

长程铯里德堡分子的势能曲线

韩小萱 赵建明 李昌勇 贾锁堂

Potentials of long-range cesium Rydberg molecule

Han Xiao-Xuan Zhao Jian-Ming Li Chang-Yong Jia Suo-Tang

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 64, 133202 (2015) DOI: 10.7498/aps.64.133202

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.133202>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2015/V64/I13>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

In--2N 高共掺浓度和择优取向对 ZnO 最小光学带隙和吸收光谱的影响

Effect of In--2N heavy co-doping and preferred orientation on the optical band gap and absorption spectrum of ZnO

物理学报.2015, 64(6): 067101 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.067101>

氧空位浓度对 ZnO 电子结构和吸收光谱影响的研究

First-principle study of the effects of oxygen vacancy on the electronic structure and the absorption spectrum of ZnO

物理学报.2014, 63(14): 147101 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.147101>

TI 掺杂对 InI 禁带宽度和吸收边带影响的第一性原理研究

First-principle study on the effects of TI doping on the band gap and the band-edge of optical absorption of InI

物理学报.2014, 63(14): 147102 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.147102>

高激发态原子间的范德瓦尔斯相互作用

Van der Waals interaction between high excited states

物理学报.2014, 63(13): 133201 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.133201>

铯 Rydberg 原子 Stark 态的避免交叉

Observation of the avoided crossing of Cs Rydberg Stark states

物理学报.2013, 62(1): 013201 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.013201>

长程铯里德堡分子的势能曲线*

韩小萱 赵建明† 李昌勇 贾锁堂

(山西大学激光光谱研究所, 量子光学与光量子器件国家重点实验室, 太原 030006)

(2014年12月9日收到; 2015年2月27日收到修改稿)

本文介绍了半经典近似下的低能电子-原子散射理论, 引入赝势描述里德堡电子与基态原子的相互作用, 数值计算了铯原子 nS ($n = 30-60$) 里德堡态与 $6S$ 基态原子形成的长程里德堡分子的势能曲线. 并对最外层势阱进行分析, 获得长程里德堡分子的势阱深度、平衡距离与主量子数 n 的关系. 为实验制备里德堡分子并进一步分析其性质提供理论依据. 里德堡分子对外界非常敏感, 可用于微弱信号的检测.

关键词: 长程铯里德堡分子, 电子-原子散射, 势能曲线

PACS: 32.80.Ee, 71.15.Dx, 13.75.-n

DOI: 10.7498/aps.64.133202

1 引言

里德堡原子是主量子数 n 很大的高激发态原子, 具有轨道半径大 ($\sim n^2$)、束缚能低 ($\sim n^{-2}$) 和寿命长 ($\sim n^3$) 等优点^[1], 具有很高的物理研究价值和潜在的应用前景. 里德堡电子对其周围基态原子的散射可吸引基态原子并将其束缚在里德堡原子的周围, 形成由里德堡原子和基态原子组成的长程里德堡分子^[2-4]. 不同于通常形成分子所需的化学键, 例如离子键或共价键, 这种长程里德堡分子通过里德堡电子与其周围的基态原子的散射而形成. 它除了有里德堡原子的优良特性外, 还具有丰富的振动态和永久电偶极矩, 比里德堡原子更容易受外场操控, 在微弱信号检测中具有潜在的应用价值.

激光冷却技术的发展促进了里德堡原子和分子的研究. 2000年, Greene等^[5]进一步发展了Fermi^[6]的散射理论, 提出了一种形成分子的新机理, 其束缚能来自于里德堡电子和基态原子间的相互作用能, 并预言了在高密度的超冷原子样品中形成长程里德堡分子的可能性. Greene等^[7-10]计算了由里德堡原子与基态原子形成弱束缚分子的

势能曲线, 理论上验证了长程里德堡分子的存在. 2009年, Bendkowsky等^[8]首次在实验中利用光缔合方法实现了长程铷里德堡分子的制备, 并对这种巨型里德堡分子的寿命和振转能级等基本特性作了进一步的研究^[11,12]. 在此基础上, 人们进一步研究了长程里德堡分子的外场效应^[13,14], 实现了不同分子振动态的选择性激发^[15], 理论研究了在垂直或平行电场和磁场的作用下长程里德堡分子结构和动力学的变化情况^[16].

