

DOI:10.3788/JQO20243001.0601

## 超冷 $^{85}\text{Rb}^{133}\text{Cs}$ 分子转动态碰撞特性研究

陈一瑶<sup>1,2</sup>, 马伟鑫<sup>1,2</sup>, 姬中华<sup>1,2†</sup>, 梅锋<sup>1,2</sup>, 赵延霆<sup>1,2</sup>, 贾锁堂<sup>1,2</sup>

(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 山西 太原 030006;

2. 山西大学极端光学协同创新中心 山西 太原 030006)

**摘要:** 使用损耗光谱技术测量了直接光缔合制备的  $X^1\Sigma^+(v=0)$  振动基态超冷  $^{85}\text{Rb}^{133}\text{Cs}$  分子的转动态分布, 使用微波脉冲技术操控了超冷  $^{85}\text{Rb}^{133}\text{Cs}$  分子转动态布居转化, 对基态超冷  $^{85}\text{Rb}^{133}\text{Cs}$  分子最低振动态上纯转动态和混合转动态的碰撞特性进行了研究。具体地测量了  $^{85}\text{Rb}^{133}\text{Cs}$  分子分别处于  $X^1\Sigma^+(v=0, J=1)$  转动态、 $X^1\Sigma^+(v=0, J=2)$  转动态以及这两个转动态形成的混合态这三种情况下的分子布居演化, 引入速率方程来描述损耗过程中分子的动力学过程并获得分子非弹性碰撞系数, 实验发现转动混合态的碰撞系数高于纯转动态碰撞系数, 造成这种差异的原因主要来自于相邻转动态之间的偶极-偶极相互作用。本文工作为理解超冷极性分子非弹性碰撞机制、获得低温度高密度超冷极性分子提供了重要参考。

**关键词:** 超冷极性分子; 光缔合; 转动态; 非弹性碰撞

中图分类号: O561

文献标识码: A

## Studying on Collision Characteristics of Ultracold $^{85}\text{Rb}^{133}\text{Cs}$ Molecules in the Rotational States

CHEN Yi-yao<sup>1,2</sup>, MA Wei-xin<sup>1,2</sup>, JI Zhong-hua<sup>1,2†</sup>, MEI Feng<sup>1,2</sup>, ZHAO Yan-ting<sup>1,2</sup>, JIA Suo-tang<sup>1,2</sup>

(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)

**Abstract:** The research on the collision of ground-state ultracold polar molecules, especially the collision characteristics of two-body exchange non-reactive molecules, is of great significance for understanding the inelastic collision of molecules, obtaining the molecular samples with long life, stable chemical properties and degenerate quantum state, and carrying out molecules-based applications.

Our previous work [Phys. Chem. Chem. Phys., 20,4893 (2018)] has achieved the short-range photo-association preparation and optical dipole capture of  $^{85}\text{Rb}^{133}\text{Cs}$  molecules in the lowest vibrational state, and have measured the inelastic collision coefficients of  $^{85}\text{Rb}^{133}\text{Cs}$  with  $^{85}\text{Rb}$  and  $^{133}\text{Cs}$  atoms. However, the above work has not realized the research on the collision characteristics of molecules in rotational dynamics.

收稿日期: 2022-11-07; 接受日期: 2023-03-09

基金项目: 国家自然科学基金重点项目 (12034012); 国家自然科学基金面上项目 (12074231; 12274272)

作者简介: 陈一瑶 (1996-), 女, 汉族, 山西浑源人, 硕士研究生, 主要研究方向为超冷原子分子物理。

† 通信作者: 姬中华, E-mail: jzh@sxu.edu.cn

In this paper, the collision characteristics of different rotational dynamics on the lowest vibrational state of  $^{85}\text{Rb}^{133}\text{Cs}$  molecule have been studied. Specially, the population of rotational states in the ground state ultracold  $^{85}\text{Rb}^{133}\text{Cs}$  molecules prepared by directly photoassociation was measured by loss spectroscopy. The transformation of population of rotational states in the ultracold  $^{85}\text{Rb}^{133}\text{Cs}$  molecules was controlled by microwave pulse technique. The collision characteristics of pure and mixed states in the lowest vibrational ground state of ultracold  $^{85}\text{Rb}^{133}\text{Cs}$  molecules have been studied. The evolution of population of  $^{85}\text{Rb}^{133}\text{Cs}$  molecules is measured in three cases of  $X^1\Sigma^+(v=0, J=1)$ ,  $X^1\Sigma^+(v=0, J=2)$  and the mixed state formed by the two rotational states. The rate equation is introduced to describe the molecular dynamics in the loss process and the molecular inelastic collision coefficient is obtained.

The experimental results show that the collision coefficient of the rotational mixed state is higher than the pure rotational state, which is mainly caused by the dipole-dipole interaction between the neighboring rotational state. The work provides an important reference for understanding the inelastic collision mechanism of ultracold polar molecules and obtaining ultracold polar molecules at low temperature and high density.

