

碱金属里德堡原子的 量子效应

蒋利娟 著

非外借



科学出版社

碱金属里德堡原子的量子效应

蒋利娟 著

科学出版社

北 京

内 容 简 介

有效控制原子从一个量子态到另一个量子态的布居数跃迁和相干态囚禁,不仅对设计和控制化学反应过程及产物有重要作用,而且对原子光学和量子光学中特定量子态的制备、相干操控等具有重要意义。本书着重介绍了应用 B-样条函数和单电子原子模型势,求解碱金属原子的定态薛定谔方程,计算出自由碱金属原子的能级结构及波函数,并以零场波函数作为基矢,采用含时多态展开方法研究碱金属原子处于微波场下的激发跃迁,得到高激发态的布居数迁移,分析了啁啾率和振幅等参数对里德堡碱金属原子布居跃迁的影响。

本书可为从事原子与分子结构、光谱物理、量子光学等相关领域的研究人员及学生提供一定的参考信息和方法借鉴。

图书在版编目(CIP)数据

碱金属里德堡原子的量子效应/蒋利娟著. —北京:科学出版社,2017. 8
ISBN 978-7-03-054004-1

I. ①碱… II. ①蒋… III. ①碱金属-量子效应-研究 IV. ①O614. 11

中国版本图书馆 CIP 数据核字(2017)第 180962 号

责任编辑:周 涵 赵彦超/责任校对:张凤琴

责任印制:张 伟/封面设计:迷底书装

科 学 出 版 社 出 版

北京东黄城根北街 16 号

邮政编码:100717

<http://www.sciencep.com>

北京京华虎彩印刷有限公司印刷

科学出版社发行 各地新华书店经销

*

2017 年 8 月第 一 版 开本:720×1000 B5

2018 年 1 月第二次印刷 印张:8

字数:93 000

定价:58.00 元

(如有印装质量问题,我社负责调换)

前 言

有效控制原子量子态间的布居数跃迁和相干态囚禁,对设计和控制化学反应过程及产物、原子光学和量子光学中特殊量子态的制备、量子态的相干操控等具有重要作用。本书着重介绍了电磁场与里德堡原子相互作用的半经典理论和方法,并运用定态薛定谔方程,计算出自由碱金属原子的能级结构及波函数,得出运用 B-样条函数和单电子原子模型势求解定态薛定谔方程理论可靠。然后以零场波函数作为基矢,采用含时多态展开方法,研究碱金属原子处于微波场下的激发跃迁,得到量子态间的布居数迁移,分析了啁啾率、振幅等参数对量子态间的跃迁及量子态囚禁的影响,从而实现对量子态的操纵与控制。结果表明,只要选择合适的啁啾率和振幅等参数,就可以实现布居数在量子态间的完全跃迁。

本书内容主要包括 4 个部分。第 1 部分包括第 1~3 章,简要介绍了里德堡原子、微波场与里德堡原子的相互作用及研究方法。第 1 章介绍了里德堡原子的性质、在外场中里德堡原子展现的一些奇特效应。第 2 章阐述了电磁场与里德堡原子相互作用的理论和方法及求解里德堡原子含时薛定谔方程的一般方法。第 3 章详细研究了微波场与原子相互作用的含时多态展开方法。第 2 部分介绍了里德堡锂原子在微波场中的激发跃迁。首先计算出锂原子的能级值和波函数,所得能级值与量子亏损方法和其他模型势计算出来的能级值进行比

