

大型困陷分子离子的旋转冷却

Monika Leibscher¹ and Christiane P. Koch^{1,*}

¹Freie Universität Berlin, Dahlem Center for Complex Quantum Systems and Fachbereich Physik, Arnimallee 14, 14195 Berlin, Germany

(10Dated: 2025 年 6 月 28 日)

我们建议了一种协议，用于与激光冷却原子离子共捕获的分子不对称陀螺转子的同感冷却，基于分子离子的电偶极矩与其所捕获粒子的共同振动模式之间的共振耦合。通过结合同感边带激光冷却和相干微波激发，我们证明了任意旋转子空间的有效去占据，并能够将旋转状态的无序分布冷却到单一、明确的量子态。这一能力为利用旋转希尔伯特空间在量子信息处理和高精度光谱学中的应用开辟了道路。

多原子分子正在成为基础物理学 [1, 2] 和量子信息处理 [3] 的新平台。它们是例如，寻找电子非零电偶极矩 [4] 或使用手性分子测量宇称破坏 [5, 6] 的优秀候选者。分子旋转可用于量子纠错 [7–9] 或磁性量子模拟 [10]。所有这些应用都利用了分子旋转的希尔伯特空间较大且相对隔离良好的事实。此外，旋转光谱是非谐的，这使得量子态控制变得较为容易 [11]，并且，在有限子空间内，无论是线性转子还是不对称顶转子都是完全可控的 [12–14]。这意味着，通过结合共振电场（通常是微波），可以在子空间上实现任何所需的酉运算，即便存在简并情况也依然如此 [14]。然而，要真正实现这种程度的控制，则需要对分子进行捕获和冷却 [15, 16]，对于多原子分子来说这是非常具有挑战性的任务。迄今为止，最先进的方法是直接激光冷却 [17–19]。这种方法适用于一类特定的分子，这些分子基于化学直觉从二原子分子到多原子分子中推导出闭合循环跃迁谱系以适应这一过程 [20]。

这里，我们建议一种完全不同的方法来冷却多原子分子中的旋转，适用于分子离子，但不需要特定的电子结构。我们建议利用共振偶极声子相互作用，正如对二原子离子 [21, 22] 讨论的那样，通过激光冷却的原子离子同情地冷却多原子分子离子的旋转。在二原子分子中，离子阱中的正常模式频率通常在 MHz 范围内，可以调整以匹配超精细跃迁 [22]，而偶极允许的旋转跃迁通常位于 GHz 到 THz 范围内，因此远离阱模式。相比之下，作为非对称顶转子的多原子分子表现出更丰富的旋转光谱，其中可能包括 MHz 范围内的偶极允许跃迁。这使得可以通过分子的永久偶极矩实现分子旋转与陷阱运动之间的共振耦合。我们表明共振偶极声子耦合允许同情边带冷却耦合的旋转态，并提出将边带冷却与相干微波激发相结合，以冷却或耗