**Keywords:** ultracold polar molecules; photoassociation; rotational state; inelastic collision

## 0 引言

在现代原子分子光物理领域, 超冷分子的制备和操纵引起了科研人员的极大兴趣。处于振转基态的超冷极性分子具有 Debye 量级的固有电偶极矩<sup>[1]</sup>, 可以形成长程偶极-偶极相互作用, 在精密测量<sup>[2-4]</sup>、超冷化学反应<sup>[5-6]</sup>、量子模拟<sup>[7]</sup>以及量子计算<sup>[8]</sup>中都有广泛应用, 因此物理和化学性质稳定的超冷基态极性分子是开展上述研究的基础。最初人们预期处于最低量子态的极性分子必然具有最稳定的物理化学性质, 然而实验发现情况并非如此。2010年 Ospelkaus 等人将 KRb 分子制备到最低振转能级的超精细态, 观察到分子具有较大的损耗<sup>[6]</sup>, 单一超精细态损耗率  $\sim 10^{-12} \sim 10^{-11} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$ , 混合超精细态时损耗率增加至  $\sim 2 \times 10^{-10} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$ , 他们认为 KRb 分子的两体交换反应—— $\text{KRb} + \text{KRb} \rightarrow \text{K}_2 + \text{Rb}_2$  是分子损耗的主要机制之一, 这种两体交换反应的分子损耗机制也被随后的实验证实<sup>[9]</sup>。不过并非所有碱金属极性分子都存在这类损耗机制, P. uchowski 等人关于常用的十种碱金属极性分子的理论计算表明 NaK, NaRb, NaCs, KCs, RbCs 五种碱金属原子分子均属于两体交换反应分子<sup>[10]</sup>, 预期应该具有稳定特性, 不会发生上述的化学反应, 但实验发现事实并非如此: 光学偶极俘获的  $^{87}\text{Rb}^{133}\text{Cs}$ <sup>[11]</sup>、 $^{23}\text{Na}^{87}\text{Rb}$ <sup>[12-13]</sup>、 $^{23}\text{Na}^{39}\text{K}$ <sup>[14]</sup> 以及  $^{23}\text{Na}^{40}\text{K}$ <sup>[15]</sup> 这类两体交换反应分子的寿命也仅  $\sim 100 \text{ ms}$ , 损耗系数  $\sim 10^{-11} \sim 10^{-10} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$ 。因此开展基态超冷极性分

子的碰撞研究, 特别是两体交换反应分子的碰撞特性对理解分子非弹性碰撞、获得长寿命、化学性质稳定、量子态简并的分子样品以及开展前述分子应用具有重要意义, 也成为近几年超冷分子量子操控领域的研究热点。

为了理解上述碱金属基态超冷极性分子非弹性碰撞, Mayle 等人的理论<sup>[16-17]</sup>指出两个基态分子可以形成四聚体分子。他们认为四聚体分子与第三个分子可以形成粘性碰撞, 导致三个分子同时损失。如果碰撞聚合物的形成是损耗速率的限制因素, 那么损耗过程应表现为两体碰撞特性。虽然有实验观测与这一损耗特性一致<sup>[12, 18-20]</sup>, 但 Christianen 等人指出 Mayle 等人过高估计了四聚体分子的寿命至少 2~3 个数量级, 他们提出偶极阱光诱导合成分子到四聚体激发态是分子损耗的主要机制<sup>[21]</sup>。实验发现  $^{87}\text{Rb}^{133}\text{Cs}$  分子<sup>[22]</sup> 和  $^{40}\text{K}^{87}\text{Rb}$  分子<sup>[23]</sup> 支持这一理论机制, 但在  $^{23}\text{Na}^{87}\text{Rb}$ 、 $^{23}\text{Na}^{39}\text{K}$ <sup>[24]</sup> 和  $^{23}\text{Na}^{40}\text{K}$  分子<sup>[25]</sup> 却与理论有两个数量级偏差, 可见超冷基态极性分子的非弹性碰撞机制及外场操控仍然是一个开放性热点问题, 不同课题组在不同的分子体系都取得了重要进展: 王大军课题组研究了不同转动量子态下超冷  $^{23}\text{Na}^{87}\text{Rb}$  分子之间的共振偶极碰撞<sup>[26]</sup>; J. M. Doyle 课题组用光镊的方法研究分子的碰撞, 测量了 CaF 分子碰撞损耗率<sup>[27]</sup> 并使用微波场形成的排斥势将非弹性碰撞率降低了 6 倍<sup>[28]</sup>; M. Zwierlein 课题组在  $^{23}\text{Na}^{40}\text{K}$  分子中使用微波场将 s 波散射截面增加了 3 倍<sup>[29]</sup>; X.Y. Luo 课题组通过对  $^{23}\text{Na}^{40}\text{K}$  分子进行蓝失谐圆偏振微波缀饰, 将分子弹性碰撞

与非弹性碰撞的比率增加了 460 倍, 将分子温度降低到 0.36 倍的费米温度<sup>[30]</sup>; 潘建伟课题组先后利用射频合成技术<sup>[31]</sup> 和磁缔合技术<sup>[32]</sup> 获得了三原子分子。叶军课题组利用静电场调控  $^{40}\text{K}^{87}\text{Rb}$  分子的碰撞性质, 实现了光晶格分辨成像和化学反应率调控<sup>[33-34]</sup>; W. Ketterle 课题组使用磁场和量子干涉实现了  $^{23}\text{Na}$  和  $^{23}\text{Na}^6\text{Li}$  化学反应的控制, 实现了 100 倍损耗率系数调节<sup>[35]</sup>。K. Jachymski 等人发现在超冷碰撞中核自旋-自旋和四极耦合的变化可能足以耦合不同的转动态, 从而增加碰撞形成物的态密度和寿命<sup>[36]</sup>。

不同分子具有不同特性, 本课题组关注的  $^{85}\text{Rb}^{133}\text{Cs}$  分子具有比较大的固有电偶极矩<sup>[1]</sup>, 与同位素分子  $^{87}\text{Rb}^{133}\text{Cs}$  相比其原子成分 (即  $^{85}\text{Rb}$  和  $^{133}\text{Cs}$  原子) 具有可混合性<sup>[37]</sup>, 其非弹性碰撞横截

面与共同俘获的 Cs 原子碰撞支持最低振动态分子的纯化<sup>[38]</sup>。本课题组的前期工作<sup>[39]</sup> 已在  $^{85}\text{Rb}^{133}\text{Cs}$  分子体系中实现了最低振动态分子的短程光缔合制备和光学偶极俘获, 测量了  $^{85}\text{Rb}^{133}\text{Cs}$  分子与  $^{85}\text{Rb}$ 、 $^{133}\text{Cs}$  原子的非弹性碰撞系数。但上述工作没有实现对分子转动态的碰撞特性研究, 本文对  $^{85}\text{Rb}^{133}\text{Cs}$  分子最低振动态上不同转动态的碰撞特性进行了研究, 发现相邻转动态之间的非弹性碰撞明显大于相同转动态之间的非弹性碰撞, 具体测量了  $J=1$ 、 $J=2$  转动态间的碰撞损失系数, 并解释了碰撞系数差异较大的物理机制, 为理解  $^{85}\text{Rb}^{133}\text{Cs}$  分子的碰撞特性、获得更低温、高密度的超冷极性分子提供了重要参考。

