

强场中 NO 分子回归谱的长程散射矩阵 的理论研究*

王雅静¹⁾ 李洪云²⁾ 薛艳丽¹⁾ 王德华³⁾ 林圣路^{2)†}

1) 青岛农业大学理学院, 青岛 266109)

2) 山东师范大学物理与电子科学学院, 济南 250014)

3) 鲁东大学物理与电子工程学院, 烟台 264025)

(2007 年 1 月 31 日收到, 2007 年 3 月 13 日收到修改稿)

采用半经典散射矩阵方法研究外磁场中高里德伯态双原子分子在能量范围为 $77010\text{--}77050\text{cm}^{-1}$ 的回归谱. 通过引进模型势简化强磁场中 NO 分子的高里德伯电子的势函数, 找出其在核转动量子数分别为 $N=1, 3, 5$ 的三个通道中的闭合轨道, 重点分析了强磁场中 NO 分子的长程散射矩阵元实部的傅里叶变换谱与闭合轨道之间的一一对应关系.

关键词: 长程散射矩阵, 回归谱, 模型势, 闭合轨道理论

PACC: 0365S, 1120

1. 引 言

半经典闭合轨道理论由于具有物理图像清晰、理论计算方法简洁等特点已被广泛用来解释高里德伯态原子、分子在强外场中的光吸收现象, 并且成为联系经典力学和量子力学的重要桥梁^[1-3]. 到目前为止, 该理论已经成功地解释了强外场中各种原子的光吸收现象^[4-8]. 对于分子的情况, 理论研究仍处于初级阶段. 这是因为存在以下困难: 首先, 由于分子内核的转动和振动作用, 电子在外场中将发生多通道的散射过程, 在里德伯电子和分子核发生碰撞的过程中, 它们的量子态将会发生改变, 这大大增加了体系的复杂性. 其次, 由于分子存在多个电离域, 无论从理论上分析还是实验上观测分子的光吸收现象都很难实现. 再者, 由于理论计算量浩大, 已给出的理论分析比较少. 在研究里德伯分子的核散射效应中, Matzkin 结合多通道量子亏损理论得到了分子的驻波重排散射公式^[9]. Matzkin 和 Monteiro 等人^[10, 11]利用多通道量子亏损理论将闭合轨道理论从原子推广到了分子, 并且计算了 H_2 分子在磁场中的回归谱, 但无实验结果相对照. Matzkin, Raoult 和

Gauyacq^[12]从实验上测量了 NO 分子在磁场中的光吸收谱, 但是没有从理论上给予计算. 本文在扩展的半经典闭合轨道理论框架内, 把多通道量子亏损理论^[13]与散射矩阵理论相结合推导出长程散射矩阵元公式, 同时采用一种模型势来简化 NO 分子势函数, 计算了强外磁场中 NO 分子的闭合轨道及长程散射矩阵元的谱函数. 通过分析强磁场中 NO 分子的长程散射矩阵元的实部及其傅里叶变换, 表明长程散射矩阵元实部的傅里叶变换谱的振荡来自于闭合轨道的贡献.

2. 理论与方法

半经典散射矩阵理论^[14]可以用来研究原子、分子的散射问题. 此理论中的散射振幅写为能量的矩阵元的形式, 我们把高激发电子运动空间分为长程和短程两部分, 对长程散射矩阵 S^{LR} 做如下半经典近似: 首先把长程散射矩阵写为能量的格林函数, 然后引入 Gutzwiller 的半经典近似, 再利用稳定相近似的方法来估算上述矩阵元.

由变分法获得的长程散射波函数为

* 国家自然科学基金(批准号: 30374061, 10604045)资助的课题.

† E-mail: slin@sdu.edu.cn

$$\underline{M}^{\text{LR}}(r) = \frac{1}{i\sqrt{2}} [\underline{f}^-(r) \underline{S}^{\text{LR}} - \underline{f}^+(r)], \quad (1)$$

其中 $\underline{f}^-(r)$, $\underline{f}^+(r)$ 分别表示道中外场径向薛定谔方程的入射波与出射波, $\underline{S}^{\text{LR}}$ 为长程散射矩阵.

