

强磁场中 Rydberg NO 分子的回归谱研究*

李洪云^{1)†} 刘 伟²⁾ 林圣路³⁾

1) (莱芜职业技术学院信息工程系, 莱芜 271100)

2) (济南大学新闻中心, 济南 250022)

3) (山东师范大学物理与电子科学学院, 济南 250014)

(2009 年 12 月 8 日收到; 2009 年 12 月 22 日收到修改稿)

利用分子的闭合轨道理论和多通道量子亏损理论, 考虑核的转动影响, 计算了 Rydberg NO 分子在外磁场中的回归谱. 研究表明, 复杂谱的结构可以用包含分子实散射的闭合轨道理论来解释, 不管是同一通道内的弹性散射还是不同通道间的非弹性散射都起着非常重要的作用, 尤其是较大标度作用量下, 散射作用远大于基本轨道和重复轨道的贡献, 很大程度上影响着体系的动力学性质.

关键词: 闭合轨道理论, 多通道量子亏损理论, 回归谱

PACC: 0365S, 1120

1. 引 言

原子与分子的高 Rydberg 态在外磁场中的振荡问题是原子分子物理的前沿领域, 是典型的非线性、非微扰问题, 表现出复杂的标度律. 这一问题的解决可以促进原子分子物理学基础理论的发展, 同时更加深了对经典力学和量子力学之间联系的认识. 着眼于大标度范围的有限分辨率下谱分析的闭合轨道理论经过检验是行之有效的半经典理论方法, 准确地反映了量子跃迁中普遍隐藏着的多周期现象^[1,2]. 目前为止, 人们已经用半经典闭合轨道理论对强场中高 Rydberg 态原子的光吸收谱作了广泛的研究, 分析了该体系在各种外场中的性质, 如轨道的稳定性、分岔问题、混沌现象、波包动力学等, 不仅从各个角度验证了该理论的正确性, 而且发展了回归谱学、标度律、能级统计学等方法^[3-6]. 相对于强场中原子的光吸收谱, 由于分子的复杂性, 对分子的研究还处于初级阶段. Matzkin 和 Monterio 等^[7,8] 利用多通道量子亏损理论将闭合轨道理论从原子推广到分子, 计算了 H₂ 分子在磁场中的回归谱, 为研究较大分子体系提供了重要的理论基础. Wang 等^[9] 结合一个新的模型势, 计算了 H₂ 分子在

平行电磁场中的回归谱. Wang^[10] 和王晓艳等^[11] 分别计算了 He 分子离子在磁场中和平行电磁场中的回归谱. 相对于 H₂ 分子、He 分子离子而言, NO 分子是一个相对复杂的体系, 理论分析比较困难. Matzkin 等^[12] 测量了 NO 分子在磁场中的实验回归谱. 王雅静等^[13] 利用半经典散射矩阵理论只计算了长程散射矩阵元的谱函数, 分析了长程散射矩阵元与闭合轨道的关系. 本文利用分子的闭合轨道理论和多通道量子亏损理论, 考虑核的转动影响, 计算了 NO 分子在外磁场中的回归谱. 计算结果表明, 复杂谱的结构可以用包含分子实散射的闭合轨道理论来解释; 不管是同一通道内的分子实散射还是不同通道间的分子实散射都起着非常重要的作用, 很大程度上影响着体系的动力学性质. 通过单个通道的谱结构分析, 进一步说明了在复杂分子体系中组合回归的重要性, 尤其在较大标度作用量情况下, 分子实散射导致的组合轨道的作用远远大于基本轨道及其重复轨道的作用.

2. 理论与方法

2.1. NO 分子在磁场中的物理图像

作为较复杂的 NO 分子, 其内部存在 2 个核、15

* 国家自然科学基金 (批准号: 10774093, 10604045) 和山东省高等学校科技计划 (批准号: J09LA02) 资助的课题.

† E-mail: li5776@yahoo.com.cn

个电子,其基态电子结构为 $(1s\sigma)^2(1s\sigma^*)^2(2s\sigma)^2(2s\sigma^*)^2(2p\sigma)^2(2p\pi)^4(2p\pi^*)$. 根据分子的闭合

轨道理论,Rydberg 态 NO 分子在磁场中的激发动力学行为如图 1 所示^[12]:

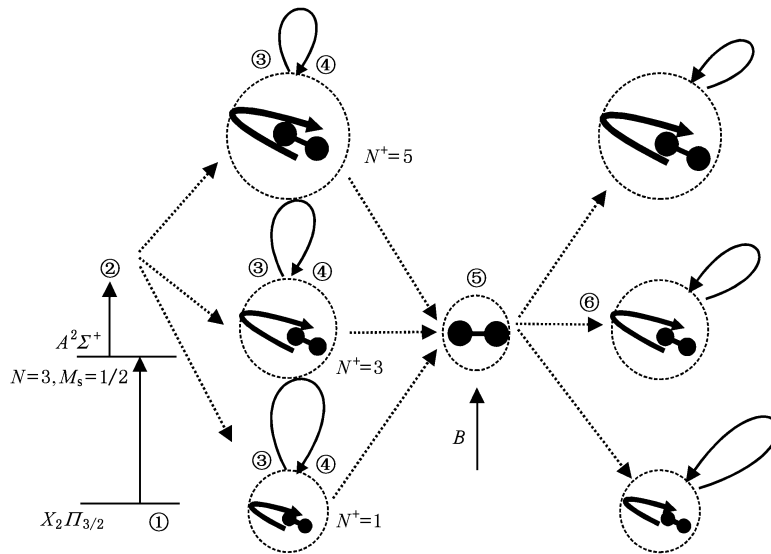


图 1 Rydberg 态 NO 分子在磁场中的激发动力学过程

整个过程可以分为下面 6 部分:(1)一束脉冲激光将 NO 分子从基态 $X^2\Pi_{3/2}$ 通过一个双光子跃迁激发到中间态 $A^2\Sigma^+$, $N=3$. 高精度的探测激光又将分子从中间态 $A^2\Sigma^+$ 激发到轨道角动量 $l=1$ 和 3 的 Rydberg 态. (2)经过这一激发过程后,Rydberg 电子和分子实解除耦合,分子实可以发生自由转动,转动量子数为 $N^+=1, 3, 5$. (3)当 Rydberg 电子离开分子实区后,它的动力学行为可以用经典轨迹来描述,分子的能量在 Rydberg 电子和分子实之间发生分配,当分子实的转动能量增加时,Rydberg 电子的能量减小. (4)在外场的作用下,一些电子轨迹(几何的闭合轨道)又返回到分子实,这些轨道和抗磁 H 原子中存在的闭合轨道是类似的. (5)当 Rydberg 电子进入分子实区后,又和分子实发生耦合作用. 沿闭合轨道传播的电子波和初始的偶极激发态波发生重叠,导致了振子强度中的振荡. (6)电子被分子实散射后,解除耦合,又沿经典轨迹传播;在散射过程中,电子和分子实交换能量. 最终,一些轨迹再次返回到分子实处,产生组合轨道. 组合轨道包含弹性和非弹性实散射引起的两种闭合轨道,对振子强度产生进一步的振荡.

2.2. 强场中 NO 分子的闭合轨道理论

根据 Rydberg 电子的运动特点,把整个研究空

间分为 3 个区域:分子实区、绕实 Coulomb 区、长程区. 在分子实附近,激光场和分子实的作用存在而外场可以忽略,电子和分子轴发生强耦合,并且可以用分子的 Born-Oppenheimer 基矢描述,好量子数为 $|\alpha\rangle = |A_\alpha J_\alpha I_\alpha\rangle$, α 是本征通道, A 是电子的角动量在分子轴上的投影, J 是总的角动量, I 是外层电子的轨道角动量. 远离分子实区,即长程区,激发态电子的动力学主要由分子实的 Coulomb 力所决定;电子和分子轴解除耦合. 由于外场的作用,基矢近似为 $|j\rangle = |N_j l_j m_j\rangle$, 在沿磁场方向的实验室坐标系下, l 是量子化的, N 是自由转动核的角动量, j 是分解转动通道, m 是磁量子数. 在离核很远的地方,电子沿外场方向发生进动. 电子和核的脱耦动力学可看作是从本征通道 $|\alpha\rangle$ 到转动通道 $|j\rangle$ 的一个单一的正交变换得到的,其中的变换矩阵元由 $U_{j\alpha}$ 给出^[14]. 在绕实 Coulomb 区,外场的影响和分子实的 Coulomb 力的作用相当,分子的波函数用未耦合的结构描述. 我们的方法是在分子实区用量子力学的方法处理,在长程区用半经典方法解决,然后在两种方法都适用的绕实 Coulomb 区域将两个解进行衔接.

在分子实区域,电子的动力学与分子实的转动发生耦合. 分子最初位于中间态 $A^2\Sigma^+$,外场的作用可以忽略. 对 NO 分子的最外层电子来说, $l=0, 2$.

在分子体系中,波函数用耦合的基矢描述为

$$|\Psi_0\rangle = |\Lambda J l \lambda\rangle F_{l=0,2}(r), \quad (1)$$

其中 $F_{l=0,2}(r)$ 是激发态电子的径向波函数. 假定激光沿 z 轴线性极化,偶极算符 \hat{D} 沿空间固定的坐标系. 光激发发生在靠近核的区域,最终的出射波由 $GD|\Psi_0\rangle$ 给定^[15], 其中 G 是量子力学 Green 函数.

出射波函数可以写为

$$\Psi_{\text{out}}(r) = -2^{5/2}\pi \sum_j |j\rangle g_{l_j}^+(r') \sum_{\alpha} e^{i\pi\mu_{\alpha}} U_{j\alpha} D_{\alpha}, \quad (2)$$

其中

$$D_{\alpha} = \int 2^{3/2} r'^3 dr' [(f_{l_{\alpha}}(r') \cos\pi\mu_{\alpha} + g_{l_{\alpha}}(r') \sin\pi\mu_{\alpha}) \times \langle \alpha | D [|\Lambda J l \lambda\rangle F_{l=0,2}(r')]]. \quad (3)$$

当出射波进入长程区后,外场不能忽略,波按照半经典规律传播. 在长程区分子的波函数可写为

$$\Psi(r, \theta) = \sum_{N_j m_j} |N_j m_j\rangle \Psi^{N_j m_j}(r, \theta), \quad (4)$$

其中 $\Psi^{N_j m_j}(r, \theta)$ 是与分子实状态 $|N_j m_j\rangle$ 相连的半经典波函数

$$\Psi^{N_j m_j}(r, \theta) = \sum_k \Psi_{\text{out}}^{N_j m_j}(r_i, \theta_{ik}) \left| \frac{r_i^2 \sin\theta_{ik}}{r^2 \sin\theta} \right|^{1/2} A_k^{N_j m_j}(r, \theta) \times \exp[i(S_k^{N_j m_j}(r, \theta) - \omega_k^{N_j m_j} \pi/2)]. \quad (5)$$

