

广义 Efimov-共振暗态技术制备稳态分子 $^{41}\text{K}_2\ ^{87}\text{Rb}_2$

蒋亚静, 徐静, 赵兴东

(河南师范大学 物理与电子工程学院, 河南 新乡 453007)

摘要:通过广义暗态方法形成稳定分子凝聚物 $^{41}\text{K}_2\ ^{87}\text{Rb}_2$,即 Efimov-共振辅助条件下的激发绝热通道,在此过程中,双通道随量子化学反应间的相长干涉可以进一步提高分子制备的产率.进一步研究表明,初始粒子数的布居不平衡也会对该条件下的原子-分子转化率产生重要影响.

关键词:玻色-爱因斯坦凝聚;Efimov-共振辅助绝热通道;相长干涉

中图分类号:O43

文献标志码:A

近年来,超冷玻色-爱因斯坦凝聚分子的制备和探测越来越吸引人们的关注^[1].之前,实验和理论主要关注的是同核双原子分子,但随着对碱土金属元素发展的进展,促进人们对碱金属原子和碱土金属原子组成的极化分子的研究,例如 LiYb ^[2], RbSr ^[3], Si_2 ^[4], Yb_2 ^[5]. 相比于碱金属双原子分子,这种极化分子除了有电偶极矩之外在振动转动基态还有电子自旋,并且非成对的电子使得他们有一个丰富的自旋结构和磁偶极矩.

实际上,超冷双原子分子的技术和研究为多原子分子领域开辟了新的视野.最近,Rempe组在实验上把 CH_3F 分子冷却到29 mK.这种方法远远优于Sisyphus冷却方法^[6],并且有望进一步冷却到亚mK温度.该方法是新的冷却和捕陷技术的完美证明,并且也适用于多原子分子气体^[7].叶军小组的实验报道了放热原子相互交换化学反应的证据,该实验用光学捕陷近量子极化的基态的简并气体 $^{40}\text{K}\ ^{87}\text{Rb}$ 分子^[8].多原子分子的冷却和捕陷技术的发展促进了更为复杂化学反应、超化学^[9]和分子离子^[10]的研究.

超冷分子可以通过光缔合(Photoassociation, PA)或磁费希巴赫共振技术(Feshbach Resonance, FR)^[11]制备.而发展于原子内态的相干调控的量子光学的受激发拉曼绝热通道(Stimulated Raman adiabatic passage, STIRAP)技术,它利用相干布居捕陷态(Coherent Population Trapping, CPT)或暗态的优点,能够使得原子-分子的转化率更高.上述这种技术不仅在原子-双原子分子或原子三聚物转化中还在更复杂的超冷分子中得到验证^[12-13].例如景辉等提出了一个Efimov-共振辅助受激拉曼绝热通道技术,用于产生超冷四聚物 A_4 ^[14].这被认为是熟知的费希巴赫共振-辅助受激拉曼绝热通道技术的自然延伸.在适当的参数区域,存在暗态的条件下,这种技术能够制备出稳定有效的相干原子四聚物.

1970年,第一次提出了三体Efimov-共振^[15],并于2006年在超冷铯原子气体中首次观测到^[16].最近,在以下气体中也观测到Efimov-共振的信号:三分量费米气体 ^6Li ^[17],玻色气体 ^{39}K 原子^[18], ^{41}K 和 ^{87}Rb 原子混合气体^[19].Efimov-共振技术也被发展于描述四体、五体或 N 体分子态^[20].Efimov效应的研究对实验和理论上究少体的量子系统和更复杂的超冷多原子分子的形成具有指导意义.

本文从初态原子 ^{41}K 和 ^{87}Rb 混合气体出发,用广义的Efimov-共振辅助下的受激拉曼绝热通道技术,理论上研究了四聚物 K_2Rb_2 的制备.实验上,LENS小组首次报道观测到 ^{41}K 和 ^{87}Rb 气体中的Efimov物理,并首次验证两种共振相互作用下Efimov三聚物 $^{41}\text{K}_2\ ^{87}\text{Rb}$ 和 $^{41}\text{K}\ ^{87}\text{Rb}_2$ ^[11]的存在.这很自然地激发去研究四聚物的形成.本文基本思想如下:原子首先缔合成三聚物,通过光缔合三聚物和另一个原子形成四聚物分子.在此过程中,存在相长干涉的双通道量子干涉效应.

