的方向. 作为原子的直接推广, 分子更加复杂, 应用也更加广泛, 因此冷分子越来越受到重视. 如何将激光冷却的技术应用于冷却分子, 一直是人们的梦想. 随着一系列理论和实验的研究突破, 直接激光冷却分子快速发展起来, 并激起越来越多研究组的兴趣.

相对于原子而言, 分子具有更加丰富的内在自由度, 多个原子的原子核之间相对运动引入额外的振动自由度与转动自由度. 这些复杂的能级结构给分子的冷却带来了很大的挑战, 也使得冷分子在精密测量^[2,13-16]及多体物理领域的应用^[17-19]有其独特的优势. 比如, 一些重要物理常数数的测量^[14-20]在分子中的精度能够达到更高, 特别是用于检验标准模型的电子电偶极矩 (eEDM) 的测量^[21-24], 以及研究弱相互作用引起的 P-T 对称性^[14-25]等. 另一方面, 极性分子具有较大的电偶极矩且存在偶极-偶极相互作用 (DDI), 很容易通过调节外加电

* 国家重点研发计划 (批准号: 2018YFA0307200)、国家自然科学基金 (批准号: 91636104) 和浙江省自然科学基金 (批准号: LZ18A040001) 资助的课题.

[†] 通信作者. E-mail: yanbohang@zju.edu.cn

场来操控. 原子中的相互作用通常认为是短程的、各向同性的, 而分子中的这种偶极相互作用则是长程的, 各向异性的; 而且其强度相对于磁性原子的磁偶极相互作用而言大两个量级. 长程偶极-偶极相互作用是产生许多新奇量子效应的基础, 包括在量子模拟 (探索强关联体系中新的量子相变过程^[17]以及分数霍尔效应^[26]等)、量子计算^[27,28]和量子信息处理^[29,30]等方面的应用. 另外, 冷分子的制备也为研究超冷条件下化学反应过程^[31-33]奠定了基础, 包括超冷温度下分子的碰撞性质, 以及实现化学反应的可操控性^[34,35]等. 可以说, 分子, 特别是冷分子提供了比原子中更加丰富的研究方向, 因此, 研究冷分子的制备方法和性质具有广泛的科学价值和应用价值.

获取冷分子的方法粗略地可以分为两大类, 我们称之为间接冷却和直接冷却. 所谓间接冷却的方案是先用成熟的技术将原子冷却, 然后再合成分子. 具体而言, 首先制备多组分超冷原子气体, 然后通过外加磁场或光场的方式缔合形成弱束缚态分子, 接着采用受激拉曼绝热布居 (STIRAP) 方法将分子转移到绝对基态 (最低振动态和转动态)^[36]. 这种方案形成的冷分子样品的温度能够达到 nK 量级^[37], 且具有很高的相空间密度^[4]. 目前制备的绝对基态极性分子有 KRb^[36]、RbCs^[38,39]、NaK^[40]和 NaRb^[41]. 值得一提的是, KRb 分子的相空间密度已经足够用来测量长程的偶极相互作用^[42], 而目前 KRb 分子被制备到量子简并态是这个领域一个重大的突破^[43]; 而 NaK 分子则由于具有很好的碰撞性质而被广泛关注, 即不存在 $2\text{NaK} \rightarrow \text{Na}_2 + \text{K}_2$ 过程^[44]. 上述的几种分子均为碱金属双原子分子, 是闭壳层分子; 另一类通过缔合碱金属原子和碱土金属原子实现开壳层分子的制备实验也在不断发展, 比如 RbYb^[45-47]、LiYb^[48-52]、RbSr^[53]和 CsYb^[54]. 特别是最近观察到的 Rb-Sr 混合气体在磁场下的 Feshbach 共振现象^[55]给制备这类分子提供了新的思路, 但寻找 STIRAP 路径仍然是一个挑战.

不同于间接冷却, 直接冷却方案是先有分子, 然后通过各种手段 (电场、磁场、光场等) 对它进行冷却. 这种方案可以应用于更一般更广泛的分子, 如 OH^[56]、SrF^[57,58]、YbF^[59]、H₂CO^[60]、NH^[61]、LiH^[62]等. 早期发展起来的斯塔克减速器是一个经典的方案^[32]. 后来还有磁场以及光场减速方案. 但

是这些方案难以将分子冷却到 $< 1 \text{ mK}$ 的区域, 而且由于减速作用力均是保守力, 无法提高分子的相空间密度^[56,63-65]. 既然保守力场有限制, 耗散力会是一个好的选择. 激光冷却正是利用了光子的耗散力. 对于某一类具有较好的弗兰克-康顿系数 (Franck-Condon Factor) 的双原子分子^[66], 近年来发展起来的直接激光冷却分子技术取得了巨大的成功. SrF 和 YO 分子的激光冷却 ($< 1 \text{ mK}$) 分别在耶鲁大学 DeMille 研究组和 JILA 叶军研究组实现^[67-69], 后来 CaF 分子也被激光冷却, 并且实现了光学黏团 ($50 \mu\text{K}$)^[70]、磁阱囚禁^[71]和光阱囚禁^[72], 以及横向温度为 $100 \mu\text{K}$ 的 YbF 分子束^[73] 近期被实现, 分子的温度不断被压缩, 而且不断有新的技术和理论方案发展起来. 而且最近 SrF 的磁阱^[74]和 YO 的 3D-MOT^[75]也已实现. 除了以上提到的研究组, 目前国际上很多其他研究组也都开始了这方面的研究, 包括哈佛大学 (CaF 分子, SrOH 分子)^[76,77]、哥伦比亚大学 (BaH 分子)^[78]、德国斯图加特大学等. 国内这方面的研究也刚刚兴起, 除了浙江大学以外, 华东师范大学也开展了 MgF 分子的激光冷却研究^[79], 也期望国内能有更多的研究组加入这个领域.

激光冷却分子的闭合跃迁要求分子富集在较低的几个振动态和转动态^[66]. 如何高效地将热分子制备到所需的振动态形成高质量的冷分子束, 是决定激光冷却能够获得的分子数目的重要因素之一, 目前主要采用缓冲气体冷却技术来实现这一目标^[80]. 缓冲气体冷却是一项通用的技术, 适用于各种不同类型分子的冷却, 结合缓冲气体冷却和激光冷却的方案已经被广泛认可和采用. 极性分子的直接激光冷却方案大体分为如下几个步骤: 1) 分子样品的制备, 通常通过激光消融或者化学方法产生; 2) 缓冲气体冷却进行态制备和预冷却, 获得冷分子束; 3) 横向冷却, 分子束的压缩; 4) 分子束的纵向激光减速, 获得可观数目的在磁光阱俘获速度附近的分子; 5) 分子磁光阱及光学黏团; 6) 囚禁与态纯化; 7) 协同冷却以实现量子简并. 目前我们开展的 BaF 分子的激光冷却研究尚处在致力于实现分子束的横向压缩阶段, 因此接下来我们将以 BaF 分子为例来详细介绍分子的产生方法、缓冲气体冷却以及闭合跃迁的验证, 而对于后续的激光减速和磁光阱实验等则是结合国际上的最新进展做一个简要的概述. 在中文文献方面, 《物

理》杂志发表的一系列关于冷分子的综述文章是非常好的参考^[81-85], 而本文的重心在激光冷却和囚禁极性分子领域.

2 分子的产生与缓冲气体冷却

目前可以直接激光冷却的分子通常在自然界中不能稳定存在, 需要通过物理或者化学方法生成, 比如激光消融技术. 通过激光消融获得的分子的温度很高, 在约 1000 K 左右. 对于双原子分子, 通常振动态能级间隔用温度来衡量的话, 在几百到上千开尔文的温度之间. 而转动态之间的间隔在几个开尔文的数量级. 根据玻尔兹曼分布, 在这么高的温度下分子大部分处于高能态 (几个低振动态, 非常多的转动态上). 如果不进行布居压缩, 能用来进行冷却的分子非常少. 因此对分子进行预冷却很有必要. 缓冲气体冷却技术被证明是一种非常有效的方案, 被广泛用来产生冷分子束^[80]. 通过分子与缓冲气体之间的非弹性碰撞将分子各个自由度都冷却下来^[86-88], 不仅分子的运动速度减小, 还将分

子集中聚集到激光冷却需要的能级上.

