Асимптотические аппроксимации энергии дисперсионного взаимодействия между атомами рубидия в ридберговских состояниях

С.Н. Мохненко[1] А.А. Каменский[1] В.Д. Овсянников[1]

[1]Воронежский государственный университет

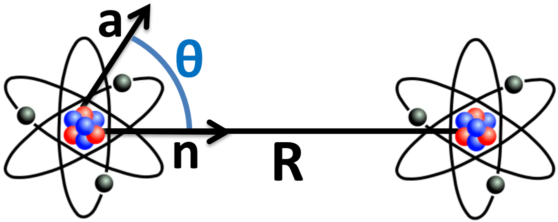
Физика ультрахолодных атомов 2016

Сдвиг энергии

Сдвиг энергии, индуцированный взаимодействием Ван-дер-Ваальса, для ридберговских состояний дается:

$$\Delta E_{vdW}(nlJM; R, \theta) = -\frac{C_6(nlJM; \theta)}{R^6}$$

где:
$C_6(nlJM; \theta)$ - постоянная Ван-дер-Ваальса
R - расстояние между атомами
θ - угол между осью квантования и межатомной осью



Общее выражение для С6

С6 для взаимодействия между двумя тождественными атомами, в одних и тех же ридберговских состояниях можно представить как фунцкию от магнитных квантовых чисел M этих ридберговских состояний и угла $\theta = \cos^{-1}(\mathbf{n} \cdot \mathbf{a})$ между единичными вектороми межатомной оси $\mathbf{n}$ и осью квантования $\mathbf{a}$:

$$\begin{aligned} C_6(\theta) &= C_6^{(2)}(\theta) = R_{ss} - \frac{M^2}{12J^2}(3\cos^2\theta - 2)R_{aa} + \\ &+ \frac{3M^2 - J(J+1)}{2J(2J-1)}(3\cos^2\theta - 1)R_{sT} + \\ &+ \frac{3}{2}\left[\frac{3M^2 - J(J+1)}{2J(2J-1)}\right]^2 (9\cos^4\theta - 8\cos^2\theta + 1)R_{TT} \end{aligned}$$

Овсянников В.Д. 1982 *Оптика и спектроскопия* ***Том 53*, *Вып. 4*** *600*

Теория возмущений для близких состояний $|\Delta E_{vdW}| \geq \delta$

Атомы в nS-состояниях

$$C_6 = 6 \sum_{n_1, n_2} \frac{|\langle n_1 P | d_z | nS \rangle|^2 |\langle n_2 P | d_z | nS \rangle|^2}{E_{n_1 P} + E_{n_2 P} - 2E_{nS}}$$

Условие для перехода к ТВ для близких состояний

$|\Delta E_{vdW}| \geq \delta$

где:

$\delta = |E_1 - E_2|$ - расщепление энергий двух-атомных состояний

$E_1 = E_A + E_B$ - энергия начального двух-атомного состояния

$E_2 = E_{n_1} + E_{n_2}$ - энергия промежуточного двух-атомного состояния

Теория возмущений для близких состояний $|\Delta E_{vdW}| \geq \delta$

Подпространство близких (по двух-атомной энергии) состояний

Включает по крайней мере три различных двух-атомных состояния:

1. Два атома в одинаковых состояниях: $\langle \mathbf{r}_1 | nlJ \rangle = \langle \mathbf{r}_2 | nlJ \rangle$
   Например: $38P + 38P$. Двух-атомная энергия: E_1
2. Первый атом в: $\langle \mathbf{r}_1 | n_1 l_1 J_1 \rangle$, второй в: $\langle \mathbf{r}_2 | n_2 l_2 J_2 \rangle$
   Например: $38S + 39S$. Двух-атомная энергия: E_2
3. Первый атом в: $\langle \mathbf{r}_1 | n_2 l_2 J_2 \rangle$, второй в: $\langle \mathbf{r}_2 | n_1 l_1 J_1 \rangle$
   Например: $39S + 38S$. Двух-атомная энергия: E_3

Очевидно что: $E_2 = E_3$
Это дает симметрии для матричных элементов:
$W_{12} = W_{13}$; $W_{22} = W_{33}$

Теория возмущений для близких состояний $|\Delta E_{vdW}| \geq \delta$

Матричные элементы

$$W_{ij} = \left\langle i \left| \hat{V}_{\mathrm{AB}}(\mathbf{R}) \left\{ 1 + G'_{\overline{E}} \left[\hat{V}_{\mathrm{AB}}(\mathbf{R}) - \Delta E \right] \right\}^{-1} \right| j \right\rangle ,$$