收稿日期:2015-05-13;修回日期:2015-06-08.

基金项目:国家自然科学基金(11474087);河南省教育厅基础研究重点项目(14A140032).

第1作者简介(通信作者):蒋亚静(1983-),女,河南郑州人,河南师范大学实验师,研究方向为量子光学, E-mail: jiang_yajing@126.com.

1 单通道:初始粒子数布居不平衡的影响

现在考虑通过中间态是三聚物的暗态技术来制备分子四聚物 K_2Rb_2 , 在此过程中, 使用 Efimov-共振辅助受激拉曼绝热通道技术. 以下为了方便有效, 用 A 和 B 表示原子 ^{41}K 和 ^{87}Rb . 非常有趣的一点是这两个反应通道之间的量子干涉. 这两种通道分别对应中间态三聚物 AB_2 (通道 I) 和 A_2B (通道 II), 即 $2\text{A} + 2\text{B} \rightarrow \text{AB}_2 + \text{A} \rightarrow \text{A}_2\text{B}_2$ (I) 和 $2\text{A} + 2\text{B} \rightarrow \text{A}_2\text{B} + \text{B} \rightarrow \text{A}_2\text{B}_2$ (II). 并且 LENS 实验组已经报道了冷却至几百 nK 的 ^{41}K 和 ^{87}Rb 混合气体的 Efimov-共振证据^[11].

接下来, 首先考虑两个不同的反应通道. 对于单通道 I 情况, 模型系统是将 A、B 的原子混合物偶合成三聚物 AB_2 , 然后三聚物 AB_2 和原子 A 光缔合形成稳态四聚物 A_2B_2 . 在此过程中, 中间态三聚物的物态是暗态, 没有粒子数布居.

原子三聚物耦合力是 λ'_1 , 失谐是 δ ; 以及 PA 激光的拉比频率为 Ω'_1 , 失谐 Δ . 在相互作用表象下, 该系统的哈密顿量是 ($\hbar = 1$),

$$\hat{H}_1 = - \int dr \left\{ \sum_{i,j} \chi'_{ij} \hat{\psi}_i^\dagger(r) \hat{\psi}_j^\dagger(r) \hat{\psi}_j(r) \hat{\psi}_i(r) + \delta \hat{\psi}_{m_1}^\dagger(r) \hat{\psi}_{m_1}(r) + \lambda'_1 [\hat{\psi}_{m_1}^\dagger(r) \hat{\psi}_a(r) \hat{\psi}_b^2(r) + h. c.] + (\Delta + \delta) \hat{\psi}_g^\dagger(r) \hat{\psi}_g(r) - \Omega'_1 [\hat{\psi}_g^\dagger(r) \hat{\psi}_{m_1}(r) \hat{\psi}_a(r) + h. c.] \right\}, \quad (1)$$

其中 $\hat{\psi}_i(r)$ 或者 $\hat{\psi}_i^\dagger(r)$ 分别是湮灭或者产生算符, χ'_{ij} 表示两体相互作用, 下标 $i, j = a, b, m_1, g$ 分别表示原子, 三聚物, 和四聚物分子态.

本文用平均场的方法来处理此系统, 即用 c 数 $\sqrt{n}\psi_i$ 和 $\sqrt{n}\psi_i^*$ 替换场算符 $\hat{\psi}_i$ 和 $\hat{\psi}_i^\dagger$, 其中, n 是原子数密度. 则此系统的海森堡方程如下:

$$\begin{aligned} \frac{d\psi_a}{dt} &= 2in \sum_j \chi_{aj} |\psi_j|^2 \psi_a + i\lambda_1 \psi_{m_1} \psi_b^{*2} - i\Omega_1 \psi_g \psi_{m_1}^*, \\ \frac{d\psi_b}{dt} &= 2in \sum_j \chi_{bj} |\psi_j|^2 \psi_b + i\lambda_1 \psi_{m_1} \psi_a^* \psi_b^*, \\ \frac{d\psi_{m_1}}{dt} &= 2in \sum_j \chi_{m_1j} |\psi_j|^2 \psi_{m_1} + i\lambda_1 \psi_a \psi_b^2 - i\Omega_1 \psi_g \psi_a^* + (i\delta - \gamma) \psi_{m_1}, \\ \frac{d\psi_g}{dt} &= 2in \sum_j \chi_{gj} |\psi_j|^2 \psi_g + i(\Delta + \delta) \psi_g - i\Omega_1 \psi_{m_1} \psi_a, \end{aligned} \quad (2)$$