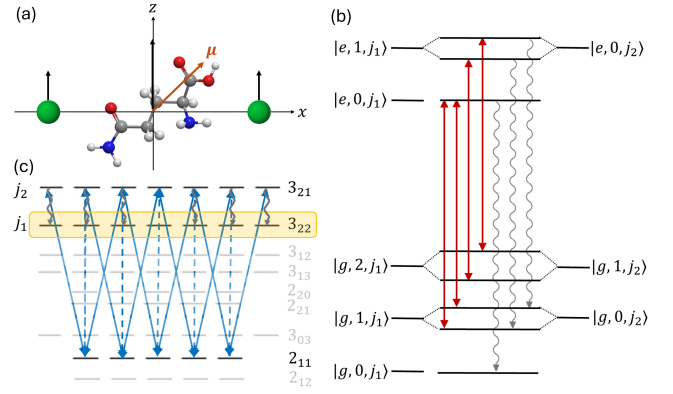


图 1. (a) 质子化谷氨酰胺分子与两个 Yb^+ 离子共同被捕获在一个线性泡尔阱中。黑色箭头表示阱中粒子的集体振动，这里指的是径向质心模式。分子偶极矩（橙色箭头）将分子的旋转自由度耦合到陷阱的正常模式。(b) 用于旋转状态的同感侧带冷却的能级方案。红色箭头显示了由冷却激光诱导的跃迁。摇摆的灰色箭头表示主要衰减通道。(c) 不对称陀螺光谱的一部分。侧带冷却导致耦合旋转状态 j_1 和 j_2 之间的衰减通道（摇摆的灰色箭头）。对于质子化的谷氨酰胺，状态 $|a, n_p, j_1\rangle$ 和 $|a, n_p - 1, j_2\rangle$ ， $a = g, e$ ，它们通过共振偶极相互作用耦合，是那些具有 $j_1 = 3_{22}, M$ 和 $j_2 = 3_{21}, M$ 的状态。其他旋转状态（例如 $j = 2_{11}, M$ ）可以通过微波激发到具有 $j_2 = 3_{21}, M$ 的状态而被耗尽。此处，实线（虚线）蓝色箭头表示由 x -和 z -极化微波脉冲诱导的跃迁。

尽非对称顶分子的任意旋转子空间。

我们考虑一个多原子分子离子与两个原子离子共同困在图 1(a) 所示的线性泡尔阱中。谐波陷阱势能将被困粒子的质量中心运动耦合起来——它们的集体振动由频率为 ω_p 的正常模式描述。如果两个原子离子都在其平衡位置附近以非零振幅振动，则它们的运动会相互耦合。对于图 1 中所示的三粒子链，9 种模式中有 6 种情况确实如此。如果分子是极性的，偶极相互作用

$H_{dp} = -\boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{R} \cdot \mathbf{E}$, 其中 $\mathbf{R}$ 是描述分子固定偶极矩 $\boldsymbol{\mu}$ 和空间固定电场 $\mathbf{E}$ 方向的旋转矩阵, 将分子的转动自由度耦合到被捕获粒子的集体质心运动中 [21–23]。我们用 $|a, n_p, j\rangle = |a\rangle \otimes |n_p\rangle \otimes |\phi_j\rangle$ 表示被囚禁粒子的本征态, 其中 $a = g, e$ 表示原子的内部状态, $n_p = 0, 1, 2, \dots$ 表示正常模式 p 下被囚禁粒子的振动状态。如果一个正常模式频率 ω_p 与旋转态 $|\phi_{j_1}\rangle$ 和 $|\phi_{j_2}\rangle$ 之间的偶极允许的旋转跃迁共振, 且 $E_{j_2} > E_{j_1}$ 强共振偶极相互作用耦合状态 $|a, n_p, j_1\rangle$ 和 $|a, n_p - 1, j_2\rangle$, 而与其他所有旋转态的偶极耦合可以忽略不计。在这种情况下, 简并态混合到

$$|a, n_p, j_{\pm}\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (|a, n_p, j_1\rangle \pm |a, n_p - 1, j_2\rangle) \quad (1)$$

并且简并通过偶极子分裂

$$\Delta E_{n_p} = |\langle n_p, j_1 | H_{dp} | n_p - 1, j_2 \rangle|, \quad (2)$$

被解除, 见图 1(b)。状态 $|n_p, j_1\rangle$ 和 $|n_p - 1, j_2\rangle$ 之间的耦合使得对于 $n_p > 0$, 旋转状态 $|\phi_{j_1}\rangle$ 和 $|\phi_{j_2}\rangle$ 可以进行共振边带冷却: 由于这种耦合, 激光冷却不仅将分子的质心运动冷却到振动基态, 还导致了旋转状态从级别 j_2 衰减到级别 j_1 。偶极耦合因此在旋转能级 j_2 和 j_1 之间创建了一个衰减通道, 允许耗尽旋转能级 j_2 。这个衰减通道依赖于两个特定旋转状态之间的共振耦合。尽管其他所有旋转状态由于相互作用的影响不够充分而无法被冷却, 但它们的占据数可以通过微波脉冲改变。我们建议将微波脉冲对旋转动力学的高度控制与偶极诱导的旋转态同感冷却相结合, 以耗尽一个旋转子空间。

作为一个示例, 我们考虑两个质量为 $M_a = 173u$ 的 Yb^+ 离子与一个质量为 $M_{rot} = 147u$ 的谷氨酰胺离子共陷阱, 参见图 1。选择原子和分子离子使得它们的质量相当。这确保了所有被捕获粒子的质心运动之间的有效耦合 [23], 这对于协同边带冷却至关重要。作为一种手性分子, 谷氨酰胺在分子框架中有三个非零的笛卡尔分量的偶极矩, 允许通过微波场 [13, 14] 完全控制其旋转动力学。此外, 它是一个近似长椭球不对称陀螺, 具有本征态 $|\phi_j\rangle = |J_{K_a, K_b}, M\rangle$, 旋转量子数为 $J = 0, 1, 2, \dots$, 磁量子数为 $M = -J, -J + 1, \dots, J$ 和 $K_a, K_c = 0, 1, \dots, J$ 。接近长椭球不对称陀螺的光谱包含紧密相邻的一对旋转向态 $|J_{K_a, K_b}, M\rangle, |J_{K_a, K_b-1}, M\rangle$, 其跃迁频率约为几兆赫。偶极子相互作用特别强, 如