较, 所得结果符合得很好。然后计算出高激发态的能量, 研究计算锂原子在频率啁啾微波场中量子态之间的布居数迁移特性。假设初始时刻, 锂原子布居在 $n=70s$ 态上, 计算在不同的啁啾微波场中量子态之间的跃迁。得出结论: 量子态的相干迁移与控制不仅和微波场的振幅有关, 而且和微波场的频率参数有关; 只有当振幅和频率参数选取适当时, 才可以产生从初始态到目标态的完全跃迁。在跃迁中每个 l 态都起着至关重要的作用, 我们在进行量子态操纵和控制时, 要考虑每个态的影响, 详见第 4 章。第 3 部分研究了计算钠原子的能级值和波函数, 把钠原子布居在初始态上, 计算钠原子在不同微波场中的激发跃迁及相干迁移, 实现了量子态的操纵与控制。结果表明: 选择合适的微波场, 可以实现布居数在量子态之间的跃迁, 详见第 5 章。第 4 部分即第 6、7 章, 计算了钾原子的能级值及波函数, 计算了钾原子在啁啾微波场中多能级系统之间的量子态跃迁及每个 l 态的跃迁。第 7 章作了简要的总结与展望。总结出通过对锂、钠、钾原子的能级结构及高激发态跃迁进行计算, 可得出结论: 含时多态展开方法结合 B-样条函数和单电子原子模型势是有效研究微波场中碱金属原子性质的一种方法; 选择合适的啁啾率、振幅等参数, 可以使布居数有效地从初始态迁移到末态, 实现布居数在量子态之间的完全迁移和量子态囚禁; 在跃迁过程中, 每个 l 态都起着至关重要的作用。本书可为从事原子与分子结构、量子光学等相关领域的研究人员及学生提供一定的参考信息和方法借鉴。

河南师范大学的张现周教授为全书的策划、统稿和审订工作付出了辛勤的努力和辛苦的指导工作, 河南师范大学贾光瑞老师、新乡学院刘

增平老师对书稿进行了校对,在此表示衷心的感谢。

本书的出版得到了河南省教育厅高等学校创新人才支持计划给予的资金支持,在此表示衷心的感谢。

感谢新乡学院物理与工程学院的领导及基础物理教研室、学科工作室的老师们在本书撰写及出版过程中给予的帮助。

蒋利娟

2017年3月16日

目 录

第 1 章	里德堡原子简介	1
1.1	高激发态及其结构	1
1.2	碱金属原子模型	2
1.3	里德堡原子的性质	4
1.4	外场中的里德堡原子	6
1.5	原子的相干激发	9
第 2 章	电磁场与里德堡原子相互作用的理论和方法	14
2.1	电磁场与里德堡原子相互作用的半经典理论	14
2.2	求解里德堡原子含时薛定谔方程的一般方法	17
第 3 章	微波场与原子相互作用的含时多态展开方法	26
3.1	背景介绍	26
3.2	B-样条函数	27
3.3	碱金属原子的模型势	33
3.4	零场下碱金属原子的波函数	34
3.5	里德堡原子含时薛定谔方程的多态展开方法	35
第 4 章	里德堡锂原子在微波场中的激发跃迁	40
4.1	背景介绍	40
4.2	理论方法	41
4.3	结果与讨论	43
4.4	结论	66

第 5 章	微波场中里德堡钠原子的布居跃迁与相干激发	67
5.1	背景介绍	67
5.2	理论方法	67
5.3	结果与讨论	68
5.4	结论	91
第 6 章	微波场中里德堡钾原子的布居跃迁与态囚禁	92
6.1	背景介绍	92
6.2	理论方法	96
6.3	结果与讨论	96
6.4	结论	105
第 7 章	总结与展望	106
7.1	总结	106
7.2	展望	107
参考文献		108

第 1 章 里德堡原子简介

1.1 高激发态及其结构

激发态原子是相对于基态原子来说的,高激发态原子是指其中电子激发到接近或者高于电离势的能量的原子。当价电子相对来看其远离原子实,或者说主量子数很大时,原子表现出来的特点是类似于氢原子的,此时原子实内部的结构对价电子的影响是主要的,一般来说,我们把原子的这种状态称作里德堡(Rydberg)态,或者简单地称作高激发态。所以说,高激发原子的性质包括高里德堡态、电离连续区以及更高能量的连续区内的激发或结构。而对于氢原子来说,由于它的原子核外仅仅只有一个电子,高激发这个概念不是特别重要。而对于碱金属原子,以及最外层多电子原子,则有不同的激发通道。在光学能区,只有价电子能被激发,实验室中短脉冲和高功率激光器的发展改变了原子物理的传统面貌。之前,人们坚持电磁场始终作为小的微扰。现在看来由于高激发态原子的独特性质,使得其不仅是研究外场的理想体系,而且在量子态的操控方面对于原子光学和量子光学中特定量子态的制备、量子态相干控制等具有重要意义。