将格林函数按道展开为

$$\mathcal{G}(x, x'; E) = \frac{1}{rr'} \sum_{ij} \Phi_i(\Omega) \tilde{G}_{ij}(x, x'; E) \Phi_j^*(\Omega'). \quad (2)$$

根据格林函数遵从非齐次微分方程以及其在 $r = r'$ 处的边条件, 并结合(1)式, 得到长程散射矩阵与格林函数的关系为

$$\underline{S}^{\text{LR}} = \frac{r_0^2}{ir} [\underline{f}^-(r_0)]^{-1} \underline{\mathcal{G}}(r_0, r_0) [\underline{f}^-(r_0)]^{-1}. \quad (3)$$

根据 Gutzwiller 的迹公式^[1], 利用稳定相位方法得到 S^{LR} 的半经典近似

$$S_{ll', m}^{\text{LR}} = 2^{3/2} \pi^{1/2} \sum_{c.o.} \frac{1}{|\dot{r}|} \sqrt{|A| \sin\theta_i \sin\theta_f} \\ \times \frac{Y_{lm}^*(\theta_f, \rho) Y_{l'm}(\theta, \rho)}{f_l^-(r_0) f_{l'}^-(r_0)} \\ \times \exp\left(iS(\theta_f, \theta_i) - i\mu \frac{\pi}{2} - i \frac{3\pi}{4}\right), \quad (4)$$

其中半经典振幅 $A = \left. \frac{\partial \theta_i}{\partial p_{\theta_f}} \right|_{p_{\theta_i}}$, $S(\theta_f, \theta_i)$ 为半经典作

用量, μ 为马斯洛夫指数. (4) 式中求和包括所有径向地从初始点 (r_0, θ_i) 出发, 在外场作用下又径向返回至 (r_0, θ_f) 处的闭合轨道. 对于相对小匹配半径 r_0 与低轨道角动量的高激发电子来说, 方程(8)可采用零能库仑近似的形式

$$\frac{1}{|\dot{r}| f_l^-(r_0) f_{l'}^-(r_0)} \rightarrow i\pi(-1)^{l+l'} e^{2i\sqrt{8r_0}}.$$

长程散射矩阵元可以近似地写为

$$S_{ll', m}^{\text{LR}} = (2\pi)^{3/2} (-1)^{l+l'} \sum_{c.o.} \sqrt{|A| \sin\theta_i \sin\theta_f} \\ \times Y_{lm}^*(\theta_f, \rho) Y_{l'm}(\theta_i, \rho) \\ \times \exp\left(iS(\theta_f, \theta_i) \right. \\ \left. + 2i\sqrt{8r_0} - i\mu \frac{\pi}{2} - i \frac{3\pi}{4}\right). \quad (5)$$

采用标度变换 $S = w\tilde{S}$, $r_0 = \tilde{r}_0(w/2\pi)^2$, $p_\theta = \tilde{p}_\theta(2\pi/w)$, 其中 $w = \gamma^{-1/3}$, 我们就得到标度变换之后的长程散射矩阵元

$$S_{ll', m}^{\text{LR}}(w) = (2\pi)^{3/2} (-1)^{l+l'} \\ \times \sum_{c.o.} \sqrt{|A| \sin\theta_i \sin\theta_f} Y_{lm}^*(\theta_f, \rho) Y_{l'm}(\theta_i, \rho)$$

$$\times \exp\left(iw\tilde{S} + 2i\sqrt{8r_0} - i\mu \frac{\pi}{2} - i \frac{3\pi}{4}\right) \exp\left(-\tilde{S} \frac{\Delta w}{2}\right). \quad (6)$$

其中 Δw 为洛伦兹宽度, $\exp\left(-\tilde{S} \frac{\Delta w}{2}\right)$ 是衰减因子, 用以限定作用量在较小范围内轨道的贡献. 除特别说明, 文中采用原子单位(a. u.).