## 1 实验过程

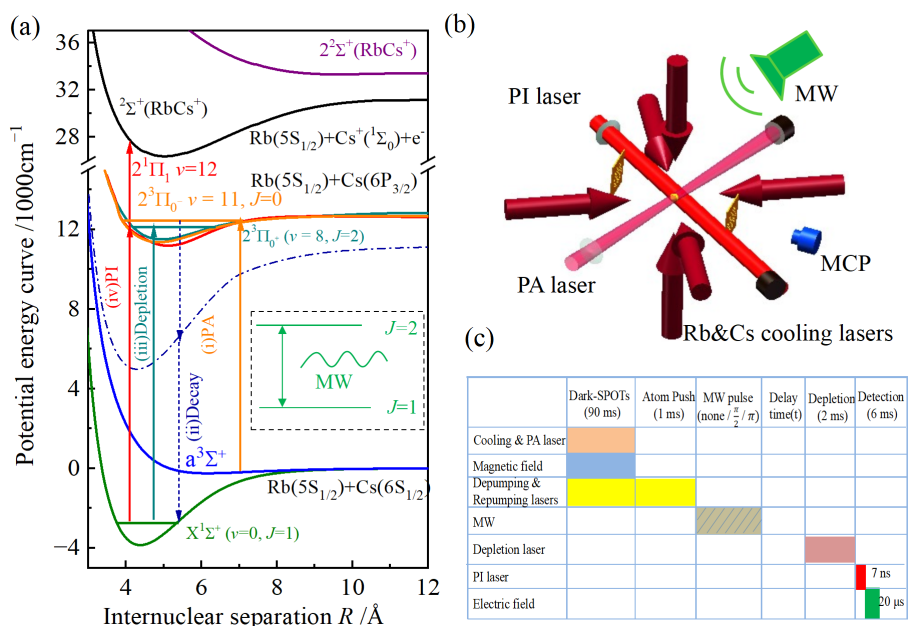


Fig. 1 (a) Preparation and detection of ultracold  $^{85}\text{Rb}^{133}\text{Cs}$  molecules in the lowest rovibrational state  $X^1\Sigma^+(v=0, J=0)$ , (b) Simple optical path diagram irradiated on the cold atomic sample in vacuum, (c) Time sequence

图 1 (a) 最低振转基态  $X^1\Sigma^+(v=0, J=0)$  超冷  $^{85}\text{Rb}^{133}\text{Cs}$  分子的制备和探测过程, (b) 作用于真空冷原子团的简易光路图, (c) 实验时序

实验采用如图 1(a) 所示的  $X^1\Sigma^+(v=0, J=1)$  基态超冷  $^{85}\text{Rb}^{133}\text{Cs}$  分子的制备和探测过程。图 1(b) 展示了实验中所应用的真空附近激光与原子间相互作用的简易光路图。图 1(c) 展示的是实验中所用的时序图。与前期工作<sup>[39]</sup> 相比实验过程主要有三处变化: ①增加了微波脉冲、损耗光谱以及改变了它们之间的延迟时间, 目的是用于对分子的转动态进行

测量、操控以及研究分子转动态布居数目随时间演化; ②去掉了光学偶极阱, 目的是消除偶极阱光诱导合成四聚体激发态分子的耗散通道; ③选择的光缔合分子态不同。本文选取  $2^3\Pi_{0-}(v=11, J=0)$  作为光缔合分子激发态, 根据制备超冷  $^{85}\text{Rb}^{133}\text{Cs}$  分子的双光子级联自发辐射机制<sup>[40]</sup> 形成的最低振动态分子只有  $J=1$  转动态, 方便分子碰撞的测量和

分析。

具体实验过程描述如下：采用本课题组发展的空间可调节暗磁光阱技术<sup>[41]</sup>，将超冷  $^{85}\text{Rb}$  原子和  $^{133}\text{Cs}$  原子的混合样品制备在暗磁光阱，在真空背景约为  $3 \times 10^{-7}$  Pa 和磁场梯度约为 15 G/cm 的条件下，俘获处于  $5S_{1/2}(F=2)$  态的  $^{85}\text{Rb}$  原子和处于  $6S_{1/2}(F=3)$  态的  $^{133}\text{Cs}$  原子，其数目分别达到  $1 \times 10^7$ 、 $2 \times 10^7$  个，密度分别是  $8 \times 10^{10}$ 、 $1 \times 10^{11}$   $\text{cm}^{-3}$ 。为了形成  $X^1\Sigma^+(\nu=0)$  基态超冷  $^{85}\text{Rb}^{133}\text{Cs}$  分子，用线宽为 100 kHz，高斯半径为 150  $\mu\text{m}$ ，输出功率可达 1.5 W 的钛宝石激光器产生的激光照射混合原子样品（图 1(a) 中 i 过程）。选择  $2^3\Pi_{0-}(\nu=11, J=0)$  分子能级，将  $^{85}\text{Rb}$  原子和  $^{133}\text{Cs}$  原子缔合形成弱束缚激发态分子<sup>[42]</sup>。激发态分子极其不稳定，将通过双光子级联自发辐射的方式到基态（图 1(a) 中 ii 过程及图 1(c) Dark-SPOTs 过程），考虑到分子跃迁过程需满足宇称守恒<sup>[43]</sup>，从  $2^3\Pi_{0-}(\nu=11, J=0)$  分子态经过双光子级联自发辐射只能形成  $X^1\Sigma^+(\nu=0, J=1)$  基态分子<sup>[40]</sup>。分子制备后将冷却光（Cooling 光）和缔合光（PA 光）关闭，但保持铷原子和铯原子的 Repumping 光和 Depumping 光 1 ms，目的是去除未转变成分子的冷原子，保障纯净分子样品（图 1(c) Atom Push 过程）。接下来预留微波脉冲（MW pulse）以及损耗（Depletion）过程（图 1(c)，下段详述），双光子级联自发辐射形成的分子被电离光（PI 光）直接光电离成分子离子（图 1(a) 中 iv 过程）。电离激光频率选择信号较大的  $X^1\Sigma^+(\nu=0) \leftrightarrow 2^1\Pi_1(\nu=12)$  跃迁<sup>[44]</sup>，脉冲时间 7 ns，能量 2 mJ。分子离子通过脉冲电场加速 20  $\mu\text{m}$ ，获得动能的分子离子再经过 68 mm 的飞行距离到达微通道板（MCP），激发出倍增电子，采样电压信号被放大、滤波，显示在数字示波器上，并同时使用多通道采样平均器进行数据记录。

