

2018 届研究生博士学位论文

分类号: _____

学校代码: 10269

密 级: _____

学 号: 52142000020



華東師範大學

East China Normal University

博士学位论文

DOCTORAL DISSERTATION

**MgF 缓冲气体冷却和
分子激光冷却的理论实验研究**

院 系: 精密光谱科学与技术国家重点实验室

专 业: 光 学

研究方向: 分子光学与冷分子精密光谱

指导教师: 印建平 教授、夏勇 副教授

学位申请人: 尹燕宁

2018 年 5 月

Dissertation for Doctor Degree in 2018

University Code: 10269

Student ID: 52142000020

East China Normal University

Theoretical and experimental researches on buffer gas cooling of MgF and molecular laser cooling

Department: State Key Laboratory of Precision Spectroscopy

Major: Optics

Research direction: Molecular optics and cold molecules

Supervisor: Prof. Jianping Yin, Yong Xia

Candidate: Yanning Yin

May, 2018

华东师范大学学位论文原创性声明

郑重声明：本人呈交的学位论文《MgF 缓冲气体冷却和分子激光冷却的理论与实验研究分子激光冷却的理论与实验研究》，是在华东师范大学攻读硕士/博士[√]（请勾选）学位期间，在导师的指导下进行的研究工作及取得的研究成果。除文中已经注明引用的内容外，本论文不包含其他个人已经发表或撰写过的研究成果。对本文的研究做出重要贡献的个人和集体，均已在文中作了明确说明并表示谢意。

作者签名： 尹燕子

日期：2018 年 5 月 31 日

华东师范大学学位论文著作权使用声明

《MgF 缓冲气体冷却和分子激光冷却的理论与实验研究》系本人在华东师范大学攻读学位期间在导师指导下完成的硕士/博士[√]（请勾选）学位论文，本论文的著作权归本人所有。本人同意华东师范大学根据相关规定保留和使用此学位论文，并向主管部门和学校指定的相关机构送交学位论文的印刷版和电子版；允许学位论文进入华东师范大学图书馆及数据库被查阅、借阅；同意学校将学位论文加入全国博士、硕士学位论文共建单位数据库进行检索，将学位论文的标题和摘要汇编出版，采用影印、缩印或者其它方式合理复制学位论文。

本学位论文属于（请勾选）

☐ 1. 经华东师范大学相关部门审查核定的“内部”或“涉密”学位论文*，于 年 月 日解密，解密后适用上述授权。

☒ 2. 不保密，适用上述授权。

导师签名

印建平

本人签名

尹燕子

2018 年 5 月 31 日

* “涉密”学位论文应是已经华东师范大学学位评定委员会办公室或保密委员会审定过的学位论文（需附获批的《华东师范大学研究生申请学位论文“涉密”审批表》方为有效），未经上述部门审定的学位论文均为公开学位论文。此声明栏不填写的，默认为公开学位论文，均适用上述授权）。

尹燕宁 博士学位论文答辩委员会成员名单

姓 名	职 称	单 位	备 注
张海潮	研究员	上海光机所	主 席
桂有珍	研究员	上海光机所	
马龙生	教授	华东师范大学	
毕志毅	教授	华东师范大学	
杨涛	研究员	华东师范大学	

摘要

近几十年来冷原子研究取得的飞速发展和瞩目成就使得人们将目光转向具有更加广阔应用前景的冷分子。分子拥有更为丰富的内态结构、永久电偶极矩、以及其他特殊的化学性质等，使得它在精密测量、量子模拟与计算、冷化学和冷碰撞等领域成为理想的研究平台，冷分子的研究成为国际上的前沿热点之一。然而，由于传统的激光冷却与囚禁方法难以直接从原子移植到分子，冷分子的制备是一项机遇与挑战并存的课题。目前人们主要发展了两种制备冷分子的途径，包括直接和间接方法，其中直接激光冷却是获得冷分子的重要手段之一。

本文主要聚焦于缓冲气体冷却与分子激光冷却的理论与实验研究，以我们课题组选用的一氟化镁（MgF）分子为基础，从激光冷却实验中分子的选择依据、分子能级结构、低温缓冲气体分子束源、高分辨率分子光谱、钛宝石激光倍频与稳频系统、分子激光冷却与减速方案、冷分子（束）的应用等方面对与分子激光冷却相关的关键理论和实验技术进行了开拓性和深入的研究。

首先，我们介绍了用于激光冷却的分子的选择依据以及选用的 MgF 分子的能级跃迁和能级结构，重点介绍了如何构造准闭合的能级跃迁循环。通过分析分子振动跃迁的 Frank-Condon (FC) 因子、转动跃迁的闭合性、超精细能级结构等，我们将利用其 $X^2\Sigma^+(v=0, N=1, -) \rightarrow A^2\Pi_{1/2}(v'=0, J'=1/2, +)$ 跃迁构造准封闭跃迁循环来实现激光冷却，理论分析表明，MgF 具有高度对角化的 FC 因子、较高的上能级自发辐射速率、较小的质量等，是一种优势明显的候选分子。

其次，我们介绍了用于制备预冷的 MgF 分子束所需要的缓冲气体冷却束源的设计和构造，以及利用低温分子束源所测量出的 MgF 分子的吸收光谱和分子束的激光诱导荧光光谱。我们采用化学反应方法制备 MgF 分子，并根据缓冲气体冷却的理论设计了低温腔，构建了 6 K、高真空环境。通过分析实验测到的分子吸收谱带的精细结构，对跃迁谱线的量子数进行了标定，确定了分子激光冷却所需要的跃迁频率，同时证明了 MgF 的 $A^2\Pi$ 态不是倒态，而是一个正常态，我们还通过分子束的激光诱导荧光验证了 MgF 基态的超精细分裂间距。

接着，我们介绍了两台分别作为 MgF 的激光冷却中的主泵浦光和反抽运光的钛宝石激光器的实验准备，包括激光倍频、线宽压窄和长期频率稳定。我们测量了两台钛宝石激光器和倍频腔的功率、效率表现，并结合了两种稳频方法（传递腔稳频和透射峰边沿锁频）发展了一种兼顾长期频率稳定和频率可任意调谐的稳频方案，获得了窄线宽（6 kHz）的紫外激光和 $\pm 2.8\text{MHz}$ 的长期频率稳定性，这对于主跃迁的自然线宽为 $2\pi \times 22\text{ MHz}$ 的 MgF 的激光冷却来说是足够的。

随后，我们介绍了为 MgF 分子设计的两种激光减速方案：自发辐射力减速方案和受激辐射力减速方案，并对两种方案的减速效果进行了理论模拟。为补偿分子减速过程中的多普勒频移和超精细分裂，设计了基于两台电光调制器的激光扫频方案，对于 200 m/s 的 MgF 缓冲气体分子束，该方案可在 18 cm 内完成对分子的减速。受激辐射力减速具有在大小和速度捕获范围上的优势，但该方案的制约因素是它对激光功率的要求较高。另外，基于对受激辐射力特性的理解，我们还提出了一种可应用于重分子的快速、短距离减速的恒定相位减速方案。

最后，我们探讨了冷分子的应用前景，并以一种新颖的利用表面等离激元干涉场进行分子沉积的理论方案为例介绍了经过冷却获得的冷分子束的应用。我们提出了利用简单的装置和一束激光来获得二维表面等离激元干涉场的新方案，并研究了通过改变激光偏振来获得不同形状的纳米尺度表面光学晶格的可行性；然后我们对基于表面晶格场的分子沉积进行了模拟，并对沉积分辨率的改善方法进行了讨论。我们发现当冷分子束得到良好的准直时，可以得到分辨率宽度为 53.2 nm 的周期性沉积点阵。

关键词：分子激光冷却，磁光囚禁， MgF 分子，缓冲气体冷却，激光稳频，自发辐射力，受激辐射力，双色力，表面等离激元，分子沉积

ABSTRACT

The rapid development and remarkable achievements of cold atom research in recent decades have led people to turn their attention to molecules with broader application prospects. The molecules have more complex internal structures, permanent electric dipole moments, and other chemical properties, and have been an ideal research platform and tool in the field of precision measurement and test of fundamental physics, quantum computation and quantum simulation, cold chemistry and cold collision. The research on cold molecules has important scientific value and far-reaching significance. However, due to the complexity of the molecular structure, the traditional methods of atomic laser cooling and trapping are difficult to directly transfer from atoms to molecules. The preparation of cold molecules is a project with both opportunities and challenges. At present, people have mainly developed two ways to prepare cold molecules or ultracold molecules, including direct and indirect methods. Direct laser cooling of molecules is one of the important means to obtain cold molecules.

This thesis focuses on theoretical and experimental researches on buffer gas cooling and molecular laser cooling. Based on the selected molecule of our group, that is, magnesium monofluoride (MgF), we perform the pioneering and in-depth researches on the selection of laser-coolable candidate molecules, molecular energy level structures, cryogenic buffer gas molecular beam source, molecular high-resolution spectroscopy, Ti:sapphire laser's frequency-doubling and frequency-stabilization system, molecular laser cooling and deceleration schemes, applications of cold molecules (beams), and other key theoretical and experimental techniques related to molecular laser cooling.

First, we introduced the selection basis of the molecules used for laser cooling and the energy level transitions and energy level structures of the selected MgF molecules, mainly focusing on how to construct a quasi-closed energy level transition cycle. By analyzing the Frank-Condon (FC) factor for molecular vibrational transitions and the

rotational transitions and hyperfine energy levels of MgF, we would employ the $X^2\Sigma^+(v = 0, N = 1, -) \rightarrow A^2\Pi_{1/2}(v' = 0, J' = 1/2, +)$ transition to construct quasi-closed transitions to achieve laser cooling. Theoretical analysis shows that MgF has a highly diagonalized FC factor, a higher spontaneous emission rate of the upper level, and a smaller mass, which is an advantageous candidate molecule for laser cooling.

Then we describe the design and construction of a buffer-gas beam source for the preparation of a pre-cooled MgF molecular beam, and the absorption spectrum of MgF molecules and the laser-induced fluorescence spectrum of molecular beams measured using the cryogenic molecular beam source. We used the chemical reaction method to prepare MgF molecules, and designed a cryogenic cell based on the theory of buffer gas cooling, and built a 6 K, high-vacuum environment. By analyzing the fine structures of the molecular absorption band measured by the experiment, we calibrated the quantum number of the transition line, determined the transition frequency required for molecular laser cooling, and proved that the $A^2\Pi$ state of MgF is not an inverted, but a normal state. We also verified the hyperfine structure of the MgF ground state by molecular beam fluorescence spectroscopy.

Then we introduce the experimental preparations of two Ti:Sapphire lasers, which are respectively the main pumping light and the repumping light in laser cooling of MgF, including laser frequency-doubling, linewidth-narrowing, and the long-term frequency stabilization. We measured the power and efficiency of the two Ti:sapphire lasers and the frequency-doubling resonator, and combined two frequency stabilization methods (transfer-cavity method and side of fringe method) to develop an effective laser stabilization method with arbitrary-tuning and long-term frequency stability. The frequency stabilization scheme achieved a narrow linewidth (6 kHz) UV laser and a long-term frequency stability of ± 2.8 MHz, which is sufficient for the main transition of MgF laser cooling with a natural linewidth of $2\pi \times 22$ MHz.

Then we introduce two laser deceleration schemes designed for MgF molecules, namely the spontaneous radiation force deceleration scheme and the stimulated radiation force deceleration scheme, and the deceleration effects of the two schemes

were theoretically simulated. For the spontaneous radiation force deceleration, in order to compensate for the Doppler shift and hyperfine splitting during molecular deceleration, we designed a laser sweep scheme based on two electro-optic modulators. Theoretical simulations show that for a 200 m/s MgF buffer gas molecular beam, this solution can complete the deceleration of the molecule within 18 cm. For stimulated radiation deceleration, it has advantages in magnitude and velocity capture range, but the constraint of this solution is that it has higher requirements for laser power. In addition, based on the understanding of the advantages and characteristics of the stimulated radiation force, we have also proposed a constant phase deceleration scheme that can be applied to fast, short-distance deceleration of heavy molecules.

Finally, we discuss the application prospect of cold molecules, and took a novel molecular deposition scheme using surface plasmon interference field as an example to specifically describe the application of cold molecular beam obtained by buffer gas cooling or laser cooling. We proposed a simple device and a laser to obtain two-dimensional surface plasmon interference fields with different patterns. We also studied the feasibility of obtaining different patterns of nanoscale optical lattices by changing the laser polarization. Then we simulated the molecular deposition based on the surface lattice field and discussed the factors that affect the deposition resolution. We found that a periodic deposition point array with a resolution width of 53.2 nm can be obtained when the used cold molecular beam is optimized for collimation.

Keywords: Molecular laser cooling, magneto-optical trapping, MgF molecules, buffer gas cooling, laser frequency stabilization, spontaneous radiation, stimulated force, bichromatic force, surface plasmon polaritons, molecular deposition

目录

摘要	I
ABSTRACT	III
插图和附表清单	IX
第一章 绪论	1
1.1 引言	1
1.2 分子激光冷却的一般理论	3
1.3 分子激光冷却的研究进展	7
1.4 分子磁光囚禁的研究进展	13
1.5 本文的研究工作	16
第二章 MgF 分子的能级结构	18
2.1 引言	18
2.2 双原子分子能级结构	19
2.2.1 能级结构概述	19
2.2.2 角动量耦合	21
2.2.3 跃迁选择定则	22
2.3 MgF 分子的能级结构	23
2.3.1 电子跃迁与振动跃迁	24
2.3.2 转动跃迁与超精细结构	26
2.3.3 暗态	28
2.4 本章小结	29
第三章 低温分子束源	31
3.1 引言	31
3.2 缓冲气体冷却概述	31
3.3 缓冲气体束源	37
3.3.1 低温腔结构	37

3.3.2 低温真空系统	41
3.3.3 缓冲气体冷却实验操作	44
3.4 MgF 分子探测装置	46
3.5 MgF 分子光谱	47
3.5.1 多普勒增宽	47
3.5.2 分子吸收谱带的精细结构	48
3.5.3 由吸收谱带确定 A 态是正态还是倒态	51
3.5.4 由 LIF 信号观测超精细光谱	53
3.6 本章小结	54
第四章 钛宝石激光器及其稳频系统	56
4.1 引言	56
4.2 钛宝石激光器	57
4.3 激光器稳频系统	59
4.4 稳频后的激光线宽及频率稳定性	61
4.5 本章小结	64
第五章 MgF 分子激光减速方案	66
5.1 引言	66
5.2 自发辐射力减速与冷却	66
5.2.1 理论模型	66
5.2.2 激光扫频减速方案	70
5.2.3 蒙特卡洛模拟	71
5.3 受激辐射力减速与冷却	73
5.3.1 理论模型	74
5.3.2 情形一：轻分子（以 MgF 为例）	79
5.3.3 情形二：重分子（以 YbF 为例）	83
5.4 本章小结	95
第六章 冷分子应用：以分子沉积为例	97
6.1 引言	97

6.2 表面等离激元场	97
6.3 二维表面光学晶格	99
6.4 二维表面晶格场中的分子沉积	106
6.5 本章小结	109
第七章 总结与展望	111
7.1 本文研究内容的总结	111
7.2 本文创新之处	113
7.3 未来工作展望	114
参考文献	116
作者简历及科研成果	127
致谢	130

插图和附表清单

插图清单

图 1.1 不同冷分子的制备方法所能达到的空间密度 n 和温度 T 范围	2
图 1.2 不同应用领域一般所需要的冷分子的密度 n 和温度 T 范围	3
图 1.3 典型的分子的能级结构及所具有的能量范围.....	4
图 1.4 SrF 分子的能级结构.....	5
图 1.5 SrF 分子纵向激光减速实验装置.....	8
图 1.6 CaF 超声分子束的纵向激光减速实验装置.....	8
图 1.7 YO 分子的激光减速实验装置图.....	9
图 1.8 宽频带激光方法减速 CaF 分子的展宽后的激光频谱图.....	10
图 1.9 CaF 分子的激光减速实验装置图.....	11
图 1.10 SrOH 分子横向偏转实验装置图以及所选用的分子跃迁	12
图 1.11 MOT 的基本装置(a)和原理(b)示意图.....	13
图 1.12 YO 分子的二维 MOT 实验方案	14
图 1.13 SrF 分子三维磁光囚禁的激光泵浦方案和实验装置图.....	14
图 1.14 CaF 分子的缓冲气体束源和三维磁光囚禁实验装置图.....	15
图 2.1 双原子分子中角动量耦合的洪特情形 (a) 和 (b)	22
图 2.2 MgF 分子的 $A^2\Pi \rightarrow X^2\Sigma^+$ 跃迁的能级结构和振动分支比	25
图 2.3 MgF 分子的 $X^2\Sigma^+ (v=0)$ 态内部的转动能级、超精细能级分裂.....	27
图 2.4 MgF 激光冷却中驱动主要的 $v = 0 \rightarrow v' = 0$ 跃迁的泵浦方案.....	28
图 2.5 由线偏振光驱动的 MgF 的 $X^2\Sigma^+ \rightarrow A^2\Pi$ 跃迁	29
图 3.1 典型的不同类型分子束的速度分布.....	33
图 3.2 MgF 分子缓冲气体束源的低温腔结构.....	38
图 3.3 利用 Comsol 模拟 He 的气流所使用的结构和尺寸	40
图 3.4 利用 Comsol 软件模拟得到的当通入不同的流量的 He 气时的低温腔内的 气流及速度分布图.....	41
图 3.5 缓冲气体束源的低温系统和真空系统.....	42

图 3.6 真空腔内的 He 气管道示意图	43
图 3.7 开启制冷机后, 典型的低温腔及 SF ₆ 气体管道的温度的变化	44
图 3.8 腔内吸收信号探测装置及典型的分子吸收信号	46
图 3.9 腔外的激光诱导荧光信号的探测装置	47
图 3.10 MgF 分子 $A^2\Pi \rightarrow X^2\Sigma^+$ 跃迁的能级图	49
图 3.11 假定 MgF 分子的 $A^2\Pi$ 态是正常态所计算出的 $X^2\Sigma^+ \rightarrow A^2\Pi$ 跃迁谱带的精细结构	51
图 3.12 在探测激光波长为 359.3 nm 附近测得的低温腔内的吸收谱带	52
图 3.13 在探测激光波长为 358.8 nm 附近测得的低温腔内的吸收谱带	53
图 3.14 通过分子束的 LIF 信号测得的超精细光谱	54
图 4.1 钛宝石激光稳频、倍频实验装置图	57
图 4.2 倍频腔的输出激光与入射激光的功率关系	59
图 4.3 稳频前后的钛宝石激光频率稳定性测量结果	62
图 4.4 通过拍频信号测量激光线宽和频率稳定性的结果	63
图 5.1 激光扫频方法减速 MgF 分子束的实验方案	70
图 5.2 模拟的初始中心速度为 120 m/s 的分子束的减速效果	72
图 5.3 模拟的初始中心速度为 200 m/s 的分子束的减速效果	73
图 5.4 双色力的 π 脉冲模型图像	75
图 5.5 MgF 分子 $A^2\Pi \rightarrow X^2\Sigma^+$ (0-0) Q ₁₂ (0.5)/P ₁₁ (1.5) 分支的完整能级图	80
图 5.6 Ω^{tot} 对双色力大小的影响	80
图 5.7 用来消除暗态的磁场的大小和角度与双色力大小的关系	81
图 5.8 利用双色场和磁场的最优参数, 在不同的双色场失谐量 δ 情况下, 通过求解多能级密度矩阵运动方程得到的双色力大小和速度之间的关系	82
图 5.9 蒙特卡洛模拟得到的 MgF 分子双色力减速效果	83
图 5.10 YbF 分子的 $A^2\Pi - X^2\Sigma^+$ (0-0) Q ₁₂ (0.5)/P ₁₁ (1.5) 能级结构以及在线偏振光作用下的拉比振荡	87
图 5.11 用以消除暗态的磁场的大小 B 和角度 θ 对双色力大小的影响	89
图 5.12 在相向传播的 beat 信号包络的不同的相位差 (从 90° 至 170°) 下 YbF 分子所受双色力与分子速度之间的关系	90

图 5.13 一种可能的重分子的受激辐射力减速的实验方案，包括产生经过多普勒频移的双色场、补偿 beat 信号包络的相位差变化、以及通过缓冲气体分子束源产生低温分子束.....	92
图 5.14 双色力减速中分子速度的改变与减速距离之间的关系.....	93
图 5.15 蒙特卡洛模拟中分子的初始速度分布以及在补偿和未补偿相位差两种情形下最终的分子速度分布情况.....	94
图 6.1 SPPs 的激发和一维 SPPIF 的构造装置	101
图 6.2 两种不同类型的二维 SPPIF	103
图 6.3 三角形结构的二维 SPPIF 的装置和光强分布	106
图 6.4 利用不同形状的 SPPIF 场模拟出的不同的分子沉积图案	107
图 6.5 不同入射激光强度对沉积点的宽度的影响.....	108

附表清单

表 2.1 分子中电偶极跃迁的选择定则.....	23
表 2.2 MgF 分子 $X^2\Sigma^+$ 态与 $A^2\Pi$ 态的光谱常数	24
表 2.3 MgF 分子 $A^2\Pi \rightarrow X^2\Sigma^+$ 跃迁的波长	24
表 2.4 采用不同的方法计算出的 MgF 分子 $A^2\Pi \rightarrow X^2\Sigma^+$ 跃迁的 Frank-Condon 因子	25
表 3.1 在 Comsol 模拟中设定的 He 气的特性参数	40
表 3.2 不同 He 气流量下 MgF 分子缓冲气体冷却需要的实验参数及分子束特性	45
表 4.1 钛宝石激光器在稳频前后的激光性能.....	64
表 5.1 蒙特卡洛模拟的激光扫频方法来减速 MgF 分子束的效果.....	72
表 5.2 YbF 分子的 $A^2\Pi - X^2\Sigma^+$ (0-0) $Q_{12}(0.5)/P_{11}(1.5)$ 分支的相对电偶极跃迁矩阵元，其单位为 $A^2\Pi \rightarrow X^2\Sigma^+$ (0-0) 的电偶极矩	88
表 5.3 在采用相位差补偿技术的双色力减速的蒙特卡洛模拟中所使用的参数及结果.....	95

第一章 绪论

1.1 引言

最近几十年来,以冷原子为基础的研究取得了飞速的发展、瞩目的成就,例如原子的玻色—爱因斯坦凝聚的实现[1]、原子激光[2]、原子钟[3]、量子信息科学与量子模拟[4]等。分子相比于原子而言,具有更为丰富的内态结构、永久电偶极矩、以及其他特殊的化学性质等,从而具有更加广阔的应用前景。例如,利用分子具有的固有电偶极矩形成的内部有效电场,可以大大提高精密测量和检验基本常数的灵敏度[5];由于分子之间存在的可调谐的长程相互作用,使得分子可以作为更加优越的进行量子计算和量子模拟的理想平台[6, 7];冷分子还可以用于研究冷化学、冷碰撞、受控的化学反应过程[8-10]等,因此,冷分子的研究有着重要的科学意义与广阔的应用前景。

然而,有关冷分子的研究是一项机遇与挑战并存的基础研究,由于分子结构的复杂性,传统的原子激光冷却与囚禁的方法,特别是卓有成效的 Zeeman 减速器难以直接从原子移植到分子的冷却与囚禁,冷或超冷分子的制备手段一直是备受人们关注的课题。但近些年来,在全世界科学家们不懈的追求和努力下,冷分子的制备取得了一系列的阶段性成果。

目前,人们主要发展了两种制备冷分子或超冷分子的途径,包括直接(即通过电场、磁场、光场等对分子的直接操控)和间接(即借助于超冷原子获取冷分子)方法。前者主要包括: Stark 减速器(例如传统 Stark 减速器[11]、行波减速器[12, 13]、AG 减速器[14]等)、直接激光冷却与囚禁[15, 16]、光学 Stark 减速[17]、缓冲气体冷却[18]等;后者则主要包括光缔合[19]以及 Feshbach 共振技术[20]等。各种不同的制备冷分子的途径具有各自的优缺点,其产生的冷分子的温度范围以及密度范围也各不相同。当然,冷分子的不同应用领域所需要的分子温度和密度范围是不一样的。

不同制备方法得到的冷分子的特征如图 1.1 所示[21],从中可以看到,相比于缓冲气体冷却、Stark 或光学减速等手段,直接激光冷却获得的冷分子一般具

有更低的温度和更高的密度；相比于光缔合技术，它获得的冷分子密度也要高几个量级；而作为实现激光冷却之后进一步降低分子样品温度的某些技术手段（如蒸发冷却等）还有待人们的进一步探索与验证。

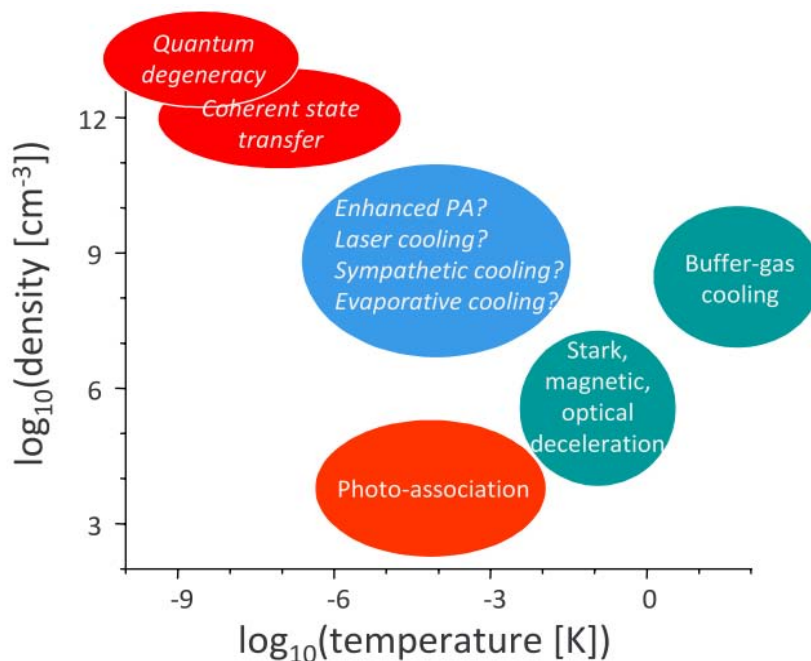


图 1.1 不同冷分子的制备方法所能达到的空间密度 n 和温度 T 范围[21]。其中某些技术手段（标有问号）目前还有待或正在进行实验的验证，它们有望实现重要的 $n \sim 10^7 - 10^9 \text{ cm}^{-3}$ 和 $T \sim 1 \text{ mK} - 1 \text{ } \mu\text{K}$ 的范围。

另一方面，不同应用领域所需要的分子的温度、密度特性如图 1.2 所示[21]，通过与图 1.1 的对照，我们可以看到，分子激光冷却有望获得能够应用于分子光学、冷化学、新型冷碰撞、基本常数检测、精密测量等众多领域的、密度在 $n \sim 10^7 - 10^9 \text{ cm}^{-3}$ 范围、温度在 $T \sim 1 \text{ mK} - 1 \text{ } \mu\text{K}$ 范围的冷分子或超冷分子样品，因此，分子激光冷却与囚禁是一项具有重大意义的研究课题。

当前我们课题组正在积极开展 MgF 分子的激光冷却与磁光囚禁的理论与实验研究工作[22]，为此本文将主要聚焦于直接激光冷却这一方法。同时，由于实施分子的激光减速与冷却需要预冷的分子束，我们也将对 MgF 分子的缓冲气体冷却进行相关的理论、实验研究。

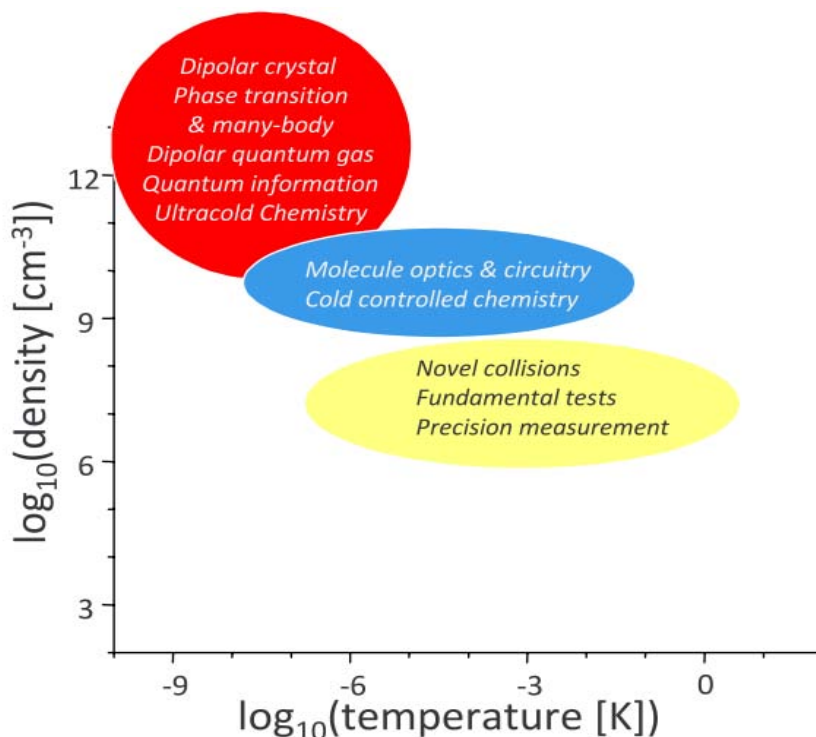


图 1.2 不同应用领域一般所需要的冷分子的密度 n 和温度 T 范围[21]

1.2 分子激光冷却的一般理论

与原子的激光冷却类似，分子的激光冷却机制包括多普勒冷却、亚多普勒冷却[23]等。多普勒冷却作为最基本的一种冷却机制，其原理为：运动的分子发生对红失谐激光的受激吸收过程，紧接着发生自发辐射过程，其中，前者引起的反冲动量是定向的，即与分子的运动速度反向，而后者的反冲方向则是随机的，且在大量累积下的净效果为零，分子的有效激光减速和冷却即是经过足够多次这样的“吸收—自发辐射”的循环跃迁过程实现的 [24]。

一般说来，实现激光冷却的基本条件是：具有一个封闭的或准封闭的多能级系统，能够发生耗散的、多次重复的（一般在 10^4 以上）光子的“吸收—辐射”跃迁循环[24]。对于原子来说，由于其能级结构相对简单，通常只需在一束减速激光之外，再另外加一束反抽运激光即可将因自发衰减泄露到其他超精细能级的原子激发回到跃迁循环中，从而形成一个封闭的跃迁系统，实现大量的光子散射。但对于分子来说，因为它们具有额外的振动、转动自由度，其能级结构和为实验

激光冷却所需要的激光泵浦方案则相对复杂很多。

典型的分子能级结构如图 1.3 所示，每个电子能级中包含无数个振动能级，而每个振动能级间包含着无数个转动能级[25]，从而使得利用一到两束这样的激光实现封闭跃迁是相当困难的。特别是对于分子的振动态来说，由于从电子激发态衰减到基态的不同的振动能级的比例通常没有严格的选择定则来支配，而是由分子的 Frank-Condon 因子所主导[25]，Frank-Condon 因子描述了不同电子状态的振动波函数的重叠，典型的分子在经过 10^4 次光子散射之后回到初始振动能级的概率是极其小的。另外，由于分子的每个振动能级内部还具有转动能级，根据转动能级的选择定则： $\Delta N = 0, \pm 1$ (N 代表转动量子数)，从单一激发态可能衰减到基态的每个振动能级的三个转动能级，如果每个被填充的能级都需要一束可单独可调的反抽运激光，则分子的激光冷却就需要许多束激光，这对于实验来说是非常不切实际的。

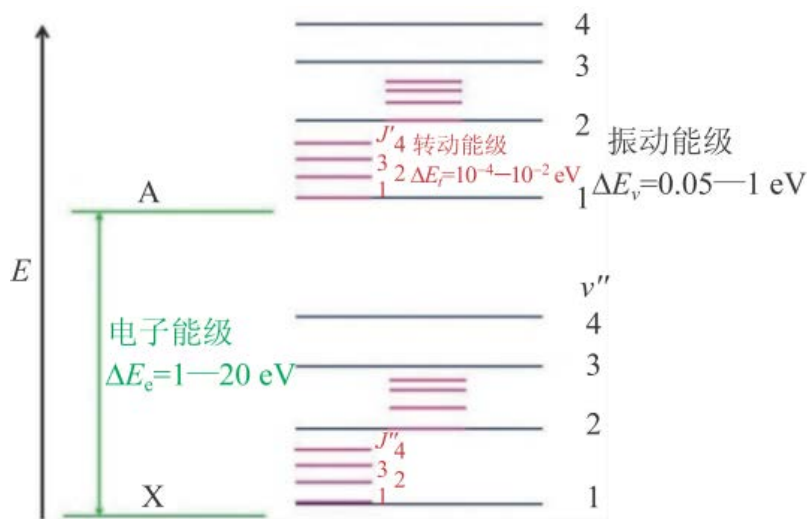


图 1.3 典型的分子的能级结构及所具有的能量范围[25]

然而 2004 年美国阿拉莫斯实验室 (LANL) 的 DiRosa 发现，某些特定的双原子分子具有良好的高度对角化的 Frank-Condon 因子，能够保证从基态振转超精细能级被激发后的分子几乎总能重新回到原来的能级，从而只需要一束冷却光和额外的两到三束反抽运激光即可形成一个准闭合的能级系统，这样的分子有望

像原子那样进行直接激光冷却与囚禁[26]。同时他也指出，作为激光冷却的候选分子的激发态最好还拥有较高的自发衰减速率，可以在单位时间内散射更多的光子。另外，Stuhl 等人进一步讨论了构造分子的准封闭能级跃迁系统的可能性，例如如何实现转动态跃迁的封闭性等[27]。此后国际上许多小组选择了一些满足如上条件的特殊的双原子分子，相继开展了分子的直接激光减速、冷却、和磁光囚禁的理论与实验研究工作。

现在以 SrF 分子为例简单介绍在实验上进行分子激光冷却需要的具体条件，该分子的能级结构如图 1.4 所示[23]，激光冷却所使用的主要跃迁为基态 $X^2\Sigma^+(v=0, N=1)$ 到激发态 $A^2\Pi_{1/2}(v'=0, J'=1/2)$ 的跃迁，其中 v , N , J 分别代表振动、转动量子数以及不含核自旋的总角动量量子数。

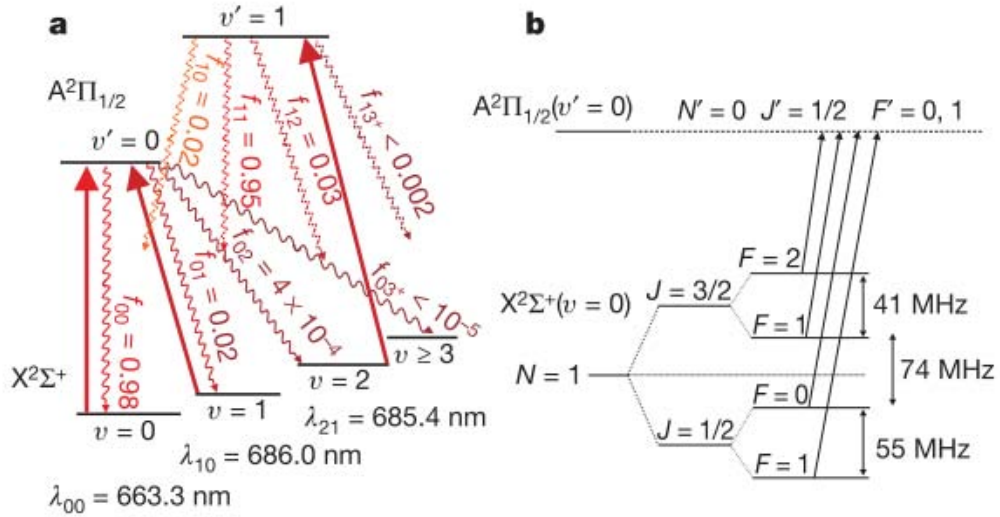


图 1.4 SrF 分子的能级结构[23]。(a) 电子和振动能级结构，其中实线代表激光驱动的由 X 态到 A 态的跃迁，波浪线代表由 A 态的 $v'=0, 1$ 的振动能级可能发生的自发辐射， $f_{v'v}$ 代表 Frank-Condon 因子。(b) $N=1$ 的振动能级结构及超精细能级分裂以及冷却激光的泵浦方案。

SrF 分子的激发态 $A^2\Pi_{1/2}$ 具有很大的自发辐射速率， $\Gamma = 2\pi \times 7 \text{ MHz}$ ，从而保证了较大的光子散射速率以及受到的自发辐射力。该分子具有高度对角化的 Franck-Condon 因子，保证了在 10^5 次光子散射以内，分子主要布居在基态的三

个最低振动能级 $v = 0, 1, 2$ 上，而如此多的光子散射足以将来自低温缓冲气体束源的分子减速至停止[23]。这样，通过一束驱动 $v = 0 \rightarrow v' = 0$ 的冷却激光和另外两束分别驱动 $v = 1 \rightarrow v' = 0$ 和 $v = 2 \rightarrow v' = 1$ 的反抽运光，即可实现良好的减速效果。另一方面，通过驱动由基态 $N = 1$ （奇宇称）到激发态的 $N' = 0$ （偶宇称）的跃迁，可以根据转动跃迁的选择定则以及宇称选择定则保证自发辐射只能回到 $N=1$ 态，从而实现了转动跃迁的封闭。

当然，由于核自旋 $F=1/2$ 的存在，如图 1.4b 所示，在转动态内部还存在超精细能级分裂，例如 $X^2\Sigma^+(v = 0, N = 1)$ 态可进一步分裂为 $F = 2, 1, 0, 1$ 四个能级， $A^2\Pi_{1/2}(v' = 0, J' = 1/2)$ 态进一步分裂为 $F' = 1, 0$ 两个态，而每个超精细能级又分别含有 $(2F+1)$ 个简并的磁子能级（以 m_F 标注），根据选择定则 $\Delta m_F = 0, \pm 1$ ，对于所选择的 $N = 1 \rightarrow N' = 0$ 这种类型的跃迁来说无论采用线偏振还是圆偏振的激光，总是会存在激发态回到基态的磁子能级暗态的可能性。例如，当这个分子系统以线偏振光激发时，基态的 $F = 2, m_F = \pm 2$ 这两个磁子能级成为暗态。一方面，应该采用相应的手段来消除该暗态，例如常用的两种方式：加入与固定的激光偏振成一定角度的直流磁场来驱动暗态通过拉莫尔进动成为亮态，或快速切换激光偏振实现亮态和暗态的混合[28]；另一方面，为了使激光能够覆盖基态中的超精细能级，无论是冷却激光还是反抽运光都需要通过电光调制器获得边带，其调制频率应与超精细能级分裂相匹配。

形成准闭合的能级系统是实现激光冷却的首要条件，但为了实现分子的有效纵向减速或冷却，还应该考虑由于分子的运动速度的变化导致的相对于激光频率的多普勒失谐[24]。考虑一个基本的二能级系统，共振频率为 ω_a ，运动速度为 v ，而用来减速的激光的频率为 ω_l ，波矢为 k ，则为了实现激光冷却，激光与分子之间应该在减速过程中始终满足如下关系：

$$\omega_a = \omega_l + k \cdot v \quad (1.1)$$

由于在减速过程中分子速度 v 是持续变化的，分子与激光之间会因为多普勒失谐而不再共振，导致减速终止。因此，补偿多普勒频移也是分子激光冷却中的一项关键技术，目前国际上主要通过两种方法来实现：宽频带激光减速[29]与激光扫频减速[30]。前者与原子减速中的“白光”减速类似，通过多台电光调制器使

得激光频谱展宽，成为准白光，这样无论分子的速度大小，均能找到合适频率的激光与之共振；后者则是通过连续、同步改变激光频率 ω_l 使之与分子速度的改变相匹配，从而持续补偿变化的多普勒频移。二者的减速效果的区别在于：宽频带方法减速后的分子速度分布较宽，这是因为在减速过程中处于初始速度群内的所有分子几乎被同时减速；而激光扫频方法减速后的分子的速度分布宽度则获得显著的压缩[24]，这是因为它对分子初始速度具有选择性并且连续变化，因而相比于前者，它有望实现良好的“冷却”效果。

1.3 分子激光冷却的研究进展

2009 年美国耶鲁大学 DeMille 小组率先在实验上成功观测到了激光对于 SrF 分子束的横向偏转 (Deflection)，这意味着 SrF 能级跃迁的准闭合性，可以作为激光冷却的候选分子 [31]。一年后，该小组又获得了激光对 SrF 分子束的二维冷却效应，在实现 5 mK 的横向多普勒冷却的同时，他们还观察到了不同失谐的激光对分子的所谓的 Sisyphus 加热和冷却效应 [23]。两年后，他们又首次报道了 SrF 分子束的纵向减速实验，将其速度由从 140 m/s 减速至 50 m/s[32]。

除此之外，国际上几个小组也在积极开展氧化钇 (YO)、氟化钙 (CaF) 等分子的激光冷却与囚禁研究，下面将对以上分子的实验进展分别进行介绍。

2012 年 Demille 小组的 SrF 分子束的减速实验的装置如图 1.5 所示[32]。其主要思想为利用宽谱带激光减速，该宽谱带一方面可以补偿分子减速过程中的多普勒失谐，一方面可以用来覆盖分子的超精细能级的分裂。他们使用了 3 束激光（主泵浦光 1 束，反抽运光 2 束）来构建 SrF 的准封闭循环跃迁，而宽频带激光则是由多台电光调制器 (EOM) 所调制出的多条边带获得的。SrF 分子由激光消融 SF₂ 样品获得，并通过低温缓冲气体冷却形成分子束，经过准直后获得的横向速度分布为 $\Delta v_t^{\text{RMS}} \approx 1.9 \text{ m/s}$ 。调节红失谐激光的失谐量，分子被减速后的末速度有所差别，例如，将 175 m/s 的分子束减速至小于 50 m/s 可以由 -260 MHz 的失谐量的激光实现。通过考量影响分子激光减速的效率的原因，他们指出减速过程中存在的加热效应和横向扩散在很大程度上限制了获得的冷分子数目[32]。

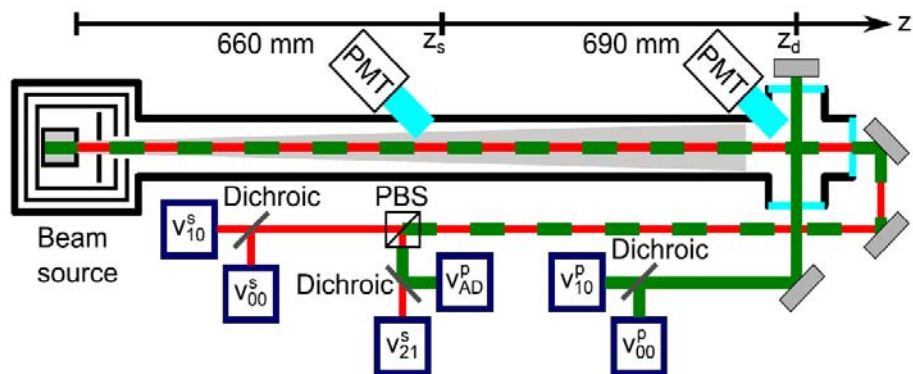


图 1.5 SrF 分子纵向激光减速实验装置[32]。红色实线（绿色虚线）代表减速（探测）激光。

2014 年英国 Imperial College London 的 Hinds 小组报道了针对 CaF 分子的减速实验，实验装置如图 1.6 所示，他们所用的分子束为超声膨胀束，而所用的减速原理为激光扫频 [30]。CaF 的超精细分裂的覆盖手段也是通过 EOM 和声光调制器（AOM）为激光加入边带。CaF 分子束来源于被激光消融的钙固体靶材和六氟化硫气体的反应，并由氩气作为载气获得 600 m/s 左右的超声束源。为了验证激光扫频方法的效果，他们首先直接用频率锁定的激光减速分子束，然后他们利用调制频率连续改变的 AOM 对分子实施扫频减速，获得的速度改变（34 m/s）比不进行激光扫频多一倍[30]。当然由于超声束本身较高速度的限制，获得的减速效果并不是非常显著。

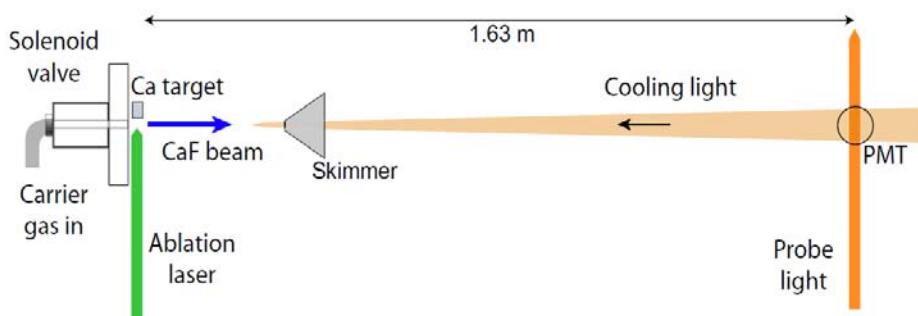


图 1.6 CaF 超声分子束的纵向激光减速实验装置[30]

2015 年美国 Colorado 大学的 JILA 的 Jun Ye 小组报道了针对 YO 分子的纵向减速实验，与其他小组不同的是，为了获得初始速度更低的预冷分子束，他们