上述工作主要集中在铷里德堡分子方面, 本文利用低能电子-原子散射理论, 数值计算了 nS ($n = 30-60$) 铯 (Cs) 里德堡原子与基态 $6S$ 原子的相互作用能, 以及长程铯里德堡分子的势能曲线. 计算获得了铯里德堡分子最外层势阱深度和平衡距离的理论值, 为实验制备铯里德堡分子提供了理论依据.

2 理论模型

为了计算长程里德堡分子的势能曲线, 我们用如图1所示的三体模型来描述其相互作用. 里德堡

* 国家重点基础研究发展计划 (批准号: 2012CB921603), 国家自然科学基金 (批准号: 11274209, 61475090, 61378013, 61378039) 和山西省留学基金 (批准号: 2014-009) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: zhaojm@sxu.edu.cn

分子的哈密顿量^[17]表示为

$$H = H_1 + H_2 + H_3, \quad (1)$$

其中, H_1 为里德堡电子的哈密顿量, H_2 为基态原子与里德堡电子相互作用哈密顿量, H_3 为基态原子与里德堡原子实间的相互作用项. 由玻恩-奥本海默近似可知, 分子的哈密顿量可分为电子部分、原子核振动和转动部分, 这里我们仅考虑里德堡分子的电子态波函数. 里德堡电子可看作准自由粒子, 与基态原子的相互作用 H_2 利用低能电子散射理论计算 (铯里德堡原子的原子实与基态原子的相互作用 H_3 很弱, 这里忽略不计). 因此, 我们主要应用散射理论计算得到 H_2 , 从而获得里德堡分子的势能曲线.

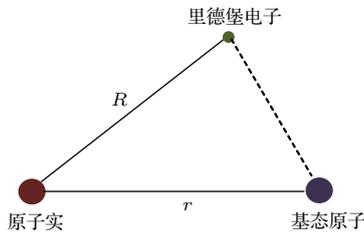


图1 里德堡分子的三体模型示意图

Fig. 1. The Three-body model of Rydberg molecule.

2.1 低能电子散射理论

在电子与基态原子散射中, 利用 O'Malley 提出的极化势 MERT 理论^[18,19] 获得半经典近似下的散射能, 其散射长度在轨道角量子数 $l = 0$ 时表示为

$$A_0(k) = A_0 + \frac{\pi\alpha}{3}k + \frac{4\alpha A_0}{3} \ln\left(\frac{\sqrt{\alpha}k}{4}\right) \cdot k^2 + o(k^3), \quad (2)$$

$l \geq 1$ 时表示为

$$A_l(k) = \frac{-\pi\alpha}{(2l+3)(2l+1)(2l-1)} \cdot k + o(k^2), \quad (3)$$

其中, $A_l(k)$ 是散射长度, A_0 是零能量的散射长度, α 是基态原子的极化率, $o(k^{2(3)})$ 表示高阶无穷小量. 将散射势用赝势表示为^[20]

$$V_{\text{pes}}(r) = 4\pi \sum_l (2l+1) A_l(k) \times \{P_l(\nabla' \nabla / k^2) \varphi^*(r') \varphi(r)\}_{r'=r}. \quad (4)$$

在半经典理论中, $k(r)$ 与里德堡电子束缚能 E_{nl} 的关系表示为

$$k(r) = \sqrt{2(E_{nl} + 1/r)}, \quad (5)$$

P_l 为关联勒让德函数, $\varphi(r)$ 为里德堡电子的波函数, r 是基态原子与里德堡原子实之间的距离, V_{pes} 为赝势, 描述里德堡电子与基态原子间的相互作用能.