损耗激光器由自制的半导体激光器提供，线宽在 MHz 量级，因此可以测量分子转动量子态布居。具体操作是在上述损耗过程阶段施加损耗脉冲光，将激光频率锁定到  $X^1\Sigma^+(\nu=0, J=1) \leftrightarrow 2^3\Pi_{0+}(\nu=10, J=2)$  跃迁<sup>[45]</sup>（图 1(a) 中 iii 过程）， $J=1$  态分子可以被激发到  $2^3\Pi_{0+}(\nu=10, J=2)$  态，这就使  $J=1$  基态分子形成损耗进而使得探测到的分子电离信号消失或减弱。微波源由商业射频源（Stanford

Research Systems, SG386）提供，经过快速射频开关可以在纳秒时间尺度形成微波脉冲，进而通过改变脉冲时间控制分子在  $\text{ch}$  上的布居。具体操作是在微波脉冲阶段对  $X^1\Sigma^+(\nu=0, J=1)$  转动态分子施加共振于  $X^1\Sigma^+(\nu=0, J=1) \leftrightarrow X^1\Sigma^+(\nu=0, J=2)$ （频率  $\sim 2$  GHz）的微波脉冲，如果施加微波  $\pi$  脉冲分子将由  $J=1$  转动态被相干转化到  $J=2$  转动态，如果施加微波  $\pi/2$  脉冲分子将形成  $J=1$  转动态和  $J=2$  转动态的叠加态（分布几率相同）。因为电离激光线宽  $\sim 6$  GHz，不能分辨分子转动态，因此相继实施微波脉冲和损耗激光后，分子转移到  $J=2$  转动态数目越多，分子离子信号就越强。理想情况下施加微波  $\pi$  脉冲和损耗激光后分子离子信号将恢复到无损耗激光的强度，施加微波  $\pi/2$  脉冲和损耗激光后分子离子信号恢复到无损耗激光的强度的一半。另外，如果将损耗激光频率锁定在  $2^3\Pi_{0+}(\nu=10, J=2) \leftrightarrow X^1\Sigma^+(\nu=0, J=3)$  则可以探测分子在  $J=2$  转动态的布居。在微波脉冲和损耗过程之间增加不同的延迟时间就可以测量  $J=1$  或  $J=2$  转动态分子布居的演化，进而研究分子转动态碰撞特性。

## 2 实验结果与分析

为了研究超冷分子转动态的碰撞特性，需首要解决转动态的测量问题。我们使用损耗光谱技术测量了制备的超冷  $^{85}\text{Rb}^{133}\text{Cs}$  分子转动态分布。基于我们前期工作的测量数据<sup>[45]</sup>，损耗激光频率在  $X^1\Sigma^+(\nu=0)$  和  $2^3\Pi_{0+}(\nu=10)$  跃迁附近扫描，一旦经过转动态跃迁共振位置， $X^1\Sigma^+(\nu=0)$  态分子离子信号强度就会降低。图 2 展示是实验测量的超冷  $^{85}\text{Rb}^{133}\text{Cs}$  分子在  $X^1\Sigma^+(\nu=0)$  态的高分辨率损耗光谱。损耗光谱的作用时间和光强分别是 2 ms 和 1 mW/mm<sup>2</sup>。为了提高光谱信噪比，我们对分子信号强度做了归一化处理——以无损耗光时的分子信号强度为参考，将有损耗光时的分子信号强度除以参考信号获得损耗比例。图 2 是 192 次循环实验有无损耗激光下分子信号的平均值。图中的曲线是对光谱的洛伦兹拟合，拟合的中心频率是 466.860854 THz，光谱宽度是 19(2) MHz，这与  $2^3\Pi_{0+}(\nu=10, J=1)$  的光缔合光谱参数相一致。根据拟合还可以发现分子从基态  $X^1\Sigma^+(\nu=0, J=1)$  到  $2^3\Pi_{0+}(\nu=10, J=2)$  的

损耗率  $\sim 90\%$ , 实验未观察到  $J = 2 \leftrightarrow J = 3$  以及  $J = 0 \leftrightarrow J = 1$  的跃迁, 证明在本实验中  $^{85}\text{Rb}^{133}\text{Cs}$  分子只布居在  $X^1\Sigma^+(v = 0, J = 1)$  上。这个结果和文献 [40] 的理论机制是一致的, 但文献 [40] 的实验系统存在直流电场导致的斯塔克混合, 导致分子在  $J = 0, 1, 2$  上均有布居, 而我们使用的脉冲加速电场可以克服斯塔克混合的影响, 这为后续操控分子转动量子态、研究分子转动态上的非弹性碰撞提供了良好初始分子样品。

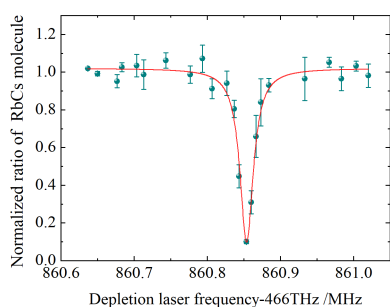


Fig. 2 Depletion spectra of ultracold  $^{85}\text{Rb}^{133}\text{Cs}$  molecules between  $X^1\Sigma^+(v = 0, J = 1) \leftrightarrow 2^3\Pi_0^+(v = 10, J = 2)$  rotational states

图 2 超冷  $^{85}\text{Rb}^{133}\text{Cs}$  分子  $X^1\Sigma^+(v = 0, J = 1) \leftrightarrow 2^3\Pi_0^+(v = 10, J = 2)$  转动态损耗光谱