利用包含两级缓冲气体腔的分子束产生装置，获得分子束的纵向中心速度为 75 m/s，这比采用一级缓冲气体结构得到的速度降低了一倍左右。用来减速的激光既加入了多级边带，又进行频率的扫描，即结合了如前所述的两种补偿多普勒失谐的方式来对 YO 分子束进行减速。另外，与 SrF、CaF 等分子不同的是，YO 的能级结构中在 X 态和 A 态存在一个中间电子态，这将导致分子转动态跃迁的不封闭性，即由于跃迁的字称选择定则，分子会自发衰减至主要的跃迁循环之外的转动能级暗态。他们解决该方法为，在减速区域加入微波场来驱动转动跃迁，从而进行亮、暗态的混合。整个减速实验的装置如图 1.7 所示，采用如上所述的束源和技术，中心速度为 75 m/s 的缓冲气体分子束获得了显著的减速效果，小于 10 m/s 的分子的数量增加很多，而这些低速的分子则将被三维磁光阱（MOT）所捕获[33]。

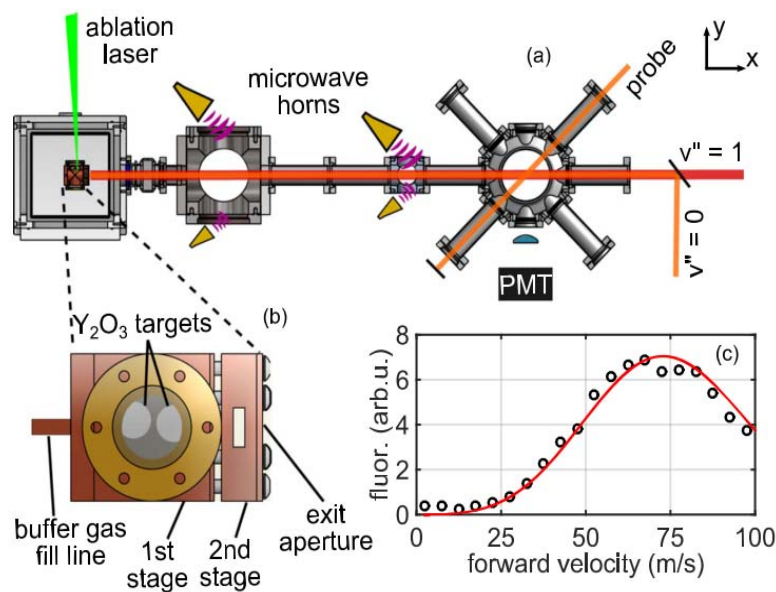


图 1.7 YO 分子的激光减速实验装置图[33]。其中(b)为二级缓冲气体冷却低温腔，(c)为从低温腔出射的分子束速度分布。

2016 年美国哈佛大学的 Doyle 小组成功地利用超宽频带的激光将 CaF 分子束减速到了可以被 MOT 捕获的范围之中[29]。与 Jun Ye 小组的 YO 减速实验相似，他们也利用了二级缓冲气体束源来制备更为低速的分子束，获得的缓冲气体

束的纵向初速度中心为 60 m/s。为了较大程度地展宽激光频谱, 获得类似“白光”减速的效果, 两束激光 (即 1 束主泵浦加 1 束反抽运的组合) 均利用两台调制深度非常高的 EOM 加入了多级边带, 最终能够获得的激光频谱如图 1.8 所示, 其频率范围在 400 MHz 左右。利用这样的宽频激光, 他们成功地将分子速度降低到 10 m/s, 且单次分子束脉冲能够被减速的分子个数达到了 6 万个左右, 这为实现 CaF 的三维 MOT 铺平了道路[29]。

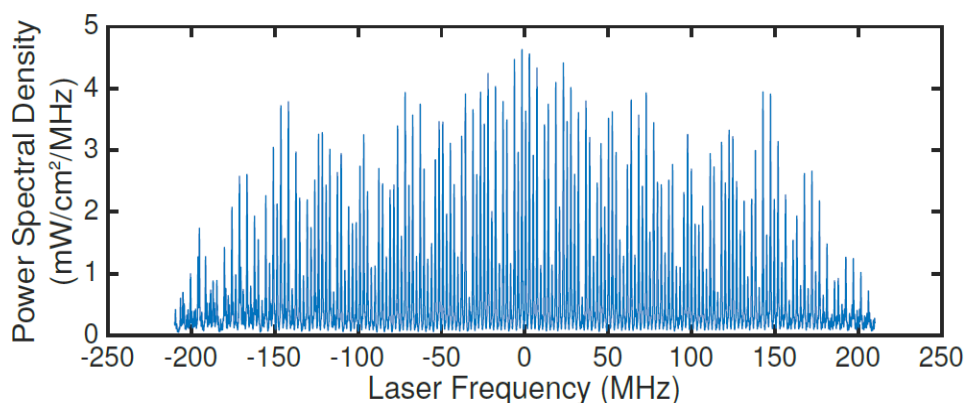


图 1.8 宽频带激光方法减速 CaF 分子的展宽后的激光频谱图[29]

2016 年 Hinds 小组将之前所用的 CaF 超声分子束改为速度更低的缓冲气体束, 并首次采用在缓冲气体腔中的化学反应方法来产生 CaF 分子, 如图 1.9a 所示。在充满氦气的低温腔中, 被激光消融的 Ca 固体靶材与气态六氟化硫反应产生 CaF 并经过低温腔的小孔提取成为分子束 ($v_f = 178$ m/s)。为了实现 CaF 缓冲气体束的激光减速, 他们对两种补偿多普勒频移的方法 (即激光扫频和宽频带激光方法) 均进行了减速实验的研究并作了对比, 并且通过多次尝试获得了最优的实验参数。其中, 对于采用激光扫频来说, 如果频率的扫描速度达到 37 MHz/ms, 从上述缓冲气体束源中喷出的分子速的中心速度可以被快速减到 15 m/s, 速度分布的宽度小了 10 倍, 如图 1.9b 所示, 达到了磁光阱的速度捕获范围之内, 而单脉冲的分子数密度则达到了 $7 \times 10^5/\text{cm}^3$ [34]。

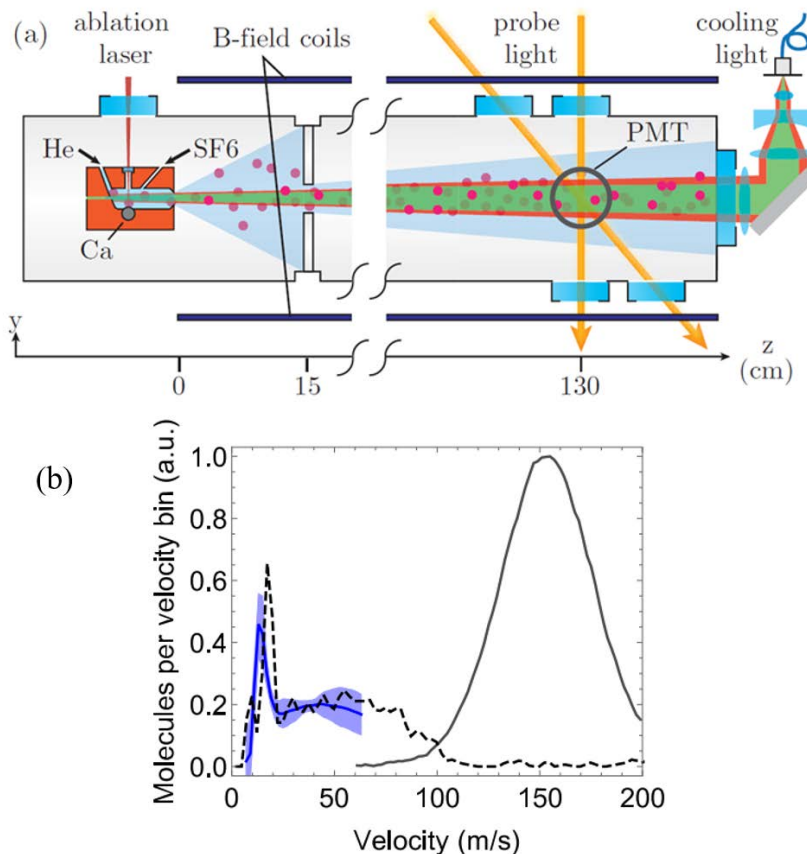


图 1.9 CaF 分子的激光减速实验装置图[34]。(a) 产生 CaF 的缓冲气体束源及激光减速、速度探测实验装置。(b) 分子束的初始速度（实线）和末速度（虚线）分布。

在双原子分子的激光减速获得一系列突破的同时，更加复杂的三原子分子的激光冷却的理论实验研究也获得了关注。

与双原子分子类似，某些特殊的多原子分子的 Franck-Condon 因子也具有实现准闭合能级系统的潜力。美国哈佛大学的 Doyle 小组于 2016 年即报道了 SrOH 分子的多光子散射以及激光对分子束的横向偏转效果，从而验证了对多原子分子实施激光冷却的可行性[35]。如图 1.10 所示，SrOH 分子同样来源于在缓冲气体冷却低温腔中激光消融 $\text{Sr}(\text{OH})_2$ 样品，他们利用分子的 $\tilde{X}^2\Sigma^+(000) \rightarrow \tilde{A}^2\Pi_{1/2}(000)$ 作为主要的跃迁，并加以 $\tilde{X}(100) \rightarrow \tilde{B}(000)$ 的反抽运激光，实现了分子束的 0.2° 的横向偏转，其中散射了大约 100 次光子[35]。

2017 年，他们又研究了针对 SrOH 分子的磁场辅助的 Sisyphus 冷却效果，使得来自于缓冲气体束源的分子束的一维横向温度达到了 $\sim 750 \mu\text{K}$ ，它比初始

温度降低了 2 个数量级, 这进一步为通过激光冷却获得超冷的多原子分子样品奠定了基础[36]。

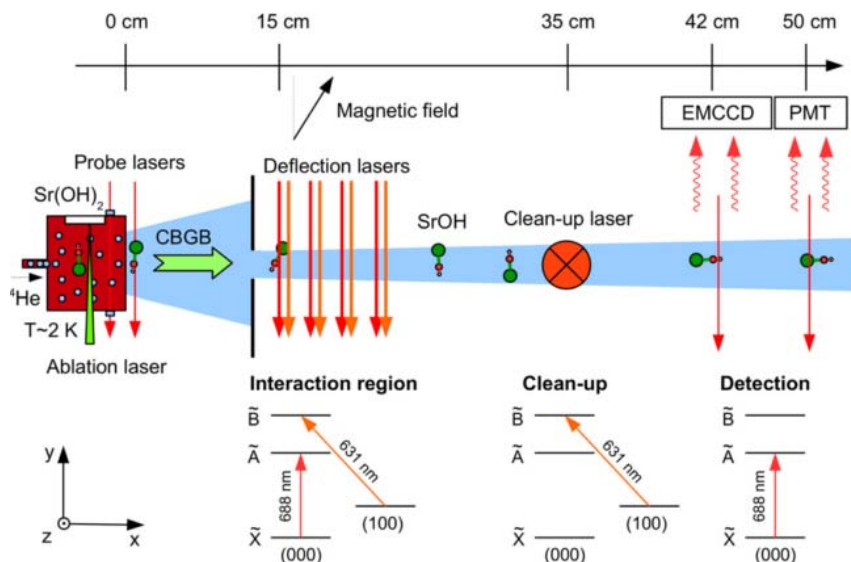


图 1.10 SrOH 分子横向偏转实验装置图以及所选用的分子跃迁[35]

以上所介绍的分子激光减速的思想均为所谓的自发辐射力（或辐射压力）减速, 在另一方面, 分子的受激辐射减速的概念也在近十年来逐渐被人们研究和熟知, 该概念首先在原子的减速手段中被提出[37], 并成功应用于某些原子的减速[38, 39], 后来美国康涅狄格大学的 E. E. Eyler 教授等人将其引入分子的减速中, 并对多能级系统中分子的受激辐射力减速的理论研究方法进行了发展[40-42]。目前实际采用该方法来减速分子的实验报道很少, 仅在 2018 年初由 Doyle 小组利用双色力实现了 SrOH 分子束的横向偏转, 并与采用辐射压力进行分子束偏转的效果进行了对比, 证实了受激辐射减速这一方法的优越性[43]。但应该注意到, 随着人们对于辐射压力减速在减速效果、减速距离等方面存在的局限性的认识, 以及对于实现用于精密测量的重原子分子的快速、短距离的减速需求, 受激辐射力减速的概念可能会被越来越多的人采纳, 并应用于分子减速。有关受激辐射力减速的具体内容, 将在本文第四章进行详细地讨论。

1.4 分子磁光囚禁的研究进展

在冷原子的囚禁技术中，磁光囚禁（MOT）是一项应用最为广泛的方案，即利用原子在磁场中的 Zeeman 能级移动和三维方向的光辐射压力来产生回复力，从而有效囚禁和冷却原子。磁光囚禁可以捕获并冷却原子系综到小于 1mK 的超冷温度，同时它也是实现玻色—爱因斯坦凝聚的必备工具，MOT 的基本装置和原理示意图如图 1.11 所示[24]。

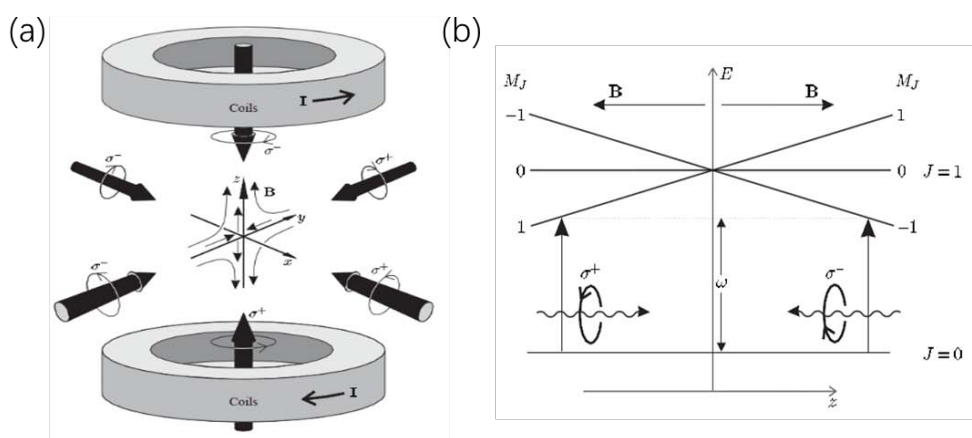


图 1.11 MOT 的基本装置(a)和原理(b)示意图[24]

作为分子激光冷却的后续步骤和实现超冷分子的关键步骤，分子的囚禁目前是近几年来国际上的重点研究方向，然而，分子的复杂结构使得实现磁光囚禁的困难之处表现在以下两个方面：首先，不封闭的振动能级跃迁需要更多波长的激光以及具有高度对角化 Franck-Condon 因子的分子[26]；其次，分子丰富的内态能级使得在构建准封闭循环系统时，出现不参与循环的暗态，从而终止循环。面对这些困难和瓶颈，人们在探索的道路上迎难而上，取得了一系列的实验和理论研究进展，下面将进行简单的介绍。

2013 年，美国 JILA 的 Jun Ye 小组通过同时扫描磁场和偏振成功实现了 YO 分子的二维磁光囚禁（2D MOT），温度为 2 mK，实验原理如图 1.12 所示[44]。在左旋圆偏振光的作用下，分子将逐渐全部布居在 -1 态上，成为暗态，无法参与循环；此时改变磁场方向，让-1 态翻转到离上能级更近，也即激发率更大，同

时改变偏振，让-1 态参与循环，这样通过时序周期性地切换偏振和磁场，使得参与循环的布居数始终维持较高状态，保证大的激发率，从而产生更大的力。

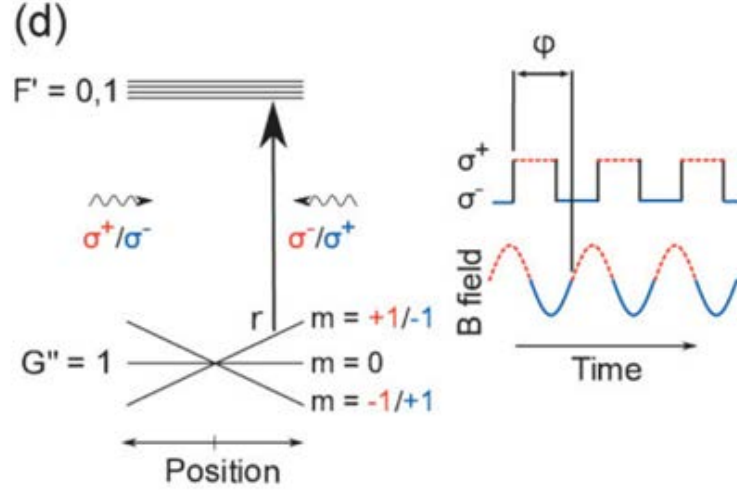


图 1.12 YO 分子的二维 MOT 实验方案[44]

2014 年耶鲁大学的 DeMille 小组则第一次实现了 SrF 分子的三维磁光囚禁 (3D MOT)，温度是 2.5 mK，囚禁的分子数目是 300 个[45]，并于 2016 年将分子数目提高到 10000 个，温度减到 250 μ K，逼近 SrF 分子的多普勒冷却极限[46]。

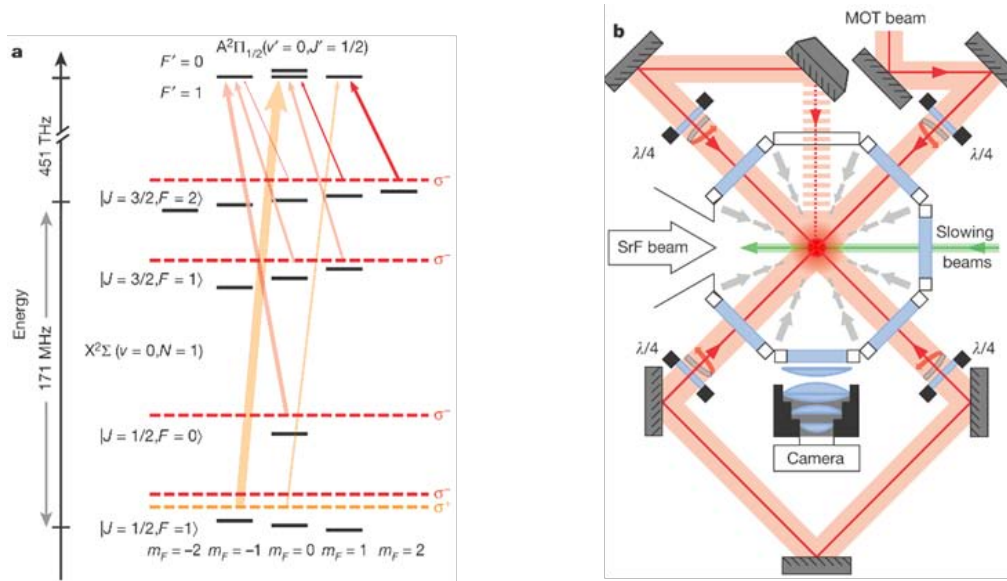


图 1.13 SrF 分子三维磁光囚禁的激光泵浦方案和实验装置图[45]

他们采用的激光泵浦方案如图 1.13 左图所示，红色线为泵浦光，主要覆盖基态的上面三个超精细能级，橙色线是额外添加的右旋圆偏振光，主要覆盖基态的最下面一个超精细能级，实验中 MOT 的通光路径和装置如图 1.13 右图所示。

2017 年，帝国理工大学的 Hinds 小组利用光学黏胶技术首次突破 CaF 分子的多普勒冷却极限，达到 50 uK，分子数目是 $(0.8 \pm 0.2) \times 10^5$ ，其中，他们采用化学反应的方法来产生样品分子，获得了更加稳定的分子束源，并通过激光扫频的方法来减速分子，获得了更高的减速效率，其实验装置如图 1.14 所示[47]。

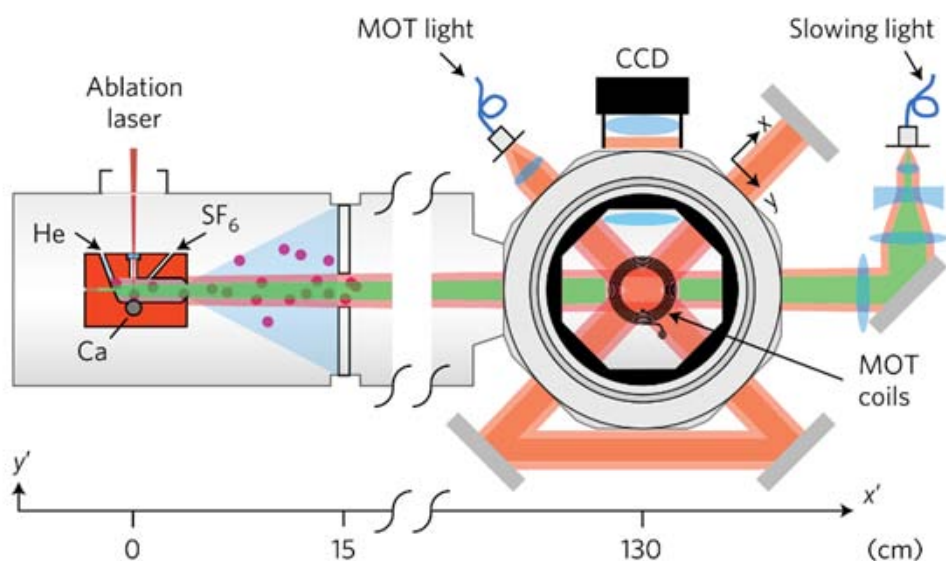


图 1.14 CaF 分子的缓冲气体束源和三维磁光囚禁实验装置图[47]

同年，哈佛的 Doyle 组也采用了化学反应的方法产生 CaF 分子，并最终实现了 CaF 分子的三维磁光囚禁，数目是 $1.0(3) \times 10^5$ ，温度是 $340(20) \mu\text{K}$ [48]。

另一方面，分子磁光囚禁的理论也在向前推进，Hinds 小组的 Tarbutt 通过求解 CaF 分子三维磁光囚禁速率方程，在多普勒冷却层次上系统分析了偏振光组态对上下能级 g 因子依赖关系，以及对于 I 型、II 型 MOT 两种不同情况的偏振选择，并且发现了三维直流 MOT 的潜在巨大囚禁和冷却力，将其命名为“双频效应”[49, 50]。之后，又利用光学布洛赫方程（OBE），从亚多普勒冷却层次分析了 MOT 与激光偏振、失谐、磁场的相关性，并且解释了分子 MOT 难以突破多普勒

冷却极限的原因[51]。

综上所述，分子激光冷却与囚禁每一步都困难重重，但同时又向我们展示了探索物质世界的更多途径和可能性，是一项充满挑战但又具有辉煌前景的项目，值得我们为之付出，为之贡献。

1.5 本文的研究工作

本文主要聚焦于缓冲气体冷却与分子激光冷却的理论与实验研究，以我们课题组选用的 MgF 分子为基础，从激光冷却中候选分子的选择、分子能级结构、低温缓冲气体分子束源、高分辨率分子光谱、钛宝石激光倍频与稳频系统、分子激光冷却与减速方案、冷分子（束）的应用等方面对与分子激光冷却相关的关键理论和实验技术进行了开拓性和深入的研究。

第二章，重点介绍用于激光冷却的分子的选择依据以及选用的 MgF 分子的能级结构，并讨论如何构造 MgF 分子准闭合的能级跃迁循环。通过分析分子的 Frank-Condon 因子、转动跃迁的闭合性、超精细能级结构等，我们将阐明构建 MgF 的准封闭跃迁的方案以及 MgF 作为激光冷却中候选分子的优越性。

第三章，详细介绍用于制备预冷的 MgF 分子束所需要的缓冲气体冷却束源的设计和构造，以及利用低温分子束源所测量出的 MgF 分子的吸收光谱和分子束的激光诱导荧光光谱。我们将采用化学反应方法制备 MgF 分子，并根据缓冲气体冷却的理论设计低温腔，构建真空低温环境。通过分析实验测到的分子吸收谱带的精细结构，得到与分子激光冷却实验的相关的光谱参数，并通过分子束的激光诱导荧光对 MgF 基态的超精细分裂间距进行验证。

第四章，主要介绍两台分别作为 MgF 的激光冷却中的主泵浦光和反抽运光的钛宝石激光器的实验准备，包括激光倍频、线宽压窄和长期频率稳定。我们将对两台钛宝石激光器和倍频腔的功率、效率表现进行测量，并结合两种稳频方法（传递腔稳频和透射峰边沿锁频）发展一种兼顾长期频率稳定和频率可任意调谐的稳频方案，从而得到窄线宽、长期频率稳定性的紫外激光。

第五章，重点介绍为 MgF 分子设计的两种激光减速方案，包括通过激光扫

频进行自发辐射力减速, 利用双色激光场进行受激辐射力减速, 以及相应减速方案的理论模拟结果。基于对受激辐射力特性的理解, 还提出一种可应用于重分子的快速、短距离减速的恒定相位减速新方法。

第六章, 探讨冷分子的应用前景, 并提出一种新颖的利用冷分子束和表面等离子激元干涉场进行分子沉积的方案。首先介绍利用简单的装置和一束激光来获得二维表面等离子激元干涉场的方法, 然后研究通过改变入射激光的偏振来获得不同形状的纳米尺度表面光学晶格的可行性, 最后对表面晶格场中的分子沉积进行模拟, 并讨论改善分子沉积分辨率的方法。

第七章, 总结本文的主要内容和创新之处, 并对将来的分子激光冷却与磁光囚禁的研究工作进行展望。

第二章 MgF 分子的能级结构

2.1 引言

与原子相比, 构建一个分子的封闭跃迁循环系统是相当困难的, 这些困难主要表现在: (1) 分子具有更加复杂的能级结构: 电子能级、振动能级、转动能级、超精细能级及其丰富的磁子能级等[25]; (2) 振动能级的跃迁并没有严格的选择定则支配, 而是由其 Frank-Condon 决定[26]; (3) 虽然可以依据转动跃迁的选择定则来选择合适的转动能级实现转动跃迁的封闭, 但是通常选择的转动跃迁属于所谓 Type-II型跃迁, 即上态的量子数大于下态的跃迁, 这将导致无论如何选择激光的偏振, 都无法避免简并的磁子能级暗态的存在。

2004 年的一篇理论文章对于长期困扰人们的分子激光冷却来说是一个特殊的突破口, DiRosa 以 CaH 分子为例[26], 阐述了可以通过选择某些特殊的分子体系构造准闭合的跃迁循环, 通过散射 10^4 以上的光子来保证分子激光冷却的可行性, 之后的几年无论是理论和实验均在该领域取得了重大的进展, 一系列分子, 例如 SrF[23, 32]、CaF[30, 29]、YO[33]、YbF[52]、MgF[22]、BaF[53]等均成为激光冷却的候选分子。总结起来, 一个理想的适合于激光冷却的分子应该满足如下几个条件:

- (1) 具有高度对角化的 Frank-Condon 因子的电子态跃迁[26]。
- (2) 具有跃迁波长处于目前激光器可以覆盖波段的电子态跃迁。
- (3) 具有寿命短的电子激发态, 实现快速的光子散射。
- (4) 具有较小的饱和光强, 减小对激光器功率的要求。
- (5) 具有最小的核自旋, 最好无核自旋, 使得超精细结构简单。
- (6) 具有较轻的质量, 保证减速距离不能过长。
- (7) 超精细能级分裂间距在电光或声光调制器覆盖的范围内。
- (8) 跃迁的上、下态之间最好没有中间态。

满足如上几个条件的分子选择是进行分子激光冷却的先决条件, 它决定了实验装置的复杂程度、难易程度等。下面就我们小组选择的 MgF 分子进行具体分

析，在此之前先简单介绍双原子分子的能级理论。

2.2 双原子分子能级结构

在一个分子中，由于多个原子核的存在引入了原子系统中并不存在的附加自由度。具体而言，多个原子核之间可以相对于彼此振荡，或者彼此围绕旋转，这就使得分子具有附加的转动和振动能级结构[25]。首先，只考虑双原子分子，对本文中将要使用的量子态的定义和标记进行简单介绍，典型的双原子分子的能级结构如第一章中的图 1.3 所示。

2.2.1 能级结构概述

在分子中，最大的能量间隔对应于其电子状态，这些间隔的量级为 100-1000 THz，目前常用的激光光源通常可以覆盖这些电子态之间的跃迁。电子态通常使用字母标记，其中 X 表示基态，A, B, C...表示第一，第二，第三激发态，它们与基态具有相同的多重性，而小写字母 a, b, c, ...用于表示与基态具有不同多重性的激发态 [54]。

与原子类似，也可以使用符号来标记分子的电子状态，原子的电子态的符号标记为： $^{2S+1}L_J$ ，其中 S 为总自旋， L 为轨道角动量， J 为总角动量[24]。在原子中的电子所受到的库仑力是相对于原子核成球对称的，但在双原子分子中由于第二个核的存在使得情况发生变化，此时库仑力相对于分子的核间轴呈圆柱对称性，我们可以将坐标系的 z 轴定义为沿着核间轴，并且如同在原子情形中一样使用电子的轨道和自旋角动量算符 $\hat{L}$ 和 $\hat{S}$ ，但要注意的是，分子中的 $\hat{L}$ 并不与分子的电子哈密顿量对易，即 L 不是一个好的量子数，由于圆柱对称性的存在， $\hat{L}$ 沿着 z 轴的投影 $\hat{L}_z$ 与哈密顿量对易[25]。为了区分分子坐标系和实验室坐标系，与 $\hat{L}_z$ 对应的在 z 轴投影的量子数通常标记为 Λ ，而与 $\hat{S}_z$ 对应的则标记为 Σ ，由于自旋—轨道相互作用，具有 $|\Lambda| > 0$ 的能级将会发生分裂。类似地，总角动量 $\hat{J}$ 沿 z 轴的投影量子数被标记为 Ω ，其中 $\Omega = \Lambda + \Sigma$ ，其中 $\pm\Lambda$ 状态对应于轨道角动量是围绕 z 轴成顺时针还是逆时针方向，并且这两个状态的能量在一阶下是相等的，而以 $\pm\Omega$ 标记的状态也是这种情况，因此将使用量子数的绝对值 $|\Lambda|$ 和 $|\Omega|$ 来标记这些状态。

与原子类似， $|\Lambda|$ 态也使用希腊字母标记，与 $|\Lambda| = 0, 1, 2, 3 \dots$ 状态对应的符号分别为 $\Sigma, \Pi, \Delta, \Phi \dots$ ，对于给定的自旋 S ， Σ 共包括 $2S+1$ 个值，因此可以将分子的谱项符号写为[54]：

$$^{2S+1}|\Lambda|_{|\Omega|}^{(+/-)} \quad (2.1)$$

其中，+号或-号用来表示该状态相对于包含 z 轴的平面的反映是对称还是反对称，这样的平面有无数个，但对于所有的 $|\Lambda|$ 态，有一个态对于平面的反映为对称的，有一个态则为反对称的。对于 $\Lambda \neq 0$ 的态来说，这些态是简并的，但 Σ^+ 和 Σ^- 态不是简并态。

在电子能级内部，能量尺度最大的为振动能级，其能级间隔约为 50 THz[25]，对于处在分子的平衡核间距离附近的小位移来说，势能近似可用谐振子描述，其能量本征值为：

$$E_v = \hbar \sqrt{\frac{k_{nuc}}{m_r}} \left(v + \frac{1}{2}\right) \quad (2.2)$$

其中 m_r 为核的约化质量， k_{nuc} 为弹性系数， v 为振动量子数。对于具有较低 v 的振动态来说，这是一个很好的近似，但对于偏离平衡核间距的位移较大的态来说，势能则显示出非谐性，一般以幂级数形式给出：

$$E_v = \omega_e \left(v + \frac{1}{2}\right) - \omega_e x_e \left(v + \frac{1}{2}\right)^2 + \omega_e y_e \left(v + \frac{1}{2}\right)^3 + \dots \quad (2.3)$$

其中 ω_e 为振动常数， $x_e, y_e, \dots$ 等为非谐性常数，且 $\omega_e \gg \omega_e x_e \gg \omega_e y_e$ 。振动态能级之间的间隔将随着 v 的增加而减小[54]。本文将用量子数 v 表示电子基态中的振动能级，而用 v' 表示电子激发态中的振动能级。

在振动能级内部，进一步还存在能量尺度更小的转动结构，它对应于两个原子核关于其惯性中心的旋转。转动能级之间的间隔在 10-100 GHz 的量级[25]，所以转动能级之间的跃迁通常可以由商用的微波源驱动。

转动能级的能量近似可以由刚性转子的能量估计：

$$E_{rot} = BR(R + 1) \quad (2.4)$$

其中 R 为转动量子数， B 为转动常数：

$$B = \frac{\hbar^2}{2I} \quad (2.5)$$

其中 I 为转动惯量，它是一个与电子能级和振动能级有关的量[25]。对于能量较高的转动态，分子会由于离心力而被拉伸，考虑到离心畸变效应以及由于核间距的增大而引起的振动能级的能量变化，转动能量也通常以幂级数形式给出：

$$E_{rot} = B_v R(R + 1) - D_v R^2(R + 1)^2 + H_v R^3(R + 1)^3 + \dots \quad (2.6)$$

其中 B_v 为振动态 v 的转动常数， D_v, H_v 为离心畸变常数。

在一个分子中，如果其原子核具有核自旋 $\hat{I}$ ，则总角动量可以标记为 $\hat{F} = \hat{J} + \hat{I}$ ，其中 $\hat{J}$ 为不含核自旋的总角动量。对于 J 量子数的每一个值， F 所能取的值为 $F = J + I, J + I - 1, \dots, |J - I|$ 。并且，每一个 F 值都具有 $2F + 1$ 个超精细磁子能级，标记为 m_F 。

2.2.2 角动量耦合

到目前为止，已经讨论过电子轨道角动量 $\hat{L}$ ，原子核的转动角动量 $\hat{R}$ ，以及电子自旋角动量 $\hat{S}$ ，它们都可以互相耦合。各种洪特情形是一些理想化的各种角动量之间耦合方式的分类[54]，可以帮助我们更好地理解分子结构，洪特情形共包含 5 种，其中最常见的是情形 (a) 和 (b)，这也是本文主要用到的两种情形，其中涉及的角动量包括： $\hat{J}$ 为总角动量， $\hat{N}$ 为不含电子自旋的总角动量，即 $\hat{N} = \hat{J} - \hat{S}$ ，且有 $\hat{R} = \hat{N} - \hat{L}$ ，下面进行简单介绍。

洪特情形 (a) 如图 2.1 左图所示，在这种情形中，核的转动与电子的运动之间的相互作用是非常弱的，而 $\hat{L}$ 与 $\hat{S}$ 之间的互相耦合以及与核间轴 z 的耦合则非常强，且二者沿 z 轴的投影分量 Λ 和 Σ 则是好量子数， Ω 的情况也类似。 $\hat{L}$ 和 $\hat{S}$ 关于 z 轴的进动速度比 $\hat{R}$ 绕 $\hat{J}$ 的进动快得多。该情形的好量子数分别为 $\Lambda, S, \Sigma, J, \Omega$ ，其适

用条件为 $A\Lambda \gg BJ$ ，其中 A 为自旋—轨道耦合常数[54]。

在该情形中， $\hat{L}$ 和 $\hat{S}$ 绕核间轴的进动可能为顺时针或逆时针两种，相应的两种状态具有同样的能量，其投影为 $\pm\Lambda$ 和 $\pm\Sigma$ ，因此 Ω 也为双重简并的。 Λ 的简并被称为 Λ 双重态，而 Ω 的简并则称为 Ω 双重态，且由于分子的转动，或它与邻近的具有不同 Λ 值的电子态的相互作用，该简并会消除。

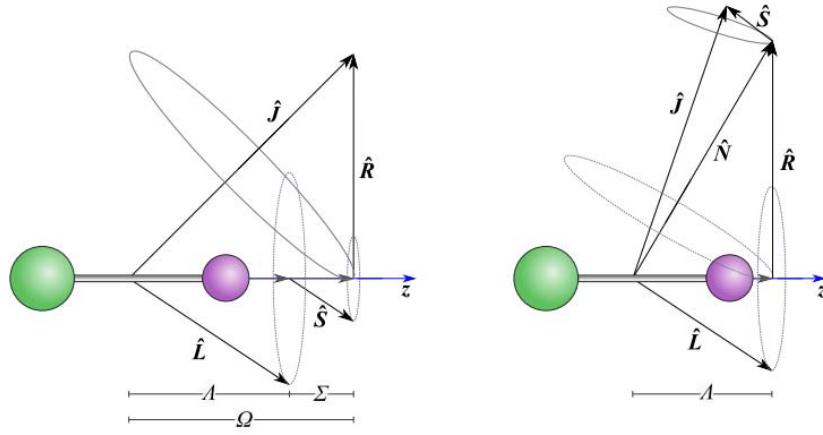


图 2.1 双原子分子中角动量耦合的洪特情形 (a) (左图) 和 (b) (右图)

洪特情形 (b) 如图 2.1 右图所示，如果分子的转动能量比自旋—轨道耦合能量要大得多，或者 $\Lambda = 0$ ，那么洪特情形 (b) 是一个很好的描述[54]。其中， $\hat{L}$ 快速地绕 z 轴进动， Λ 是一个好量子数，而 $\hat{R}$ 与 $\hat{L}$ 耦合形成 $\hat{N}$ ，然后 $\hat{N}$ 再与 $\hat{S}$ 耦合形成 $\hat{J}$ ，而 $\hat{N}$ 沿 z 轴的投影也为 Λ 。该情形的好量子数分别为 Λ, N, S, J ，其适用条件为 $A\Lambda \ll BJ$ 。

2.2.3 跃迁选择定则

分子中电偶极跃迁的选择定则如表 2.1 所示，其中 m_j 为磁量子数， $m_j = -J, 1-J, \dots, J$ ，共有 $2J+1$ 个值，注意 m_j 的选择定则与用来驱动跃迁的激光的偏振有关。另外，对于所有的电偶极跃迁，初态和末态的字称都必须相反[54]，即 $\Delta P = \pm 1$ 。

表 2.1 分子中电偶极跃迁的选择定则

转动跃迁	$\Delta J = 0, \pm 1, \Delta m_J = 0, \pm 1$
振动跃迁	$\Delta v = \pm 1, \Delta J = 0, \pm 1, \Delta m_J = 0, \pm 1$
电子跃迁	$\Delta v - no \text{ selection rule}, \Delta J = 0, \pm 1, \Delta m_J = 0, \pm 1$

如上表所示，发生在电子跃迁之间的振动跃迁并没有选择定则，其跃迁强度由 Frank-Condon 因子决定。它可以表示为跃迁前后的两个振动态的波函数的重叠部分的平方[25]:

$$f'_{v',v} = |\langle \psi_{v'} | \psi_v \rangle|^2 \quad (2.7)$$

其中 $\psi_{v'}$ 和 ψ_v 分别表示上下电子态的振动波函数。通常情况下，分子的激发态会衰减到许多基态的振动能级上，所以为了形成一个封闭的跃迁循环，需要大量的激光束才有可能实现。但如果在一个激发态中，电子的激发对振动势能的影响非常小，那么 $v' = v$ 的 $v' \rightarrow v$ 跃迁将会非常相似，也就是说这个跃迁具有高度对角化的 Frank-Condon 矩阵，在这种情形下，关系 $f_{0,0} \gg f_{0,1} \gg f_{0,2} \gg \dots$ 成立，这样的分子对激光冷却来说才是适合的。

对于具有超精细结构的分子来说，其跃迁的选择定则为 $\Delta F = 0, \pm 1, \Delta m_F = 0, \pm 1$ ，但当 $\Delta F = 0$ 时， $m'_F = 0 \rightarrow m_F = 0$ 是禁止的。注意， m_F 的改变与用来驱动跃迁的激光偏振有关。

2.3 MgF 分子的能级结构

我们小组从 2010 年开始从事分子激光冷却的理论研究，于 2012 年开始从事分子激光冷却的实验研究。基于大量调研和理论计算，最终选择了 $^{24}\text{Mg}^{19}\text{F}$ 自由基作为激光冷却的分子。下面简单总结一下 MgF 分子的能级结构以及构建准封闭的循环跃迁方案。

2.3.1 电子跃迁与振动跃迁

首先计算激光冷却中将使用的 $X^2\Sigma^+ \rightarrow A^2\Pi_{1/2}(0,0)$ 跃迁的波长以及为了形成准封闭跃迁循环所加入的反抽运光驱动的 $X^2\Sigma^+ \rightarrow A^2\Pi_{1/2}(1,0)$ 跃迁的波长, 根据如表 2.2 所示的电子态的光谱常数, 计算所得到的跃迁波长如表 2.3 所示[22]。

表 2.2 MgF 分子 $X^2\Sigma^+$ 态与 $A^2\Pi$ 态的光谱常数

电子态	$T_e(\text{cm}^{-1})$	$\omega_e(\text{cm}^{-1})$	$\chi_e\omega_e(\text{cm}^{-1})$	$R_e(\text{\AA})$	$\tau(\text{ns})$
$X^2\Sigma_{1/2}^+$	0	721.6[55]	4.94 [55]	1.7500[55]	
		720.14[56]	4.26 [56]	1.7499[56]	
$A^2\Pi_{1/2}$	27816.1[57]	740.12[57]	3.97[57]	1.7469[57]	7.16[58]

从表 2.3 中我们可以看到跃迁波长集中在 360 nm 左右的紫外波段, 为了产生功率较高的激光并能够覆盖该跃迁波段, 我们可以使用商用钛宝石激光器并通过激光倍频得到所需要的激光, 为了实现激光冷却, 激光器的频率稳定也是非常重要的步骤, 关于激光器的倍频和稳频我们将在第四章详细介绍。

表 2.3 MgF 分子 $A^2\Pi \rightarrow X^2\Sigma^+$ 跃迁的波长

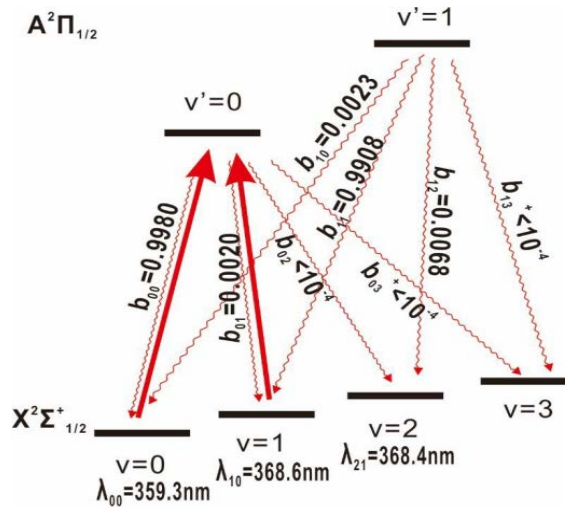
跃迁波长 $\lambda_{\text{v-v'}}$ (nm)	λ_{00}	λ_{10}
理论计算值	359.38	368.81
文献测量值[55]	359.33	368.76

其次, 我们计算了 $X^2\Sigma^+ \rightarrow A^2\Pi_{1/2}$ 的振动态跃迁的 Frank-Condon 因子, 在计算过程中, 可以先通过简单的闭合近似的理论[59]大致地估计出它们的范围, 然后再用 Morse 势和 RKR 反演法较为精确地计算[25]。利用如表 2.2 所示的光谱常数, 我们的计算结果如表 2.4 所示[22]。

表 2.4 采用不同的方法计算出的 MgF 分子 $A^2\Pi \rightarrow X^2\Sigma^+$ 跃迁的 Frank-Condon 因子

计算方法	f_{00}	f_{01}	f_{02}	f_{03}
	f_{10}	f_{11}	f_{12}	f_{13}
闭合近似	0.99897	0.00103	<0.00001	<0.00001
	0.00103	0.99690	0.00206	<0.00001
Morse 势	0.99800	0.00151	0.00002	<0.00001
	0.00148	0.99400	0.00407	0.00005
RKR 反演法	0.99779	0.00220	<0.00001	<0.00001
	0.00216	0.99045	0.00736	<0.00001

从上表中我们可以看到，三种方法计算出的 Frank-Condon 因子结果是相对一致的。注意到实际的振动态的跃迁分支比还与跃迁的辐射频率有关，最终计算出的 MgF 分子的 $X^2\Sigma^+ \rightarrow A^2\Pi_{1/2}$ 跃迁的电子和振动态能级结构和振动分支比如图 2.2 所示，该图中不但描述了 MgF 分子的振动跃迁分支比情况，也标出了我们在激光冷却中将要采取的激光泵浦和反抽运方案，其中红色虚线代表自发辐射通道，红色实线代表泵浦方案。

图 2.2 MgF 分子的 $A^2\Pi \rightarrow X^2\Sigma^+$ 跃迁的能级结构和振动分支比

假设我们采用的低温缓冲气体束源产生的 MgF 分子束的纵向速度为 200 m/s,

359.3nm 的激光的光子动量约为 $1.8 \times 10^{-27} \text{ kg}\cdot\text{m/s}$ ，则通过我们的计算发现，只需要散射 8000 次光子即可将其减速至停止。根据 $A^2\Pi_{1/2}$ 自发辐射的跃迁分支比（如图 2.2 所示）， $b_{00} + b_{01} > 0.9999$ ，则只需要一束驱动 $v = 0 \rightarrow v' = 0$ 的主泵浦光，和一束驱动 $v = 1 \rightarrow v' = 0$ 的反抽运光，即可在分子完全衰减至基态 $v \geq 2$ 的高振动能级（它们也属于一种暗态）之前完成分子的减速，从而实现了电子态和振动态跃迁的准封闭性。另外，MgF 分子的激发态的寿命很短，只有 7.2 ns，对应着一个很大的自发辐射速率， $\Gamma = 2\pi \times 22.1 \text{ MHz}$ ，从而保证了较大的自发辐射力以及较短的减速时间。