где:

$G'_{\overline{E}}$ - двух-атомная функция Грина

$\Delta E = E - \overline{E}$ - сдвиг индуцированный взаимодействием

$\hat{V}_{\mathrm{AB}}(\mathbf{R}) = \sum_{L_1=1}^{\infty} \sum_{L_2=1}^{\infty} \frac{\hat{\vartheta}_{L_1,L_2}(\mathbf{n})}{R^{L_1+L2+1}}$ - оператор электростатического взаимодействия между атомами

$\hat{\vartheta}_{L_1,L_2}$ - тензорное произведение мультипольных моментов атомов свернутое с угловой зависимостью их взаимодействия

Матричные элементы формально включают в себя все порядки теории возмущений:

$$W_{ij} = \sum_{k=1}^{\infty} W_{ij}^{(k)}$$

Теория возмущений для близких состояний $|\Delta E_{vdW}| \geq \delta$

Первый порядок

$$W_{ij}^{(1)} = \left\langle i \left| \hat{V}_{\mathrm{AB}}(\mathbf{R}) \right| j \right\rangle = \sum_{q=q_1}^{L_\Sigma+1} \frac{w_{ij}^{(1)}(q,\mathbf{n})}{R^q}$$

где: $L_\Sigma = l_{\mathrm{A}}(i) + l_{\mathrm{A}}(j) + l_{\mathrm{B}}(i) + l_{\mathrm{B}}(j)$ - сумма по всем угловым моментам обоих атомов в их начальном $|i\rangle$ и конечном $|j\rangle$ состояниях. Для дипольных переходов суммирование в недиагональном матричном элементе начинается с $q_1 = 3$.

Второй порядок

$$W_{ij}^{(2)} = -\left\langle i \left| \hat{V}_{\mathrm{AB}}(\mathbf{R}) G_E' \hat{V}_{\mathrm{AB}}(\mathbf{R}) \right| j \right\rangle = \sum_{q=q_2}^{\infty} \frac{w_{ij}^{(2)}(q,\mathbf{n})}{R^q}$$

где суммирование для диагональных элементов W_{ii} выполняется по четным степеням $1/R$, начиная с $q_2 = 6$.

Теория возмущений для близких состояний $|\Delta E_{vdW}| \geq \delta$

Секулярное уравнение

$$\det||W_{ij} + (\varepsilon_i - \Delta E)\delta_{ij}|| = 0$$

где: $i, j = 1, 2, 3$ $\quad \Delta E = E - E_{2,3}$ - относительная энергия

$\varepsilon_1 = \delta;\ \varepsilon_2 = \varepsilon_3 = 0$ - энергия i-того уровня относительно средней энергии

Решения секулярного уравнения

$$\begin{aligned} \Delta E_{1,2} &\equiv E_\pm = \frac{\delta + W_{11} + W_{22} + W_{23}}{2} \pm \\ &\pm \frac{1}{2}\sqrt{(\Delta(\mathbf{R}))^2 + 8|W_{12}|^2}, \\ \Delta E_3 &= W_{22} - W_{23} \end{aligned}$$

где: $\Delta(\mathbf{R}) = \delta + W_{11} - W_{22} - W_{23}$

Теория возмущений для близких состояний $|\Delta E_{vdW}| \geq \delta$

Предел: $|\Delta(\mathbf{R})| \gg 2|W_{12}|$ (большие расстояния)

$$\Delta E_1 = \delta + W_{11} + \frac{2|W_{12}|^2}{\Delta(\mathbf{R})}, \quad \left(\lim_{R\to\infty} \Delta E_1 \to \varepsilon_1 = \delta\right)$$

$$\Delta E_2 = W_{22} + W_{23} - \frac{2|W_{12}|^2}{\Delta(\mathbf{R})}, \quad \left(\lim_{R\to\infty} \Delta E_2 \to \varepsilon_2 = 0\right)$$

Предел: $|\Delta(\mathbf{R})| \ll |W_{12}|$ (резонанс Ферстера)

$$\Delta E_{\pm} \approx \pm\sqrt{2}|W_{12}| \pm \frac{(\Delta(\mathbf{R}))^2}{8\sqrt{2}\,|W_{12}|} + \frac{\delta + W_{11} + W_{22} + W_{23}}{2}$$