2.2 长程里德堡分子的势能曲线

这里考虑 $l = 0$ (s-波散射) 的情形, 即 Cs (nS)+Cs ($6S$) 构成里德堡分子的势能曲线. 对于里德堡电子与原子的散射, 有效势垒高度随角动量量子数 l 的增大而增大, 同时对里德堡电子的阻塞效应随之增加. 当里德堡电子能量较小时, 很难通过 $l > 1$ 的有效势垒形成里德堡分子. 铯里德堡电子的动能在主量子数 n 为 30—60 的区间内一般小于几个 meV, 其相对于里德堡电子与基态原子 ($6S$) 散射的有效势垒高度要小得多, 同时 p-波 ($l = 1$) 对所形成的里德堡分子势的贡献也很小, 为了简化计算, 我们只考虑 s-波散射时里德堡电子与基态原子的相互作用势, 方程 (4) 取第一项 ($l = 0$), 表示为

$$V_{\text{pes}(l=0)}(n, l, r) = 2\pi \cdot A[k(r)] \cdot |\varphi_{nlm}(r)|^2. \quad (6)$$

里德堡原子的波函数表示为: $\varphi_{nlm} = R_{nl} \cdot Y_{lm}$, 其中径向波函数为 R_{nl} , 球谐函数为 $|Y_{00}|^2 = 1/4\pi$, 长程里德堡分子势近似为

$$V(r) = 1/2 \cdot A[k(r)] \cdot |R_{nl}(r)|^2. \quad (7)$$

s-波散射长度 $A[k(r)]$ 取方程 (2) 表示的形式为

$$A[k(r)] = A_0 + 1/3 \cdot \pi\alpha_{6s}k(r) + o(k^2), \quad (8)$$

其中, r 是铯基态原子与 nS 里德堡原子实之间的距离, α_{6s} 是铯基态原子的极化率.

3 结果分析

为计算并获得里德堡分子的势能曲线, 我们首先利用数值方法求解薛定谔方程, 并计算里德堡电子的波函数. 具体计算方法参见文献^[21], 我们利用 Numerov's 的方法对 nS 态原子径向波函数进行了数值求解.

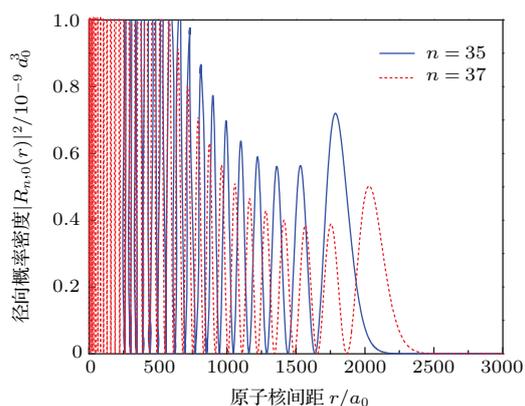


图2 (网刊彩色) 数值计算的铯里德堡电子的径向概率密度 $|R_{n,0}(r)|^2$ (蓝色实线: $n = 35$, 红色虚线: $n = 37$)

Fig. 2. (color online) Radial probability densities of cesium Rydberg electron $|R_{n,0}(r)|^2$ for $n = 35$ (solid blue line) and $n = 37$ (red dashed line).