2.3.2 转动跃迁与超精细结构

为了进一步构建分子激光冷却中准闭合循环跃迁，需要考虑 MgF 分子振动能级内部的转动能级，以及更进一步的超精细结构。

MgF 的 $X^2\Sigma^+$ 态的角动量耦合以洪特情形(b)来描述，除了转动能级和精细能级外，由于该分子中的 ^{24}Mg 无核自旋而 ^{19}F 具有核自旋 $I = 1/2$ ，它还存在超精细能级分裂。因为其超精细相互作用的大小与自旋—轨道相互作用的大小相当，所以 J 不是一个好量子数[22]，转动能级的子能级用总角动量量子数 F 来标记。对于 $X^2\Sigma^+(v = 0)$ 振动能级来说，其内部的转动、超精细能级分裂如图 2.3 所示，其中 $N=1$ 能级中的两个 $F=1$ 能级分别加入上标+或—来标记能级高低，注意这两个能级是 $J = 3/2$ 和 $J = 1/2$ 的混合态。另外， $X^2\Sigma^+$ 内部的各转动能级的宇称 P 取决于转动量子数 N ，即 $P = (-1)^N$ ，所以 $N=1$ 能级为奇宇称。

MgF 的 $A^2\Pi_{1/2}$ 态的角动量耦合以洪特情形(a)来描述，其中 $(v' = 0, J' = 1/2)$ 能级存在 Ω 双重分裂以及进一步的超精细分裂。相比于 X 态来说， A 态的超精细分裂要小得多，一般我们可以认为它们是简并的。在激光冷却中，我们选择 Ω 双重态中具有偶宇称的下态，这样如果我们使用 $X^2\Sigma^+(v = 0, N = 1, -) \leftrightarrow A^2\Pi_{1/2}(v' = 0, J' = 1/2, +)$ 跃迁，根据精细和超精细跃迁的选择定则以及宇称选择定则 ($\Delta J = 0, \pm 1, \Delta F = 0, \pm 1$, 宇称相反)，转动态跃迁的封闭性即得到了保证。

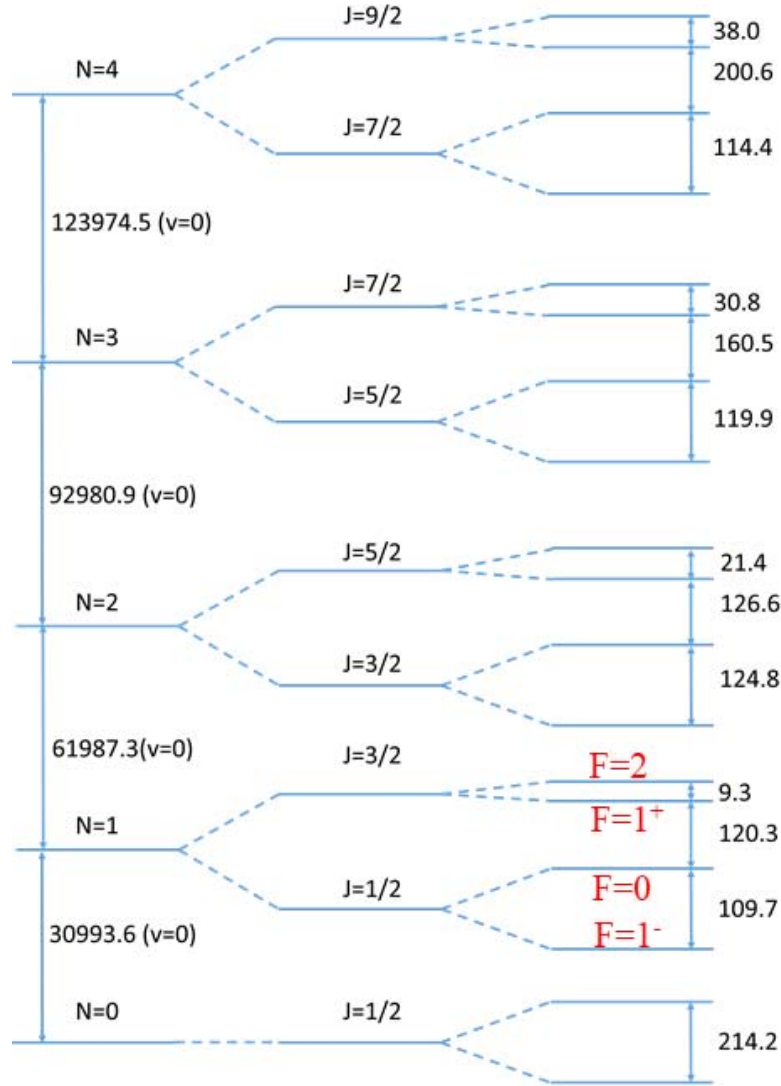


图 2.3 MgF 分子的 $X^2\Sigma^+(v=0)$ 态内部的转动能级、超精细能级分裂，其中标识的能级分裂间隔的单位为 MHz，F 表示总量子数。

考虑到 $N=1$ 能级的超精细分裂,为了在激光泵浦中覆盖到这些超精细能级,我们可以使用 EOM 来调制激光频率,使其具有一级边带。由于超精细能级中 $F=2$ 和 $F=1^+$ 的能级间隔非常小,我们只需要激光的基频和正负一级边带(调制频率约 110 MHz)即可较好地覆盖四个超精细跃迁,即: -1 级边带对应 $F=2$ 和 $F=1^+$ 至上态的跃迁,基频光对应 $F=0$ 至上态的跃迁, +1 级边带对应 $F=1^-$ 至上态的跃迁。这样,我们可以画出 MgF 激光冷却中驱动主要的 $v = 0 \rightarrow v' = 0$ 跃迁的泵浦方案,如图 2.4 所示。

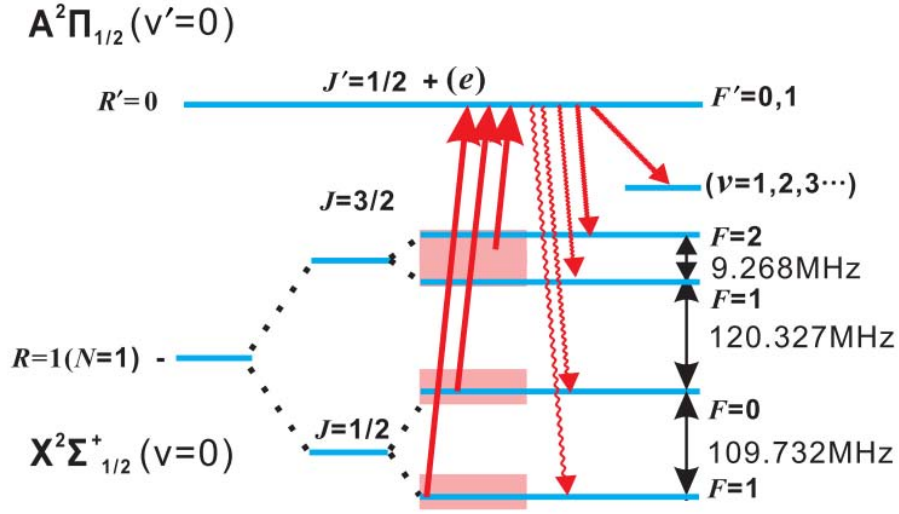


图 2.4 MgF 激光冷却中驱动主要的 $v = 0 \rightarrow v' = 0$ 跃迁的泵浦方案。其中向上的红色箭头表示由 EOM 调制的含有三个频率分量的激光驱动的跃迁，向下的波浪线表示自发辐射。

2.3.3 暗态

在我们要研究的分子激光冷却的能级跃迁中主要存在两种暗态，一种是较远的能级暗态（高振动态能级暗态），另一种是内部的能级暗态（磁子能级暗态）。如果不对这两种暗态不做任何处理，一段时间后，分子将会全部布局在这两种暗态能级，导致跃迁循环被终止，从而使得激光减速和冷却效果消失。

关于高振动态能级暗态，前面已经做过介绍，可以使用反抽运光将布局在此暗态的粒子抽运到上能级，继续参与跃迁循环。这里我们主要考虑第二种暗态，即磁子能级暗态。

我们知道，在一个多能级系统中，当基态的简并的磁子能级数量比激发态相应的磁子能级数量大 2 个以上时，无论采用何种偏振的激光来耦合这两个能态，总是会存在着磁子能级暗态。例如，考虑由线偏振激光驱动的 MgF 的 $X^2\Sigma^+(v=0, N=1, -) \rightarrow A^2\Pi_{1/2}(v'=0, J'=\frac{1}{2}, +)$ 跃迁，如图 2.5 所示，由于线偏振光只能驱动 $\Delta m_F = 0$ 跃迁，而自发辐射则遵从 $\Delta m_F = 0, \pm 1$ ，基态的 $F=2, m_F = \pm 2$ 能级将成为暗态。

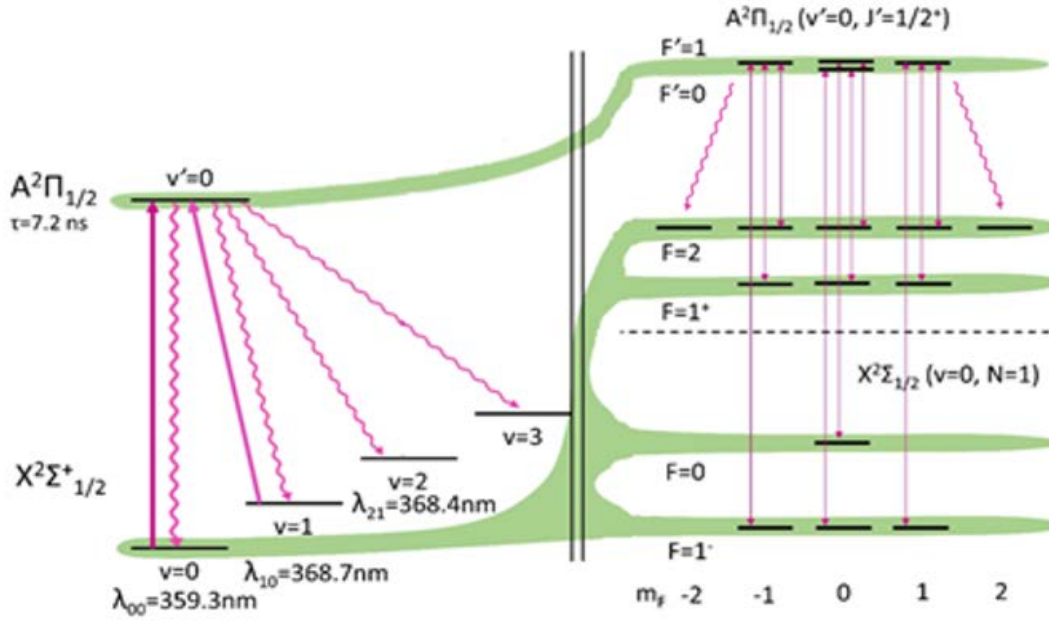


图 2.5 由线偏振光驱动的 MgF 的 $X^2\Sigma^+ \rightarrow A^2\Pi$ 跃迁。其中红色波浪线表示自发辐射，而右图中带有双箭头的红色实线代表线偏振光所驱动的拉比振荡 ($\Delta m_F = 0$)。

消除这种暗态有两种常见的方法：一种是应用倾斜的静磁场，另一种是快速地切换光的偏振[28]。对于前一种方式，所加入的磁场 B 的大小为几个 Gauss，磁场的方向与激光偏振成一定的夹角，它将以拉莫尔进动频率 $\omega_B = g\mu_B B/\hbar$ 快速地混合 m_F 态，其中 g 为朗道 g 因子， μ_B 为玻尔磁子，从而使得暗态中布居的分子能够正常地参与到准闭合的循环跃迁中。对于后一种方式，通常可以利用 Pockels 盒来对激光偏振进行调制，使其在 σ_+ 偏振和 σ_- 偏振之间快速切换，其中，调制速率一般使其与光学泵浦速率相近，从而使得所有磁子能级均能参与到跃迁中，不存在分子布居数在某个子能级上的积聚。

2.4 本章小结

在本章中，我们具体介绍了用于激光冷却的分子的选择标准、双原子分子一般的能级结构，以及我们选用的 MgF 分子的能级结构，并重点介绍了如何为分子激光冷却构造准闭合的能级跃迁循环。

MgF 分子适用于做激光冷却的优点体现在以下几个方面：

(1) 相对于其他激光冷却的候选分子，如 CaF、SrF、BaF 等，MgF 的质量非常小，因而有望实现更加快速和高效的激光减速和冷却。

(2) MgF 分子 A-X 态跃迁的 Frank-Condon 因子的对角化程度很高，基于我们的理论计算，只需要一束主泵浦光和反抽运光即可在分子完全衰减至高振动能级暗态前将 MgF 分子减速至停止。

(3) MgF 分子激发态的寿命很短，从而保证了较高的自发辐射速率，有利于提高自发辐射力。

(4) MgF 分子的 X 态和 A 态之间不存在中间态。

(5) MgF 分子的基态的超精细分裂在商用的电光调制器可以覆盖的范围内等。

同时，通过我们的计算和理论推导，为了实现 MgF 分子的激光冷却而构造准闭合的能级跃迁循环的方案为：

(1) 选择 MgF 分子的 $X^2\Sigma^+(v=0, N=1, -) \rightarrow A^2\Pi_{1/2}(v'=0, J'=\frac{1}{2}, +)$ 跃迁作为主要循环跃迁。

(2) 选择 MgF 分子的 $X^2\Sigma^+(v=1, N=1, -) \rightarrow A^2\Pi_{1/2}(v'=0, J'=\frac{1}{2}, +)$ 跃迁作为反抽运光驱动的跃迁。

(3) 利用电光调制器的基频和一级边带驱动上述跃迁的超精细跃迁，根据选择定则，准封闭的光学循环跃迁构造完毕。

(4) 考虑到线偏振的激光所驱动的跃迁可能存在的磁子能级暗态，在分子减速区域加入倾斜的磁场来混合亮态和暗态。

第三章 低温分子束源

3.1 引言

原子和分子束是研究精密光谱学[60]、精密测量[61]、冷碰撞过程[62]等领域的重要工具。其中，目前应用广泛的超声分子束技术可以产生许多种冷原子和冷分子束，然而，该技术所得到的分子束通常速度很高，大约在 300-600 m/s，并且，对于一些分子种类来说，产生的分子束通量（亮度）很小，难以在一些重要的领域发挥作用。相比之下，缓冲气体束在许多情况下可以是一种优越的方法，能够在实验室坐标系中产生冷的、速度相对较慢的原子和分子，且具有高亮度的特点，能够应用于许多实验中，其优点包括：

- (1) 产生的低温分子束的平动速度较低（200 m/s 以下），束流密度高[63]。
- (2) 产生的低温分子束的内态温度，如振动、转动温度，也较低[64]。
- (3) 可用于产生几乎所有的化学性质稳定的分子的低温分子束，具有普适性。

基于以上优点，缓冲气体分子束已经广泛应用于精密测量[61]、分子激光冷却[16, 17, 33]、冷化学[10, 65]等领域。本章将首先概述缓冲气体冷却的基本原理和实验条件，然后介绍我们小组的缓冲气体束源的结构设计和整体框架，最后介绍我们利用该缓冲气体束源进行 MgF 分子的光测测量所采用的实验装置和实验结果。

3.2 缓冲气体冷却概述

缓冲气体冷却的基本原理[66]可以概括为：首先通过液氮冷却或者脉管制冷等技术构建一个低温环境，温度为 T_0 ，将一个低温腔的温度保持在 T_0 温度，同时将温度也为 T_0 的气态的缓冲气体原子 b（一般为氦气或氖气）以 F 的速率连续地流过该低温腔。 F 的值通常在一个很宽的范围内连续变化，从而可以用来控制低温腔内部的原子 b 的密度。需要被冷却的目标分子 a 的初始温度假设为 $T_a(t=0) \gg T_0$ ，它们可以通过以下方式进入低温腔中：

(1) 分子束注入方式，即将分子从高温分子炉直接喷射入低温腔[67]。

(2) 激光消融，即通过高能量的脉冲激光在固态的样品表面形成的焦点所产生巨大的能量来消融出气态的分子云团[29, 31-34]。

(3) 毛细管注入法等，它适用于在低温下仍然可以以气态形式存在的分子，可以将其直接通过管道注入到低温腔中[68]。

在我们的实验中，MgF 分子是通过激光消融 Mg 单质，并与气态的 SF₆ 气体发生化学反应得到的。这些初始温度很高的热分子与低温腔内密度很高的缓冲气体原子发生大量碰撞，这将使得分子的平动温度、转动温度都冷却到接近 T_0 。在冷却过程中，一部分目标分子将会穿过缓冲气体扩散到低温腔的腔壁上，在那里它们粘附并且丢失。同时，另外一部分目标分子和缓冲气体一起都通过低温腔上一个小孔被提取成分子束。分子在腔内扩散的时间和提取时间之间的比例决定了从低温腔中提取分子的效率。同时，处于出射小孔附近的缓冲气体原子与目标分子之间的碰撞次数决定了所形成的束中分子的发散角、纵向速度分布以及内态温度。虽然缓冲气体束源的原理是非常简单的，但对于通过激光消融的方式产生目标分子的装置来说，发生在低温腔中的实际动力学过程是相当复杂的[64, 66]。

为了定量地描述缓冲气体束源的实验参数和形成的分子束的特征，我们先引入平均自由程的概念，假设低温腔内的目标分子（待冷却的分子）和缓冲气体原子的平均自由程分布为 λ_a 和 λ_b 。在典型的实验条件下，低温腔中缓冲气体原子 b 的密度 n_b 远远大于目标分子 a 的密度 n_a ，这就意味着，目标分子两两之间的碰撞是非常少的，因此可以忽略不计，从而 λ_a 只取决于 n_b ；而另一方面，缓冲气体原子 b 互相之间的碰撞也远远多于分子 a 与原子 b 之间的碰撞次数，从而 λ_b 也是只取决于 n_b ，在这样的条件下，目标分子和缓冲气体原子的平均自由程分别为[66]：

$$\lambda_a = \frac{1}{n_b \sigma_{ab} \sqrt{\frac{m_a}{m_b} + 1}}, \quad \lambda_b = \frac{1}{\sqrt{2} n_b \sigma_{bb}} \quad (3.1)$$

其中， σ_{ab} 为分子 a 与原子 b 之间的弹性碰撞截面，而 σ_{bb} 为原子 b 之间的碰撞截面， m_a, m_b 分别为分子与缓冲气体原子的质量。

通常情况下 b 为惰性气体，我们很难通过测量吸收或荧光信号来测量它在低

温腔中的密度，但一般可以通过简单的腔内动态气流来估计它的大小，即在稳态条件下，流入腔内的 b 的速率 F 等于从腔内流出的 b 的速率。粒子 a 或 b 从低温腔的出孔（面积为 A ）被出射到角度为 θ 的立体角 $d\omega$ 中的速率为[66]：

$$dQ_a = \frac{d\omega}{4\pi} n_a v_a^{exit} A \cos\theta \quad (3.2)$$

其中 v_a^{exit} 为出孔处的分子 a 的平均速度，同样地，原子 b 的出射速率的表达式与上式相同，即将 a 代换为 b 。

粒子的平均速度 v_a^{exit} 或 v_b^{exit} 主要取决于在出孔附近它们所经历的碰撞次数，它可以用雷诺数来表征， a 和 b 的雷诺数分别可以表示为： $Re_a = d/\lambda_a$ 和 $Re_b = d/\lambda_b$ ，其中 d 为低温腔的出口直径。在一般情况下，我们有 $m_a > m_b$ ，并且有 $\sigma_{ab} \approx \sigma_{bb}$ ，因此可以认为 $Re_a > Re_b$ 。对于 $1 \gg Re_a > Re_b$ 的情形，分子将以射流束的形式离开出口；对于 $Re_a > Re_b \gg 1$ ，粒子将在出口处经历大量次数的碰撞，并以超声束的形式离开出口；而一般情况下，从低温腔中出射的缓冲气体分子束则介于这两者之间，典型的射流束、缓冲气体束、完全超声束的分子速度分布如图 3.1 所示[64]。

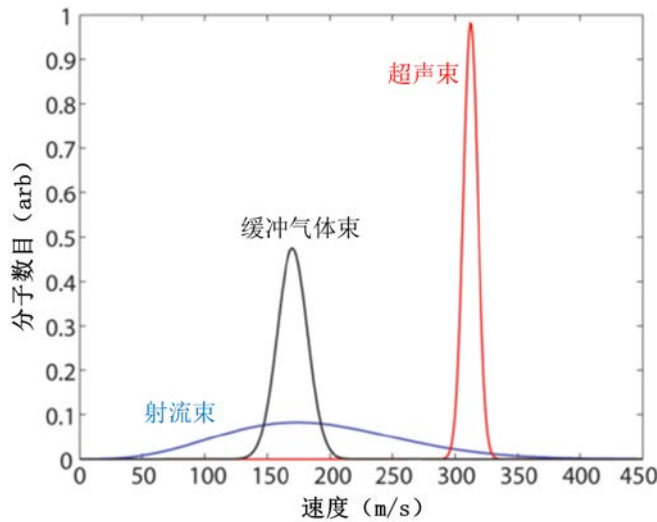


图 3.1 典型的不同类型分子束的速度分布[64]

在形成射流束的条件下， v_b^{exit} 与低温腔内的 b 的平均速度相同，即有 $v_b^{exit} =$

$\bar{v}_b = \left(\frac{2}{\sqrt{\pi}}\right)\beta$, 其中 $\beta \equiv \sqrt{\frac{2k_B T_b}{m_b}}$, T_b 为 b 的平动温度。通过对公式(3.2)积分可以得到在形成射流束的情况下的总的缓冲气体的出射速率为 $Q_b^e = \frac{n_b A \beta}{2\sqrt{\pi}}$ 。在完全超声束的情况下, v_b^{exit} 的大小不易确定, 在出口处的碰撞会提高缓冲气体原子的前进速度, 使其从 $\bar{v}_b$ 可以最大达到由完全超声速所给出的最大值, 即 $v_b^s = \sqrt{\frac{\gamma}{\gamma-1}}\beta$, 其中对于惰性气体来说, 热容比 $\gamma = 5/3$ 。我们可以通过假设所有的 b 原子以 v_b^s 的速度离开低温腔来获得在超声束条件下总的缓冲气体的出射速率的上限值, 由公式(3.2)的积分可以得到该上限值为 $Q_b^s = \sqrt{\frac{5}{2}} n_b A \beta$ 。如果令 $F = Q_b$, 我们可以得到在上述两种情况下, 低温腔内缓冲气体原子的密度 n_b 为:

$$n_b = \frac{\kappa F}{A \beta} \quad (3.3)$$

其中, 对于完全射流束的情况来说, $\kappa = \kappa^e = 2\sqrt{\pi}$; 对于完全超声束的情况来说, $\kappa = \kappa^s = 1/\sqrt{\frac{\gamma}{\gamma-1}}$, 由此我们可以即可得到缓冲气体原子的密度范围。

目标分子是否能够被提取到分子束中主要依赖于它与缓冲气体的冷却过程。如果分子在与低温腔壁接触之前还未发生冷却, 它们就会粘附在壁上从而丢失。我们可以通过简单的运动学模型来描述腔内热分子的冷却过程, 假设在 $t=0$ 时刻, 激光消融产生了 N_a 个处于初始平动温度为 $T_a(0)$ 的目标分子 a , 它们通过与缓冲气体的碰撞得到冷却, 经过 N 次碰撞后 a 的平动温度可以表达为[69]:

$$T_a(N) = T_b + (T_a(0) - T_b)e^{-\frac{N}{C}} \quad (3.4)$$

其中 $T_b = T_0$ 为缓冲气体的温度, $C \equiv (m_a + m_b)^2 / (2m_a m_b)$ 。

由此可见, 分子 a 的温度将逐渐接近 T_b 。如果定义当 a 的温度 T_a 降低至 $2T_b$ 时所需要的碰撞次数 N_{Th} 为将分子冷却所需要的碰撞次数, 那么 $N_{Th} = C \ln(T_a(0)/T_b)$, 则分子的冷却时间大概可以表示为 $\tau_{Th} = N_{Th}/R_a$, 其中 $R_a \approx n_b \sigma_{ab} \bar{v}_b \sqrt{1 + \frac{m_a}{m_b}}$ 为分子 a 的近似碰撞速率。

通过 N_{Th} 的大小我们可以估计为了实现分子的有效缓冲气体冷却所需要的

缓冲气体原子 b 的最小密度 n_b ，经过 N_{Th} 次碰撞后，每个分子 a 的移动距离为 $N_{Th}\lambda_a$ ，但实际上，分子的总位移 X_{Th} 则介于其扩散的随机行走和完全的直线前进之间，即 $\sqrt{N_{Th}}\lambda_a \leq X_{Th} \leq N_{Th}\lambda_a$ 。一般来说，初始的热目标分子比质量较轻的缓冲气体原子具有更大的动量，因此我们可以取 $X_{Th} = N_{Th}\lambda_a$ 。假设激光消融产生分子的位置处于具有边长为 L_c 的立方体形状的低温腔的中心区域，只有满足 $X_{Th} \leq L_c/2$ 的条件时，从小孔处离开的分子 a 才能被有效地冷却，从而可以得到低温腔中的缓冲气体原子的密度应该满足[66]:

$$n_{Th} \geq \frac{2C}{\sigma_{ab}L_c\sqrt{1+m_a/m_b}} \ln\left(\frac{T_a(0)}{T_b}\right) \quad (3.5)$$

对于大多数分子 a ，我们不知道其碰撞截面 σ_{ab} ，但对于同一种缓冲气体 b 来说，不同种类的分子的 σ_{ab} 是基本相同的，而且对于惰性气体有 $\sigma_{ab} \approx \sigma_{bb}$ 。另外，激光消融产生的分子的初始温度 $T_a(0)$ 也是未知的，可以采用典型的消融温度 $T_a(0) \sim 10^4$ K 来估计。这样，根据公式(3.5)我们可以估计出为了实现有效的缓冲气体冷却所需要的缓冲气体密度，从而指导我们的实验参数。

对于分子 a 的内态（振动、转动）温度来说，也可以类似地讨论其冷却过程，前提是使用合适的振动、转动碰撞截面。一般来说，分子的振动、转动、平动弛豫的碰撞截面有如下关系[70]:

$$\sigma_{ab}^{vib} \ll \sigma_{ab}^{rot} < \sigma_{ab} \quad (3.6)$$

因此，对于平动和转动自由度来说，其冷却过程是类似的，但对于振动自由度来说，需要相当长的时间尺度才能得到充分冷却。

冷却后， a 和 b 两种粒子都从低温腔中通过出口被提取出来成为分子束，分子 a 的提取效率主要受限于某些分子扩散到低温腔壁上被黏附并丢失的比例。在温度 T 下，分子 a 扩散到原子 b 中的过程由扩散方程描述: $\frac{dn_a}{dt} = \nabla^2(Dn_a)$ [71]，其中 D 为扩散常数，其近似值为 $D = 3\sqrt{2\pi k_B T/\mu} / (16\sigma_{ab}n_b)$ ， μ 表示约化质量。由此我们可以根据最低阶扩散模式来估算分子 a 扩散到腔壁上并丢失所需要的

时间，即 $\tau_{\text{diff}} \approx L_c^2/(4\pi^2 D)$ 。

另一方面，我们可以利用整个低温腔的体积全部由小孔流出所需要的时间来估计 b 原子经由小孔被提取出来的时间常数： $\tau_{\text{pump}}^b = L_c^3 n_b / F = \kappa L_c^3 / (A\beta)$ 。一般可以认为分子 a 完全被原子 b 的束流所携带，那么 a 也会以相同的时间离开低温腔。低温腔的提取效率 ϵ 可以定义为通过激光消融并被缓冲气体冷却后的分子被提取到分子束中的比例，它与下面这个量 η 是相关联的：

$$\eta = \frac{\tau_{\text{diff}}}{\tau_{\text{pump}}^b} \propto \frac{F}{L_c} \quad (3.7)$$

该式表明，为了提高提取效率，可以采用较小体积的低温腔以及较大的缓冲气体流量。

当分子 a 经过小孔离开低温腔时，它们与缓冲气体原子 b 的碰撞次数在很大程度上决定了分子束的特性。对于 $1 \gg \text{Re}_a > \text{Re}_b$ （射流束）情形，在小孔附近几乎没有发生粒子之间的碰撞，分子 a 和原子 b 在分子束中的平均前进速度可以表示为[72]：

$$v_{a||} = v_{a||}^e = \frac{3}{4} \sqrt{\pi} \alpha, \quad v_{b||} = v_{b||}^e = \frac{3}{4} \sqrt{\pi} \beta \quad (3.8)$$

其中， $\alpha \equiv \sqrt{\frac{2k_B T_a}{m_a}}$ ，我们期望的是在分子束中 a 和 b 的平动温度遵从如下关系：

$$T_a^{\text{beam}} = T_b^{\text{beam}} = T_0。$$

对于 $\text{Re}_a > \text{Re}_b \gg 1$ （超声束）的情形，所有的粒子在离开出口并膨胀到真空中时将经历大量的碰撞，由于 $n_b \gg n_a$ ，缓冲气体原子 b 占主导地位，因此在分子束中 b 的特性在很大程度上决定了 a 的特性。在等熵膨胀过程中， $v_{b||}$ 增加而 T_b^{beam} 降低，形成一个速度升高但速度分布宽度变窄的分子束，其平动温度可以用下式估计[73]：

$$T_b^{\text{beam}} \lesssim 3.12 (\sigma_{bb} n_b d)^{-\frac{4}{5}} T_0 \quad (3.9)$$

该温度值代表了分子束温度的上限值。在超声束中，我们认为分子 a 的温度与原子 b 的温度相近，并且可以认为 $v_{a||}$ 与 $v_{b||}$ 相近，且 $v_{b||}$ 约等于 v_b^s 。

通过讨论缓冲气体冷却的相关理论，我们可以据此来设计我们实验上所用的 MgF 分子束的低温缓冲气体束源，具体设计思路和束源结构将在第 3.3.1 小节讨论，同时可以计算缓冲气体冷却实验的参数，以及估计分子束特性等，具体计算结果将在第 3.3.3 小节讨论。

3.3 缓冲气体束源

根据上面所讨论的缓冲气体冷却的理论，为了形成高束流、低温度的 MgF 分子束，重点在于设计优良的低温腔结构，同时为了保证 MgF 分子束的持续产生，我们需要构造有利的低温系统、真空系统、温度控制系统等。本节将详细讨论低温腔的结构、低温系统的构成、实验操作细节等。

3.3.1 低温腔结构

我们选用的缓冲气体分子为 ^4He 原子，它在非常低（4K）的温度下仍然具有较大的饱和蒸汽压，理论上可以通过弹性碰撞将目标分子的转动或平动温度冷却至 4.2 K。在我们的实验中，采用两级脉管制冷机（Cryomech, PT415）创造低温环境，在具有热负载（包括辐射屏蔽罩、气体管道、低温腔等）的条件下，其一级冷头和二级冷头的温度分别可以达到 33 K 和 6 K，我们的低温腔固定在制冷机的二级冷头上，通过热平衡可以达到 6 K 的温度。

我们产生 MgF 分子的方式为：采用 Nd:YAG 激光消融固定在低温腔中的 Mg 单质样品，消融出的 Mg 原子与通入低温腔中的气态的 SF_6 发生化学反应，产生 MgF 自由基分子。该方法是经过多次尝试不同的制备分子的途径后得出的，曾经采取过激光消融经过真空热压缩的 MgF_2 固体靶材、激光消融经过热压缩的 Mg 单质与 AlF_3 以不同比例混合的固体靶材等方式，经过对比，采用化学反应方法产生的 MgF 分子数量比采用其他方式具有较大的优势。

根据上节讨论，为了形成高束流、低温度的 MgF 分子束，重点在于设计腔

的结构使我们在低温腔中产生的 MgF 分子能够被快速地冷却、快速地提取、减小分子在腔内的停留时间。低温腔的设计主要考虑以下几个方面：

- (1) 金属材料：采用导热性、可塑性极好的紫铜。
- (2) 腔内体积：尽量采用较小的体积，以提高 He 原子的密度和降低分子的提取时间。
- (3) SF_6 管道隔热：由于 SF_6 的沸点在 220 K 左右，为了防止 SF_6 在 6 K 的低温腔与 SF_6 管道的连接处凝结，可采用绝热性能良好的聚酰亚胺来将腔体与管道隔绝。
- (4) YAG 激光通光窗口、探测激光通光口、 Mg 单质的固定方式等。

综合以上方面要求并结合文献调研，我们设计了各种不同的低温腔结构，最终选定的一种低温腔结构如图 3.2 所示。

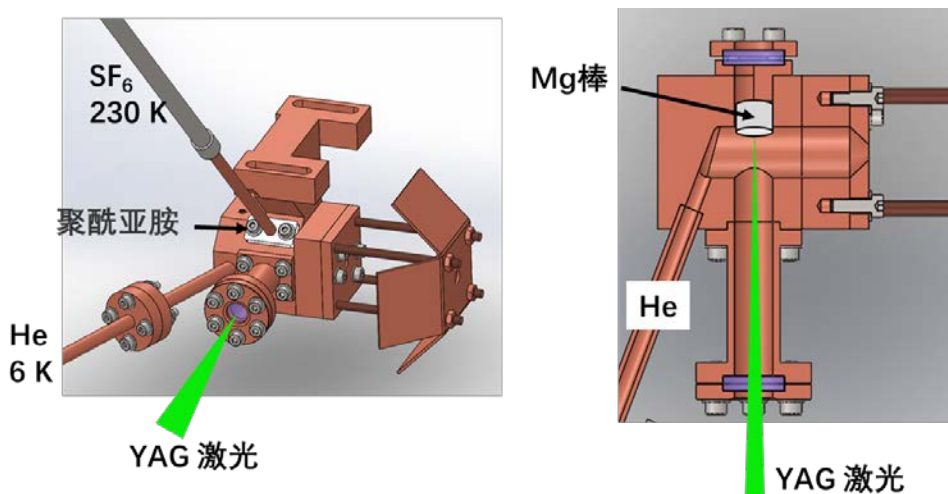


图 3.2 MgF 分子缓冲气体束源的低温腔结构，左图：腔体整体结构，右图：腔体横截面。

低温腔的外部形状近似为边长约 3 cm 的立方体，内部空间为直径 1 cm，长度 2 cm（或 3 cm，可通过分立的零件件延长）的圆柱体形状。低温腔的顶部为一个平面，并包含两个导轨形状的通槽，可以通过螺丝紧紧地固定在脉管制冷机的二级冷头的部件上，并可以利用两个通槽来微调低温腔的位置以保证低温腔与其它光学窗口的准直，其顶部平面与二级冷头之间涂以硅脂以增加热传导性能。 SF_6 管道的内径尺寸为 3 mm，为了使它保持较高的温度防止内部的气体凝固，它主

要由不锈钢管构成，并保证它与低温系统的零部件不存在任何的热接触，由于不锈钢导热性能极差，从室温 290 K 直接接入到 6 K 的低温系统中的管道可以在一定程度上维持较高的温度。该管道接近低温腔的一小段为铜管，通过银焊与不锈钢管相连，在该段铜管上我们加入了加热电阻对其温度进行调节，并附以热敏电阻对其温度进行监测。一般我们通过加热电阻将管道温度控制在 230 K 左右，即可观测到较强的 MgF 分子信号。为了与低温腔进行热绝缘，我们在管道入口处加入了切割为长方体形状的聚酰亚胺。聚酰亚胺具有极低的热膨胀系数和低导热性[34]，一方面能够有效防止 SF_6 在低温腔附近冻结，另一方面可以将温度为 230 K 的管道对 6 K 低温腔的加热效应降低到最小。

YAG 激光以及用于探测腔内的分子吸收信号的探测激光均通过直径为 1/2 英寸的前侧窗片进入。YAG 激光通过透镜将焦点会聚到固定在低温腔体内部的小支架的镁棒上，使得激光消融出的 Mg 的原子或离子与气态的 SF_6 反应产生 MgF 分子。在初步阶段的实验中我们发现，如果前侧窗片距离镁棒太近，则激光消融的产物会在很短的时间内将窗片镀膜，使其透过率大幅下降而无法继续进行实验。为了解决这一问题，我们将前侧窗片安装在一个从低温腔体上延伸出来的长度为 3 cm，内径为 8 mm 的空心铜柱上，从而消除了窗口模糊的问题。在低温腔的后侧我们也加入了一个窗片，作为探测光的出光通道，当然如果我们不需要进行腔内吸收信号探测，那么将其替换为实心铜片进行密封即可。

作为缓冲气体的 He 气的管道入口设计是整个低温腔结构的关键所在，因为它决定了缓冲气态冷却的效果、分子提取时间、提取效率等，我们期望通过一定的结构设计可以产生高流量和高速率的 He 气区域，并将低流量的 He 原子的区域最小化（因为分子容易穿过它们扩散至低温腔壁上丢失），同时防止涡流的形成（因为分子将会囚禁在涡流中无法被提取至分子束中）。

最终我们将 He 气管道设计为具有一定的倾斜角度进入低温腔的结构，如图 3.2 的右图所示。为了更清晰地分析采用这种结构后 He 气在低温腔体内部的流量、速度、密度分布等信息，我们利用有限元软件 Comsol 对 He 气进入该结构后的流体力学趋势进行了模拟。由于在我们的缓冲气体冷却实验条件下， He 气的雷诺数较低，我们选用 Comsol 中的层流模型进行模拟。在模拟中使用的低温

腔的内部结构和尺寸如图 3.3 所示，其中 He 气入口的斜面的倾斜角度相对于垂直方向为 30 度。

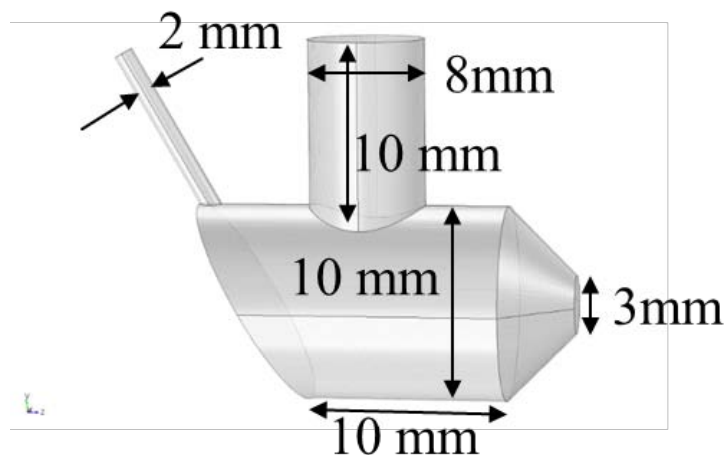


图 3.3 利用 Comsol 模拟 He 的气流所使用的结构和尺寸

在模拟中所设定的 He 气的特性参数如表 3.1 所示[74]，其他参数包括：流体的温度为 4 K，流体的压力可以根据该结构的体积、通入的流量、出口尺寸进行估计，腔外的背景压力为 10^{-6} Pa，通入的气体流量分别为 4 SCCM, 10 SCCM, 20 SCCM 等，最终模拟得到的气流趋势及速度如图 3.4 所示。

表 3.1 在 Comsol 模拟中设定的 He 气的特性参数

流体特性	值	单位
动态粘度	1.0221e-6	Pa·s
比热比	1.66	1
热容	5193.2	J/(kg·K)
热导率	0.0076867	W/(m·K)

从图 3.4 中可以看到，以倾斜角度通入较大流量的 He 气时，在腔体的拐角处将会形成一个高流量、高密度、高速度的 He 气区域，如果我们将激光消融所用的镁棒放置在该区域，如图 3.2 的右图所示，那么根据缓冲气体冷却的理论分析，高密度的 He 原子能够尽可能地阻止消融产物到达低温腔的腔壁，同时可以

使得化学反应产生的 MgF 分子快速地与 He 原子碰撞并被有效冷却；而高速度的流量则能够将目标分子快速地从低温腔中提取出来形成短脉冲的分子束，而留给分子扩散到腔壁并丢失的时间则大大减少。另外，通过模拟我们可以看到，出射的分子束的速度在 $100\text{--}200\text{ m/s}$ 之间，这也是与缓冲气体分子束的速度范围相吻合的。

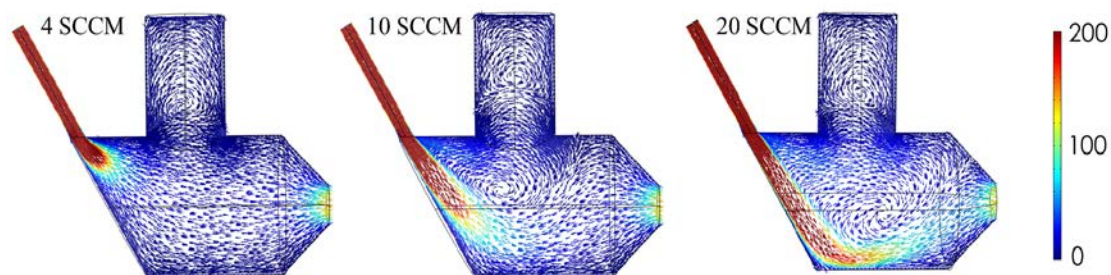


图 3.4 利用 Comsol 软件模拟得到的当通入不同的流量的 He 气时的低温腔内的气流及速度分布图。其中小箭头的方向和颜色分别代表速度的方向和大小（单位： m/s ），而小箭头的密度表示气流密度。

另外，如图 3.2 左图所示，我们在低温腔的出口处通过铜支杆固定了一个呈倒扣形的方形铜片，它与低温腔的出口的距离为 3 cm ，铜片中心有一个直径为 5 mm 的小孔。一方面，我们在铜片的内侧粘满活性炭，利用低温下活性炭对气体的强大的吸附能力来抽走多余的 He 气来减小真空负载；另一方面，中心小孔对于分子束具有一定的横向准直功能。

3.3.2 低温真空系统

我们使用两级脉管制冷机（Cryomech, PT415）来创造缓冲气体冷却需要的低温环境，真空及低温系统如图 3.5 所示，主要包括真空腔、涡轮分子泵、脉管制冷机、一、二级冷头及辐射屏蔽罩、低温腔、椰壳活性炭等。

在具有热负载的条件下，脉管制冷机的一级冷头和二级冷头的温度分别可以达到 33 K 和 6 K 。为了消除热辐射对低温的影响，分别在一级、二级冷头上加装了热辐射屏蔽罩（主要成分为紫铜，并在表面镀银），并在二级屏蔽罩上使用

低温胶黏附了均匀的椰壳活性炭，活性炭在 8 K 温度以下具有强大的吸附能力，可以吸收背景气体，维持良好的真空度。在黏附活性炭时，先均匀覆盖以直径较大（5 mm 以内）的颗粒，再用较小的颗粒（1 mm 以内）充塞于空隙之间，从而尽量加大活性炭的表面积。

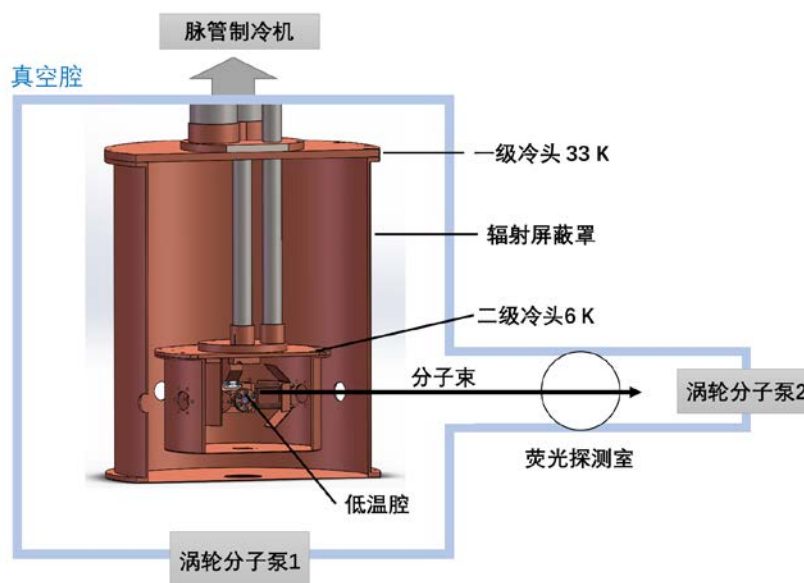


图 3.5 缓冲气体束源的低温系统和真空系统

真空系统使用了两台涡轮分子泵，一台处于真空腔底部，抽速为 1000 L/s，另一台处于探测腔的尾部，抽速为 80 L/s，真空腔和探测腔内均装有电离规监测真空度，常温下真空腔和探测器内的真空度可以达到 10^{-4} 量级，开启低温后，真空度可以达到 10^{-6} 量级。

气体管路主要包括 He 气和 SF_6 管道，二者通入低温腔内的流量均通过流量计（北京七星华创电子股份有限公司）控制，其中 He 气所使用的流量计量程为 0-10 SCCM， SF_6 流量计的量程为 0.035-2 SCCM，在使用过程中，后者的流量通常只需要 0.1 SCCM 以内即可满足制备分子的要求。He 气管道的内径尺寸为 2 mm，结构如图 3.6 所示。它通过 feed-through 进入真空腔后，首先通过一段绕成螺线形的不锈钢管，利用不锈钢的导热性差的特点来隔离室温与一级冷头温度（33 K）；然后进入一段卷绕的铜管，其中铜管被银焊在一个固定于一级冷头上的空心铜柱上，以初步降低 He 气温度；然后它又接入一段螺线形的不锈钢管来降低一级、

二级冷头（6 K）之间的热传导；再接入一段卷绕的铜管，固定于二级冷头上的空心铜柱上，以再次降低 He 气温度；最终 He 气管道接在低温腔的成倾斜角度的入口上，作为冷却目标分子的缓冲气体。