Потенциал Фьюса

$$V_f(r) = -\frac{Z_i}{r} + \sum_l \frac{B_l(E)}{r^2}\hat{P}_l$$

где:

Z_i - заряд остова

$\hat{P}_l$ - оператор проектирования на подпространство состояний с орбитальным моментом l

$B_l(E)$ - константа, изменяющая центробежный потенциал так, чтобы собственные значения $E_{nl} = -Z_i^2/2\nu_{nl}^2$ радиального уравнения Шредингера, определяемые эффективным главным квантовым числом: $\nu_{nl} = 1 + n_r + \lambda_{nl}$ ($\lambda_{nl} = \sqrt{(l+1/2)^2 + 2B_l(E_{nl})} - 1/2$) - эффективный орбитальный момент, n_r= 0,1,2,... - радиальное квантовое число) в точности совпадали с энергиями реального атома.

Simons G. J. 1971 *Chem. Phys.*, **55**, *756*

Интерполяция состояний

Формула Ритца для квантового дефекта $\mu_{lJ} = n - \nu_{nlJ}$

$$\mu_{lJ}(n) = \mu_{lJ}^{(0)} + \frac{\mu_{lJ}^{(2)}}{\left(n - \mu_{lJ}^{(0)}\right)^2}$$

***S*- и *D* - состояния**

Mack M, Karlewski F, Hattermann H et al 2011, *Phys. Rev. A* **83** 052515.

***P* - состояния**

Wenhui Li, I. Mourachko, M. W. Noel, and T. F. Gallagher 2003, *Phys. Rev. A* **67** 052502.

***F* - состояния**

J Han, Y Jamil, D V L Norum, P J Tanner, and T F Gallagher 2006, *Phys. Rev. A*, **74** 054502.

Интерполяция результатов

В отсутствие резонансов

$$R_{ss}(nlJ) = A_{ss}(lJ)n^{11}\left(1 + \frac{a_{ss}^{(1)}(lJ)}{n} + \frac{a_{ss}^{(2)}(lJ)}{n^2} + \frac{a_{ss}^{(3)}(lJ)}{n^3}\right)$$

При наличии двух резонансов

$$R_{ss}(nlJ) = \frac{A_{ss}(lJ)}{(n - \tilde{n}_{lJ}^{(1)})(n - \tilde{n}_{lJ}^{(2)})}n^{13}\left(1 + \frac{a_{ss}^{(1)}(lJ)}{n} + \frac{a_{ss}^{(2)}(lJ)}{n^2} + \frac{a_{ss}^{(3)}(lJ)}{n^3}\right)$$

