

Autoreferat rozprawy doktorskiej pt.:  
**Quantum dynamics and control of ultracold molecules  
in external fields**

(tytuł w języku polskim: Dynamika i kontrola kwantowa ultrazimnych  
cząsteczek w polach zewnętrznych)

Promotorzy:

Prof. Robert Moszyński, Uniwersytet Warszawski, Polska

Prof. Christiane P. Koch, Uniwersytet w Kassel, Niemcy

Kontrola materii na poziomie kwantowym od wielu lat stanowi wyzwanie dla współczesnej nauki. Manipulacja pojedynczymi fotonami, atomami lub cząsteczkami skupia uwagę wielu grup badawczych na świecie. Sukcesy w inżynierii stanów kwantowych pojedynczych fotonów lub atomów zostały nagrodzone licznymi nagrodami Nobla w dziedzinie fizyki i chemii. Jednocześnie jednak kwantowa kontrola cząsteczek lub reakcji chemicznych stanowi dużo większe wyzwanie i w związku z tym jest w znacząco mniej zaawansowanym stadium rozwoju.

Postęp technik laserowych oraz chłodzenia umożliwił w przeciągu ostatnich kilkunastu lat dynamiczny rozwój badań nad materią w ultraniskich temperaturach. Po spektakularnych sukcesach w dziedzinie ultrazimnych atomów, obecnie trwają wzmożone prace nad gazami ultrazimnych cząsteczek. Ultrazimne cząsteczki znajdują zastosowanie m.in. w produkcji molekularnego kondensatu Bosego-Einsteina, otrzymywaniu nowych faz kwantowych, symulacji układów wielociałowych, niezwykle dokładnej spektroskopii i badaniu podstawowych praw fizycznych jak łamanie symetrii CP przez pomiar momentu dipolowego elektronu oraz badaniu reakcji chemicznych na najbardziej elementarnym kwantowym poziomie, co może przynieść znaczące pogłębienie zrozumienia fizycznych podstaw chemii.

W pracy przedstawiono wyniki badań teoretycznych nad właściwościami, dynamiką oraz kontrolą kwantową ultrazimnych cząsteczek w zewnętrznych polach. Zaproponowano nowe schematy tworzenia oraz kontroli ultrazimnych cząsteczek. Z jednej strony zbadano możliwość zastosowania standardowych metod fotoasocjacji do niestandardowych układów, z drugiej strony zaproponowano całkowicie nowe podejścia do kontroli tworzenia oraz dynamiki ultrazim-

nych cząsteczek. Przedstawione badania wymagały zarówno rozwoju opisu teoretycznego jak również numerycznej implementacji oraz wykonania symulacji. Zaprezentowane wyniki wpisują się w nurt badań zmierzających do osiągnięcia pełnej kontroli nad kwantowymi układami i procesami molekularnymi.

Wykorzystując najnowsze zaawansowane metody *ab initio* wykonano obliczenia struktury elektronowej dla serii układów molekularnych ważnych dla trwających lub planowanych doświadczeń oraz badań teoretycznych. W kolejnym kroku, obliczone dane struktury elektronowej zostały wykorzystane w badaniach dynamiki kwantowej, tak zależnej jak i niezależnej od czasu, układów molekularnych w kilku projektach dotyczących tworzenia, kontroli oraz zderzeń ultrazimnych atomów oraz cząsteczek.

Na potrzeby eksperymentu grupy prof. Tanyi Zelevinsky z Uniwersytetu Columbia w Nowym Yorku w USA, który ma na celu produkcję ultrazimnych cząsteczek SrYb w sieci optycznej do wykorzystania w dokładnych pomiarach oraz zbudowania optycznego zegara cząsteczkowego, zaproponowano i zbadano schemat produkcji ultrazimnych cząsteczek SrYb. Najpierw wykonano obliczenia struktury elektronowej cząsteczki, które następnie wykorzystano w obliczeniach dynamicznych. Pokazano, że fotoasocjacja wykorzystująca przejście wzbronione poniżej stanu  $^3P$  atomu strontu, do poziomów wibracyjnych opartych o wzbudzone stany elektronowe silnie sprzężone przez oddziaływanie spin-orbita oraz w następnym kroku stabilizacja do podstawowego stanu rowibracyjnego może być użyta do wydajnej produkcji gazu ultrazimnych cząsteczek SrYb wykorzystując np. stymulowane adiabatyczne przejście Ramana.