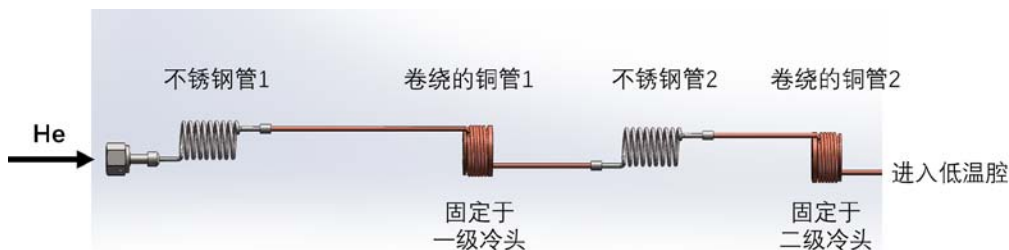


图 3.6 真空腔内的 He 气管道示意图。其左侧通过 Feed-through 与真空腔外连接，右侧连接低温腔的 He 气入口。

SF_6 管道的内径尺寸为 3 mm，通过 feed-through 进入真空腔后，为了使它保持较高的温度防止内部气体凝固，首先通过一段较长（约 1 m）的不锈钢管道，并确保管道与低温系统的零部件不存在任何的热接触，在不锈钢管的终端通过银焊接入一小段约 5 cm 的铜管，该铜管上我们加入了加热电阻对其温度进行控制，然后它通过低温腔上的利用聚酰亚胺材料制作的通孔进入腔中，用来与激光消融出的 Mg 反应。

低温腔固定在制冷机的二级冷头上，通过热平衡可以达到 6 K 的温度，为了保证整个腔体内部除了出口以外的部分的密封性，所有零部件、窗片等均在它们与腔体的接触面上涂抹硅脂，并采用黄铜螺丝固定在腔上（除聚酰亚胺材料用尼龙螺丝固定以外），由于黄铜与紫铜的热膨胀系数的差异，在低温下可以使零件保持更加紧密的固定。为了监测低温腔、冷头、气体管道处的温度，我们在各处安装了低温热敏电阻。在开启制冷机后，典型的低温腔及 SF_6 气体管道的温度的变化如所图 3.7 所示，一般在两个小时以内即可实现低温腔从室温到 6 K 低温的降温过程，虽然 SF_6 管道的温度处于缓慢降低的状态，但只需要利用热敏电阻加热并选择合适的电压值，其温度可以一直稳定在气体的沸点以上。

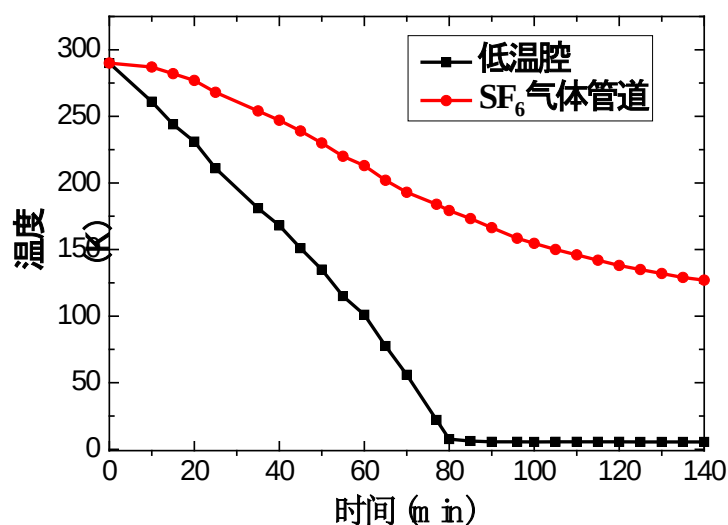


图 3.7 开启制冷机后，典型的低温腔及 SF₆ 气体管道的温度的变化

3.3.3 缓冲气体冷却实验操作

在具体的制备 MgF 分子并产生缓冲气体分子束的实验中，为了合适地预估实验参数以及缓冲气体冷却的效果，我们利用本章第一节介绍的缓冲气体冷却理论，设定低温腔的出口尺寸为 3 mm，在通入不同的 He 气流量情况下，对实验所涉及的一些参数及分子束特性进行了计算，计算结果汇总在表 3.2 中，其中使用的参数包括：低温腔温度为 6 K，激光消融产物的初始温度为 10^4 K，分子与 He 原子的碰撞截面为 1.0×10^{-14} cm²，腔体内部边长为 1 cm。

从该表可以看到，理论上为了实现 MgF 分子的有效的缓冲气体冷却，需要的 He 原子密度应在 10^{15} /cm³ 以上。在低温腔出口直径为 3 mm 条件下，需要通入 5 SCCM 以上的 He 气，分子从初始温度冷却下来需要 47 次碰撞，分子的冷却时间随着 He 流量的增加而降低至几十微秒，分子的提取效率会随着 He 流量的增加而升高。由于分子的平均雷诺数远大于 1，预计形成的分子束速度应该相对接近超声速的范围，即 200~300 m/s。

在具体实验中，我们首先应检查真空系统的真空度、低温系统的温度是否达到了预期的数值，SF₆ 的温度控制是否正常，同时做好作为消融激光的 YAG 激光器、作为探测激光的钛宝石激光、气体流量计的预热工作，并应抽空气体管道

内残余的气体。然后通过质量流量计往低温腔内输入 He 气, 3-5 min 中后同时开启 YAG 光和 SF₆ 流量计, 观测是否有 MgF 分子信号产生。

表 3.2 不同 He 气流量下 MgF 分子缓冲气体冷却需要的实验参数及分子束特性。表中的数值由本章第一节所述的缓冲气体冷却理论计算得出。

低温腔出口直径(mm)	3		
He 流量(SCCM)	1	5	10
充分冷却所需 He 的最低密度(/cm ³)	2.59E+15		
冷却需要的碰撞次数	46.64		
腔内平均 He 密度(/cm ³)	5.57E+14	2.79E+15	5.57E+15
冷却时间(us)	121.05	24.21	12.10
分子扩散丢失的时间(ms)	0.03	0.13	0.25
He 气提取时间(ms)	1.24	1.24	1.24
提取效率	0.02	0.10	0.20
分子平均雷诺数	6.02	30.09	60.19
He 在腔内的平均速度(m/s)	192.07	192.07	192.07
射流束中分子平均纵向速度(m/s)	69.01	69.01	69.01
射流束中 He 平均纵向速度(m/s)	226.28	226.28	226.28
超声束中 He 最大纵向速度(m/s)	269.14	269.14	269.14

YAG 激光通过 $f=70$ cm 的透镜聚焦至低温腔内, 为了延长 Mg 棒表面每个点的可被激光消融的时间和次数, 避免将激光焦点直接落在 Mg 棒上。在我们实验中, 透镜与样品表面之间的距离设定为 40 cm, 经过测量我们发现 Mg 棒表面的一个点可在 3000 个 YAG 激光脉冲以内均能保证 MgF 分子的产生。另外, 注意应确保在实验开始之前 Mg 棒的表面平整洁净, 否则会影激光消融时脉冲与脉冲之间产生的分子数量的稳定性; 注意如果中途要关闭 YAG 激光, 应先关闭 SF₆ 气体的流量, 防止温度较高的 SF₆ 凝结在低温腔的窗片上导致窗片模糊。

在实验中, 我们使用的仪器参数包括, He 流量在 2-10 SCCM 内调节, SF₆ 流量在 0.035-0.1 SCCM 内调整 (流量太高易导致低温腔上的窗片模糊), YAG 激光 (532 nm, 10 ns) 单脉冲能量在 6-8 mJ, 脉冲频率为 2 Hz, SF₆ 管道温度控制在 240 K 左右。

3.4 MgF 分子探测装置

我们分别采用低温腔内的分子吸收信号和腔外的探测室中分子束的激光诱导荧光（LIF）信号来探测分子并测量其光谱信息。

腔内吸收信号探测装置和测得的典型 MgF 分子吸收信号如图 3.8 所示。其中，探测激光为经过倍频的钛宝石激光，功率为 $200\ \mu\text{W}$ ，波长在 $359.3\ \text{nm}$ 附近，探测器为硅二极管型光电探测器（PD）。在吸收信号的数据采集中，信号采集的时间起点为 YAG 激光的 Q-switch 触发时刻，整个数据采集及信号处理过程均通过编写的 LabVIEW 程序完成。

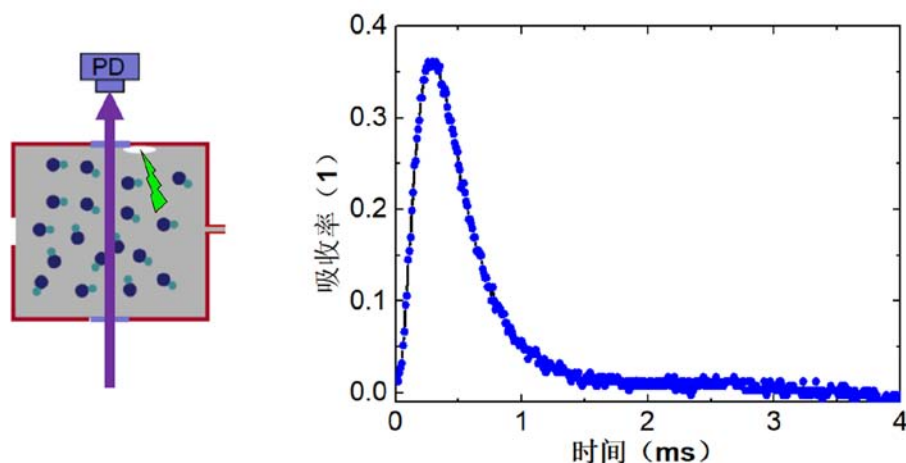


图 3.8 腔内吸收信号探测装置及典型的分子吸收信号

探测分子束的 LIF 信号的探测室与低温腔出口之间的距离为 $30\ \text{cm}$ ，探测装置如图 3.9 所示，其中准直小孔用来对横向发散的分子束进行准直，探测激光与分子束成 90° ，功率为 $100\ \mu\text{W}$ 左右，PMT 为光电倍增管，为了使得荧光收集的立体角增大，我们使用了直径为 $75\ \text{mm}$ 的透镜组和一个凹面镜，将探测室中心处的分子荧光尽可能多地收集到 PMT 上。探测 LIF 信号的数据采集及处理也通过编写的 LabVIEW 程序完成，可以进行信号平均、扣除背景等操作。

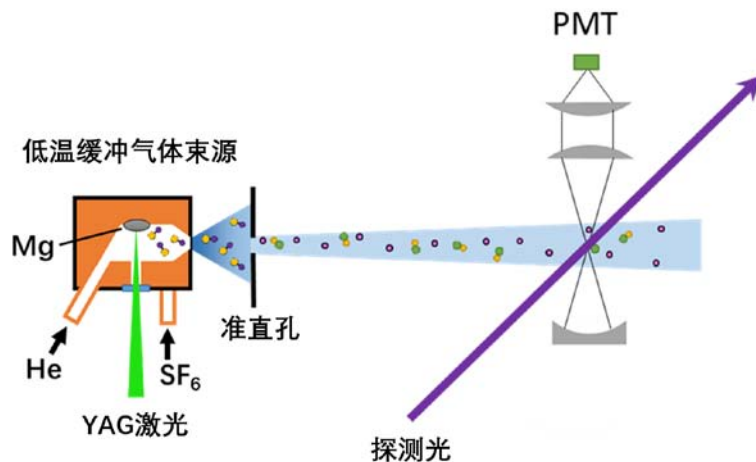


图 3.9 腔外的激光诱导荧光信号的探测装置

为了通过吸收信号和 LIF 信号测量 MgF 分子的光谱，专门编写了相应的 LabVIEW 程序，程序主要包括：钛宝石激光稳频、钛宝石激光频率扫描设定（起始点、采集的频率间隔）、示波器参数调节、示波器数据采集、信号平均（平均次数、起止时间）、信号处理（积分、峰值）、时序控制、控制激光频率扫描和信号显示等部分。

具体的探测流程为：设定激光频率扫描起点和范围→将激光锁定在扫描起点→设定每个频率点处信号的平均次数→开始扫描激光频率→采集信号并平均→自动切换至下一个频率点→采集信号并平均→……→达到激光频率扫描终点→停止采集并保存数据。

3.5 MgF 分子光谱

3.5.1 多普勒增宽

在我们实验的 6 K 低温下， MgF 分子在低温腔内的吸收线宽会由于多普勒效应发生增宽，首先我们计算该多普勒增宽的大小。由原子或分子速度的麦克斯韦-玻尔兹曼分布：

$$P_v dv = \left(\frac{m}{2\pi kT} \right)^{\frac{1}{2}} \exp\left(-\frac{mv^2}{2kT}\right) dv \quad (3.10)$$

其中 T 为温度, m 为质量, k 为玻尔兹曼常数, v 为原子或分子的速度, 以及 $dv = c/v_0 dv'_0$, 其中 c 为光速, $v'_0 = v/(1 \pm v/c)$ 为在多普勒效应下运动的原子或分子的共振频率 (静止时的共振频率为 ν), 我们可以得出归一化的非均匀多普勒增宽线型函数[75]:

$$g_D(\nu - \nu_0) = \frac{1}{\nu_0} \left(\frac{mc^2}{2\pi kT} \right)^{\frac{1}{2}} \exp\left(-\frac{mc^2(\nu - \nu_0)^2}{2kT\nu_0^2}\right) \quad (3.11)$$

它是一个高斯分布函数, 其半高全宽(FWHM)为:

$$\Delta\nu_D = 2\nu_0 \sqrt{\frac{2kT\ln 2}{mc^2}} \quad (3.12)$$

由此可知, 多普勒增宽与原子或分子的跃迁频率、温度、质量有关[75], 对于 MgF 分子, $\nu_0 \approx 834.3 \text{ THz}$, $T=6 \text{ K}$, $m=43 \text{ amu}$, 可以得到 $\Delta\nu_D=223 \text{ MHz}$, 它大于分子基态的低转动态中的超精细能级分裂 (参见第二章), 因此我们无法通过腔内的吸收信号来测量分子的超精细光谱; 但它小于分子的基态和激发态之间的多个转动跃迁的频率间隔, 我们可以通过腔内吸收信号测量分子的 $X^2\Sigma^+(\nu=0) \rightarrow A^2\Pi(\nu'=0)$ 的跃迁吸收谱带的精细结构, 即 P、Q、R 分支。

3.5.2 分子吸收谱带的精细结构

MgF 分子 $X^2\Sigma^+ \rightarrow A^2\Pi$ 跃迁如图 3.10 所示, 其中基态包含相应的转动能级和精细结构, 激发态包含 $A^2\Pi_{3/2}$ 和 $A^2\Pi_{1/2}$ 两个能级及其精细结构。其中跃迁符号 (例如 P21) 的定义为[57]:

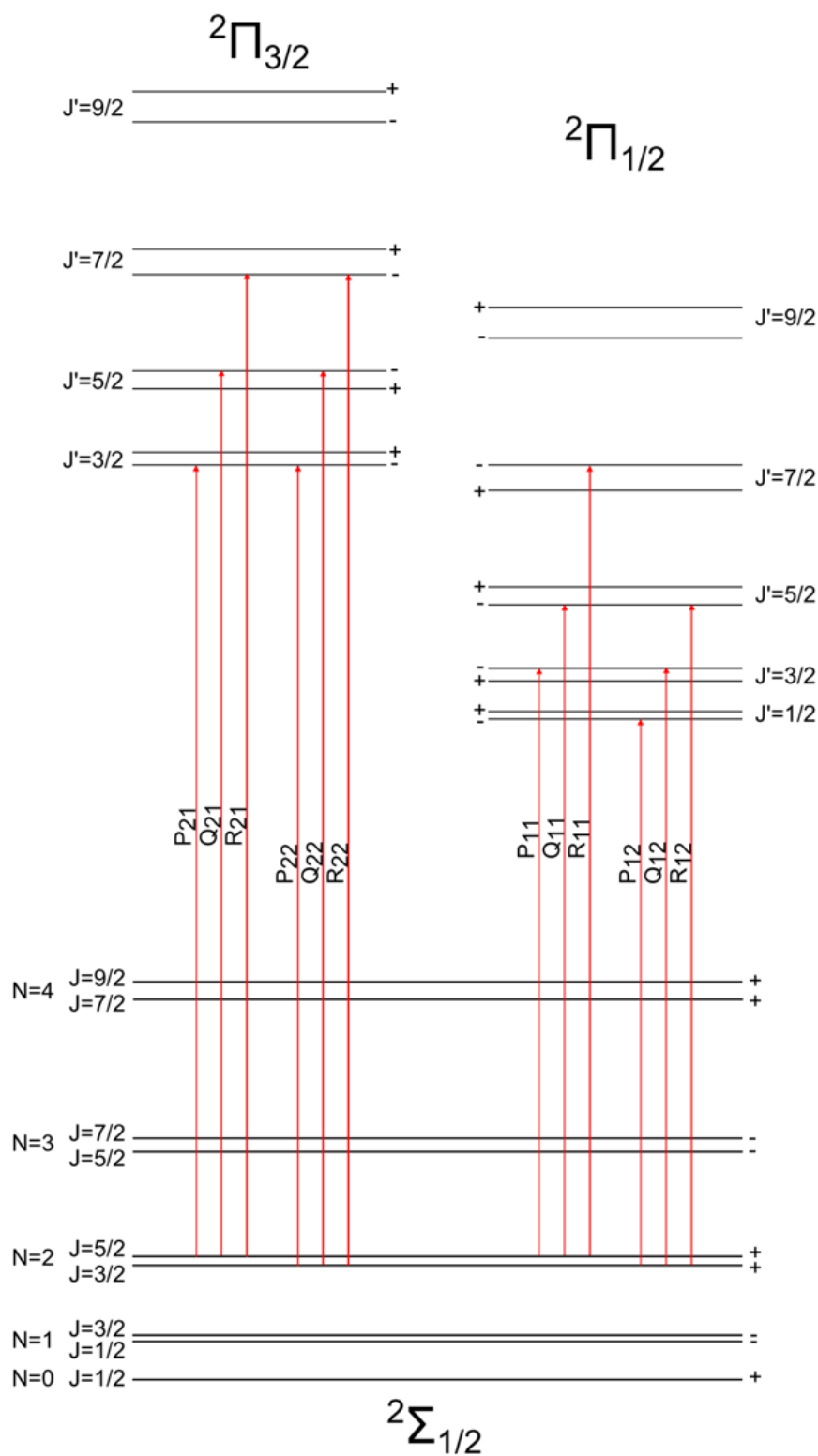


图 3.10 MgF 分子 $A^2\Pi \rightarrow X^2\Sigma^+$ 跃迁的能级图。其中为了简化，只画出了从基态的 $X^2\Sigma^+$ ($N = 2$) 开始的跃迁，+号或一号标记了每个态的字称，跃迁的标记符号（例如 P_{21} ）的定义在正文中给出。

$$M_{ab} \quad (3.13)$$

其中，字母 M 取决于跃迁的 ΔJ 取值，当 $\Delta J = -1, 0, 1$ 时， M 分别取 P 、 Q 、 R ，下标 a 表示跃迁的激发态为 $A^2\Pi_{3/2}$ 或 $A^2\Pi_{1/2}$ ，下标表示跃迁之前基态的 J 的初值。对于 MgF ，如果跃迁之后为 $A^2\Pi_{1/2}$ ，则 $a=1$ ，跃迁之后为 $A^2\Pi_{3/2}$ ，则 $a=2$ ；如果跃迁之前为 $J = N + \frac{1}{2}$ 态，则 $b=1$ ，跃迁之前为 $J = N - \frac{1}{2}$ 态，则 $b=2$ ；如果 $a=b$ ，可以省略 b 。注意 $A^2\Pi_{3/2}$ 与 $A^2\Pi_{1/2}$ 之间的跃迁是禁止的，因为对于洪特情形(a)，选择定则为 $\Delta\Sigma = 0$ 。

首先，我们根据跃迁选择定则 $\Delta J = -1, 0, 1$ ，以及 $X^2\Sigma^+$ 和 $A^2\Pi$ 中各转动能级及其精细能级的能量表达式来计算 $X^2\Sigma^+ \rightarrow A^2\Pi$ 所有可能的跃迁及其跃迁频率。对于 $X^2\Sigma^+$ 态，各转动项值由以下公式给出[57]：

$$F_1(N) = B_v N(N+1) + \frac{1}{2}\gamma N, \quad (3.14)$$

$$F_2(N) = B_v N(N+1) - \frac{1}{2}\gamma(N+1)$$

其中 $F_1(N)$ 表示 $J = N + \frac{1}{2}$ 的精细项， $F_2(N)$ 表示 $J = N - \frac{1}{2}$ 的精细项， B_v 为转动常数， γ 为自旋-转动常数。对于 $A^2\Pi$ 态，各转动项值由以下公式给出：

$$F_1(J) = B_v \left[\left(J + \frac{1}{2} \right)^2 - \Lambda^2 - \frac{1}{2} \sqrt{4 \left(J + \frac{1}{2} \right)^2 + Y(Y-4)\Lambda^2} \right], \quad (3.15)$$

$$F_2(J) = B_v \left[\left(J + \frac{1}{2} \right)^2 - \Lambda^2 + \frac{1}{2} \sqrt{4 \left(J + \frac{1}{2} \right)^2 + Y(Y-4)\Lambda^2} \right],$$

其中 $Y = A/B_v$ ，耦合常数 A 表示自旋 S 与轨道角动量 Λ 之间的耦合强度[57]， $F_1(N)$ 表示形成 $J = N + \frac{1}{2}$ 的能级项， $F_2(N)$ 表示形成 $J = N - \frac{1}{2}$ 的能级项。注意如果 $A > 0$ ，则 $A^2\Pi$ 态会形成正常双重态， $A < 0$ ，则它会形成倒双重态。对于正常的 $A^2\Pi$ 态， $F_1(J)$ 与 $F_2(J)$ 分别构成 $A^2\Pi_{1/2}$ 与 $A^2\Pi_{3/2}$ ，而对于倒 $A^2\Pi$ 态，则分别组成

$A^2\Pi_{3/2}$ 与 $A^2\Pi_{1/2}$ 。

关于 MgF 分子的 $A^2\Pi$ 态是正常态还是倒态的问题,前人的文献均未能确定,下一节我们将根据通过低温腔内测得的吸收谱带,来试图解决这一问题。

通过上面两个公式以及选择定则,我们可以计算出 MgF 分子 $X^2\Sigma^+ \rightarrow A^2\Pi$ 跃迁谱带的精细结构中 P、Q、R 支的跃迁频率及相应的量子数,如图 3.11 所示,其中我们暂时假定 $A^2\Pi$ 态是正常态,各个分支对应于图 3.10 中所示的跃迁。由图 3.11 可见,该跃迁谱带存在两个支带,分别对应 $X^2\Sigma^+ \rightarrow A^2\Pi_{1/2}$ 和 $X^2\Sigma^+ \rightarrow A^2\Pi_{3/2}$ 的跃迁。

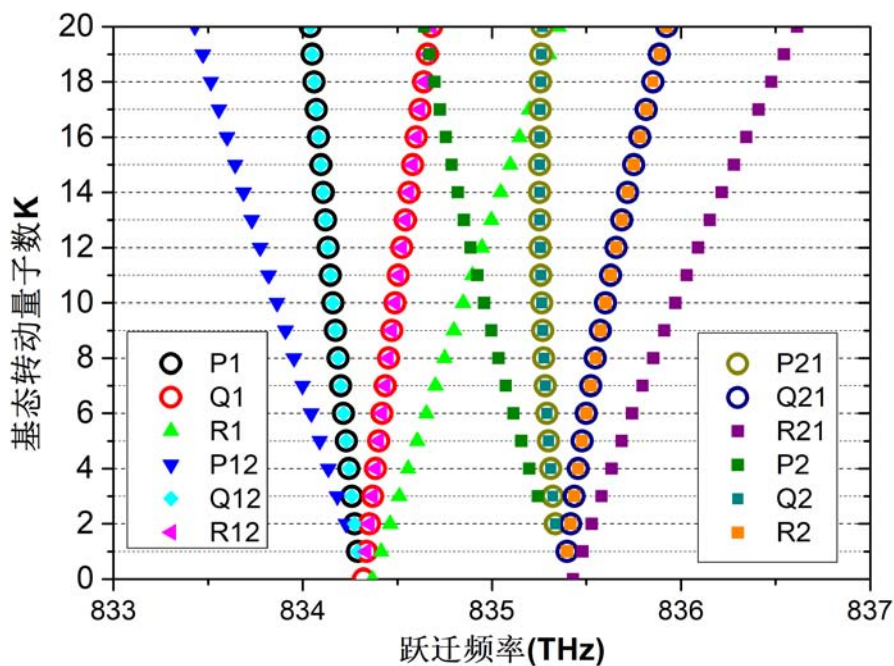


图 3.11 假定 MgF 分子的 $A^2\Pi$ 态是正常态所计算出的 $X^2\Sigma^+ \rightarrow A^2\Pi$ 跃迁谱带的精细结构,其中各分支跃迁符号如正文所示。

3.5.3 由吸收谱带确定 A 态是正态还是倒态

关于 MgF 分子的 $A^2\Pi$ 态是正常态还是倒态的问题,前人的文献均未能确定,现在我们根据通过低温腔内测得的吸收谱带,来试图解决这一问题。

首先根据理论计算的 $X^2\Sigma^+(v=0) \rightarrow A^2\Pi(v'=0)$ 的跃迁波长 359.3 nm,在

该波长附近进行大范围的激光扫描频率，并观测吸收腔内的吸收信号，共测得两组吸收谱带，分别如图 3.12（探测光波长 359.3 nm 附近的吸收谱带）、图 3.13（波长 358.8 nm 附近的吸收谱带）所示，其中蓝色曲线代表实验测得的出现吸收峰的位置和吸收强度，红点代表根据上一小节的理论计算得出得跃迁谱带的精细结构，即 PQR 支跃迁应当出现谱线的位置，可以发现，理论计算与实验测量结果相当吻合。

注意图 3.12 和图 3.13 中的理论计算时我们采用的参数是针对正常态的参数，此时理论与实验能够吻合，并且根据跃迁选择定则，应当在零隙处消失的谱线（例如对于 $X^2\Sigma^+ \rightarrow A^2\Pi_{3/2}$ 跃迁，P2(2)、P1(1)、Q2(1)和 Q1(0)跃迁线应当消失）也在实验中也观测不到。如果我们采用 $A^2\Pi$ 态为倒态的参数来计算谱线位置，则会在零隙处有几条谱线与实验结果无法吻合（对于 359.3 nm 附近谱带，理论比实验少几条谱线，而 358.8 nm 附近的谱带则多几条）。

因此，从我们的理论计算与实验测量的匹配结果，应该可以说明 MgF 分子的 $A^2\Pi$ 态不是一个倒态（类似 BeF），而是一个正常态（类似 CaF，SrF 等）。

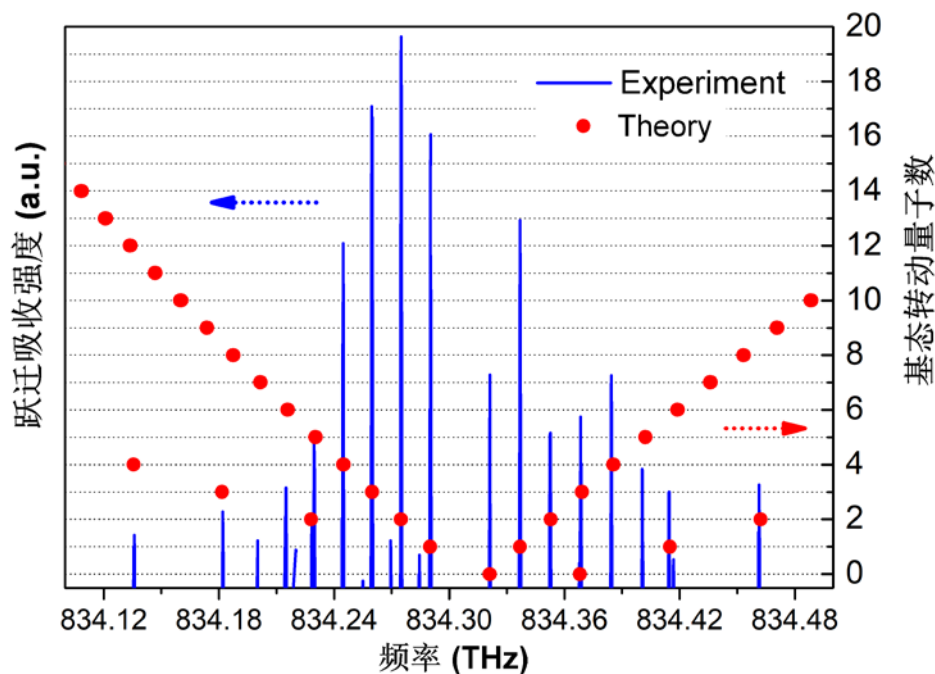


图 3.12 在探测激光波长为 359.3 nm 附近测得的低温腔内的吸收谱带

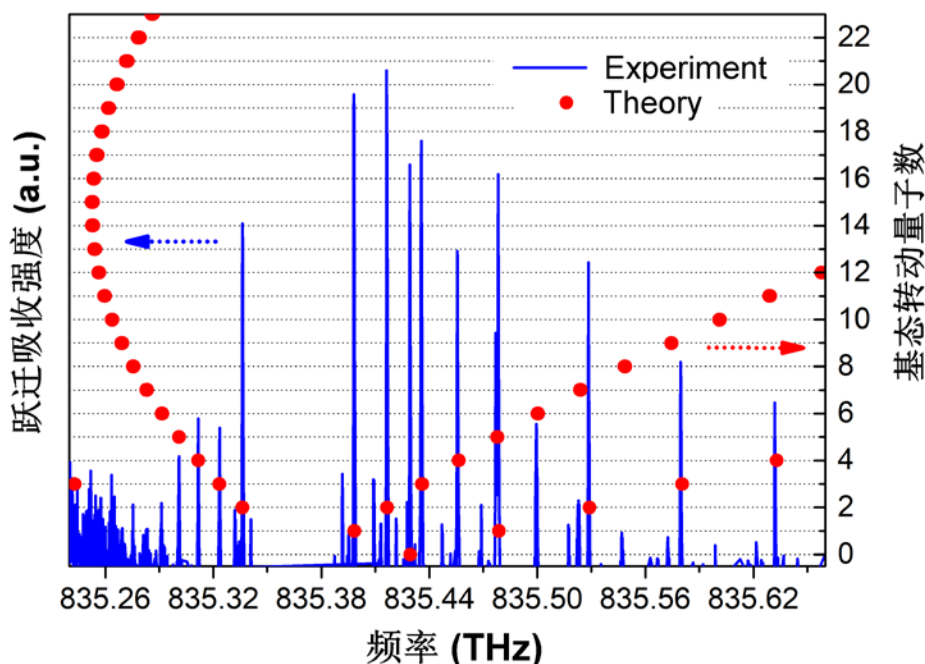


图 3.13 在探测激光波长为 358.8 nm 附近测得的低温腔内的吸收谱带

另外，如果上述推断成立，那么图 3.12 中 P1(1)和 Q12(1)支，应该就是我们做激光冷却所需要的 $X^2\Sigma^+(v=0, N=1) \rightarrow A^2\Pi_{1/2}(v'=0, J'=1/2)$ 跃迁，通过波长计测得的该跃迁的频率为：834.29 THz。

3.5.4 由 LIF 信号观测超精细光谱

由于在低温腔内 MgF 分子的多普勒增宽大于基态的低转动态中的超精细能级分裂，我们无法通过腔内的吸收信号来测量分子的超精细光谱，但我们可以通过形成的 MgF 分子束的 LIF 信号来测量超精细光谱。

首先我们对 359.3 nm 附近谱带的各 PQR 支谱线一一进行分子束的超精细光谱测量，扫描探测光的频率间隔为 10 或 15 MHz，其中 P1(1)/Q12(1)支和 R1(0)支的测出的光谱如图 3.14 所示，它们分别对应 $X^2\Sigma^+(v=0, N=1, -) \rightarrow A^2\Pi_{1/2}(v'=0, J'=\frac{1}{2}, +)$ 跃迁和 $X^2\Sigma^+(v=0, N=0, +) \rightarrow A^2\Pi_{\frac{1}{2}}(v'=0, J'=\frac{3}{2}, -)$ 跃迁，即能够分别反映 $X^2\Sigma^+(v=0)$ 态的 N=1 和 N=0 的超精细结构。

从图 3.14 的左图中可以看到 3 个峰，间隔分别约为 120MHz、106MHz，通

过与理论计算的 $X^2\Sigma^+(v=0)$ 态的 $N=1$ 的超精细能级间隔对比, 并考虑到 $F=2$ 与 $F=1^+$ 之间的间隔只有 9.2 MHz, 二者无法分辨, 其余的超精细分裂间隔均能较好地吻合。从右图中可以看到 2 个峰, 间隔约为 220 MHz, 理论计算值则约为 214 MHz, 也能较好地吻合。

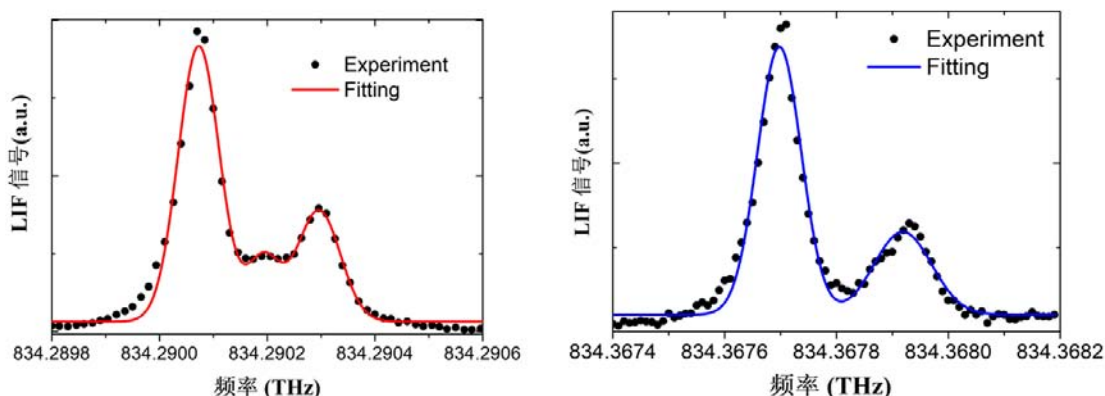


图 3.14 通过分子束的 LIF 信号测得的超精细光谱。左图为 P1(1)/Q12(1) 支, 右图为 Q1(0) 支, 分别反映 $X^2\Sigma^+(v=0)$ 态的 $N=1$ 和 $N=0$ 的超精细结构。

3.6 本章小结

在本章中, 我们详细介绍了产生预冷的 MgF 分子束所需要的缓冲气体冷却束源的设计和构造方法, 并介绍了利用所设计的低温分子束源所进行的 MgF 分子的吸收光谱和分子束的激光诱导荧光光谱。

为了实现 MgF 分子的有效产生, 我们采用化学反应方法制备 MgF 分子, 为了实现分子从低温腔中快速地提取成束, 根据缓冲气体冷却的理论, 我们设计了具有倾斜的 He 气入口和绝热性良好的低温腔, 同时利用具有二级冷头的脉管制冷机和相应的真空分子泵制造了 6 K、高真空的低温真空环境, 并探索出了为实现 MgF 分子束的有效产生所需要的消融激光条件和通入的气体条件。

利用设计的低温束源系统, 我们通过低温腔内的吸收光谱测出了 MgF 分子 $X^2\Sigma^+(v=0) \rightarrow A^2\Pi(v'=0)$ 跃迁的吸收谱带的精细结构, 通过理论分析对于精细结构的各 PQR 支的量子数进行了标定, 并确定了我们激光冷却所需要的

$X^2\Sigma^+(v=0, N=1) \rightarrow A^2\Pi_{1/2}(v'=0, J'=1/2)$ 跃迁的准确频率，同时证明了 MgF 分子的 $A^2\Pi$ 态不是一个倒态（类似 BeF），而是一个正常态（类似 CaF，SrF 等），这对进行激光冷却是一项关键性的基础工作。

我们还通过分子束的 LIF 光谱测得了 $X^2\Sigma^+(v=0)$ 态的 $N=1$ 和 $N=0$ 的超精细结构，如果在今后的实验中通过电光调制器加入边带来覆盖跃迁的超精细能级分裂，则可以使得分子减速效果得到大大增强。这些都为接下来的分子激光冷却与磁光囚禁实验铺平了道路。

第四章 钛宝石激光器及其稳频系统

4.1 引言

目前,除了已经证实的某些极性分子(MgF[22], SrF[23], YO[33], CaF[30])适合做激光冷却以外,还有更多适合的候选分子,如目前正在研究的 YbF[76], BH[77], BaH[78],甚至多原子的 SrOH[35, 36]等。由于激光冷却中所使用的准循环跃迁的辐射波长范围可以从紫外到红外波段,因此其中大部分都需要使用连续波染料激光器,或具有宽调谐范围和足够高功率的钛宝石激光器。

我们所选择的 MgF 分子,主要涉及其两个最低的电子态,即基态 $X^2\Sigma_{1/2}^+$ 和第一激发态 $A^2\Pi_{1/2}$,二者之间的跃迁, $X^2\Sigma_{1/2}^+(v=0, N=1) \rightarrow A^2\Pi_{1/2}(v'=0, J'=1/2)$ 的自然线宽为 $\Gamma = 2\pi \times 22$ MHz,波长为 359.3 nm,将被作为循环和减速的主要跃迁。由于高度对角化的 Franck-Condon 因子抑制了 $A^2\Pi_{1/2}$ 的振动分支,因此只需要额外加一束用于反抽运 $v=1$ 能级的波长为 368.6 nm 的激光就能够将振动分支损耗限制在 $< 10^{-4}$ 。

之前我们小组曾经报道过使用 PDH 稳频和传输腔稳频相结合的方法[77],获得了波长为 577 nm 的窄线宽和频率稳定的染料激光器,并证明了稳频方法的可行性。然而,在特定波长范围(690-740nm)内使用浓度约为 1g/L(将吡啶 1 溶解在含有 10%乙二醇和 90%乙二醇苯醚的溶剂中得到)的染料溶液,所得到染料激光器在 718nm 处、且泵浦激光功率为 12W 时的效率仅仅为 8%,这导致 359.3 nm 的倍频光的功率太低而不能满足实验要求。

在本章我们将展示一种用于激光冷却 MgF 的新型光源,其中使用了商用的钛宝石激光器(Matisse TS)来代替染料激光器,该激光器具有大调谐范围(700-1030nm)和高输出功率,我们将两台钛宝石激光器倍频到紫外波段来分别作为激光冷却中的主泵浦光和反抽运光,并对其进行线宽的压窄和频率的稳定,然后通过二者的拍频信号来测量已稳定激光器的线宽和长期频率稳定性。

4.2 钛宝石激光器

我们实验中使用的两台钛宝石激光器以及倍频和稳频系统的整体装置如图 4.1 所示。它主要包括：两台钛宝石激光器（型号为 Matisse TS，包含一个连续泵浦激光器（Millennia eV）和一个激光头），两个 SF（“side-of-fringe”）参考谐振腔、两个倍频腔、一个 HeNe 激光器、一个传输腔、DAQ 卡以及带相应的 LabVIEW 程序的主机。

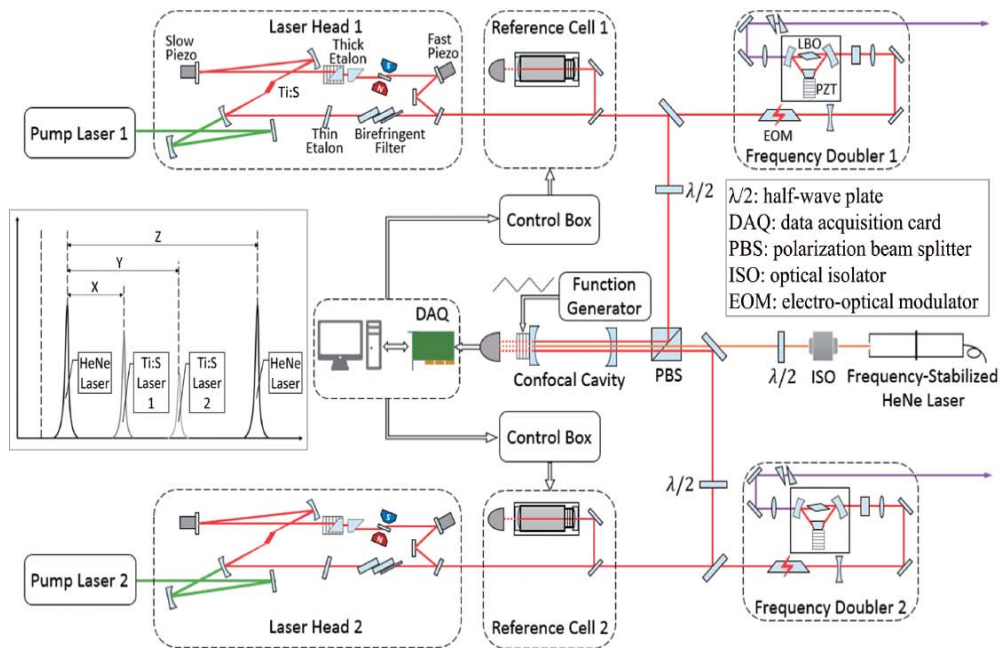


图 4.1 钛宝石激光稳频、倍频实验装置图，其中插图内显示了 HeNe 激光器和两台钛宝石激光器的透射峰信号，通过调节半波片使得各透射峰高度不同。

由于在具有钛宝石以及其他光学谐振器的激光头中产生的激光光谱带宽覆盖的波长范围很宽，为了实现单频单模的激光输出，激光头内部包含各种频率选择元件，它通过以下机制实现单模激光输出：

- (1) 镀有特殊反射涂层的腔镜可以初步滤波，例如 700-780nm。
- (2) 长度为 1.7 米的环形谐振器允许离散谐振，频率间隔约为 160 MHz。
- (3) 双折射滤波器为主要的宽范围调谐元件，它是自由光谱程（FSR）~130nm

的带通滤波器，可将频率范围减小到~50 GHz。

(4) 激光频率范围通过一个 FSR 为 250 GHz 且精细度很小的薄标准具进一步减小。

(5) 厚标准具 (FSR: 20 GHz, 精细度~3) 确保除了一个所需要的纵模以外的所有模式都有很高的损耗而无法输出激光。

在没有任何主动控制的情况下，通过以上的选频元件得到的输出激光的线宽约为 20MHz，自由运行时的激光频率的长期漂移大于 600MHz/h。

由于钛宝石激光器输出的激光波长在 700-1030 nm，而 MgF 的 A-X (0-0)态跃迁波长约为 359.3 nm，我们需要对钛宝石激光输出的 718.6 nm 的激光进行倍频才能使用，即进行二次谐波产生 (SHG)。

SHG 过程是在包含倍频晶体 (LBO 晶体) 和谐振腔的商用倍频腔 (WaveTrain) 中进行的，它采用具有专利的 DeltaConcept 设计，由两个腔镜、LBO 晶体和一个附带压电陶瓷 (PZT) 的棱镜组成，构成三角形光路结构。它可以根据入射光的频率变化通过基于由 EOM 和其他模式匹配元件的 PDH 稳频伺服环路对谐振腔长度进行监控，从而实现倍频后的激光功率跟随入射激光功率实时改变。其中 LBO 晶体具有切割成 Brewster 角的入射截面，尺寸为：长 10 mm、宽 6 mm、高 4 mm，其温度被控制在 35°C，谐振腔的回路长度约为 150 mm。三角形的谐振腔具有相对较高的倍频效率，它通过采用布儒斯特角切割的棱镜和晶体来降低损耗，并通过使用沿对称光路的对称轴平移的轻棱镜来获得有利的光束稳定性。如果需要其他波长的倍频晶体，则只需更换 LBO 晶体和两个谐振腔镜。

为了满足我们的需要，我们给两个倍频腔分别配备了波长为 718nm 和 736nm 的 SHG 晶体，并测量了倍频效率，如图 4.2 所示，它表明了输出的 SH 功率与输入基频功率之间的二次关系[80]，同时图 4.2 的插图也给出了两个钛宝石激光器的输出激光与泵浦激光功率之间的依赖关系，它们基本上为线性关系。通过测量我们发现，14.0 W 的泵浦光功率可以产生 3.72 W 的波长为 718 nm 的钛宝石激光，而后者经过倍频后可以输出 359 nm 的、输出功率为 1.285 W 的紫外激光；对于 736 nm 的钛宝石激光，可以获得的激光功率为 3.54 W，倍频后可以得到 1.0 W 的波长为 368 nm 的紫外激光。对于 359 nm 激光，观察到的最大倍频

效率为 $\eta = P_{out}/P_{in} = 34.5\%$ ，而 368 nm 激光的效率为 28.2%。

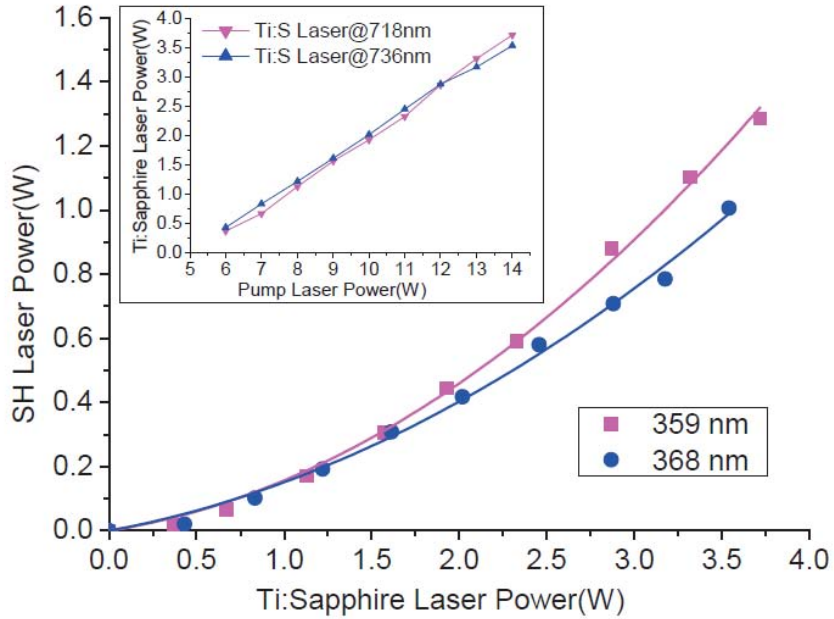


图 4.2 倍频腔的输出激光与入射激光的功率关系。其中圆点代表测量数据，实线代表二次线型拟合曲线。插图表示两台钛宝石激光器的激光与连续泵浦激光的功率关系，该关系可以用 $P_{TS} = 0.4P_{pump} - 2$ 来拟合。