График C6 для $nS_{1/2\ M=|1/2|} + nS_{1/2\ M=|1/2|}\ (\theta = 0)$

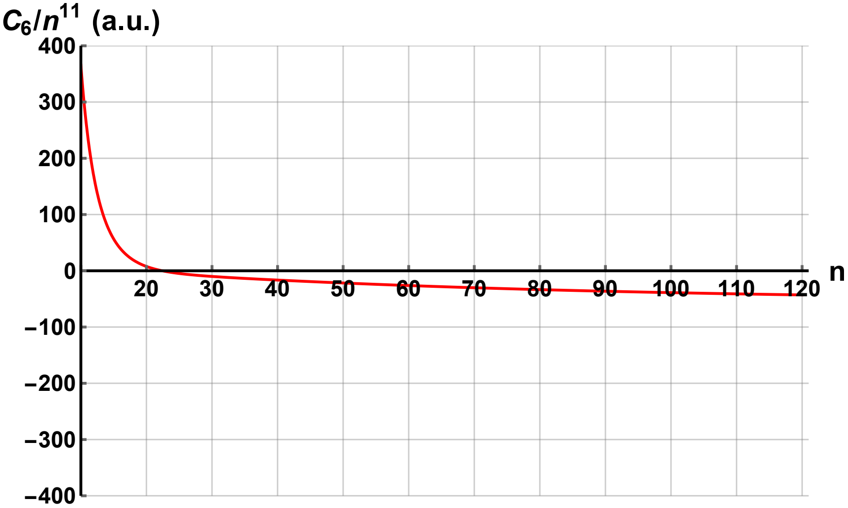


График C6 для $nP_{1/2\ M=|1/2|} + nP_{1/2\ M=|1/2|}$ $(\theta = 0)$

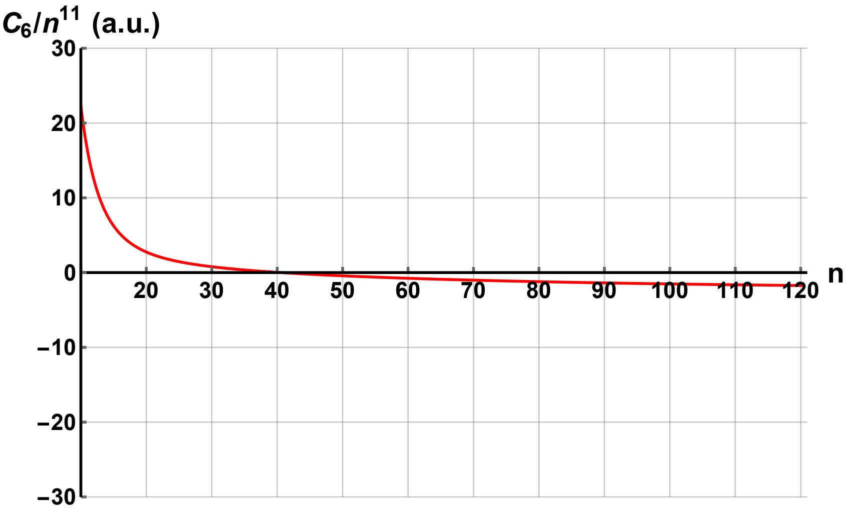
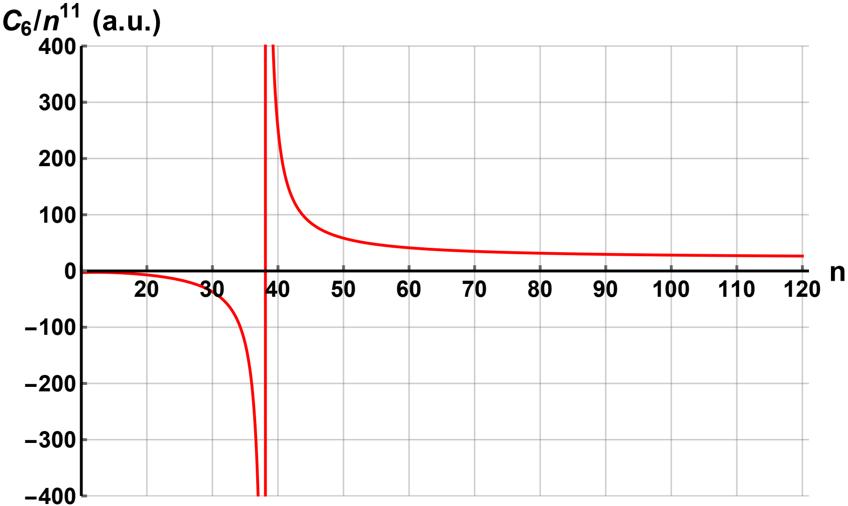
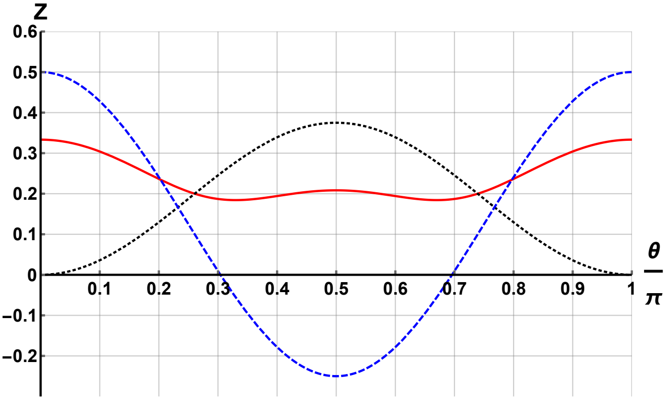