为了研究分子处于不同转动态的碰撞特性, 在上述实现了分子转动态布居测量基础上我们使用微波脉冲技术可以操控超冷  $^{85}\text{Rb}^{133}\text{Cs}$  分子相邻转动态之间的转化。具体地, 对  $X^1\Sigma^+(v = 0, J = 1)$  态  $^{85}\text{Rb}^{133}\text{Cs}$  分子施加共振于  $X^1\Sigma^+(v = 0, J = 1) \leftrightarrow X^1\Sigma^+(v = 0, J = 2)$  的微波脉冲可以实现转动态之间的相干转化。图 3 是  $^{85}\text{Rb}^{133}\text{Cs}$  分子在初始状态  $J = 1$  时的布居数随微波辐射时间变化的演化图像, 图中绿色的点代表 36 次实验测量的平均值。实验中微波的频率固定在  $J = 1 \leftrightarrow J = 2$  共振跃迁位置<sup>[46]</sup> (1988.62 MHz), 微波辐射功率为 10 mW。得到的布居演化图像是一个典型的耗散拉比振荡, 随着作用时间的增加处于  $J = 1$  态分子数目呈现周期性振荡并且变化幅度越来越小。图中分子数目也采用损耗光谱中一样的方法进行了归一化处理, 其时间演化规律可表示为:

$$N = \frac{1 + \cos(\Omega t) \exp(-t/\tau)}{2}, \quad (1)$$

式中  $\Omega = \mu_{12}E/h$  是拉比频率, 拟合值为  $2\pi \cdot 1.69(2)$  MHz, 依赖转动态之间的跃迁偶极矩  $\mu_{12}$

和微波场振幅  $E$ , 式中  $\tau$  表征系统退相干时间, 拟合值为  $2.78(6)$   $\mu\text{s}$ 。影响相干性的原因包括制备分子的冷原子温度、背景真空、实验室杂散磁场导致的分子超精细态能级展宽以及本文关注的分子间的非弹性碰撞。微波操控分子转动态的相干转移为测量处于单一转动态或者混合转动态的分子布居演化动力学, 进而为研究分子转动态非弹性碰撞奠定了基础。ch

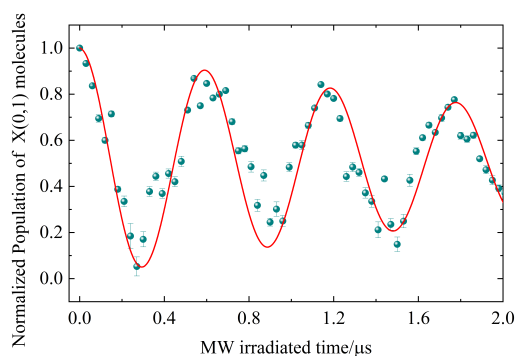


Fig. 3 Evolution of the population of the ultracold  $^{85}\text{Rb}^{133}\text{Cs}$  molecules in the initial state  $J = 1$  under irradiation of microwave field

图 3 在微波场照射下超冷  $^{85}\text{Rb}^{133}\text{Cs}$  分子在初态  $J = 1$  的布居演化

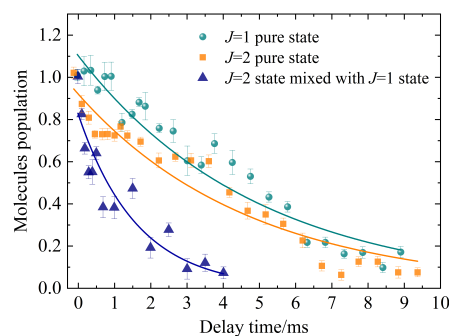


Fig. 4 The population of molecules in different rotational states as a function of delay time

图 4 分子不同转动态布居数与延迟时间的关系

在上述实现了对超冷分子转动态测量和操控基础上我们可以研究分子不同转动态的碰撞特性。为了研究分子在不同转动态的寿命演化, 实验中我们改变脉冲作用时间制备不同转动态分子。具体地, 若脉冲作用时间为零 (即不施加微波场) 分子处于  $J = 1$  态, 若分子作用时间为  $0.296$   $\mu\text{s}$  (即  $\pi$  脉冲) 分子处于  $J = 2$  态, 若分子作用时间为  $0.148$   $\mu\text{s}$  (即  $\pi/2$  脉冲) 分子处于  $J = 1$  和  $J = 2$  态叠加态, 即

有一半的分子由原来的  $J = 1$  态转移到了  $J = 2$  态。在微波脉冲和损耗过程之间增加不同的延迟时间就可以测量分子布居演化，进而研究分子转动态碰撞特性。图 4 为超冷  $^{85}\text{Rb}^{133}\text{Cs}$  分子处于纯  $X(0, 1)$  转动态， $X(0, 1)$  和  $X(0, 2)$  混合态以及纯  $X(0, 2)$  转动态分子的布居演化。从图中可以看出， $X(0, 1)$  和  $X(0, 2)$  混合态分子的损耗高于纯  $X(0, 1)$  和纯  $X(0, 2)$  转动态损耗。

为了解释上述实验现象，我们引入速率方程来描述损耗过程中分子的动力学过程。处于转动态  $i$  上分子数目  $N_i$  可以描述为：

$$\begin{aligned} \frac{dN_i}{dt} &= -\gamma_i N_i - \beta_i N_i n_i - \beta_{ij} N_i n_j \\ &= -(\gamma_i + \beta_i n_i + \beta_{ij} n_j) N_i, \end{aligned} \quad (2)$$

上式中  $i$  可取 1 和 2， $\gamma_i$  是分子转动态  $i$  与背景气体（主要是由热 Rb 原子和 Cs 原子组成）的碰撞损失率系数， $\beta_i$  是位于相同转动态分子间的损失率系数， $\beta_{ij}$  是相邻转动态分子间的碰撞率系数， $n_i$ ， $n_j$  是位于转动态  $i$  的分子密度。

如果分子处于单个纯转动态下，不会发生不同转动态分子之间的碰撞，即没有  $\beta_{ij} N_i n_j$  这一项：

$$\frac{dN_i}{dt} = -\gamma_i N_i - \beta_i N_i n_i = -(\gamma_i + \beta_i n_i) N_i, \quad (3)$$

