

## 高激发态原子间的范德瓦尔斯相互作用\*

赵健东<sup>†</sup> 辛洁

(中北大学信息与通信工程学院, 太原 030051)

(2013年10月15日收到; 2014年3月20日收到修改稿)

与基态原子相比, 高激发态原子(主量子数  $n > 15$ ) 具有很强的长程范德瓦尔斯(Van der Waals)相互作用, 这种强相互作用可以阻止相邻原子的进一步激发, 产生激发阻塞效应. 本文从理论上利用微扰方法计算碱金属原子 Rb 和 Cs 激发态  $nS$ ,  $nD$  原子对态的相互作用, 获得原子相互作用的色散系数并分析了原子间的长程相互作用特性. 结果表明, Rb 和 Cs 原子的  $nS$  态表现为排斥相互作用, 而  $nD$  态原子  $L = 0$  时, Rb 原子表现为吸引作用, Cs 原子表现为排斥作用.

**关键词:** 高激发态原子, 长程相互作用, 微扰**PACS:** 32.80.Ee, 34.90.+q**DOI:** 10.7498/aps.63.133201

## 1 引言

随着激光技术的发展人们可以利用连续可调谐的激光制备所需的高激发态原子. 与基态原子相比, 高激发态原子具有较大的原子半径和电偶极矩以及很强的长程相互作用<sup>[1]</sup>. 而借助于中性原子的激光冷却和俘获技术, 可以获得温度约百微开量级的超冷原子和激发态原子, 这时高激发态原子间的长程相互作用远大于原子的热运动动能, 高激发态原子间的相互作用将决定激发态原子的行为和动力学过程<sup>[2]</sup>.

任何相互作用都会产生能级移动和谱线的加宽, 高激发态原子间的强相互作用将使其相邻原子的能级发生移动. 早期的研究主要通过观察高激发态原子荧光光谱的展宽现象来研究原子间的相互作用, 然而由于原子的热运动动能远大于原子间的相互作用, 高激发态原子的相互作用引起的能级移动和谱线展宽淹没在热运动中. 近年来的研究表明, 激发超冷原子获得的超冷高激发态原子, 其相互作用能远大于原子的热运动动能, 人们可以在超

冷原子样品中观察到高激发态原子的相互作用引起的能级移动和由此产生的效应. 当相互作用导致的能级的移动大于激发激光的线宽时, 相邻原子的激发由于原子能级和激发光频率的失谐而受到抑制, 这种现象叫阻塞效应. 这种效应可以用于单原子<sup>[3,4]</sup>的制备和量子逻辑门的控制<sup>[5]</sup>以及单光子源的产生<sup>[6,7]</sup>, 从而引起人们的广泛关注.

在冷原子系统中, 人们将原子激发到主量子数  $n > 40$  的高激发态, 研究了激发态原子的长程相互作用的动力学效应和相互作用导致的激发态原子的电离<sup>[8-10]</sup>, 并观察到超冷高激发原子的电离过程. 在2004年, 首次在实验上观察到由于长程 Van der Waals 相互作用而产生的局部的激发阻塞效应<sup>[11,12]</sup>以及由电场调节的共振偶极相互作用<sup>[13]</sup>.

本文利用微扰理论数值计算高激发态原子的长程 Van der Waals 相互作用, 以主量子数  $n = 20, 40$  的 Rb, Cs 原子为研究对象, 计算了  $20SS$  和  $40D-D$  原子对态  $L = 0$  时的相互作用能, 计算结果表明: Rb 和 Cs 原子的  $SS$  对态的相互作用都表现为排斥势,  $nD$  对态原子在  $L = 0$  时的相互作用, Rb 原子表现为吸引势, 而 Cs 原子则表现为排斥势.

\* 中北大学 2012 年重点实验室青年基金资助的课题.