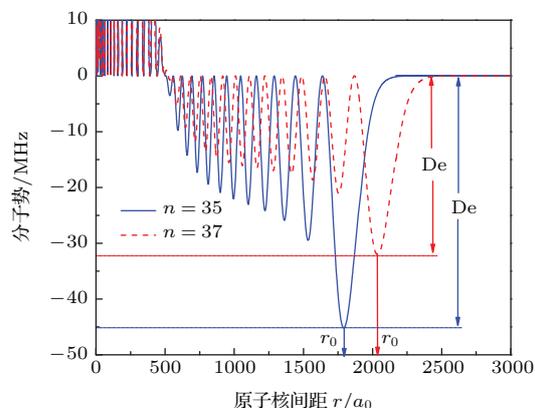


图3 (网刊彩色) 数值计算的长程 $Cs(nS)+Cs(6S)$ 里德堡分子的势能曲线 ($A_0^T = -22.7a_0$) (蓝色实线: $n = 35$, 红色虚线: $n = 37$. De 表示最外层势阱深度, r_0 表示平衡核间距)

Fig. 3. (color online) The potential curves of Rydberg molecule $Cs(nS)+Cs(6S)$ for $n = 35$ (solid blue line) and $n = 37$ (red dashed line) with $A_0^T = -22.7a_0$. The outermost potential depth De and equilibrium distance r_0 .

图2所示为数值计算的铯 nS ($n = 35$, 蓝色实线) 和 ($n = 37$, 红色虚线) 里德堡电子的径向概率密度 $|R_{n,0}(r)|^2$, 由图可知电子径向概率密度的最外层随主量子数 n 的增大而减小. 对于 nS 里德堡原子, 电子径向波函数节点数为 $n-1$, 则主量子数 n 越大节点数越多, 相应的径向分布曲线的最外层离核越远, 即电子离核的平均半径随 n 的增加而增大. 由波函数的归一化可知, 总概率密度为1, 径向概率密度的最外层随主量子数 n 的增大而减小. 铯原子基态的极化率取值为 $\alpha_{6s} = 402.2 \text{ a.u.}$ [22] (a.u. 表示原子单位制). 由散射理论, 零能量散射长度与自旋有关, 而自旋 $S = 1/2$ 的单态散射长度 A_0^S 与三

重态散射长度 A_0^T 的理论值范围分别为 $-1.33a_0$ 到 $-2.40a_0$, $-21.7a_0$ 到 $-22.7a_0$ [23-25], 散射长度为负数且具有较大值时电子与原子间相互吸引形成稳定的束缚态分子, 这里取散射长度 $A_0^T = -22.7a_0$. 图3所示为铯里德堡原子 nS ($n = 35$, 蓝色实线) 和 ($n = 37$, 红色虚线) 与基态原子形成的里德堡分子的势能曲线, 图中里德堡分子势能曲线随里德堡电子径向概率密度的分布 (图2) 呈振荡分布, 且随主量子数 n 的增大里德堡分子的势阱深度减小而平衡核间距增大. 当 $n = 35$ 时, 计算的里德堡分子外层势阱的深度为 $\text{De} = 45.5 \text{ MHz}$, 对应的平衡间距为 $r_0 = 1790a_0$; 而主量子数 $n = 37$ 时, 里德堡分子外层势阱深度减小为 $\text{De} = 32.0 \text{ MHz}$, 而平衡间距增大到 $r_0 = 2035a_0$. 图2和图3中的变化趋势与文献 [26] 中的铷里德堡分子的结果相一致.

在原子碰撞形成里德堡分子的实验中, 里德堡分子往往会在最外层势阱中产生. 因此, 最外层势阱的阱深 De 与相应的平衡核间距 r_0 是描述里德堡分子的重要参数, 对实验研究具有重要的参考价值. 为此, 我们选取不同的主量子数 n ($n = 30-60$), 计算了 nS 态原子与基态原子形成里德堡分子的势能曲线, 并获得最外层势阱深度 De 和平衡间距 r_0 (见表1).

表1 $Cs(nS)+Cs(6S)$ 里德堡分子最外层势阱深 De 和平衡核间距 r_0

Table 1. The outermost potential depth De and equilibrium distance r_0 of Rydberg molecule $Cs(nS) + Cs(6S)$.

