

超冷铯 $(60D_{5/2})_2$ Rydberg 分子的双色光缔合光谱*

白景旭¹⁾ 韩小萱¹⁾ 白素英¹⁾ 焦月春¹⁾²⁾ 赵建明^{1)2)†} 贾锁堂¹⁾²⁾

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

2)(山西大学极端光学协同创新中心, 太原 030006)

(2018年9月21日收到; 2018年10月21日收到修改稿)

本文主要从理论和实验上研究超冷铯 $(60D_{5/2})_2$ Rydberg 分子的双色光缔合光谱. 数值计算了铯 $60D_{5/2}$ Rydberg 原子对态的长程电多极相互作用和 $(60D_{5/2})_2$ Rydberg 分子的绝热势能曲线, 获得了 $(60D_{5/2})_2$ Rydberg 分子的势阱深度和平衡间距. 实验上利用双色光缔合超冷铯原子的方法制备了 $(60D_{5/2})_2$ Rydberg 分子. 其中, 第一色激光 (pulse-A) 双光子共振激发种子 Rydberg 原子 A; 第二色激光 (pulse-B, 失谐于分子的束缚能) 共振激发第二个 Rydberg 原子 B, 原子 A 与 B 由分子势阱束缚形成超冷 $(60D_{5/2})_2$ Rydberg 分子. 由脉冲场电离探测技术获得 Rydberg 分子的光缔合光谱, 测量的 Rydberg 分子的势阱深度与理论计算结果相一致.

关键词: 超冷 Rydberg 分子, 双色光缔合, 绝热势能曲线

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

DOI: 10.7498/aps.67.20181743

1 引言

Rydberg 原子是主量子数 n 很大的高激发态原子, 具有一些特殊的物理性质^[1], 如原子半径大(约为 n^2)、能级间隔小(约为 n^{-3})和极化率大(约为 n^7)等. 这些特性使 Rydberg 原子很容易受到外场的影响^[2,3], 可实现基于 Rydberg 原子的外加电磁场的精密测量^[4-6]. 此外, Rydberg 原子间具有很强的长程相互作用(约为 n^{11}), 这种强相互作用使相邻原子的能级发生频移, 阻止原子的进一步激发而形成激发阻塞效应^[7,8], 对基于原子的量子逻辑门^[9,10]和非经典光源^[11]等的研究具有重要意义. 近年来的研究表明, Rydberg 原子间的相互作用还可以形成束缚势阱进而束缚相邻的 Rydberg 原子

形成 Rydberg 分子^[12-15].

Rydberg 分子是指组成分子的一个或两个原子处于 Rydberg 态的分子, 根据束缚机制的不同分为 Rydberg-基态分子和 Rydberg-Rydberg 分子. Rydberg-基态分子的束缚机制是低能电子散射形成的赝势, 可吸引基态原子并将其束缚在 Rydberg 原子的周围形成长程 Rydberg-基态分子^[16-24]. Rydberg-基态分子包括 S-波散射形成的“三叶虫”型 Rydberg-基态分子^[17]和 P-波散射形成的“蝴蝶”型 Rydberg-基态分子^[18,19], 人们分别在实验中观察到基态原子与 nS 态^[20,21], nP 态^[22]和 nD 态^[23,24] Rydberg 原子形成的 Rydberg-基态分子. Rydberg-Rydberg 分子又叫 Rydberg 巨型分子(Rydberg macrodimer), 其束缚机制是 Rydberg

* 国家重点研发计划(批准号: 2017YFA0304203)、国家自然科学基金(批准号: 61475090, 61675123, 61775124, 11804202)、国家自然科学基金重点项目(批准号: 11434007, 61835007)、长江学者和创新团队发展计划(编号: RTIRT_17R70)和山西省“1331工程”重点学科建设计划资助的课题.

† 通信作者. E-mail: zhaojm@sxu.edu.cn

原子间的电多极相互作用形成的势阱. 关于 Rydberg 分子的研究可追溯到 2002 年, Boisseau 等^[12] 在理论研究 nP 态 Rydberg 原子对的相互作用时发现 nP 态 Rydberg 原子对的长程相互作用可形成束缚势阱, 首次预言了长程 Rydberg 分子的存在. 2009 年, Overstreet 等^[13] 在实验上首次观察到了 $(Cs)_2$ Rydberg 分子的时间飞行光谱 (time of flight, TOF). 文献^[14, 15] 在实验上观察到 $nSn'F$, $(nP)_2$ ($22 \leq n \leq 32$) 和 43P44S 态铯 Rydberg 分子的光缔合电离光谱. 相比于 Rydberg 原子, Rydberg 分子的束缚能小, 更容易受到外场的操控. 在微弱信号检测、量子气体的相关性测量^[13,25] 和真空起伏^[26,27] 等方面具有巨大的研究价值和潜在的应用前景.

