

铥原子收敛于 $4f^{13}(^2F_{7/2}^{\circ})6s(7/2, 1/2)_4^{\circ}$ 和 $4f^{13}(^2F_{7/2}^{\circ})6s(7/2, 1/2)_3^{\circ}$ 偶宇称里德伯系列能级的电子关联效应

张典承 张颖 李晓康 贾凤东 李若虹 钟志萍

Electron correlation effects in even Rydberg series converging to $4f^{13}(^2F_{7/2}^{\circ})6s(7/2, 1/2)_4^{\circ}$ and $4f^{13}(^2F_{7/2}^{\circ})6s(7/2, 1/2)_3^{\circ}$ of thulium atom

Zhang Dian-Cheng Zhang Ying Li Xiao-Kang Jia Feng-Dong R. Li Zhong Zhi-Ping

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 67, 183102 (2018) DOI: 10.7498/aps.67.20180797

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.67.20180797>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2018/V67/I18>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

[\$^{199}\text{Hg}^+\$ 光频标的黑体辐射频移](#)

Blackbody-radiation shift in a $^{199}\text{Hg}^+$ ion optical frequency standard

物理学报.2012, 61(10): 103101 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.61.103101>

[镁原子碰撞激发微分截面和 Stokes 参数的理论研究](#)

A theoretical study on electron impact excitation differential cross sections and Stokes parameters of Mg atom

物理学报.2012, 61(10): 103102 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.61.103102>

[相对论效应对类锂离子能级结构及辐射跃迁性质的影响](#)

The effect of relativity on the structures and transition properties of Li-like ions

物理学报.2012, 61(9): 093106 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.61.093106>

铥原子收敛于 $4f^{13}(^2F_{7/2}^{\circ})6s(7/2, 1/2)_4^{\circ}$ 和 $4f^{13}(^2F_{7/2}^{\circ})6s(7/2, 1/2)_3^{\circ}$ 偶宇称里德伯系列能级的电子关联效应*

张典承¹⁾ 张颖¹⁾ 李晓康¹⁾ 贾凤东¹⁾ 李若虹²⁾ 钟志萍^{1)3)†}

1) (中国科学院大学物理科学学院, 北京 100049)

2) (卑诗大学核子研究所, 温哥华, 不列颠哥伦比亚省, 加拿大 V6T 2A3)

3) (中国科学院“拓扑量子计算”卓越中心, 北京 100049)

(2018年4月24日收到; 2018年6月18日收到修改稿)

本文在多通道量子亏损理论框架下, 利用相对论多通道理论, 计算了铥原子收敛于 $4f^{13}(^2F_{7/2}^{\circ})6s(7/2, 1/2)_4^{\circ}$ 和 $4f^{13}(^2F_{7/2}^{\circ})6s(7/2, 1/2)_3^{\circ}$ 的三个偶宇称里德伯系列. 通过将计算结果与美国国家标准与技术研究院数据进行比较, 展示了两种类型的电子关联效应: 1) 里德伯系列之间的相互作用, 导致里德伯系列的能级出现整体偏移; 2) 一个孤立的干扰态镶嵌在一个里德伯系列中, 破坏了该里德伯系列能级的规则性.

关键词: 相对论多通道理论, 多通道量子亏损理论, 里德伯系列

PACS: 31.15.vj, 31.15.am, 32.80.Ee

DOI: 10.7498/aps.67.20180797

1 引言

清楚地阐明电子-电子关联作用对原子分子的结构及其动力学过程的影响, 是原子分子物理长期以来持续不断的热点课题之一. 组态相互作用计算是公认的研究电子间关联效应的重要方法. 里德伯原子具有高主量子数、长寿命、大极化率等特点, 是研究电子关联效应的理想体系. 一般而言, 一个里德伯系列具有如下规则: 量子数亏损近乎为常数, 谱峰的强度随着主量子数 n 的增加急剧下降, 下降规律是正比于 $1/n^4$ 等. 而组态相互作用对里德伯能级的影响体现在破坏了里德伯能级的规则性, 改变了强度分布、线形等. 组态相互作用可能是两个或多个里德伯系列之间的相互作用、一个孤立态插入或者叠加在一个里德伯系列、或者连续态与里德

伯系列的相互作用等.

组态相互作用引起的相干激发通道间的干涉, 可以通过谱学形象地呈现, 不仅深化人们对于电子间关联效应的理解, 也为调控量子干涉奠定基础. 电子-电子关联作用导致量子干涉效应的典型例子是 Fano 共振: 当孤立的激发态和连续态耦合在一起时就会出现不对称的 Fano 线形^[1], 其不对称性由 Fano 参量 q 因子描述. 根据 Fano 理论, 人们提出可以用外加激光场实现量子干涉要求的能级结构, 由此观测到量子干涉效应的新现象: 电磁感应透明、无反转激光和相干粒子数俘获等^[2,3]. 近年来随着阿秒激光技术的发展, 人们开展吸收过程控制的研究, 将洛伦兹线形转换为 Fano 线形或相反过程^[4]. 基于 Fano 理论^[1], 连续和分立量子态之间强耦合引起的相位存在映射关系, 意味着任何改变体系演化的现象将导致 q 因子的变化. Fano 线形在

* 国家重点研发计划 (批准号: 2017YFA0402300, 2017YFA0304900)、国家自然科学基金 (批准号: 11604334) 和中国科学院先导项目 (批准号: XDPB08-3) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: zpzhang@ucas.ac.cn

核物理、原子物理、固态物理以及化学的分子光谱等多学科有重要应用, 2017年《Nature Photonics》发表了有关综述文章^[5].