果陷阱频率被调整到径向质心模式与状态 $|3_{2,2}, M\rangle$ 和 $|3_{2,1}, M\rangle$ 之间的旋转跃迁共振, 即 $\omega_p = E_{3_{2,1}} - E_{3_{2,2}} = 16.85$ 兆赫, 如图 1(a) 所示。请注意, 每个旋转态都是 $2J+1$ 重简并的, 如图 1(c) 所示, 偶极诱导的能量分裂,

$$\Delta E_{n_p} = \sqrt{n_p} \left| \mathcal{E}_0^{(p)} \mu_a \langle 3_{22}, M | R_{za} | 3_{21}, M \rangle \right|, \quad (3)$$

取决于定向量子数 M 通过 和旋转跃迁矩阵元 $\langle 3_{22}, M | R_{za} | 3_{21}, M \rangle$ [24]。对于 $M = 0$, 具有相同 J 的旋转态之间的跃迁是禁止的, 即状态 $|3_{2,2}, 0\rangle$ 和 $|3_{2,1}, 0\rangle$ 之间没有能量分裂。对于 $M \neq 0$, 偶极子分裂分别为 $\Delta E_{n_p, j} = \sqrt{n_p} 21.6$ 千赫兹, $\sqrt{n_p} 16.1$ 千赫兹 和 $\sqrt{n_p} 7.0$ 千赫兹 对应于 $|M| = 3, 2$ 和 1 。

我们通过数值求解 Lindblad 方程

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} = -\frac{i}{\hbar} [H, \rho] + \mathcal{L}_D \rho \quad (4)$$

来模拟一组旋转状态的冷却, 其中耗散子 $\mathcal{L}_D \rho = L \rho L^\dagger - \frac{1}{2} [L^\dagger L, \rho]$ 描述了如图 1 (b) 所示的耗散通道。为了证明几 kHz 数量级的偶极分裂足以实现协同冷却, 我们考虑了一组不对称陀螺态的子集, 这些状态由图 1 (c) 中的深灰色线条表示。状态 $|3_{2,2}, M\rangle$ 和 $|3_{2,1}, M\rangle$ 之间的偶极耦合用波状灰箭头指示。请注意, 状态 $|2_{1,1}, M\rangle$ 不受偶极耦合的影响。我们假设初始时, 该旋转子系统的所有状态都被占据, 如图 2(a) 的面板 (i) 所示。目标是耗尽除 $|3_{2,2}, M\rangle$ 之外的所有旋转状态, 见面板 (vi), 或者甚至将旋转态集合冷却到单一量子态, 如图 3 所示。

图 2(b) 和 (c) 展示了原子离子在激光脉冲照射下, 从旋转态 3_{21} 在 5 毫秒内衰减的情况; 所有振动态都衰减到 $n_p = 0$, 而旋转态 $3_{21}, M \neq 0$ 衰减至 $3_{22}, M$, 具有较大 $|M|$ 的状态衰减更快。由于不存在 $M = 0$ 的偶极耦合, 状态 $3_{21}, M$ 不受冷却机制的影响。图 2(a) 中的第 (ii) 部分显示了旋转态的最终人口分布, 表明除了 $M = 0$ 之外, 较高能级的旋转态的人口可以通过共轭边带冷却而减少。

为了进一步冷却分子的旋转自由度, 即耗尽更多的旋转态, 可以利用边带冷却与微波激发的组合。通过相干地将粒子数转移到耦合的旋转态并冷却这些状态, 可以依次耗尽越来越多的旋转态。图 1(c) 中的蓝色箭头标记了由微波脉冲诱导的相干跃迁, 这些跃迁可以由哈密顿量

$$H_{MW} = -\boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{R} \cdot \mathbf{E}(t), \quad (5)$$