主量子数 n	分子最外层势阱深 De/MHz	平衡核间距 r_0/a_0
30	118.6	1250
35	45.5	1790
40	19.9	2430
45	9.7	3175
50	5.1	4015
55	2.8	4940
60	1.7	6000

图4和图5分别表示里德堡分子最外层的势阱深度 De 和平衡核间距 r_0 与主量子数的依赖关系. 由图4可知, $Cs(nS) + Cs(6S)$ 形成的长程里德堡分子最外层势阱深度 De 随主量子数 n 的增加而快速的减小, 当 $n > 60$ 时, 势阱深度 De 很小, 趋于0

MHz. 这是因为里德堡分子可以看成是由里德堡原子实将一个基态原子束缚在对应里德堡电子的轨道上而形成的. 主量子数 n 越大, 里德堡原子实对外层电子的束缚越小, 形成的势阱就越浅.

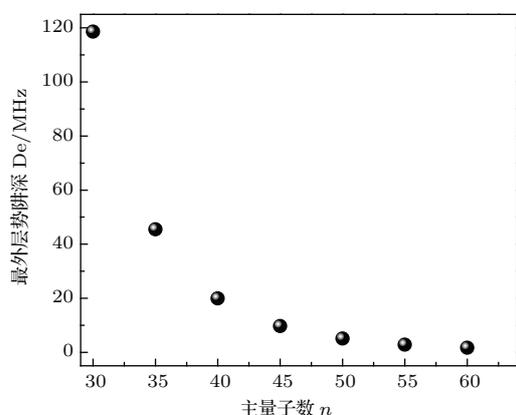


图4 Cs(n S)+Cs(6S) 里德堡分子最外势阱深度 D_e 和主量子数 n 的关系

Fig. 4. The potential depth D_e of Rydberg molecule Cs(n S)+Cs(6S) as a function of principal quantum number n .

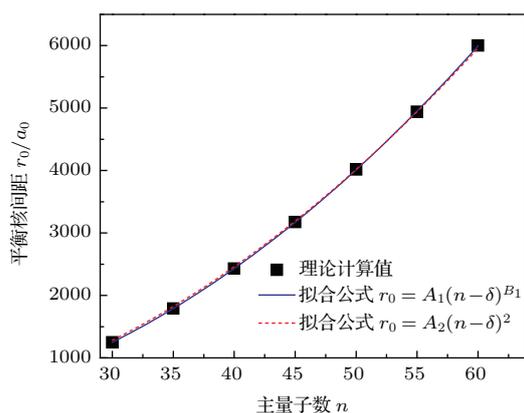


图5 (网刊彩色) Cs(n S)+Cs(6S) 里德堡分子平衡核间距 r_0 随主量子数 n 的变化曲线 (蓝色实线: $r_0 = A_1(n-\delta)^{B_1}$ 的拟合曲线, 红色虚线: $r_0 = A_2(n-\delta)^2$ 的拟合曲线. 拟合参数分别为: $A_1 = 1.626$, $B_1 = 2.040$, $A_2 = 1.903$; 量子亏损 $\delta = 4.0495$ [27])

Fig. 5. (color online) Equilibrium distance r_0 of Rydberg molecule Cs(n S)+Cs(6S) as a function of principal quantum number n . Solid blue line presents fitting using formula $r_0 = A_1(n-\delta)^{B_1}$, red dashed line is fitting using formula $r_0 = A_2(n-\delta)^2$ with $\delta = 4.0495$ [27]. The fitting parameters are $A_1 = 1.626$, $B_1 = 2.040$ and $A_2 = 1.903$, respectively.