基于此, 选择具有复杂电子间相互作用的原子将最可能给出由于量子干涉引起的奇异谱线现象. 近年来恒星光谱, 特别是在化学奇特的恒星光谱中观测到大量镧系元素谱线, 亟需镧系元素的谱数据, 但是对大多数镧系元素而言, 复杂电子组态使得光谱分析非常艰难. 一般镧系元素f亚壳层未填满, 导致多个价电子具有接近的电离阈值, 因此阈值附近有密集的收敛于不同电离阈值的里德伯系列, 是展示里德伯系列之间的相互作用、孤立态与里德伯系列作用、束缚态与连续态的耦合等电子关联效应的理想体系. 最近, 本课题组研究了具有三个价电子的铀原子^[6]、铯原子^[7]和镧系元素镱原子^[8]的里德伯/自电离里德伯能级, 计算结果能很好地解释实验光谱, 展示了丰富的组态相互作用效应. 但是铀原子、铯原子和镱原子的f亚壳层均填满, 相比之下, 镧系元素铕原子基态是 $4f^{13}(^2F^{\circ})6s$, 4f亚壳层未填满, 使得计算的难度增加, 对这类元素里德伯能级的理论研究, 不仅可以检验相对论多通道理论(RMCT)的计算精度, 还将展示更加丰富的组态相互作用.

本文在多通道量子亏损理论(MQDT)^[9-15]框架下, 利用RMCT^[16-22], 计算了铕原子收敛于 $4f^{13}(^2F^{\circ}_{7/2})6s(7/2, 1/2)_4^{\circ}$ 和 $4f^{13}(^2F^{\circ}_{7/2})6s(7/2, 1/2)_3^{\circ}$ 三个偶宇称里德伯系列. 通过比较计算结果与美国国家标准与技术研究院数据^[23,24], 展示了两种类型的电子关联效应: 1) 里德伯系列之间的相互作用; 2) 镶嵌在一个里德伯系列中的一个孤立干扰态对该里德伯系列能级的影响.

2 理论方法

本文在MQDT框架下, 利用RMCT计算铕原子和钙离子的里德伯能级. 许多文献已对MQDT和RMCT理论进行了详细描述和讨论, 这里仅作扼要介绍. 在MQDT框架下, 组态间的相互作用被描述为不同通道之间的相互作用. 通道由一系列里德伯态及相应的连续态组成, 这些态具有特定的总角动量、宇称以及角动量耦合方式, 但有不同的能量. 也就是说, 某一通道中的一系列态, 其原子实处于特定状态, 激发电子角动量以及它与原子实角动量的耦合方式一定, 而激发电子轨道能量

不同. 本征通道的物理图像可以理解为: 在第 α 个本征通道中, 由于作用域内较强的相互作用, 使得在作用域外所有分解通道的电子径向波函数成为具有共同相移 $\pi\mu_{\alpha}$ 的库仑驻波, 在各个分解通道中的库仑驻波则以特定的权重 $U_{i\alpha}$ 线性叠加在一起(下角标*i*表示各分解通道). 因此所有的本征通道能够有效地描述在作用域内复合体的动力学特性, 并可用下列物理参数定量地描述: 短程散射矩阵的本征值(即本征量子数亏损 $\pi\mu_{\alpha}$)和其本征矢量 $U_{i\alpha}$ (所有本征矢量组成正交的转换矩阵). 这些物理参数, 即MQDT参数, 在阈值附近随能量是光滑变化的. 因此对某一本征通道, 只要获得有限能量点的MQDT参数, 就可以得到整个通道无限个里德伯态和与之相应的连续态的物理特性, 从而大大节省了计算量.

而在MQDT基础上进一步发展的RMCT, 不仅考虑了有限束缚类组态的相互作用, 而且考虑了无限多的里德伯态和相应的连续态的相互作用. 由此可以计算有限能量点的MQDT参数, 从而在MQDT框架下得到某一通道的无限里德伯态的能级. 根据量子电动力学(QED), 在库仑规范下, 忽略Breit相互作用和其他高阶QED^[25-27]修正, 原子中电子所满足的狄拉克方程如下:

$$H = H_0 + V, \quad (1)$$

其中,

$$H_0 = \sum_i (c\alpha_i \cdot \mathbf{p}_i + \beta mc^2 + V_{\text{SCF}}(r_i))$$

为相对论性自洽场原子哈密顿量;

$$V = \sum_i \left(-\frac{Ze^2}{4\pi\epsilon_0 r_i} - V_{\text{SCF}}(r_i) \right) + \sum_{i>j} \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 r_{ij}}$$

为残余相互作用.

根据Dirac-Slater自洽场方法(局域交换近似)得到原子的相对论性自洽势 V_{SCF} , 在此基础上可求出所有束缚和连续的单电子波函数 ϕ_a (*a*对于束缚和连续波函数分别代表量子数 $n\kappa$ 和 $\delta\kappa$). 这组单电子正交完备基函数在一定的电子排布下, 经过反对称化以及适当的角动量耦合, 就可构造出组态波函数 Φ_n 及 $\Phi_{j\delta}$, 形成*N*电子体系的正交完备基函数.

某一能量本征态波函数 $\Psi(E, i)$ 可表示成

$$\Psi(E, i) = \sum_n A_n(E, i)\Phi_n + \sum_j \int_{\epsilon_c} B_{j\epsilon}(E, i)\Phi_{j\epsilon} d\epsilon, \quad (2)$$

下标 j 表示各电离通道. 能量下限 ϵ_c 是该通道的里德伯态与作为通道处理的连续化高里德伯态的分界能量. 通过解 Lippmann-Schwinger 积分方程, 并利用对角化能壳 K 矩阵的方法, 直接得到 RMCT 的物理参数 μ_α 、转换矩阵 $U_{i\alpha}$ [16-22], 从它们出发, 就可对高里德伯态、自电离态及连续态作统一处理, 从而计算电子的能级结构. 通道原则上是无限多的, 而实际计算中只能考虑有限个通道.