其中, $\chi_{ij} = n\chi'_{ij}$, $\lambda_1 = n\lambda'_1$, $\Omega_1 = \Omega'_1\sqrt{n}$. 这里用 γ 来模拟中间态三聚物的耗散.

为了求方程(2)的 CPT 稳态解, 用到以下试波函数^[12]

$$\begin{aligned} \psi_a &= |\psi_a^0| e^{i\theta_a} e^{-i\mu_a t}, \\ \psi_b &= |\psi_b^0| e^{i\theta_b} e^{-i\mu_b t}, \\ \psi_{m_1} &= |\psi_{m_1}^0| e^{i(\theta_a + 2\theta_b)} e^{-i(\mu_a + 2\mu_b)t}, \\ \psi_g &= |\psi_g^0| e^{2i(\theta_a + \theta_b)} e^{-2i(\mu_a + \mu_b)t}, \end{aligned} \quad (3)$$

μ_a 和 μ_b 分别是原子 A 和 B 的化学势.

方程(3)代入等式(2)并使得 $|\dot{\psi}_{m_1}^0|^2 = 0$, 得到当初始原子 A、B 的粒子数布居相等情况下的 CPT 稳态解

$$N_g^0 = \frac{1}{4} \left(1 - \frac{2}{\sqrt{1 + 4 \left(\frac{\lambda_1}{\Omega_1} \right)^2} + 1} \right) = \frac{1}{4} (1 - 2N_a^0). \quad (4)$$

广义的“双光子”共振条件和化学势分别为

$$\begin{aligned} \Delta^I &= -\delta + (4\chi_{aa} + 4\chi_{ab} - 2\chi_{ga})nN_a^0 + (4\chi_{bb} + 4\chi_{ab} - 2\chi_{gb})nN_b^0 + (4\chi_{ag} + 4\chi_{bg} - 2\chi_{gg})nN_g^0, \\ \mu_a^I &= -2n(\chi_{aa}N_a^0 + \chi_{ab}N_b^0 + \chi_{ag}N_g^0), \\ \mu_b^I &= -2n(\chi_{bb}N_b^0 + \chi_{ab}N_a^0 + \chi_{bg}N_g^0), \end{aligned} \quad (5)$$

上标“埃伞北”对应单通道 I 的情况(中间态分子是三聚物 AB_2).

选择与时间有关的拉比频率

$$\Omega_1(t) = \Omega_{1,0} \operatorname{sech}\left(\frac{t}{T}\right), \quad (6)$$

其中, $\lambda_1 = 4.718 \times 10^4 \text{ s}^{-1}$, $\frac{\Omega_{1,0}}{\lambda_1} = \lambda_{1T} = 20$. 在下面的模拟中, 粒子数密度 $n = 5 \times 10^{20} \text{ m}^{-3}$, 衰减率 $\gamma = 1$, 碰撞参数 $\chi_{aa} = 0.3214 \frac{\lambda_1}{n}$, $\chi_{bb} = 0.5303 \frac{\lambda_1}{n}$, $\chi_{ab} = 0.8731 \frac{\lambda_1}{n}$, 其他碰撞参数取 $0.0938 \frac{\lambda_1}{n}$.