由图5可知, 平衡距离 r_0 随主量子数 n 的增加而迅速增大. 平衡距离的大小决定里德堡分子的大小. 而里德堡原子的大小与有效主量子数 $(n-\delta)^2$ 成正比, δ 为量子亏损 [27]. 我们对图5的计算数据进行拟合, 获得长程铯里德堡分子的平衡核间

距 r_0 与主量子数 n 的依赖关系. 拟合公式表示为: $r_0 = A_1(n-\delta)^{B_1}$ (蓝色实线), 拟合参数 $B_1 = 2.04$. 其结果与里德堡原子的大小对主量子数的依赖关系, $r_0 \propto (n-\delta)^2$ (图5中的红色虚线), 相一致. 以主量子数 $n = 45$ 为例, Cs(45S) + Cs(6S) 形成的长程里德堡分子的平衡核间距为 $3175a_0$ ($0.168 \mu\text{m}$), 其分子的大小可与细胞相比拟, 对外场非常敏感, 可用于微弱电信号的测量 [28].

4 结 论

本文数值计算了里德堡 ($n = 30-60$) 电子的径向概率密度, 并利用低能电子-原子散射理论, 计算了长程铯里德堡分子的势能曲线. 其中里德堡分子由铯 (n S) 里德堡电子和一个6S基态原子而形成. 随主量子数 n 的增大, 形成的里德堡分子体积增大, 势阱变浅, 很容易电离, 为实验有效制备里德堡分子提供理论依据. 里德堡原子不仅可以束缚一个基态原子形成双原子里德堡分子, 还可以束缚多个基态原子而形成多原子里德堡分子. 这种里德堡分子具有永久电偶极矩, 特别是丰富的分子振动态和永久电偶极矩, 易于外场操控, 因此制备里德堡分子并对其性质的研究成为近年来的热点.

感谢 G. Raithel 教授和李伟斌教授的有益讨论.

参考文献

- [1] Gallagher T F 1994 *Rydberg Atoms* (Cambridge: Cambridge University Press) pp11-47
- [2] Boisseau C, Simbotin I, Côté R 2002 *Phys. Rev. Lett.* **88** 133004
- [3] Farooqi S M, Tong D, Krishnan S, Stanojevic J, Zhang Y P, Ensher J R, Estrin A S, Boisseau C, Côté R, Eyler E E, Gould P L 2003 *Phys. Rev. Lett.* **91** 183002
- [4] Overstreet K R, Schwettmann A, Tallant J, Shaffer J P 2007 *Phys. Rev. A* **76** 011403
- [5] Greene C H, Dickinson A S, Sadeghpour H R 2000 *Phys. Rev. Lett.* **85** 2458
- [6] Fermi E 1934 *Nuovo Cimento* **11** 157
- [7] Vadla C, Horvatic V, Niemax K 2009 *Phys. Rev. A* **80** 052506
- [8] Bendkowsky V, Butscher B, Nipper J, Balewski J B, Shaffer J P, Löw R, Pfau T, Li W, Stanojevic J, Pohl T, Rost J M 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 163201
- [9] Butscher B, Bendkowsky V, Nipper J, Balewski J B, Kukota L, Löw R, Pfau T, Li W, Pohl T, Rost J M 2011 *J. Phys. B* **44** 184004
- [10] Samboy N, Stanojevic J, Côté R 2011 *Phys. Rev. A* **83** 050501