对于自电离谱峰的标识, 根据本征通道规律, 只需要计算阈值上下几个能量点的 MQDT 参数, 就可以通过内插或外推的方法, 得到阈值附近任一能量点的 MQDT 参数, 从而可以计算里德伯态或自电离里德伯态的能级位置. 对于一个实验谱中自电离共振峰的标识, 本课题组完善了一套标识自电离谱峰的方法 [6-8]. 具体做法是: 一般地, 如果感兴趣的自电离谱所跨能区比较小, 可以认为偶极跃迁矩阵元 D_α 是常数, 因此可以令 $D_\alpha = 1$, 计算出一个特定的本征通道谱. 在通常情况下, 如果组态相互作用不是很强, 那么就只有一个本征通道起主要作用, 通过对比实验谱和计算得到的本征通道谱, 可以确定自电离峰的标识, 具体说, 如果实验谱峰和计算的本征通道谱峰的位置比较接近, 就可以把实验谱峰标识为属于这个本征通道. 但显然本征通道谱不能准确地反映某个自电离峰的峰形, 尤其对于那些被强烈干扰的共振态. 但是通常情况下, 这样的标识方法可以满足标识自电离谱峰的要求. 实际上, 这样的理论方法已经成功应用于计算拥有 3 个价电子的铥原子 [6]、镱原子 [7] 和镧系元素镱原子 [8] 的里德伯/自电离里德伯能级, 计算结果与实验结果符合得很好.

3 结果与讨论

根据美国国家标准与技术研究院提供的铥原子数据 [23,24], 在铥原子第一电离阈值附近有 3 个里德伯系列, 分别是收敛于第一电离阈 $4f^{13}(^2F_{7/2}^\circ)6s(7/2, 1/2)_4$ 的 $4f^{13}(^2F_{7/2}^\circ)6s(7/2, 1/2)_4np_{3/2}$ 和收敛于第二电离阈 $4f^{13}(^2F_{7/2}^\circ)6s(7/2, 1/2)_3$ 的 $4f^{13}(^2F_{7/2}^\circ)6s(7/2, 1/2)_3np_{3/2}$ 和 $4f^{13}(^2F_{7/2}^\circ)6s(7/2,$

$1/2)_3np_{1/2}$. 但美国国家标准与技术研究院不能确定相应的电子总角动量 J . 本文计算的通道具有的电子总角动量 $J = 5/2, 7/2$ 和 $9/2$, 宇称为偶, 标识为 $J^\pi = (5/2)^+, (7/2)^+, (9/2)^+$. 由于收敛于铥原子的一个 $4f$ 电子电离的通道太多, 目前计算只考虑了收敛于铥原子的一个 $6s$ 电子电离的通道, 即收敛于铥原子最低四个电离阈值的 $J^\pi = (5/2)^+, (7/2)^+, (9/2)^+$ 的通道.

首先讨论收敛于第一电离阈的里德伯系列 $4f^{13}(^2F_{7/2}^\circ)6s(7/2, 1/2)_4np_{3/2}$. 图 1 给出了根据美国国家标准与技术研究院 [23,24] 提供的实验数据得到的该里德伯系列的量子数亏损随激发能量的变化以及本文理论计算的量子数亏损与美国国家标准与技术研究院的实验数据量子数亏损之差. 显然, 实验数据显示该里德伯系列在激发能量约 49780 cm^{-1} 处有跳变, 但量子数亏损变化不到 1, 约 0.35, 这说明在这个跳变点附近没有镶嵌一个孤立的干扰态, 应该是里德伯系列之间的相互作用引起的量子数亏损变化. 从图 1 的理论与实验结果的比较可以看出, 除了激发能量 49780 cm^{-1} , 计算的 $J = 5/2, 7/2$ 和 $9/2$ 的里德伯系列能级均很接近, 基于实验和理论精度, 不足以确定实验能级的总角动量, 理论和实验的量子数亏损差异一般小于 0.3.

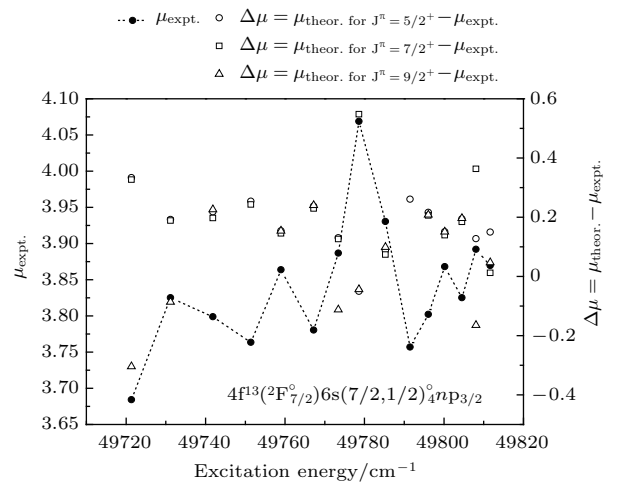


图 1 $4f^{13}(^2F_{7/2}^\circ)6s(7/2, 1/2)_4np_{3/2}$ 里德伯系列的量子数亏损随激发能量的变化以及理论计算和实验差异 (实验数据及标识来自美国国家标准与技术研究院 [23,24]. 激发能量以铥原子基态为零点, 本文所有图均采用此规定)

Fig. 1. Comparison of the present calculated quantum defects with the experimental data for $4f^{13}(^2F_{7/2}^\circ)6s(7/2, 1/2)_4np_{3/2}$ Rydberg series as the function of excitation energy. Experimental data and assignments are taken from Ref. [23, 24]. The zero-point energy represents the ground state of Tm, and all figures in this paper use this rule.