3. 结果与讨论

双脉冲激光将 NO 分子从基态 $X^2\Pi_{3/2}$ 激发到转动量子数分别为 1, 3, 5 的高里德伯态. 由于 NO 分子核内部相互作用的复杂性, 若考虑核与每个电子以及每对电子间的相互作用是不可能的, 因此这里采用近似方法: 在核区, 应用 Guass98 算出 NO 分子核内部势的数值分布, 在库仑区和远核区采用近似的球面解析解来表示势

$$V(r) = -\frac{1}{r} [1 + \exp(-ar)],$$

其中指数部分代表核外部区域存在一定概率的电子对势函数的影响. 两者在恰当地方进行拟合, 确定外部球面势的势参数 $a = 3.0$. 假定外磁场沿 z 轴, 哈密顿量可以写为

$$H = \frac{p^2}{2} + \frac{1}{8} \gamma^2 (x^2 + y^2) \\ + B_\gamma N^2 - \frac{1}{r} (1 + e^{-3r}),$$

其中, $\gamma = B(2.35 \times 10^5)$, B 为磁场强度, B_γ 是 NO⁺ 的转动常数, $B_\gamma = 9.112 \times 10^{-6}$, N 为转动量子数, 这里我们选取 $N = 1, 3, 5$.

根据强磁场中高里德伯态 NO 分子的哈密顿量, 应用经典正则方程, 获得 NO 分子在核转动量子数分别为 1, 3, 5, 标度能分别为 -0.48, -0.85, -1.49 的三通道中, 初始出射半径 $r = 12a.u.$ 时的所有闭合轨道. 在计算过程中, 因为 NO 分子的回归谱主要取决于那些作用量较小的闭合轨道的贡献, 我们只选取标度经典作用量小于 10 的那些闭合轨道. 对于每一条闭合轨道, 我们计算了它的经典作用量、振幅、马斯洛夫指数、入射角、出射角. 图 1 给出 NO 分子在三通道中的部分闭合轨道, 横坐标为 ρ 轴, 纵坐标为 z 轴.

根据找出的闭合轨道, 我们计算了强外磁场中高里德伯 NO 分子在各通道间的长程散射矩阵元的实部, 图 2 给出高里德伯态 NO 分子的长程散射矩阵元 $S_{31}^{\text{LR}}(w)$ 的实部. 从图中可以看出, 此矩阵元整

体的振荡是由于实部的余弦函数产生,而其中的尖峰是由于每一条闭合轨道的返回波与初始出射波干

涉产生的.这个矩阵元正比于在长程库仑势与抗磁势共同作用下电子的散射概率幅.