实验上常用的产生分子的方法有两种: 直接激光消融^[80]和化学反应^[89,90]. 激光消融是用高能量的脉冲激光轰击样品产生需要的分子. 化学反应则是通过不同气体混合化学反应产生所需要的分子. 从目前的一些实验结果看, 化学反应方法能够更高效的生成分子. 激光消融会产生很多其他分子, 因此产生分子的效率低一些, 好处是相对来说简单一些. 目前我们实验中采用激光消融 BaF₂ 产生 BaF 分子. 关于消融激光的参数设置和 BaF₂ 靶材样品的制作这里不再详述^[91]. 激光消融和吸收光谱的测量在缓冲腔内完成, 如图 1(a). 4 K 缓冲腔的温度由低温装置维持^[91]. 消融激光通过透镜聚焦后作用在置于缓冲腔后壁上 BaF₂ 靶材样品上. 860 nm 探测激光通过缓冲腔, 由一光电管 (PD) 监测其光强. 一旦有 BaF 分子产生, 且 860 nm 激光耦合到 $|X^2\Sigma, v=0\rangle \leftrightarrow |A^2\Pi_{1/2}, v=0\rangle$ 中的跃迁, 就会出现吸收现象, 光电管信号会出现一个凹陷. 吸收信号在时间尺度上也能反映 BaF 分子与缓冲气体的碰撞过程. 860 nm 激光由自制的外腔半导体

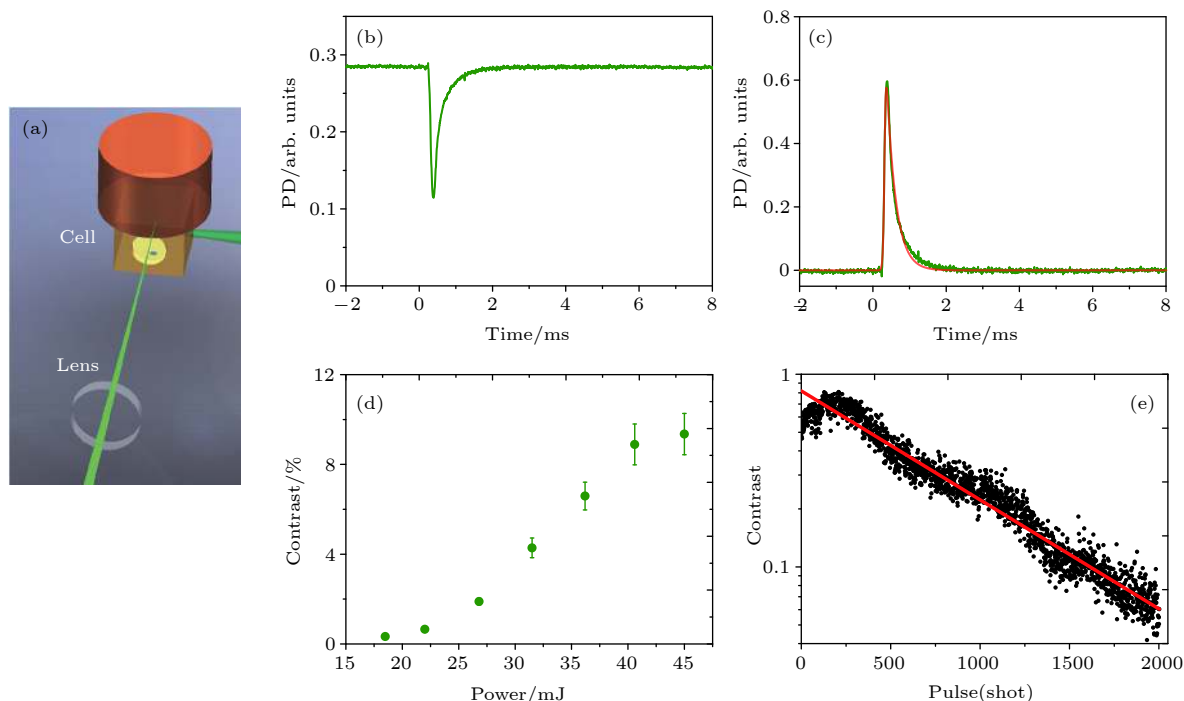


图 1 激光消融示意图及实验数据^[91] (a) 激光消融产生 BaF 分子示意图; (b) 分子吸收信号, 消融激光在 $t = 0$ ms 时打开; (c) 对吸收信号做归一化处理和拟合; (d) 吸收信号与消融激光输出功率的关系; (e) 当消融靶材上固定某一位置处, 消融激光轰击次数越多, 分子吸收信号越差. 消融脉冲频率为 2 Hz, He 气流速为 5 sccm

Fig. 1. Experimental scheme and laser ablation data^[91]. (a) Scheme for the production of BaF molecule via laser ablation; (b) absorption signal; (c) normalization and fit of the absorption signal; (d) the generated molecular number versus the output power of the ablation laser; (e) the dependence of the molecular number on the ablating times when successively ablating a position of the target. The repetition rate of the laser pulse is 2 Hz and the flow rate of the He gas is 5 sccm.

激光器 (ECDL) 产生^[92], 采用传递腔方案来实现锁频^[93].

消融激光单次脉冲产生的吸收信号如图 1(b). 为了与分子数目相对应, 首先将吸收信号进行归一化处理, 即 $c = 1 - I_{\text{abs}}/\text{Max}(I_{\text{abs}})$, 并对处理后的信号进行拟合, 如图 1(c) 所示, 拟合函数定义为 $y = Ae^{-(t-t_0)/\tau_d}[1 + e^{-(t-t_0)/\tau_1}]^{-1}$, 其中, τ_1 和 τ_d 分别反映分子的产生速度和在缓冲腔内的衰减速度, 而对比度 A 则反映了产生的分子数目. 图 1(d) 给出了产生分子数与消融光功率间的关系, 可见其在 40 mJ 左右开始饱和. 而且实验中如果单纯地为了获得高的分子数而盲目增大消融光的功率并不可取, 因为从缓冲喷出的冷分子束的速度也会随功率的增大而增大, 不利于开展后续实验. 另一个问题是当消融光一直聚焦在靶材上同一个位置时, 随着脉冲次数的增加, 产生的分子数目会衰减. 如图 1(e), 靶材上单点的消融寿命约为几百次, 对比度与消融脉冲次数呈指数衰减关系. 为了较高效率地产生分子, 实验中需要不断调整消融光的聚焦位置. 另外, 脉冲频率过高, 如 10 Hz, 获得的分子信号较差, 因此, 实验中脉冲激光通常工作在 1 Hz 或 2 Hz.

腔内缓冲气体冷却的效率与分子和 He 的碰撞截面相关. 碰撞截面的大小可以根据腔内吸收信号的衰减常数 τ_d 来估算. 当腔内 He 密度较低时, 即实验中 He 流速小于 5 sccm(标准毫升/分钟) 时, 衰减常数 τ_d 与 He 的密度及碰撞截面均呈正比^[86-94]. 实验中, 通过测量不同流速下的衰减常数, 拟合出 BaF 分子与 He 缓冲气体的碰撞截面 $\sigma_d = 1.4(7) \times 10^{-14} \text{ cm}^2$. 这里误差主要来源于腔内 He 密度的估计以及缓冲腔几何结构参数的估算^[91]. 我们估计的碰撞截面与其他分子 (如 SrF^[68]) 和 He 缓冲气体的碰撞截面在数量级上一致, 说明对 BaF 分子进行缓冲气体冷却能够有效地工作.

除了减小分子的运动速度, 缓冲气体预冷却的另一个目的是将分子的布居压缩到较低的振动态和转动态. 通常来说, 两个相邻振动态之间的能级间隔在约 1000 K 量级. 即使在常温下 (300 K), 大部分分子仍占据振动态基态. 因此, 振动态的冷却对于激光冷却而言问题不大. 然而, 对于转动态, 能级间隔在 1 K 量级. 在常温下, 分子布居分布在很多高转动态上. 而激光冷却只用到一个或者少数几个低转动态, 分布于低转动态的分子数目过少不

利于开展激光冷却实验. 图 2(a) 给出根据玻尔兹曼分布计算得到的不同温度下各个转动态分子布居数的分布, 可见将分子转动态温度从常温冷却到 4 K, 低转动态分子布居数将提高两个量级. 实际实验中, BaF 分子在缓冲气体冷却之后, 处于低转动态的分子数目确实大大提高, 如图 2(b). 我们通过测量 $P(N)$ 分支跃迁 ($|N, J\rangle \rightarrow |N' = N - 1, J' = J - 1\rangle$) 的光谱来确定各个转动态的分子布居数. 对于 $N = 0$ 转动态, 我们采用 $Q(0)$ 跃迁的测量结果^[91]. 图 2(b) 给出了采用玻尔兹曼分布拟合的转动态温度为 4.0(7) K, 符合我们的预期. 而缓冲气体冷却对振动态远不如对转动态的冷却效果那么明显^[95]. 理论上, 在 4 K 温度下处于 $v = 1$ 振动态的分子布居很少, 几乎为零, 如图 2(c). 然而, 实验中我们仍然观测到了从 $|X, v = 1\rangle$ 到 $|A, v' = 0\rangle$ 跃迁的吸收信号, 尽管相对 $v = 0$ 的信号来说非常弱, 如图 2(d) 所示. 而且实验中需要进行很长时间的平均来提高信噪比. 根据这两个吸收信号的强度, 我们估计 $v = 1$ 上的分子布居数比 $v = 0$ 小一到两个量级. 至此, 我们完成了制备 BaF 分子源, 并利用缓冲气体冷却技术实现内态的高效压缩.