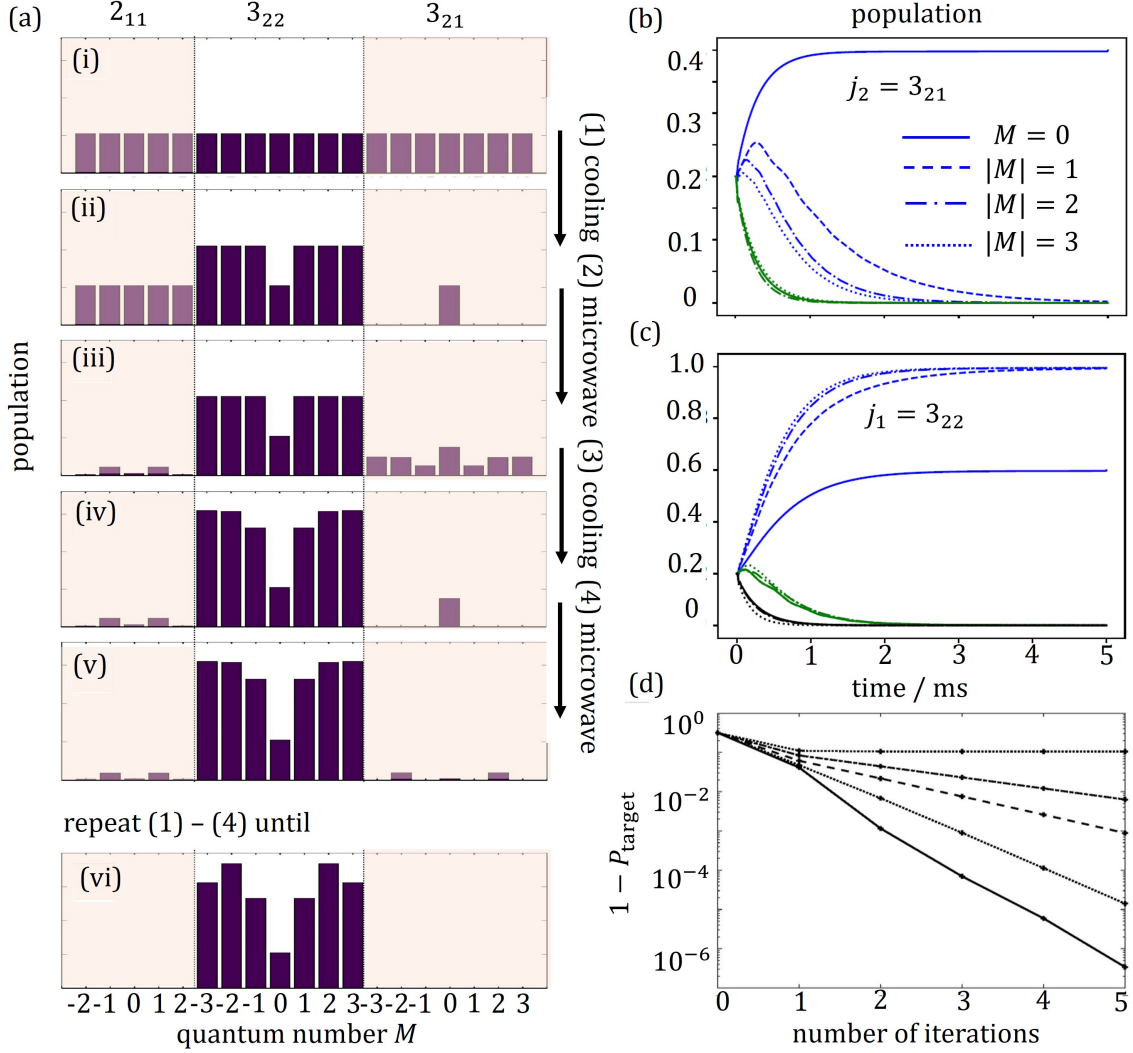


图 2. (a) 完全耗尽旋转能级 3_{21} 和 2_{11} (阴影区域) 的激发和冷却方案。该图显示了状态 $|2_{11}, M\rangle$ 、 $|3_{22}, M\rangle$ 和 $|3_{21}, M\rangle$ 的人口: (i) 初始时所有状态的人口相等; (ii) 经过第一步冷却后, 除了 $M = 0$ 状态外, 级别 3_{21} 为空; (iii) 经微波激发以 (不完全) 耗尽级别 2_{11} 后; (iv) 经第二步冷却后; (v) 经微波激发以耗尽 $|3_{21}, M = 0\rangle$ 后。 (vi) 重复这些步骤会导致层次 3_{21} 和 2_{11} 完全耗尽。 (b) 和 (c): 冷却步骤的细节。通过图 1(b) 所示的共轭边带冷却实现冷却。与冷却激光脉冲相互作用时, 旋转状态 $j_2 = 3_{21}, M$ (b) 和 $j_1 = 3_{22}, M$ (c) 的人口分布对于 $M = 0$ (实线), 以及 $|M| = 1, 2, 3$ (虚线、点划线和点线)。蓝色、绿色和黑色曲线分别对应于 $n_p = 0, 1, 2$ 。这里, 拉比频率是 $\Omega = 2\pi \times 200\text{kHz}$, 有效衰减率是 $\gamma = 0.3\text{MHz}$, 兰姆-迪克参数是 $\eta = 0.1$ [25]。正常模式频率为 $\omega_p = 16$ 兆赫, 偶极子分裂分别为 $\Delta E_{n_p, j} = \sqrt{n_p}21.6$ 千赫、 $\sqrt{n_p}16.1$ 千赫和 $\sqrt{n_p}7.0$ 千赫, 分别对应 $|M| = 3, 2$ 和 1 。 (d) 目标群体 $P_{\text{target}} = \sum_M P_{3_{22}, M}$ 的保真度作为微波脉冲迭代次数的函数, 完美 x -偏振 (实线), 以及具有 25%, 50%, 75% 和 100% z -偏振的情况。