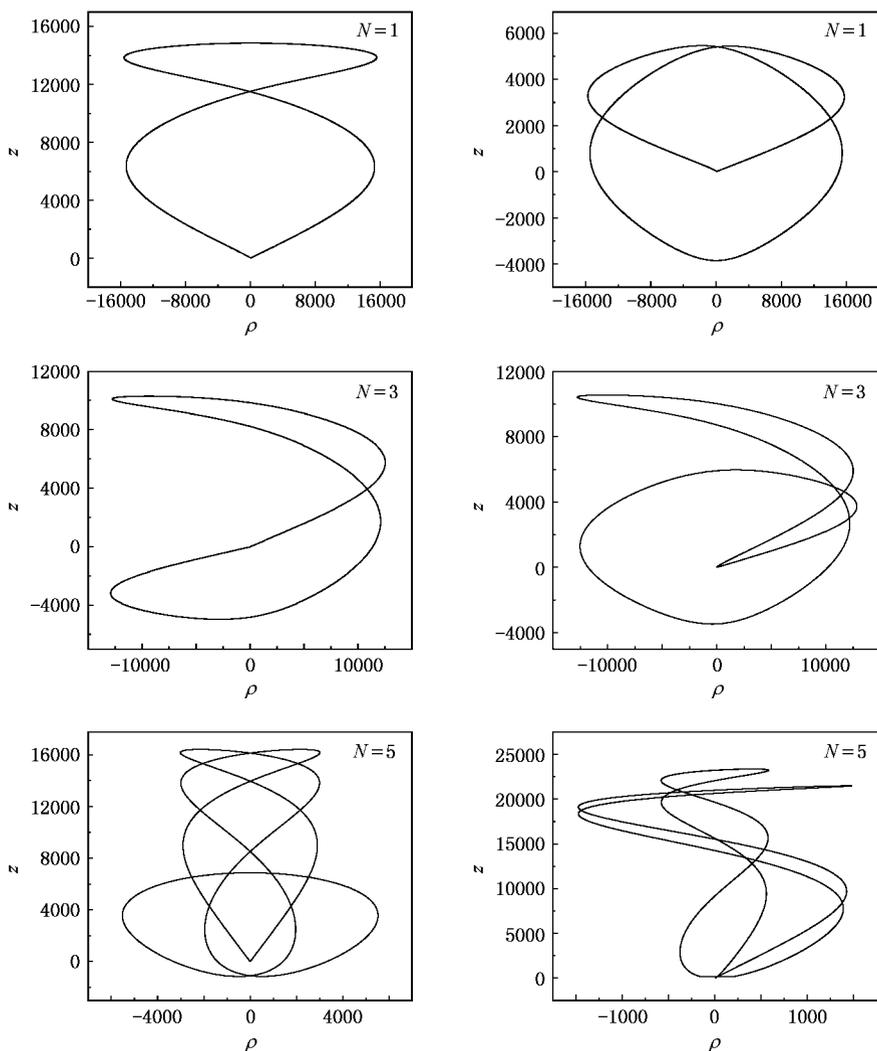


图 1 高里德伯态 NO 分子在强磁场中的部分闭合轨道

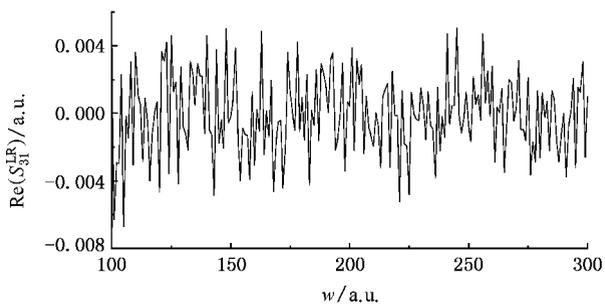


图 2 强磁场中高里德伯态 NO 分子的长程散射矩阵元 $S_{31}^{LR}(w)$ 的实部

谱,因而图 2 中那些杂乱无章的谱变成了一个尖峰.图 3 给出了强磁场中高里德伯态 NO 分子的长

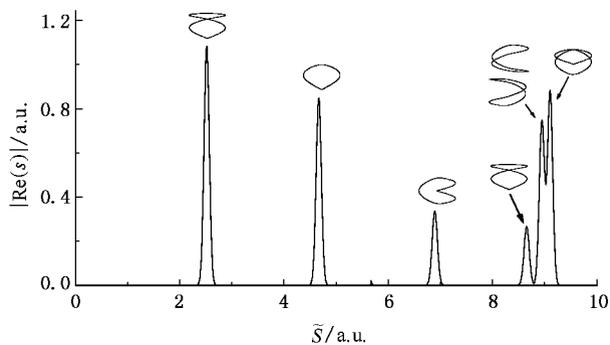


图 3 强磁场中高里德伯态 NO 分子的长程散射矩阵元 $S_{31}^{LR}(w)$ 的傅里叶变换谱

为了更清晰地看出长程散射矩阵元与闭合轨道间的关系,我们将(10)式进行傅里叶变换,得到回归

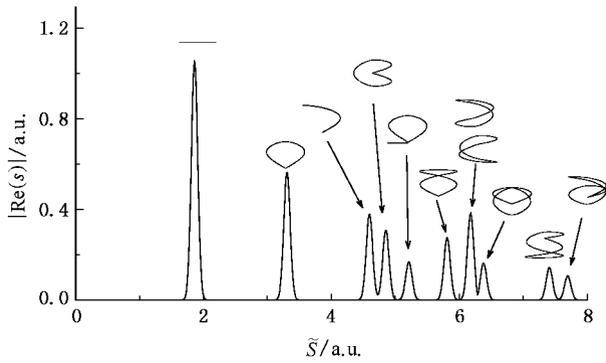


图 4 强磁场中高里德伯态 NO 分子的长程散射矩阵元 $S_{31}^{LR}(w)$ 的傅里叶变换谱

程散射矩阵元 $S_{13}^{LR}(w)$ 的傅里叶变换谱及尖峰对应的闭合轨道. 图中的每一个尖峰对应于一条闭合轨道的贡献, 尖峰的位置由该闭合轨道的标度经典作用量 \tilde{S}_j 标记, 尖峰的强度与 A_j 成正比, 与轨道的稳定性有关, 这说明散射矩阵实部的傅里叶变换谱的