A_k 和 S_k 是第 k 条轨迹在二维坐标平面的经典振幅和作用量, ω_k 是 Maslov 指数, 上标 $N_j m_j$ 是指必须计算的经典轨迹的能量. $\Psi_{\text{out}}^{N_j m_j}(r_i, \theta_{ik})$ 是初始球面上与态相连的波函数

$$A_k^n = \begin{cases} \left\{ \hbar_{\text{eff}}^{1/2} |\sin\theta_{ik} \sin\theta_{fk}|^{1/2} \left\{ 2^{1/2} \cos \frac{\theta_{ik}}{2} \cos \frac{\theta_{fk}}{2} m_{12} \right\}^{-1/2} \right\} & (\theta_{ik} \neq 0, \pi) \\ \left\{ \hbar_{\text{eff}} \left\{ 2^{1/2} m_{12} \right\}^{-1} \right\} & (\theta_{ik} = 0, \pi) \end{cases}, \quad (10)$$

其中 m_{12} 是第 k 条闭合轨道第 n 次返回原子核的稳定矩阵元.

散射波函数包括 Coulomb 散射波 $\Psi_{\text{Coul}}^l(r)$ 和分子实散射波 $\Psi_{\text{core}}^l(r)$ 两部分, Coulomb 散射波 $\Psi_{\text{Coul}}^l(r)$ 表示为

$$\Psi_{\text{Coul}}^l(r) = e^{2i\sqrt{8r_f}} e^{-i\pi} \Psi^{N_j m_j}(r_f, \theta_f). \quad (11)$$

和原子的闭合轨道理论类似, Coulomb 散射波被 Coulomb 场发生强的背向聚焦, 使得轨迹沿原先的轨道背向传播, 而不改变核的状态. 它们对光吸收谱的振荡可以通过记录轨迹的重复次数进行计算.

$$\Psi_{\text{out}}^{N_j m_j}(r_i, \theta_{ik}) = -i2^{3/4} \pi^{1/2} r_i^{-3/4} \sum_{l_j \geq 1 m_j} (-1)^{l_j} Y_{l_j m_j}(\theta_{ik}) \times e^{i(\sqrt{8r_i} - 3\pi/4)} \sum_{\alpha} e^{i\pi\mu_{\alpha}} U_{j\alpha} D_{\alpha}. \quad (6)$$

在外场的作用下, 长程区的一些轨迹最后又返回到分子实区, 在该区域外场的作用很弱, 不考虑外场的作用, 可用未耦合基矢的多通道量子亏损理论展开描述

$$\Psi^l(r) = \sum_j |j\rangle \sum_{j'} c_{j'} [\delta_{jj'} f_{l_j}(r) + T_{jj'} g_{l_j}^+(r)], \quad (7)$$

其中上标 1 表示第一次返回到分子实区.

根据闭合轨道理论, 第一次返回波的振子强度的振荡部分是初始激发态波函数和第一次返回波函数的叠加

$$f_1 = \langle \Psi_0 | D | \Psi^l \rangle = \sum_{\alpha} c_{\alpha} e^{i\pi\mu_{\alpha}} 2^{-3/2} D_{\alpha}^* = \hbar^{1/2} 2^{15/2} \pi^{5/2} \sum_j \left\{ \sum_{\alpha, \alpha'} D_{\alpha} D_{\alpha'}^* e^{i\pi(\mu_{\alpha} + \mu_{\alpha'})} \right\} \sum_k R_k^j, \quad (8)$$

其中 $c_{\alpha} = \sum_j U_{\alpha j} c_j$ 指分解通道中的闭合轨道返回波在本征通道 $|\alpha\rangle$ 中再组合的概率.

$$R_k^j = |\sin\theta_{ik} \sin\theta_{fk}|^{1/2} r_f^{-1/4} A_k^{N_j m_j}(r_f, \theta_{fk}) \times \exp[i(S_k^{N_j m_j} - \omega_k^{N_j m_j} \pi/2 - 3\pi/4)] \times \sum_{l_j \geq 1 m_j} \sum_{l_j' \geq 1 m_j'} (-1)^{l_j'} Y_{l_j m_j}(\theta_{ik}) (-1)^{l_j'} \times Y_{l_j m_j}^*(\theta_{fk}). \quad (9)$$

A_k^j 是二维轴向平面内轨迹的经典振幅, 可以通过计算半抛物坐标系中一个 2×2 的稳定矩阵得到^[16]

$\Psi_{\text{core}}^l(r)$ 代表分子实散射波

$$\Psi_{\text{core}}^l(r, \theta) = \sum_{N_j m_j} |N_j m_j\rangle \sum_{l_j} Y_{l_j m_j}(\theta) g_{l_j}^+ \sum_{j'} c_{j'} T_{jj'}. \quad (12)$$

每一条从分子实状态 $|N_j m_j\rangle$ 出发的新的出射波是来自分子实状态为 $|N_j m_j\rangle$ 沿 j' 通道的返回波又散射进入 j 通道的出射波. 这些出射波离开分子实区后, 沿半经典规律传播到长程区. 在长程区, 分子实散射波可以描述为

$$\Psi_{\text{core}}^l(r, \theta) = \sum_{N_j m_j} |N_j m_j\rangle \Psi_{\text{core}}^{N_j m_j}(r, \theta), \quad (13)$$