描述, 其中 $\mathbf{E}(t) = \mathbf{e}\mathcal{E}(t)\cos(\omega t)$ 是具有极化 $\mathbf{e} = \mathbf{e}_x$ 、 $\mathbf{e}_y$ 或 $\mathbf{e}_z$ 、振幅 $\mathcal{E}(t)$ 和频率 ω 的电场。微波脉冲在 z 方向极化, 诱导具有 $\Delta M = 0$ 的状态之间的跃迁 (见图 1(c) 中的虚线蓝色箭头), x - 和 y - 极化的场驱动具有 $\Delta M = \pm 1$ 的跃迁 (实线蓝色箭头)。此外, 偶极子选择

规则允许不对称顶部状态之间的跃迁, 这些状态具有 $\Delta J = 0, \pm 1$ 。微波的频率设置为 $\omega = (E_{3_{21}} - E_{2_{11}})/\hbar$, 以便共振驱动状态 $|2_{11}, M\rangle$ 和 $|3_{21}, M'\rangle$ 之间的跃迁。目标是完全耗尽水平 2_{11} 和 3_{21} , 使得脉冲序列结束时, 只有一个旋转水平, 即 3_{22} 被占据。为此, 我们应用一个

x -偏振的微波脉冲，允许从和到 $M = 0$ 状态的跃迁。交替的相干微波激励与冷却步骤不仅可以耗尽 $M = 0$ 状态，还可以清空任何额外旋转级别的种群，在这里是指级别 2_{11} ，见图 2(a) 中的 (iii)-(vi) 部分。如图 2(d) 所示，如果微波脉冲完全 x 偏振，则仅需几次迭代即可非常精确地达到目标。

在一个实验中，微波脉冲通常具有轻微的椭圆偏振而不是完全线性偏振，我们通过向脉冲添加一个 z -偏振分量来模拟这种情况。图 2(d) 表明，在存在不完美偏振的情况下，过程需要更多的迭代才能达到同样良好的耗尽效果，但在原则上对脉冲偏振中的杂质具有鲁棒性。只有当使用纯 z 偏振的脉冲（虚线）时，目标种群无法获得。原因是，在极化率中没有 x -（或 y -）分量的情况下，不存在 $\Delta M = \pm 1$ 跃迁，即种群被困在 $3_{21}, M = 0$ 状态。

由于量子不对称陀螺旋转器在使用 x 、 y 和 z 极化场的序列时总是可控的，如果其偶极矩至少有两个非零分量 [14]，因此可以使用类似的控制序列来耗尽任何其他旋转能级。如果没有从该能级到能级 3_{21} 的偶极允许跃迁，例如因为 $|\Delta J| > 1$ ，则必须先将所需能级的种群相干地转移到一个已空的偶极允许能级，然后再应用上述冷却循环。因此，可以耗尽任意子空间的旋转态。