本文主要从理论和实验上研究超冷铯 $(60D_{5/2})_2$ Rydberg 分子的双色光缔合光谱. 首先, 从理论上计算 $60D_{5/2}$ Rydberg 原子对态的电多极相互作用和绝热势能曲线, 然后在实验上由双色光缔合方法制备 Rydberg 分子, 并由脉冲场电离法获得 $(60D_{5/2})_2$ Rydberg 分子的光缔合光谱及束缚能.

2 理论模型

考虑两个间距为 R 的 Rydberg 原子 A 和 B, 为简化计算, 令原子 A 处于坐标原点, 原子 B 位于 Z 轴. 并假设 Z 轴, 即原子之间的轴矢量 R ^[28] 的方向为量子化轴的方向, 如图 1 (a) 所示. 考虑 Rydberg 原子间的电多极相互作用, 原子对的相互作用哈密顿量表示为

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{V}_{\text{int}}, \quad (1)$$

其中 \hat{V}_{int} 表示 Rydberg 原子对之间的相互作用, $\hat{H}_0 = \hat{H}_A + \hat{H}_B$ 表示无微扰时 Rydberg 态的哈密顿量. 假设原子间距离大于 Le Roy 半径^[29], Le Roy 半径定义为:

$$R_{\text{LR}} = 2(\sqrt{\langle n_A l_A j_A | \hat{r}^2 | n_A l_A j_A \rangle} + \sqrt{\langle n_B l_B j_B | \hat{r}^2 | n_B l_B j_B \rangle}). \quad (2)$$

该假设确保电子波函数不重叠, 计算中可忽略交换相互作用和电荷重叠相互作用的影响. 这样, 可以将 Rydberg 电子视为可区分的粒子. Rydberg 原子对的相互作用 \hat{V}_{int} 表示为^[13,30-32]:

$$\hat{V}_{\text{int}} = \sum_{q=2}^{q_{\text{max}}} \frac{1}{R^{q+1}} \sum_{\substack{L_A=1 \\ L_B=q-L_A}}^{q_{\text{max}}-1} \sum_{\Omega=-L_<}^{L_<} f_{AB\Omega} \hat{Q}_A \hat{Q}_B, \quad (3)$$

$$\hat{Q}_A = \sqrt{\frac{4\pi}{2L_A+1}} \hat{r}_A^{L_A} Y_{L_A}^{\Omega}(\hat{r}_A), \quad (4)$$

$$\hat{Q}_B = \sqrt{\frac{4\pi}{2L_B+1}} \hat{r}_B^{L_B} Y_{L_B}^{-\Omega}(\hat{r}_B), \quad (5)$$

$$f_{AB\Omega} = \frac{(-1)^{L_B} (L_A + L_B)!}{\sqrt{(L_A + \Omega)!(L_A - \Omega)!(L_B + \Omega)!(L_B - \Omega)!}}, \quad (6)$$

其中 L_A 和 L_B 分别表示 Rydberg 原子 A 和 B 的电多极相互作用的极次, q 为 L_A 和 L_B 之和; $Y_{L_A}^{\Omega}, Y_{L_B}^{-\Omega}$ 表示球谐函数; $L_{A(B)} = 1$ 表示电偶极矩, $L_{A(B)} = 2$ 表示电四极矩等; $L_<$ 取 L_A 和 L_B 的较小值; \hat{Q}_A 和 \hat{Q}_B 表示两个原子的电多极矩算符, 包含矩阵元和球谐函数, \hat{r}_A 和 \hat{r}_B 分别表示 Rydberg 电子在原子 A 和 B 中的径向矢量;