Na potrzeby eksperymentu prowadzonego przez grupą dra Rene Gerritsma z Uniwersytetu w Mainz w Niemczech, który ma na celu budowę symulatora kwantowego naśladowującego ciało stałe opartego na hybrydowej strukturze ultrazimnych jonów iterbu i atomów litu, zbadano zimne zderzenia pomiędzy jonem iterbu oraz ultrazimnymi atomami litu. Najpierw wykonano obliczenia struktury elektronowej jonu molekularnego  $(\text{LiYb})^+$ , które następnie wykorzystano w obliczeniach dynamicznych. Pokazano, że straty nieelastyczne w badanym układzie będą wystarczająco niewielkie, aby zbudować zaproponowany symulator kwantowy. Zaproponowano także nowy schemat jedno- i dwufotonowej spektroskopii fotoasocjacji w oparciu o pojedynczy jon w pułapce.

Zaproponowano i teoretycznie zbadano nowe schematy produkcji ultrazimnych cząsteczek wykorzystując optyczne przejścia wielofotonowe z kształtowanymi femtosekundowymi impulsami laserowymi. Zbadano teoretycznie wielofotonowe tworzenie cząsteczek z gazu ultrazimnych atomów rubidu. Wykorzystując teorię optymalnej kontroli pokazano, że możliwa jest fotoasocjacja z wykorzystaniem femtosekundowych impulsów napędzających nierezonansowe trzyfotonowe przejścia. Wyprowadzono i przetestowano funkcjonały, które pozwalają wygasić przejścia atomowe oraz faworyzują tworzenie cząsteczek. Wykonano optymalizację impulsów

kiedy stan początkowy jest opisany przez termodynamiczny zespół statystyczny kontinuum stanów rozproszonych atomów rubidu w pułapce magneto-optycznej. Używając liniowego wariantu algorytmu Krotova pokazano, że w ultraniskich temperaturach impuls zoptymalizowany dla jednej energii zderzenia działa także dla innych energii oraz najniższych fal parcjalnych. Badania te były pierwszym zastosowaniem teorii optymalnej kontroli poprawnie opisującym stan początkowy jako termodynamiczny zespół statystyczny wielu stanów rozproszonych w ultrazimnej fotoasocjacji.

Następnie zbadano dynamikę paczki falowej otrzymanej w trzyfotonowej fotoasocjacji oraz stabilizację cząsteczki wykorzystując dwufotonowe rezonansowe przejście napędzane kształtowanymi impulsami femtosekundowymi. Przeanalizowano wydajność transferu populacji używając impulsów o spektrum ograniczonym fourierowsko oraz kształtowanych przez liniowy chirp. Następnie wykorzystano teorię optymalnej kontroli do znalezienia najbardziej wydajnej ścieżki stabilizacji. Pokazano, że kształtując impulsy poprzez liniowy chirp można zwiększyć wydajność produkcji cząsteczek o rząd wielkości, podczas gdy teoria optymalnej kontroli pozwala zwiększyć wydajność o blisko dwa rzędy wielkości.