原则上，该协议允许将任意的旋转态分布冷却到简并旋转态集合 $3_{21}, M$ 。然而，它不允许将这些状态冷却到单个旋转量子态。将一个简并的旋转态集合冷却到单一旋转态需要至少使用两种不同的微波频率来进行相干人口转移的协议，如图 3(a) 所示，其中我们从级别 3_{22} 的一个非相干的简并旋转态集合开始。目标状态是单个旋转态，即 $|3_{22}, 3\rangle$ 。如在图 3(a) 中标记为黄色的部分所示。协议以一个频率为 $\omega = (E_{3_{21}} - E_{3_{22}})/\hbar$ 的圆偏振微波脉冲开始，激发从能级 3_{22} 到能级 3_{21} 的 $\Delta M = +1$ 跃迁，参见图 3(a) 中的橙色箭头。一致驱动 $\Delta M = +1$ 跃迁并随后沿 $\Delta M = 0$ 跃迁冷却的结果是，人口分布向具有最大 M 值的旋转态移动，即： $M = 3$ 。然而，由于 $M = 0$ 没有衰变通道，部分人口被困在状态 $|3_{21}, 0\rangle$ 中。这可以通过用频率与 $3_{21} \leftrightarrow 2_{11}$ 跃迁共振的 z 极化脉冲（图 3(b) 中的虚线蓝线）耗尽 $|3_{21}, 0\rangle$ 种群，并随后通过相同频率的右圆偏振脉冲将种群驱动到状态 $|3_{21}, 1\rangle$ 来修正。然后， $|3_{21}, 1\rangle$ 的种群可以通过冷却循环和过程衰减到 $|3_{22}, 1\rangle$ ，过程 (a) 可以

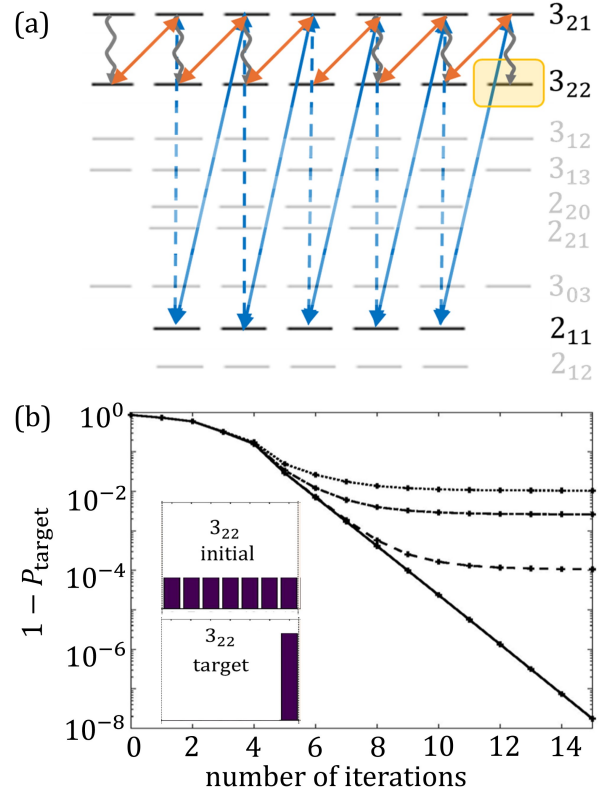


图 3. (a) 用微波激发和冷却方案将初始简并的旋转状态冷却到单一状态 $|3_{22}, 3\rangle$ ，该状态由黄色方框标记。从旋转态 $|3_{21}, M\rangle$ 到 $|3_{22}, M\rangle$ 的衰变由波浪形灰色箭头表示，蓝色和橙色箭头表示微波脉冲驱动的跃迁。(b) 目标态人口保真度作为迭代次数的函数，对于具有完美 σ_+ 偏振的微波脉冲（实线），以及另外具有 1%（虚线）、5%（点划线）和 10%（点线） σ_- 偏振的脉冲。

重复进行。完整的微波和冷却序列可以重复多次，直到只有目标状态被占据。该过程的保真度显示在图 3(c)，黑线。随着迭代次数的增加，可以以任意高的保真度达到目标状态，前提是脉冲完全偏振。当允许微波脉冲具有非完美偏振时，最终的保真度对这种不完美性敏感，请参见图 3(c) 显示了用不是完全右旋圆偏振、同时还包含左旋偏振贡献（1–10%）的微波脉冲激发时的保真度。误差是由于简并态仅通过偏振区分而不是频率选择区分，这也是为什么冷却跃迁必须与驱动跃迁具有相同频率的原因。因此，实现这种冷却方案的关键在于微波的清晰圆偏振 [26]。