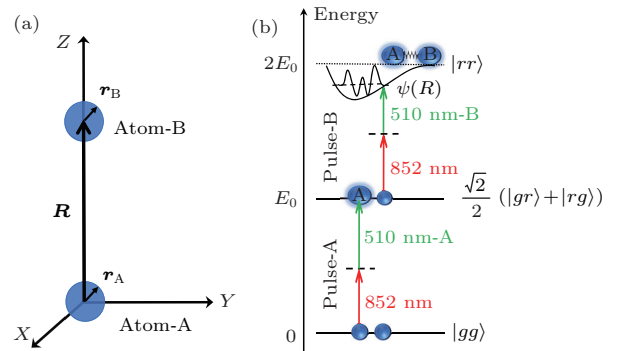


图 1 (a) 双原子模型, 原子 A 位于坐标原点, 原子 B 位于 Z 轴上距离 R 的位置, Z 轴为量子化轴方向, $r_{A(B)}$ 表示 Rydberg 电子在原子 A(B) 中的径向矢量; (b) 双色光缔合能级示意图, 第一色 (pulse-A) 共振激发种子 Rydberg 原子 A, 第二色 (pulse-B) 共振激发第二个 Rydberg 原子 B, 当 pulse-B 的失谐等于束缚能时, 原子 A 与 B 形成 Rydberg 分子, 第一色与第二色激光脉冲都由双光子激发 (852 nm + 510 nm) 实现, 其中 Pulse-B 中 510 nm 的激光频率相对于原子共振频率进行扫描

Fig. 1. (a) Two-atom model. Rydberg atoms A and B, separated by R , are placed on the z -axis, quantized axis, $r_{A(B)}$ is the relative position of the Rydberg electron in atoms A(B); (b) level diagram of a two-color photoassociation. The first-color (pulse-A) resonantly excites a seed Rydberg atom A, the second-color (pulse-B) is detuned and resonantly excites the second Rydberg atom B near to the atom A, such that A and B are bond to form a Rydberg-Rydberg molecule, Both pulses-A and -B are two-photon excitations (852 nm + 510 nm), the frequency of the 510 nm laser of the pulse-B is detuned relative to the atomic resonance.

因子 $f_{AB\Omega}$ 取决于 L_A , L_B 和计数指数 Ω . Rydberg 原子 A 和 B 中电子的磁量子数 m_{jA} 和 m_{jB} 以及总角动量 M 表示为

$$M = m_{jA} + m_{jB}. \quad (7)$$

考虑角对称性, 总角动量 M 守恒. 对于本文所研究的 $(60D_{5/2})_2$ Rydberg 分子, $M = 0, 1, 2, 3, 4, 5$ 表征不同的分子态. 对 (1) 式表示的哈密顿量进行对角化, 数值计算原子核间距为 R 时 Rydberg 原子对态的能量, 可获得 Rydberg 原子对的绝热势能曲线.

在进行势能曲线的计算前, 我们对基矢大小、相互作用极数对绝热势能曲线和势阱参数的影响做了详细的研究, 参见文献 [31, 33], 这里不再细述. 图 2 为数值计算的铯 $60D_{5/2}$ Rydberg 原子对 $M = 2$ 时的绝热势能曲线, 对应的电多极相互作用极数 $q_{\max} = 6$, 包括偶极-偶极、偶极-四极、四极-四极和偶极-八极相互作用, 量子数的参数范围满足: $(\text{Int}(n_{\text{eff}}) - \Delta) < n_{\text{eff}} < (\text{Int}(n_{\text{eff}}) + \Delta + 1)$, $\text{Int}(n_{\text{eff}})$ 表示有效主量子数 n_{eff} 的取整运算, Δ 为计算中所包含的主量子数的范围, 这里取 $\Delta = 3.1$, 单原子的轨道角动量量子数和磁量子数的最大值为 $l_{\max} = 5$ 和 $m_j = 5.5$, 对态原子能量的最大失谐量 energy defects 为 ± 30 GHz. 图中绿色圆点的面积正比于双色光缔合率. 双色光缔合率的计算超出了本文的研究范围, 这里不做讨论, 计算模型参见文献 [31].