3 验证准闭合跃迁

由于单个光子所带走的原子或者分子的动量非常少, 一般激光冷却都需要散射很多 (10^4 量级) 光子数来获得好的冷却效果. 因此能级之间的闭合循环跃迁是激光冷却的必要条件. 如果存在暗态 (激光不在这个能态相互作用), 则激光冷却就进行不下去. 不同于原子, 分子包含更多的内在自由度, 需要更多的再泵浦光来消除暗态, 这使得寻找激光冷却所需的闭合跃迁相当困难, 也大大限制了能够进行激光冷却的分子的种类. 通常, 振动态的闭合依赖于对角化分布的弗兰克-康顿系数 (FCFs). 根据计算的 $A^2\Pi_{1/2} \rightarrow X^2\Sigma$ 跃迁的 FCFs^[96], 振动态的闭合方案如图 3(a) 所示, 仅需要两束再泵浦光 ($|X, v = 1\rangle \rightarrow |A, v' = 0\rangle$ 和 $|X, v = 2\rangle \rightarrow |A, v' = 1\rangle$). 因为 $|A, v' = 0\rangle \rightarrow |X, v \geq 3\rangle$ 跃迁的 FCFs 为 $q_{03} = 2.7 \times 10^{-5}$, 采用这种方案能够实现约 3×10^4 个光子的散射, 直到分子占据 $|X, v \geq 3\rangle$ 暗态. 这里暂时不考虑 Δ 态的问题. 磁光阱 (MOT) 实验中或许有必要增加一束 $|X, v = 3\rangle \rightarrow |A, v' = 2\rangle$ 再泵浦光来散射更多的光子^[68]. 转动态暗态可以根据选择定则来完全消除. 基态 $X^2\Sigma_{1/2}$

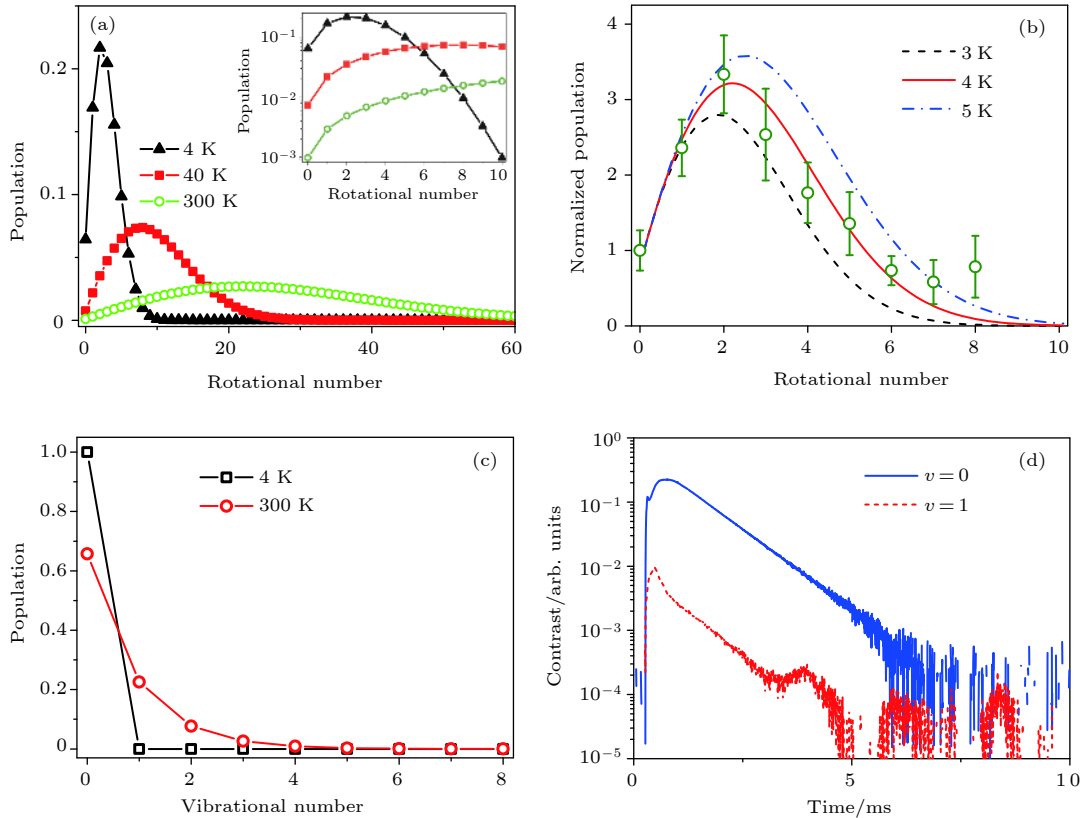


图 2 分子在不同能级的布居分布^[91] (a) 理论上根据玻尔兹曼分布计算不同温度下各个转动态上分子布居数的比例; (b) 转动态温度的测量与拟合. 这里各个转动态的布居数均以测量的 $N=0$ 态的布居数进行归一化; (c) 4 K 和 300 K 温度下振动态布居数的分布; (d) 实验测量的对 $|X, v=0\rangle \rightarrow |A, v'=0\rangle$ (蓝色) 和 $|X, v=1\rangle \rightarrow |A, v'=0\rangle$ (红色) 跃迁的吸收信号

Fig. 2. Molecular distribution at different states^[91]. (a) Theoretic calculation of the rotational distribution for different temperatures; (b) experimental data for different rotational populations. All data are normalized with $N=0$ population; (c) theoretic calculation of the vibrational distribution; (d) experimental absorption signal for $v=0$ and $v=1$ molecules from laser ablation.

属于洪德情况 b, 转动量子数 N 是好量子数, 电子态波函数是偶宇称的 ($P = +1$), 因此转动态波函数的宇称 $P = (-1)^N$. 激发态 $A^2\Pi_{1/2}$ 满足洪德情况 a, 好量子数为 $J = N + \Omega$, 因此 $|A^2\Pi_{1/2}, J' = 1/2\rangle$ 态具有二重简并结构 (Λ -doublets), 分别对应于奇宇称 ($\Lambda = -1$) 和偶宇称 ($\Lambda = +1$) 的电子态波函数. 电偶极矩跃迁的宇称选择定则要求跃迁前后的分子态的宇称相反, 而角动量选择定则要求 $\Delta J = 0, \pm 1$. 于是, 选择 $|X, N = 1, -\rangle \rightarrow |A, J' = 1/2, +\rangle$ 跃迁能完全闭合转动态, 因为处于 $|A, J' = 1/2, +\rangle$ 态的分子只能自发辐射回到奇宇称的 $N = 1$ 转动态, 如图 3(b) 所示.

光泵浦还需要考虑基态和激发态的能级分裂. 激发态 $|J' = 1/2, +\rangle$ 的超精细分裂很小, 在约 MHz 量级, 可认为简并^[97]. 而基态 $|N = 1, -\rangle$ 存在 4 个超精细子能级, 如图 3(b), 冷却光和再泵浦光需要同时覆盖相应的 4 个频率. 实验中通过一共振型电光调制器 (EOM) 对激光调制获得这 4 个频率边

带. 调节 EOM 的调制深度, 可以控制各个边带的光强分布, 我们使用一 F-P 腔来监测. 根据超精细能级之间的间隔^[96], EOM 的共振频率设为 38 MHz, 射频信号强度为 15 dBm 时, 得到的 ± 1 和 ± 2 级边带光强接近, 而且 0 级中心频率光强几乎为 0, 如图 3(c) 所示. 为了观察边带调制的效果, 我们在缓冲腔出口下游约 35 cm 处用一雪崩光电管 (APD) 来记录冷分子束 (纵向速度 $u_0 \approx 200$ m/s) 的激光诱导荧光 (LIF) 信号. 在时序上通过连续记录分别在不加调制和加上调制情况下的两个时间飞行 (ToF) 信号, 并进行多次平均来提高信噪比, 如图 3(d), 容易看出增加边带调制后信号峰值增强约 2.5 倍. 这种增强现象容易理解, 因为更多的处于子能级的分子被激发, 散射光子数自然提高.