在激发能量 49780 cm⁻¹ 附近, $J = 7/2$ 的理论和实验的量子数亏损差异最大, 约 0.6.

如图 1 所示, 实验数据显示该里德伯系列明显受到扰动, 扰动应该来自邻近的密集里德伯能级作用, 扰动会改变相应能级的组态叠加系数, 甚至最大叠加系数对应的通道发生变化, 也即改变了谱峰的标识. 在光谱上的体现是破坏了能级的规则性, 使相应能级移动, 也可能影响强度、峰形等. 本文的计算如第二部分理论方法所言, 包含了收敛于最低四个电离阈值的里德伯系列之间的相互作用. 由于这四个电离阈值能级接近, 因此这些里德伯系列在这段能区密集分布, 相互作用比较明显. 图 2 给出了计算的其他里德伯系列能级, 选择了与美国国家标准与技术研究院 [23,24] 提供的 $4f^{13}(^2F_{7/2}^{\circ})6s(7/2, 1/2)_4^{\circ}np_{3/2}$ 里德伯系列实验数据差异最小的理论通道, 即

$$\begin{aligned} 4f^{13}(^2F_{7/2}^{\circ})6s(7/2, 1/2)_4^{\circ}nf_{5/2}, \quad J^{\pi} &= (5/2)^+, \\ 4f^{13}(^2F_{7/2}^{\circ})6s(7/2, 1/2)_4^{\circ}nf_{5/2}, \quad J^{\pi} &= (7/2)^+, \\ 4f^{13}(^2F_{7/2}^{\circ})6s(7/2, 1/2)_4^{\circ}np_{5/2}, \quad J^{\pi} &= (9/2)^+. \end{aligned}$$

从图 2 可以看出, 除了实验量子数亏损跳变点 49780 cm⁻¹ 附近, 理论与实验量子数亏损之差一般小于 0.1, 明显好于理论计算的 $4f^{13}(^2F_{7/2}^{\circ})6s(7/2, 1/2)_4^{\circ}np_{3/2}$ 里德伯系列. 在实验量子数亏损跳变点 49780 cm⁻¹ 附近, 和实验数据最接近的能级标识发生了变化, 对 $J = 5/2, 7/2, 9/2$, 分别是:

$$\begin{aligned} 4f^{13}(^2F_{7/2}^{\circ})6s(7/2, 1/2)_4^{\circ}37p_{3/2}, \quad J^{\pi} &= (5/2)^+, \\ 4f^{13}(^2F_{7/2}^{\circ})6s(7/2, 1/2)_4^{\circ}37p_{1/2}, \quad J^{\pi} &= (7/2)^+, \\ 4f^{13}(^2F_{7/2}^{\circ})6s(7/2, 1/2)_4^{\circ}37p_{3/2}, \quad J^{\pi} &= (9/2)^+, \end{aligned}$$

理论与实验的量子数亏损之差小于 0.05. 说明在研究的这段能区, 里德伯系列之间的相互作用具体体现在: 对角动量 $J=5/2$, 以 $4f^{13}(^2F_{7/2}^{\circ})6s(7/2, 1/2)_4^{\circ}nf_{5/2}$ 与 $4f^{13}(^2F_{7/2}^{\circ})6s(7/2, 1/2)_4^{\circ}np_{3/2}$ 相互作用为主; 对角动量 $J=7/2$, 以 $4f^{13}(^2F_{7/2}^{\circ})6s(7/2, 1/2)_4^{\circ}nf_{5/2}$ 与 $4f^{13}(^2F_{7/2}^{\circ})6s(7/2, 1/2)_4^{\circ}np_{1/2}$ 相互作用为主; 对角动量 $J=9/2$, 以 $4f^{13}(^2F_{7/2}^{\circ})6s(7/2, 1/2)_4^{\circ}np_{1/2}$ 与 $4f^{13}(^2F_{7/2}^{\circ})6s(7/2, 1/2)_4^{\circ}np_{3/2}$ 相互作用为主.

现在讨论收敛于第二电离阈的里德伯系列 $4f^{13}(^2F_{7/2}^{\circ})6s(7/2, 1/2)_3^{\circ}np_{3/2}$ (如图 3 所示). 和收敛于第一电离阈的里德伯系列 $4f^{13}(^2F_{7/2}^{\circ})6s(7/2, 1/2)_4^{\circ}np_{3/2}$ 类似, 实验数据显示该里德伯系列在激发能量约 50000 cm⁻¹ 处有跳变, 量子数

亏损变化约 0.1. 理论给出的谱峰标识与美国国家标准与技术研究院的实验标识 [23,24] 不同, 对 $J = 5/2, 7/2, 9/2$, 分别是:

$$\begin{aligned} 4f^{13}(^2F_{7/2}^{\circ})6s(7/2, 1/2)_3^{\circ}nf_{7/2}, \quad J^{\pi} &= (5/2)^+, \\ 4f^{13}(^2F_{7/2}^{\circ})6s(7/2, 1/2)_3^{\circ}nf_{7/2}, \quad J^{\pi} &= (7/2)^+, \\ 4f^{13}(^2F_{7/2}^{\circ})6s(7/2, 1/2)_3^{\circ}nf_{5/2,7/2}, \quad J^{\pi} &= (9/2)^+. \end{aligned}$$