对于高激发态的结构来说,从已有的情况来看,人们已经对原子的振动和转动能级以及电子能级都做了精确的研究计算,特别是对于低激发

态能级的结构有了更深入的认识。实际上,除了上述情况以外还有一些高激发态的能级结构的研究,例如,里德堡束缚态、近电离阈伴线结构、自电离态和双电子激发态等。事实上,大多数原子子谱带相互重叠,而且存在电子态能级的相互扰动和预解离等,对原子谱线的标识和研究比较困难。最近几十年,伴随着激光测量技术的日益成熟(例如能谱测量方法的发展、同步辐射光谱技术、离子能谱技术),使测量的分辨率得到了大大的提高。就目前的结果来看,对于一些简单的光谱和一些简单的高激发态的光谱已经得到了大量的数据,虽然在理论上电离连续态和高激发态可以统一用多通道量子亏损理论来进行解释,但是对于大量的较复杂的高激发态的研究还处于开始状态。

1.2 碱金属原子模型

对于碱金属原子而言,原子实的极化是一个重要的概念。原子实是一个球形对称结构,其中原子核带有 Z 个正电荷,核外有 $Z-1$ 个电子。价电子在原子实外运动时好像是处在一单位正电荷的库仑(Coulomb)场中,但由于价电子电场的作用,原子实中带正电的原子核和带负电的电子中心会发生微小的相对位移,于是负电荷的中心不再位于原子核上,就形成了一个电偶极子,这就是原子实的极化。而单纯的极化不会引起原子能量很大的差别,人们设想价电子轨道的一部分穿进了原子实,这就是价电子轨道贯穿现象。所以有碱金属原子模型的基本假设:电子的运动空间可以分为连续的几个区域,其中一个小的内部区域称为原子实,在该区域内一个电子的波函数受到其他全部电子的存在而产生

的复杂势影响；另一个大的外部区域，只有里德堡激发过程中的价电子或者光子才能到达。在整个原子物理学中最具有启发性的能级图就是碱金属原子与氢原子激发态能级的比较。由于碱金属原子的径向势不是真正的库仑势，所以不同的 l 值的能级出现在不同的能量处。而对于 Li、Na、K、Rb、Cs 的 $3d$ 、 $3d$ 、 $3d$ 、 $4d$ 和 $5d$ 占据的对应位置，当原子序数增大时，这些位置事实上偏离了氢原子 $n=3$ 的线。实际情况来看，在 Rb 元素中 $3d$ 轨道被占据了而且位于原子实的里层。在表 1-1 中可以看到，相比而言， $l=2$ 和 3 的能级反常行为更为明显。若将碱金属原子能级值获到的量子亏损 μ 排列成表，可以发现对给定的角动量量子数，每个里德堡系列的 μ 近乎为常数，如表 1-1 所示。对于这些所有的事实都有必要用碱金属原子模型来解释，碱金属原子模型并不去寻求得到 1μ 的绝对大小。我们将碱金属原子模型看作一个概念性的框架，而通过它，有关的实验或理论研究结果可以得到解释。

表 1-1 碱金属原子的有效量子数

锂(Li)						
l	$n=2$	$n=3$	$n=4$	$n=5$	$n=6$	$n=7$
0	1.589	2.596	3.589	4.599	5.599	6.579
1	1.960	2.956	3.954	4.954	5.955	6.954
2		2.999	3.999	5.000	6.001	7.000
3			4.000	5.004		
钠(Na)						
l	$n=3$	$n=4$	$n=5$	$n=6$	$n=7$	$n=8$
0	1.627	2.643	3.648	4.651	5.652	6.694
1	2.117	3.133	4.138	5.141	6.142	7.143
2	2.990	3.989	4.987	5.989	6.991	7.987
3		4.000	5.001	6.008	7.012	8.015