我们的协议用于冷却旋转自由度，可以很容易地适应除谷氨酸胺离子以外的其他分子离子。对于谷氨酸胺，该协议依赖于近似椭球不对称陀螺仪中紧密相邻的一对旋转能级，但在接近扁球形不对称陀螺仪中

也可以找到类似的能级间距。此外, 为了能够进行同感边带冷却, 分子离子必须是极性的, 并具有 C_1 或 C_s 对称性, 以确保偶极矩的足够多的非零笛卡尔分量, 从而在每个旋转子空间内实现可控性。分子质量应与共捕获原子离子的质量相当, 以便原子和分子离子的质量中心运动充分耦合。最后, 可能还可以将该协议扩展到二聚体分子离子。尽管它们的旋转能级间距对于共振偶极耦合 [23] 来说太大了, 但冷却协议可以利用超精细状态之间的跃迁。

总之, 我们展示了共振偶极-声子耦合如何实现多原子分子旋转的协同边带冷却。结合边带冷却和相干微波激发, 可以耗尽不对称顶分子转动光谱的一个任意子空间, 将所有粒子转移到一个单一纯转动态。该冷却方案需要转动自由度与陷阱中粒子集体运动之间的强共振偶极耦合。因此, 较大的分子偶极矩和接近的转动能级是有利的。不对称顶分子的复杂转动结构提供了允许这样的共振偶极耦合的偶极子允许转动跃迁——因此该冷却方案特别适合多原子分子。我们的冷却协议能够将多原子分子离子制备到单一量子态, 从而为将量子逻辑光谱学从二原子 [27, 28] 分子扩展到多原子分子打开了大门, 并且可以利用不对称顶转子的丰富转动光谱进行基础物理实验或量子模拟和错误校正。

我们衷心感谢德国研究基金会通过 CRC 1319 ELCH 项目和联合 ANR-DFG CoRoMo 项目 505622963 (KO 2301/15-1) 提供的财政支持。

* Email: christiane.koch@fu-berlin.de

- [1] M. S. Safronova, D. Budker, D. DeMille, D. F. J. Kimball, A. Derevianko, and C. W. Clark, Search for new physics with atoms and molecules, *Rev. Mod. Phys.* **90**, 025008 (2018).
- [2] N. R. Hutzler, Polyatomic molecules as quantum sensors for fundamental physics, *Quantum Science and Technology* **5**, 044011 (2020).
- [3] V. V. Albert, J. P. Covey, and J. Preskill, Robust encoding of a qubit in a molecule, *Phys. Rev. X* **10**, 031050 (2020).
- [4] L. Anderegg, N. B. Vilas, C. Hallas, P. Robichaud, A. Jadbabaie, J. M. Doyle, and N. R. Hutzler, Quantum control of trapped polyatomic molecules for eedm searches, *Science* **382**, 665 (2023).
- [5] M. Quack, G. Seyfang, and G. Wichmann, Perspectives on parity violation in chiral molecules: theory, spectroscopic experiment and biomolecular homochirality, *Chem. Sci.* **13**, 10598 (2022).
- [6] I. Erez, E. R. Wallach, and Y. Shagam, Simultaneous enantiomer-resolved ramsey spectroscopy scheme for chiral molecules, *Phys. Rev. X* **13**, 041025 (2023).
- [7] V. V. Albert, J. P. Covey, and J. Preskill, Robust encoding of a qubit in a molecule, *Phys. Rev. X* **10**, 031050 (2020).
- [8] S. P. Jain, E. R. Hudson, W. C. Campbell, and V. V. Albert, Absorption-emission codes for atomic and molecular quantum information platforms, *Phys. Rev. Lett.* **133**, 260601 (2024).
- [9] B. J. Furey, Z. Wu, M. Isaza-Monsalve, S. Walser, E. Mattivi, R. Nardi, and P. Schindler, Strategies for implementing quantum error correction in molecular rotation, *Quantum* **8**, 1578 (2024).
- [10] M. L. Wall, K. Maeda, and L. D. Carr, Simulating quantum magnets with symmetric top molecules, *Annalen der Physik* **525**, 845 (2013).
- [11] C. P. Koch, M. Lemesko, and D. Sugny, Quantum control of molecular rotation, *Rev. Mod. Phys.* **91**, 035005 (2019).
- [12] R. Judson, K. Lehmann, H. Rabitz, and W. Warren, Optimal design of external fields for controlling molecular motion: application to rotation., *J. Mol. Struct.* **223**, 425 (1990).
- [13] E. Pozzoli, M. Leibscher, M. Sigalotti, U. Boscain, and C. P. Koch, Lie algebra for rotational subsystems of a driven asymmetric top, *J. Phys. A: Math. Theor.* **55**, 215301 (2022), 2110.03263.
- [14] M. Leibscher, E. Pozzoli, C. Perez, M. Schnell, M. Sigalotti, U. Boscain, and C. P. Koch, Full quantum control of enantiomer-selective state transfer in chiral molecules despite degeneracy, *Commun. Phys.* **5**, 110 (2022).
- [15] M. Deiß, S. Willitsch, and J. H. Denschlag, Cold trapped molecular ions and hybrid platforms for ions and neutral particles, *Nature Phys.* **20**, 713 – 721 (2024).
- [16] M. Sinhal and S. Willitsch, Molecular-ion quantum technologies, in *Photonic Quantum Technologies* (John Wiley & Sons, Ltd, 2023) Chap. 13, pp. 305–332.
- [17] B. L. Augenbraun, L. Anderegg, C. Hallas, Z. D. Lerner, N. B. Vilas, and J. M. Doyle, Direct laser cooling of polyatomic molecules, *Advances In Atomic, Molecular, and Optical Physics* **72**, 89 (2023), iSSN: 1049-250X.