其中

$$\begin{aligned} \Psi_{\text{core}}^{N_j m_j}(r, \theta) = & \sum_q [i\pi^{-1/2} 2^{-7/4} r^{-3/4} e^{i(\sqrt{8}r_i - 3\pi/4)} \sum_{j'} c_{j'} T_{j'} \\ & \times \sum_{l_j \geq 1, m_j} Y_{l_j m_j}(\theta_{iq}) (-1)^{l_j} \left| \frac{r_i^2 \sin \theta_{iq}}{r^2 \sin \theta} \right|^{1/2} \\ & \times A_q^{N_j m_j}(r, \theta) \exp[i(S_q^{N_j m_j}(r, \theta) \\ & - \omega_q^{N_j m_j} \pi/2)] . \end{aligned} \quad (14)$$

一些轨迹 q 最终又返回到分子实附近, 返回波可以和多通道量子亏损理论展开相连接

$$\Psi^2(r) = \sum_j |j\rangle \sum_{j'} d_{j'} [\delta_{jj'} f_{l_j}(r) + T_{jj'} g_{l_j}^+(r)] . \quad (15)$$

其中上标 2 代表第二次返回到分子实区. 系数 d_j 可以通过把这一展开和半经典返回波的连接得到, 系数 d_j 中包含

$$\begin{aligned} & \sum_{k, q} A_q^{N_j m_j} \exp[i(S_q^{N_j m_j} - \omega_q^{N_j m_j} \pi/2)] A_k^{N_j m_j} \\ & \times \exp[i(S_k^{N_j m_j} - \omega_k^{N_j m_j} \pi/2)] . \end{aligned} \quad (16)$$

显然, 这一项把与核态 $|N_j, m_j\rangle$ 相关的经典轨迹 k 与核态 $|N_j, m_j\rangle$ 有关的经典轨迹 q 联系在一起.

第二次返回波对振子强度的贡献可以由第二次返回波和初始激发态波的重叠得到

$$\begin{aligned} f_2 = & \langle \Psi_0 | D | \Psi^2 \rangle \\ = & \sum_{\alpha} d_{\alpha} e^{i\pi\mu_{\alpha}} 2^{-3/2} D_{\alpha}^* \\ = & \sum_{j, j'} \left\{ \sum_{\alpha, \alpha'} U_{j'\alpha'} U_{\alpha} D_{\alpha} D_{\alpha'} e^{i\pi(\mu_{\alpha} + \mu_{\alpha'})} \right\} \\ & \times [\hbar^{1/2} 2^{15/4} \pi^{5/2} \sum_k R_k^j] \\ & \times [\hbar^{1/2} 2^{11/4} \pi^{3/2} T_{jj'} \sum_q R_q^j] , \end{aligned} \quad (17)$$

其中, 经典量 R_k^j 由方程(9)给出. 求和包括所有的闭合轨道及其重复轨道. 最后一项代表连续发生实散射的轨道的贡献, 加一量子散射矩阵元 $T_{jj'}$ 作为权重因子, 跃迁振幅把离开 j 通道和进入 j' 通道的波联系在一起. 因此, 方程(17)同时含有弹性散射 ($E_j = E_{j'}$) 和非弹性散射 ($E_j \neq E_{j'}$) 的贡献. 对于单通道散射的情况, 上式约化为原子情况的实散射近似. 相同的过程不断重复进行, 第二次返回到分子实区的波又被分子实发生散射, 从而产生新的出射波, 由下式给出: $\sum_j |j\rangle \sum_{j'} d_{j'} T_{jj'} g_{l_j}^+(r)$.

在每一连续的过程中, 额外的项 $A_q \dots A_k e^{i(S_q + \dots + S_k)}$ 都被附加到前面的结果. 因此, 在每一连续的迭代过程中, 越来越多的轨道的组合都包括在内. 对振子强度的总的贡献可以通过(8)和(17)式的叠加得到.

对于固定的标度能量 ε , 光吸收率可以表示为

$$f(w) = \frac{2}{\pi} \sqrt{\frac{w}{2\pi}} \sum_p \text{Im} \langle \Psi_0 | D | \Psi^p \rangle , \quad (18)$$

上标 p 标记电子返回到核区的次数. 当电子返回到核区的次数为 2 时,

$$\begin{aligned} f(w) = & 2^{19/4} \pi^{3/2} \sum_j \sum_{\alpha} \sum_{\alpha'} \text{Im} | u_{\omega} D_{\alpha} D_{\alpha'} e^{i\pi(\mu_{\alpha} + \mu_{\alpha'})} \\ & \times [U_{j\alpha'} \sum_k \tilde{R}_k^j + \hbar_{\text{eff}}^{1/2} 2^{11/4} \pi^{3/2} \\ & \times \sum_{j'} u_{j'\alpha'} T_{jj'} \sum_k \tilde{R}_k^{j'} \sum_q \tilde{R}_q^j] \} , \end{aligned} \quad (19)$$

$$\begin{aligned} \tilde{R}_k^j(w) = & |\sin \theta_{ik} \sin \theta_{fk}|^{1/2} \tilde{r}_f^{-1/4} A_k^{N_j m_j}(r_f, \theta_{fk}) \\ & \times \exp[i(2\pi w \tilde{S}_k^{N_j m_j} - \omega_k^{N_j m_j} \pi/2 - 3\pi/4)] \\ & \times \sum_{l_j \geq 1, m_j} \sum_{l_j' \geq 1, m_j'} (-1)^{l_j} Y_{l_j m_j}(\theta_{ik}) (-1)^{l_j'} \\ & \times Y_{l_j' m_j'}^*(\theta_{fk}) . \end{aligned} \quad (20)$$

Fourier 变换回归谱在 $[w_1, w_2]$ 间隔内进行计算, 令 $\delta = (w_1 + w_2)/6$, $w_0 = (w_1 + w_2)/2$, 得到

$$f(\tilde{S}) = \left| \int_{w_1}^{w_2} f(w) e^{-i\tilde{S}w} e^{-(w-w_0)^2/(2\delta)} dw \right| . \quad (21)$$