续表

钾(K)						
l	$n=3$	$n=4$	$n=5$	$n=6$	$n=7$	$n=8$
0		1.770	2.801	3.810	4.814	5.815
1		2.234	3.264	4.274	5.279	6.282
2	2.854	3.797	4.769	5.754	6.746	7.741
3		3.993	4.992	5.992	6.991	7.990
铷(Rb)						
l	$n=4$	$n=5$	$n=6$	$n=7$	$n=8$	$n=9$
0		1.805	2.845	3.856	4.861	5.863
1		2.288	3.323	4.335	5.341	6.344
2	2.767	3.706	4.684	5.673	6.667	7.663
3	3.988	4.986	5.989	6.984	7.984	
铯(Cs)						
l	$n=4$	$n=5$	$n=6$	$n=7$	$n=8$	$n=9$
0			1.869	2.920	3.934	4.940
1				3.390	4.405	5.412
2		2.551	3.532	4.530	5.529	6.529
3	3.987	4.974	5.972	6.971	7.970	8.969

1.3 里德堡原子的性质

里德堡原子是指原子中的一个电子被激发到高量子态(n 很大)的高激发原子^[1]。它只有一个外层电子处于高激发态,离原子实(原子核加其他电子)很远,原子实对它的静电库仑作用可视为点电荷($+e$),称为类氢原子。把原子看作由一个外层电子与一个原子实组成,从而可将多体问题简化为单电子问题,利用单电子原子的量子力学方法处理,将多体问题简化为单电子问题。1890年,里德堡提出能量公式 $E_n = -R/(n-\mu_l)^2$,

因此,能级态被命名为里德堡态,其中 R 和 μ_l 分别是里德堡常量和角量子数为 l 的态的量子亏损数^[2]。

根据里德堡态定义,里德堡原子有以下物理性质^[3]:①里德堡原子的能级公式为 $E_{nl} = -\frac{hcRz^{*2}}{(n-\Delta)^2}$,式中 n 为主量子数, l 为角量子数, z^* 为原子实正电荷数, R 是里德堡常量, Δ 是量子数亏损。从能级式可以看到,里德堡原子外层电子的结合能近似与 n^2 成反比,相邻两个束缚态间的能量间隔近似与 n^3 成反比,例如,当 $n=30$ 时, $\Delta E_n \approx 1\text{meV}$, $n=350$, $\Delta E_n \approx 6.3 \times 10^{-4}\text{meV}$,这样小的能量间隔,必须要有高分辨光谱技术才有可能检测和分辨出里德堡原子光谱。另外,也产生了一些新的现象。

②根据玻尔对应原理,当原子中电子激发到 n 很大的高激发态时,电子的运动接近于经典物理,轨道半径平均值为 $\bar{r}_{nl} = n^2 \left[1 + \frac{1}{2} \left(1 - \frac{l(l+1)}{n^2} \right) \right] a_0$,其中, n 为主量子数, l 为角量子数, a_0 为氢原子第一玻尔轨道半径。当 $n=30$ 时,半径约为 48nm ,当 $n=250$,半径为 $3.3\mu\text{m}$,接近于细菌的大小。由此可知,里德堡原子体积很大,比没有激发的基态原子大十万倍。

③里德堡态的寿命长,当量子态较低时,电子很容易回到基态,激发态平均寿命一般在 10^{-8}s 左右。当 n 很大时,辐射寿命近似正比于 $n^{4.5}$,寿命长到千分之一秒甚至于一秒。在没有外界扰动情况下,根据量子辐射理论知,当原子外层电子处于 (n, l) 状态时的自发辐射寿命 τ 近似与 n^3 成正比,说明里德堡原子寿命很长,另外,由于里德堡原子能级很窄,由能量与时间的测不准关系也可知其寿命比较长。