图1为在通道 I 的情况下, $\delta = \pm 1$ 时, 原子 A 和四聚物 A_2B_2 随时间的粒子数布居. 模拟表明 ^{87}Rb 和 ^{41}K 的粒子数的演化走势比较相似, 并且三聚物的布居实质上一直几乎为零, 所以图1中没有显示. 通过设置大量不同的失谐 δ 进行多组数值模拟, 结果发现, 通过控制合适的失谐总是可以观察到四聚物的稳定有效生成. 尤其, 发现在 $\delta = -1$ 的情况下, 四聚物的产率只达到 0.62 ($\delta = -3$ 时更低, 见图2) 但是对于同核四聚物的制备, $\delta = -3$ 时产率达到 0.81. 在实验中, 经常选择一系列不同的脉冲持续时间 T 和特定拉比频率 Ω , 并设置 δ 为某一确定值来实现四聚物分子转化率的最优化.

CPT 对应四聚物布居数的理想解析解.

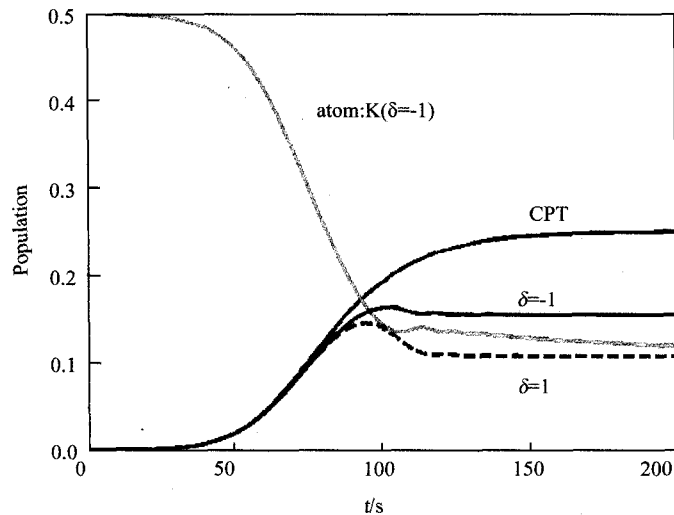


图1 CPT对应四聚物布居数的理想解析解

图1 单通道条件下, 原子 ^{41}K 和异核四聚物的粒子数布居随时间的演化

图2是对一些不同的初始原子数布居的 A_2B_2 产率随 δ 变化的函数, 即 $N_a : N_b = 1 : 1, 1 : 2$ 和 $2 : 1$. 结果显示, 对于负失谐 δ 总是能很好地观察到异核四聚物分子的稳定有效生成, 但是对于正失谐 δ , 在随后的时间里, 制备产率很小, 甚至为零. 当 $N_a : N_b = 1 : 1$ 时, 四聚物的产率最大, 这说明初始态原子数的不平衡布居对制备四聚物分子 A_2B_2 有很大影响. 此外, 对于另一个单通道 II, 即对应于中间态三聚物 A_2B , 其粒子数的演化行为跟单通道 I 情况非常相似, 并有相同的 CPT 稳态解(4) 和相同的共振条件方程(5).

2 双通道情况: 相长干涉更好

两通道共存的时候比任何一种单通道能够制备更多的四聚物分子. 其原因在于两通道的相长干涉的作用.

在双通道情况下, 系统的哈密顿量如下,

$$\begin{aligned} H = - \int dr \{ & \sum_{i,j} \chi'_{ij} \hat{\psi}_i^\dagger(r) \hat{\psi}_j^\dagger(r) \hat{\psi}_j(r) \hat{\psi}_i(r) + \delta [\hat{\psi}_{m_1}^\dagger(r) \hat{\psi}_{m_1}(r) + \hat{\psi}_{m_2}^\dagger(r) \hat{\psi}_{m_2}(r)] + \\ & \lambda'_1 [\hat{\psi}_{m_1}^\dagger(r) \hat{\psi}_a(r) \hat{\psi}_b^2(r) + h.c.] - \Omega'_1 [\hat{\psi}_g^\dagger(r) \hat{\psi}_{m_1}(r) \hat{\psi}_a(r) + h.c.] + \\ & \lambda'_2 [\hat{\psi}_{m_2}^\dagger(r) \hat{\psi}_a^2(r) \hat{\psi}_b(r) + h.c.] - \Omega'_2 [\hat{\psi}_g^\dagger(r) \hat{\psi}_{m_2}(r) \hat{\psi}_b(r) + h.c.] + (\Delta + \delta) \hat{\psi}_g^\dagger(r) \hat{\psi}_g(r) \}, \quad (7) \end{aligned}$$