磁子能级暗态的消除通常有两种方案, 一种是对激光的偏振进行调制^[67], 另一种是加上一个方向与光偏振存在角度的磁场^[57]. 实验中, 我们分别验证了这两种方案对 BaF 分子的可行性. 偏振调

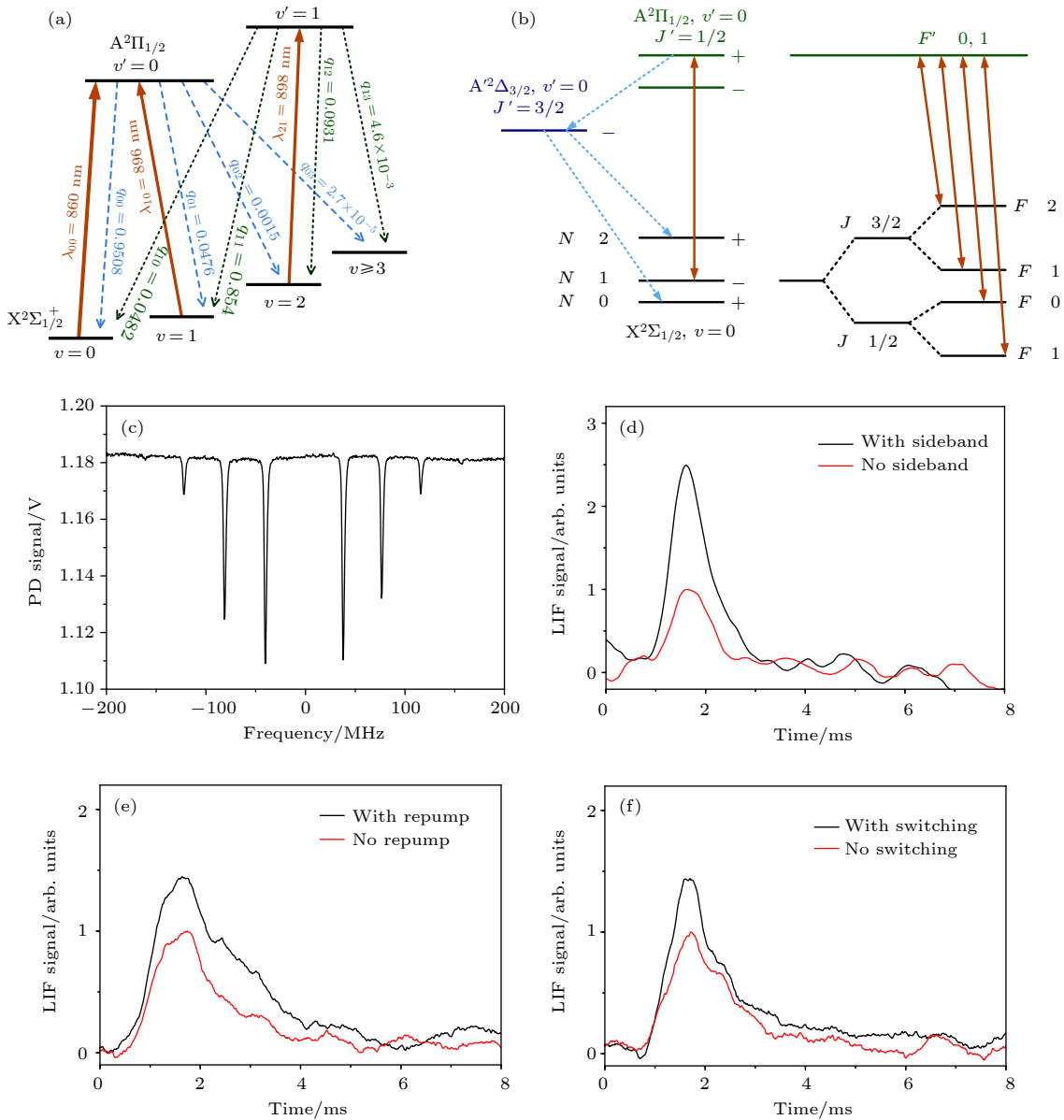


图 3 BaF 能级示意图和暗态消除方案^[98] (a) 振动态能级的闭合方案, 增加 896 nm 和 898 nm 两个再泵浦激光; (b) 转动态能级的闭合及超精细能级分裂示意图; (c) 利用 EOM 调制产生的 4 个频率边带, 图中是调制后的激光用法珀腔测量的信号; (d) 引入边带调制后荧光信号的增强; (e) 进行偏振调制后荧光信号的增强; (f) 增加 $v = 1$ 再泵浦光后荧光信号的增强

Fig. 3. The energy levels of BaF and dark state mixing^[98]. (a) Scheme for closing the vibrational levels; (b) scheme for closing the rotational and hyperfine dark states; (c) sideband modulation via an EOM to generate the four frequency bands to cover the four hyperfine sublevels; (d) LIF enhancement via introducing the sideband modulation; (e) LIF enhancement by introducing the polarization modulation; (f) LIF enhancement when adding the $v = 1$ repump laser.

制通过一普克尔盒来实现. 当在普克尔盒两端加上一个周期性调制电压时, 激光的偏振也会被周期地调制. 适当调节调制的方波电压的幅度, 可以实现水平偏振-竖直偏振的切换. 在普克尔盒后面加上一个 $1/4$ 波片, 即可实现 $\sigma^+ - \sigma^-$ 来回切换. 调制方波信号的频率为 1 MHz 时, 我们观察到的 LIF 信号相对于采用线偏振光探测时增强了约 1.5 倍, 如图 3(e). 而且这个增强效果对调制频率

不是很敏感, 提高调制频率, 如 5 MHz, 结果类似. 另外, 这个增强效果并没有达到我们的预期, 因为在我们的实验条件下 (激光光斑直径 $d \sim 2$ mm, 860 nm 和 896 nm 激光的功率分别为 160 mW 和 100 mW), 4+13 能级速率方程模型^[98] 给出加上偏振调制后散射光子数增加约 3 倍. 由于对应的每个边带的饱和因子 $s \approx 300$, 在 $\sim d/u_0 = 10 \mu\text{s}$ 的相互作用时间内 860 nm 激光已经足够将分子泵浦到

$|X, v = 1\rangle$ 态, 速率方程模型给出的散射光子数为约 18, 接近理论极限值约 $1/(1 - q_{00}) \approx 20$. 由此可以推断, 在不加偏振调制时, 单个分子在 $10 \mu\text{s}$ 作用时间内散射的光子数为约 $18/1.5 = 12$, 远大于速率方程模型给出的 6 个光子. 原因可能在于地磁场也能将塞曼子能级相互耦合起来. 实验中, 我们还验证了第二种混合磁子能级的方法, 即引入一个小的与激光偏振方向有角度的磁场. 假定分子束的传播方向为 \hat{x} 方向, 激光为线偏振, 偏振方向沿 \hat{z} 方向, 磁场方向在 \hat{y} - \hat{z} 平面 ($B_y = B_z$), 与 \hat{z} 轴夹角为 45° . 测量不同磁场下 LIF 信号的增强, 发现在最优的磁场大小 $B_z = 3.5\text{G}$ 时, LIF 信号比不加磁场时也增强约 1.5 倍, 这与偏振调制的结果一致. 在大磁场下, LIF 信号反而不会增强, 可能是由于塞曼分裂增大引起的失谐导致光子散射率降低.

在消除了超精细能级和塞曼子能级暗态之后, 最显著的暗态为 $|X, v = 1\rangle$ 振动态, 为此我们引入 896 nm 再泵浦光, 这束光和 860 nm 激光通过一个双色镜耦合, 在空间上重叠, 然后同时通过 EOM 以及普克尔盒进行边带调制和偏振调制. 同样, 我们通过观察 LIF 信号的增强来判断 $v = 1$ 再泵浦光是否有效. 如图 3(f), 增加 $|X, v = 1\rangle \rightarrow |A, v' = 0\rangle$ 再泵浦光, LIF 信号增强约 1.5 倍, 这意味着在 $10 \mu\text{s}$ 内分子散射的光子数增加到 $18 \times 1.5 = 27$ 个, 与 $4+25$ 能级模型预期一致^[98].

4 光与分子相互作用研究

在验证了准闭合跃迁的基础上, 增加光与分子的相互作用时间, 可以观察激光对分子束的散射力. BaF 分子通过激光消融产生, 在缓冲腔内经缓冲气体冷却后形成沿 $+\hat{x}$ 方向传播的冷分子束, 接着通过一个 3 mm 小孔进入相互作用区域. 在相互作用区域, 作用于分子束的几束激光束沿 $+\hat{z}$ 方向; 分子与光场的相互作用时间可以通过控制激光光束的数目来控制, 最多通过 8 束激光. 860 nm 泵浦光和 896 nm 再泵浦光通过双色镜在空间上重合, 光斑直径 $d = 2 \text{ mm}$, 功率分别为 160 mW 和 100 mW . 在相互作用区域下游 35 cm 处, 我们用 CCD 来荧光成像. 探测光仅包含 860 nm 激光. 在相互作用区域和分子束探测区域中间, 用一束清除 (cleanup) 光 (光斑直径 8 mm , 功率 50 mW) 来将处于 $|X, v = 1\rangle$ 态的分子泵回 $|X, v = 0\rangle$ 态. 这几束激光

均加入 38 MHz 边带调制和 1 MHz 的偏振调制.

我们在相互作用区域加 8 束沿同一方向 ($+\hat{z}$) 传播的偏转光以观测分子束在散射力作用下发生偏转. 图 4(a) 给出了此时分子束的形状. 为了对照, 我们在不加任何偏转光的情况下, 拍到的分子束的形状如图 4(b). 由于偏转光沿 $+\hat{z}$ 方向, 将两种情况下的分子信号沿 \hat{x} 方向积分, 我们得到分子束的横向直径为约 3 cm , 如图 4(c). 而且, 在有偏转光的情况下, 分子束整体沿 $+\hat{z}$ 方向有一个 0.8 mm 的偏移 (见图 4(d)), 且分子束的横向直径几乎保持不变. 实验中, 我们还检验了 896 nm 再泵浦光和清除光的泵浦效果. 当同时不加这两束光时, 经过在相互作用区域泵浦光的作用后, 仅有约 10% 的分子处于 $|X, v = 0\rangle$ 态. 加入这两束光后, 分子信号恢复到约 80%. 这说明泵浦光和再泵浦光作用足够强. 剩余的 20% 的分子损失主要来自 $|X, v \geq 2\rangle$ 和 $A'^2\Delta$ 暗态.