④谱线的自然宽度一般比较窄,要比多普勒(Doppler)线宽小很多。所以谱线的共振宽度主要由多普勒宽度或激光的宽度来确定。

⑤因为自发辐射跃迁与辐射频率三

次方成正比,所以里德堡原子能级间的自发辐射跃迁很慢,即从高里德堡态自发地跃迁到比较低的态的几率小,辐射强度和跃迁矩阵元均很大,故里德堡原子能级间的受激辐射跃迁很快。

长期以来,里德堡原子或者里德堡态引起人们极大关注的主要原因有:第一,由于里德堡原子的轨道半径与 n^2 成正比,原子的尺寸很大,里德堡原子中的价电子受到的束缚很弱,里德堡原子很容易被电离;第二,由于里德堡原子中只有一个外层电子处于高激发态,因此可视为类氢原子,故满足里德堡原子能量公式,人们可以用氢原子的理论来预测和理解里德堡原子的能谱特性以及其与外场相互作用时的一些特性和规律,类氢光谱与氢光谱的一个主要差别集中反映在态的量子数亏损大小上。

虽然人们研究里德堡原子的时间已经很久,但是近几十年来随着可调谐染料激光器的诞生和激光技术的不断发展与完善,实现选择性激发比较容易,用分步激发或多光子吸收等方法,可以比较容易地将原子激发到特定的高里德堡态,我们可以观测到很多新现象,所以人们对于里德堡原子的研究兴趣有增无减,它在跟外场的相互作用中发现的很多新现象还有待进一步解释,对里德堡原子的一些新特性有更进一步的认识,此领域中很多方面的问题有待进一步研究。

1.4 外场中的里德堡原子

里德堡原子由于其长寿命和对外场的敏感等特性,是研究外场效应的理想体系。它们在外场中的行为涉及原子物理和量子力学的许多基本概念和理论问题,如不可分离变量的量子力学体系的求解,连续态和

束缚态的耦合及其对谱结构的影响,经典与量子的对应等。研究外场中的原子可以为天体物理、等离子体物理提供基本数据及其他应用。随着锁模激光出现和半周期脉冲(half-cycle pulse)技术的使用,对里德堡原子的研究又展现出新的活力。在普通的基态原子中,原子内部的库仑作用比较强,外加的电场、磁场对原子的影响比较小,但对里德堡原子,高激发态电子离原子中心很远,原子中心部分给它的库仑作用较弱,外加电场、磁场比较容易影响它,从而产生一些有趣的现象。里德堡原子在外场中展现的一些奇特效应在天体物理、等离子体物理、激光物理、凝聚态物理以及其他与外场中原子有关的学科中也具有重要意义。

人们对电场中一般里德堡原子特性的认识,多数是通过分析比较与氢原子的异同而不断深入的。对电场中的氢原子,因为只存在库仑势和静电势,且体系具有柱对称性,其薛定谔(Schrödinger)方程在抛物坐标系($\eta=r-z, \xi=r+z$)下是可分离变量的,而且可以精确求解^[4-9]。因此,氢原子的电场特性可以从理论分析中直接得到;而其他多电子里德堡原子的电场特性也可根据氢原子的特性并考虑量子亏损的影响作定性分析。

产生多光子过程时所需的场强以及里德堡原子和微波的特点是人们对微波场中里德堡原子的电离和激发感兴趣的主要原因。里德堡原子相临两个态的能级间隔是 $\Delta n \approx 1/n^3$ 。 $n \approx 30, 1/n^3$ 所对应的能量为 8cm^{-1} , 或者大约是 240GHz 。如果研究多光子跃迁过程,所用频率必须小于所关注的两个原子态能级间隔所对应的频率。因此,对于研究多光子过程, $10 \sim 20\text{GHz}$ 的频率是比较合理的,而且这个频段的微波最容易控制。另外,由经典电离阈值所决定的场强为 $E_c = W^2/4$, W 是价电子