<sup>†</sup> 通讯作者. E-mail: zhaojiantong@nuc.edu.cn

## 2 相互作用能的计算模型

考虑两个核间距为  $R$  的双原子系统, 如图 1 所示, 其中  $Z_i$  和  $e_i$  分别表示两个原子的原子核和相应的激发态电子, 该原子系统的 Hamiltonian 量表示为

$$H = H_0 + V(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2), \quad (1)$$

式中,  $H_0$  表示不考虑原子间相互作用的 Hamiltonian 量,  $V(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2)$  表示高激发态原子间的相互作用能, 当原子间距  $R$  大于 LeRoy 半径  $R_{LR}$  ( $R_{LR} = 2(\langle n_1 l_1 | r^2 | n_1 l_1 \rangle^{1/2} + \langle n_2 l_2 | r^2 | n_2 l_2 \rangle^{1/2})$ ) 时, 两原子的电子波函数没有相互交叠, 其相互作用能表示为<sup>[14]</sup>

$$V(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) = - \sum_{n=1}^{\infty} \frac{C_n}{R^n} = \sum_{l, L=1}^{\infty} \frac{V_{lL}(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2)}{R^{l+L+1}}, \quad (2)$$

其中,  $C_n$  为色散系数, 我们可以通过微扰理论求出系数  $C$ , 从而获得高激发态原子的相互作用势能的形式, 进而了解其相互作用特性.

$V_{lL}$  表示为

$$V_{lL}(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) = \frac{(-1)^L 4\pi}{\sqrt{(2l+1)(2L+1)}} \sum_m \sqrt{\binom{l+L}{l+m} \binom{l+L}{L+m}} \times r_1^l r_2^L Y_{lm}(\hat{r}_1) Y_{L-m}(\hat{r}_2), \quad (3)$$

其中,  $Y_{lm}$  是球谐函数. 将  $V_{lL}$  作为微扰项, 利用微扰理论, 由相互作用引起的能级的一级修正表示为

$$\Delta E^1 = \langle n_1 l_1 m_1 | \langle n_2 l_2 m_2 | V | n_1 l_1 m_1 \rangle | n_2 l_2 m_2 \rangle. \quad (4)$$

能级的二级修正为

$$\Delta E^2 = \sum_{\phi_i} \langle n_1 l_1 m_1 | \langle n_2 l_2 m_2 | V | \phi_i \rangle \times \langle \phi_i | V | n_1 l_1 m_1 \rangle | n_2 l_2 m_2 \rangle \times \{E_m - E_{mi}\}^{-1}, \quad (5)$$

其中,  $|n_1 l_1 m_1 \rangle |n_2 l_2 m_2 \rangle$  表示同核原子对的电子波函数, 求和遍及所有的中间态  $|\phi_i \rangle$ . 对于角量子数  $l = 0$  (S 态) 和  $l = 2$  (D 态) 原子对的相互作用能分别表示为

$$V(R) = -\frac{C_5}{R^5} - \frac{C_6}{R^6} - \frac{C_7}{R^7}, \quad (nD - nD), \quad (6)$$

$$V(R) = -\frac{C_6}{R^6} - \frac{C_8}{R^8} - \frac{C_{10}}{R^{10}}, \quad (nS - nS). \quad (7)$$

文献 [14] 给出了具体的计算  $C$  系数的方法和结果, 这里做简要说明, 方程 (6) 和 (7) 式中的第一项由能级的一级修正给出, 后两项由能级的二级修正给出, 即  $\Delta E_{DD}^{(1)} = -C_5/R^5$ ,  $\Delta E_{SS}^{(1)} = -C_6/R^6$ , 一级修正的  $C$  系数可由方程 (4) 求出, 而二级修正的  $C$  系数由方程 (5) 给出.

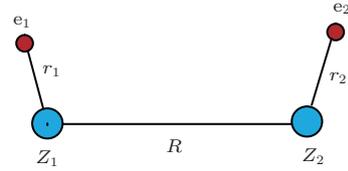


图 1 双原子系统示意图

## 3 结果和分析

### 3.1 SS 态

对于 SS 态, 角量子数  $l_1 = l_2 = 0$ , 总角动量  $L = 0$ , 对应的高激发 SS 对态属于  $\Sigma$  对称性, 数值计算 20SS 的  $C_6$ ,  $C_8$  和  $C_{10}$  系数如表 1 所示. 如图 2 所示为  $n = 20$  的 SS 态的势能曲线. 当两个原子相距无限远时, 原子间的相互作用等于零, 是两个独立的原子, 称为分子 (对态) 的离解线.