图 4 是以 $J = 7/2$ 为例 (对于 $J = 7/2, 9/2$, 情况类似), 给出了理论计算两个里德伯系列 $4f^{13}(^2F_{7/2}^{\circ})6s(7/2, 1/2)_3^{\circ}np_{3/2}$ 和 $4f^{13}(^2F_{7/2}^{\circ})6s(7/2, 1/2)_3^{\circ}nf_{7/2}$ 能级与美国国家标准与技术研究院提供的 $4f^{13}(^2F_{7/2}^{\circ})6s(7/2, 1/2)_3^{\circ}np_{3/2}$ [23,24] 实验数据比较, 可以看出, 理论与实验的量子数亏损差异一般小于 0.05, 差异大的点, 如 50051 cm⁻¹ 附近, 能级标识有变化, 对 $J = 5/2, 7/2, 9/2$, 分别是:

$$\begin{aligned} 4f^{13}(^2F_{7/2}^{\circ})6s(7/2, 1/2)_3^{\circ}33p_{3/2}, \quad J^{\pi} &= (5/2)^+, \\ 4f^{13}(^2F_{7/2}^{\circ})6s(7/2, 1/2)_3^{\circ}33p_{3/2}, \quad J^{\pi} &= (7/2)^+, \\ 4f^{13}(^2F_{7/2}^{\circ})6s(7/2, 1/2)_3^{\circ}33p_{3/2}, \quad J^{\pi} &= (9/2)^+. \end{aligned}$$

说明在研究的这段能区, 里德伯系列之间的相互作用具体体现在: 对角动量 $J = 5/2$, 以 $4f^{13}(^2F_{7/2}^{\circ})6s(7/2, 1/2)_3^{\circ}nf_{7/2}$ 与 $4f^{13}(^2F_{7/2}^{\circ})6s(7/2, 1/2)_3^{\circ}np_{3/2}$ 相互作用为主; 对角动量 $J=7/2$, 以 $4f^{13}(^2F_{7/2}^{\circ})6s(7/2, 1/2)_3^{\circ}nf_{7/2}$ 与 $4f^{13}(^2F_{7/2}^{\circ})6s(7/2, 1/2)_3^{\circ}np_{3/2}$ 相互作用为主; 对角动量 $J = 9/2$, 以 $4f^{13}(^2F_{7/2}^{\circ})6s(7/2, 1/2)_3^{\circ}nf_{5/2,7/2}$ 与 $4f^{13}(^2F_{7/2}^{\circ})6s(7/2, 1/2)_3^{\circ}np_{3/2}$ 相互作用为主.

- $\mu_{\text{expt.}}(4f^{13}(^2F_{7/2}^{\circ})6s(7/2, 1/2)_4^{\circ}np_{3/2}$ from NIST)
- $\Delta\mu = \mu_{\text{theor.}}(4f^{13}(^2F_{7/2}^{\circ})6s(7/2, 1/2)_4^{\circ}nf_{5/2}, J^{\pi} = 5/2^+) - \mu_{\text{expt.}}$
- $\Delta\mu = \mu_{\text{theor.}}(4f^{13}(^2F_{7/2}^{\circ})6s(7/2, 1/2)_4^{\circ}nf_{5/2}, J^{\pi} = 7/2^+) - \mu_{\text{expt.}}$
- △ $\Delta\mu = \mu_{\text{theor.}}(4f^{13}(^2F_{7/2}^{\circ})6s(7/2, 1/2)_4^{\circ}np_{1/2}, J^{\pi} = 9/2^+) - \mu_{\text{expt.}}$

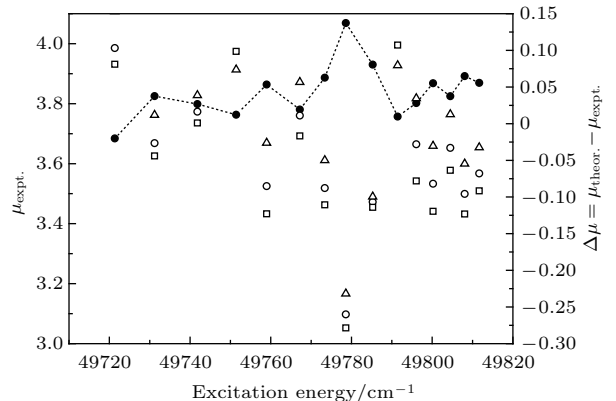


图 2 理论对美国国家标准与技术研究院 [23,24] $4f^{13}(^2F_{7/2}^{\circ})6s(7/2, 1/2)_4^{\circ}np_{3/2}$ 里德伯系列实验数据的重新标识
Fig. 2. The reassignment for experimental data [23,24] for $4f^{13}(^2F_{7/2}^{\circ})6s(7/2, 1/2)_4^{\circ}np_{3/2}$ Rydberg series based on the present calculations.

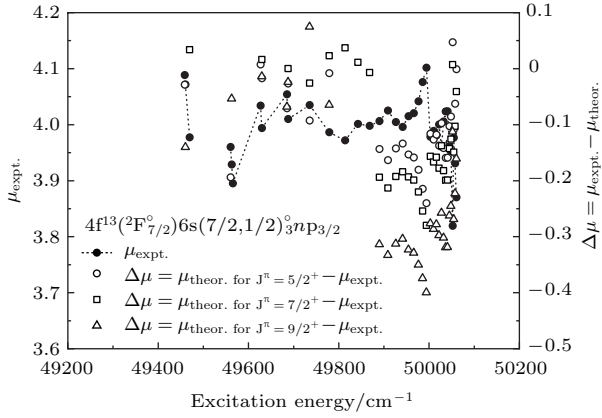


图3 $4f^{13}(^2F_{7/2}^{\circ})6s(7/2,1/2)_{3np_{3/2}}$ 里德伯系列的量子数亏损随激发能量的变化以及理论计算和实验差异 (实验数据及标识来自美国国家标准与技术研究院 [23,24])
 Fig. 3. Comparison of the present calculated quantum defects with the experimental data for $4f^{13}(^2F_{7/2}^{\circ})6s(7/2,1/2)_{3np_{3/2}}$ Rydberg series as the function of excitation energy. Experimental data and assignments are taken from Ref. [23, 24].