在零场的束缚能。如果忽略斯塔克(Stark)分裂的影响,用主量子数表示即 $E_c = 1/(16n^4)$ 。可以看到,随主量子数 n 增加, E_c 迅速减小。如当 $n=30$, $E_c \approx 500 \text{ V/cm}$, 无论对静电场还是微波场,这个场强都很容易实现。此外, 10 GHz 的频率对应的波长是 3 cm , 而实验用的原子束的线度大约 1 mm , 因此这个频段的微波能保证所有的受激发或电离的里德堡原子受到的场强基本一样,这保证了实验的空间均匀性;比原子和场相互作用时间大得多的微波脉冲宽度也很容易实现,因此,把与里德堡原子相互作用的微波场可以看作是连续的或者近似简谐振荡。这种空间和时间可以很好控制的微波场比起聚焦性很好的激光束对研究多光子过程具有不可替代的优越性。因此,实验用微波作激发光源研究里德堡原子的多光子过程倍受青睐。

近年来,微波场中里德堡原子的特性已得到深入研究。1974年, Bayfield 和 Koch^[10] 研究了氢原子高激发态 $n \approx 65$ 在频率分别为 9.9 GHz , 1.5 GHz 和 30 MHz 的微波场中的多光子电离规律,发现对于不同频段的微波,产生多光子电离时微波场的振幅满足的条件不同。随后, Pillet 和 Mariani 等^[11-13] 对微波场中里德堡 Na 和 He 原子电离进行了研究,发现其电离要求的微波场强小于经典静电电离阈值。1988年, Moorman 等^[14] 实验发现,随着第二个不同频率场的加入,微波场中氢原子的电离几率将出现增大或减弱现象,电离几率随时间的演化曲线上出现了丰富的结构。1998年,美国 T. F. Gallagher 实验组^[15], 研究了里德堡钾原子在静电场、微波场和射频场中的 $21s$ 和 $19f$ 两态之间的跃迁,并发现了许多有趣的现象。2003年, Zhang 等^[16,17] 提出一种求解碱金属原子在一般外场中含时薛定谔方程的多态展开方法,并用该方法研究计算

了里德堡钾原子在频率调制场中的激发,得到与实验^[15]吻合很好的理论结果,并用量子理论解释了上述有趣实验现象。2005年,H. Maeda等^[18]的实验中,研究了放置于微弱的极化微波场中的里德堡锂原子,发现电子在一个经典的轨道中运动并锁相于微波场。2006年,H. Maeda等^[19]发现了多光子绝热快速通道(multiphoton adiabatic rapid passage),观测了微波场中里德堡锂原子的量子态布居数的转移。2009年,T. F. Gallagher^[20]分别从 x 轴、 y 轴加微波场,使锂原子形成线性、圆形非扩散波包。在实验和理论上研究这些问题,不仅对理解里德堡态的特性具有重要意义,对利用特制的外场来控制特定的里德堡态也具有现实意义。里德堡原子对外场非常敏感,它在外场中展现的一系列奇特效应在天体物理、等离子体物理、激光物理、凝聚态物理以及其他与外场中的原子有关的学科中均具有重要意义。对激光与物质之间相互作用的研究,不仅可以揭示激光的量子本质,而且在量子通信、量子计算机的开发与研制等若干重大科技领域的研究中具有极广泛的应用前景。研究这些现象,对理解里德堡态的性质及控制和操纵具有重要的意义。

1.5 原子的相干激发

多光子激发的研究始于1931年,当时计算了原子双光子跃迁几率,计算结果肯定地表明这种跃迁几率是非常低的。随着更优越的激光器的出现,各种强光束的获得已经相当容易,由于双光子的激光几率随着光强的平方增长,因此双光子的跃迁可以达到很好的程度。