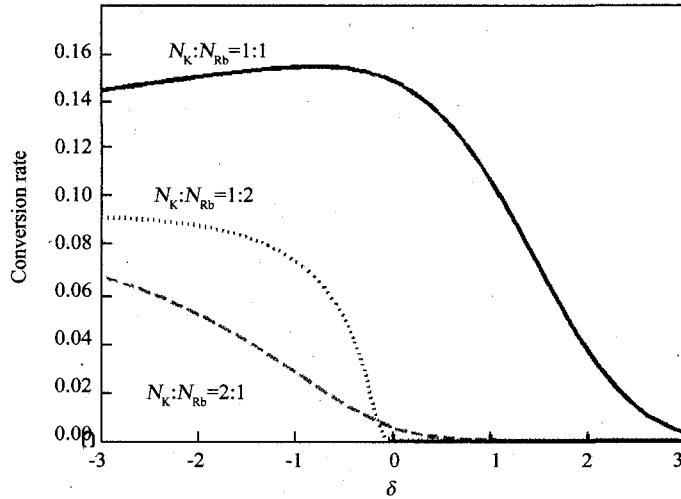


图2 四聚物分子的转化率随演化的函数

ψ_{m_1}, ψ_{m_2} 分别表示三聚物 AB_2 和 A_2B . 为了找到双通道情况下的共振条件,用稳态假设解,

$$\lambda_1 |\psi_b^0|^2 = \Omega_1 |\psi_g^0|^2, \lambda_2 |\psi_a^0|^2 = \Omega_2 |\psi_g^0|^2, \quad (8)$$

可以得到,

$$N_a^0 = \frac{2 \frac{\lambda_1}{\Omega_1}}{\frac{\lambda_1}{\Omega_1} + \frac{\lambda_2}{\Omega_2} + \sqrt{\left(\frac{\lambda_1}{\Omega_1} + \frac{\lambda_2}{\Omega_2}\right)^2 + 16 \left(\frac{\lambda_1}{\Omega_1}\right)^2 \left(\frac{\lambda_2}{\Omega_2}\right)^2}}, \quad (9)$$

$$N_g^0 = \left(N_a^0 \frac{\lambda_2}{\Omega_2}\right)^2, N_{m_1}^0 = N_{m_2}^0 = 0, N_b^0 = \frac{\lambda_1 \Omega_2}{\lambda_2 \Omega_1}.$$

采用和单通道相同的初始原子数布居,并引入参数 $\eta_i = \frac{\Omega_i}{\lambda_i} (i = 1, 2), R = \frac{\eta_1}{\eta_2}$. 相比于单通道的情形,双通道独一无二的特色就是量子干涉起作用. 此外,也能灵活地调控 R 来制备四聚物分子. 数值模拟发现, $R = 1$ 时,四聚物的产率达到最大值. 这和理论分析相一致.

图 3 是 $R = 1$ 且 $\delta = \pm 1$ 时的数值模拟. 在相同的参数条件下,四聚物的产率明显高于单通道. 例如, $\delta = -1$ 时产率达到 0.73.

大图双通道情况;小图 $\delta = -1$ 时,双通道和单通道的情况下四聚物粒子数布居.

此外, R 的取值极大地依赖于初始的原子数布居,后面也会对这个问题做出分析. 众所周知,分子的转化率,不仅依赖于外场,还和初始原子数布居有关系. 例如粒子数的不平衡布居能够引起从超流相到正常相的相变.