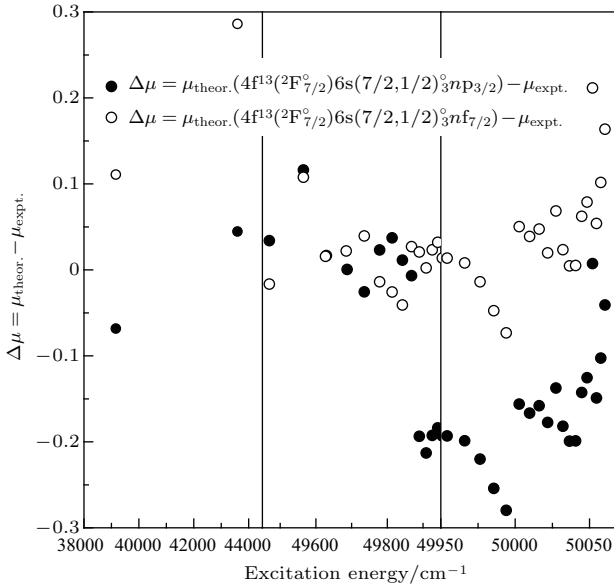


图4 理论计算的 $4f^{13}(^2F_{7/2}^{\circ})6s(7/2,1/2)_{3np_{3/2}}$, $J^{\pi} = (7/2)^+$ 和 $4f^{13}(^2F_{7/2}^{\circ})6s(7/2,1/2)_{3nf_{7/2}}$, $J^{\pi} = (7/2)^+$ 能级与美国国家标准与技术研究院提供的 $4f^{13}(^2F_{7/2}^{\circ})6s(7/2,1/2)_{3np_{3/2}}$ [23,24] 实验数据比较

Fig. 4. Comparison of the present calculated quantum defects for $4f^{13}(^2F_{7/2}^{\circ})6s(7/2,1/2)_{3nf_{7/2}}$, $J^{\pi} = (7/2)^+$ and $4f^{13}(^2F_{7/2}^{\circ})6s(7/2,1/2)_{3np_{3/2}}$, $J^{\pi} = (7/2)^+$ Rydberg series with the experimental data for $4f^{13}(^2F_{7/2}^{\circ})6s(7/2,1/2)_{3np_{3/2}}$ Rydberg series as the function of excitation energy. Experimental data and assignments are taken from Ref. [23, 24].

美国国家标准与技术研究院提供的铯原子实验数据 [23,24] 还报道了收敛于第二电离阈的里德伯系列 $4f^{13}(^2F_{7/2}^{\circ})6s(7/2,1/2)_{3np_{1/2}}$, 但是无法确认总角动量. 与前面讨论的两个里德伯系列不同,

该系列的实验量子数亏损在 49900 cm^{-1} 附近跳变为 1, 如图 5 所示. 说明在这个能量点附近有一个孤立束缚态与该里德伯系列强烈相互作用. 导致理论与实验的量子数亏损之差高达 0.6, 远大于前面讨论的两个系列. 表明这个干扰态属于收敛于更高电离阈值的里德伯能级. 根据美国国家标准与

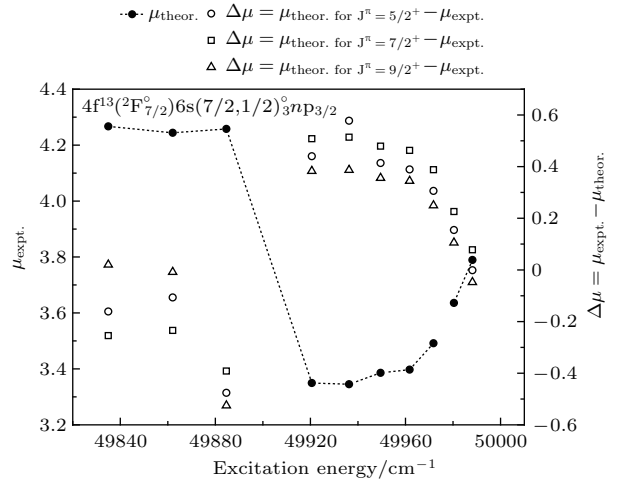


图5 $4f^{13}(^2F_{7/2}^{\circ})6s(7/2,1/2)_{3np_{1/2}}$ 里德伯系列的量子数亏损随激发能量的变化以及理论计算与实验差异 (实验数据及标识来自美国国家标准与技术研究院 [23,24])
 Fig. 5. Comparison of the present calculated quantum defects with the experimental data for $4f^{13}(^2F_{7/2}^{\circ})6s(7/2,1/2)_{3np_{1/2}}$ Rydberg series as the function of excitation energy. Experimental data and assignments are taken from Ref. [23, 24].