4.3 激光器稳频系统

对于精密光谱学和分子光学实验，维持高度频率稳定和窄线宽的激光器是非常重要的，目前激光稳频技术由许多种，包括 PDH 技术[81]、偏振锁频[82]、原子分子跃迁线锁频[83]等。由于在分子激光冷却中，利用原子或分子的跃迁线的稳频方法不再适用，人们通常采用传递腔稳频方法[87]或光梳稳频[84]方案等进行激光频率的锁定。

在这里，我们的激光稳频方案将利用两种锁定技术的组合：透射峰边沿锁频（SF）方案和传递腔法[85]，前者提供了窄线宽和短期稳定性，而后者则保证了长期的频率锁定。对于没有原子或分子跃迁线可以使用、以及需要同时进行多台激光器稳频的情况下，这种稳定方法具有突出的优势。

如图 4.1 所示，通过透射峰边沿锁频方法，我们首先将两台钛宝石激光器锁

定到其各自的参考腔上，其中，参考腔进行了真空隔绝和温度控制，它的 FSR 为 600MHz，精细度为 15 至 20。这种方法的思想在于将激光的频率锁定在参考腔透射峰的边沿上的某一个设定点上。由于激光频率相对于设定点的偏差而发生的任何微小的透射强度的变化都会产生一个误差信号，该误差信号可以反馈到控制回路上对钛宝石激光器中的腔长进行实时反馈调节，从而获得输出激光的短期频率稳定性。该控制回路主要包括两个主动控制腔镜，它们分别安装在快速 PZT（以抵消速度相对较快的频率起伏）和慢速 PZT（确保快速 PZT 将始终具有完整的动态范围）上。

与激光器的自由运行状态相比，锁定到参考腔有助于压窄激光器线宽以及提高激光频率的短期稳定性。然而这种方法得到的激光频率稳定性仍然具有约 74 MHz/hour 的漂移（如图 4.3(a)所示），这通常是由于温度波动以及 PZT 的弛豫等作用而导致的参考腔长度微变而造成的。

为了实现激光频率的长期稳定，我们采用传递腔方法来消除参考腔长度微变的影响，即通过传递腔将参考腔长度锁定到高度稳定的 HeNe 激光器上，从而将 HeNe 激光器的长期频率稳定性（8h 内约 ± 2 MHz）传递到钛宝石激光器上。

如图 4.1 所示，我们使用装有 615-885nm 波段反射镜的 Fabry-Perot 干涉仪（Toptica FPI100，FSR: 1.0GHz，精细度：400）作为传递腔。首先我们将两束钛宝石激光和一束 HeNe 激光进行合束，然后入射到传递腔内，然后通过光电探测器对腔的透射信号进行探测。

我们通过函数发生器施加三角波到附在腔镜上的 PZT 上来进行腔长的扫描，经过光电转换的传递腔透射信号将通过 DAQ 卡和带有我们编写的 LabVIEW 程序的 PC 进行数据采集和显示处理。在我们的 LabVIEW 程序中包含三个反馈控制环路：一个用于锁定 HeNe 透射峰的位置，另外两个用于确保参考腔的长度稳定，反馈控制的过程为：

首先，利用 HeNe 激光器的透射峰位置与采集的触发时刻位置的实时偏差作为误差信号，通过 PI 控制算法导出相应的电压，作为偏置电压施加在传递腔扫描的三角波上，从而将 HeNe 激光的透射峰位置锁定。

其次，利用 DAQ 卡的模拟电压输出通道输出两个相同的逐渐增加的电压，

并通过控制箱加在两个参考腔的 PZT 上，电压增加范围从 0V 到 PZT 的最大允许电压的一半。电压增加的速度非常低，从而保证钛宝石激光器之前通过透射峰边沿锁频技术锁定在参考腔上的频率锁定仍然有效。

最后，在程序中计算两个相邻的 HeNe 激光透射峰之间的距离（这里用 Z 表示，参见图 4.1 的插图）、HeNe 透射峰与第一个钛宝石激光透射峰之间的距离（用 X 表示），然后将比值 X/Z 锁定到一个 0 到 1 之间选定的常数（由 C_1 表示）上，从而得出用于另一个 PI 控制环路的误差信号（ $X = Z - C_1$ ），该 PI 控制用于将反馈电压传递给一台钛宝石激光器的参考腔的 PZT 作为腔长漂移的校正，从而实现该台钛宝石激光器的长期频率锁定。对于另一台钛宝石激光器，我们可以类似地建立一个连续补偿 Y/Z 和另一选定常数 C_2 之间差值的控制回路，从而也实现它的长期频率稳定。需要注意的是，在我们的实验中，用于传递腔扫描的三角波的频率和 DAQ 卡的采样频率都设置为 50Hz，这是我们用不同频率的信号进行多次试验之后得出的稳定效果最好的值。

4.4 稳频后的激光线宽及频率稳定性

从我们的稳频方法可以推断，所得到的钛宝石激光器的最终频率稳定性基本上取决于我们所选用的 HeNe 激光器的频率稳定性，这表明如果采用稳定性更高的频率参考光源会产生更好的长期稳频效果。所以我们首先测量了两个激光器相对于 HeNe 激光器的频率偏差（分别用 δ_1 和 δ_2 表示），其可以表示为：

$$\begin{aligned}\delta_1 &= \left(\frac{X}{Z} - C_1 \right) \times \frac{\lambda_{\text{ref}}}{\lambda_{T1}} \times \text{FSR} \\ \delta_2 &= \left(\frac{Y}{Z} - C_2 \right) \times \frac{\lambda_{\text{ref}}}{\lambda_{T2}} \times \text{FSR}\end{aligned}\tag{4.1}$$

其中 λ_{ref} ， λ_{T1} 和 λ_{T2} 分别是 HeNe 激光器和两台钛宝石激光器的波长，FSR 表示传递腔的自由光谱程。我们直接从编写的程序中获取频率偏移的数据，从而获得两个激光器的相对频率稳定度，如图 4.3(c) 和图 4.3(d) 所示，通过直方图统计和高斯曲线拟合可以估算为两台钛宝石激光器的相对频率稳定性分别为 ± 0.79

和 $\pm 0.73\text{MHz}$ 。同时，我们可以将施加在传递腔和两个参考腔的 PZT 上的反馈电压的实时数据也从程序中输出，如图 4.3(b)所示，这可以帮助我们了解控制环路的反馈情况和环境对腔长的影响。

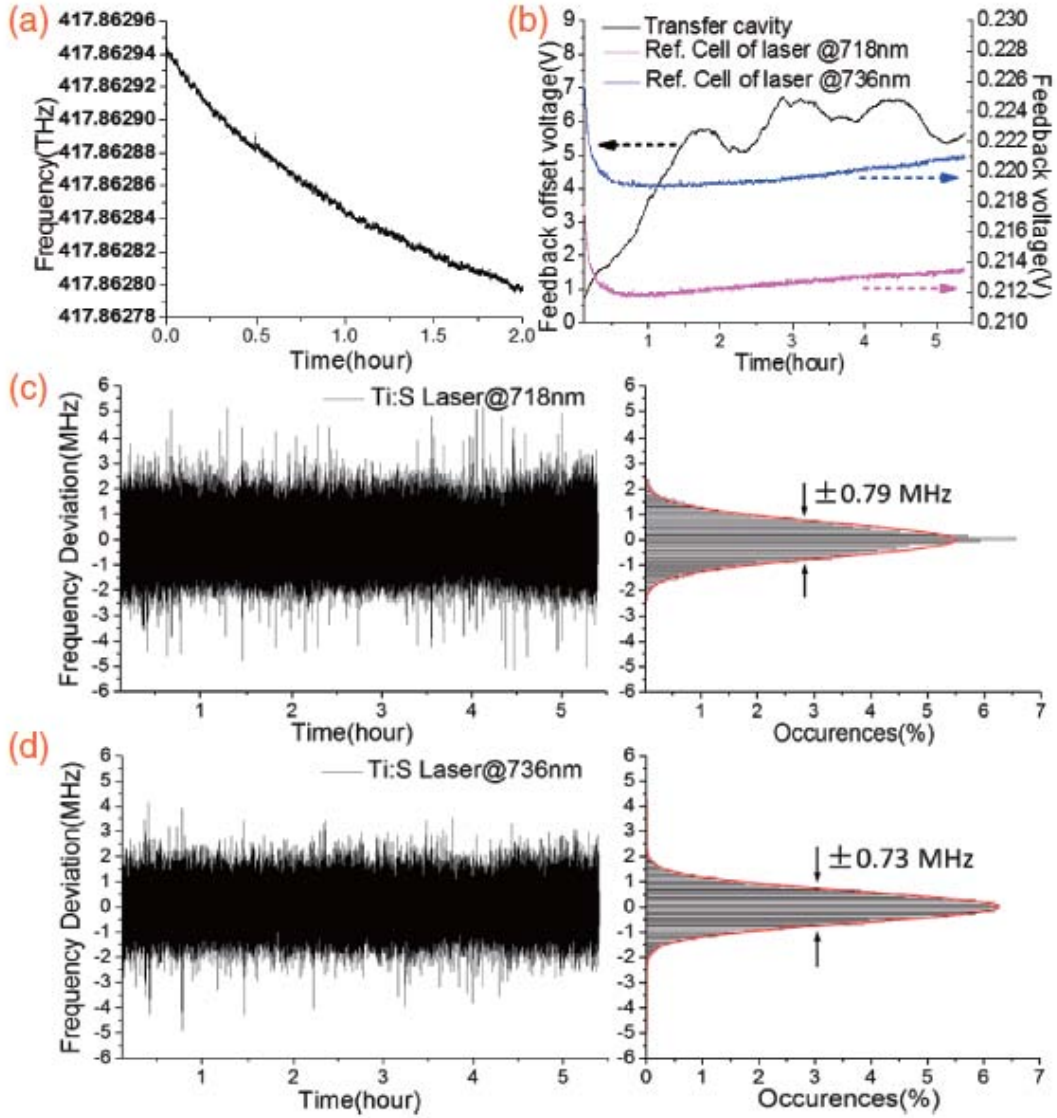


图 4.3 稳频前后的钛宝石激光频率稳定性测量结果。(a) 仅将钛宝石激光器锁定到参考腔上测量的频率漂移。(b) 通过数据采集获得的反馈到传递腔和两台参考腔的 PZT 上的实时反馈电压变化。(c-d) 在 5 小时内测得的频率稳定的 718 nm 和 736 nm 激光相对于 HeNe 激光的频率偏移以及统计图，可以通过高斯拟合曲线的半高全宽来估计相对频率稳定性。

为了探究两个稳定激光器的绝对频率稳定性和线宽，我们记录并分析了它们

之间的光外差拍频信号，实验装置如图 4.4 的插图所示。通过调节两个稳定激光器的频率使其频率接近（如 100 MHz），并将合束后的激光入射到含有两级放大功能的 PIN 二极管的自制光电探测器中，我们分别使用频谱仪和频率计监测光电探测器输出的 AC 信号。

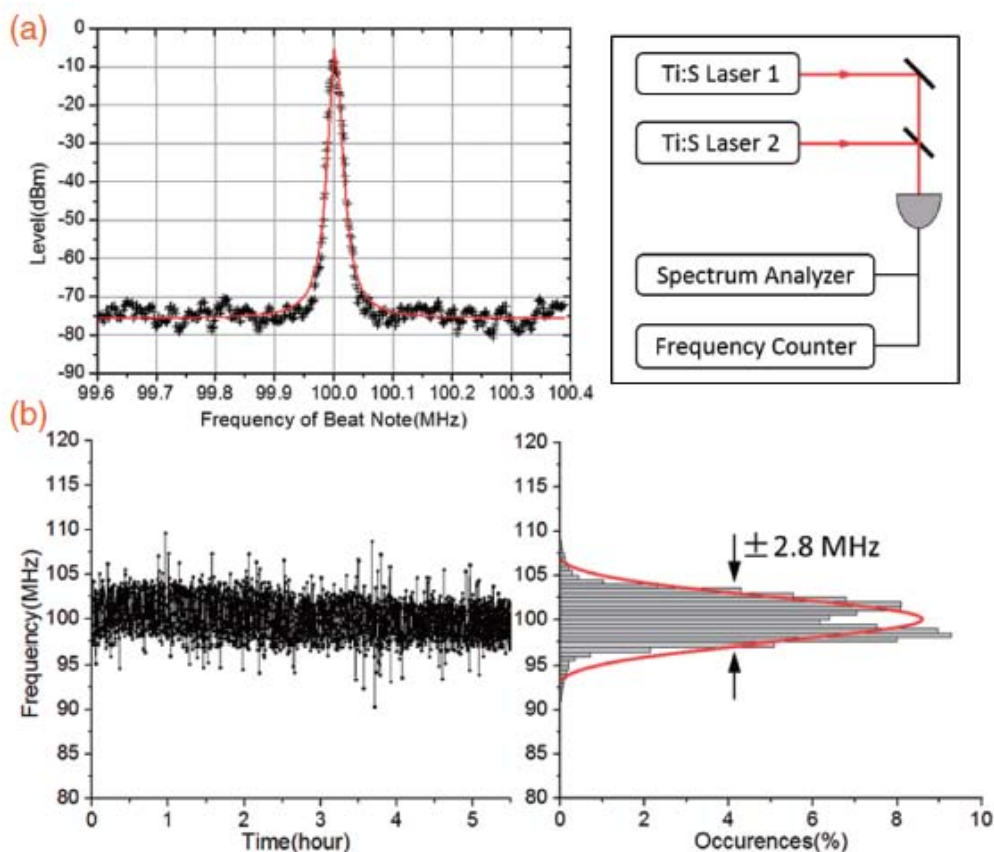


图 4.4 通过拍频信号测量激光线宽和频率稳定性的结果。(a) 两台经过稳频的钛宝石激光器的拍频信号，频率间隔为 100 MHz。插图表示实验装置图。(b) 使用积分时间为 100 ms 的频率计测量的在 5 个多小时内拍频信号的频率以及其直方图统计和高斯拟合。

通过频谱仪测得的拍频信号的频谱及其洛伦兹拟合曲线如图 4.4 (a)所示，它显示线宽为 12 kHz，这表明稳定激光的线宽明显变窄。在假定两个激光器具有相同线宽的情况下，每台钛宝石激光器的线宽为 6 kHz。此外，如图 4.4 (b)所示，通过频率计连续观察 5 小时以上的拍频信号的频率，可以得出该拍频信号具有 ± 2.8 MHz 的长期频率稳定性，这应该是由钛宝石激光器的相对频率稳定性和 HeNe 激光器在 ± 2 MHz 内波动的稳定性的共同作用产生的。因此，我们认为如

果使用更稳定的频率参考源应该可以产生更好的稳频效果。考虑到拍频的 Allan 偏差和两个激光器的平均标称频率,我们可以相应地估计由任一钛宝石激光器的 Allan 标准偏差所表示的绝对频率稳定度为 8×10^{-10} (积分时间为 100 ms), 这证明了我们稳频方法的理想效果。

为了直观比较利用我们的稳频技术前后的激光性能,我们在下表中列出了一些相关的参数,从中可以看到该稳频技术的良好效果。

表 4.1 钛宝石激光器在稳频前后的激光性能

	频率漂移	激光线宽
自由运行	>600 MHz/hour	~20 MHz
仅锁定在参考腔	~74 MHz/hour	6 kHz
SF 和传递腔结合方案	± 2.8 MHz/hour	6 kHz

4.5 本章小结

在本章中,我们具体介绍了两台分别作为 MgF 分子激光冷却实验中的主泵浦光和反抽运光的钛宝石激光器的初步实验准备,主要包括对激光的倍频、激光线宽的压窄以及激光稳频。

我们测量了两台钛宝石激光器和倍频腔的功率和效率,结果证明激光功率符合我们的需求。我们结合了两种稳频方法(即传递腔稳频和透射峰边沿锁频技术)发展了一种具有一定优势的稳频方案,获得了窄线宽 (~6 kHz) 的紫外激光和 ± 2.8 MHz 的长期频率稳定性,这对于主跃迁的自然线宽约在 $2\pi \times 22$ MHz 的 MgF 的激光冷却来说是足够的。

我们在此强调,考虑到我们的需要,这种稳定方案具有兼顾到长期频率锁定和能够锁定到任意可调谐频率的优越性,并且它还可以扩展到三台或以上钛宝石或其他类型的激光器以实现其同步频率稳定,特别是当没有原子或分子跃迁线可用于激光稳频时。尽管目前国际上有些小组,特别是在冷原子领域工作的小组,已经通过光学频率梳系统实现了激光器的频率(或相位)稳定[84],但与他们相

对复杂的光梳系统相比,我们这种通用的方案对于锁定钛宝石(或半导体,染料)激光器来说更加灵活,它尤其适用于需要窄线宽和频率稳定激光器的激光冷却分子实验。通过对激光进一步的电光调制和频率扫描,这些激光器将会在我们的激光冷却实验中发挥关键的作用。

第五章 MgF 分子激光减速方案

5.1 引言

在获得了 MgF 分子的低温缓冲气体分子束源，以及用来作为分子激光冷却中的主泵浦激光和反抽运激光的两台窄线宽、频率稳定的钛宝石激光器后，接下来就要试验 MgF 分子束的激光减速和冷却工作，目前这一工作正在积极地开展中。为了对实验提供有益的理论指导和方案的可行性论证，本章将会介绍两种分子激光减速和冷却的方案，分别为自发辐射力减速和受激辐射力减速。其中，我们将以前者作为 MgF 激光减速的主要方法，探讨自发辐射力减速，特别是激光扫频方法的可行性和减速效果；后者作为一种备用方案，我们也进行了理论分析和理论模拟。此外，基于对受激辐射减速的优势和特性的理解，我们还提出了一种用于重原子分子（例如 YbF、BaF，它们通常用于精密测量等）的快速和短距离的减速方法。

5.2 自发辐射力减速与冷却

5.2.1 理论模型

由于分子是一个多能级系统，为了计算激光冷却中分子所受的自发辐射力的大小，我们将采用多能级速率方程理论模型来推导分子中上能级布居概率，并根据它来预估分子的减速效果。

首先假设分子只有 1 个激发态和 N_g 个基态，激发态与基态之间通过激光耦合，设激发态的布居概率为 n_e ，第 j 个基态的布居概率为 n_j ，则它们应满足一组耦合的速率方程[5]：

$$\begin{aligned} \frac{dn_j}{dt} &= A_j n_e + R_j (n_e - n_j), \\ \frac{dn_e}{dt} &= -\Gamma n_e + \sum_{j=1}^{N_g} R_j (n_j - n_e) \end{aligned} \quad (5.1)$$

其中, A_j 为激发态至第 j 个基态的自发辐射速率, R_j 为激发态与第 j 个基态之间的激发速率, $\Gamma = \sum_{j=1}^{N_g} A_j$ 为激发态的总的自发辐射速率。另外, 布居概率还满足归一化条件:

$$n_e + \sum_{j=1}^{N_g} n_j = 1 \quad (5.2)$$

如果令 $\frac{dn_j}{dt} = \frac{dn_e}{dt} = 0$, 则可以解出稳态条件下激发态的布居概率:

$$n_e = \frac{1}{(N_g + 1) + \sum_{j=1}^{N_g} A_j/R_j} \quad (5.3)$$

在上式中, A_j/R_j 可以表示为 $2I_{sat,j}/I_j$, 其中 I_j 表示用以耦合激发态与第 j 个基态的跃迁的光强, $I_{sat,j} = \pi\hbar c\Gamma/(3\lambda_j^3)$ 表示该跃迁的饱和光强, 则上式可写为:

$$n_e = \frac{1}{(N_g + 1) + 2 \sum_{j=1}^{N_g} I_{sat,j}/I_j} \quad (5.4)$$

由于在激光冷却中所涉及各个跃迁的波长 λ_j 相差不大, 各跃迁之间的饱和光强可近似认为相等, 为一个常数 I_{sat} , 因此可将它从上式中的求和号内部提取到外面, 成为:

$$n_e \simeq \frac{1}{(N_g + 1) + 2I_{sat} \sum_{j=1}^{N_g} 1/I_j} \quad (5.5)$$

为了获得最强的激光冷却效果, 我们希望分子与激光相互作用过程中的光子散射速率 $R = \Gamma n_e$ 最大, 因此应该尽可能地提高 n_e , 由上式可见, 它可以通过提高激光光强 I_j 来实现。对于我们使用的总的激光光强 I_{tot} , 如果将其平均分配到各个跃迁上, 即令 $I_j = I_{tot}/N_g$, 则此时的激发态布居概率 n_e 最大, 因为这样会使得

$\sum_{j=1}^{N_g} 1/I_j$ 的值最小。因此在激光冷却中，我们应该尽量使得覆盖各个分子跃迁的激光功率相等，这可以通过选择合适的电光调制器的调制深度，使得分布在基频和各边带上的功率近似相等。

这样，如果我们令 $I_j = I_{\text{tot}}/N_g$ ，则激发态布居概率 n_e 可以表示为：

$$n_e \simeq \frac{1}{(N_g + 1) + 2N_g^2 I_{\text{sat}}/I_{\text{tot}}} \quad (5.6)$$

而每个基态的布居概率则成为： $n_j = (1 - n_e)/N_g$ 。这样，如果我们使用的激光光强 $I_{\text{tot}} \ll \frac{2N_g^2}{N_g + 1} I_{\text{sat}}$ ，则 n_e 趋近于 $\frac{I_{\text{tot}}}{2N_g^2 I_{\text{sat}}}$ 。相反，如果激光功率非常强，则所有的粒子基本上平均地布居在各个能级上，此时 n_e 趋近于 $1/(N_g + 1)$ 。

现在考虑更加复杂的能级系统，即含有 N_e 个激发态和 N_g 个基态的系统，其中每个基态均被耦合至所有的激发态，我们可以写出基态和激发态的布居概率 n_g 和 n_e 满足的速率方程和归一化条件：

$$\begin{aligned} N_g \dot{n}_g &= \Gamma N_e n_e + R_a N_e N_g (n_e - n_g) \\ N_e \dot{n}_e &= -\Gamma N_e n_e + R_a N_e N_g (n_g - n_e) \\ N_e n_e + N_g n_g &= 1 \end{aligned} \quad (5.7)$$

其中 R_a 为所有跃迁的平均激发速率。求解稳态条件下上式的解，可以得到总的激发态布居概率：

$$N_e n_e = \frac{N_e}{N_{\text{tot}} + N_g A_a / R_a} \quad (5.8)$$

其中 $N_{\text{tot}} = N_e + N_g$ ， $A_a = \Gamma/N_g$ 为每个跃迁的平均自发辐射速率。同样地，此处的 A_a/R_a 可以表示为 $2I_{\text{sat}}/I$ ，其中 I 表示耦合每个跃迁的光强。与单个激发态情况类似，当使用相同的饱和参数来耦合所有的跃迁时，总的激发态布居概率将会最高，从而得到：

$$N_e n_e = \frac{N_e}{N_{tot} + 2N_g^2 I_{sat}/I_{tot}} \quad (5.9)$$

在我们的 MgF 分子激光冷却中，使用的泵浦方案为：一束 359.3 nm 的主泵浦光驱动的 $X^2\Sigma^+(v=0, N=1) \rightarrow A^2\Pi_{1/2}(v'=0, J'=\frac{1}{2})$ 跃迁和 368.6 nm 的反抽运光驱动的 $X^2\Sigma^+(v=1, N=1) \rightarrow A^2\Pi_{1/2}(v'=0, J'=\frac{1}{2})$ 跃迁，其中激发态共包含 4 个子能级（超精细能级 $F=0,1$ 的所有磁子能级），基态共包含 24 个子能级（2 个振动能级内包含的超精细 $F=2, 1, 0, 1$ 的所有 12 个磁子能级），这样我们有 $N_e = 4$ 和 $N_g = 24$ ，如果我们采用电光调制器使得分布在各个跃迁上的激光光强相等，则根据激发态布居概率的公式，在共振情况下我们有：

$$N_e n_e = \frac{4}{28 + 2 \times 24^2 I_{sat}/I_{tot}} \quad (5.10)$$

其中，MgF 分子的饱和光强为 $I_{sat} = 62.35 \text{ mW/cm}^2$ ，钛宝石激光器经过倍频后得到的激光功率约为 1 W，实际可用来减速分子的功率约为 0.3 W。我们对上面的公式进行整理，可以得到在共振条件下有：

$$N_e n_e = \frac{1}{7} \times \frac{I/(5.1I_{sat})}{1 + I/(5.1I_{sat})} \quad (5.11)$$

其中 I 为分配到每个跃迁上的激光光强。

我们知道，在一个简单的二能级系统中，光子散射速率为[24]：

$$R = \frac{\Gamma}{2} \frac{I/I_{sat}}{1 + I/I_{sat} + 4(\delta/\Gamma)^2} \quad (5.12)$$

其中， δ 为激光频率与分子跃迁频率的失谐量。但在分子的多能级系统中，根据上面的讨论，以及散射速率 $R = \Gamma N_e n_e$ ，我们可以写出与二能级系统类似的散射速率表达式：

$$R = \frac{\Gamma}{7} \frac{I/(5.1I_{sat})}{1 + I/(5.1I_{sat}) + 4(\delta/\Gamma)^2} \quad (5.13)$$

可以看到，在多能级系统中，跃迁的自然线宽仍为 Γ ，但在激光光强远大于饱和光强的极限情况下，最大的光子散射速率成为 $\Gamma/7$ ，而并非再是二能级中的 $\Gamma/2$ 。如果我们定义一个有效饱和参数 $s_{eff} = I/(5.1I_s)$ ，并结合激光冷却中分子受到的自发辐射力的公式和多普勒效应，我们最终可以得出分子所受的自发辐射力的大小为：

$$F = \frac{\hbar k \Gamma}{7} \frac{s_{eff}}{1 + s_{eff} + 4[(\delta - vk)/\Gamma]^2} \quad (5.14)$$

其中， $k = 2\pi/\lambda$ 为激光的波矢， v 为分子的速度。

这样，我们得到了分子所受的自发辐射力公式，从而可以用来估算 MgF 分子的减速效果以及进行蒙特卡洛模拟。

5.2.2 激光扫频减速方案

如图 5.1 所示，我们将采用激光扫频方法来减速 MgF 分子束，其中分子束来源于低温缓冲气体冷却束源装置，通过缓冲气体冷却获得初始中心速度约为 120 m/s 的分子束。

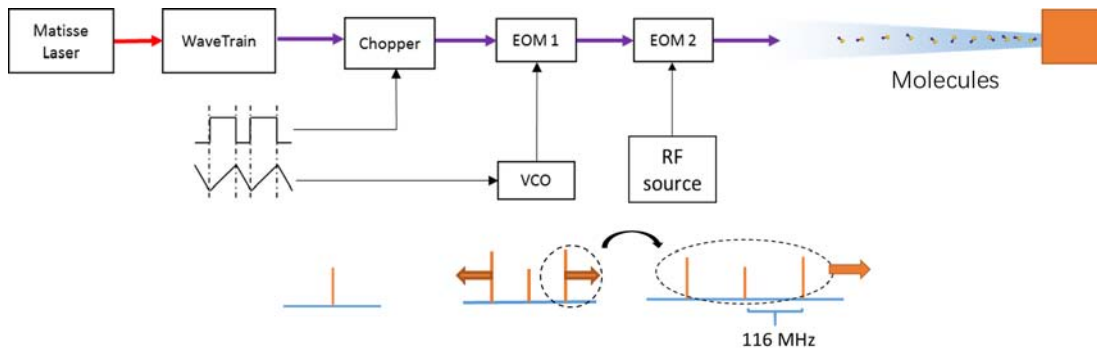


图 5.1 激光扫频方法减速 MgF 分子束的实验方案

将钛宝石激光器输出的激光经过倍频后入射到第一台电光调制器(EOM)中, 该电光调制器的调制信号来自一台压控振荡器(VCO), 通过给压控振荡器施加快速扫描的锯齿波信号, 使它输出频率快速变化(330 MHz/ms)的调制信号供给电光调制器, 从而使得电光调制器输出的激光在频域上具有了快速扫频的一级边带, 该一级边带的扫频范围为 340 MHz, 扫频速率为 330 MHz/ms, 用来补偿分子减速过程中由于分子速度降低导致的多普勒频移。

将第一台电光调制器输出的激光入射到第二台电光调制器中, 第二台电光调制器的调制信号来自一台射频发生器产生的 116 MHz 的射频信号, 从而使得第二台电光调制器输出的激光在频域上具有与基频相隔均为 116MHz 的正负边带, 用来覆盖分子的超精细能级结构。将经过两次调制的激光与经过预冷的分子束源以相反的方向传播并相互作用, 实现分子的纵向减速。

另外, 为了控制激光减速分子和进行探测的时序, 将倍频后的激光通过一个斩波器(Chopper)实现激光的快速开关。

5.2.3 蒙特卡洛模拟

我们将通过蒙特卡洛方法来模拟激光扫频方法来减速 MgF 分子束的效果和实验参数, 其中采用的模拟条件包括:

(1) 主泵浦光(359.3 nm)和反抽运光(368.6 nm)的激光功率均为 1 W, 经过第一台电光调制器后调制到其中的正一级边带上的功率均为 0.3 W, 经过第二台电光调制器后激光的功率和光强平均地分配到从基态的 $v = 0$ 和 $v = 1$ 的内部总共 8 个超精细能级至激发态的近似简并的 2 个超精细能级的跃迁上。假设所用的激光的直径为 1 cm, 则根据自发辐射力的理论模型, 它所对应的有效饱和参数约为 0.3。

(2) 假设 MgF 分子束的纵向中心速度为 120 m/s, 速度分布宽度为 70 m/s, 分子束的横向发散为 ± 15 m/s。通过严格的时序控制, 保证当分子束从低温腔中出射时开始与扫频的激光相互作用, 并在激光扫频完成后立即对分子束的纵向速度分布进行探测。

(3) 另外, 采用相同的激光参数, 但将 MgF 分子束的纵向中心速度设为 200

m/s, 速度分布宽度为 70 m/s, 横向发散为 ± 15 m/s, 也进行了减速模拟。

采用以上条件, 我们通过模拟得到的激光扫频参数和分子束减速效果如表 5.1 所示。

表 5.1 蒙特卡洛模拟的激光扫频方法来减速 MgF 分子束的效果

分子束初始中心速度(m/s)	120	200
激光扫频速率(MHz/ms)	327	327
激光扫频范围(MHz)	334	557
分子减速距离(cm)	8	18
分子减速时间(ms)	1.02	1.7
减速效率(%)	3.6	1.3

不同纵向中心速度的分子束在减速前后的速度分布分别如图 5.2 和图 5.3 所示, 其中蒙特卡洛模拟所用分子的初始数目为 1000000 个。

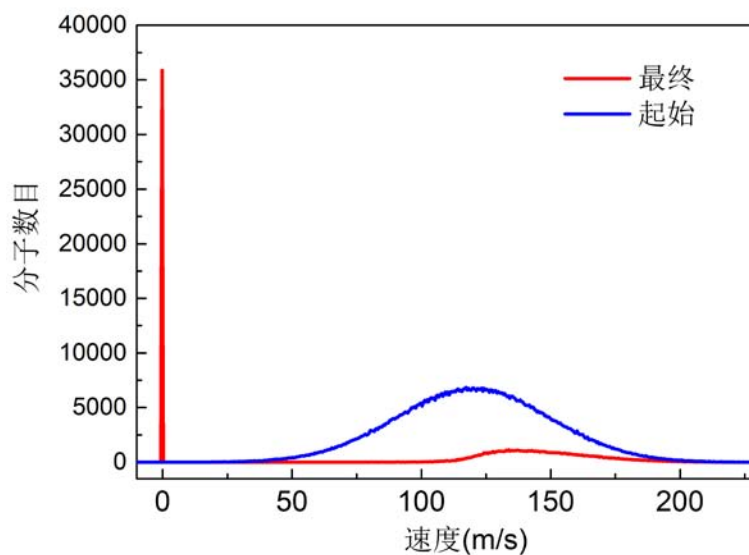


图 5.2 模拟的初始中心速度为 120 m/s 的分子束的减速效果

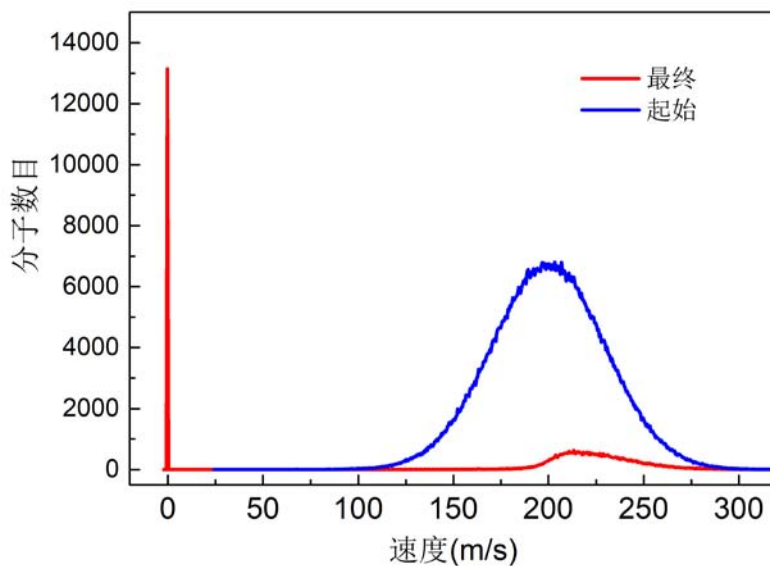


图 5.3 模拟的初始中心速度为 200 m/s 的分子束的减速效果

通过比较表 5.1 及如上两图的减速效果可以看出,对于不同初始速度的分子束来说,所需的激光扫频速率是相同的,它取决于所采用激光的饱和参数;激光扫频范围与分子束的初始速度有关;另外分子的减速距离越长,则相应的分子减速效率越低,其中影响减速的效率的首要因素即是分子束的横向发散。

为了增加减速效率,我们需要尽可能地减小分子束的横向发散,可以通过对分子束的准直来进行,例如 2010 年 DeMille 小组的文献[23]曾报道了通过准直孔实现了分子束的横向均方根速度分布为 $\Delta v_t^{RMS} = 1.9 \text{ m/s}$ 。如果采用该横向发散参数来对我们的 MgF 分子减速进行模拟,并采用相同的激光条件,则最终的减速效率可以提高到 40%以上。

5.3 受激辐射力减速与冷却

通过对如上所述的基于自发辐射力的激光减速的讨论,我们可以发现,这种分子减速机制主要依赖光子散射,而散射速率通常受限于激发态寿命、多能级系统、激光光强、多普勒失谐等,而为了获得持续的光子散射,构造准封闭跃迁循环、补偿多普勒频移等要求则提高了自发辐射力减速实验的复杂性。通常,自发辐射力需要的减速距离较长,由此带来的分子束横向发散严重限制了能够被

MOT 所捕获的分子数目。为了提高分子减速效率，受激辐射力减速有望成为一种新的具有优越性的分子减速方案。与自发辐射力减速不同，在这种减速机制下，分子获得的反冲动量主要来源于快速的“受激吸收—受激辐射”循环，通过选择适当的激光参数，可以使得这种跃迁循环的速率远大于自发辐射速率，从而使得分子所受到的力的大小明显超过自发辐射力，因而可以保证较短的减速距离和较大的减速效率。另外，该方案所需要的实验装置也相对更为简单。

5.3.1 理论模型

自上世纪 80 年代开始应用于原子的修正偶极力[37]的理论和实验研究以来，受激辐射力减速的概念已经得到了深入的研究。其中的双色力减速方法已在操控某些原子方面得到了充分的理论发展和实验应用[38, 39]，一系列描述双色力图像的方法，如 π 脉冲模型[86, 87]、双缀饰态模型[88]等，也相继发展起来。对于分子来说，由于它具有更加复杂的能级结构和内部简并度，人们也将开展了一系列的理论研究来描述和检验分子的双色力减速的效果，从基于二能级系统的唯象的理论分析[40]到基于多能级的密度矩阵运动方程的直接数值解的定量处理[42]等。L. Aldridge 等人进行的多能级系统的双色力减速模拟表明，经过低温缓冲气体冷却的分子束可在无需反抽运光的情况下被减速至接近停止，纵向减速距离为 1 cm[42]。最近，I. Kozyryev 等人在实验上利用双色力实现了经低温缓冲气体冷却的 SrOH 分子束的横向偏转，并对偏转特性进行了理论分析[43]。这些研究结果确实能够说明双色力用来减速具有复杂的内部结构的双原子或多原子分子的巨大潜力，从而为实现更高效的 MOT 装载和更高的精密测量灵敏度带来希望。

关于双色力的理论描述， π 脉冲模型[86, 87]已经为我们提供了对于具有二能级的原子（共振频率为 ω ）与双色激光场（由一对平衡的相向传播的双色连续激光束构成）之间的相互作用机制的直观图像。如图 5.4 所示，具有频率 $\omega \pm \delta$ 的每一个双色激光束均可视为一系列“beat”信号，通过适当地调节激光功率，“beat”信号则可构成一系列 π 脉冲，通过适当地选择相向传播的 beat 信号之间的相位差，原子或分子将会发生交替的定向受激吸收与受激辐射过程，从而在某个方向上受到较大的双色净力。例如，向右运动的原子先发生对左侧脉冲的受激吸收，然后

在右侧脉冲的作用下发生受激辐射，则在一个 beat 周期 π/δ 内，原子受到的总反冲动量为 $2\hbar k$ ，不断地重复上述过程，则原子在双色场中被持续地减速[87]。

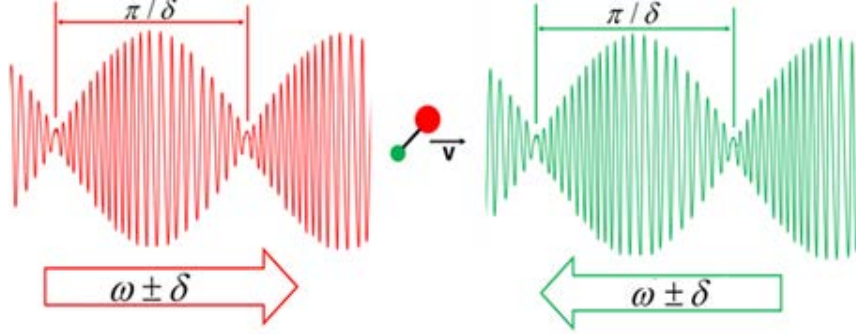


图 5.4 双色力的 π 脉冲模型图像。其中，双色激光场由一对相向传播的双色连续激光束构成，左侧激光束与右侧激光束均包含两个频率成分： $\omega \pm \delta$ 。

理论分析表明，如果 beat 信号间的相位差为 $\pi/2$ ，则二能级的原子系统受到的双色力大小可达到：

$$F_{\text{BCF}} = \frac{\hbar k \delta}{\pi} \quad (5.15)$$

而由自发辐射力的二能级模型我们知道，即使在光强无穷大的极限情况下，最大的自发辐射力为 $F_{\text{rad}}^{\text{max}} = \hbar k \Gamma / 2$ 。由于一般情况下我们令 $\delta \gg \Gamma$ ，则这种情况下，双色力可以远远大于自发辐射力所能达到的最大值 $\hbar k \Gamma / 2$ 。同时，双色力的速度捕获范围可以达到 δ/k ，相比自发辐射力的速度范围也具有更大的优势，而后者的大小会因为减速过程中变化的多普勒频移而有所降低。

为了保证相向传播的两套激光束的 π 脉冲条件，每束激光的拉比频率需要仔细地选择，从而使得每个 beat 信号的面积为 π ，此时最优的拉比频率为：

$$\Omega^0 = \sqrt{\frac{3}{2}} \delta \quad (5.16)$$

然而，双色力的二能级模型仅仅能够为我们提供一些定性的分析和直观的感受，对于一个具有复杂的多能级系统的分子来说，由于内部能级分裂、简并以及

振、转暗态的存在，无论是理论分析还是实验实施均具有相当大的复杂性。

虽然我们可以通过加入反抽运光或扰动的方法来消除振、转暗态[28]，但由于多能级系统中不同的跃迁之间的强度及频率失谐的差异，即在同样的激光功率和失谐的情况下，并非所有的多能级间跃迁均能同时以最优的拉比频率所驱动，双色力幅度的最大值将会比二能级情形中小得多。由于并没有所谓的解析解来描述分子中的双色力表现，由 L. Aldridge 等人提出的在旋转波近似下求解多能级的密度矩阵运动方程的数值处理方法[42]将为我们了解多能级系统中双色力的效果提供一个良好的途径。在这里我们也会采取该方法来精确求解分子在双色场中的受力大小，并在计算中考虑磁子能级暗态的消除效果。

考虑 MgF 分子多能级系统，包含自发辐射的密度矩阵的运动方程为[24]：

$$\dot{\rho} = \frac{1}{i\hbar} [H, \rho] + \left(\frac{d\rho}{dt} \right)_{sp} \quad (5.17)$$

其中 H 为系统的总哈密顿量，它包括裸态的哈密顿量 H_0 和光与分子的相互作用哈密顿量：

$$\frac{H}{\hbar} = \frac{H_0}{\hbar} - \left(\sum_{i,l} \Omega_{e_i g_l}^R |e_i\rangle\langle g_l| + \sum_i \Omega_{e_i d}^R |e_i\rangle\langle d| + c.c \right) \quad (5.18)$$

其中裸态的哈密顿量为：

$$\frac{H_0}{\hbar} = \sum_i \omega_{e_i} |e_i\rangle\langle e_i| + \sum_l \omega_{g_l} |g_l\rangle\langle g_l| + \omega_d |d\rangle\langle d| \quad (5.19)$$

上式中 $|g_l\rangle$ 、 $|e_i\rangle$ 和 $|d\rangle$ 分别代表基态、激发态和较远的暗态。

考虑到基态和激发态的子能级之间的不同的电偶极跃迁矩阵元，我们首先定义与任意两个子能级 $|j\rangle$ 与 $|i\rangle$ 之间跃迁相关的拉比频率：

$$\Omega_{ij}^R(z, t) = \frac{\langle i | \hat{d} \cdot \vec{E}(z, t) | j \rangle}{\hbar} \quad (5.20)$$

其中 $\hat{d}$ 为电偶极距算符， $\vec{E}(z, t)$ 为双色激光场的表达式，我们假设双色场的四个频率分量均具有相等的电场幅度 E_0 ，每个双色激光束的两个频率分量相对于基频 ω 具有 δ 的失谐量，则双色场可以表达为：

$$\begin{aligned} E(z, t) &= E_- + E_+ \\ &= 2E_0 \cos(kz + \omega t) \cos(\delta t + \varphi/4) \\ &\quad + 2E_0 \cos(kz - \omega t) \cos(\delta t - \varphi/4) \end{aligned} \quad (5.21)$$

其中， E_- 和 E_+ 分别表示左行和右行 beat 序列的电场， k 为波矢， $\varphi = 4\delta z/c$ 为两套相向传播的 beat 信号的包络之间的相位差。当分子的减速距离远远小于 beat 信号的长度，即 $z \ll c/\delta$ 的近似情况下，相位差 φ 可视为一个常数。且当相位差 $\varphi = \frac{\pi}{2}$ 时，所得到的双色力达到其最大值。

将 $\vec{E}(z, t)$ 的表达式代入公式(5.20)，经过整理，则拉比频率 $\Omega_{ij}^R(z, t)$ 可以表达为如下两项之和：

$$\Omega_{ij}^R(z, t) = \frac{1}{2} (\Omega_{ij} e^{-i\omega t} + \Omega_{ij}^* e^{i\omega t}) \quad (5.22)$$

将上式中的幅度部分提取出来，则和二能级系统相似，我们可以定义一个拉比频率幅度为：

$$\Omega_{ij}^0 = \frac{E_0}{\hbar} \langle i | \hat{d} \cdot \hat{\epsilon} | j \rangle \quad (5.23)$$