接下来证明,初始原子数布居不平衡对原子分子转化率的影响. 首先引入参数

$$P = \frac{(n_a - n_b)}{(n_a + n_b)}, \quad (10)$$

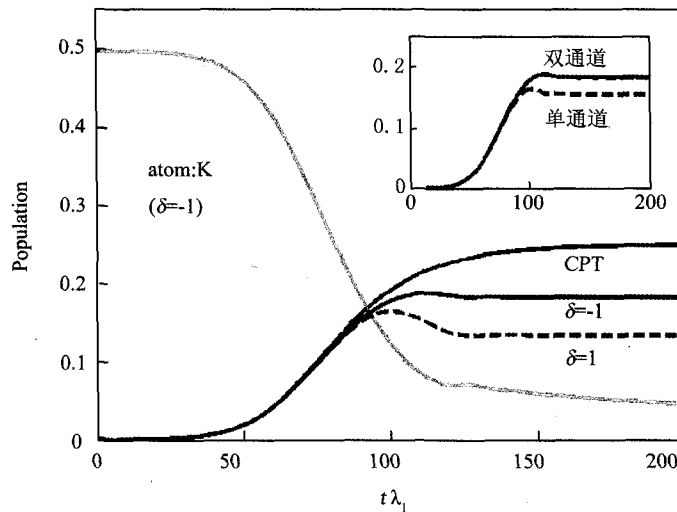
n_a, n_b 为原子 A 和 B 的初始粒子数密度. 根据总粒子数守恒的条件

$$|\psi_a^0|^2 + |\psi_{m_1}^0|^2 + |\psi_{m_2}^0|^2 + |\psi_g^0|^2 = \frac{(1+P)}{2}, \quad (11)$$

$$|\psi_b^0|^2 + |\psi_{m_1}^0|^2 + |\psi_{m_2}^0|^2 + |\psi_g^0|^2 = \frac{(1-P)}{2},$$

和稳态条件(8),可得 CPT 稳态解表示如下

$$|\psi_g^0|^2 = \frac{1}{8} [\eta_1^2 - \eta_1 \sqrt{\eta_1^2 + 4(1+P)} + 2(1+P)] = \frac{1}{8} [\eta_2^2 - \eta_2 \sqrt{\eta_2^2 + 4(1-P)} + 2(1-P)] = \frac{P^2}{(\eta_1 - \eta_2)^2}, \quad (12)$$



大图 双通道情况; 小图 $\delta=-1$ 时, 双通道和单通道的情况下四聚物粒子数布居.

图3 四聚物分子和原子K的粒子数布居

参数 P 又可以写成

$$P = \frac{1}{4} [\sqrt{(\eta_1^2 - \eta_2^2)^2 + 16(\eta_1 - \eta_2)^2} + (\eta_1^2 - \eta_2^2)]. \quad (13)$$

当 $\eta_1 = \eta_2$ 时, $P = 0$, 即两种原子的初始粒子数布居相同时, 能够达到最优化和最理想化的四聚物分子转化率. 这也和上面讨论所做的假设 $n_a : n_b = 1 : 1$ 一致.

3 总结和结论

综上所述, 本文在理论上研究了 Efimov-共振辅助受激拉曼绝热通道技术用于制备超冷异核四聚物⁴⁰K₂⁸⁷Rb₂, 相干布居捕陷条件下使得中间三原子分子态始终为零. 进一步研究了双通道的情况. 两个反应通道的共存出现了相长量子干涉, 而这一效应进一步提高原子-四聚物转化效率. 同时发现初始态的两种原子的粒子数布居的不平衡也对四聚物的制备效率有很大的影响. 该工作可以被推广到费米异核四聚物⁴⁰K₂⁸⁷Rb₂的制备, 并且制备过程中的量子效应和在光晶格中的四聚物分子气体等都值得深入研究.

参 考 文 献

- [1] CARR L D, DEMILLE D, KREMS R V, et al. Cold and Ultracold Molecules: Science, Technology and Applications [J]. New Journal of Phys, 2009, 11(5):055049.
- [2] HARA H, TAKASU Y, YAMAOKA Y, et al. Quantum degenerate mixtures of alkali and alkaline-earth-like atoms [J]. Phys Rev Lett, 2011, 106(20):205304.
- [3] ZUCHOWSKI P S, ALDEGUNDE J, HUTSON J M. Ultracold RbSr molecules can be formed by magnetoassociation [J]. Phys Rev Lett, 2010, 105(15):153201.
- [4] YAN M, DESALVO B J, HUANG Y, et al. Rabi Oscillations between Atomic and Molecular Condensates Driven with Coherent One-Color Photoassociation [J]. Phys Rev Lett, 2013, 111(15):150402.
- [5] KATO S, YAMAZAKI R, SHIBATA K, et al. Observation of long-lived van der Waals molecules in an optical lattice [J]. Phys Rev A, 2012, 86(4):043411.
- [6] ZEPPELFELD M, ENGLERT B G, GLÖCKNER R, et al. Sisyphus cooling of electrically trapped polyatomic molecules [J]. Nature (London), 2012, 491(7425):570.
- [7] JOYE S B. Microbiology: A piece of the methane puzzle [J]. Nature (London), 2012, 491(7425):538.
- [8] OSPELKAUS S, NI K K, WANG D, et al. Quantum-State Controlled Chemical Reactions of Ultracold Potassium-Rubidium Molecules [J]. Science, 2010, 327(5967):853.