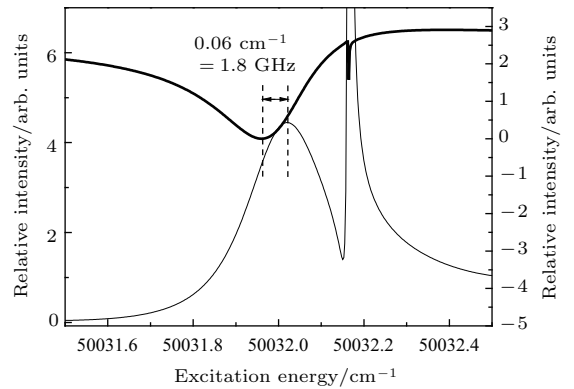


图6 组态相互作用引起的能级移动, 图中细实线是计算的铯原子本征通道 $4f^{13}(^2F_{7/2}^{\circ})6s(7/2,1/2)_{3nf_{5/2}}$, $J^{\pi} = (7/2)^+$, 粗实线是计算的铯原子收敛于最低四个电离阈值所有本征通道等权 (即具有偶极跃迁矩阵元 D_{α}) 叠加得到的谱
 Fig. 6. Energy shift due to configuration interactions. The thin line represents the present calculated eigenchannel spectrum for channel $4f^{13}(^2F_{7/2}^{\circ})6s(7/2,1/2)_{3nf_{5/2}}$, $J^{\pi} = (7/2)^+$. The thick line represents the present calculated spectrum from the superposition of all eigenchannels in $J^{\pi} = (7/2)^+$ symmetry converging to the first, second, third and fourth ionization thresholds with equal dipole matrix D_{α} .

技术研究院提供的铯原子实验数据^[23,24], 可以判断这个干扰态的标识是 $4f^{13}(^3F_4)6d_{5/2}6s^2, J = 7/2$. 分析如下: 根据美国国家标准与技术研究院^[23,24]报道的铯原子 $4f^{13}(^3F_4)6d_{5/2}6s^2, J = 7/2$ 能级位置是 $23873.207 \text{ cm}^{-1}$, 相应的有效量子数是1.56, 而能级位于 49900 cm^{-1} , 对应电离阈 $4f^{13}(^3F_4)6s^2$ (阈值是 67854.1 cm^{-1})的有效量子数是2.47. 因此能级 $23873.207 \text{ cm}^{-1}$ 和 49900 cm^{-1} 的量子数亏损近乎相同, 认定它们归属收敛于电离阈 $4f^{13}(^3F_4)6s^2$ 同一里德伯系列是合理的. 只有角动量相同才能有相互作用, 所以借助干扰态分析, 可以进一步确定 $4f^{13}(^2F_{7/2}^{\circ})6s(7/2, 1/2)_{3}np_{1/2}$ 系列的总角动量为 $J = 7/2$. 由于理论计算没有包含该干扰态的作用, 理论和实验误差大是可以预期的. 在图6中, 定量讨论了组态相互作用导致的能级偏移, 可以看到组态相互作用可以引起大约GHz左右的能级移动.

4 结 论

本文在复杂的多个价电子原子中展示了丰富的电子关联效应, 在MQDT框架下, 利用RMCT, 计算了铯原子收敛于 $4f^{13}(^2F_{7/2}^{\circ})6s(7/2, 1/2)_4$ 和 $4f^{13}(^2F_{7/2}^{\circ})6s(7/2, 1/2)_3$ 的三个偶宇称里德伯系列. 通过将计算结果与美国国家标准与技术研究院数据进行比较, 展示了两种类型的电子关联效应: 1) 里德伯系列之间的相互作用, 导致里德伯系列的能级出现偏移, 具体表现为里德伯系列的量子数亏损有一个整体的偏移; 2) 镶嵌在一个里德伯系列中的一个孤立的干扰态, 破坏了该里德伯系列能级的规则性, 具体表现为与干扰态能级位置相近的里德伯能级的量子数亏损出现大的跳变.

感谢北京计算科学研究中心高翔副研究员在本文工作中给予的讨论和帮助.

参考文献

[1] Fano U 1961 *Phys. Rev.* **124** 1866

- [2] Bolle K J, Imamoglu A, Harris S E 1991 *Phys. Rev. Lett.* **66** 2593
- [3] Fleischhauer M, Imamoglu A, Marangos J P 2005 *Rev. Mod. Phys.* **77** 633
- [4] Ott C, Kaldun A, Raith P, Meyer K, Laux M, Evers J, Keitel C H, Greene C H, Pfeifer T 2013 *Science* **340** 716
- [5] Limonov M F, Rybin M V, Poddubny A N, Kivshar Y S 2017 *Nat. Photon.* **11** 543
- [6] Jia F D, Zhong Z P, Sun W, Xue P, Xu X Y 2009 *Phys. Rev. A* **79** 032505
- [7] Lü S F, Li R, Jia F D, Li X K, Lassen J, Zhong Z P 2017 *Chin. Phys. Lett.* **34** 073101
- [8] Li R, Lassen J, Zhong Z P, Jia F D, Mostamand M, Li X K, Reich B B, Teigelhöfer A, Yan H 2017 *Phys. Rev. A* **95** 052501
- [9] Lee C M, Lu K T 1973 *Phys. Rev. A* **8** 1241
- [10] Fano U 1970 *Phys. Rev. A* **2** 353
- [11] Seaton M J 1983 *Rep. Prog. Phys.* **46** 167
- [12] Greene C, Fano U, Strinati G 1979 *Phys. Rev. A* **19** 1485
- [13] Lee C M, Johnson W R 1980 *Phys. Scr. A* **21** 409
- [14] Li J M 1983 *Acta Phys. Sin.* **32** 84 (in Chinese) [李家明 1983 物理学报 **32** 84]
- [15] Li J M 1980 *Acta Phys. Sin.* **29** 419 (in Chinese) [李家明 1980 物理学报 **29** 419]
- [16] Yan J, Zhang P H, Tong X M, Li J M 1996 *Acta Phys. Sin.* **45** 1978 (in Chinese) [颜君, 张培鸿, 仝晓民, 李家明 1996 物理学报 **45** 1978]
- [17] Xia D, Li J M 2001 *Chin. Phys. Lett.* **18** 1334
- [18] Zou Y, Tong X M, Li J M 1995 *Acta Phys. Sin.* **44** 50 (in Chinese) [邹宇, 仝晓民, 李家明 1995 物理学报 **44** 50]
- [19] Huang W, Zou Y, Tong X M, Li J M 1995 *Phys. Rev. A* **52** 2770
- [20] Li J M, Wu Y J, Pratt R H 1989 *Phys. Rev. A* **40** 3036
- [21] Xia D, Zhang S Z, Peng Y L, Li J M 2003 *Chin. Phys. Lett.* **20** 56
- [22] Lee C M 1974 *Phys. Rev. A* **10** 584
- [23] NIST Atomic Spectra Database (Ver. 5.5.6), Kramida A, Ralchenko Y, Reader J, NIST ASD Team <https://physics.nist.gov/asd> [2018-9-9]
- [24] Martin W C, Zalubas R, Hagan L 1978 *Nat. Stand. Ref. Data Ser.* **60** 422
- [25] Sossah A M, Zhou H L, Manson S T 2008 *Phys. Rev. A* **78** 053405
- [26] Shi Y L, Dong C Z 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 2350 (in Chinese) [师应龙, 董晨钟 2009 物理学报 **58** 2350]
- [27] Libermann D A, Comer D T, Waber J T 1971 *Comput. Phys. Commun.* **2** 107