其中 $\hat{\epsilon}$ 代表双色场激光的偏振方向单位矢量。

这样，我们定义出了求解密度矩阵运动方程所需要的变量，将其代入公式(5.17)并取旋转波近似，我们即可得到一组相互耦合的光学布洛赫方程（OBE）[42]。假设分子的多能级系统包含 M_g 个基态子能级和 M_e 个激发态子能级，且激发态子能级的总的衰减速率为 Γ_i ，它衰减至每个基态子能级的速率为 Γ_{ki} ，则包含一个较远能级 $|d\rangle$ 的 $M_g + M_e$ 系统的总的 OBE 可以写为[42]：

$$\begin{aligned}
\dot{\rho}_{e_i e_i} &= \sum_m \text{Im}[\Omega_{e_i g_m}^* \tilde{\rho}_{e_i g_m}] + \text{Im}[\Omega_{e_i d}^* \tilde{\rho}_{e_i d}] - \Gamma_i \rho_{e_i e_i} \\
\dot{\rho}_{e_i e_j} &= \frac{i}{2} \left[2(\omega_{e_j} - \omega_{e_i}) \rho_{e_i e_j} - \sum_m (\Omega_{e_j g_m}^* \tilde{\rho}_{e_i g_m} - \Omega_{e_i g_m} \tilde{\rho}_{e_j g_m}^*) - (\Omega_{e_j d}^* \tilde{\rho}_{e_i d} - \Omega_{e_i d} \tilde{\rho}_{e_j d}^*) \right] - \frac{\Gamma_i + \Gamma_j}{2} \rho_{e_i e_j} \\
\dot{\rho}_{e_i d} &= \frac{i}{2} \left[2(\omega_{ed}^L + \omega_d - \omega_{e_i}) \tilde{\rho}_{e_i d} - \Omega_{e_i d} (\rho_{e_i e_i} - \rho_{dd}) + \sum_m \Omega_{e_i g_m} \tilde{\rho}_{dg_m}^* - \sum_{k \neq i} \Omega_{e_k d} \rho_{e_i e_k} \right] - \frac{\Gamma_i}{2} \tilde{\rho}_{e_i d} \\
\dot{\rho}_{e_i g_l} &= \frac{i}{2} \left[2(\omega_{eg}^L + \omega_{g_l} - \omega_{e_i}) \tilde{\rho}_{e_i g_l} - \Omega_{e_i g_l} (\rho_{e_i e_i} - \rho_{g_l g_l}) + \sum_{m \neq l} \Omega_{e_i g_m} \rho_{g_m g_l} - \sum_{k \neq i} \Omega_{e_k g_l} \rho_{e_i e_k} + \Omega_{e_i d} \tilde{\rho}_{dg_l} \right] - \frac{\Gamma_i}{2} \tilde{\rho}_{e_i g_l} \\
\dot{\rho}_{dd} &= -\sum_k \dot{\rho}_{e_k e_k} - \sum_m \dot{\rho}_{g_m g_m} \\
\dot{\rho}_{dg_l} &= \frac{i}{2} \left[2(\omega_{eg}^L + \omega_{g_l} - \omega_{ed}^L - \omega_d) \tilde{\rho}_{dg_l} - \sum_k (\Omega_{e_k g_l} \tilde{\rho}_{e_k d}^* - \Omega_{e_k d}^* \tilde{\rho}_{e_k g_l}) \right] \\
\dot{\rho}_{g_l g_l} &= \sum_k (-\text{Im}[\Omega_{e_k g_l}^* \tilde{\rho}_{e_k g_l}] + \Gamma_{kl} \rho_{e_k e_k}) \\
\dot{\rho}_{g_l g_n} &= \frac{i}{2} \left[2(\omega_{g_n} - \omega_{g_l}) \rho_{g_l g_n} - \sum_k (\Omega_{e_k g_n} \tilde{\rho}_{e_k g_l}^* - \Omega_{e_k g_l}^* \tilde{\rho}_{e_k g_n}) \right].
\end{aligned} \tag{5.24}$$

其中，含时密度矩阵元可表达为：

$$\begin{aligned}
\tilde{\rho}_{e_i g_l} &= \rho_{e_i g_l} e^{i\omega_{eg}^L t} \\
\tilde{\rho}_{e_i d} &= \rho_{e_i d} e^{i\omega_{ed}^L t} \\
\tilde{\rho}_{dg_l} &= \rho_{dg_l} e^{i(\omega_{eg}^L - \omega_{ed}^L)t}
\end{aligned} \tag{5.25}$$

其中 ω_{eg}^L 为双色场的中心频率。当求解完 OBE 的数值解后，即可根据 $F = -\text{Tr}(\rho \nabla H)$ 得到双色力大小为：

$$F(r, t) = \hbar \sum_{i,l} \text{Re}(\tilde{\rho}_{e_i g_l} \nabla \Omega_{e_i g_l}^*) + \hbar \sum_i \text{Re}(\tilde{\rho}_{e_i d} \nabla \Omega_{e_i d}^*) \tag{5.26}$$

如前所述，二能级模型中，双色场的最优拉比频率 $\Omega^0 = \sqrt{\frac{3}{2}} \delta$ ，但在多能级系统中，由于基态和激发态子能级之间不同的电偶极跃迁耦合，存在多个具有不同拉比频率幅度 Ω_{ij}^0 的跃迁，我们在此定义一个总拉比频率幅度 Ω^{tot} ：

$$\Omega^{\text{tot}} = \sqrt{\sum_j^{M_e} (\Omega_{e_i g_j}^0)^2} \quad (5.27)$$

它表示基态的 M_e 个子能级与任意一个激发态子能级之间拉比频率幅度的平方和的根。另外，双色场的每一束激光的光强 I 和总拉比频率幅度 Ω^{tot} 之间具有如下关系[89]:

$$I = \frac{2\pi\hbar c\Gamma}{3\lambda^3 f_{00} \sum_j (r_{e_i g_j})^2} \left(\frac{\Omega^{\text{tot}}}{\Gamma} \right)^2 \quad (5.28)$$

其中, I 为上能级的自发衰减速率, λ 为跃迁波长, f_{00} 为 $v = 0$ 与 $v' = 0$ 跃迁的 Frank-Condon 因子, $r_{e_i g_j}$ 为以基态和激发态之间总的偶极跃迁矩为单位的相对偶极跃迁矩阵元。

5.3.2 情形一：轻分子（以 MgF 为例）

我们先来考虑 MgF 分子的双色力减速效果, 假设构成双色场的激光为线偏振光, 对于 $A^2\Pi \rightarrow X^2\Sigma^+$ (0-0) $Q_{12}(0.5)/P_{11}(1.5)$ 跃迁分支来说, 激发态包含 4 个子能级, 基态包含 12 个子能级, 其中存在 2 个磁子能级暗态 ($F = 2, m = \pm 2$), 整体的能级结构和线偏振激光作用下的拉比振荡如图 5.5 所示[89]。

为了消除磁子能级暗态, 如第二章所述, 可以考虑加入与激光的偏振成一定角度的直流磁场, 在数值计算中可以将 Zeeman 哈密顿量加入到密度矩阵方程中。通过数值求解, 我们即可估算双色力对不同速度的分子的作用情况。

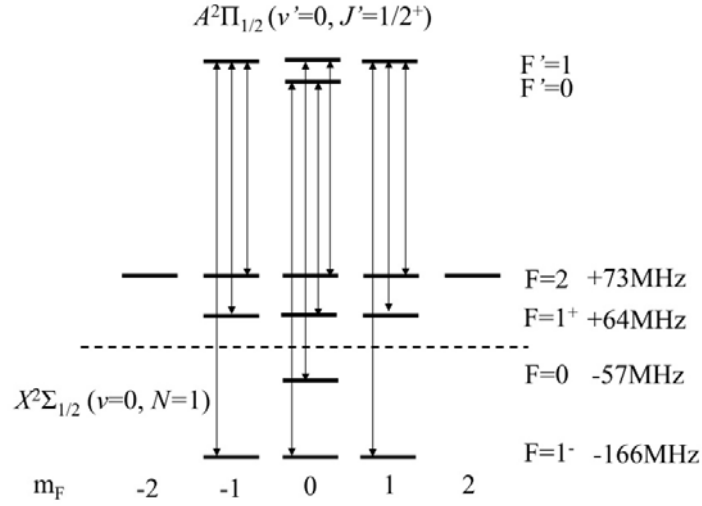


图 5.5 MgF 分子 $A^2\Pi \rightarrow X^2\Sigma^+$ (0-0) $Q_{12}(0.5)/P_{11}(1.5)$ 分支的完整能级图。其中包含两个暗态，虚线代表分子的中心跃迁频率

首先我们研究双色力的大小与总的拉比频率幅度 Ω^{tot} 之间的关系，通过调节不同的 Ω^{tot} ，我们得到了在不同双色场失谐量 δ 情况下，零速度附近的双色力大小与 Ω^{tot} 的关系，如图 5.6 所示。

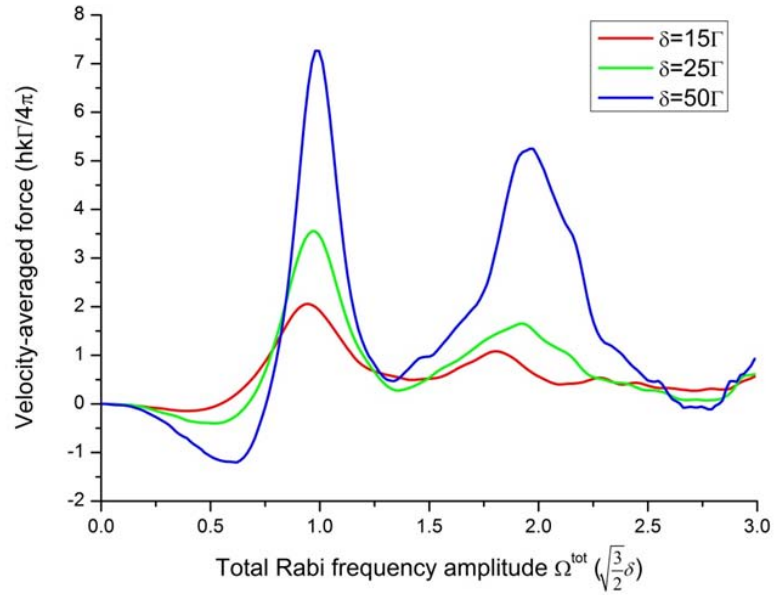


图 5.6 Ω^{tot} 对双色力大小的影响。结果表明， $\Omega^{\text{tot}} = \sqrt{3/2}\delta$ 时双色力最大

从图 5.6 中我们可以看到，与二能级系统的最优拉比频率情况类似，在多能级系统中，最优的拉比频率幅度为[42, 91]:

$$\Omega^{\text{tot}} = \sqrt{\frac{3}{2}} \delta \quad (5.29)$$

其次，我们研究双色力的大小与所用来消除磁子能级暗态的直流磁场的大小和角度之间的关系。通过数值求解我们发现，在不同的双色场失谐量和不同的双色场激光中心频率下，最优的磁场大小和角度不同。其中，当双色失谐量 $\delta = 25\Gamma$ 、双色场中心频率为 $(f_{\text{CM}} + 20 \text{ MHz})$ 时，我们所得到的磁场的幅度和角度与双色力大小的关系如图 5.7 所示，从中我们可以看出最优的磁场大小为 30 Gauss，与激光偏振的夹角为 65° 。

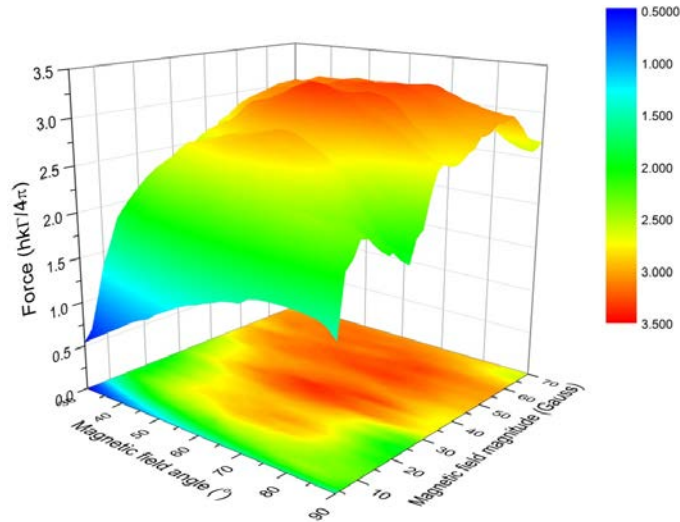


图 5.7 用来消除暗态的磁场大小和角度与双色力大小的关系。其中双色场失谐量 $\delta = 25\Gamma$ ，双色场激光的中心频率为 $(f_{\text{CM}} + 20 \text{ MHz})$

然后，利用上面的探究所得到的双色场、磁场的最优参数，我们计算了在不同的双色场失谐量 δ 情况下，双色力的大小与分子速度的依赖关系，如图 5.8 所示。从图中我们可以看到：

(1)在 $\delta = 15\Gamma$ 情况下，双色力的大小约为 $F_{\text{BCF}} = \hbar k \Gamma$ ，而对于自发辐射力来

说，在多能级系统中，即使激光光强达到无穷大，最大的自发辐射力的大小仅为 $F_{rad} = \frac{\hbar k \Gamma}{7}$ ，这说明只要激光的功率范围允许，我们使得受激辐射力的大小远远大于自发辐射力。

(2) 在 $\delta = 15\Gamma$ 情况下，双色力的速度捕获范围约为 150 m/s，而对于自发辐射力来说，为了获得连续的、大的速度捕获范围，必须通过补偿多普勒频移来得到，这同样说明采用受激辐射力的优越性，即无需补偿减速过程中的多普勒频移，从而简化实验装置。

(3) 双色力在速度捕获范围的两侧急剧下降，这说明双色力不仅可以减小分子的中心速度，同时可以对分子具有一定的冷却效果。

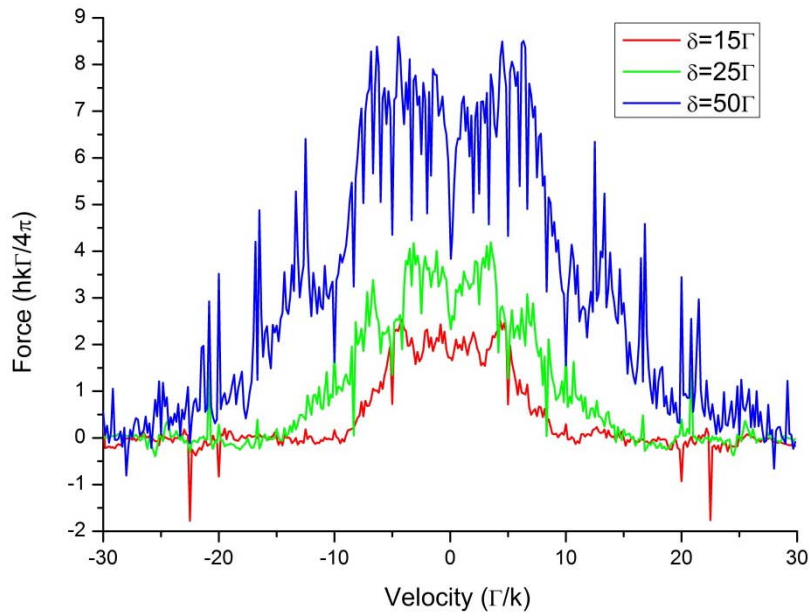


图 5.8 利用双色场和磁场的最优参数，在不同的双色场失谐量 δ 情况下，通过求解多能级密度矩阵运动方程得到的双色力大小和速度之间的关系

最后，我们对双色力减速 MgF 分子束的效果进行蒙特卡洛模拟，其中在模拟中采用的参数包括：

(1) 双色场的失谐量 $\delta = 15\Gamma$ ，式，它所对应的每个激光行波的光强为 127 W/cm^2 ，对于 1 mm 的激光束来说，相应的激光功率为 0.994 W 。双色力的速度捕获范围的中心设置为 $v_c = 9.5 \Gamma/k$ 。双色场和磁场的其他参数均设置为最优参数，

包括双色场激光的拉比频率幅度 $\Omega^{\text{tot}} = \sqrt{\frac{3}{2}}\delta$ ，中心频率为 $(f_{\text{CM}} + 20 \text{ MHz})$ ，磁场的大小为 25 Gauss，角度为 65° 。

(3) MgF 分子束来自低温缓冲气体束源，纵向速度为 120 m/s，速度分布宽度为 40 m/s，横向发散在 $\pm 1 \text{ m/s}$ 之内，它经过 5 cm 的自由飞行距离后，进入双色场区域。

采用上述参数，我们模拟得到的双色力减速效果如图 5.9 所示，其中减速距离为 0.5 cm，减速效率为 6.04%。

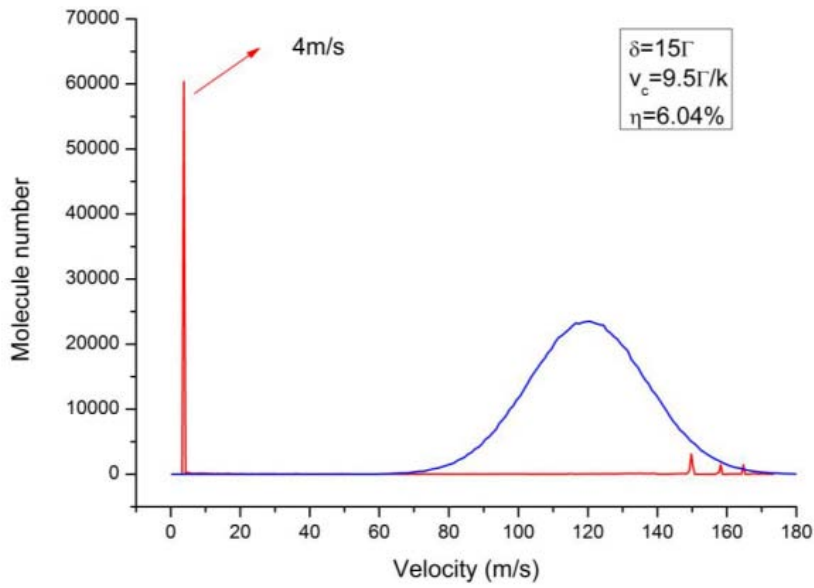


图 5.9 蒙特卡洛模拟得到的 MgF 分子双色力减速效果，蓝线和红线分别代表减速前后速度分布。

5.3.3 情形二：重分子（以 YbF 为例）

基于受激辐射力相对于自发辐射力的在大小和速度捕获范围方面的优势的启发，我们现在探讨采用双色力减速重分子的可行性。

在冷分子的众多应用领域当中，含有重原子的极性分子已被公认为用来进行精密测量的理想平台之一，例如用于寻找宇称反演对称性（P）和时间反演不变性（T）的破缺，而这将意味着在粒子物理领域中超越现有的标准模型（Standard Model, SM）的“新物理”的存在[90]，因此具有根本上的重大意义。其中，目前国

际上许多小组正在开展的电子电偶极矩（eEDM）测量实验即被认为是用于研究超标准模型的有力工具[91]。标准模型和某些对于标准模型的扩展性理论对于利用现有的实验条件可测得的电子电偶极矩大小分别给出了不同的上限值。标准模型给出的电子电偶极矩的预期值为 $d_e \leq 10^{-38} e \text{ cm}$ ，它比现在世界上所能实现的最精密的测量还要低 10 个量级，因此当前是无法测量的，而某些超标准模型的预测值 $d_e \leq 10^{-26} e \text{ cm}$ 则已经到了人类目前可以实验观测的范围[92]，所以测量电子电偶极矩对于寻找新物理和完善物理学的根基具有重要的价值。

上世纪以来，基于重原子的电子电偶极矩测量实验取得了一定的进展，也给出了几乎已经达到原子体系的测量极限值的 d_e 上限，例如 2002 年加州大学的 Commins 等人利用 Tl 原子束给出 $d_e < 1.6 \times 10^{-27} e \text{ cm}$ ，可信度为 90% [93]。但相比于原子来说，极性重分子是一个进行电子电偶极矩测量的更加具有优势的体系，因为它本身即存在固有电偶极矩，因而具有更强的极化程度，这不仅会大大地增强电子电偶极矩与极性分子内部电场的相互作用强度（增强程度可能达到 10^4 量级）[94]，而且会更好地抑制由于运动磁场效应或其他因素引起的系统误差[95]。因此，新一代的利用重双原子分子的电子电偶极矩测量已经付诸实验，其实验结果已经对超标准模型理论参数做出了更加严格的限制[61]。第一个采用 YbF 分子进行电子电偶极矩测量的实验获得的上限值在 10^{-28} 量级[96]，随后采用 ThO 分子的实验将其改善为 $|d_e| < 9.4 \times 10^{-29} e \text{ cm}$ [61]，这一值的可信度也由随后的利用囚禁的 HfF⁺离子的测量实验所确认[97]。除了上述的分子体系，目前还有其他的 EDM 实验的候选分子，例如 HgF[98]，PbF[99]，PbO[100]，TlF[101]等，也已进行过理论可行性分析或正在积极的实验筹备中，为进一步打破当前的实验极限值奠定基础。

为了进一步提高电子电偶极矩测量的精度，需要尽可能地降低其统计不确定度。 d_e 的统计不确定度可以表达为[5]：

$$\sigma_d = \frac{\hbar}{2E_{\text{eff}}\tau\sqrt{N}} \quad (5.30)$$

其中， E_{eff} 为分子内部有效电场， τ 为分子与电场和磁场的相互作用时间， N 为实验中可探测的分子总数目。 E_{eff} 用来表征由于分子内部极化带来的相互作用强度

增加以及相对论增强，对于选定的分子，这一有效电场可计算得出。

为了提高 eEDM 测量灵敏度，目前人们主要通过增加 N 值，相关方法和讨论可参阅文献[102]，而另一提高测量灵敏度的途径则是增加相互作用时间 τ ，它可能通过延长相互作用区域的长度或使用速度更低、更冷的分子束来实现。但考虑到分子束的横向发散，延长相互作用区域的长度虽然会增加 τ ，但会导致可探测得的分子数目的大量损失。通过施加横向激光冷却，分子束的横向发散将会得到有效抑制。另一方面，采用低温缓冲气体冷却分子束源代替超声束源也将改善 eEDM 测量灵敏度，4 K 低温缓冲气体束源给出 $\tau \approx 1 \text{ ms}$ [61, 98]。最近，Lim 等人实现了 YbF 分子的横向多普勒冷却和亚多普勒冷却，通过将 YbF 分子束冷却至低于 $100 \text{ } \mu\text{K}$ ，他们获得了超过 150 ms 的可用相干时间 [52]。但同时他们也指出，当前来自低温缓冲气体束源的分子束具有大约 160 m/s 的初始速度，这仍然需要 24 m 长的实验装置才能充分利用这些超冷分子。考虑到空间的限制，探索一种可行的、高效的纵向减速方法将分子减至非常低的速度将是有价值的，如果能将分子束的速度降至三维磁光阱（3D MOT）可捕获的速度范围内，则具有更加重要的意义。通过在 MOT 中进一步降低被囚禁分子的温度，或构造分子喷泉 [53]，eEDM 的测量灵敏度将会实现显著的提升。

如前所述，目前的分子激光冷却一般采用自发辐射力减速思想，应该看到，通过这一减速手段将分子由分子束装载到 MOT 中的捕获效率受限于较长的减速距离，因为在减速过程中会发生横向发散以及自发衰减至高振动能级暗态。另外，自发辐射力的大小依赖于散射速率，它会因分子能级的多重简并以及减速过程中的多普勒频移而严重降低，这也是分子的减速距离较长的主要原因。显然，对于在精密测量中采用的重分子来说，这种情况将会更加恶化。因此，我们需要不同于自发辐射力的新的减速机制来克服这些问题。目前，一些基于传统 Stark 减速器的方案已经被建议或已被用来减速重分子，例如行波减速器[12, 13]、AG 减速器[14]、新颖静电 Stark 减速器[103]等。

由于受激辐射力在大小和速度捕获范围方面的优势，我们认为它也有望成为高效、短距离地减速重分子的重要手段。但我们研究发现，与减速 MgF、CaF 等质量较小的分子不同，由于重分子的减速距离相对较长，在减速过程中由于分子

处于不同的位置而导致的相向传播的 beat 信号的相对相位的变化会使得双色力的幅值严重减小，因此不能直接将上节所述的减速小分子的方法直接照搬过来。

现在我们再次考虑由一对平衡的相向传播的双色激光束构成的沿 z 轴方向的双色场的表达式：

$$\begin{aligned} E(z, t) &= E_- + E_+ \\ &= 2E_0 \cos(kz + \omega t) \cos(\delta t + \varphi/4) \\ &\quad + 2E_0 \cos(kz - \omega t) \cos(\delta t - \varphi/4) \end{aligned} \quad (5.31)$$

其中， E_- 和 E_+ 分别表示左行和右行 beat 序列的电场， k 为波矢， $\varphi = 4\delta z/c$ 为两套相向传播的 beat 信号的包络之间的相位差，其中当 $\varphi = \pi/2$ 时，双色力的效果将最好。当 $z \ll c/\delta$ 的近似情况下，相位差 φ 可视为一个常数，即可以在减速过程中始终保持 $\varphi = \pi/2$ 从而得到最大的双色力。对于 CaF, MgF 分子来说，它们具有非常小的质量，能够在 1 cm 的距离内实现有效减速[42, 89]，该近似是成立的。但对于重分子来说，实现双色力减速需要相当长的距离，该近似失效。当然，接下来我们将会看到，它仍然比采用自发辐射力减速需要的距离短得多。

现在我们将以 YbF 分子为例阐述在双色力减速过程中相位差 φ 的变化带来的影响。该分子是国际上第一个由英国帝国理工学院的 Hinds 小组实施的采用分子体系进行 eEDM 精密测量的实验对象[96]。最近他们实现了该分子的一维亚多普勒冷却，温度低于 100 μK [52]。我们将利用该分子的具有转动闭合性的 $X^2\Sigma^+(v=0, N=1) - A^2\Pi_{1/2}(v'=0, J'=1/2)$ 跃迁作为主要的循环跃迁，其能级结构以及在线偏振激光场下的多能级跃迁如图 5.10 所示，其中跃迁的波长为 552 nm，自然线宽为 $\Gamma = 2\pi \times 5.7 \text{ MHz}$ [5]。

我们也将采用在旋转波近似下求解多能级的密度矩阵运动方程的数值处理方法来分析施加在 YbF 上的双色力大小。分子的多能级系统包括下态的 12 个子能级（即由 $F=2, 1^+, 1^-, 0$ 所表征的超精细能级的磁子能级）和上态的 4 个子能级（ $F=1, 0$ ）。

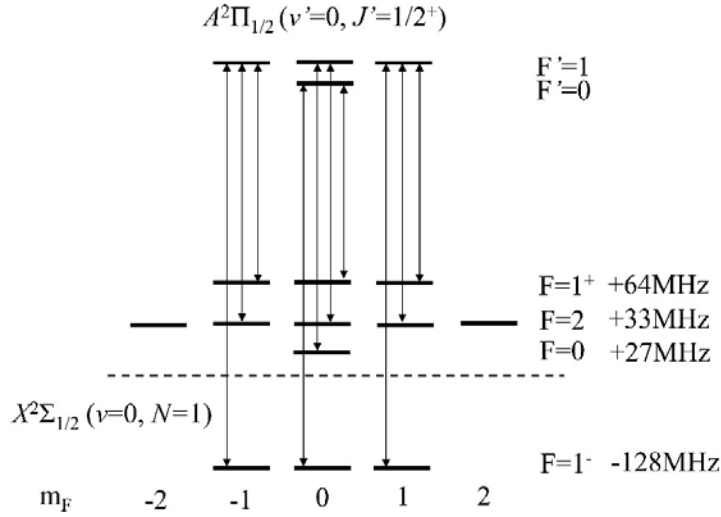


图 5.10 YbF 分子的 $A^2\Pi-X^2\Sigma^+$ (0-0) $Q_{12}(0.5)/P_{11}(1.5)$ 能级结构以及在线偏振光作用下的拉比振荡。

首先我们需要计算 $X^2\Sigma^+ - A^2\Pi_{1/2}(0,0)$ 跃迁的相对跃迁电偶极矩。考虑到 $X^2\Sigma^+$ 能态中的 $F=N=1$, J 量子数为混合的, 我们先计算其混合角[104]如下:

$$|F = 1^+, M_F\rangle = 0.536 \left| \left(J = \frac{3}{2} \right) F = 1, M_F \right\rangle + 0.844 \left| \left(J = \frac{1}{2} \right) F = 1, M_F \right\rangle \quad (5.32)$$

$$|F = 1^+, M_F\rangle = 0.536 \left| \left(J = \frac{3}{2} \right) F = 1, M_F \right\rangle + 0.844 \left| \left(J = \frac{1}{2} \right) F = 1, M_F \right\rangle \quad (5.33)$$

则采用计算跃迁电偶极矩的方法可以算得 YbF 分子的相对电偶极跃迁矩阵元如表 5.2 所示。

虽然从理论上说, 双色场的失谐量 δ 越大, 则双色力的幅值和速度范围越大, 但考虑到为了实现双色场所需要的激光功率与 δ 的二次方正成正比, 我们应选择合适大小的失谐量以保证当前的激光技术可以获得所需要的激光功率。这里我们令 $\delta = 50\Gamma$, 则当系统以最优的总拉比频率幅度 $\Omega^{\text{tot}} = \sqrt{3/2} \delta$ 驱动时, 它对应的双色场的每一束激光的光强为 107.2 W/cm^2 , 若每束激光的直径为 1 mm , 则它对应的由四束激光构成的双色场的功率为 3.4 W , 现在的激光技术, 例如在此波段的连续染料激光器, 即可实现该功率要求。

表 5.2 YbF 分子的 $A^2\Pi-X^2\Sigma^+$ (0-0) $Q_{12}(0.5)/P_{11}(1.5)$ 分支的相对电偶极跃迁矩阵元，其单位为 $A^2\Pi \rightarrow X^2\Sigma^+$ (0-0) 的电偶极矩。

J	F	m_F	F'=0	F'=1		
			$m_{F'}=0$	$m_{F'}=-1$	$m_{F'}=0$	$m_{F'}=1$
3/2	2	-2	0	0.4082	0	0
		-1	0	0.2887	0.2887	0
		0	0	0.1667	0.3333	0.1667
		1	0	0	0.2887	0.2887
		2	0	0	0	0.4082
	1	-1	0.2192	0.4873	0.4873	0
		0	0.2192	0.4873	0	0.4873
		1	0.2192	0	0.4873	0.4873
1/2	1	-1	0.5341	0.1121	0.1121	0
		0	0.5341	0.1121	0	0.1121
		1	0.5341	0	0.1121	0.1121
	0	0	0	0.4714	0.4714	0.4714

其次，我们应考虑在多能级跃迁中存在的暗态的影响，否则它们会使得循环的跃迁很快终止，从而使双色力的大小趋于零，在分子系统中主要存在两种形式的暗态：磁子能级暗态和高振动能级暗态。

首先我们考虑磁子能级暗态的消除。对于以线偏振光驱动的多能级系统来说，我们在这里将采用倾斜的磁场来消除暗态。设磁场的大小为 B ，与激光的偏振方向的夹角为 θ ，采用如前所述的对应于 $\delta = 50\Gamma$ 的最优激光光强 $107.2 \text{ W/cm}^2/\text{束}$ ，我们通过基于 16 能级模型的数值计算考察了 B 和 θ 对双色力大小的影响。模拟出的零速度附近平均双色力大小与 B 和 θ 的关系如图 5.11 所示，从中我们可以

得到最优的磁场参数为 $B = 20$ Gauss, $\theta = 60^\circ$ 。

另外, 我们还考虑了双色场的中心频率 ω 相对于 YbF 分子的跃迁中心频率 (the transition center of mass of the system, 简称 CM) 的失谐量对双色力大小的影响, 理论计算表明最优的双色场中心频率 $\omega/2\pi \approx \omega_{\text{CM}}/2\pi - 40$ MHz。

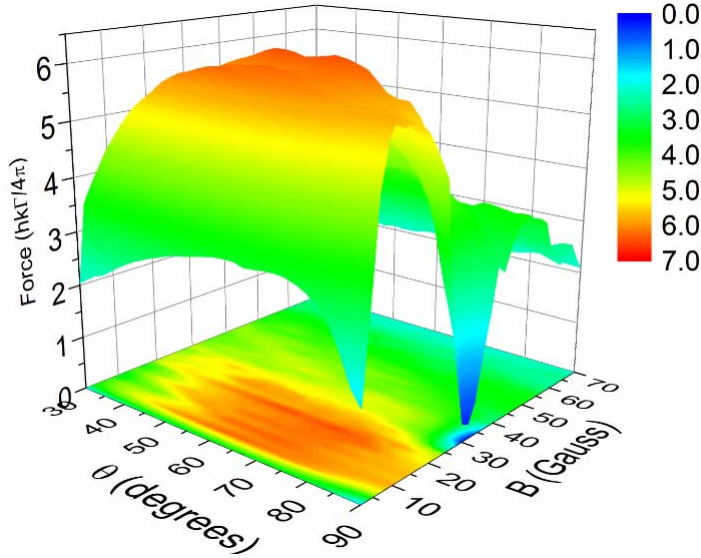


图 5.11 用以消除暗态的磁场的大小 B 和角度 θ 对双色力大小的影响

其次考虑高振动能级暗态的消除。我们知道, 在自发辐射力减速中由于减速时间较长, 通常需要加两束及以上的反抽运光来避免分子在减速过程结束前终止跃迁循环。对于受激辐射力减速来说, 虽然减速时间大大缩短, 但考虑到激光冷却选用的分子的 $A^2\Pi_{1/2}-X^2\Sigma^+(0,0)$ 能带的 Frank-Condon 因子 f_{00} 一般在 0.95 以上, 在不加入反抽运光情况下, 分子将在几十至几百次自发辐射后布局至高振动能级。分子离开双色力循环系统的时间可以表达为:

$$T_{\text{loss}} = \frac{1}{\Gamma P_e (1 - f_{00})} \quad (5.34)$$

其中 P_e 表示激发态的平均布居概率。作为较好的近似, P_e 可由下式估计[40]:

$$P_e \approx \frac{g_e/2}{g_e/2 + g_a + g_d} \quad (5.35)$$

其中, g_e 代表激发态的简并度, g_a 代表参与双色力循环的基态简并度, g_d 代表暗态能级数量。这样, 分子和光场的相互作用时间被限制在 T_{loss} 以内, 即当分子的减速时间小于该时间时, 无需加入反抽运光, 否则必须加入。对于重分子的双色力减速来说, 我们认为反抽运光在整个减速过程中是必需的, 因为一般来说, 其减速时间是远大于 T_{loss} 的, 这一点上与轻分子不同。以 YbF 分子为例, $P_e \approx 1/7$ (它可以通过在求解密度矩阵运动方程中对激发态的布居数作平均来验证), $f_{00} = 0.928$, 我们可以得到 $T_{\text{loss}} \approx 2.7 \mu\text{s}$, 从我们接下来讨论中将会看到, 在如此短的时间内实现重分子的有效减速是不可能的。

解决了消除暗态的问题, 并得到最优的光场和磁场参数后, 我们即可通过数值求解来了解双色力的效果。首先我们计算了 YbF 所受的双色力与其速度之间的关系, 如图 5.12 所示, 其中的插图给出了当相向传播的 beat 信号包络的相位差为最优值 $\varphi = \pi/2$ 时的效果。

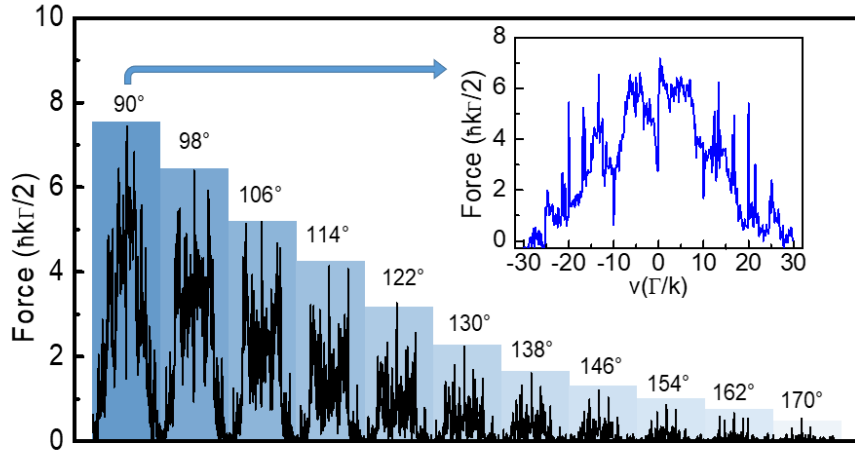


图 5.12 在相向传播的 beat 信号包络的不同的相位差 (从 90° 至 170°) 下, YbF 分子所受双色力与分子速度之间的关系。其中的插图表示在最优的相位差 $\varphi = \pi/2$ 下的双色力与速度关系。所有的数值解均基于 16 能级的密度矩阵运动方程, $\delta = 50\Gamma$, 施加的磁场 $B=20 \text{ Gauss}$, $\theta = 60^\circ$, 双色场中心频率失谐量 $d=-40 \text{ MHz}$ 。

在此最优条件下，我们可以看到双色力的速度范围仍然可以由下式估计： $\Delta v \approx \delta/k = 50\Gamma/k$ ，其中对于 YbF 来说 $\Gamma/k = 3.15 \text{ m/s}$ 。在零速度附近平均的双色力幅值约为 $5.6\hbar k\Gamma/2$ 。从中我们可以再一次看到受激辐射力相对于自发辐射力减速的在大小和速度范围上的优越性。图 5.12 中也给出了在不同的相位差（从 90° 到 170° ）下速度依赖的双色力是如何变化的，该相位差的变化量对应于 YbF 分子的运动距离为 5 cm 。显然，即使在如此短的距离内，双色力的幅度也会大幅衰减，从而根本无法实现分子的短距离有效减速。这就促使我们寻找新的方法来补偿在重分子减速过程中相位差的变化。

基于以上的讨论，并且考虑到产生双色场和预冷的分子束的可实际操作性，我们给出了一种可能的重分子的受激辐射力减速的实验方案，如图 5.13 所示。

分子束可以从 4 K 的低温腔中出射的缓冲气体束，低温腔中充满温度为 4K 的 He 气，YbF 分子在腔内通过激光消融 Yb 棒，并与 SF_6 气体化学反应产生，然后经与 He 气碰撞得以预冷。缓冲气体分子束通过一个小孔准直后，最终具有的纵向初始速度为 $100\text{-}200 \text{ m/s}$ ，均方根横向速度分布为 $\Delta v_t^{\text{RMS}} < 2 \text{ m/s}$ [23]。分子自由飞行通过长度为 d_1 的距离后，进入长度为 d_2 的减速区，接着进入探测区通过某种手段进行探测。具有最优化的参数（幅值和相对于激光偏振的夹角）的磁场一直施加于减速区域。

为了产生双色场，一束单模的频率稳定的激光首先调谐至 $\omega - \delta - kv_c$ ，此处所增加的多普勒频移量 $kv_c/2\pi$ 是为了将双色力覆盖范围的中心移动至 v_c ，从而可以充分利用双色力较大的速度范围。然后激光通过调制频率为 2δ 的声光调制器（AOM），产生频率为 $\omega \pm \delta - kv_c$ 的两束激光，它们经由偏振分束器（PBS）合束后再由一个分束器分束。分束后的一束激光通过另一个调制频率为 $2kv_c$ 的 AOM 后频率成为 $\omega \pm \delta - kv_c$ ，从而构成蓝失谐的右行 beat 信号序列，而另一束激光通过光学延迟线[105]后作为红失谐的左行 beat 序列。此处光学延迟线不仅用来调节 beat 的相对相位，更是用来补偿减速过程中 beat 相位差的变化变化的关键器件。通过将光学延迟线的位置与分子的运动过程同步，只需要非常短的平移长度，即可实现恒定的 beat 相位差，从而保持较大的双色力来有效地减速分子。光学延迟线的平移距离仅为分子的减速距离的一半。

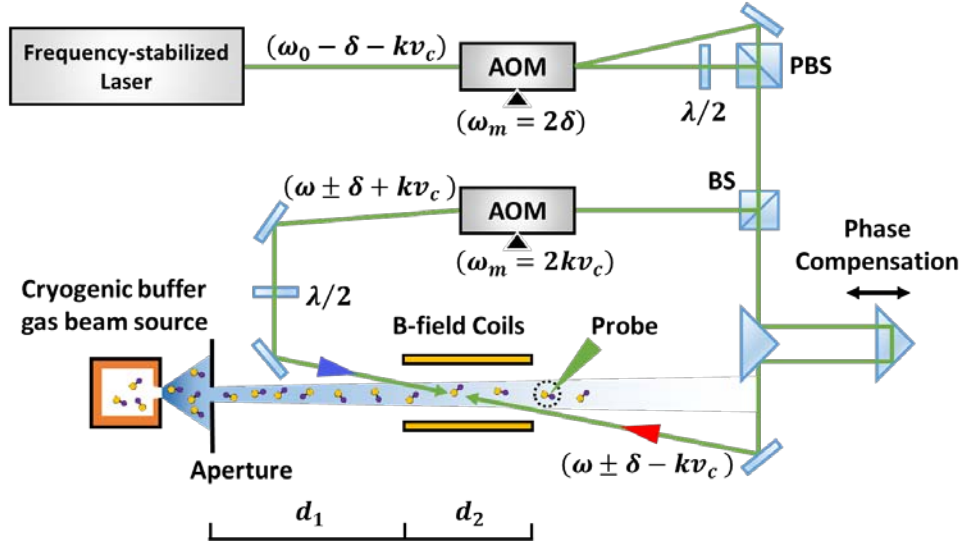


图 5.13 一种可能的重分子的受激辐射力减速的实验方案，包括产生经过多普勒频移的双色场、补偿 beat 信号包络的相位差变化、以及通过缓冲气体分子束源产生低温分子束。其中括号内的表达式表示通过某种激光稳频方式锁定后的激光频率，或经过声光调制器 (AOM) 调制后的激光频率。

接下来我们将通过模拟来比较是否进行 beat 相位差变化的补偿对于重分子的减速效果的影响。我们在模拟中将采用以上所讨论的参数：双色场的失谐量为 $\delta = 50\Gamma$ ，中心频率为 $\omega/2\pi \approx \omega_{CM}/2\pi - 40 \text{ MHz}$ 。磁场的 $B = 20 \text{ Gauss}$ ， $\theta = 60^\circ$ 。

首先，我们研究了利用如图 5.12 所示的速度依赖的双色力对于具有不同的初始速度的分子的减速效果。假设分子均从同一位置开始被减速，我们模拟了分子速度的变化与减速距离之间的关系。将双色力的速度范围的中心设定为 $v_c = 27\Gamma/k = 85 \text{ m/s}$ ，我们分别得到了如图 5.14(a)所示的恒定 beat 相位差下的减速模拟结果，和图 5.14(b)所示的未进行相位补偿的变化相位差下的模拟结果。

从图 5.14(a)中我们可以看到，初始速度低于 140 m/s 的分子可以在 5 cm 的距离内被减速至相同的约为 5.7 m/s 的最终速度。如果不进行相位差补偿，则 5 cm 的减速距离对应于 beat 相位差的改变为 80° ，它将会导致如图 5.12 所示的双色力的减弱，从而得到如图 5.14(b)所示的很差的减速效果。

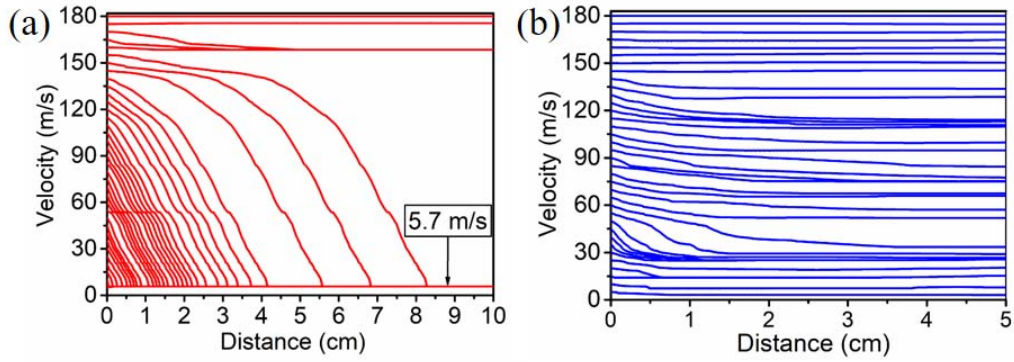


图 5.14 双色力减速中分子速度的改变与减速距离之间的关系。(a) 在恒定 beat 信号相位差下的分子速度与距离关系，其中双色力的速度覆盖范围的中心值设为 $v_c = 27\Gamma/k = 85 \text{ m/s}$ 。(b) 未加相位补偿的情况下，分子速度与减速距离的关系。

我们还利用上面所讨论的最优参数和如图 5.13 所示的实验方案的条件，对双色力减速效果进行了蒙特卡洛模拟。

模拟中所用的初始参数为：一束经过缓冲气体预冷和良好准直的分子束，具有初始纵向速度 $v_f = (120 \pm 20) \text{ m/s}$ 和横向速度分布 $\Delta v_t = \pm 1 \text{ m/s}$ ，经过自由飞行 5 cm 后进入长度为 d_2 的与双色场相互作用的区域。

模拟结果如图 5.15 所示，其中显示了分子的初始的速度分布以及进行和未进行 beat 相位差补偿的减速后的分子最终速度分布。从该图中的红线我们可以看到，大量的 YbF 分子通过 $d_2 = 3.5 \text{ cm}$ 的双色场区域后被减速至 5.7 m/s，减速效率约为 1.2%。这里我们设定 $d_2 = 3.5 \text{ cm}$ ，是综合权衡了横向发散的影响和能够被减速的分子初始速度，因为从图 5.14(a)中可以看到，初始速度越大的分子需要的减速距离越长。

经过模拟，我们还可以得到平均减速时间为 1.51 ms，它比上面曾讨论的未加反抽运光条件下的分子离开双色力循环系统的时间 $T_{\text{loss}} \approx 2.7 \text{ } \mu\text{s}$ 要大得多，因此用来覆盖较高的振动能级暗态的反抽运光是必不可少的。另外，用来补偿减速过程中 beat 相位差的改变的光学延迟线的平移距离仅为 1.75 cm。

图 5.15 也给出了未进行相位差补偿的减速结果（蓝线），显然，几乎没有分子可以被减速至低于 10 m/s，而这一点是可以通过上面的讨论所能预料到的。

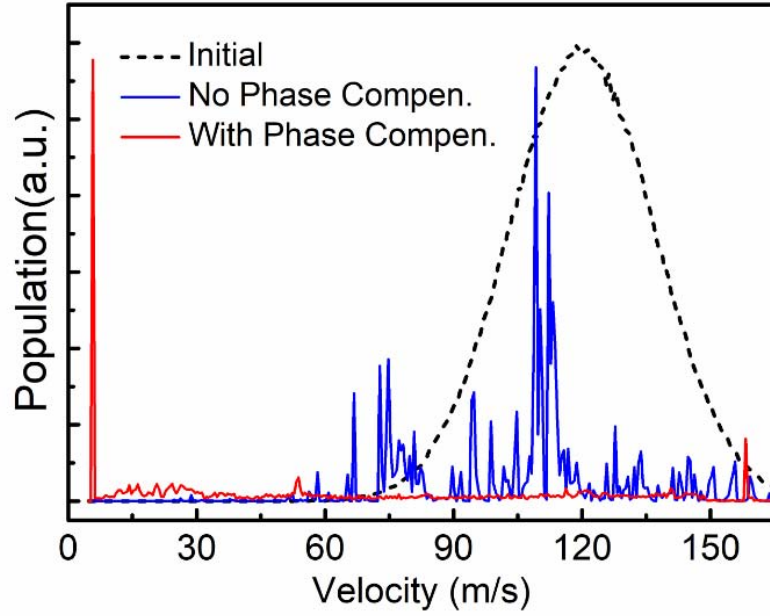


图 5.15 蒙特卡洛模拟中分子的初始速度分布以及在补偿和未补偿相位差两种情形下最终的分子速度分布情况。

为了进一步验证采用恒定 beat 相位差的双色力减速重分子的效果，我们也对 BaF 分子进行了相似的计算和模拟，BaF 分子也被认为是进行电子电偶极矩测量实验的候选者之一[106]。