График C6 для $nP_{3/2\ M=|1/2|} + nP_{3/2\ M=|1/2|}\ (\theta = 0)$



Угловая зависимость резонанса

$38P_{3/2\ M} + 38P_{3/2\ M} \rightarrow 38S_{1/2} + 39S_{1/2}$



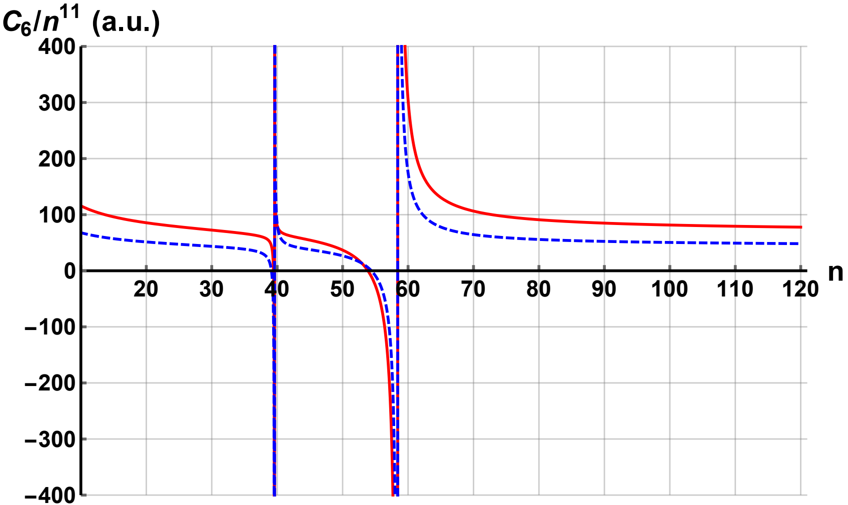
Красная сплошная: $|M| = 1/2$

Черная точечная: $|M| = 3/2$

Синяя пунктирная: полином Лежандра второго порядка

$P_2(cos\theta)/2 = (3cos^2\theta - 1)/2$

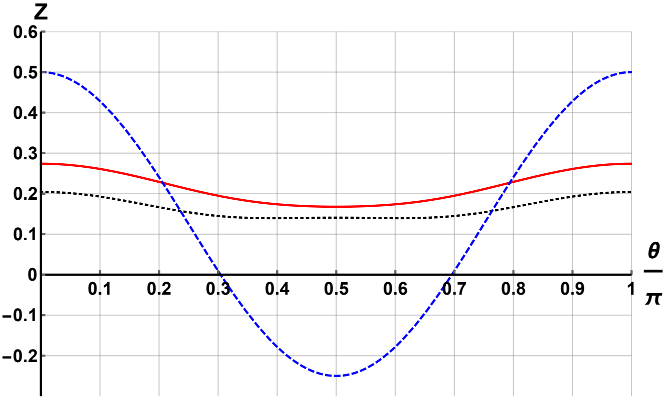
График C6 для $nD_{3/2\ M} + nD_{3/2\ M}$ $(\theta = 0)$



Красная сплошная: $|M| = 1/2$

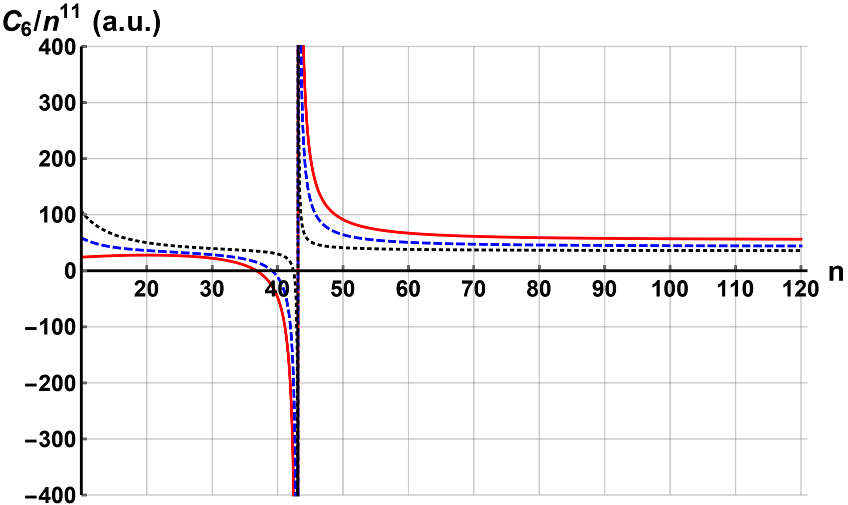
Синяя пунктирная: $|M| = 3/2$

Угловая зависимость резонанса $58D_{3/2\ M} + 58D_{3/2\ M} \to 60P_{1/2} + 56F_{5/2}$