3. 计算结果和讨论

对高激发 Rydberg 态的 NO 分子, 只有一个电子被激发到高 Rydberg 态, 其他电子均处于基态, 并且假定外磁场沿 Z 轴, 在原子单位中此激发电子的 Hamilton 量可写为

$$H = \frac{p^2}{2} + \frac{1}{8} \gamma^2 \rho^2 + B_{\gamma} N^{+2} - \frac{1}{r} , \quad (22)$$

其中 $\rho = \sqrt{x^2 + y^2}$, $\gamma = B/(2.35 \times 10^5)$, B 为磁场强度, B_{γ} 是 NO⁺ 的转动常数, $B_{\gamma} = 9.112 \times 10^{-6}$ a. u. . N^{+} 为核转动量子数, 根据实验及跃迁定则, 选取 $N^{+} = 1, 3, 5$.

首先确定各个通道的标度能量, 因为当 Rydberg 电子离开核区后, 分子能量分配给 Rydberg 电子和核. 分子能量相应地可写为 $E = E_{N_j m_j}^{\text{el}} + N_j(N_j + 1)B_{\gamma} + m_j \frac{\gamma}{2}$. 当 $N^{+} = 1$, 取标度能量 $\varepsilon = -0.3$ 时, 可以得到 N^{+} 分别等于 3, 5 时, 标度能量 ε 分别近似为 $-0.66, -1.42$.

利用 NO 分子高激发态电子在强磁场中的 Hamilton 量以及与其相对应的经典正则方程, 同时运用辛算法找出强磁场中 NO 分子在 $N^{+} = 1, 3, 5$

的三通道中的所有闭合轨道,在计算中只选取满足标度经典作用量 \tilde{S} 小于 6 的那些闭合轨道. 图 2, 3, 4 分别给出 NO 分子在 3 通道中半抛物坐标下的部分闭合轨道. 从 3 通道的闭合轨道可以看出, $N^+ = 5$ 通道中轨道最少,也最简单,而 $N^+ = 1$ 通道中轨道最多、最复杂. 这主要是由于当 Rydberg 电子离开核区后,分子能量分配给 Rydberg 电子和核. 当转动量子数较大时,即核转动能量比较大时,外部电子的能量就相对地比较小,那么相应地电子只

能做规则运动. 对于 $N^+ = 5$ 的通道,其相应标度作用量 $\varepsilon = -1.42$,其动力学行为近似为规则行为,外场的影响相对较小,在 $\tilde{S} < 6$ 时只有两条基本闭合轨道,即分别平行和垂直于外场方向的两条轨道. 而在 $N^+ = 1$ 的通道,其相应标度作用量 $\varepsilon = -0.3$,其动力学行为是规则运动和不规则运动的混合,轨道数目相对很多,影响也比较大. 另外,对每一条闭合轨道,也计算了它的出射角、返回角、经典作用量、振幅和 Maslov 指数.