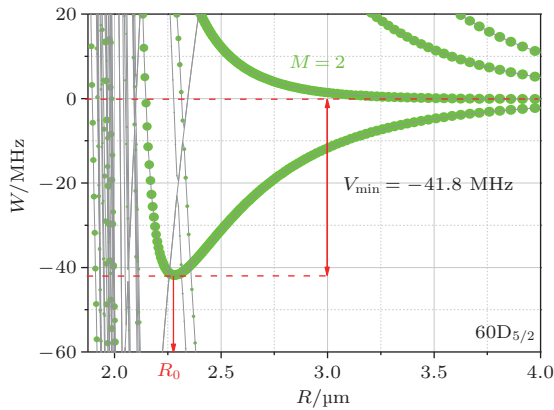


图2 数值计算的铯 $60D_{5/2}$ Rydberg 原子对态 $M = 2$ 时的绝热势能曲线. 绿色圆点的面积正比于双色光缔合率, 束缚势能曲线的势阱深度 $V_{\min} = -41.8$ MHz, 平衡核间距为 $R_0 = 2.28 \mu\text{m}$

Fig. 2. Calculated adiabatic potentials (grey lines) for cesium $60D_{5/2}$ Rydberg-atom pair with $M = 2$. Green circles are proportional to the excitation rate of the two-color photoassociation, corresponding potential depth $V_{\min} = -41.8$ MHz and binding length $R_0 = 2.28 \mu\text{m}$, respectively.

由图 2 可知, $60D_{5/2}$ Rydberg 原子对态的大部分绝热势能曲线表现为排斥势, 且具有很小的激发概率, 如图中的灰色曲线所示, 这些势能曲线对 Rydberg 分子的形成没有作用. 具有较大激发概率的四条势能曲线中只有一条表现为吸引势, 且存在势能最小值, 即分子束缚势阱, 可束缚相邻的 Rydberg 原子而形成 Rydberg 分子. 其他三条势能曲线则表示为排斥势, 不形成束缚势阱.

考虑图 2 中的束缚势阱, 测量的势阱深度为 41.8 MHz, 对应的平衡核间距为 $2.28 \mu\text{m}$ (原子密度为 $2.0 \times 10^{10} \text{cm}^{-3}$). 势阱深度和平衡核间距是描述分子的两个重要参数, 根据这些参数取值进行实验研究.

3 实验装置

图 1 (b) 所示为双色双光子共振光缔合制备 Rydberg 分子的能级示意图. pulse-A 和 pulse-B 都由 852 和 510 nm 激光组成的双光子激发脉冲. 第一色 (pulse-A) 共振激发基态原子到 $60D_{5/2}$ Rydberg 态, 形成种子原子 A; 第二色 (pulse-B) 的激发频率调谐到共振激发种子原子 A 附近的 B 到 Rydberg 态, 原子 A 和 B 由束缚势阱束缚形成 Rydberg 分子. 其中, pulse-A 和 pulse-B 中的 852 nm 分量具有相同的频率, pulse-A 中的 510 nm 分量具有固定的激光频率且与原子跃迁共振, 而 pulse-B 中的 510 nm 分量的激光频率可调谐, 且相对于 pulse-A 的最大失谐量大于等于 Rydberg-Rydberg 分子的束缚能. 这种双色双光子共振激发的方法具有双重共振特性, 因而具有较大的激发概率.

Rydberg 分子的实验在温度约为 $100 \mu\text{K}$, 原子密度约为 10^{10}cm^{-3} 的铯原子磁光阱 (magneto optical trap, MOT) 中完成, 参见图 3 (a) 的实验原理示意图. 波长为 852 nm 的激光 (Toptica DLpro, 线宽 100 kHz) 使用偏振光谱稳频技术 [34] 将激光频率锁定在 $|6S_{1/2}, F = 4\rangle \rightarrow |6P_{3/2}, F' = 5\rangle$ 的共振跃迁线, 波长为 510 nm 的激光 (Toptica TA SHG110, 线宽 1 MHz) 通过 Rydberg EIT 参考信号 [35] 将激光频率锁定到 $|6P_{3/2}, F' = 5\rangle \rightarrow |60D_J\rangle$ 的共振跃迁. Pulse-A 和 pulse-B 都由 852 和 510 nm 组成双光子激发, 对应的单光子失谐为 340 MHz. 由双通的声光调制器 (AOM) 实现 pulse-B 激发频率的扫描. 在磁光阱中心的激发区域放置三对电极, 用于

补偿杂散电场,同时施加斜坡脉冲电离电场(上升时间为3 μs)电离 Rydberg 原子和分子,用微通道板(microchannel plate, MCP)进行测量场电离的 Rydberg 原子或分子离子信号.