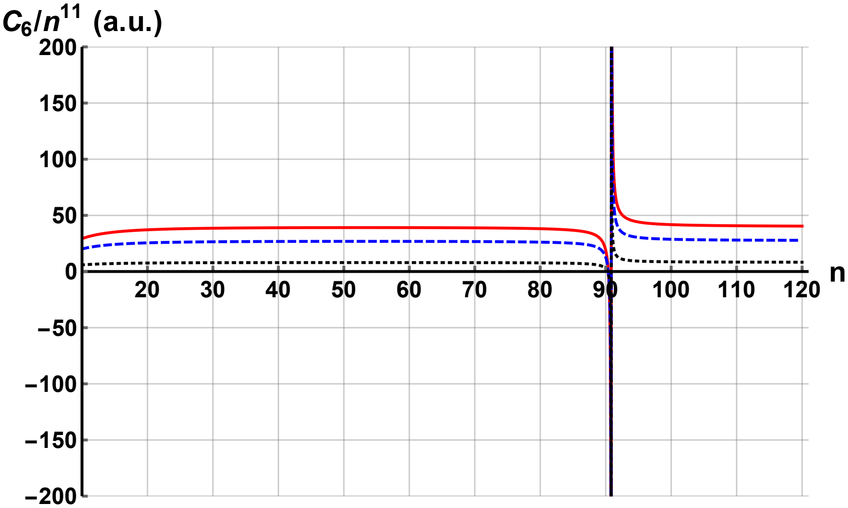
Красная сплошная: $|M| = 1/2$
Черная точечная: $|M| = 3/2$
Синяя пунктирная: полином Лежандра второго порядка
$P_2(cos\theta)/2 = (3cos^2\theta - 1)/2$

График C6 для $nD_{5/2\ M} + nD_{5/2\ M}$ $(\theta = 0)$



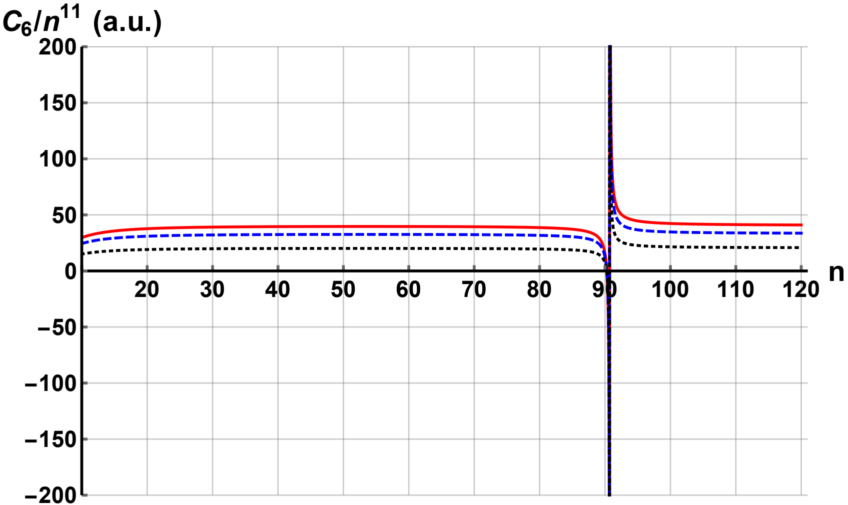
Красная сплошная: $|M| = 1/2$
Синяя пунктирная: $|M| = 3/2$
Черная точечная: $|M| = 5/2$

График C6 для $nF_{5/2\ M} + nF_{5/2\ M}$ $(\theta = 0)$



Красная сплошная: $|M| = 1/2$
Синяя пунктирная: $|M| = 3/2$
Черная точечная: $|M| = 5/2$

График C6 для $nF_{7/2\ M} + nF_{7/2\ M}$ $(\theta = 0)$



Красная сплошная: $|M| = 1/2$

Синяя пунктирная: $|M| = 3/2$

Черная точечная: $|M| = 5/2$

Сведения из литературы

Исходные состояния: $nD_{J=3/2\ |M|=3/2} - nD_{J=3/2\ |M|=3/2}$
Угол $\theta = 0$
Все величины даны в $GHz \cdot \mu m^6$, где:
$1\ a.u. = 1.4448 \times 10^{-19} GHz \cdot \mu m^6$

n	Теория [1]	Теория [2]	Наш результат	Эксперимент [1]
53	16.9 ± 1.7	16.6	15.5927	13.7 ± 1.2
62	766 ± 15	766	770.715	730 ± 20
82	8870 ± 150	8864	8872.19	8500 ± 300

[1] L. Beguin et al., *Physical Review Letters, 110:263201, 2013.*

[2] Christophe L. Vaillant, *Long-Range Interactions in One- and Two-Electron Rydberg Atoms, Durham theses, Durham University, 2014.*

Обсуждение

Вопросы ?