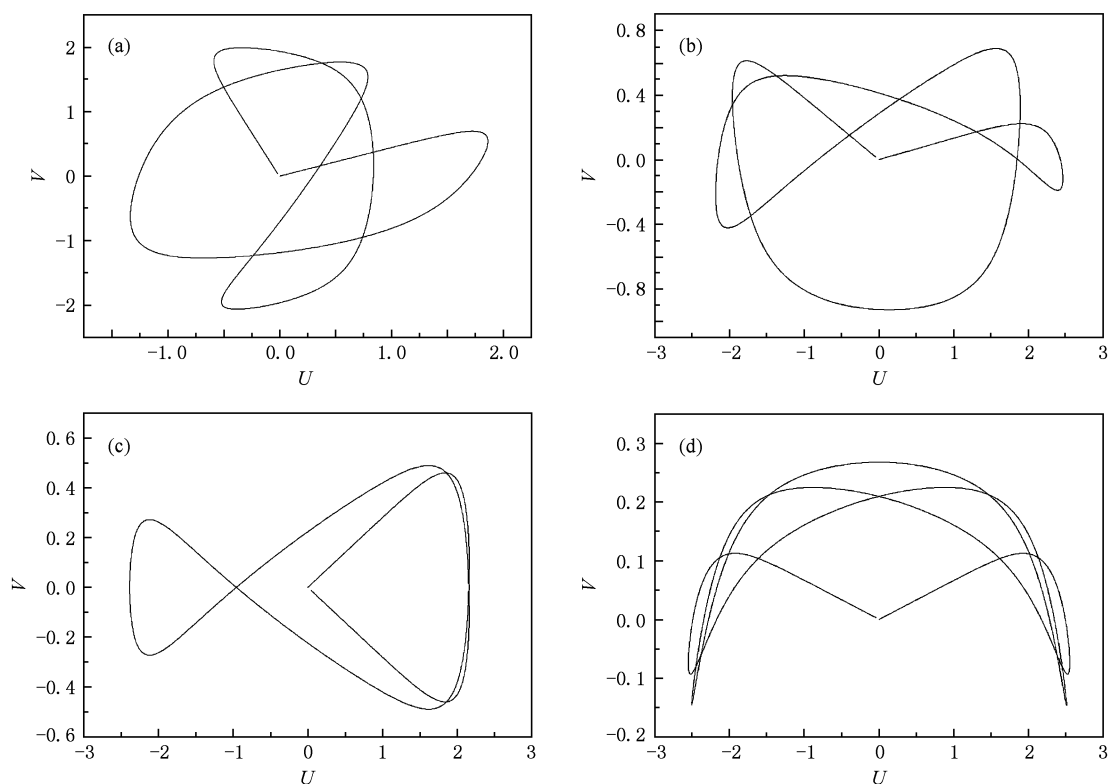
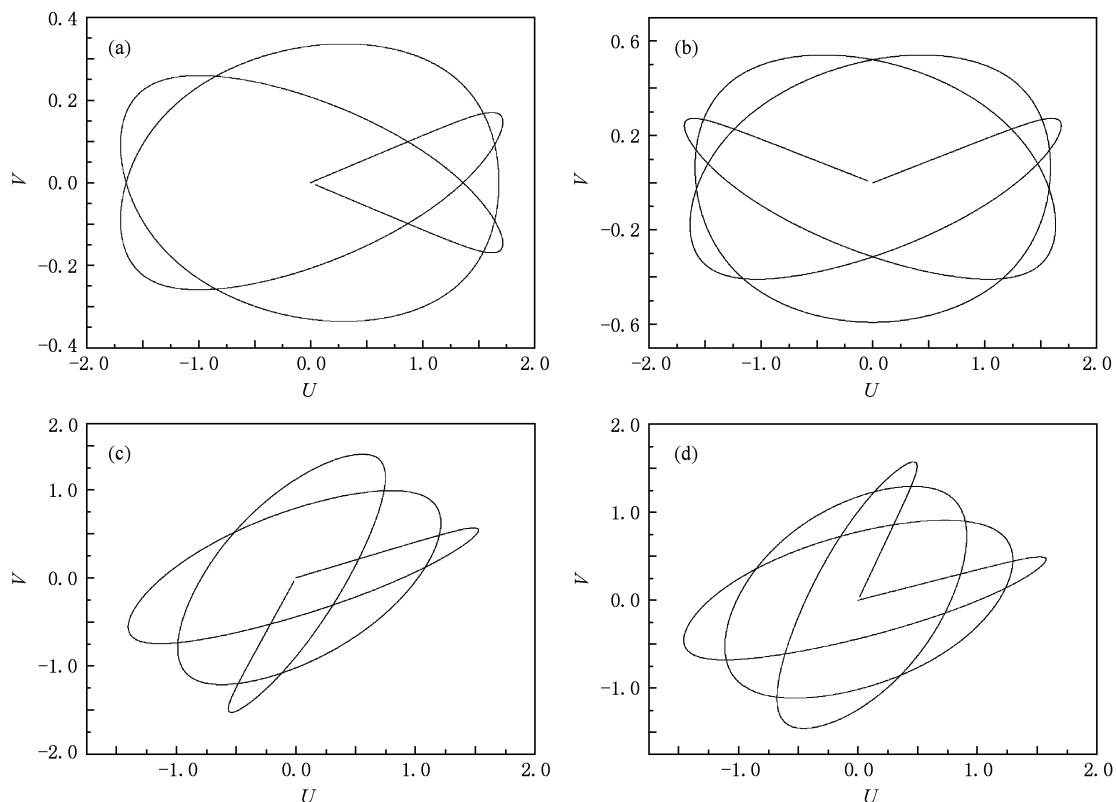
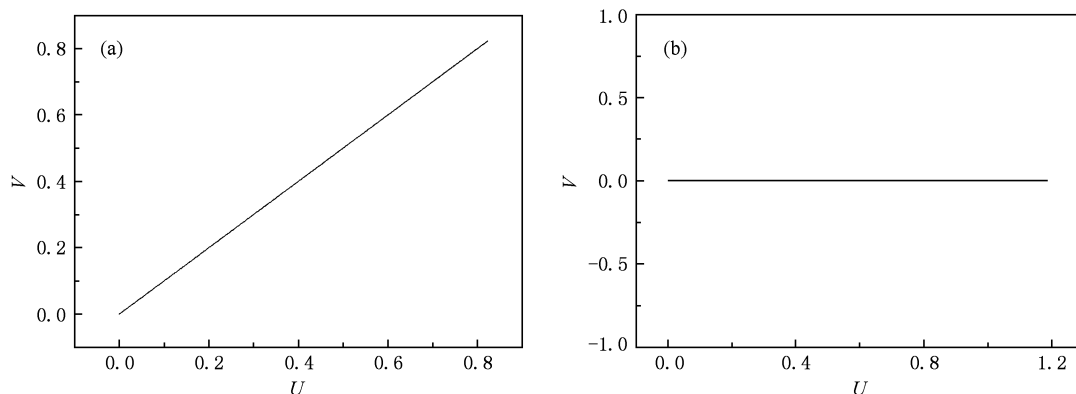


图 2 外磁场中 NO 分子在半抛物坐标下的部分闭合轨道 $N^+ = 1, \varepsilon = -0.3$

在 NO 分子的第一激发态 $A^2\Sigma^+$, Rydberg 电子的轨道角动量是 $l=0$ 和 2 的混合,探测激光将分子激发态 $A^2\Sigma^+$ 激发到 $l=1, 3$ 和 $N=2, 3, 4$ 的末态. 光激发发生在分子体系下, Rydberg 电子和分子实发生耦合,经过激发后,电子和分子实解除耦合, N 不再守恒,但是它的投影 M_N 是守恒的^[17]. 分子可以用绕 NO^+ 实转动的电子描述,转动量子数分别为 $N^+ = 1, 3, 5$. 利用前面找到的 3 个通道的闭合轨道以及它们的重复轨道,我们计算了 NO 分子在磁场中的回归谱,如图 5 所示. 图 5 的上半部分是 NO 分子在磁场中的回归谱,下半部分是不考虑实散射时的回归谱,即只包含基本闭合轨道及其重复轨道的