实验中,852 nm 的激发光功率为210 μW, MOT 中心处的光束高斯腰斑 ω₈₅₂ 为80 μm. 510 nm 的激光光束在 MOT 中心的腰斑 ω₅₁₀ 为40 μm. 图3(b)为实现双色光缔合制备 Rydberg 分子方案的时序图. 关断 MOT 光之后,依次打开 pulse-A 和 pulse-B. 510 nm 的激光功率和 pulse-A 持续时间的选择主要取决于所选的 Rydberg 能级与对应的跃迁矩阵元. 对于本文研究的 60D_{5/2} Rydberg 原子, pulse-A 的打开时间为0.2 μs, pulse-B 的打开时间为6.0 μs. 关断 pulse-B 后,施加脉冲电场电离 Rydberg 原子和分子并由 MCP 进行离子探测.

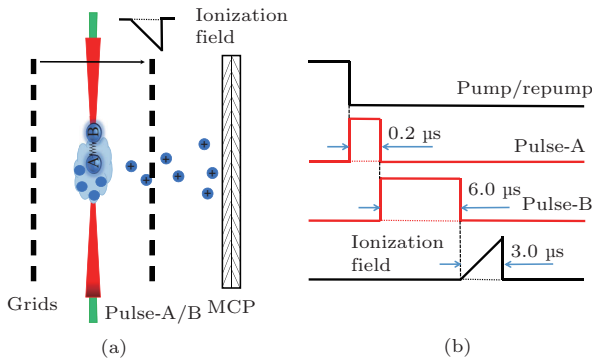


图3 (a) 实验示意图,852 和 510 nm 的激光反向传播,在 MOT 中心重合,由脉冲电场电离的 Rydberg 原子和分子离子被电场加速到 MCP 进行探测;(b) 实验时序图,关断 MOT 光 (pump/repump) 之后,依次打开 pulse-A 与 pulse-B 进行双色光缔合,最后由斜坡脉冲电场电离 Rydberg 原子和分子, MCP 进行光缔合光谱的探测

Fig. 3. (a) Schematic of the experiment, the 852 and 510 nm beams counter-propagate through the cold-atom cloud, the ions field ionized from Rydberg atoms and molecules are accelerated and move to the MCP detector; (b) timing sequence, after switching off the MOT beams, the pulse-A and pulse-B are switched on successively for the two-color photoassociation, and finally the ramped ionization-field pulse is switched on to ionize Rydberg atoms and molecules for the MCP detection.

4 实验结果与分析

图4所示为(60D_{5/2})₂ Rydberg 分子绝热势能曲线和双色光缔合光谱比较的结果. 图4(a)表示理论计算的60D_{5/2} Rydberg 原子对所有分子态

$M = 0, 1, 2, 3, 4, 5$ 的绝热势能曲线,所用的参数与图2相同,彩色圆点表示不同分子态 M 的光缔合率,圆点面积正比于双色激发概率.

图4(b)为实验测量的60D_{5/2} Rydberg 原子的激发光谱(红色曲线)和(60D_{5/2})₂ Rydberg 分子的双色光缔合光谱(黑色曲线). Rydberg 原子谱是只有 pulse-B 激发时形成的,由高斯拟合 Rydberg 原子谱可获得共振激发 Rydberg 原子的激光频率,作为 Rydberg 分子的离解限. 相比于 Rydberg 原子谱,在 pulse-B 激发之前打开 pulse-A 制备少量种子原子 A, pulse-B 失谐时仍可以激发原子,这是由于种子原子 A 使相邻原子的能级失谐导致的. 在 pulse-B 的频率调谐到红失谐约为27和35 MHz时分别观察到两个峰值,如图4(b)中的彩色三角形所示,对应于 $M = 4$ 和 $M = 3$ 的 Rydberg 分子信号. 如上所述,当 pulse-B 的失谐量等于分子势阱束缚能时,原子 A 和 B 束缚形成 Rydberg 分子. 对于 $M = 0, 1, 2$ 的势阱,其束缚势阱深度的间隔小于1 MHz,目前的实验条件无法将其清晰地分辨开来,如图4(b)中的黑色三角形所示.