- [11] Butscher B, Nipper J, Balewski J B, Kukota L, Bendkowsky V, Löw R, Pfau T 2010 *Nature Phys.* **6** 970
- [12] Li W, Pohl T, Rost J M, Rittenhouse Seth T, Sadeghpour H R, Nipper J, Butscher B, Balewski J B, Bendkowsky V, Löw R, Pfau T 2011 *Science* **334** 1110
- [13] Mayle M, Rittenhouse S T, Schmelcher P, Sadeghpour H R 2012 *Phys. Rev. A* **85** 052511
- [14] Kurz M, Schmelcher P 2013 *Phys. Rev. A* **88** 022501
- [15] Krupp A T, Gaj A, Balewski J B, Ilzhöfer P, Hofferberth S, Löw R, Pfau T, Kurz M, Schmelcher P 2014 *Phys. Rev. Lett.* **112** 143008
- [16] Kurz M, Schmelcher P 2014 *J. Phys. B* **47** 165101
- [17] Bendkowsky V 2010 *Ph. D. Dissertation* (Universität Stuttgart)
- [18] Blatt J M, Jackson J D 1949 *Phys. Rev.* **76** 18
- [19] O'Malley T F, Spruch L, Rosenberg L 1961 *J. Math. Phys.* **2** 491
- [20] Omont A 1997 *Journal de Physique* **38** 1343
- [21] Bhatti S A, Cromer C L, Cooke W E 1981 *Phys. Rev. A* **24** 161
- [22] He X H, Li B W, Zhang C X 1989 *Acta Phys. Sin.* **38** 1717 (in Chinese) [何兴虹, 李白文, 张承修 1989 物理学报 **38** 1717]
- [23] Fabrikant I I 1986 *J. Phys. B* **19** 1527
- [24] Bahrim C, Thumm U, Fabrikant I I 2001 *J. Phys. B* **34** L195
- [25] Bahrim C, Thumm U 2000 *Phys. Rev. A* **61** 022722
- [26] Bendkowsky V, Butscher B, Nipper J, Shaffer J P, Löw R, Pfau T 2009 *Nature* **458** 1005
- [27] Lorenzen C -J, Niemax K 1984 *Z. phys. A* **315** 127
- [28] Overstreet K R, Schwettmann A, Tallant J, Booth D, Shaffer J P 2009 *Nature Phys.* **5** 581

Potentials of long-range cesium Rydberg molecule*

Han Xiao-Xuan Zhao Jian-Ming[†] Li Chang-Yong Jia Suo-Tang

(State Key Laboratory of Quantum Optics and Quantum Optics Devices, Institute of Laser Spectroscopy, Shanxi University, Taiyuan 030006, China)

(Received 9 December 2014; revised manuscript received 27 February 2015)

Abstract

Rydberg atom, with a large principal quantum number n , has big size, long lifetime, strong long-range interactions, and so on. These properties make Rydberg atoms potential candidate of quantum gate and single-photon source. Rydberg electron can interact with nearby ground-state atom, which is polarized by the Rydberg electron and is bound to the orbit of Rydberg electrons forming Rydberg molecule. As the kinetic energy of the Rydberg electron is very low, only the lowest partial waves will contribute to the molecular potential.

In this paper, the low electron-atom scattering with the semi-classical approximation is introduced, and the pseudopotential of interaction between Rydberg electron and ground-state atom is used to describe the long-range Rydberg molecular potential. Molecular potential curves for cesium (nS , $n = 30-60$) are plotted according to the results of numerical computation, from which the outermost potential depth D_e and the equilibrium distance r_0 of long-range cesium Rydberg molecule are deduced. Potential curves of cesium Rydberg molecules are consistent with the distribution curves in radial probability densities of cesium Rydberg electrons. Dependences of D_e and r_0 on the principal quantum number n are investigated, this has an important role for the experimental measurements. The size of a Rydberg molecule depends on the equilibrium distance r_0 and is proportional to the square of effective principal quantum number $(n - \delta)^2$. The calculated outermost potential depth D_e of Rydberg molecule becomes smaller with the increase of principal quantum number n . Rydberg molecule is very sensitive to the external field and can be used to measure and monitor weak signals.

Keywords: long-range cesium Rydberg molecule, electron-atom scattering, molecular potential

PACS: 32.80.Ee, 71.15.Dx, 13.75.-n

DOI: 10.7498/aps.64.133202

* Project supported by the National Basic Research Program of China (Grant No. 2012CB921603), the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11274209, 61475090, 61378013, 61378039), and the Shanxi Scholarship Council of China (Grant No. 2014-009).

[†] Corresponding author. E-mail: zhaojm@sxu.edu.cn