贡献. 横轴表示闭合轨道的标度作用量,纵轴表示回归谱的模,图 5 每一个尖峰对应着一条闭合轨道. 从图 5 中可以看出,上下两图差别很大,说明实散射在分子中起着极其重要的作用,这是和原子体系明显不同的地方,在原子体系中,小标度作用量范围内,起决定作用的依然是基本闭合轨道及其 Coulomb 散射轨道,实散射引起的弹性散射的作用只是附加了一小部分散射峰. 主要是因为分子体系中,当 Rydberg 电子在外场的作用下返回分子实附近时,会跟分子实发生碰撞,一种是弹性散射,即碰撞过程中没有能量变化,碰撞后电子会还在同一个通道内被弹性散射到另一条闭合轨道而继续向

图3 外磁场中 NO 分子在半抛物坐标下的部分闭合轨道 $N^+ = 3, \varepsilon = -0.66$ 图4 外磁场中 NO 分子在半抛物坐标下的闭合轨道 $N^+ = 5, \varepsilon = -1.42$

外传播,导致了通道内的组合回归. 另一种是非弹性散射,即在碰撞时与分子实交换能量,碰撞后电子从一个通道进入另一个通道,从而导致了通道间的组合回归. 这两种散射在回归谱中都起着重要的作用. 尤其 NO 分子是个相对复杂的极性分子,除 Rydberg 电子外它还有 14 个电子的作用,这些内部电子严重影响了 Rydberg 电子的动力学性质.

为了看出 $N^+ = 1, 3, 5$ 三个通道中各个通道的贡献,图 6—8 分别给出了三个通道单独的回归谱,

图中下半部分是各通道基本轨道和重复轨道导致的回归谱,上半部分为包括基本轨道、重复轨道以及通道内弹性散射引起的组合轨道导致的回归谱,因为只考虑单个通道,所以图中没有通道间的非弹性散射的影响. 从图 6 的比较可以看出,当作用量较小时,上下两图区别较小,而当作用量相对较大时,上下两图明显变化,一是上图的尖峰明显增多,二是峰值明显变大. 这主要是因为通道内弹性散射的作用,当 Rydberg 电子在外场作用下返回分子实

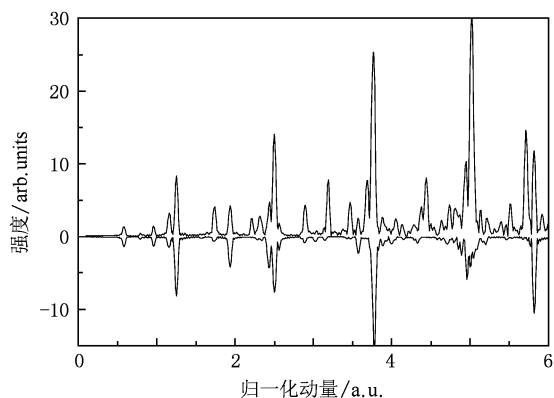


图5 NO分子在磁场中的回归谱 图的上半部分是NO分子的回归谱,下半部分是不考虑实散射的回归谱

附近时,由于分子实的散射作用,使Rydberg电子被弹性散射进入另一条闭合轨道,从而导致了峰数量上的增多. 峰值的变高说明了在分子回归谱中,通道内弹性散射的作用起着重要的作用. 比较图6—8中的纵坐标量级可以看出,通道1尖峰的高度可达30,而通道2仅为1.5,通道3为4,这说明 $N^+ = 1$ 通道起着决定性作用,回归谱的主要贡献来自于 $N^+ = 1$ 通道的闭合轨道. 这主要是因为分子的总能量是一致的, $N^+ = 1$ 通道中分子实的转动能量较小,则Rydberg电子的能量较大,从而闭合轨道复杂,引起的光吸收强度就强,导致了回归谱中的峰值相对较高.