根据公式 (2)、(3) 可以得到：

$$\begin{aligned} N_i &= N_{i0} e^{-A_i t}, \\ N_i &= N_{i0} e^{-B_i t}, \end{aligned} \quad (4)$$

其中  $N_{i0}$  是分子位于转动态  $i$  的初始数目。由  $A_i = \gamma_i + \beta_i n_i + \beta_{ij} n_j$ ， $B_i = \gamma_i + \beta_i n_i$  可得  $A_i - B_i = \beta_{ij} n_j$ ，即  $\beta_{ij} = (A_i - B_i) / n_j$ 。

用公式 (5) 对图 4 中  $J = 1$  和  $J = 2$  纯转动态拟合，得到  $B_1 = 203(13) \text{ s}^{-1}$ ， $B_2 = 210(18) \text{ s}^{-1}$ ，两者误差范围内相等。用公式 (4) 对图 4 中  $J = 1$  和  $J = 2$  混合转动态拟合，得到  $A_2 = 620(11) \text{ s}^{-1}$ 。基于我们发展的单离子信号量化方法<sup>[47]</sup>，实验中测得初始分子的电离数目  $N_{\text{ion}} \sim 5.5$ ，考虑到

电离过程到探测过程的效率  $\eta \sim 3\%$ <sup>[47]</sup> 及所电离激光脉冲时间  $\tau$  为 7 ns，电离光汇聚的体积  $V \sim 2.7 \times 10^{-8} \text{ m}^3$ ，可得连续稳态情况下分子数目  $N = N_{\text{ion}} \cdot 1\text{s} / \eta \tau = 2.26 \times 10^{10}$ ，因此  $n = N/V$  是  $0.97 \times 10^{18} \text{ m}^{-3}$ 。从  $A_2 - B_2 = 410(21) \text{ s}^{-1}$  可以得到混合态  $\beta_{21} = 8.46(44) \times 10^{-10} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$ ，纯态  $J = 1$  转动态之间的碰撞系数  $\beta_1 = 2.09(13) \times 10^{-10} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$ ，纯态  $J = 2$  转动态之间的碰撞系数  $\beta_2 = 2.16(19) \times 10^{-10} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$ ，需要说明的是在计算混合态分子碰撞时考虑了分子处于混合转动态时的密度是纯态时的一半。该结果说明当分子处于相邻转动混合态时分子间非弹性碰撞高于纯态之间的非弹性碰撞。作为比较，Gregory 等人<sup>[19]</sup> 在  $^{87}\text{Rb}^{133}\text{Cs}$  分子中也观察到  $J = 0$  和 1 的混合态分子损耗大于  $J = 0$  和 1 纯态分子损耗。这种碰撞损耗存在的差别均来自于相邻转动态分子存在的偶极-偶极相互作用。相同转动态的分子之间相互作用主要受与核间距的六次方成反比的范德瓦尔斯势能支配，这将限制分子间可以相互作用的范围，但是处于转动态不同的分子还存在偶极-偶极相互作用，该相互作用与核间距的三次方成反比，这会使相邻转动态分子在更长的距离内相互作用，从而具有更大的碰撞散射截面，所以分子在混合态的碰撞要比纯态的高。

### 3 结论

本文测量了超冷  $^{85}\text{Rb}^{133}\text{Cs}$  分子分别处于  $X^1\Sigma^+(v=0, J=1)$  转动态、 $X^1\Sigma(v=0, J=2)$  转动态、以及这两个转动态形成的混合态这三种情况下的分子布居演化，引入速率方程来描述损耗过程中分子的动力学过程，并获得分子非弹性碰撞系数。实验发现转动混合态的碰撞系数高于纯转动态碰撞系数，造成这种差异的原因主要来自于相邻转动态之间的偶极-偶极相互作用。本文工作对深入理解  $^{85}\text{Rb}^{133}\text{Cs}$  分子的碰撞特性、获得更低温、更高密度的超冷极性分子具有重要意义。

### 参考文献

- [1] AYMAR M, DULIEU O. Calculation of accurate permanent dipole moments of the lowest 1,3 states of heteronuclear alkali dimers using extended basis sets[J]. *J Chem Phys*, 2005, **122**(20):204302. DOI: 10.1063/1.1903944.
- [2] ZELEVINSKY T, KOTOCHIGOVA S, YE J. Precision Test of Mass-Ratio Variations with Lattice-Confined Ultracold Molecules[J]. *Phys Rev Lett*, 2008, **100**(4):043201. DOI: 10.1103/PhysRevLett.100.043201.