Electron correlation effects in even Rydberg series converging to $4f^{13}(^2F_{7/2}^{\circ})6s(7/2, 1/2)_4^{\circ}$ and $4f^{13}(^2F_{7/2}^{\circ})6s(7/2, 1/2)_3^{\circ}$ of thulium atom*

Zhang Dian-Cheng¹⁾ Zhang Ying¹⁾ Li Xiao-Kang¹⁾ Jia Feng-Dong¹⁾
R. Li²⁾ Zhong Zhi-Ping^{1)3)†}

1) (Collage of Physical Sciences, University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

2) (TRIUMF, University of British Columbia, Vancouver, British Columbia, Canada V6T 2A3)

3) (Center of Excellence in Topological Quantum Computation, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

(Received 24 April 2018; revised manuscript received 18 June 2018)

Abstract

In the frame work of multi-channel quantum defect theory (MQDT), the energy levels of three even Rydberg series $4f^{13}(^2F_{7/2}^{\circ})6s(7/2, 1/2)_4^{\circ}np_{3/2}$, $4f^{13}(^2F_{7/2}^{\circ})6s(7/2, 1/2)_3^{\circ}np_{3/2}$ and $4f^{13}(^2F_{7/2}^{\circ})6s(7/2, 1/2)_3^{\circ}np_{1/2}$ converging to $4f^{13}(^2F_{7/2}^{\circ})6s(7/2, 1/2)_4^{\circ}$ or $4f^{13}(^2F_{7/2}^{\circ})6s(7/2, 1/2)_3^{\circ}$ of thulium atom are calculated by relativistic multi-channel theory. Compared with the experimental data from National Institute of Standards and Technology (NIST), the theoretical result shows two different types of electron-correlation effects: 1) the interaction between two Rydberg series results in energy shifts for these Rydberg series; 2) an isolated perturbed state is embedded in the energy range of a Rydberg series and interacts with the whole series, and breaks the regularity of the Rydberg series, and quantum defects show a large jump around the perturbed state. More specifically, by comparing the present calculated quantum defects with the experimental data, we reassign two Rydberg series: 1) $4f^{13}(^2F_{7/2}^{\circ})6s(7/2, 1/2)_4^{\circ}np_{3/2}$ Rydberg series from NIST is reassigned as $4f^{13}(^2F_{7/2}^{\circ})6s(7/2, 1/2)_4^{\circ}nf_{5/2}$, $J^{\pi} = (5/2)^+$, $4f^{13}(^2F_{7/2}^{\circ})6s(7/2, 1/2)_4^{\circ}nf_{5/2}$, $J^{\pi} = (7/2)^+$ and/or $4f^{13}(^2F_{7/2}^{\circ})6s(7/2, 1/2)_4^{\circ}np_{1/2}$, $J^{\pi} = (9/2)^+$ Rydberg series, and the difference between experimental and calculated quantum defects is generally better than 0.1; 2) $4f^{13}(^2F_{7/2}^{\circ})6s(7/2, 1/2)_3^{\circ}np_{3/2}$ Rydberg series from NIST is reassigned as $4f^{13}(^2F_{7/2}^{\circ})6s(7/2, 1/2)_3^{\circ}nf_{7/2}$, $J^{\pi} = (5/2)^+$, $4f^{13}(^2F_{7/2}^{\circ})6s(7/2, 1/2)_3^{\circ}nf_{7/2}$, $J^{\pi} = (7/2)^+$ and/or $4f^{13}(^2F_{7/2}^{\circ})6s(7/2, 1/2)_3^{\circ}nf_{5/2,7/2}$, $J^{\pi} = (9/2)^+$ Rydberg series, and the difference between experimental and calculated quantum defects is generally better than 0.05. As for the $4f^{13}(^2F_{7/2}^{\circ})6s(7/2, 1/2)_3^{\circ}np_{1/2}$ Rydberg series from NIST, we find there is a perturbed state at about 49900 cm^{-1} , and assign the perturbed state as $4f^{13}(^3F_4)6d_{5/2}6s^2$, $J = 7/2$ and the total angular momentum for the Rydberg series is $J = 7/2$.

Keywords: relativistic multi-channel theory, multi-channel quantum defect theory, Rydberg series

PACS: 31.15.vj, 31.15.am, 32.80.Ee

DOI: 10.7498/aps.67.20180797

* Project Supported by the National Key Research and Development Program of China (Grant Nos. 2017YFA0402300, 2017YFA0304900), the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 11604334), and the Key Research Program of the Chinese Academy of Sciences (Grant No. XDPB08-3).

† Corresponding author. E-mail: zpzhong@ucas.ac.cn