接下来我们根据偏转距离 l 来估计散射光子数 N_{sc} . 分子束纵向速度 $u_0 \sim 200 \text{ m/s}$, 而 2D 相互作用区域与 3D 探测区域间隔 $D = 35 \text{ cm}$, 因此分子束传播时间为 D/u_0 . 于是, 容易得到分子束横向速度变化为 $\delta u = u_0 l/D$. 单个 $\lambda = 860 \text{ nm}$ 光子反冲动量为 $p = h/\lambda$ (h 为普朗克常数). $l \approx 0.8 \text{ mm}$ 的偏转距离对应的散射光子数为 $N_{\text{sc}} = m\delta u/p \approx 150$, 其中 m 为 BaF 分子的质量. 为了估计光子散射率, 我们测量了散射光子数 N_{sc} 与相互作用时间 t 间的关系. 相互作用时间 $t = n\tau$ 可以简单通过调整相互作用区域偏转光束的数量 n 来控制, $\tau = d/u_0 \sim 10 \mu\text{s}$ 为单束激光的作用时间. 如图 4(e), 当减少光束的数目, 偏转距离呈线性减小, 相应的散射光子数也线性减小. 线性拟合得到光子散射率 $\Gamma_{\text{sc}} = 2 \text{ MHz}$, 这与根据 $4+25$ 能级速率方程模型给出的值一致, 见图 4(e) 中的虚线. 但是, 这个值比理论预期的 $4+24$ 多能级体系的最大散射率 $\Gamma_{\text{max}} = \Gamma/7 \approx 2.5 \text{ MHz}$ ^[90] 要稍小. 因为泵浦光和再泵浦光光强已经足够强, 这主要是存在暗态造成的.

5 极性分子的激光冷却及囚禁

在证明了分子能够与光持续地发生相互作用之后, 一个自然而然的想法就是做激光冷却. 目前我们正致力于实现 BaF 分子的激光冷却, 仍然有一系列的问题需要解决. 这里, 我们结合国际上的

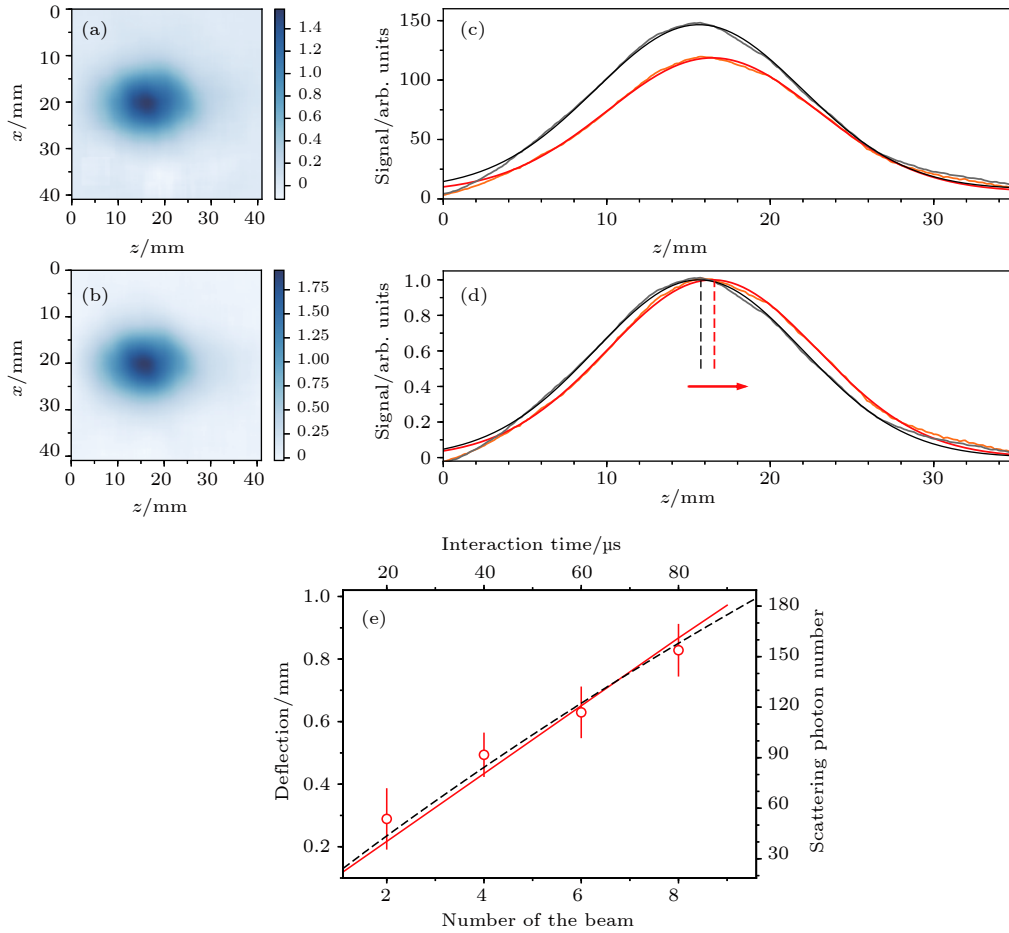


图 4 分子束偏转^[98]. CCD 在 x - z 平面成像 (a) 和 (b) 分别对应在相互作用区域有偏转光和无偏转光时分子束的形状, (c) 中给出沿 x 方向分别对 (a) 和 (b) 做积分后得到信号. 黑色和红色实线分别为两个信号的高斯拟合. (d) 对 (c) 中的信号分别做归一化, 以清晰地展示偏转效果. (e) 偏转距离与偏转光束数量之间的关系, 相应地, 可以推出散射光子数与相互作用时间的关系. 红色实线为对测量结果的线性拟合. 黑色虚线为根据 4+25 能级速率方程模型计算得到的散射光子数与相互作用时间的关系

Fig. 4. Deflection of the BaF molecular beam with the quasi cycling transitions^[98]. Images are given on the x - z plane of the (a) Deflected and (b) unperturbed molecular beams, respectively. The x direction reflects the width of the probe laser beam, while the z direction gives the transverse profile of the molecular beam. (c) integrated signal of the images in (a) and (b) along the x axis. The black and red lines are Gaussian fits to the unperturbed (light gray) and deflected (light orange) signal, which gives the revival rate of 80%. (d) normalized plot of the signals in (c) to clearly show the deflection effect. (e) deflection distance as a function of the number of the deflection beam, yielding the dependence of the scattering photon number on the interaction time. The red solid line is a linear fit to the measured data, illustrating that the photon scattered linearly increases with the interaction time. The black dashed line is the numerical prediction of the scattering from the 4+25 MLRE model with the switching scheme.

相关进展对后续实验过程做一个概述, 包括分子束的横向压缩、激光减速以及磁光阱的实现、磁阱光阱囚禁等.

5.1 分子束的横向冷却

分子束的横向压缩实验, 包括多普勒冷却、亚多普勒冷却以及二维磁光阱, 已经在多种分子中开展, 诸如 SrF^[57]、YO^[67]、CaF^[100]、SrOH^[77]、YbF^[73]. 首先来看多普勒冷却, 以耶鲁大学 DeMille 小组的 SrF 分子为例. 当冷却光失谐为 -1.5Γ , 即红失谐时, 分子束横向宽度被压缩, 即部分处于某一速

度阈值以下的分子被冷却; 而当失谐变为 $+1.5\Gamma$ 时, 分子束在横向则被加热, 即展宽. 这是多普勒效应的必然结果, 与原子中的结果相似. 这里的失谐是相对于最优的边带调制点的偏移量, 相应的 4 个边带 (如图 3(b)) 的失谐量并不等于这个值. 而且, 由于四个超精细能级同时与激光相互作用, 当对激光做小范围的扫频时, 4 个边带相应于各个能级而言红失谐和蓝失谐会交替出现, 这样从平均的结果来看, 就是冷却和加热交替出现, 实验也证明了这一点. 另外, 实验中采用添加一个与光的偏振方向有一夹角的静态磁场来混合磁子能级暗态, 结果显示

在较大范围内 (2–8 G) 均有明显的冷却效果, 这一点与 BaF 不同, 我们认为与 $A^2\Gamma_{1/2}$ 态的线宽 Γ 有关. 较大的线宽允许在较大的塞曼频移下仍然存在冷却效应.