- [3] SCHILLER S. Hydrogenlike highly Charged Ions for Tests of the Time Independence of Fundamental Constants[J]. *Phys Rev Lett*, 2007, **98**(18):180801. DOI: 10.1103/PhysRevLett.98.180801.
- [4] DEMILLE D, CAHN S B, MURPHREE D, *et al.* Using Molecules to Measure Nuclear Spin-Dependent Parity Violation[J]. *Phys Rev Lett*, 2008, **100**(2):023003. DOI: 10.1103/PhysRevLett.100.023003.
- [5] GILIJAMSE J J, HOEKSTRA S, VAN DE MEERAKKER S Y T, *et al.* Near-threshold inelastic collisions using molecular beams with a tunable velocity[J]. *Science*, 2006, **313**:1617–1620. DOI: 10.1126/science.1131867.
- [6] OSPELKAUS S, NI K K, WANG D, *et al.* Quantum-State Controlled Chemical Reactions of Ultracold Potassium-Rubidium Molecules[J]. *Science*, 2010, **327**:853-7. DOI: 10.1126/science.1184121.
- [7] BLACKMORE J A, CALDWELL L, GREGORY P D, *et al.* Ultracold molecules for quantum simulation: rotational coherences in CaF and RbCs[J]. *Quantum Sci Technol*, 2019, **4**(1):014010. DOI: 10.1088/2058-9565/aace35.
- [8] DEMILLE D. Quantum Computation with Trapped Polar Molecules[J]. *Phys Rev Lett*, 2002, **88**(6):067901. DOI: 10.1103/PhysRevLett.88.067901.
- [9] HU M G, LIU Y, GRIMES D D, *et al.* Direct observation of bimolecular reactions of ultracold KRb molecules[J]. *Science*, 2019, **366**:1111–1115. DOI: 10.1126/science.aay9531.
- [10] UCHOWSKI P S, HUTSON J M. Reactions of ultracold alkali-metal dimers[J]. *Phys Rev A*, 2010, **81**(6):060703. DOI: 10.1103/PhysRevA.81.060703.
- [11] TAKEKOSHI T, REICHSÖLLNER L, SCHINDEWOLF A, *et al.* Ultracold Dense Samples of Dipolar RbCs Molecules in the Rovibrational and Hyperfine Ground State[J]. *Phys Rev Lett*, 2014, **113**(20):205301. DOI: 10.1103/PhysRevLett.113.205301.
- [12] GUO M Y, YE X, HE J Y, *et al.* Dipolar Collisions of Ultracold Ground-State Bosonic Molecules[J]. *Phys Rev X*, 2018, **8**(4):041044. DOI: 10.1103/PhysRevX.8.041044.
- [13] GUO M Y, ZHU B, LU B, *et al.* Creation of an Ultracold Gas of Ground-State Dipolar  $^{23}\text{Na}^{87}\text{Rb}$  Molecules[J]. *Phys Rev Lett*, 2016, **116**(20):205303. DOI: 10.1103/PhysRevLett.116.205303.
- [14] VOGES K K, GERSEMA P, ZUM ALTEN BORGLOH M M, *et al.* Ultracold Gas of Bosonic  $^{23}\text{Na}^{39}\text{K}$  Ground-State Molecules[J]. *Phys Rev Lett*, 2020, **125**(8):083401. DOI: 10.1103/PhysRevLett.125.083401.
- [15] LIU L, ZHANG D C, YANG H, *et al.* Observation of Interference between Resonant and Detuned stirap in the Adiabatic Creation of  $^{23}\text{Na}^{40}\text{K}$  Molecules[J]. *Phys Rev Lett*, 2019, **122**(25):253201. DOI: 10.1103/PhysRevLett.122.253201.
- [16] MAYLE M, QUÉMÉNER G, RUZIC B P, *et al.* Scattering of ultra cold molecules in the highly resonant regime[J]. *Phys Rev A*, 2013, **87**(1):012709. DOI: 10.1103/PhysRevA.87.012709.
- [17] MAYLE M, RUZIC B P, BOHN J L. Statistical aspects of ultracold resonant scattering[J]. *Phys Rev A*, 2012, **85**(6):062712. DOI: 10.1103/PhysRevA.85.062712.
- [18] YE X, GUO M Y, GONZÁLEZ-MARTÍNEZ M L, *et al.* Collisions of ultracold  $^{23}\text{Na}^{87}\text{Rb}$  molecules with controlled chemical reactivities[J]. *Sci Adv*, 2018, **4**(1):eaq0083. DOI: 10.1126/sciadv.aaq0083.
- [19] GREGORY P D, FRYE M D, BLACKMORE J A, *et al.* Sticky collisions of ultracold RbCs molecules[J]. *Nat Commun*, 2019, **10**(1):3104. DOI:10.1038/s41467-019-11033-y.
- [20] YANG H, ZHANG D C, LIU L, *et al.* Observation of magnetically tunable Feshbach resonances in ultracold  $^{23}\text{Na}^{40}\text{K} + ^{40}\text{K}$  collisions[J]. *Science*, 2019, **363**:261–264. DOI: 10.1126/science.aau5322.
- [21] CHRISTIANEN A, ZWIERLEIN M W, GROENENBOOM G C, *et al.* Photoinduced two-body loss of ultracold molecules[J]. *Phys Rev Lett*, 2019, **123**(12):123402. DOI: 10.1103/PhysRevLett.123.123402.
- [22] GREGORY P D, BLACKMORE J A, BROMLEY S L, *et al.* Loss of ultracold  $^{85}\text{Rb}^{133}\text{Cs}$  molecules via optical excitation of long-lived two-body collision complexes[J]. *Phys Rev Lett*, 2020, **124**(16):163402. DOI: 10.1103/PhysRevLett.124.163402.
- [23] LIU Y, HU M G, NICHOLS M A, *et al.* Photo-excitation of long-lived transient intermediates in ultracold reactions[J]. *Nat Phys*, 2020, **16**:1132–1136. DOI: 10.1038/s41567-020-0968-8.
- [24] GERSEMA P, VOGES K K, ZUM ALTEN BORGLOH M M. Probing Photoinduced Two-Body Loss of Ultracold Non-reactive Bosonic  $^{23}\text{Na}^{87}\text{Rb}$  and  $^{23}\text{Na}^{39}\text{K}$  Molecules[J]. *Phys Rev Lett*, 2021, **127**(16):163401. DOI: 10.1103/PhysRevLett.