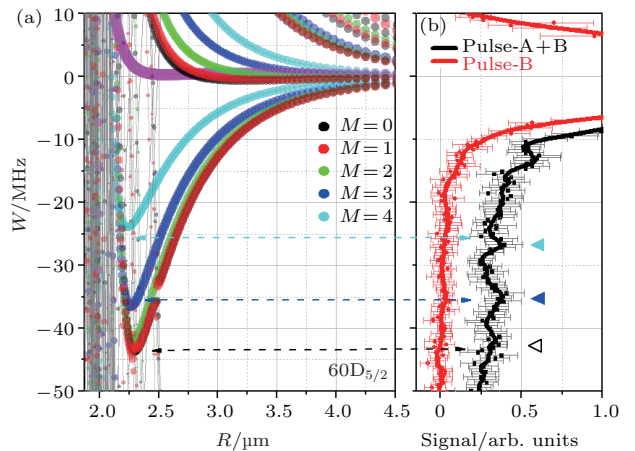


图4 (a) 理论计算的60D_{5/2} Rydberg 原子对态所有分子态 $M = 0, 1, 2, 3, 4, 5$ 的绝热势能曲线,彩色的圆点表示不同分子态 M 值的光缔合率,圆点的面积正比于激发概率;(b) 铯原子的激发光谱(红色,只有 pulse-B)和(60D_{5/2})₂ Rydberg 分子的双色光缔合光谱(黑色),三角形标记的峰为双色光缔合形成的 Rydberg 分子信号

Fig. 4. (a) Calculations of adiabatic potential energy curve of 60D_{5/2} Rydberg-atom pair for indicated M values, symbol areas are proportional to laser excitation rates, and symbol colors correspond to different M values; (b) single-color excitation spectra (red, only pulse-B) and two-color photoassociation spectra of (60D_{5/2})₂ Rydberg molecules (black), triangles denote the Rydberg-molecular signal produced by the two-color photoassociation method.

表1 实验测量的束缚能与计算的 $(60D_{5/2})_2$ Rydberg 分子的势阱深度和平衡核间距的比较
^aTheo. 的基矢大小与参考文献 [31] 相同

Table 1. Comparisons of the measurement and calculation of the binding energy and the equilibrium nuclear distance for $(60D_{5/2})_2$ Rydberg molecular. ^aTheo. means that the basis set is same as Ref. [31].

	M	0	1	2	3	4
Exp.	V_{\min}/MHz	-43.9 ± 5	-43.9 ± 5	-42.1 ± 5	-35.3 ± 5	-27.9 ± 5
Theo.	V_{\min}/MHz	-43.7	-43.2	-41.8	-36.5	-23.9
	$R_0/\mu\text{m}$	2.30	2.31	2.28	2.27	2.24
^a Theo.	V_{\min}/MHz	47.7	-47.7	-46.5	-40.8	-30.6
	$R_0/\mu\text{m}$	2.17	2.17	2.15	2.14	2.01

为了进行比较, 在表1中列出了 $(60D_{5/2})_2$ Rydberg 分子不同 M 值对应的势阱深度 V_{\min} 和平衡核间距 R_0 的理论计算值和实验测量的束缚能. 由表1可知, 对于 $M = 3$ 和 4 的分子态, 实验和理论的偏差分别为 3% 和 14%. 进一步的研究表明, 理论计算的势阱深度与所选择的基矢大小有关, 是产生偏差的主要原因. 为此, 表1的最后两行列出了与文献 [31] 相同参数的计算结果, 对应的参数分别为: 相互作用极数 $q_{\max} = 6$, 主量子数的参数范围 $\Delta = 2.1$, 单原子的轨道角动量量子数和磁量子数最大为 $l_{\max} = 4$ 和 $m_j = 4.5$, 原子对态能量的最大失谐量 energy defects 为 ± 25 GHz. 由表1还可以看出, 在误差允许的范围内, 相应平衡核间距处实验测得的束缚能与理论计算结果相符合, 并且与大基矢的理论计算结果符合得更好.

5 结 论

理论计算了铯 $60D_{5/2}$ Rydberg 原子对态的势能曲线, 研究获得了不同 M 的势阱深度和平衡间距, 实验上使用双色双光子共振光缔合的方法制备了 $(60D_{5/2})_2$ Rydberg 分子. 由单色 Rydberg 原子光谱提供了分子离解限, 利用 Rydberg 分子光谱测量了 Rydberg 分子对应的束缚能, 实验测量结果与理论相符合. 相比于单色光缔合技术, 双色光缔合制备 Rydberg 分子的实验方法具有较大的激发概率, 可以有效地制备 nD 态 Rydberg 分子. 在未来的研究中, 我们将继续研究 Rydberg 分子的寿命; 研究不同 Rydberg 态形成的分子, 如 $nSnP$ 分子, 探索不同 Rydberg 分子的束缚机制及其光谱参数.