表 1 20SS 对态的  $C$  系数 (原子单位)

	$C_6(10^{14})$	$C_8(10^{20})$	$C_{10}(10^{25})$
Rb	-7.47	2.40	-1.89
Cs	-1.89	12.8	8.92

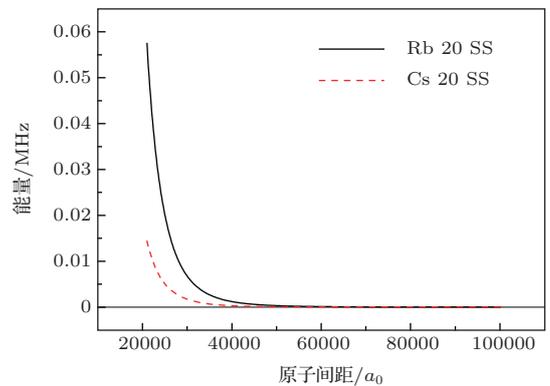


图 2 20SS 原子对态的势能曲线, 离解线对应的能量为势能零点

由图 2 可知 SS 对态对于 Rb 原子和 Cs 原子都表现为排斥相互作用, 当原子间距小于  $1.5 \mu\text{m}$

( $30000a_0$ ) 时, 原子间具有较强的排斥相互作用. 由于高激发态原子的相互作用强度与主量子数的 11 次方成正比, 所以主量子数越大, 相互作用越强.

### 3.2 DD 态

对于 DD 态, 角量子数  $l_1 = l_2 = 2$ , 总角动量  $L = 0, 1, 2, 3, 4$ , 对应的高激发 DD 对态分别属于

$\Sigma, \Pi, \Delta, \Phi, \Gamma$  对称性, 可以计算不同对称性条件下的  $C_5, C_6$  和  $C_7$  系数, 并由方程 (6) 获得 DD 对态原子的相互作用特性. 为了和 SS 态比较, 这里我们只给出  $n = 40$  时 DD 对态总角动量  $L = 0$  时的不同对称性相互作用的  $C$  系数, 如表 2 所示. 为方便描述, 用 (a)—(e) 分别表示不同的对称性, 其中对称性符号参照文献 [14] 的表述.

表 2  $L = 0$  时 40DD 对态的  $C$  系数 (原子单位)

	Rb			Cs		
	$C_5(10^{13})$	$C_6(10^{19})$	$C_7(10^{19})$	$C_5(10^{13})$	$C_6(10^{18})$	$C_7(10^{19})$
(a) $1\Sigma_u^-, 3\Sigma_g^-$	-2.440	0.160	-10.91	-1.937	-3.286	22.542
(b) $1\Sigma_u^-, 3\Sigma_g^-$	0.932	1.732	-4.167	0.740	-0.6103	8.608
(c) $1\Sigma_g^+, 3\Sigma_u^+$	-2.867	0.171	-3.393	-2.277	-4.361	7.0199
(d) $1\Sigma_g^+, 3\Sigma_u^+$	-1.326	3.079	14.36	-1.053	-1.512	-29.69
(e) $1\Sigma_g^+, 3\Sigma_u^+$	0.426	1.905	4.105	0.4398	-0.6633	-8.479