振荡主要是由闭合轨道贡献的. 图 4 给出了强磁场中高里德伯态 NO 分子的长程散射矩阵元 $S_{31}^{LR}(w)$ 的傅里叶变换谱. 与图 3 相一致, 同样体现了长程散射矩阵实部的傅里叶变换谱与闭合轨道之间的一一对应关系.

4. 结 论

本文在扩展的半经典闭合轨道理论框架内, 结合散射矩阵理论, 同时采用一新的模型势来简化 NO 分子的势函数, 找出了强磁场中高里德伯态 NO 分子在核转动量子数 $N = 1, 3, 5$ 三通道中的闭合轨道. 分析了强磁场中 NO 分子的长程散射矩阵元实部的傅里叶变换谱与闭合轨道的关系, 其谱中的大多数峰都有闭合轨道与之相对应, 反映了分子回归谱的主要特征. 当然, 除了模型势方法, 相应短程区的计算也可采用 R 矩阵形式处理, 具体分析将另文讨论.

- [1] Gutzwiller M C 1967 *J. Math. Phys.* **8** 1979
 [2] Du M L, Delos 1988 *Phys. Rev. A* **38** 1896
 [3] Du M L, Delos 1988 *Phys. Rev. A* **38** 1913
 [4] Dando P A, Monteiro T S, Delande D, Taylor K T 1996 *Phys. Rev. A* **54** 127
 [5] Lin S L, Zhang Q J, Zhao K, Song X H, Zhang Y H 2002 *Chin. Phys. Lett.* **19** 29
 [6] Song X H, Zhang Q J, Xue Y L, Zhao K, Li Y, Lin S L 2002 *Chin. Phys.* **11** 656
 [7] Song X H, Lin S L 2003 *Acta Phys. Sin.* **52** 1611 [in Chinese] 宋

晓红、林圣路 2003 物理学报 **52** 1611]

- [8] Wang D H 2007 *Chin. Phys.* **16** 692
 [9] Matzkin A 1999 *Phys. Rev. A* **59** 2043
 [10] Matzkin A, Monteiro T S 2001 *Phys. Rev. Lett.* **87** 143002
 [11] Matzkin A, Dando P A, Monteiro T S 2002 *Phys. Rev. A* **66** 013410
 [12] Matzkin A, Raoult M, Gauyacq D, 2003 *Phys. Rev. A* **68** 061401
 [13] Seaton M J 1983 *Rep. Prog. Phys.* **46** 167
 [14] Granger B E, Greene C H 2000 *Phys. Rev. A* **62** 012511



The long-range scattering matrix of the recurrence spectra of NO molecules in strong field^{*}

Wang Ya-Jing¹⁾ Li Hong-Yun²⁾ Xue Yan-Li¹⁾ Wang De-Hua³⁾ Lin Sheng-Lu^{2)†}

1) *Department of Physics, Qingdao Agricultural University, Qingdao 266109, China*

2) *College of Physics and Electronics, Shandong Normal University, Jinan 250014, China*

3) *College of Physics and Electronic Engineering, Ludong University, Yantai 264025, China*

(Received 31 January 2007 ; revised manuscript received 13 March 2007)

Abstract

The scattering matrix approach to analyze the recurrence spectra of diatomic molecules in strong external magnetic field in the energy range $E = 77010\text{--}77050\text{cm}^{-1}$ is investigated. A new potential model is introduced to simplify the potential of the Rydberg electron of NO in external field. Based on the calculation of semiclassical orbits for the Rydberg states with rotation quantum number $N = 1, 3, 5$, the long-range scattering matrix elements are obtained, which demonstrates that the quantum resonance peaks are intimately related to the corresponding closed orbits.

Keywords : long-range scattering matrix, recurrence spectrum, model potential, closed-orbit theory

PACC : 0365S, 1120

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 10374061 and 10604045).

[†] E-mail : sllin@sdu.edu.cn