Do badania struktury ultrazimnych cząsteczek zastosowano niedawno rozwiniętą metodę sprzężonych klasterów w formalizmie przestrzeni Focka, która pozwala badać strukturę elektronową układów, których nie można opisać pojedynczym wyznacznikiem Slatera. Używając metody przyłączenia dwóch elektronów w przestrzeni Focka wykonano dokładne obliczenia energii oddziaływania dla cząsteczki rubidu  $Rb_2$  w stanie podstawowym i stanach wzbudzonych, wliczając stany wysoce wzbudzone o naturze jonowej. Wyniki te są pierwszym opisanym w literaturze przykładem zastosowania tego typu metod do dokładnych obliczeń potencjałów oddziaływania międzyatomowego. Otrzymane potencjały oddziaływania odtwarzają dane eksperymentalne lepiej od wcześniej dostępnych, a jednocześnie niedawno były kluczowe do wyjaśnienia nowych pomiarów wysoko wzbudzonych stanów elektronowych w grupie prof. Phillipa Goulda z Uniwersytetu w Connecticut w USA.

Rozwinięto teorię opisującą oddziaływanie cząsteczek dwuatomowych w zdegenerowanym stanie elektronowym z nierezonansowym polem laserowym, a następnie zbadano wpływ tego pola na strukturę stanów rowibracyjnych oraz skutki użycia go do kontroli i zwiększenia wydajności procesu fotoasocjacji. Pokazano, że pole nierezonansowe może być użyte do kontroli charakteru singletowo-trypletowego stanów rowibracyjnych w obecności silnego oddziaływania spin-orbita.

Pokazano, że nierezonansowe pole laserowe może być użyte do tworzenia i kontroli magnetycznych rezonansów oraz modyfikowania zarówno ich położenia jak i szerokości. Pokazano, że zaproponowana metoda pozwala zwiększyć szerokość rezonansów Feshbacha (zbyt wąskich, aby przeprowadzić magnetoasocjacje) o trzy rzędy wielkości umożliwiając w ten sposób produkcję

cząsteczek np. w intensywnie obecnie badanych mieszkankach atomów otwarto- i zamkniętopowłokowych. Wyniki te otwierają możliwość produkcji ultrazimnych cząsteczek posiadających zarówno duży magnetyczny, jak i elektryczny moment dipolowy, a co za tym idzie kwantowe symulacje wielociałowych procesów z takimi cząsteczkami.

Zbadano właściwości cząsteczek opartych na atomie chromu oraz atomach zamkniętopowłokowych. Zaproponowano użycie cząsteczek CrSr oraz CrYb, które posiadają zarówno duży magnetyczny jak i elektryczny moment dipolowy, do badania wpływu międzycząsteczkowego magnetycznego oddziaływania dipolowego na właściwości ultrazimnego gazu cząsteczek oraz badania współzawodnictwa oddziaływania magnetycznych i elektrycznych dipoli na kolektywne właściwości gazu i cząsteczek w sieci optycznej.

Zbadano teoretycznie reakcje chemiczne ultrazimnych dimerów atomów alkalicznych w najniższym energetycznie stanie trypletowym, których tworzenie jest obecnie ważnym celem naukowym. Pokazano, że wszystkie alkaliczne dimery w stanie  $a^3\Sigma$  tworzą silnie związany stan przejściowy, który jest chemicznie niestabilny, a co za tym idzie użycie sieci optycznych do rozseparowania cząsteczek i powstrzymania strat spowodowanych chemiczną reaktywnością jest niezbędne.

Podsumowując, w pracy przedstawiono wyniki badań teoretycznych nad właściwościami, tworzeniem, dynamiką oraz kontrolą kwantową ultrazimnych cząsteczek w zewnętrznych polach. Wykorzystując najnowsze zaawansowane metody *ab initio* wykonano obliczenia struktury elektronowej dla serii układów molekularnych ważnych dla trwających lub planowanych doświadczeń oraz badań teoretycznych. W kolejnym kroku, wyniki obliczeń struktury elektronowej zostały wykorzystane w badaniach dynamiki kwantowej, tak zależnej jak i niezależnej od czasu, układów molekularnych ważnych z eksperymentalnego punktu widzenia. Zaproponowano nowe schematy tworzenia oraz kontroli ultrazimnych cząsteczek. Zaprezentowane wyniki wpisują się w nurt badań zmierzających do osiągnięcia pełnej kontroli nad kwantowymi układami i procesami molekularnymi.