考虑到可以获得的激光功率大小，我们选用与 YbF 的模拟中相同的激光光强，即 107.2 W/cm^2 ，来进行 BaF 的受激辐射力减速模拟。对于 BaF 分子来说，该光强对应的双色场失谐量为 $\delta = 139\Gamma$ 。

模拟结果以及计算中所用的参数如表 5.3 所示，其中 BaF 分子的电子态参数来自文献[53]。同时，作为对比，我们也在该表中列出了 YbF 分子的相关参数和模拟结果。

通过对比和分析两种重分子的减速效果，我们可以看到，如果分子的饱和光强 $I_s = \pi\hbar c\Gamma/(3\lambda^3)$ 越小， Γ/k 的比率越大，则在相同的激光功率下，分子受到的双色力的幅值和速度范围越大，从而可以从更高的初始速度以更短的时间、更高的效率被减速下来。

表 5.3 在采用相位差补偿技术的双色力减速的蒙特卡洛模拟中所使用的参数及结果。
假设分子束具有初始纵向速度 $v_f = (120 \pm 20)$ m/s 和横向速度分布 $\Delta v_t = \pm 1$ m/s, 经过自由飞行距离 5 cm 后进入减速区域。

	YbF	BaF
分子质量(amu)	192.1	156.3
$A^2\Pi_{1/2}$ 态寿命(ns)	28	56
A-X(0-0)的 Frank-Condon 因子	0.928	0.9508
A-X(0-0)的跃迁波长(nm)	552	860
饱和光强 I_s (Mw/cm ²)	4.42	0.58
双色场单束激光光强 (W/cm ²)	107.2	107.2
磁场大小(Gauss)	20	10
磁场角度	60°	70°
零速度附近双色力大小 ($\hbar k \Gamma / 2$)	5.6	9.6
速度捕获范围 (m/s)	158	339
双色力中心速度设定值(m/s)	85	73
恒定相位下减速距离(cm)	3.5	3.0
恒定相位下平均减速时间(ms)	1.51	0.564
恒定相位下减速效率(%)	1.2	4.1

这样,我们在理论上说明了利用双色力减速重原子分子的可行性。采用这种方法应该可以有效地突破传统的分子减速方法在空间方面、在可被装载入 MOT 的分子的捕获效率方面的限制。如果我们能将大量的分子减速至 MOT 的捕获范围内,然后进一步降低分子的温度或形成分子喷泉,这将为显著提高精密测量的灵敏度铺平道路。

5.4 本章小结

在本章中,我们针对所选定的进行激光冷却的分子 MgF 设计了两种减速方案,分别为自发辐射力减速方案和受激辐射力减速方案,且基于对受激辐射力的优势和特性的理解,提出了一种可以应用于重分子的快速、短距离减速的恒定相位减速方案。

根据自发辐射力的理论模型,多能级系统的 MgF 分子的最大光子散射速率

为二能级系统的 $2/7$ ，而相应的有效饱和光强则提高了 5 倍，在我们的两台分别作为主泵浦光和反抽运光的钛宝石激光器所能达到的功率范围内，所能达到的有效饱和参数为 0.3。为了补偿分子减速过程中的多普勒频移和超精细分裂，我们设计了基于两台电光调制器的激光扫频方案，并通过蒙特卡洛方法对该减速方案的效果进行了模拟。模拟结果表明，对于 200 m/s 的 MgF 缓冲气体分子束，可在 18 cm 内完成对分子的减速过程，其中减速过程中分子束的横向发散是制约减速效率的主要因素。

根据受激辐射力中的双色力的理论模型，我们通过求解多能级系统的密度矩阵运动方程讨论了 MgF 的双色力减速的参数和效果。理论分析表明，受激辐射力相对于自发辐射力来说一般具有在大小和速度捕获范围上的优势，其唯一的制约因素是该方案对于激光功率的要求，当然随着激光科技的发展，受激辐射力所需要的较高功率将不再是技术上的难题。通过减速模拟效果，我们发现采用总功率为 4 W 的双色激光场可在 0.5 cm 内将 120 m/s 的分子束减速至 4 m/s，且无需进行多普勒频移的补偿和超精细分裂的覆盖。

基于受激辐射力的优势，我们还设计了一种可以应用于重分子的快速、短距离减速的恒定相位减速方案，由于重分子在精密测量等方面的重要价值，我们相信该减速方案将突破传统的分子减速方法在空间方面、在可被装载入 MOT 的分子的捕获效率方面的限制，从而为精密测量的灵敏度的提高作出一定的贡献。

第六章 冷分子应用：以分子沉积为例

6.1 引言

如绪论所述，冷分子在精密测量[61]、高分辨率光谱学[60]、量子计算[6, 7]、冷化学[8, 10]等领域均具有重要的应用前景。如果我们可以通过缓冲气体冷却或激光冷却获得冷分子（束），它也可以在分子光学的一系列领域，例如分子导引[107]、几何分子光学[108]等，发挥重要的作用。本章将以一种新颖的利用表面等离子激元干涉场进行分子沉积的方案为例，介绍冷分子束的应用。

原子或分子的沉积主要应用于微型器件的刻印领域，由于传统的光刻技术的分辨率受到光波的衍射效应的限制，很难在小型化上进一步发展，而相对地，原子或分子的德布罗意波长只有 μm 量级，从而可以用于刻印纳米尺寸的微型器件。其基本原理为：利用激光的光压使得原子或分子束产生空间强度分布，然后沉积在基板或基板表面的特殊膜层上，形成分辨率高的点阵、条纹等[109]。在沉积中一般使用激光驻波场来实现原子或分子束的空间强度分布，利用原子或分子在光场中受到的偶极力来操纵最终沉积图案[110]。

由于激光驻波场形成的周期性势阱深度有限，一方面，原子或分子束的横向发散和纵向速度将影响沉积效率，我们使用低速、冷的分子束进行沉积将有利于分辨率的提高；另一方面，我们使用具有非常紧凑的空间局限性和非常高的局域强度的表面等离子激元场来增加势阱深度，并发展了一种快速切换沉积图案的方法，从而提高了沉积的效果和灵活性。

6.2 表面等离子激元场

表面等离子激元（Surface Plasmon Polaritons，缩写为 SPPs）通常指的是在金属和介质的界面上传播的一种“元激发”，它来源于电磁波和金属表面自由电子集体共振的相互耦合，它以指数衰减的形式束缚在传播方向的垂直方向上，并且被束缚在金属和介质的界面而不会向外辐射[111]。

近年来, 基于 SPPs 的研究进展吸引了众多领域的关注, 由于 SPPs 独特的特性, 例如非常紧凑的空间局限性和非常高的局域强度等, 在许多应用领域均有广泛的研究前景。SPPs 不仅可以作为基础物理、材料科学和纳米技术的强大工具[112], 而且还为许多跨学科领域打开了广阔的前景, 例如等离子体探测器[113]、等离子体自旋霍尔效应[114]、光信息技术和光电子技术[115]、表面增强拉曼散射[116]、表面等离子体共振传感器[117]、亚波长光学显微镜以及突破衍射极限的光刻[118]等。

2005 年, Z. Liu 等人报道了一种基于 SPPs 波干涉的新的纳米光刻技术[119], 他们还通过对金属薄膜的边缘以及用于激发的激光参数进行调整, 从而实现了表面等离激元的二维操控[120]。2010 年, Q. Wang 等人报道了通过近场扫描光学显微镜(NSOM)来探测由线偏振的入射激光和亚波长大小的狭缝所形成的高分辨率的二维 SPPs 的点阵实验[121]。2013 年, P. Dvorak 等人在实验上提出了一种控制 SPPs 的干涉场图案的方法, 即通过不同几何形状的狭缝, 以及选择适当的激光光束偏振和非均匀的远场辐射的组合来控制干涉图样[122]。

SPPs 的性质主要包括: 第一, SPP 能够沿着金属界面传播, 其传播常数大于介质中的波矢 ($k_{SPP} > k_0\sqrt{\epsilon_d}$), 因此它不能被介质中的光波直接激发, 相应地 SPPs 的传播速度也小于介质中的光速[123]; 第二, SPPs 波的强度随着传播距离的增加而衰减[123]; 第三, SPPs 的强度在金属与介质的界面的两侧按指数规律衰减, 因而是消逝波, 它被强烈地束缚在金属表面附近很小的尺度范围内, 这一点为控制 SPPs 的传播提供了极大的方便; 第四, 金属表面附近的 SPPs 具有场的增强效应; 第五, SPP 为 TM 波, 即磁场平行于界面且垂直于波的传播方向, 而电场则分别包含沿着传播方向的纵向分量和沿着表面的法线方向的横向分量, 在介质一侧, 横向电场强度远大于纵向电场, 而在金属一侧, 情况则正好相反[123]。

另一方面, 近年来人们对原子分子的纳米尺度的沉积技术发生了极大的兴趣, 因为这种技术并不受限于基本的衍射效应, 其沉积分辨率可以达到极短的长度, 从而避开了传统光刻的固有限制。例如, 人们曾经使用一维光学驻波场来聚焦原子束, 使它们沉积到基板上, 使用的原子包括钠原子[124]、铬离子[109]以及铝[125]、钪[126]、铁原子[127]等。然而, 这种方法仅仅适用于可进行激光冷却的

一小部分原子,而为了将一维驻波场扩展到二维或三维所需的激光系统则相对要复杂得多,即需要有两个以上的激光光束来构造和控制驻波场。我们知道,在冷原子领域中,利用相向传播的激光束所产生的驻波可以用来捕获超低温的原子(或分子)从而形成光学晶格,在光学晶格中,原子(或分子)的集合提供了一个理想的量子系统,由于其内部的所有参数都可以被控制,它可以为凝聚态物理[128]、精密测量[129]、量子信息处理[130]等基础研究提供一个理想的平台。但要注意的是,由相向传播的激光所产生的光学晶格,需要进行精确地控制和维持,因为任何微小的波动或偏振、相位差和与激光光束相关的强度不平衡都会导致晶格的不稳定。

基于以上讨论,我们期望结合表面等离激元场的优势来形成一种稳定的、可控的表面光学晶格,并将其应用于分子沉积。冷的分子束首先被加载到表面晶格中,然后在基板上沉积,形成二维的周期性的点或阵列的图案。由于该技术所形成的阵列间距可直接追溯到激光的波长,因此它具有一个潜在的应用,即可作为精确和可追踪的 SI(国际单位制)的长度标准计量的参考。

6.3 二维表面光学晶格

基于等离激元的光栅耦合方式,我们在这里提出一种二维表面光晶格的结构该结构主要基于表面等离激元的干涉场(SPPIF),我们将其称为表面等离激元光学晶格(SPPOL),因为其对应的周期性势阱可以通过交流 Stark 效应来捕获中性分子。为了对 SPPIF 的各项参数有详细的了解,我们将首先阐述简单的一维情况下的 SPPIF 的光激发的基本原理,并分析与 SPPOL 的特性有关的一些关键参数,然后将该结构的计算和模拟方法扩展到更复杂的二维情形。

作为一种在金属和介质的分界面上传播的表面电磁波形式, SPPs 的电场可以表示为[123]:

$$E = E_0 \exp[i(k_x x + k_z z - \omega t)] \quad (6.1)$$

其中 k_x , k_z 分别为波矢分量, ω 为圆频率。通过求解半无限金属(介电常数为 ϵ_m)

和介电材料（介电常数为 ϵ_d ）之间的电磁波的 Maxwell 方程，在适当的边界连续性条件下，SPPs 色散关系表达式为[131]：

$$k_x = \frac{\omega}{c} \left(\frac{\epsilon_m \epsilon_d}{\epsilon_m + \epsilon_d} \right)^{1/2} \quad (6.2)$$

从上式看出，典型的 SPP 色散曲线和光的色散曲线 $\omega = ck$ 是不同的，如图 6.1(a)所示，由于在同频率下，SPPs 的波矢总大于光的波矢（即 SPPs 的波长更短），必须采用动量补偿耦合机制，才能通过有效的光激发产生 SPPs[123]。在几种常用的动量补偿方法中，光栅是一种常用的简便方法，因为它能提供与光栅的周期相关的额外的离散的波矢量来满足动量匹配的条件。根据动量守恒，对于一个周期为 d 的一维光栅来说，可以使用沿法线方向的具有合适的激光波长的入射光激发出波矢 $k_{SPP} = 2\pi/d$ 的表面等离激元[120, 121]。

在一维情况下，SPPIF 的光激发过程可以通过如图 6.1 所示的结构实现[132]，厚度为 400 nm 的石英基板覆盖了 200 nm 厚的银膜，后者带有两个双缝结构，如果采用周期边界条件，相当于形成了包含 4 个狭缝的光栅。狭缝的宽度设为 260 nm，而两个狭缝之间的距离是 800 nm。通过仔细选择两个双缝之间的距离，在垂直方向入射的波长为 1095 nm、偏振方向沿着 x 方向（即垂直于光栅狭缝的方向）的激发光即可以耦合生成 SPPs，它们从两边的双缝出发，沿着金属表面传播，并在银膜的中间部分形成干涉驻波场（SPPIF）。

如图 6.1(b)所示，我们利用有限元软件 CST 对银膜的横截面方向的 SPPs 的强度分布进行了数值计算。从该图所给出的坐标以及强度分布中可以看出，从石英基底的入射激光束耦合形成的 SPPs 的波长为 1060 nm，它正好与 1060 nm 的光栅常数相对应，而一维 SPPIF 的周期为 530 nm，为 SPPs 波长的一半。

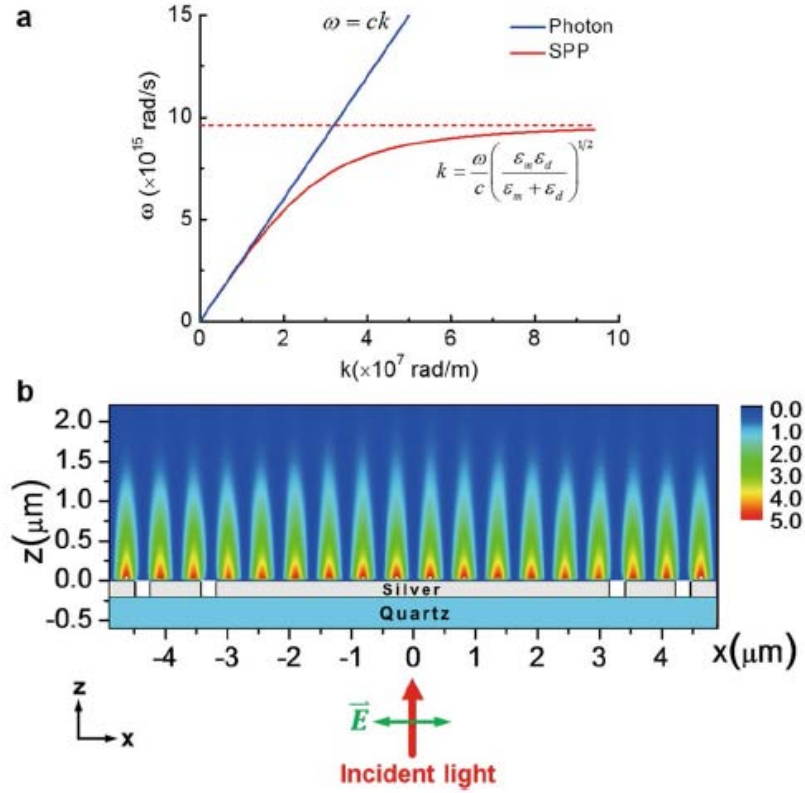


图 6.1 SPPs 的激发和一维 SPPIF 的构造装置。(a) 典型的在银与空气界面上形成的 SPP (红线) 相互作用的光子色散曲线 (蓝线)。当波矢 k 增加, 最初 SPP 特性与光子相似, 随着 k 继续增大, SPP 的色散关系有了弯折并且靠近一个极限值, 这个渐进极限被称为表面等离子频率 $\omega_p/\sqrt{2}$ 。(b) 光激励的一维结构及产生的干涉场。图中绿色箭头表示归一化的入射光的偏振方向, 红色箭头表示波矢方向。在结构中, 银膜厚度 200 nm, 银缝隙宽度 260 nm, 两个缝之间的间距 800 nm, 硅基地厚度 400 nm。产生的 SPPIF 的强度分布是在激励光场强度 1 V/m 为单位下产生的。

下面我们对产生的一维 SPPIF 进行数值描述, 首先讨论一些与 SPPs 相关的关键的物理参量:

(1) 金属材料的介电常数可由 Drude 模型描述, 即 $\epsilon_m = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i\gamma\omega}$, 其中对于银这种材料, 等离子体频率为 $\omega_p = 1.37 \times 10^{16} \text{ rad/s}$, 在 1095 nm 处的电子碰撞频率为 $\gamma = 8.5 \times 10^{13} \text{ rad/s}$ [133]。因此, SPPs 的波矢可分为实数部分和虚数部分, 即 $k_x = k'_x + ik''_x$, 表明产生的 SPPs 的强度将随着在表面的传播距

离而衰减，传播长度 $L_{SPP} = (2k_x'')^{-1}$ ，对于银来说，在波长为 1060 nm 处的传播距离 $L_{SPP} \approx 500 \text{ } \mu\text{m}$ 。同样地，电场在垂直于金属表面的衰减长度为 $\hat{z} = \frac{1}{|k_z|}$ ，对银来说，在 1060 nm 处的衰减长度 $\hat{z} \approx 1.4 \text{ } \mu\text{m}$ 。

(2) 因为只有 TM 模式的 SPPs 可以在界面传播[123]，这意味着 SPPs 的磁场是平行于界面且垂直于传播方向的，而其电场包括纵向和横向分量，分别表示为 E_x ， E_z ，这两个分量的比值为 $\frac{|E_z|}{|E_x|} = \left(-\frac{\varepsilon_m}{\varepsilon_d}\right)^{1/2} \approx 7.9$ ，这表明 E_z 在形成干涉驻波场的过程中起主要的作用。在这个意义上，SPP 波的偏振可以被看作是沿着 z 方向，也就是垂直于金属表面。

因此，一维 SPPs 和 SPPIF 的电场可以分别表示为：

$$E_z^{SPP}(x, z, t) = E_{00} e^{i(k_x' x - \omega t)} e^{-x/(2L_{SPP})} e^{-z/\hat{z}} \quad (6.3)$$

$$E_z^{SPPIF}(x, z, t) = E_{00} e^{-i\omega t} e^{-z/\hat{z}} \left[e^{ik_x' x} e^{-x/(2L_{SPP})} + e^{-ik_x' x} e^{-(L-x)/(2L_{SPP})} \right] \quad (6.4)$$

其中 E_{00} 是 SPPs 的振幅，它可以通过有限元软件的数值计算结果给出，L 是两个双缝之间的距离，它被设为 SPPs 的半波长的整数倍。如前所述，利用银膜结构产生的 SPPs 的长度为 $L_{SPP} \approx 500 \text{ } \mu\text{m}$ ，它比 $L=6360 \text{ nm}$ 大得多，因此公式(6.4)可以近似表达为

$$E_z^{SPPIF}(x, z, t) = 2E_{00} e^{-i\omega t} e^{-z/\hat{z}} \cos(k_x' x) \quad (6.5)$$

这恰好是干涉驻波场的表达式，它的周期是 SPP 波长的一半。

通过以上对一维 SPPIF 的讨论我们发现，如果将两个以上具有适当的偏振以及相位差的一维 SPPs 波进行干涉叠加，则可以将其扩展为二维 SPPIF 场。接下来我们将讨论不同类型的二维 SPPIF 的构造和图案。

如图 6.2 所示，我们可以利用相同的装置产生两种不同类型的二维 SPPIF 场，唯一的区别在于入射激光的偏振态。该装置包括一个石英衬底和在 x、y 方向上均具有双狭缝的银膜结构，而垂直入射的激光的偏振可以是线偏振（偏振方向与

x 轴成 45 度) 也可以是圆偏振, 偏振的不同将产生不同类型的 SPPIF 场。由于它们对原子或分子具有捕获作用, 我们将其称为表面等离激元光学晶格(SPPOL)。其中, 由线偏振光激发得到的为图 6.2(c)所示的棋盘形 SPPOL, 而圆偏振激光则激发出如图 6.2(d)所示的正方形 SPPOL, 这两种不同形状的晶格是在冷原子领域的由激光构成的光学晶格中非常常见的[134]。

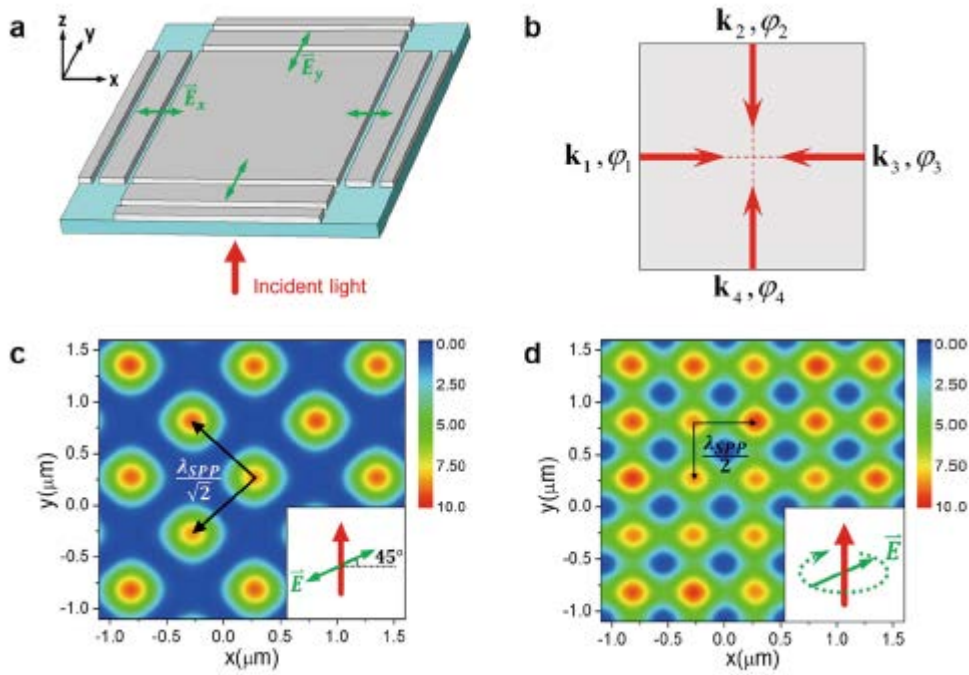


图 6.2 两种不同类型的二维 SPPIF。(a) 实现两种不同类型的二维 SPPIFs 的结构。二维结构是从一维情况扩展而来的。绿色双向箭头表示入射光的有效电场分量的振动方向, 可以在相应的方向上激发出 SPP。(b) 二维 SPPIFs 的形成原理, 四个激发出的 SPPs 波矢分别为 k_1, k_2, k_3, k_4 , 相位 $\varphi_1 = \varphi_3, \varphi_2 = \varphi_4 = \varphi_1 + \Delta\varphi$ 。(c-d) 在银膜表面形成的二维 SPPIFs 的强度分布(在 $z=100\text{nm}$ 处), 其中 (c) 为棋盘形, 周期 $d = \lambda_{SPP}/\sqrt{2}$, (d) 为正方形, 周期为 $d = \lambda_{SPP}/2$, 插图表示的是对应的入射光偏振。

为了解释这两种不同形状的 SPPOL, 我们考虑形成二维 SPPIF 的两个相互正交的一维 SPPIF。因为 SPPs 只能被偏振与狭缝垂直的入射光激发, 而根据偏振光原理, 入射光的线偏振或圆偏振均可以分解为两个相互正交的线偏振分量, 其中一个线偏振在 x 方向上垂直于相应的狭缝, 而另一个线偏振则在 y 方向上垂

直于狭缝：

$$\begin{aligned}
 \mathbf{E}_{light} &= \mathbf{E}_x + \mathbf{E}_y \\
 &= E_{x0} \cos(k_i z - \omega_i t) \mathbf{e}_x \\
 &\quad + E_{y0} \cos(k_i z - \omega_i t + \Delta\varphi) \mathbf{e}_y
 \end{aligned} \tag{6.6}$$

其中， E_{x0} ， E_{y0} 分别为线偏振分量的振幅， k_i 为波矢， ω_i 为光的频率， $\Delta\varphi$ 为两个分量的相位差，对于与 x 方向成 45 度的线偏振光来说，它由两个线偏振组成，并有 $E_{x0} = E_{y0}$ ， $\Delta\varphi = 0$ ，对于圆偏振光来说，则是由两个相位差为 $\pi/2$ 的同振幅的线偏振光叠加而成。在这里， $\mathbf{E}_x$ 可以激发 x 方向上的 SPPs 波， $\mathbf{E}_y$ 可以激发 y 方向的 SPPs 波，这两个分量之间的振幅和相位差的关系可以被保留并传递到 x 和 y 方向上产生的 SPPs 波上。

如图 6.2(b)所示，4 个被激发的 SPPs 的波矢分别为 $\mathbf{k}_1$ ， $\mathbf{k}_2$ ， $\mathbf{k}_3 = -\mathbf{k}_1$ ， $\mathbf{k}_4 = -\mathbf{k}_2$ ，它们具有同样的沿着 $\mathbf{e}_z$ 方向的偏振，其绝对相位分别为 φ_1 ， $\varphi_2 = \varphi_1 + \Delta\varphi$ ， $\varphi_3 = \varphi_1$ ， $\varphi_4 = \varphi_2 = \varphi_1 + \Delta\varphi$ ，它们彼此发生干涉，形成两个方向上相互正交的一维驻波场。当入射光的偏振为与 x 方向成 45 度的线偏振光时，这种情况对应于相位差为 $\Delta\varphi = 0$ 的两个正交的一维驻波场的互相干涉，此时 $|\mathbf{k}_1| = |\mathbf{k}_2| = |\mathbf{k}_3| = |\mathbf{k}_4| = k'_x$ ， $\varphi_1 = \varphi_2 = \varphi_3 = \varphi_4$ 。考虑到 SPP 波的偏振是线性的并且垂直于银膜平面，由此产生的二维 SPPIF 的电场可以被描述为：

$$E_z^{SPPIF}(x, y, z, t) = 2E_{00}e^{-i\omega t}e^{-z/\lambda}[\cos(k'_x x) + \cos(k'_x y)] \tag{6.7}$$

此时，构成的即为一个棋盘形 SPPOL(沿对角线方向的正方形晶格)。

周期性是光学晶格的一个重要的参数，此处我们考虑对分子来说为红失谐的 SPPIF 来讨论 SPPOL 的势阱，在该情况下分子将被吸引至晶格场的光强最大值处，因此我们将相邻的最大光强点之间的间距作为晶格的周期，在图 6.2(c)中，棋盘形 SPPOL 沿着对角线的周期长度为 $d = \lambda_{SPP}/\sqrt{2} \approx 750 \text{ nm}$ 。

通过改变两个相互正交的一维 SPP 驻波场的相对相位可以改变 SPPOL 的形

状，即通过简单地将入射光的偏振从线偏振改为圆偏振，使得 $\Delta\varphi = \pi/2$ ，则晶格的形状从周期长度为 $\lambda_{SPP}/\sqrt{2}$ 的棋盘形晶格变成周期长度为 $d = \lambda_{SPP}/2 = 530 \text{ nm}$ 的正方形晶格，如图 6.2(d)所示。此时图 6.2(b)所示的 4 个 SPPs 的相位分别是 $\varphi_1 = \varphi_3 = 0$ ， $\varphi_2 = \varphi_4 = \pi/2$ ，同时，该二维 SPPIF 的电场可以表示为：

$$E_z^{SPPIF}(x, y, z, t) = 2E_{00}e^{-i\omega t}e^{-z/\tilde{z}}[\cos(k'_x x) + i\cos(k'_x y)] \quad (6.8)$$

因此，我们可以通过相对简单的装置即可实现不同形状的二维 SPPIFs，这些 SPPIFs 可以构成具有不同结构的 SPPOLs。

值得一提的是，相对于在冷原子中的光学晶格，此处的 SPPOLs 的优势在于形成的驻波场非常稳定，因为它们实际上是由一束具有适当偏振的激光激发而来的，形成二维晶格的两个一维驻波场之间的相位差具有本质上的稳定性。而由多束激光构成的光学晶格通常是由迈克尔孙干涉仪来锁定这些激光光束的相对相位[134]，任何微小的起伏或在偏振、相位差或强度上的不平衡都会导致晶格的不稳定性，因此，为了实现此种晶格通常需要复杂的光学装置。但在我们的情形中，只需要设计狭缝结构和一束激光即可解决这个问题。

如果进一步更改狭缝的排布，例如使用三角形结构等，则我们可以方便地实现其他形状的 SPPOLs 的设计。

如图 6.3 所示，在银膜表面上，当 3 个具有相等波长的 SPPs 波以 120 度的夹角相互干涉时，即得到二维的三角形晶格，其中入射光为圆偏振。如图 6.3(b)所示，从 3 条狭缝被激发的 SPPs 的波矢分别为 $\mathbf{k}_1$ ， $\mathbf{k}_2$ ， $\mathbf{k}_3$ ，它们在银膜表面形成的强度分布呈三角形结构的晶格场如图 6.3(c)所示，这与冷原子领域中利用三束线偏振激光产生的光学晶格类似[135]。

定义这三个 SPPs 波的波矢分别为：

$$\mathbf{k}_1 = k'_x \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \end{pmatrix}, \mathbf{k}_2 = \frac{k'_x}{2} \begin{pmatrix} \sqrt{3} \\ -1 \end{pmatrix}, \mathbf{k}_3 = \frac{k'_x}{2} \begin{pmatrix} -\sqrt{3} \\ 1 \end{pmatrix} \quad (6.9)$$

则具有三角形形状的二维 SPPIF 的电场可以被描述为：

$$E_z^{SPPIF}(\mathbf{r}, z, t) = E_{00}e^{-z/\hat{z}}[\cos(\mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r} - \omega t + \varphi_1) + \cos(\mathbf{k}_2 \cdot \mathbf{r} - \omega t + \varphi_2) + \cos(\mathbf{k}_3 \cdot \mathbf{r} - \omega t + \varphi_3)] \quad (6.10)$$

其中 $\mathbf{r} = (x, y)$ 是在 x - y 平面内的位置矢量, $\varphi_{1,2,3}$ 分别为 3 个 SPPs 波的相位。由于入射光为圆偏振, 则式(6.6)中的 $\Delta\varphi = \pi/2$ 。激发形成的 3 个 SPPs 波具有不同的相位差, 其中 $\Delta\varphi_{12} = \varphi_1 - \varphi_2 = \frac{2}{3}\pi$, $\Delta\varphi_{23} = \varphi_2 - \varphi_3 = \frac{2}{3}\pi$ 。因此, 假设 $\varphi_3 = 0$, 则有 $\varphi_1 = \frac{4}{3}\pi, \varphi_2 = \frac{2}{3}\pi$ 。

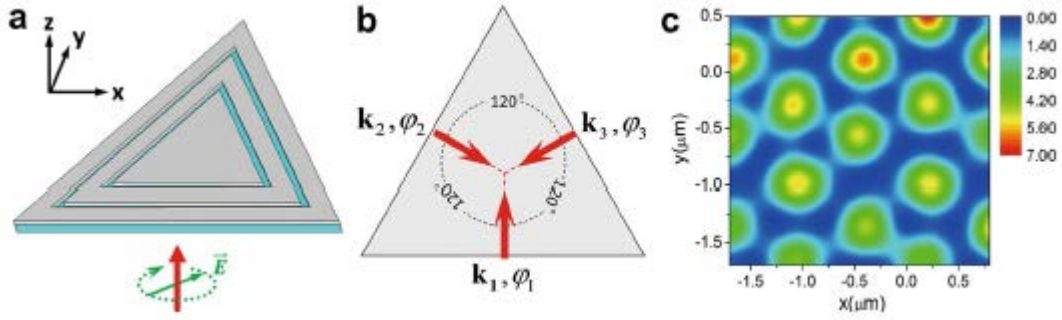


图 6.3 三角形结构的二维 SPPIF 的装置和光强分布。

6.4 二维表面晶格场中的分子沉积

我们知道, 在非共振光场中的分子将会经历由直流或交流 stark 效应而产生的偶极力, 其势能和对应的偶极力分别可以表示为[136]:

$$U_{dip}(r) = -\frac{1}{2\epsilon_0 c} Re(\alpha) I(r) \quad (6.11)$$

$$F_{dip}(r) = -\nabla U_{dip} = \frac{1}{2\epsilon_0 c} Re(\alpha) \nabla I(r) \quad (6.12)$$

其中 α 是分子的极化率, $I(r)$ 是光场强度。分子在红矢谐 SPPIF 中将受到吸引作用势, 这些分子会被吸引并沉积在 SPPIF 的波腹上。

由于处于 SPPIF 中的分子可以由指向波腹的偶极力所操纵, 即 SPPIF 的每

一个周期都能充当分子透镜，使分子在空间上聚焦，并最终实现分子的周期性沉积，而基于不同的二维 SPPIF 的强度分布，可以实现不同图案的分子沉积。

现在我们将利用蒙特卡罗轨迹模拟方法对分子沉积过程进行研究[137]。我们将选定 MgF 分子作为实例来探究它在 SPPIFs 场中的纳米尺度沉积。在蒙特卡罗模拟中，我们假设分子的速度分布为高斯分布，与分子束源可以得到的分子束的速度相匹配[138]。一束经过预冷的 MgF 分子的纵向速度为 65m/s (可以采用二级缓冲气体冷却束源得到[33])，速度分布宽度为 $\Delta v = 20\text{m/s}$ ，横向发散角为 1 mrad 。分子束在 z 方向上垂直入射到银膜表面，而用来激发二维 SPPIF 的激光可以由商用 OPO 激光器提供，激光光强为 $4 \times 10^9\text{ W/cm}^2$ [136]。我们采用图 6.2 和图 6.3 中的三种不同的 SPPOL 来获得不同的沉积图案。

通过模拟，我们得到的不同图案的分子沉积结果如图 6.4(a-c)所示。

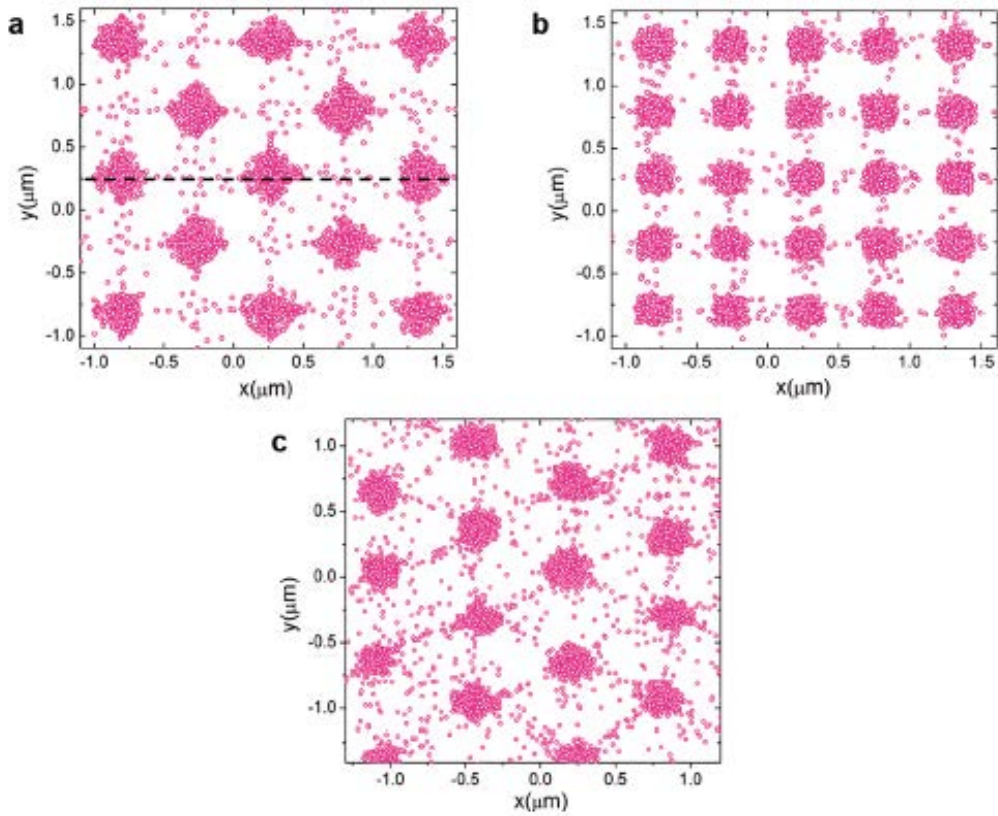


图 6.4 利用不同形状的 SPPIF 场模拟出的不同的分子沉积图案

将上图中的沉积图案与图 6.2 和图 6.3 所示的 SPPIFs 的强度分布相比，显然大多数的分子都沉积在二维 SPPIFs 的波腹上。一小部分分子之所以没能沉积在波腹，是因为它们具有过大的初始横向或纵向速度。这表明我们可以通过使用速度更低、准直性更好的分子束来获得亮度更高、更干净的沉积点阵，例如可以利用磁或电六极场或 skimmer 实现。

为了研究沉积分辨率与激光光强的关系，我们将以图 6.4(a)所示的沉积图案为例，模拟不同入射激光强度对沉积点的宽度的影响，其中沉积点宽度定义为沉积点的分子数目分布的半高全宽，如图 6.5 中的插图所示。

沉积点宽度与入射光强的关系如图 6.5 所示（其中，红点表示模拟结果，红线为拟合曲线），该模拟结果表明在入射光强度为 $4 \times 10^9 \text{ W/cm}^2$ 时沉积宽度减小到 $\sim 53.2 \text{ nm}$ 。在该最优的入射光强情况下，我们还研究发现分子的沉积宽度与入射分子束的横向发散角成正比，这表明了采用准直性良好的分子束的必要性，从而可以产生更加精细的沉积点阵列。然而，在实际实验中，当银膜的结构或分子束参数无法改变时，可以选择最佳入射光强度从而获得最窄的沉积宽度，即最高的沉积分辨率。

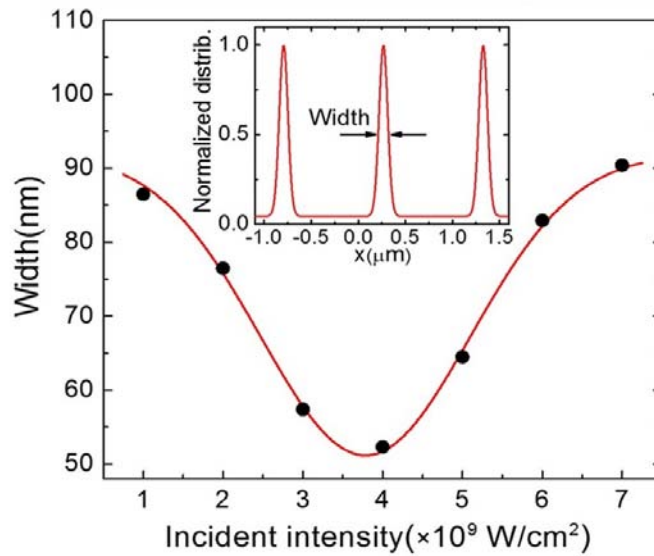


图 6.5 不同入射激光强度对沉积点的宽度的影响。插图显示了在图 6.4(a)所示的虚线处沉积的分子数目的一维密度分布，而沉积宽度则定义为该分布的半高全宽(FWHM)。

需要注意的是，这里的 SPPIF 场一般也适用于其他原子或分子的沉积，但金属原子除外。因为对于金属元素来说，沉积过程实际上是对银膜表面进行空间上周期性地镀膜，它们会使得 SPPIFs 场的形状发生畸变。

另外，我们可以看到采用该方法获得的沉积点具有高度的周期性，而其平均间距或特征间距可以直接追踪到驻波的激光波长。如果我们采用的入射激光是频率非常稳定的，例如通过现在的稳频方法实现高精度激光稳频，那么利用分子沉积点的特征宽度与入射激光频率之间的联系，可以将沉积形成的点阵间距作为精确的、可追踪的 SI(国际单位制)长度标准，这种纳米尺度的长度标准具有高度精确性、稳定性、物理可观测性[139, 140]。同时，我们的方案允许由 SPPs 形成的驻波场迅速转换，为实现不同形状的沉积图案提供了灵活性。

6.5 本章小结

在本章中，我们以一种新颖的利用表面等离子激元干涉场进行分子沉积的方案为例，介绍了通过缓冲气体冷却或激光冷却获得的冷分子束的应用。

首先，我们提出了利用简单的装置获得表面等离子激元干涉场的方案，即通过在石英基底上布置简单的银膜结构，并通过一束激光激发，即可获得具有不同形状的表面等离子激元干涉场。研究了其光激发、形成和结构特性，以及通过不同结构和不同的激光偏振来获得不同形状的干涉驻波场的可行性。

在此基础上，我们提出了一种基于表面等离子激元干涉场的高稳定的纳米尺度的表面光学晶格实现方案，研究了形成的晶格的特点，包括形状、周期性和相位依赖性。我们证明，利用该方案形成的表面晶格在形状上和强度分布上都具有很高的稳定性，因为它们实际上是由一束具有适当偏振的激光光束所激发的，而传统的光学晶格则需要由两个或以上的光束及反射镜构造而成。

最后，我们对利用表面晶格场进行分子的纳米尺度的沉积进行了模拟和讨论，并研究了影响沉积分辨率的因素。我们发现，当一束具有高准直性的 MgF 分子束沉积在二维表面晶格上时，可以最低获得宽度为 53.2 nm 的周期性格点。由于表面晶格场可以很容易地转换和改变，它为实现不同点阵图案的分子沉积提供了良好的灵活性，从而可以为复杂的二维纳米结构的制备提供一种更优越的替代方

法，另外，由于该技术所形成的阵列间距可直接追溯到激光的波长，因此它具有一个潜在的应用，即可作为精确的、可追踪的 SI(国际单位制)的长度标准计量的参考。

第七章 总结与展望

7.1 本文研究内容的总结

本文主要聚焦于缓冲气体冷却与分子激光冷却的理论与实验研究,以我们课题组选用的一氟化镁(MgF)分子为基础,从激光冷却的候选分子的选择、分子能级结构、低温缓冲气体分子束源、分子高分辨率光谱、钛宝石激光倍频与稳频系统、分子激光冷却与减速方案、冷分子(束)的应用等方面对与分子激光冷却相关的关键理论和实验技术进行了开拓性和深入的研究。

首先,本文回顾了分子激光冷却与磁光囚禁的理论与实验进展,并对分子激光冷却的一般理论进行了介绍。分子的一系列特性使得它具有广泛的应用前景,然而,由于分子结构的复杂性,传统的激光冷却与囚禁方法难以直接从原子移植到分子,冷分子的制备是一项机遇与挑战并存的课题,其中,分子的直接激光冷却是获得冷分子的重要手段之一,目前国际上有几个小组相继开展了相关理论与实验研究工作。

其次,本文介绍了用于激光冷却的分子的选择依据以及选用的 MgF 分子的能级跃迁和能级结构,重点介绍了如何构造准闭合的能级跃迁循环。通过分析分子振动跃迁的 Frank-Condon (FC)因子以及转动态跃迁和超精细能级结构,我们将利用其 $X^2\Sigma^+(v=0, N=1, -) \rightarrow A^2\Pi_{1/2}(v'=0, J'=1/2, +)$ 跃迁构造准封闭跃迁循环来实现激光冷却,理论分析表明, MgF 具有高度对角化的 FC 因子、较高的上能级自发辐射速率、较小的质量等,是一种优势明显的候选分子。

接着,本文介绍了用于制备预冷的 MgF 分子束所需要的缓冲气体冷却束源的设计和构造,以及利用低温分子束源所测量出的 MgF 分子的吸收光谱和分子束的激光诱导荧光光谱。我们采用化学反应方法制备 MgF 分子,并根据缓冲气体冷却的理论设计了低温腔,构建了 6 K、高真空环境。我们通过分析实验测出的分子吸收谱带的精细结构,对跃迁谱线的量子数进行了标定,确定了分子激光冷却所需要的跃迁频率,同时证明了 MgF 的 $A^2\Pi$ 态不是倒态,而是一个正常态,

我们还通过分子束荧光光谱验证了 MgF 基态的超精细结构，这些工作为接下来的分子激光冷却与磁光囚禁实验打下了良好的基础。

然后，本文介绍了两台分别作为 MgF 的激光冷却中的主泵浦光和反抽运光的钛宝石激光器的实验准备，包括激光倍频、激光线宽的压窄和长期频率稳定。我们测量了两台钛宝石激光器和倍频腔的功率和效率，并结合了两种稳频方法（传递腔稳频和透射峰边沿锁频方法）发展了一兼顾长期频率稳定和频率可任意调谐的、可同时锁定多台激光器的激光稳频方案，获得了窄线宽（6 kHz）的紫外激光及其 $\pm 2.8\text{MHz}$ 的长期频率稳定性，这对于主跃迁的自然线宽为 $2\pi \times 22\text{MHz}$ 的 MgF 的激光冷却来说是足够的。