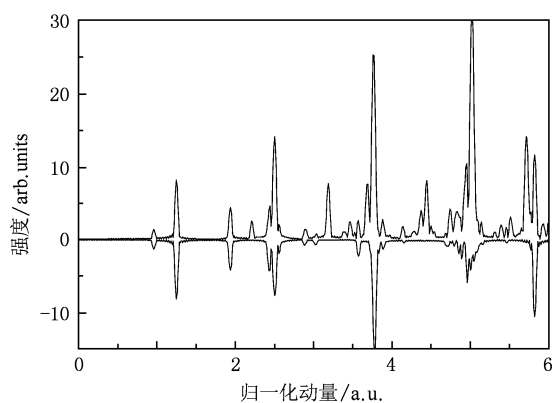


图6 NO分子在磁场中 $N^+ = 1, \varepsilon = -0.3$ 的回归谱 图的上半部分是NO分子的回归谱,下半部分是不考虑实散射的回归谱

4. 结 语

利用分子的闭合轨道理论和多通道量子亏损理论,并结合分区自洽迭代方法,计算了Rydberg

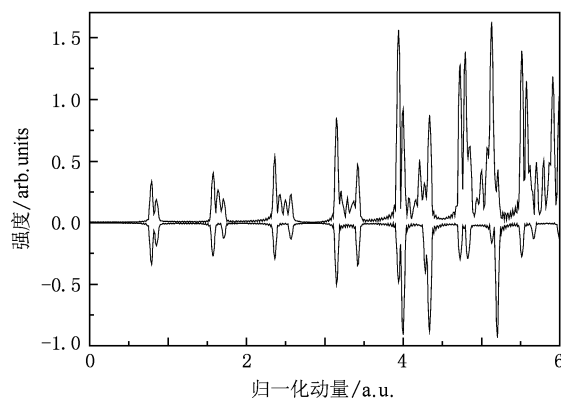


图7 NO分子在磁场中 $N^+ = 3, \varepsilon = -0.66$ 的回归谱 图的上半部分是NO分子的回归谱,下半部分是不考虑实散射的回归谱

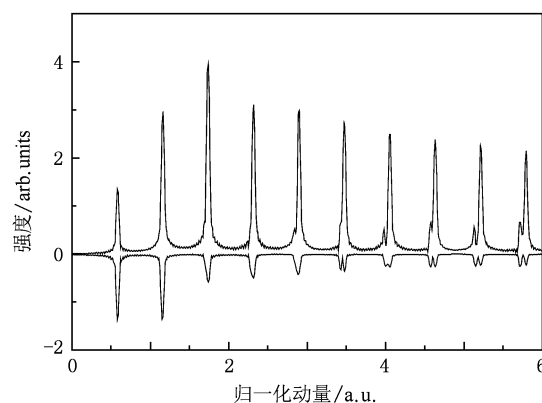


图8 NO分子在磁场中 $N^+ = 5, \varepsilon = -1.42$ 的回归谱 图的上半部分是NO分子的回归谱,下半部分是不考虑实散射的回归谱

NO分子在强磁场中的回归谱,表明复杂谱的结构可以用包含分子实散射的闭合轨道理论来解释. 通过NO分子在强磁场中的回归谱与不包括实散射的回归谱比较,说明了在分子回归谱中,分子实散射起着极其重要的作用,很大程度上影响了体系的动力学性质. 通过不包括非弹性散射的各个通道的回归谱的比较得出,转动量子数 $N^+ = 1$ 的通道作用最强. 在不包括非弹性散射的各个通道的回归谱中,弹性散射起着相当重要的作用,特别是在较大标度作用量的情况下,弹性散射的影响比基本轨道及其重复轨道的影响大. 对于复杂的分子体系,可用的计算方法是很有局限的,以上工作既是对半经典理论的推广,又是对该理论的验证和完善. 目前只研究了外磁场双原子分子在转动通道下的动力学性质,下一步的工作是考虑振动的影响,并推广到更复杂的分子体系.

- [1] Du M L, Delos J B 1988 *Phys. Rev. A* **38** 1896
 [2] Du M L, Delos J B 1988 *Phys. Rev. A* **38** 1913
 [3] Liu Z Y, Wang D H, Lin S L 1996 *Phys. Rev. A* **54** 4078
 [4] Wang D H, Ding S L 2004 *Chin. Phys.* **13** 464
 [5] Gao S, Li H Y, Yang G C, Lin S L 2007 *Chin. Phys.* **16** 2644
 [6] Zhao L B, Du M L 2007 *Phys. Lett. A* **363** 453
 [7] Matzkin A, Monteiro T S 2001 *Phys. Rev. Lett.* **87** 143002
 [8] Matzkin A, Dando P A, Monteiro T S 2002 *Phys. Rev. A* **66** 013410
 [9] Wang D H, Ding S L 2005 *Phys. Rev. A* **71** 013420
 [10] Wang D H, Song X X, Ding S L 2008 *Chin. Phys. B* **17** 599
 [11] Wang X Y, Wang P C, Feng S P, Xie J D 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 1347 (in Chinese) [王晓艳、王鹏程、冯圣平、谢晋东 2008 物理学报 **57** 1347]
 [12] Matzkin A, Raoult M, Gauyacq D 2003 *Phys. Rev. A* **68** 061401
 [13] Wang Y J, Li H Y, Xue Y L, Wang D H, Lin S L 2007 *Acta Phys. Sin.* **56** 6209 (in Chinese) [王雅静、李洪云、薛艳丽、王德华、林圣路 2007 物理学报 **56** 6209]
 [14] Fano U 1970 *Phys. Rev. A* **2** 353
 [15] Du M L 1991 *Phys. Rev. A* **134** 476
 [16] Hüpper B, Main J, Wunner G 1996 *Phys. Rev. A* **53** 744
 [17] Monteiro T S, Taylor K T 1990 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **23** 427

Recurrence spectra of Rydberg NO molecules in a strong magnetic field*

Li Hong-Yun^{1)†} Liu Wei²⁾ Lin Sheng-Lu³⁾

1) (Department of Information Engineering, Laiwu Vocational and Technical College, Laiwu 271100, China)

2) (News Center, University of Jinan, Ji'nan 250022, China)

3) (College of Physics and Electronics, Shandong Normal University, Ji'nan 250014, China)

(Received 8 December 2009; revised manuscript received 22 December 2009)

Abstract

Considering the influence of core rotation, we calculate the recurrence spectra of Rydberg NO molecules in the strong external magnetic field by using the molecular closed orbit theory and the multichannel quantum defect theory. The results indicate that the complicated recurrence spectra can be explained by the molecular closed orbit theory including the molecular core-scattering. Not only the elastic core-scattering effect arising from the intrachannel scattering, but also the inelastic core-scattering effect arising from the interchannel scattering is vital to the dynamical properties of the Rydberg molecule. Especially on the larger scaled action, the contribution of core-scattering is more crucial than that of the primary closed orbits and their repetition, and affects the dynamical properties of system to a large extent.

Keywords: closed-orbit theory, multichannel quantum defect theory, recurrence spectra

PACC: 0365S, 1120

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 10774093, 10604045) and the Shandong Province Higher Educational Science and Technology Program of China (Grant No. J09LA02).

† E-mail: li5776@ yahoo. com. cn