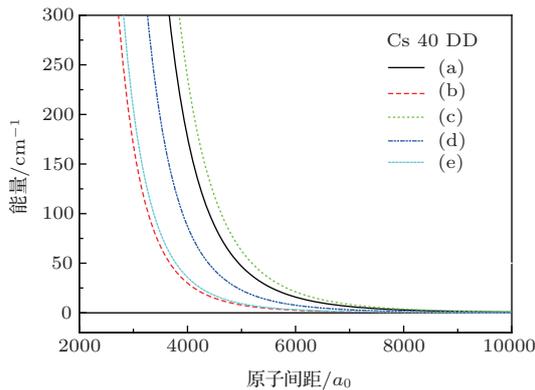


图 3 (网刊彩色) 铯原子 40DD 对态  $L = 0$  的势能曲线, 离解线对应的能量为势能零点

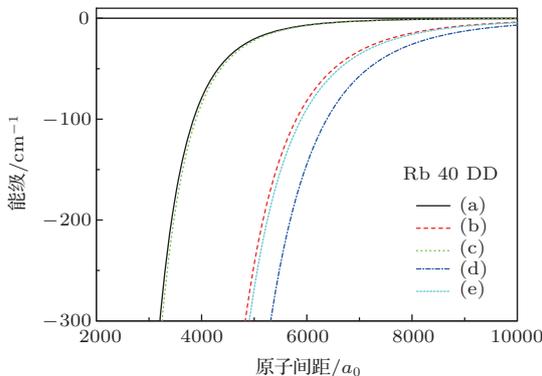


图 4 (网刊彩色) 铷原子 40DD 对态  $L = 0$  的势能曲线, 离解线对应的能量为势能零点

碱金属 Rb 和 Cs 原子的 40DD 对态  $L = 0$  时不同对称性条件下原子间的长程相互作用势能曲线

如图 3 (Cs 原子) 和图 4 (Rb 原子) 所示. 由图可以看出, 对于  $L = 0$ , Rb 和 Cs 的 DD 对态的长程相互作用表现出了不同的特性, Rb 原子 DD 对态表现为吸引相互作用, Cs 原子 DD 对态则表现为排斥相互作用.

### 3.3 结果分析

处于吸引势的原子会相互吸引进而碰撞, 使一个高激发态原子获得一定的能量而电离形成离子, 而另一个原子则失去相应的能量跃迁到较低的能态. 这样形成的离子经过一定时间的相互作用和演化可以转化为等离子体 [10], 因此这些离子的产生对低温等离子体的研究具有重要的意义. 当激发光负失谐于共振能级时, 原子被激发到吸引作用的势能曲线处, 更易产生离子.

处于排斥势的原子会相互远离, 导致原子密度的重新分布. 而由于黑体辐射与激发态原子的作用使部分原子转移到相邻的 P 态, PS 或 PD 对态形成吸引相互作用势, 也可以使原子电离形成离子. 与吸引势形成离子的位置不同的是, 排斥势产生离子的位置处于共振激发光的蓝失谐处. 文献 [15] 的实验中, 利用双光子激发制备  $nS$  原子, 在共振激发光的蓝失谐处观察到了自由离子信号. 说明 Cs 原子  $nS$  对态为排斥相互作用, 与本文计算结果相一致.

不论原子处于吸引还是排斥势, 原子的强相互

作用都会导致相邻原子能级的移动. 当激发光的线宽小于相互作用能时, 由于激发光与原子能级的失谐而阻止原子的进一步激发, 产生所谓的阻塞效应. 正是由于这样的原因, 可以在一定的区域内激发和制备一个原子<sup>[3,4]</sup>. 原子间的长程相互作用与原子间距(方程(6)和(7))和主量子数有关, 在实验中观察由相互作用导致的能级移动还需要提高原子的密度, 例如对于 $n = 20$ 的SS对态原子, 为了观察到相互作用导致的效应, 对应的原子密度需要达到约 $10^{13}$ 量级甚至更高. 另外, 在实验中还可以采用更大的主量子数 $n$ 的激发态原子. 例如, 在文献[12]中, 在相同的原子密度下,  $n = 30$ 的原子观察不到激发阻塞效应, 而对于 $n = 70$ 或80的高激发态原子, 在相同的条件下则可以观察到很强的阻塞效应.