亚多普勒冷却则参考最新的帝国理工大学 YbF 分子的实验结果 [73]. 类似于原子的亚多普勒冷却机制, 实验中选取的冷却激光的偏振为 $\text{lin}\phi$ lin, 即两束对射的偏振方向夹角为 ϕ 的线偏振光, 在分子束横向方向产生偏振梯度. 这里仍然使用磁场来混合暗态, 但实验发现小磁场强度 (< 2 G) 下冷却效果更好, 这与 SrF [57] 的结论相同. 亚多普勒冷却要求激光的失谐为蓝失谐, 而红失谐会导致加热, 这与多普勒冷却恰好相反, YbF 的实验也证明这一点. 同时, 实验中发现冷却效应在任意的 ϕ 角下均存在, 而最强的位置在 $\phi = \pi/4$ 处. 在 $\phi = 0$ 时仍然观察到冷却效应主要是由于磁场的存在, 而在 $\phi = \pi/4$ 处最强是由于分子中主要是第二类跃迁, 这一点也在理论上被证明. 值得一提的是, 亚多普勒冷却的俘获速度通常 < 1 m/s, 比多普勒冷却小很多.

磁光阱横向压缩实验在 JILA 的 YO 分子 [67] 和哈佛大学 CaF 分子 [100] 中得到证明. 二者的实验方案也类似, 均采用快速切换冷却光的偏振和梯度磁场方向来抑制暗态的出现. 在保持光的偏振切换和磁场方向切换同步的情况下, 红失谐冷却, 而蓝失谐加热. 而且, 实验证明 [67–101], 由于磁场梯度引入了回复力, 磁光阱方案比多普勒冷却的压缩效果更好.

5.2 激光减速

为了实现三维磁光阱的装载, 对分子束进行纵向的激光减速很有必要. 目前来说, 激光减速主要有两类方案, “白光”减速和频率啁啾. “白光”减速在 YO 分子实验中得以应用 [69], 即在调制减速激光产生覆盖超精细能级的四个边带的基础上, 再添加 10 MHz 的调制边带. 这样激光的频谱与一定速度区间的分子的多普勒频移相对应, 即在与分子束作用时同时与不同速度的分子共振, 这是“白光”减速的基本思想. 后来, 哈佛大学 CaF 分子的减速实验也采用了这种方法 [102].

频率啁啾方案应用在早期的 SrF 分子 [101] 和 CaF 分子 [89] 的减速实验中, 后来不断得到改进 [99]. 啁啾的原理也很简单, 即在分子从缓冲腔出射传播

到三维磁光阱捕获区域的这段时间内, 不断改变减速激光的频率, 使得其失谐量能够补偿分子纵向运动的多普勒频移. 这种方案的难点在于如何保证分子束纵向速度变化区间与激光扫频的速度最优地匹配. 在 SrF 的实验中 [101], 初始出射的分子束纵向速度分布在 175 m/s 附近, 选取初始失谐为 -260 MHz, 最终在三维磁光阱位置处探测到约 6% 的分子处于 50 m/s 速度之下. 应该说, 这个减速效果不算高效.

后来的 CaF 分子实验 [99] 研究了不同线性扫频速度下分子最终速度的分布, 在最优的控制条件下实现了约 10^6 个分子处于 15 m/s 附近. 需要特别指出的是, CaF 实验中并非采用过去的方案, 即直接用冷却光 $X^2\Sigma \leftrightarrow A^2\Pi_{1/2}$ 来做减速光, 而是用 $X^2\Sigma(N=1) \leftrightarrow B^2\Sigma(N=0)$ 跃迁. 这样做有两方面的考虑, 一是在再泵浦光不变的情况下散射率会提高两倍, 另一个是减速光的波长更短, 光子反冲动量更大; 如此光与分子相互作用达到的减速效率会提高 5 倍左右. 事实也证明, 这种频率啁啾方案比“白光”减速效果要好很多, 不仅可以更精确地控制最终的速度分布, 而且在俘获速度附近的分子数也更多.

5.3 磁光阱、囚禁与态纯化

分子的第一个三维磁光阱 (3D MOT) 于 2014 年在耶鲁大学 DeMille 小组的 SrF 分子中实现 [68]. 由于分子冷却采用的跃迁多数为第二类跃迁, 这里实现的第二类磁光阱的囚禁力比通常的第一类磁光阱小两到三个量级, 囚禁分子数仅 ~ 300 . 而且温度为约 2.5 mK, 远远高于多普勒冷却极限温度 (对于 SrF, 约 $160 \mu\text{K}$). 实验测量的磁光阱寿命约 56(4) ms, 也比一般的原子磁光阱小很多. 一个有趣的问题是第二类跃迁中产生回复力的光的偏振选择. 直观上看, 由于上能级 $A^2\Pi_{1/2}(v=0, J=1/2)$ 各个子能级接近简并, 即 g 因子很小 (对于 SrF, 约 -0.088), 光的各个边带的偏振应取决于下能级各个超精细子能级的 g 因子符号. 然而, Tarbutt 的理论分析 [103] 表明, 第二类跃迁 MOT 光的偏振选择仍然由上能级 g 因子决定, 因此, SrF 实验 [68] 中光的偏振应该做一个修正. DeMille 小组据此改进了三维磁光阱实验 [104], 获得了更多的分子数和更长寿命的 MOT.

接着, CaF 分子的 3D MOT 分别在帝国理工

大学 Hinds 小组^[105]和哈佛大学 Doyle 小组^[76]实现. Hinds 小组借助双色光囚禁的思想^[106]实现的是直流磁光阱 (dc-MOT), 俘获速度约 11 m/s, 分子数达到 2×10^4 , 比之前的 SrF 分子高了近 2 个量级, 温度也更低 (约 730 μK). 而 Doyle 小组则利用快速偏振切换的方法实现交流磁光阱 (RF-MOT), 囚禁的分子数达到 $1.0(3) \times 10^5$, 温度达到 340 μK , 接近多普勒极限. 另外, SrF 分子和 YO 分子的 3D RF-MOT 也分别在 DeMille 小组^[107]和叶军小组^[75]实现. 总的来说, RF-MOT 相比 dc-MOT 具有更长的寿命和更低的温度. 为了获得更低的温度, 即低于多普勒极限, Hinds 小组将亚多普勒冷却技术应用到 CaF 分子中, 得到了 $\sim 50 \mu\text{K}$ 的光学黏团^[70]. 实验步骤简单来说包括两步. 首先获得 CaF 分子的 dc-MOT, 并不断降低 MOT 光的强度以获得更低的温度, 这是由于亚多普勒冷却的速度范围较小. 然后, 改变 MOT 光的偏振, 失谐变为蓝失谐, 并撤去磁场梯度, 实现亚多普勒冷却.

为了实现分子各个自由度更加精密的操控, 将分子装载到磁阱或光阱中十分必要. 而且, 由于 MOT 中分子处于 $N = 1$ 转动态下 4 个不同的超精细子能级, 而我们将分子制备到单一内态上, 这对实现分子 BEC 而言非常重要. 近期, CaF 分子和 SrF 分子的态纯化和磁阱囚禁分别在 Hinds 小组^[71]和 DeMille 小组^[74]开展. 态纯化通过光泵浦实现, 即通过调节 EOM 的调制深度来控制各个边带的强度将处于其他能级的分子转移到某个子能级上, 进而通过微波耦合将分子转移到任意的子能级. 对于任意的弱场寻找态, 很容易囚禁在磁四极阱中, 这里不做讨论. 最终, Hinds 小组实现了 5000 个分子的磁阱囚禁, 寿命为 2 s, 温度约 70(8) μK . 另一方面, Doyle 小组在不久前也实现了 CaF 分子的光阱囚禁^[72], 相空间密度达到 2×10^{-9} , 这为实现分子的量子简并奠定了基础.

实现了分子的囚禁后, 接下来的实验方向就是协同冷却. 目前来看, 囚禁的分子数尚且能够满足协同实验要求, 如何选择合适的原子来进行有效的碰撞是一个大问题. 根据多通道散射理论, 有一些小组开展了原子-分子协同冷却的理论研究, 如 Li-CaF(Rb-CaF)^[108]和 Rb-SrF 体系^[109], 试图为实验提供一些指导. 但就目前来说, 哪种原子好并无定论, 仍需要未来实验的尝试和检验.

6 总结与展望

分子的直接激光冷却发展了将近十年的时间, 不断取得突破, 方兴未艾. 随着技术的进步, 极性分子的磁光阱, 磁阱, 光阱相继实现. 未来几年, 进一步将冷分子向超冷区域推进, 利用窄线宽激光冷却, 亚多普勒冷却, 或者利用超冷原子来协同冷却分子都是可行的方案. 科研人员也正朝这些方向努力, 相信不久, 通过激光冷却这个方案最终获得分子的量子简并可以实现. 由于分子的特殊性, 将激光冷却拓展到新的分子仍然是一个不小的挑战. 我们初步证明了将激光冷却技术应用到新的 BaF 分子的可行性. 当然进一步扩展到其他分子, 甚至原子数更多的分子还需要更多的实验验证. 也希望有更多的研究团队加入这个领域, 推动这个方向的发展.