参考文献

- [1] Gallagher T F 1994 *Rydberg Atoms* (Cambridge: Cambridge University Press) pp11–47
- [2] Vogt T, Viteau M, Zhao J, Chotia A, Comparat D, Pillet P 2006 *Phys. Rev. Lett.* **97** 083003
- [3] Gurian J H, Cheinet P, Huillery P, Fioretti A, Zhao J, Gould P L, Comparat D, Pillet P 2012 *Phys. Rev. Lett.* **108** 023005
- [4] Sedlacek J A, Schwettmann A, Kübler H, Löw R, Pfau T, Shaffer J P 2012 *Nat. Phys.* **8** 819
- [5] Jiao Y, Han X, Yang Z, Li J, Raithel G, Zhao J, Jia S 2016 *Phys. Rev. A* **94** 023832
- [6] Jiao Y, Hao L, Han X, Bai S, Raithel G, Zhao J, Jia S 2017 *Phys. Rev. Appl.* **8** 014028
- [7] Tong D, Farooqi S M, Stanojevic J, Krishnan S, Zhang Y P, Côté R, Eyler E E, Gould P L 2004 *Phys. Rev. Lett.* **93** 063001
- [8] Singer K, Reetz-Lamour M, Amthor T, Marcassa L G, Weidemüller M 2004 *Phys. Rev. Lett.* **93** 163001
- [9] Lukin M D, Fleischhauer M, Côté R, Duan L M, Jaksch D, Cirac J I, Zoller P 2001 *Phys. Rev. Lett.* **87** 037901
- [10] Isenhower L, Urban E, Zhang X L, Gill A T, Henage T, Johnson T A, Walker T G, Saffman M 2010 *Phys. Rev. Lett.* **104** 010503
- [11] Peyronel T, Firstenberg O, Liang Q, Hofferberth S, Gorshkov A V, Pohl T, Lukin M D, Vuletić V 2012 *Nature* **488** 57
- [12] Boisseau C, Simbotin I, Côté R 2002 *Phys. Rev. Lett.* **88** 133004
- [13] Overstreet K R, Schwettmann A, Tallant J, Booth D, Shaffer J P 2009 *Nat. Phys.* **5** 581
- [14] Deiglmayr J, Saßmannshausen H, Pillet P, Merkt F 2014 *Phys. Rev. Lett.* **113** 193001
- [15] Saßmannshausen H, Deiglmayr J 2016 *Phys. Rev. Lett.* **117** 083401
- [16] Han X X, Zhao J M, Li C Y, Jia S T 2015 *Acta Phys. Sin.* **64** 133202 (in Chinese) [韩小萱, 赵建明, 李昌勇, 贾锁堂 2015 物理学报 **64** 133202]
- [17] Greene C H, Dickinson A S, Sadeghpour H R 2000 *Phys. Rev. Lett.* **85** 2458

- [18] Hamilton E L, Greene C H, Sadeghpour H R 2002 *J. Phys. B* **35** L199
- [19] Khuskivadze A A, Chibisov M I, Fabrikant I I 2002 *Phys. Rev. A* **66** 042709
- [20] Bendkowsky V, Butscher B, Nipper J, Shaffer J P, Löw R, Pfau T 2009 *Nature* **458** 1005
- [21] Bendkowsky V, Butscher B, Nipper J, Balewski J B, Shaffer J P, Löw R, Pfau T, Li W, Stanojevic J, Pohl T, Rost J M 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 163201
- [22] Bellos M A, Carollo R, Banerjee J, Eyler E E, Gould P L, Stwalley W C 2013 *Phys. Rev. Lett.* **111** 053001
- [23] Anderson D A, Miller S A, Raithel G 2014 *Phys. Rev. Lett.* **112** 163201
- [24] 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
- [25] Stecker M, Schefzyk H, Fortágh J, Günther A 2017 *New J. Phys.* **19** 043020
- [26] Ford L H, Roman T A 2011 *Ann. Phys.* **326** 2294
- [27] Menezes G, Svaiter N F 2015 *Phys. Rev. A* **92** 062131
- [28] Born M, Oppenheimer J R 1927 *Ann. Phys.* **84** 457
- [29] Le Roy R J 1974 *Can. J. Phys.* **52** 246
- [30] Schwettmann A, Crawford J, Overstreet K R, Shaffer J P 2006 *Phys. Rev. A* **74** 020701
- [31] Han X, Bai S, Jiao Y, Hao L, Xue Y, Zhao J, Jia S, Raithel G 2018 *Phys. Rev. A* **97** 031403
- [32] Deiglmayr J 2016 *Phys. Scr.* **91** 104007
- [33] Han X, Bai S, Jiao Y, Raithel G, Zhao J, Jia S 2018 [arXiv:1806.04043](https://arxiv.org/abs/1806.04043) 1 [physics.atom-ph]
- [34] Pearman C P, Adams C S, Cox S G, Griffin P F, Smith D A, Hughes I G 2002 *J. Phys. B* **35** 5141
- [35] Jiao Y, Li J, Wang L, Zhang H, Zhang L, Zhao J, Jia S 2016 *Chin. Phys. B* **25** 053201