#### 4 结 论

我们利用微扰理论, 数值计算了Rb和Cs原子的20SS态和40DD态 $L = 0$ 的色散系数并获得其相互作用势能曲线, 分析了不同相互作用导致的电离现象. 文献[15]的实验在蓝失谐处观察到Cs原子SS对态原子由于相互作用产生的离子信号, 与本文的理论计算结果相符. 高激发态原子由于外层电子被激发到主量子数较大的原子态, 远离原子核, 具有强相互作用和易于外场调节等特殊的性质, 使人们便于调控原子的相互作用.

#### 参考文献

- [1] Gallagher T F 1994 *Rydberg Atoms* (Cambridge: Cambridge University Press)
- [2] Comparat D, Pillet P 2010 *JOSA B* **27** A208
- [3] Urban E, Johnson T A, Henage T, Isenhower T, Yavuz D D, Walker T G, Saffman M 2009 *Nature Physics* **5** 110
- [4] Gaetan A, Miroshnychenko Y, Wilk T, Chotia A, Viteau M, Comparat D, Pillet P, Browaeys A, Grangier P 2009 *Nature Physics* **5** 115
- [5] Lukin M D, Fleischhauer M, Côté R, Duan L M, Jaksch D, Cirac J I, Zoller P 2001 *Phys. Rev. Lett.* **87** 037901
- [6] Dudin Y O and Kuzmich A 2012 *Science* **336** 887
- [7] Peyronel T, Firstenberg O, Liang Q, Hofferberth S, Gorshkov A, Pohl T, Lukin M, Vuleti V 2012 *Nature* **488** 57
- [8] Amthor T, Reetz-Lamour M, Westermann S, Denskat J, Weidemüller M 2007 *Phys. Rev. Lett.* **98** 023004
- [9] Han J and Gallagher T F 2008 *Phys. Rev. A* **77** 015404
- [10] Robinson M P, Laburthe Tolra B, Noel M W, Gallagher T F, and Pillet P 2000 *Phys. Rev. Lett.* **85** 4466
- [11] Singer K, Reetz-Lamour M, Amthor T, Marcassa L, Weidemüller M 2004 *Phys. Rev. Lett.* **93** 163001
- [12] Tong D, Farooqi S, Stanojevic J, Zhang Y, Côté R, Eyler E, Gould P 2004 *Phys. Rev. Lett.* **93** 063001
- [13] Vogt T, Viteau M, Zhao J, Choteau A, Comparat D and Pillet P 2006 *Phys. Rev. Lett.* **97** 083003
- [14] Singer K, Stanojevic J, Weidemüller M, and Côté R 2005 *J. Phys. B* **38** S295-S307
- [15] Che J L, Zhang H, Feng Z G, Zhang L J, Zhao J M, Jia S T 2012 *Acta Phys. Sin.* **61** 043205 (in Chinese) [车俊岭, 张好, 冯志刚, 张临杰, 赵建明, 贾锁堂 2012 物理学报 **61** 043205]

# Van der Waals interaction between high excited states\*

Zhao Jian-Dong<sup>†</sup> Xin Jie

(College of Information and Communication Engineering, North University of China, Taiyuan 030051, China)

( Received 15 October 2013; revised manuscript received 20 March 2014 )

## Abstract

The highly excited atoms have a strong Van der Waals interaction compared with the ground-state atoms, which can block the excitation of neighboring atoms and forming the blockade effect. In this work, the interaction between highly excited atoms is calculated using the perturbation theory, the interaction of  $nS$  and  $nD$  pair states and the dispersion coefficients are obtained. This shows that the interactions of the  $SS$  for both Rb and Cs atoms are repulsive, whereas the interaction of  $DD$  states with the angular momentum  $L = 0$  is repulsive for Cs and attractive for Rb.

**Keywords:** highly excited atoms, Van der Waals interaction, perturbation

**PACS:** 32.80.Ee, 34.90.+q

**DOI:** [10.7498/aps.63.133201](https://doi.org/10.7498/aps.63.133201)

---

\* Project supported by the fund for Key Laboratory of North University of China 2012.

<sup>†</sup> Corresponding author. E-mail: [zhaojiandong@nuc.edu.cn](mailto:zhaojiandong@nuc.edu.cn)