参考文献

- [1] Liu L, Lu D S, Chen W B, Li T, Qu Q Z, Wang B, Li L, Ren W, Dong Z R, Zhao J B, Xia W B, Zhao X, Ji J W, Ye M F, Sun Y G, Yao Y Y, Song D, Liang Z G, Hu S J, Yu D H, Hou X, Shi W, Zang H G, Xiang J F, Peng X K, Wang Y Z 2018 *Nat. Commun.* **9** 2760
- [2] Ludlow A D, Boyd M M, Ye J, Peik E, Schmidt P O 2015 *Rev. Mod. Phys.* **87** 637
- [3] Parker R H, Yu C, Zhong W, Estey B, Muller H 2018 *Science* **360** 191
- [4] Moses S A, Covey J P, Miccnikowski M T, Yan B, Gadway B, Ye J, Jin D S 2015 *Science* **350** 659
- [5] Anderson M H, Ensher J R, Matthews M R, Wieman C E, Cornell E A 1995 *Science* **269** 198
- [6] 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
- [7] Bradley C C, Sackett C A, Tollett J J, Hulet R G 1995 *Phys. Rev. Lett.* **75** 1687
- [8] Griesmaier A, Werner J, Hensler S, Stuhler J, Pfau T 2005 *Phys. Rev. Lett.* **94** 160401
- [9] Lahaye T, Koch T, Fröhlich B, Fattori M, Metz J, Griesmaier A, Giovanazzi S, Pfau T 2007 *Nature* **448** 672
- [10] Lu M, Burdick N Q, Youn S H, Lev B L 2011 *Phys. Rev. Lett.* **107** 190401
- [11] Lu M, Burdick N Q, Lev B L 2012 *Phys. Rev. Lett.* **108** 215301
- [12] Aikawa K, Frisch A, Mark M, Baier S, Rietzler A, Grimm R, Ferlaino F 2012 *Phys. Rev. Lett.* **108** 210401
- [13] Zelevinsky T, Kotochigova S, Ye J 2008 *Phys. Rev. Lett.* **100** 043201
- [14] DeMille D, Cahn S B, Murphree D, Rahmlow D A, Kozlov M G 2008 *Phys. Rev. Lett.* **100** 023003
- [15] Kotochigova S, Zelevinsky T, Ye J 2009 *Phys. Rev. A* **79** 012504

- [16] Chin C, Flambaum V V, Kozlov M G 2009 *New J. Phys.* **11** 055048
- [17] Baranov M A, Dalmonte M, Pupillo G, Zoller P 2012 *Chem. Rev.* **112** 5012
- [18] Moses S A, Covey J P, Miccnikowski M T, Jin D S, Ye J 2017 *Nat. Phys.* **13** 13
- [19] Bohn J L, Rey A M, Ye J 2017 *Science* **357** 1002
- [20] Murphy M T, Flambaum V V, Muller S, Henkel C 2008 *Science* **320** 1611
- [21] Hudson J J, Sauer B E, Tarbutt M R, Hinds E A 2002 *Phys. Rev. Lett.* **89** 023003
- [22] Bickman S R 2007 Ph.D. Dissertation (New Heiven: Yale University)
- [23] Baron J, Campbell W C, DeMille D, Doyle J M, Gabrielse G, Gurevich Y V, Hess P W, Hutzler N R, Kirilov E, Kozryryev 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
- [24] 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
- [25] Altuntas E, Ammon J, Cahn S B, DeMille D 2018 *Phys. Rev. Lett.* **120** 142501
- [26] Cooper N R 2004 *Phys. Rev. Lett.* **92** 220405
- [27] DeMille D 2002 *Phys. Rev. Lett.* **88** 067901
- [28] Croft J F E 2012 Ph.D. Dissertation (Durham: Durham University)
- [29] Andre A, DeMille D, Doyle J M, Lukin M D, Maxwell S E, Rabl P, Schoelkopf R J, Zoller P 2006 *Nat. Phys.* **2** 636
- [30] Micheli A, Brennen G K, Zoller P 2006 *Nat. Phys.* **2** 341
- [31] Krems R V 2008 *Phys. Chem. Chem. Phys.* **10** 4079
- [32] Carr L D, DeMille D, Krems R V, Ye J 2009 *New J. Phys.* **11** 055049
- [33] Ospelkaus S, Ni K K, Wang D, de Miranda M H G, Neyenhuis B, Quémener G, Julienne P S, Bohn J L, Jin D S, Ye J 2010 *Science* **327** 853
- [34] Rui J, Yang H, Liu L, Zhang D C, Liu Y X, Nan J, Chen Y A, Zhao B, Pan J W 2017 *Nat. Phys.* **13** 699
- [35] Ye X, Guo M, González-Martínez M L, Quémener G, Wang D 2018 *Sci. Adv.* **4** eaaq0083
- [36] Ni K K, Ospelkaus S, de Miranda M H G, Pe'er A, Neyenhuis B, Zirbel J J, Kotochigova S, Julienne P S, Jin D S, Ye J 2008 *Science* **322** 231
- [37] Zirbel J J, Ni K K, Ospelkaus S, D'Incao J P, Wieman C E, Ye J, Jin D S 2008 *Phys. Rev. Lett.* **100** 143201
- [38] Molony P K, Gregory P D, Ji Z, Lu B, Köppinger M P, Le Sueur C R, Blackley C L, Hutson J M, Cornish S L 2014 *Phys. Rev. Lett.* **113** 255301
- [39] Takekoshi T, Reichsöllner L, Schindewolf A, Hutson J M, Le Sueur C R, Dulieu O, Ferlaino F, Grimm R, Nägerl H C 2014 *Phys. Rev. Lett.* **113** 205301
- [40] Park J W, Will S A, Zwierlein M W 2015 *Phys. Rev. Lett.* **114** 205302
- [41] Wang F, He X, Li X, Zhu B, Chen J, Wang D 2015 *New J. Phys.* **17** 035003
- [42] 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
- [43] Marco L D, Valtolina G, Matsuda K, Tobias W G, Covey J P, Ye J 2018 *Arxiv:1808.00028v1*
- [44] Żuchowski P S, Hutson J M 2010 *Phys. Rev. A* **81** 060703
- [45] Nemitz N 2008 Ph.D. Dissertation (Heinrich-Heine Universität Dusseldorf)
- [46] Tassy S, Nemitz N, Baumer F, Höhl C, Batär A, Görlitz A 2010 *J. Phys. B: At., Mol. Opt. Phys.* **43** 205309
- [47] Vaidya V D, Tiamsuphat J, Rolston S L, Porto J V 2015 *Phys. Rev. A* **92** 043604
- [48] Hansen A H, Khramov A, Dowd W H, Jamison A O, Ivanov V V, Gupta S 2011 *Phys. Rev. A* **84** 011606
- [49] Hansen A H, Khramov A Y, Dowd W H, Jamison A O, Plotkin-Swing B, Roy R J, Gupta S 2013 *Phys. Rev. A* **87** 013615
- [50] Ivanov V V, Khramov A, Hansen A H, Dowd W H, Münchow F, Jamison A O, Gupta S 2011 *Phys. Rev. Lett.* **106** 153201
- [51] Hara H, Takasu Y, Yamaoka Y, Doyle J M, Takahashi Y 2011 *Phys. Rev. Lett.* **106** 205304
- [52] Khramov A, Hansen A, Dowd W, Roy R J, Makrides C, Petrov A, Kotochigova S, Gupta S 2014 *Phys. Rev. Lett.* **112** 033201
- [53] Pasquiou B, Bayerle A, Tzanova S M, Stellmer S, Szczepkowski J, Parigger M, Grimm R, Schreck F 2013 *Phys. Rev. A* **88** 023601
- [54] Kemp S L, Butler K L, Freytag R, Hopkins S A, Hinds E A, Tarbutt M R, Cornish S L 2016 *Rev. Sci. Instrum.* **87** 023105
- [55] Barbe V, Ciamei A, Pasquiou B, Reichsöllner L, Schreck F, Zuchowski P S, Hutson J M 2018 *Nat. Phys.* s41567 – 018–0169–x
- [56] Bochinski J R, Hudson E R, Lewandowski H J, Meijer G, Ye J 2003 *Phys. Rev. Lett.* **91** 243001
- [57] Shuman E S, Barry J F, DeMille D 2010 *Nature* **467** 820
- [58] Shuman E S, Barry J F, Glenn D R, DeMille D 2009 *Phys. Rev. Lett.* **103** 223001
- [59] Tarbutt M R, Bethlem H L, Hudson J J, Ryabov V L, Ryzhov V A, Sauer B E, Meijer G, Hinds E A 2004 *Phys. Rev. Lett.* **92** 173002
- [60] Hudson E R, Ticknor C, Sawyer B C, Taatjes C A, Lewandowski H J, Bochinski J R, Bohn J L, Ye J 2006 *Phys. Rev. A* **73** 063404
- [61] van de Meerakker S Y T, Bethlem H L, Meijer G 2008 *Nat Phys* **4** 595
- [62] Skomorowski W, Pawłowski F, Korona T, Moszynski R, Żuchowski P S, Hutson J M 2011 *J. Chem. Phys.* **134** 114109
- [63] Fulton R, Bishop A I, Shneider M N, Barker P F 2006 *Nat. Phys.* **2** 465
- [64] Zeppenfeld M, Motsch M, Pinkse P W H, Rempe G 2009 *Phys. Rev. A* **80** 041401
- [65] Prehn A, Ibrügger M, Glöckner R, Rempe G, Zeppenfeld M 2016 *Phys. Rev. Lett.* **116** 063005
- [66] Di Rosa M D 2004 *Euro. Phys. J. D: At. Mol. Opt. Plas. Phys.* **31** 395
- [67] Hummon M T, Yeo M, Stuhl B K, Collopy A L, Xia Y, Ye J 2013 *Phys. Rev. Lett.* **110** 143001
- [68] Barry J F, McCarron D J, Norrgard E B, Steinecker M H, DeMille D 2014 *Nature* **512** 286
- [69] Yeo M, Hummon M T, Collopy A L, Yan B, Hemmerling B, Chae E, Doyle J M, Ye J 2015 *Phys. Rev. Lett.* **114** 223003
- [70] Truppe S, Williams H J, Hambach M, Caldwell L, Fitch N J, Hinds E A, Sauer B E, Tarbutt M R 2017 *Nat. Phys.* **13** 1173
- [71] Williams H J, Caldwell L, Fitch N J, Truppe S, Rodewald J, Hinds E A, Sauer B E, Tarbutt M R 2018 *Phys. Rev. Lett.* **120** 163201
- [72] Anderegg L, Augenbraun B L, Bao Y, Burchesky S, Cheuk L W, Ketterle W, Doyle J M 2018 *Nat. Phys.*