Two-color photoassociation spectra of ultra-cold Cs $(60D_{5/2})_2$ Rydberg molecule*

Bai Jing-Xu¹⁾ Han Xiao-Xuan¹⁾ Bai Su-Ying¹⁾ Jiao Yue-Chun¹⁾²⁾
 Zhao Jian-Ming^{1)2)†} Jia Suo-Tang¹⁾²⁾

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

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

(Received 21 September 2018; revised manuscript received 21 October 2018)

Abstract

The long-range multipole interactions between ultra-cold Rydberg atoms form adiabatic potentials, one of which shows a binding potential that can be used to bind Rydberg-Rydberg molecules. Rydberg-atom molecule, known as macrodimer due to its larger size ($\sim \mu\text{m}$), has the properties of the abundant vibrational energy levels and large electric dipole moment and so on. Compared with Rydberg atom, the Rydberg molecule, including Rydberg-ground molecule and Rydberg-Rydberg molecule, is susceptible to manipulate by an external field and possesses potential applications in the weak-signal detection, the quantum gas correlation measurement and the vacuum fluctuation and so on.

In this paper, we investigate a $(60D_{5/2})_2$ Rydberg macrodimer theoretically and experimentally. In the calculation, we take into account the multipole interaction of a Rydberg-atom pair, including dipole-dipole, dipole-quadrupole, dipole-octupole and quadrupole-quadrupole interaction and so on. The adiabatic potential of $60D_{5/2}$ Rydberg-atom pair is obtained by diagonalizing the interaction Hamiltonian on a grid of internuclear separations, R . The potential depth and binding length of the Rydberg molecular potential well are obtained. In experiment, we prepare the ultra-cold Cs $(60D_{5/2})_2$ Rydberg molecules by a two-color photoassociation method in a cesium ultracold atom trap. The first-color (pulse-A) resonantly excites a seed Rydberg atom A, and the second color (pulse-B) is detuned and resonantly excites the second Rydberg atom B near to the atom A. Both pulse-A and pulse-B are two-photon excitations (852 nm + 510 nm), between which their 852-nm lasers have the same frequency, whereas the 510-nm laser frequency of the pulse-A is set to be resonant with the atomic transition and the frequency of the pulse-B is detuned by using a double-passed acousto-optic modulator. When the pulse-B is detuned to the molecular binding energy, atom-A and -B are bonded, forming an ultra-cold Cs $(60D_{5/2})_2$ Rydberg molecule. The two-color photoassociation spectra of Rydberg-Rydberg molecules are detected by the field ionization of Rydberg atoms and molecules with a ramped electric field. Molecular spectra are compared with calculated adiabatic molecular potentials, which yields the binding energy and equilibrium internuclear distance. The two-color photoassociation method used in this work has a doubly resonant character that results in the enhanced excitation rate.

Keywords: ultra-cold Rydberg-Rydberg molecule, two-color photoassociation, adiabatic potential

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

DOI: 10.7498/aps.67.20181743

* Project supported by the National Key R&D Program of China (Grant No. 2017YFA0304203), the National Nature Science Foundation of China (Grant Nos. 61475090, 61675123, 61775124, 11804202), the Key Program of the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11434007, 61835007), the Changjiang Scholars and Innovative Research Team in University of Ministry of Education of China (Grant No. IRT_17R70), and the "1331 Project" of Shanxi Province, China.

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