- [18] N. B. Vilas, P. Robichaud, C. Hallas, G. K. Li, L. Anderegg, and J. M. Doyle, An optical tweezer array of ultracold polyatomic molecules, *Nature* **628**, 282 (2024).
- [19] Z. D. Lasner, A. Frenett, H. Sawaoka, L. Anderegg, B. Augenbraun, H. Lampson, M. Li, A. Lunstad, J. Mango, A. Nasir, T. Ono, T. Sakamoto, and J. M. Doyle, Magneto-optical trapping of a heavy polyatomic molecule for precision measurement, *Phys. Rev. Lett.* **134**, 083401 (2025).
- [20] T. A. Isaev and R. Berger, Polyatomic candidates for cooling of molecules with lasers from simple theoretical concepts, *Phys. Rev. Lett.* **116**, 063006 (2016).
- [21] E. R. Hudson and W. C. Campbell, Dipolar quantum logic for freely rotating trapped molecular ions, *Phys. Rev. A* **98**, 040302 (2018).
- [22] W. C. Campbell and E. R. Hudson, Dipole-phonon quantum logic with trapped polar molecular ions, *Phys. Rev. Lett.* **125**, 120501 (2020).
- [23] M. Leibscher, F. Schmidt-Kahler, and C. P. Koch, A planar rotor trapped and coupled to the vibrational modes of an ion crystal, arXiv:2504.00590 (2024), 2504.00590.
- [24] M. Leibscher, J. Kalveram, and C. P. Koch, Rational pulse design for enantiomer-selective microwave three-wave mixing, *Symmetry* **14**, 871 (2022).
- [25] A. P. Kulosa, O. N. Prudnikov, D. Vadlejch, H. A. Fürst, A. A. Kirpichnikova, A. V. Taichenachev, V. I. Yudin, and T. E. Mehlstäubler, Systematic study of tunable laser cooling for trapped-ion experiments, *New Journal of Physics* **25**, 053008 (2023).
- [26] W. Yuan, S. Zhang, N. Bigagli, C. Warner, I. Stevenson, and S. Will, A planar cloverleaf antenna for circularly polarized microwave fields in atomic and molecular physics experiments, *Review of Scientific Instruments* **94**, 123201 (2023).
- [27] F. Wolf, Y. Wan, J. C. Heip, F. Gebert, C. Shi, and P. O. Schmidt, Non-destructive state detection for quantum logic spectroscopy of molecular ions, *Nature* **530**, 457 (2016).
- [28] M. Sinhal, Z. Meir, K. Najafian, G. Hegi, and S. Willitsch, Quantum-nondemolition state detection and spectroscopy of single trapped molecules, *Science* **367**, 1213 (2020).