- s41567-018-0191-z
- [73] Lim J, Almond J R, Trigatzis M A, Devlin J A, Fitch N J, Sauer B E, Tarbutt M R, Hinds E A 2018 *Phys. Rev. Lett.* **120** 123201
- [74] McCarron D J, Steinecker M H, Zhu Y, DeMille D 2018 *Phys. Rev. Lett.* **121** 013202
- [75] Collopy A L, Ding S, Wu Y, Finneran I A, Anderegg L, Augenbraun B L, Doyle J M, Ye J 2018 *Phys. Rev. Lett.* **121** 213201
- [76] Anderegg L, Augenbraun B L, Chae E, Hemmerling B, Hutzler N R, Ravi A, Collopy A, Ye J, Ketterle W, Doyle J M 2017 *Phys. Rev. Lett.* **119** 103201
- [77] Kozryyev I, Baum L, Matsuda K, Augenbraun B L, Anderegg L, Sedlack A P, Doyle J M 2017 *Phys. Rev. Lett.* **118** 173201
- [78] Iwata G Z, McNally R L, Zelevinsky T 2017 *Phys. Rev. A* **96** 022509
- [79] Xu L, Yin Y, Wei B, Xia Y, Yin J 2016 *Phys. Rev. A* **93** 013408
- [80] Hutzler N R, Lu H I, Doyle J M 2012 *Chem. Rev.* **112** 4803
- [81] Yin J P, Xia Y, Deng L Z, Li X J 2018 *Physics* **46** 376 (in Chinese) [印建平, 夏勇, 邓联忠, 李兴佳 2018 物理 **46** 376]
- [82] Hou S Y, Yin Y L, Yin J P, 2018 *Physics* **46** 446 (in Chinese) [侯顺永, 尹亚玲, 印建平 2018 物理 **46** 446]
- [83] Xia Y, Wang H L, Xu L, Yin J P 2018 *Physics* **47** 24 (in Chinese) [夏勇, 汪海玲, 许亮, 印建平 2018 物理 **47** 24]
- [84] Deng L Z, Xia Y, Hou S Y, Yin J P 2018 *Physics* **47** 84 (in Chinese) [邓联忠, 夏勇, 侯顺永, 印建平 2018 物理 **47** 84]
- [85] Wu J Z, Ma J, Jia S T 2018 *Physics* **47** 162 (in Chinese) [武奇洲, 马杰, 贾锁堂 2018 物理 **47** 162]
- [86] Kozryyev I, Baum L, Matsuda K, Olson P, Hemmerling B, Doyle J M 2015 *New J. Phys.* **17** 045003
- [87] Bulleid N E, Skoff S M, Hendricks R J, Sauer B E, Hinds E A, Tarbutt M R 2013 *Phys. Chem. Chem. Phys.* **15** 12299
- [88] Skoff S M, Hendricks R J, Sinclair C D J, Hudson J J, Segal D M, Sauer B E, Hinds E A, Tarbutt M R 2011 *Phys. Rev. A* **83** 023418
- [89] 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
- [90] Truppe S, Hambach M, Skoff S M, Bulleid N E, Bumby J S, Hendricks R J, Hinds E A, Sauer B E, Tarbutt M R 2018 *J. Mod. Opt.* **65** 648
- [91] Bu W, Chen T, Lv G, Yan B 2017 *Phys. Rev. A* **95** 032701
- [92] Bu W, Liu M, Xie D, Yan B 2016 *Rev. Sci. Instrum.* **87** 096102
- [93] Wang D, Bu W, Xie D, Chen T, Yan B 2018 *J. Opt. Soc. Am. B* **35** 1658
- [94] Patterson D, Doyle J M 2007 *J. Chem. Phys.* **126** 154307
- [95] Campbell W C, Doyle J M 2009 *Cooling, Trap Loading, and Beam Production Using a Cryogenic Helium Buffer Gas* (CRC Press, Boca Raton)
- [96] Chen T, Bu W, Yan B 2016 *Phys. Rev. A* **94** 063415
- [97] Mulliken R S, Christy A 1931 *Phys. Rev.* **38** 87
- [98] Chen T, Bu W, Yan B 2017 *Phys. Rev. A* **96** 053401
- [99] Truppe S, Williams H J, Fitch N J, Hambach M, Wall T E, Hinds E A, Sauer B E, Tarbutt M R 2017 *New J. Phys.* **19** 022001
- [100] Chae E, Anderegg L, Augenbraun B L, Ravi A, Hemmerling B, Hutzler N R, Collopy A L, Ye J, Ketterle W, Doyle J M 2017 *New J. Phys.* **19** 033035
- [101] Barry J F, Shuman E S, Norrgard E B, DeMille D 2012 *Phys. Rev. Lett.* **108** 103002
- [102] Hemmerling B, et al. 2016 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **49** 174001
- [103] Tarbutt M R 2015 *New J. Phys.* **17** 015007
- [104] McCarron D J, Norrgard E B, Steinecker M H, DeMille D 2015 *New J. Phys.* **17** 035014
- [105] Williams H J, Truppe S, Hambach M, Caldwell L, Fitch N J, Hinds E A, Sauer B E, Tarbutt M R 2017 *New J. Phys.* **19** 113035
- [106] Tarbutt M R, Steimle T C 2015 *Phys. Rev. A* **92** 053401
- [107] Norrgard E B, McCarron D J, Steinecker M H, Tarbutt M R, DeMille D 2016 *Phys. Rev. Lett.* **116** 063004
- [108] Lim J, Frye M D, Hutson J M, Tarbutt M R 2015 *Phys. Rev. A* **92** 053419
- [109] Morita M, Kosicki M B, Zuchowski P S, Tschersbul T V 2018 *Phys. Rev. A* **98** 042702

SPECIAL TOPIC—Cold atoms and molecules

Laser cooling and trapping of polar molecules*

Chen Tao Yan Bo[†]

(*Department of Physics, State Key Laboratory of Modern Optical Instrumentation, Zhejiang University, Hangzhou 310027, China*)

(Received 5 September 2018; revised manuscript received 7 January 2019)

Abstract

Different from atoms, molecules have unique properties, and play an important role in the research of atomic, molecular and optical physics. Cold molecules have important applications in science and have been studied for more than 20 years. But traditional methods, such as the Stark decelerator, have hit a bottleneck: it is hard to increase the phase space density of molecules. Extending the direct laser-cooling technique to new molecular species has recently been a hot topic and also a big challenge. In this review paper, on one hand, we make a brief review to recent progresses on the direct laser cooling of polar molecules. On the other hand, a demonstration on the feasibility of laser cooling BaF molecule has been experimentally illustrated, including the analysis on the molecular energy levels, measurements of the high-resolution spectroscopy, efficient pre-cooling and state preparation via buffer-gas cooling and detailed investigations on the molecule-light interactions. All these results not only pave the way for future laser-cooling and -trapping experiments, but also serve as a reference for the laser-cooling explorations on new molecular species.

Keywords: laser cooling, cold molecule, buffer-gas cooling, molecule-light interaction

PACS: 37.10.De, 37.10.Mn

DOI: [10.7498/aps.68.20181655](https://doi.org/10.7498/aps.68.20181655)

* Project supported by the National Key R&D Program of China (Grant No. 2018YFA0307200), the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 91636104), the Natural Science Foundation of Zhejiang Province, China (Grant No. LZ18A040001), and the Fundamental Research Funds for the Central Universities, China.

[†] Corresponding author. E-mail: yanbohang@zju.edu.cn