- [9] JING H, CHENG J, MEYSTRE P. Quantum Noise in the Collective Abstraction Reaction $A+B_2 \rightarrow AB+B$ [J]. *Phys Rev Lett*, 2008, 101(7):073603.
- [10] BRESSEL U, BORODIN A, SHEN J, et al. Manipulation of individual hyperfine states in cold trapped molecular ions and application to HD^+ frequency metrology[J]. *Phys Rev Lett*, 2012, 108(18):183003.
- [11] MACKIE M, PHOU P, BOYCE H, et al. Feshbach-resonant Raman photoassociation in a Bose-Einstein condensate[J]. *Phys Rev A*, 2011, 84(4):043614.
- [12] LING H Y, PU H, SEAMAN B. Creating a Stable Molecular Condensate Using a Generalized Raman Adiabatic Passage Scheme[J]. *Phys Rev Lett*, 2004, 93(25):250403.
- [13] JING H, CHENG J, MEYSTRE P. Coherent atom-trimer conversion in a repulsive Bose-Einstein condensate[J]. *Phys Rev Lett*, 2007, 99(13):133002.
- [14] JING H, JIANG Y. Coherent atom-tetramer conversion: Bright-state versus dark-state schemes[J]. *Phys Rev A*, 2008, 77(6):065601.
- [15] EFIMOV V. Energy levels arising from resonant two-body forces in a three-body system[J]. *Phys Lett B*, 1970, 33(8):563-564.
- [16] KRAEMER T, MARK M, WALDBURGER P, et al. Evidence for Efimov quantum states in an ultracold gas of caesium atoms[J]. *Nature (London)*, 2006, 440(7082):315-318.
- [17] HUCKANS J H, WILLIAMS J R, HAZLETT E L, et al. Three-body recombination in a three-state Fermi gas with widely tunable interactions[J]. *Phys Rev Lett*, 2009, 102(16):165302.
- [18] ZACCANTI M, DESSLER B, DERRICO C, et al. Observation of an Efimov spectrum in an atomic system[J]. *Nature Physics*, 2009, 5(8):586-591.
- [19] BARONTINI G, WEBER C, RABATTI F, et al. Erratum: Observation of Heteronuclear Atomic Efimov Resonances[J]. *Phys Rev Lett*, 2009, 104(5):059901.
- [20] DOU F Q, FU L B, LIU J. Formation of N-body polymer molecules through generalized stimulated Raman adiabatic passage[J]. *Phys Rev A*, 2013, 87(4): 043631.

Creating a Stable Molecular Condensate $^{41}\text{K}_2\ ^{87}\text{Rb}_2$ via a Generalized Efimov-resonance Dark-state Scheme

JIANG Yajing, XU Jing, ZHAO Xingdong

(College of Physics and Electronical Engineering, Henan Normal University, Xinxiang 453007, China)

Abstract: We study the generalized dark-state scheme for creating stable molecules $^{41}\text{K}_2\ ^{87}\text{Rb}_2$ from the atomic mixture condensates by resorting to a Efimov-resonance assisted stimulated adiabatic passage. It shows that the conversion rate can be further enhanced via the constructive interference between two different quantum chemical reaction channels. In addition, the important effect of the initial population imbalance on the dark state atom-molecule conversion is investigated.

Keywords: Bose-Einstein condensates; Efimov-resonance assisted stimulated adiabatic passage; constructive interference