接着，本文介绍了为 MgF 分子设计的两种激光减速方案，分别为自发辐射力减速方案和受激辐射力减速方案，并对两种方案的减速效果进行了理论模拟。对于自发辐射力减速，为补偿分子减速过程中的多普勒频移和超精细分裂，我们设计了基于两台电光调制器的激光扫频方案，理论模拟表明，对于 200 m/s 的 MgF 缓冲气体分子束，该方案可在 18 cm 内完成对分子的减速。对于受激辐射力减速，我们介绍了为得到最大双色力应该选取的激光和磁场参数，通过数值数值求解方法计算了双色力的大小，并展示了双色力在幅值和速度捕获范围上的优势。另外，基于对受激辐射力的优势和特性的理解，我们还提出了一种可以应用于重分子的快速、短距离减速的理论方案，即通过实时地补偿分子减速过程中双色场的 beat 信号的相位差的变化来实现对分子的恒定拍频相位的双色力减速，我们通过模拟结果证明了该方案的有效性。

最后，本文探讨了冷分子的应用前景，并以一种新颖的利用表面等离子激元干涉场进行分子沉积的方案为例，具体介绍了通过缓冲气体冷却或激光冷却获得的冷分子束的应用。我们提出了利用简单的装置和一束激光来获得不同形状的二维表面等离子激元干涉场的方案，并研究了通过改变激光偏振来获得不同形状的纳米尺度的光学晶格的可行性，然后我们对基于表面晶格场的分子沉积进行了模拟，并对影响沉积分辨率的因素进行了讨论。我们发现当所使用的冷分子束得到良好的准直优化时，可以得到分辨率宽度为 53.2 nm 的周期性沉积点阵。

7.2 本文创新之处

本文对与 MgF 缓冲气体冷却与分子激光冷却相关的关键理论和实验技术进行了开拓性和深入的研究，其中主要创新之处包括：

(1) 设计了利用化学反应方法制备 MgF 分子以及实现预冷的 MgF 分子束所需要的缓冲气体冷却束源。为了实现分子的快速缓冲气体冷却，以及从低温腔中快速地将分子提取成束，根据缓冲气体冷却的理论，设计了具有倾斜的 He 气入口、SF₆ 管道绝热性能良好的低温腔，并探索出了为实现 MgF 分子束的有效产生所需要的消融激光条件和通入的气体条件。

利用设计的低温束源系统，通过低温腔内的吸收光谱测出了 MgF 分子 $X^2\Sigma^+(v=0) \rightarrow A^2\Pi(v'=0)$ 跃迁的吸收谱带的精细结构，通过理论分析对于精细结构的各 PQR 支的量子数进行了标定，并确定了我们激光冷却所需要的 $X^2\Sigma^+(v=0, N=1) \rightarrow A^2\Pi_{1/2}(v'=0, J'=1/2)$ 跃迁的准确频率，同时证明了 MgF 分子的 $A^2\Pi$ 态不是一个倒态（类似 BeF），而是一个正常态（类似 CaF, SrF 等），这对进行激光冷却是一项关键性的基础工作。

(2) 结合了两种稳频方法（传递腔稳频和透射峰边沿锁频）发展了一兼顾长期频率稳定和频率的可任意调谐的激光器稳频方案，获得了窄线宽（6 kHz）的紫外激光和 $\pm 2.8\text{MHz}$ 的长期频率稳定性。这种稳定方案具有兼顾到长期频率锁定和能够锁定到任意可调谐频率的优越性，并且它还可以扩展到三个或更多个钛宝石或其他类型的激光器以实现其同步频率稳定，特别是当没有原子或分子跃迁线可用于激光稳频时。

(3) 为补偿分子激光减速过程中的多普勒频移和超精细分裂，设计了基于两台电光调制器的激光扫频方案，并对该减速方案的效果进行了模拟。

另外，基于受激辐射力减速的优势，提出了一种可以应用于重分子的快速、短距离减速的理论方案，即通过实时地补偿分子减速过程中双色场的 beat 信号的相位差的变化来实现对分子的恒定拍频相位的双色力减速。以 YbF 分子为例，双色力减速模拟结果表明，当形成双色场的每个行波对应的光强为 107.2 W/cm^2 时，初始纵向速度为 120 m/s 的缓冲气体分子束可以在 3.5 cm 的距离内减速到

10 m/s 以下, 达到三维 MOT 的捕获范围。由于重分子在精密测量等方面的重要应用价值, 该减速方案将突破传统的分子减速方法在空间长度、减速效率方面的限制, 从而为精密测量的灵敏度的提高作出一定的贡献。

(4) 提出了一种基于表面等离激元干涉场的高稳定的纳米尺度的二维表面光学晶格的实现方案, 并展示了它在纳米尺度的分子沉积上的重要应用。通过在石英基底上布置简单的银膜结构, 并通过一束激光激发, 即可获得具有不同形状的光学晶格场, 而这些形状不仅具有很高的稳定性, 而且可以方便地通过改变激发激光的偏振来实现动态操控。

模拟了在这些二维晶格场中的分子沉积, 并讨论了提高沉积分辨率的方法, 研究发现, 当一束具有高准直性的 MgF 分子束沉积在二维表面晶格上时, 可以最低获得宽度为 53.2 nm 的周期性格点。这一研究结果可以为空间复杂的二维纳米结构的制备提供一种更优越的替代方法, 另外, 沉积阵列的间距由于具有高度的精密特性, 有望成为一种新的精确的、可追溯的国际单位制度的长度标准。

7.3 未来工作展望

基于本文的研究工作, 未来的研究工作可以从以下方面开展:

(1) 利用设计的低温缓冲气体束源, 进一步研究 MgF 分子低温缓冲气体冷却过程, 包括测量分子和分子束的平动、内态温度, 测量分子与氦气的碰撞截面等, 从而能够对通过激光消融和化学反应产生的 MgF 分子在低温腔内发生的碰撞、冷却、提取过程进行深入理解和定量分析。

利用搭建的 MgF 吸收信号和荧光信号的探测装置和编写的 LabVIEW 程序进一步研究和测量 MgF 分子的光谱信息, 包括振动态跃迁的 Frank-Condon 因子、反抽运光需要的准确激光频率以及其他相关跃迁的振动、转动、超精细光谱等, 通过分析光谱信息, 可以验证之前理论计算的 MgF 的能级结构、FC 因子以及跃迁波长等。

(2) 利用实验室现有的一台超稳腔进一步提高钛宝石激光器的频率稳定性, 通过 PDH 稳频技术将钛宝石激光器的频率锁定在超稳腔上, 争取将激光频率的稳定性提高至小于 0.1 MHz, 从而为测量分子的高分辨率光谱以及其他实验提供

一个更为稳定的激光源。

另外，针对之前激光稳频实验中曾经发现的可以通过商用波长计（HighFinesse, WS Ultimate 30 UV）结合编写的包含 PI 反馈控制的程序来对多台激光器进行稳频的方法，我们可以利用它与其他频率稳定的激光的拍频信号，或研究其频率起伏对铷原子 LIF 信号的强度的影响等方法，来准确测量利用波长计进行稳频的效果。由于该稳频方式非常简单，如果能够验证其稳频精度，则它可以作为另一种为分子激光冷却提供频率稳定的激光源的方案。

(3) 实现 MgF 减速过程中磁子能级暗态的消除，通过对分子束通过的位置施加一定强度和角度的静磁场，来探究是否能够通过倾斜的磁场来消除暗态，从而构成一个更为封闭的能级跃迁系统。

在此基础上，在与分子束垂直的方向上施加多束激光来实现 MgF 分子束的横向偏转，通过偏转的距离来计算 MgF 的光子散射速率，以及探究为实现分子束纵向减速所需要的实验参数和条件。

(4) 利用激光扫频实现 MgF 分子的纵向自发辐射力减速与冷却，测量分子束的起始和最终速度分布，探究提高分子激光减速效率的方法。另外，可以利用双色激光场对 MgF 分子束的双色力减速方案进行实验验证，并与自发辐射力减速效果进行对比，从而选择更为优越的减速手段。

进行 MgF 分子的磁光囚禁的理论与实验研究，为实现分子亚多普勒冷却、分子玻色-爱因斯坦凝聚奠定基础。

参考文献

- [1] E. A. Cornell and C. E. Wieman, Nobel lecture: Bose-einstein condensation in a dilute gas, the first 70 years and some recent experiments [J], *Rev. Mod. Phys.* 2002, 74, 875–893.
- [2] W. Ketterle, Nobel lecture: When atoms behave as waves: Bose-einstein condensation and the atom laser [J], *Rev. Mod. Phys.* 2002, 74(4), 1131–1151.
- [3] A. D. Ludlow, M. M. Boyd, J. Ye, E. Peik, and P. O. Schmidt, Optical atomic clocks [J], *Rev. Mod. Phys.* 2015, 87, 637–701.
- [4] A. J. Daley, M. M. Boyd, J. Ye, and P. Zoller, Quantum computing with alkaline-earth-metal atoms [J], *Phys. Rev. Lett.* 2008, 101, 170504.
- [5] M. R. Tarbutt, B. E. Sauer, J. J. Hudson, and E. A. Hinds, Design for a fountain of ybf molecules to measure the electron’s electric dipole moment [J], *New J. Phys.* 2013, 15(5), 053034.
- [6] A. Micheli, G. K. Brennen, and P. Zoller, A toolbox for lattice-spin models with polar molecules [J], *Nat. Phys.* 2006, 2(5), 341–347.
- [7] D. DeMille, Quantum computation with trapped polar molecules [J], *Phys. Rev. Lett.* 2002, 88, 067901.
- [8] B. C. Sawyer, B. K. Stuhl, M. Yeo, T. V. Tscherbul, M. T. Hummon, Y. Xia, J. Klos, D. Patterson, J. M. Doyle, and J. Ye, Cold heteromolecular dipolar collisions [J], *Phys. Chem. Chem. Phys.* 2011, 13, 19059–19066.
- [9] M. T. Hummon, T. V. Tscherbul, J. Klos, H.-I. Lu, E. Tsikata, W. C. Campbell, A. Dalgarno, and J. M. Doyle, Cold N+NH collisions in a magnetic trap [J], *Phys. Rev. Lett.* 2011, 106, 053201.
- [10] R. V. Krems, Cold controlled chemistry [J], *Phys. Chem. Chem. Phys.* 2008, 10(28), 4079.
- [11] S. Y. T. van de Meerakker, H. L. Bethlem, and G. Meijer, Taming molecular beams [J], *Nat. Phys.* 2008, 4(8), 595–602.
- [12] N. E. Bulleid, R. J. Hendricks, E. A. Hinds, S. A. Meek, G. Meijer, A. Osterwalder, and M. R. Tarbutt, Traveling-wave deceleration of heavy polar molecules in low-field-seeking states [J], *Phys. Rev. A.* 2012, 86, 021404.

-
- [13] J. van den Berg, S. Mathavan, C. Meinema, J. Nauta, T. Nijbroek, K. Jungmann, H. Bethlem, and S. Hoekstra, Traveling-wave deceleration of SrF molecules [J], *J. Mol. Spectrosc.* 2014, 300, 22–25.
- [14] M. R. Tarbutt, H. L. Bethlem, J. J. Hudson, V. L. Ryabov, V. A. Ryzhov, B. E. Sauer, G. Meijer, and E. A. Hinds, Slowing heavy, ground-state molecules using an alternating gradient decelerator [J], *Phys. Rev. Lett.* 2004, 92, 173002.
- [15] J. F. Barry, E. S. Shuman, E. B. Norrgard, and D. DeMille, Laser radiation pressure slowing of a molecular beam, *Phys. Rev. Lett.* 2012, 108, 103002.
- [16] J. F. Barry, D. J. McCarron, E. B. Norrgard, M. H. Steinecker, and D. DeMille, Magneto-optical trapping of a diatomic molecule [J], *Nature* 2014, 512(7514), 286–289.
- [17] R. Fulton, A. I. Bishop, and P. F. Barker, Optical stark decelerator for molecules [J], *Phys. Rev. Lett.* 2004, 93, 243004.
- [18] J. D. Weinstein, R. Decarvalho, T. Guillet, B. Friedrich, and J. M. Doyle, Magnetic trapping of calcium monohydride molecules at millikelvin temperatures [J], *Nature* 1998, 395(6698), 148–150.
- [19] J. M. Sage, S. Sainis, T. Bergeman, and D. DeMille, Optical production of ultracold polar molecules [J], *Phys. Rev. Lett.* 2005, 94, 203001.
- [20] K.-K. Ni, S. Ospelkaus, M. H. G. de Miranda, A. Pe’er, B. Neyenhuis, J. J. Zirbel, S. Kotochigova, P. S. Julienne, D. S. Jin, and J. Ye, A high phase-space-density gas of polar molecules [J], *Science* 2008, 322(5899), 231–235
- [21] L. D. Carr, D. DeMille, R. V. Krems, and J. Ye, Cold and ultracold molecules: science, technology and applications [J], *New J. Phys.* 2009, 11(5), 055049.
- [22] L. Xu, Y. Yin, B. Wei, Y. Xia, and J. Yin, Calculation of vibrational branching ratios and hyperfine structure of $^{24}\text{Mg}^{19}\text{F}$ and its suitability for laser cooling and magneto-optical trapping [J], *Phys. Rev. A.* 2016, 93, 013408.
- [23] E. S. Shuman, J. F. Barry, and D. DeMille, Laser cooling of a diatomic molecule [J], *Nature* 2010, 467(7317), 820–823.
- [24] H. J. Metcalf and P. van der Straten, *Laser Cooling and Trapping* [M], Springer, 1999.
- [25] W. Demtröder, *Molecular Physics* [M], WILEY-VCH, 2005.
- [26] M. D. Rosa, Laser-cooling molecules [J], *Eur. Phys. J. D.* 2004, 31(2), 395–402.
- [27] B. K. Stuhl, B. C. Sawyer, D. Wang, and J. Ye, Magneto-optical trap for polar molecules [J], *Phys. Rev. Lett.* 2008, 101, 243002.

-
- [28] D. J. Berkeland and M. G. Boshier, Destabilization of dark states and optical spectroscopy in zeeman-degenerate atomic systems [J], *Phys. Rev. A.* 2002, 65, 033413.
- [29] B. Hemmerling, E. Chae, A. Ravi, L. Anderegg, G. K. Drayna, N. R. Hutzler, A. L. Collopy, J. Ye, W. Ketterle, and J. M. Doyle, Laser slowing of caf molecules to near the capture velocity of a molecular MOT [J], *J. Phys. B.* 2016, 49(17), 174001.
- [30] V. Zhelyazkova, A. Cournol, T. E. Wall, A. Matsushima, J. J. Hudson, E. A. Hinds, M. R. Tarbutt, and B. E. Sauer, Laser cooling and slowing of caf molecules [J], *Phys. Rev. A.* 2014, 89, 053416.
- [31] E. S. Shuman, J. F. Barry, D. R. Glenn, and D. DeMille, Radiative force from optical cycling on a diatomic molecule [J], *Phys. Rev. Lett.* 2009, 103, 223001.
- [32] J. F. Barry, E. S. Shuman, E. B. Norrgard, and D. DeMille, Laser radiation pressure slowing of a molecular beam [J], *Phys. Rev. Lett.* 2012, 108, 103002.
- [33] M. Yeo, M. T. Hummon, A. L. Collopy, B. Yan, B. Hemmerling, E. Chae, J. M. Doyle, and J. Ye, Rotational state microwave mixing for laser cooling of complex diatomic molecules [J], *Phys. Rev. Lett.* 2015, 114, 223003.
- [34] S. Truppe, H. J. Williams, M. Hambach, L. Caldwell, N. J. Fitch, E. A. Hinds, B. E. Sauer, and M. R. Tarbutt, Molecules cooled below the doppler limit [J], *Nat. Phys.* 2017, 13(12), 1173–1176.
- [35] I. Kozyryev, L. Baum, K. Matsuda, B. Hemmerling, and J. M. Doyle, Radiation pressure force from optical cycling on a polyatomic molecule [J], *J. Phys. B* 2016, 49(13), 134002.
- [36] I. Kozyryev, L. Baum, K. Matsuda, B. L. Augenbraun, L. Anderegg, A. P. Sedlack, and J. M. Doyle, Sisyphus laser cooling of a polyatomic molecule [J], *Phys. Rev. Lett.* 2017, 118, 173201.
- [37] A. P. Kazantsev and I. V. Krasnov, Rectification of the gradient force of resonant radiation pressure [J], *Soviet Journal of Experimental and Theoretical Physics Letters.* 1987, 46, 332.
- [38] R. Grimm, Y. B. Ovchinnikov, A. I. Sidorov, and V. S. Letokhov, Observation of a strong rectified dipole force in a bichromatic standing light wave [J], *Phys. Rev. Lett.* 1990, 65, 1415–1418.
- [39] C. Corder, B. Arnold, and H. Metcalf, Laser cooling without spontaneous emission [J], *Phys. Rev. Lett.* 2015, 114, 043002.

-
- [40] M. A. Chieda and E. E. Eyler, Prospects for rapid deceleration of small molecules by optical bichromatic forces [J], *Phys. Rev. A*. 2011, 84, 063401.
- [41] S. E. Galica, L. Aldridge, and E. E. Eyler, Four-color stimulated optical forces for atomic and molecular slowing [J], *Phys. Rev. A*. 2013, 88, 043418.
- [42] L. Aldridge, S. E. Galica, and E. E. Eyler, Simulations of the bichromatic force in multilevel systems [J], *Phys. Rev. A*. 2016, 93, 013419.
- [43] I. Kozyryev, L. Baum, L. Aldridge, P. Yu, E. E. Eyler, and J. M. Doyle, Coherent bichromatic force deflection of molecules [J], *Phys. Rev. Lett.* 2018, 120, 063205.
- [44] M. T. Hummon, M. Yeo, B. K. Stuhl, A. L. Collopy, Y. Xia, and J. Ye, 2d magneto-optical trapping of diatomic molecules [J], *Phys. Rev. Lett.* 2013, 110, 143001.
- [45] J. F. Barry, D. J. McCarron, E. B. Norrgard, M. H. Steinecker, and D. DeMille, Magneto-optical trapping of a diatomic molecule [J], *Nature*. 2014, 512(7514), 286–289.
- [46] M. H. Steinecker, D. J. McCarron, Y. Zhu, and D. DeMille, Improved radio-frequency magneto-optical trap of SrF molecules [J], *ChemPhysChem*. 2016, 17(22), 3664–3669.
- [47] S. Truppe, H. J. Williams, M. Hambach, L. Caldwell, N. J. Fitch, E. A. Hinds, B. E. Sauer, and M. R. Tarbutt, Molecules cooled below the Doppler limit [J], *Nature Physics*. 2017, 13(12), 1173–1176.
- [48] L. Anderegg, B. L. Augenbraun, E. Chae, B. Hemmerling, N. R. Hutzler, A. Ravi, A. Collopy, J. Ye, W. Ketterle, and J. M. Doyle, Radio frequency magneto-optical trapping of caf with high density [J], *Phys. Rev. Lett.* 2017, 119, 103201.
- [49] M. R. Tarbutt, Magneto-optical trapping forces for atoms and molecules with complex level structures [J], *New Journal of Physics*. 2015, 17(1), 015007.
- [50] M. R. Tarbutt and T. C. Steimle, Modeling magneto-optical trapping of caf molecules [J], *Phys. Rev. A*. 2015, 92, 053401.
- [51] J. A. Devlin and M. R. Tarbutt, Three-dimensional doppler, polarization-gradient, and magneto-optical forces for atoms and molecules with dark states [J], *New Journal of Physics*. 2016, 18(12), 123017.
- [52] J. Lim, J. R. Almond, M. A. Trigatzis, J. A. Devlin, N. J. Fitch, B. E. Sauer, M. R. Tarbutt, and E. A. Hinds, Laser cooled YbF molecules for measuring the electron’s electric dipole moment [J], *Phys. Rev. Lett.* 2018, 120, 123201.
- [53] T. Chen, W. Bu, and B. Yan, Structure, branching ratios, and a laser-cooling scheme for the ^{138}BaF molecule [J], *Phys. Rev. A*. 2016, 94, 063415.

-
- [54] J. H. Brown and A. Carrington, *Rotational Spectroscopy of Diatomic Molecules* [M], Cambridge: Cambridge University Press, 2012.
- [55] R. F. Barrow and J. R. Beale, Rotational analysis of electronic bands of gaseous mgf [J], *Proceedings of the Physical Society*. 1967, 91(2), 483.
- [56] B. Barber, K. Zhang, B. Guo, and P. Bernath, Vibration-rotation emission spectrum of MgF [J], *Journal of Molecular Spectroscopy*. 1995, 169(2), 583 – 589.
- [57] K. P. Huber and G. Herzberg, *Molecular Spectra and Molecular Structure* [M], New York: Van Nostrand-Reinhold, 2005.
- [58] M. Pelegrini, C.S. Vivacqua, O. Roberto-Neto, F.R. Ornellas, and F.B.C. Machado, Radiative transition probabilities and lifetimes for the band systems $A^2\Pi-X^2\Sigma^+$ of the isovalent molecules BeF, MgF and CaF [J], *Braz. J. Phys.* 2005, 35, 950-956
- [59] Nicholls, R. W. Franck-Condon factor formulae for astrophysical and other molecules. *Astrophys [J]. J., Suppl. Ser.* 1981, 47, 279– 290,
- [60] S. Truppe, R. J. Hendricks, E. A. Hinds, and M. R. Tarbutt, Measurement of the lowest millimeter-wave transition frequency of the CH radical [J], *The Astrophysical Journal*, 2014, 780,71.
- [61] J. Baron, W. C. Campbell, D. DeMille, J. M. Doyle, G. Gabrielse, Y. V. Gurevich, P. W. Hess, N. R. Hutzler, E. Kirilov, I. Kozyryev, B. R. O'Leary, C. D. Panda, E. S. Petrik, B. Spaun, A. C. Vutha, A. D. West, Order of Magnitude Smaller Limit on the Electric Dipole Moment of the Electron [J], *Science* 2014, 343, 269
- [62] B. C. Sawyer, B. K. Stuhl, M. Yeo, T. V. Tscherbul, M. T. Hummon, Y. Xia, J. Klos, D. Patterson, J. M. Doyle, J. Ye, Cold heteromolecular dipolar collisions [J], *Phys. Chem. Chem. Phys.* 2011, 13, 19059
- [63] N. R. Hutzler, M. F. Parsons, Y. V. Gurevich, P. W. Hess, E. Petrik, B. Spaun, A. C. Vutha, D. DeMille, G. Gabrielse and J. M. Doyle, A cryogenic beam of refractory, chemically reactive molecules with expansion cooling [J], *Phys. Chem. Chem. Phys.* 2011, 13, 18976
- [64] N. R. Hutzler, H.-I Lu, and J. M. Doyle, The Buffer Gas Beam: An Intense, Cold, and Slow Source for Atoms and Molecules [J], *Chem. Rev.* 2012, 112(9), 4803
- [65] M. R. Tarbutt, J. J. Hudson, B. E. Sauer, E. A. Hinds, V. A. Ryzhov, V. L. Ryabov and V. F. Ezhov, A jet beam source of cold YbF radicals [J], *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* 2002, 35, 5013-5022.

- [66] J. F. Barry, E. S. Shuman, and D. DeMille, A bright, slow cryogenic molecular beam source for free radicals [J], *Phys. Chem. Chem. Phys.* 2011, 13, 18936–18947.
- [67] D. Egorov, T. Lahaye, W. Schöllkopf, B. Friedrich, and J. M. Doyle, Buffer-gas cooling of atomic and molecular beams [J], *Phys. Rev. A* 2002, 66, 043001
- [68] C. Sommer, L. D. van Buuren, M. Motsch, S. Pohle, J. Bayerl, Pepijn W. H. Pinkse and G. Rempe, Continuous guided beams of slow and internally cold polar molecules [J], *Faraday Discuss.* 2009, 142, 203–220.
- [69] X. Li, L. Xu, Y. Yin, S. Xu, Y. Xia, and J. Yin, Rotational relaxation of fluoromethane molecules in low-temperature collisions with buffer-gas helium [J], *Phys. Rev. A* 2016, 93, 063407.
- [70] G. Scoles, *Atomic and Molecular Beam Methods* [M], New York: Oxford University Press, 1988.
- [71] J. B. Hasted, *Physics of Atomic Collisions* [M], New York: Elsevier Publishing Company, 1972.
- [72] N. F. Ramsey, *Molecular Beams* [M], London: Oxford University Press, 1956.
- [73] H. Pauly, *Atom, Molecule, and Cluster Beams* [M], Berlin: Springer, 2000.
- [74] <https://webbook.nist.gov/cgi/cbook.cgi?Formula=He&NoIon=on&Units=SI>
- [75] 陈扬骏, 杨晓华. 激光光谱测量技术[M]. 上海: 华东师范大学出版社, 2006.
- [76] I. J. Smallman, F. Wang, T. C. Steimle, M. R. Tarbutt, and E. A. Hinds, Radiative branching ratios for excited states of ^{174}YbF : Application to laser cooling [J], *J. Mol. Spectrosc.* 2014, 300, 3.
- [77] R. J. Hendricks, D. A. Holland, S. Truppe, B. E. Sauer, and M. R. Tarbutt, Vibrational branching ratios and hyperfine structure of ^{11}BH and its suitability for laser cooling [J], *Front. Phys.* 2014, 2, 51.
- [78] M. G. Tarallo, G. Z. Iwata, and T. Zelevinsky, BaH molecular spectroscopy with relevance to laser cooling [J], *Phys. Rev. A* 2016, 93, 032509.
- [79] D. P. Dai, Y. Xia, Y. N. Yin, X. X. Yang, Y. F. Fang, X. J. Li, and J. P. Yin, A linewidth-narrowed and frequency-stabilized dye laser for application in laser cooling of molecules [J], *Opt. Express* 2014, 22, 28645.
- [80] G. D. Boyd and D. A. Kleinman, Parametric Interaction of Focused Gaussian Light Beams [J], *J. Appl. Phys.* 1968, 39, 3597.
- [81] R. W. P. Drever, J. L. Hall, F. V. Kowalski, J. Hough, G. M. Ford, A. J. Munley,

- and H. Ward, Laser phase and frequency stabilization using an optical resonator [J], *Appl. Phys. B* 1983, 31, 97.
- [82] T. W. Hansch and B. Couillaud, Laser frequency stabilization by polarization spectroscopy of a reflecting reference cavity [J], *Opt. Commun.* 1980, 35, 441.
- [83] M. Zhu and J. L. Hall, *Experimental Methods in the Physical Sciences* [M], New York: Academic Press, 1997.
- [84] D. J. Jones, S. A. Diddams, J. K. Ranka, A. Stentz, R. S. Windeler, J. L. Hall, and S. T. Cundiff, Carrier-envelope phase control of femtosecond mode-locked lasers and direct optical frequency synthesis [J], *Science* 2000, 288(5466), 635–639,
- [85] E. Riedle, S. H. Ashworth, J. T. Farrell Jr., and D. J. Nesbitt, Stabilization and precise calibration of a continuous - wave difference frequency spectrometer by use of a simple transfer cavity [J], *Rev. Sci. Instrum.* 1994, 65, 42.
- [86] V. S. Voitsekhovich, M. V. Danileiko, A. M. Negriiko, V. I. Romanenko, and L. P. Yatsenko, Observation of a stimulated radiation pressure of amplitude-modulated light on atoms [J], *JETP Lett*, 1989, 49(3), 161-164.
- [87] V. S. Voitsekhovich, M. V. Danileiko, A. M. Negriiko, V. I. Romanenko, and L. P. Yatsenko, Observation of radiation pressure exerted on molecules [J]. *JETP Lett*, 1994, 59(6), 408-411.
- [88] L. Yatsenko and H. Metcalf, Dressed-atom description of the bichromatic force [J], *Phys. Rev. A*, 2004, 70(6), 063402.
- [89] X. Yang, C. Li, Y. Yin, S. Xu, X. Li, Y. Xia, and J. Yin, Bichromatic slowing of MgF molecules in multilevel systems [J], *J. Phys. B* 2016, 50, 015001.
- [90] J. Erler and M. Ramsey-Musolf, Low energy tests of the weak interaction [J], *Prog. Part. Nucl. Phys.* 2005, 54, 351.
- [91] N. Fortson, P. Sandars, and S. Barr, The Search for a Permanent Electric Dipole Moment [J], *Phys.Today* 2003, 56(6), 33.
- [92] M. E. Pospelov and I. B. Khriplovich, Electric dipole moment of the W boson and the electron in the Kobayashi-Maskawa model [J], *Sov. J. Nucl. Phys.* 1991, 53, 638.
- [93] B. C. Regan, E. D. Commins, C. J. Schmidt and D. DeMille, New Limit on the Electron Electric Dipole Moment [J], *Phys. Rev. Lett.* 2002, 88, 071805.
- [94] E. A. Hinds, Testing time reversal symmetry using molecules [J], *Phys. Scr.* 1997, T70, 34.

-
- [95] J. J. Hudson, B. E. Sauer, M. R. Tarbutt, and E. A. Hinds, Measurement of the Electron Electric Dipole Moment Using YbF Molecules [J], *Phys. Rev. Lett.* 2002, 89, 023003.
- [96] J. J. Hudson, D. M. Kara, I. J. Smallman, B. E. Sauer, M. R. Tarbutt, and E. A. Hinds, Improved measurement of the shape of the electron [J], *Nature (London)* 2011, 473, 493.
- [97] W. B. Cairncross, D. N. Gresh, M. Grau, K. C. Cossel, T. S. Roussy, Y. Ni, Y. Zhou, J. Ye, and E. A. Cornell, Precision Measurement of the Electron's Electric Dipole Moment Using Trapped Molecular Ions [J], *Phys. Rev. Lett.* 2017, 119, 153001.
- [98] V. S. Prasanna, A. C. Vutha, M. Abe, and B. P. Das, Mercury Monohalides: Suitability for Electron Electric Dipole Moment Searches [J], *Phys. Rev. Lett.* 2015, 114, 183001.
- [99] N. E. Shafer-Ray, Possibility of 0-g-factor paramagnetic molecules for measurement of the electron's electric dipole moment [J], *Phys. Rev. A* 2006, 73, 034102.
- [100] S. Eckel, P. Hamilton, E. Kirilov, H.W. Smith, and D. DeMille, Search for the electron electric dipole moment using Ω -doublet levels in PbO [J], *Phys. Rev. A* 2013, 87, 052130.
- [101] L. R. Hunter, S. K. Peck, A. S. Greenspon, S. S. Alam, and D. DeMille, Prospects for laser cooling TlF [J], *Phys. Rev. A* 2012, 85, 012511.
- [102] J. A. Devlin, Progress towards a more sensitive measurement of the electron electric dipole moment with YbF, Ph.D. thesis, Imperial College London, 2015.
- [103] Q. Wang, S. Hou, L. Xu, and J. Yin, Phys. Chem. Chem. Phys. Slowing and cooling of heavy or light (even with a tiny electric dipole moment) polar molecules using a novel, versatile electrostatic Stark decelerator [J], *Phys. Chem. Chem. Phys.* 2016, 18, 5432.
- [104] T. E. Wall, J. F. Kanem, J. J. Hudson, B. E. Sauer, D. Cho, M. G. Boshier, E. A. Hinds, and M. R. Tarbutt, Lifetime of the $A(v'=0)$ state and Franck-Condon factor of the $A-X(0-0)$ transition of CaF measured by the saturation of laser-induced fluorescence [J], *Phys. Rev. A* 2008, 78, 062509.
- [105] J. Söding, R. Grimm, Y. B. Ovchinnikov, P. Bouyer, and C. Salomon, Short-Distance Atomic Beam Deceleration with a Stimulated Light Force [J], *Phys. Rev. Lett.* 1997, 78, 1420.

-
- [106] M. G. Kozlov, A. V. Titov, N. S. Mosyagin, and P. V. Souchko, Enhancement of the electric dipole moment of the electron in the BaF molecule [J], *Phys. Rev. A* 1997, 56, R3326.
- [107] Yong Xia, Yaling Yin, Haibo Chen, Lianzhong Deng and Jianping Yin, Electrostatic surface guiding for cold polar molecules: Experimental demonstration [J], *Phys. Rev. Lett.* 2008, 100(4) , 043003.
- [108] T. Seideman, Molecular optics in an intense laser field: A route to nanoscale material design [J], *Phys. Rev. A* 1997, 56, R17.
- [109] J. J. McClelland, R. E. Scholten, E. C. Palm, and R. J. Celotta, Laser-focused atomic deposition [J]. *Science* 1993, 262, 877–880.
- [110] N. C. Lindquist, P. Nagpal, K. M. McPeak, D. J. Norris, and S.-H. Oh, Engineering metallic nanostructures for plasmonics and nanophotonics [J]. *Rep. Prog. Phys.* 2012, 75, 036501.
- [111] R. H. Ritchie, Plasma losses by fast electrons in thin films [J]. *Phys. Rev.* 1957, 106, 874–881.
- [112] A. V. Zayats, I. I. Smolyaninov, and A. A. Maradudin, Nano-optics of surface plasmon polaritons [J]. *Phys. Rep* 2005, 408, 131–314.
- [113] P. Genevet, J. Lin, M. A. Kats, and F. Capasso, Holographic detection of the orbital angular momentum of light with plasmonic photodiodes [J]. *Nat. Commun.* 2012, 3, 1278.
- [114] S. Xiao, F. Zhong, H. Liu, S. Zhu and J. Li, Flexible coherent control of plasmonic spin-Hall effect [J]. *Nat. Commun.* 2015, 6, 8360.
- [115] E. Ozbay, Plasmonics: merging photonics and electronics at nanoscale dimensions [J]. *Science* 2006, 311, 189–193.
- [116] K. Kneipp et al. Single molecule detection using surface-enhanced raman scattering [J]. *Phys. Rev. Lett.* 1997, 78, 1667–1670.
- [117], C. Nylander, B. Liedberg, and T. Lind, Gas detection by means of surface plasmon resonance [J]. *Sens. Actuators* 1982, 3, 79–88.
- [118] N. Fang, H. Lee, C. Sun, & X. Zhang, Sub-Diffraction-Limited optical imaging with a silver superlens [J]. *Science* 2005, 308, 534–537.
- [119] Z. Liu, Q. Wei, and X. Zhang, Surface plasmon interference nanolithography [J]. *Nano. Lett.* 2005, 5, 957–961.
- [120] Z. Liu et al. Broad band two-dimensional manipulation of surface plasmons [J]. *Nano. Lett.* 2009, 9, 462–466.

-
- [121] Q. Wang, J. Bu, and X.-C. Yuan, High-resolution 2D plasmonic fan-out realized by subwavelength slit arrays [J]. *Opt. Express*. 2010, 18, 2662–2667.
- [122] P. Dvořák et al. Control and near-field detection of surface plasmon interference patterns [J]. *Nano. Lett* 2013, 13, 2558–2563.
- [123] S. A. Maier, *Plasmonics: Fundamentals and Applications*, Springer US, 2007.
- [124] Timp, G. et al. Using light as a lens for submicron, neutral-atom lithography [J]. *Phys. Rev. Lett.* 1992, 69, 1636–1639.
- [125] R. W. McGowan, D. M. Giltner, and S. A. Lee, Light force cooling, focusing, and nanometer-scale deposition of aluminum atoms [J]. *Opt. Lett.* 1995, 20, 2535–2537.
- [126] R. Ohmukai, S. Urabe, and M. Watanabe, Atom lithography with ytterbium beam [J]. *Appl. Phys. B* 2003, 77, 415–419.
- [127] E. te Sligte et al. Atom lithography of Fe [J]. *Appl. Phys. Lett.* 85, 4493–4495 (2004).
- [128] S. Kolkowitz et al. Spin-orbit-coupled fermions in an optical lattice clock [J]. *Nature* 2017, 542, 66–70.
- [129] B. J. Bloom et al. An optical lattice clock with accuracy and stability at the 10^{−18} level [J]. *Nature* 2014, 506, 71–75.
- [130] G. K. Brennen, C. M. Caves, P. S. Jessen, and I. H. Deutsch, Quantum Logic Gates in Optical Lattices [J]. *Phys. Rev. Lett.* 1999, 82, 1060–1063.
- [131] H. Raether, *Surface Plasmons on Smooth and Rough Surfaces and on Gratings* [M], Springer-Verlag, 1988.
- [132] Y. L. Yin, T. Li, P. Xu, H. Jin, and S. N. Zhu, Nanometer-scale molecular deposition using the surface Plasmon polariton interference field on a metal film [J]. *Appl. Phys. Lett.* 2011, 98, 093105.
- [133] T. Li et al. Manipulating optical rotation in extraordinary transmission by hybrid plasmonic excitations [J]. *Appl. Phys. Lett.* 2008, 93, 021110.
- [134] P. Windpassinger, and K. Sengstock, Engineering novel optical lattices [J]. *Rep. Prog. Phys.* 2013, 76, 086401.
- [135] C. Becker et al. Ultracold quantum gases in triangular optical lattices [J]. *New. J. Phys.* 2010, 12, 065025.
- [136] Y. L. Yin, Q. Zhou, L. Z. Deng, Y. Xia, and J. P. Yin, Multistage optical Stark decelerator for a pulsed supersonic beam with a quasi-cw optical lattice [J]. *Opt. Express*. 2009, 17, 10706–10717.

-
- [137] Y. Xia, Y. L. Yin, H. B. Chen, L. Z. Deng, and J. P. Yin, Electrostatic surface guiding for cold polar molecules: Experimental demonstration [J]. *Phys. Rev. Lett.* 2008, 100, 043003.
- [138] X. J. Li, et al. Rotational relaxation of fluoromethane molecules in low-temperature collisions with buffer-gas helium [J]. *Phys. Rev. A* 2016, 93, 063407.
- [139] J. J. McClelland, et al. Accuracy of Nanoscale Pitch Standards Fabricated by Laser-Focused Atomic Deposition [J]. *J. Res. Natl. Inst. Stand. Technol.* 2003, 108, 99–113.
- [140] L. H. Lei, et al. Laser-focused Cr atomic deposition pitch standard as a reference standard [J]. *Sens. Actuators. A* 2015, 222, 184–193.

作者简历及科研成果

简历

2014.9 至今，博士研究生，光学，华东师范大学

2013.9-2014.7，硕士研究生，光学，华东师范大学

2009.9-2013.7，本科，电子信息工程，南京师范大学

学术论文

1. **Yanning Yin**, Supeng Xu, Meng Xia, Yong Xia, and Jianping Yin, Optical stimulated slowing of polar heavy-atom molecules with a constant beat phase, Phys. Rev. A 97, 043403 (2018).
2. **Yanning Yin**, Supeng Xu, Tao Li, Yaling Yin, Yong Xia, and Jianping Yin, 2D surface optical lattice formed by plasmon polaritons with application to nanometer-scale molecular deposition, Sci. Rep. 7, 7788 (2017).
3. **Yanning Yin**, Yong Xia, Xingjia Li, Xiuxiu Yang, Supeng Xu and Jianping Yin, Narrow-linewidth and stable-frequency light source for laser cooling of magnesium fluoride molecules, Appl. Phys. Express 8, 092701 (2015).
4. Supeng Xu, **Yanning Yin**, Ruoxi Gu, Meng Xia, Liang Xu, Li Chen, Yong Xia, Jianping Yin, Sensitive fluorescence detection through minimizing the scattering light by anti-reflective nanostructured materials, Rev. Sci. Instrum. 89, 046103 (2018).
5. Liang Xu, **Yanning Yin**, Bin Wei, Yong Xia, and Jianping Yin, Calculation of vibrational branching ratios and hyperfine structure of MgF and its suitability for laser cooling and magneto-optical trapping, Phys. Rev. A 93, 013408 (2016).
6. Xiuxiu Yang, **Yanning Yin**, Xingjia Li, Supeng Xu, Yong Xia and Jianping Yin, An external cavity diode laser as a stable-frequency light source for application in laser cooling of molecules, Chin. Opt. Lett, 14(7), 071403 (2016).

7. Xiuxiu Yang, Chuanliang Li, **Yanning Yin**, Supeng Xu, Xingjia Li, Yong Xia, and Jianping Yin, Bichromatic slowing of MgF molecules in multilevel systems, J. Phys. B 50, 015001 (2017).
8. Xingjia Li, Liang Xu, **Yanning Yin**, Supeng Xu, Yong Xia, and Jianping Yin, Rotational relaxation of fluoromethane molecules in low-temperature collisions with buffer-gas helium, Phys. Rev. A 93, 063407 (2016).
9. Hui Zhang, Tao Li, **Yaling Yin**, Xingjia Li, Yong Xia, and Jianping Yin, Microtrap on a concave grating reflector for atom trapping, Chin. Phys. B. 25(8), 087802 (2016).
10. Dapeng Dai, Yong Xia, **Yanning Yin**, Xiuxiu Yang, Yinfei Fang, Xingjia Li, and Jianping Yin, A linewidth-narrowed and frequency-stabilized dye laser for application in laser cooling of molecules, Opt. Express, 22(23), 28645 (2014).
11. Dapeng Dai, Yong Xia, Yinfei Fang, Liang Xu, **Yanning Yin**, Xingjia Li, Xiuxiu Yang and Jianping Yin, Efficient stimulated slowing and cooling of the magnesium fluoride molecular beam, J. Phys. B 48 085302 (2015).
12. 郑公爵, 戴大鹏, 方银飞, 李兴佳, **尹燕宁**, 杜向丽, 夏 勇, 印建平, 具有两级放大的平衡零拍光电探测器, 激光与光电子学进展, 51(4), 040401 (2014)
13. 方银飞, 许 亮, 戴大鹏, 李兴佳, 杜向丽, **尹燕宁**, 张 慧, 夏 勇, 印建平, 氟化镁分子电子基态和激发态振转光谱的计算, 光学学报, 35(1), 0102002 (2015)
14. 郑公爵, 戴大鹏, 方银飞, 李兴佳, 杜向丽, **尹燕宁**, 张 慧, 杨秀秀, 夏 勇, 印建平, 基于 PDH 技术的光学传递腔的锁定, 激光与光电子学进展, 51(12), 121401 (2014)
15. **尹燕宁**, 徐素鹏, 夏梦, 夏勇, 印建平, MgF 分子激光冷却的实验进展, 第十九届全国原子与分子物理学术会议 (吉林, 2017)
16. **Yanning Yin**, Yong Xia and Jianping Yin, Narrow-linewidth and stable-frequency light source for laser cooling of magnesium fluoride molecules, The

7th International Symposium on Cold Atom Physics (ISCAP-VII, Hangzhou, 2016)

专利申请

1. 一种窄线宽长时频率稳定的染料激光器及其稳频方法

发明人：戴大鹏、夏勇、方银飞、尹燕宁、杨秀秀、李兴佳、杜向丽、张慧、徐素鹏、印建平

授权号：ZL201410619134.1

致谢

“人生如逆旅，我亦是行人”，在华东师大的求学生涯转眼之间即告结束，面对这里的一花一木，一楼一人，心里充满了太多思绪与感恩。

本文是我硕博连读工作的总结，从课题的选择、研究的过程到论文的撰写，每一步都是在印建平教授和夏勇副教授的悉心指导下完成的。

感谢印建平教授，印老师渊博的学识、开阔的视野、严谨的治学态度，以及对学术孜孜以求的精神，深深感染和激励着我的成长之路，在他的指引下，我得以进入冷分子方向的大门，我在科研上取得的点滴进步，都要感谢他悉心的栽培和指导，和他的每一次讨论和交流，都让我受益良多。在此衷心祝愿印老师身体健康、阖家幸福、万事顺心，也祝愿我们课题组蒸蒸日上，硕果累累。

感谢夏勇副教授，夏老师为了锻炼我的学术能力，为我提供了丰富的学习资源和实践机会，从焊最简单的电路，到驯服一台激光器，到更加有挑战的小课题，每一次小的突破和成果，都要感谢夏老师的帮助和鼓励、信任和支持。生活中，夏老师也给我提供了许多关心和宝贵意见。

感谢尹亚玲老师在生活上、学习上给我的关心、帮助，您的引荐让我得以进入科研的大门，您的生活态度让我钦羡向往；感谢邓联忠老师在真空实验技术上的指导和帮助；感谢汪海玲老师在分子光谱学、激光器方面的引领和指导；感谢钟标师兄对我的科研、工作的关心和鼓励；感谢侯顺永师兄对我的科研和生活的关心和帮助；感谢杨涛老师在科研上和在我的求职过程中的指导和鼓励。

感谢实验室提供的先进的科研和学习的平台，感谢邓伦华老师、贾天卿老师、蒋燕义老师、王加祥老师、何晓老师、刘金明老师等，他们教授的课程是我能够在这条道路上前行的基石，感谢马龙生老师、武海斌老师等给我的一语中的的指导和关心，感谢李本泰老师、黄岚兰老师，蔡炜颖老师，郑利娟老师等，为我们提供了良好的科研环境和学习氛围。

感谢已毕业的李兴佳师兄、王琴师姐、许亮师兄、郑公爵师兄、戴大鹏师兄、方银飞师兄、张慧、孙慧、任瑞敏、白皎、徐文霞、郝美等，科研上的点滴、生活中的欢笑，让我记忆犹新。

感谢徐素鹏师弟、夏梦师妹、顾若溪师妹在科研和生活上的合作和陪伴，那些快乐的实验室日常将成为我珍贵的记忆；感谢杨秀秀师妹（已毕业）、蔡微洋师妹在理论计算和软件模拟方面的帮助；感谢魏斌、杨正海师弟在程序、实验技术方面的指导和生活中的欢笑；感谢王志章、王强、杨永成、朱成成师弟们的陪伴和幽默；感谢罗昊、叶佳、裴春莹、郭恒娇、雷永清、李静、於亥雨等诸师弟师妹们的关心和帮助；祝愿各位前程似锦。

感谢中科院上海光机所的张海潮老师、刘亮老师为本文提出的宝贵意见，感谢马龙生老师、毕志毅老师、杨涛老师、蒋燕义老师对本文的指导和建议。

感谢国家自然科学基金委员会，科技部，上海市和华东师范大学在我研究课题上的资助，感谢“华东师范大学优秀博士学位论文培育项目”的资助。

感谢我的女朋友丁翠，感谢我的父母，有你们，一切都好。

尹燕宁

于 华东师范大学丽娃河畔

2018 年 5 月