- t.127.163401.
- [25] BAUSE R, SCHINDEWOLF A, TAO R, *et al.* Collisions of ultracold molecules in bright and dark optical dipole traps[J]. *Phys Rev Res*, 2021, **3**(3):033013. DOI: 10.1103/PhysRevResearch.3.033013.
- [26] HE J Y, YE X, LIN J Y, *et al.* Observation of resonant dipolar collisions in ultracold  $^{23}\text{Na}^{87}\text{Rb}$  rotational mixtures[J]. *Phys Rev Res*, 2021, **3**(1):013016. DOI: 10.1103/PhysRevResearch.3.013016.
- [27] CHEUK L W, ANDEREGG L, BAO Y C, *et al.* Observation of Collisions between Two Ultracold Ground-State CaF Molecules[J]. *Phys Rev Lett*, 2020, **125**(4):043401. DOI: 10.1103/PhysRevLett.125.043401.
- [28] ANDEREGG L, BURCHESKY S, BAO Y C, *et al.* Observation of microwave shielding of ultracold molecules[J]. *Science*, 2021, **373**:779–782. DOI: 10.1126/science.abg9502.
- [29] YAN Z Z, PARK J W, NI Y Q, *et al.* Resonant Dipolar Collisions of Ultracold Molecules Induced by Microwave Dressing[J]. *Phys Rev Lett*, 2020, **125**(6):063401. DOI: 10.1103/PhysRevLett.125.063401.
- [30] SCHINDEWOLF A, BAUSE R, CHEN X Y, *et al.* Evaporation of microwave-shielded polar molecules to quantum degeneracy[J]. *Nature*, 2022, **607**:677–681. DOI: 10.1038/s41586-022-04900-0.
- [31] YANG H, WANG X Y, SU Z, *et al.* Evidence for the association of triatomic molecules in ultracold  $^{23}\text{Na}^{40}\text{K} + ^{40}\text{K}$  mixtures[J]. *Nature*, 2022, **602**(7896):229–233. DOI: 10.1038/s41586-021-04297-2.
- [32] YANG H, CAO J, SU Z, *et al.* Creation of an ultracold gas of triatomic molecules from an atomdiatomic molecule mixture[J]. *Science*, 2022, **378**(6623):1009–1013. DOI: 10.1126/science.ade6307.
- [33] LI J R, TOBIAS W G, MATSUDA K, *et al.* Tuning of dipolar interactions and evaporative cooling in a three-dimensional molecular quantum gas[J]. *Nat Phys*, 2021, **17**:1144–1148. DOI: 10.1038/s41567-021-01329-6.
- [34] TOBIAS W G, MATSUDA K, LI J R, *et al.* Reactions between layer-resolved molecules mediated by dipolar spin exchange[J]. *Science*, 2022, **375**:1299–1303. DOI: 10.1126/science.abn8525.
- [35] SON H, PARK J J, LU Y K, *et al.* Control of reactive collisions by quantum interference[J]. *Science*, 2022, **375**:1006–1010. DOI: 10.1126/science.abl7257.
- [36] JACHYMSKI K, GRONOWSKI M, TOMZA M. Collisional losses of ultracold molecules due to intermediate complex formation[J]. *Phys Rev A*, 2022, **106**(4):L041301. DOI: 10.1103/PhysRevA.106.L041301.
- [37] KÖPPINGER M P, MCCARRON D, JENKIN D, *et al.* Production of optically trapped  $^{87}\text{RbCs}$  Feshbach molecules[J]. *Phys Rev A*, 2014, **89**(3):033604. DOI: 10.1103/PhysRevA.89.033604.
- [38] HUDSON E R, GILFOY N B, KOTOCHIGOVA S, *et al.* Inelastic Collisions of Ultracold Heteronuclear Molecules in an Optical Trap[J]. *Phys Rev Lett*, 2008, **100**(20):203201. DOI: 10.1103/PhysRevLett.100.203201.
- [39] LI Z H, GONG T, JI Z H, *et al.* A dynamical process of optically trapped singlet ground state  $^{85}\text{Rb}^{133}\text{Cs}$  molecules produced via short-range photoassociation[J]. *Phys Chem Chem Phys*, 2018, **20**(7):4893–4900. DOI: 10.1039/c7cp07756d.
- [40] SHIMASAKI T, BELLOS M, BRUZEWICZ C, *et al.* Production of rovibronic-ground-state RbCs molecules via two-photon-cascade decay[J]. *Phys Rev A*, 2015, **91**(2):021401(R). DOI: 10.1103/PhysRevA.91.021401.
- [41] ZHANG J J, JI Z H, LI Z H, *et al.* Space-adjustable dark magneto-optical trap for efficient production of heteronuclear molecules[J]. *Chin Opt Lett*, 2015, **13**(11):110201. DOI: 10.3788/COL201513.110201.
- [42] ZHAO Y T, YUAN J P, JI Z H, *et al.* Experimental study of the  $(4)0^-$  short-range electronic state of the  $^{85}\text{Rb}^{133}\text{Cs}$  molecule by high resolution photoassociation spectroscopy[J]. *J Quant Spectrosc Radiat Transf*, 2016, **184**:8–13. DOI: 10.1016/j.jqsrt.2016.06.025.
- [43] 宫廷, 姬中华, 李中豪等. 基于  $3^3\Sigma_1^+$  共振耦合态制备超冷基态  $^{85}\text{Rb}^{133}\text{Cs}$  分子的实验研究 [J]. 量子光学学报, 2021, **27**(1):62–69. DOI: 10.3788/JQO20212701.0501.
- GONG T, JI Z H, LI Z H, *et al.* Experimental Investigations on Preparation of Ultracold  $^{85}\text{Rb}^{133}\text{Cs}$  Molecules in the Ground State Based on Resonant Coupling  $3^3\Sigma_1^+$  state[J]. *J Quant Opt*, 2021, **27**(1):62–69. (in Chinese). DOI: 10.3788/JQO20212701.0501.
- [44] JI Z H, GONG T, ZHAO Y T, *et al.* Resonance enhanced two-photon ionization spectrum of ultracold  $^{85}\text{Rb}^{133}\text{Cs}$  molecules



- in  $(2)^1 \Pi_1 \leftarrow X^1 \Sigma^+$  transitions[J]. *J Quant Spectrosc Radiat Transf*, 2020, **254**:107215. DOI: 10.1016/j.jqsrt.2020.107215.
- [45] YUAN J P, ZHAO Y T, JI Z H, *et al.* The determination of potential energy curve and dipole moment of the  $(5)0^+$  electronic state of  $^{85}\text{Rb}^{133}\text{Cs}$  molecule by high resolution photoassociation spectroscopy[J]. *J Chem Phys*, 2015, **143**:224312. DOI: 10.1063/1.4936914.
- [46] LI Z H, JI Z H, GONG T, *et al.* Microwave spectroscopy measurement of ultracold ground state molecules produced via short-range photoassociation[J]. *Opt Express*, 2018, **26**(3):2341–2348. DOI: 10.1364/OE.26.002341.
- [47] JI Z H, LI Z H, GONG T, *et al.* Rotational Population Measurement of Ultracold  $^{85}\text{Rb}^{133}\text{Cs}$  Molecules in the Lowest Vibrational Ground State[J]. *Chin Phys Lett*, 2017, **34**(10):103301. DOI: 10.1088/0256-307X/34/10/103301.