

金激光等离子体 X 射线精细结构谱研究*

杨国洪 张继彦 张保汉 周裕清 李 军

(中国工程物理研究院激光聚变研究中心, 绵阳 621900)

(2000 年 1 月 3 日收到, 2000 年 6 月 2 日收到修改稿)

在“星光-Ⅱ”钼玻璃激光装置上, 聚焦三倍频激光束于真空室内 Au 微点靶表面, 形成高剥离态热等离子体光源. 用 Pentaerythritol (PET) ($2d = 0.8742 \text{ nm}$) 平晶谱仪, 摄录了 Au 离子在 0.3—0.4 nm 范围内的 X 射线发射谱. 基于相对论性多组态 Dirac-Fock 程序包, 建立了相对论性次组态平均能计算程序. 结合自旋-轨道劈裂跃迁系 (SOSA) 理论, 计算了 Au 离子类 Cu 至类 Ge 离子细致带结构谱孤立峰的中心波长和半高全宽. 26 条 $3d-n$ ($n = 5, 6, 7$) 类 Ni 至类 As 离子子组态跃迁形成的孤立峰得到了辨认和归类. 此结果在激光等离子体的诊断和高 Z 元素原子结构计算等方面具有重要的应用价值.

关键词: 金, 精细结构, 自旋-轨道劈裂跃迁系, 不可分辨跃迁系, X 射线

PACC: 5225P, 3220R, 5250J

1 引 言

近年来, 高 Z 元素高剥离态离子发射谱引起了人们极大兴趣. 因为它有着深厚的应用背景, 在惯性约束聚变和磁约束聚变的高温等离子体中, 高离化度重材料离子的存在使能量的辐射损耗大大地增加. 这是不利的一面; 另一方面, 由于制作弹丸壳层的高 Z 元素 (如 Au, W 等) 这些杂质离子产生的辐射, 提供了这些等离子体中物理过程的详细信息, 从而可用作等离子体状态诊断和对状态的控制. 但是研究高 Z 元素高离化度等离子体发射谱面临着不同于中、低 Z 元素的特殊挑战, 其原因在于, 高 Z 高离化度等离子体发射谱中, 两个电子组态间多条跃迁线非常接近, 再加上各种展宽效应 (如 Stark 展宽、Doppler 展宽、等离子体的自吸收效应和碰撞展宽等) 和仪器的有限分辨本领, 使得大量的谱线集中在一个较小的波长范围内, 形成了不可分辨的带结构谱. 所以高 Z 元素高剥离态离子发射谱研究一直是离子谱学研究中最具挑战性的课题. 为了对带结构谱进行解释和说明, Bauche-Arnoult 等人^[1]首先提出了不可分辨跃迁系 (UTA) 理论, 后来发展了相对论的自旋-轨道劈裂跃迁系 (spin-orbit-split-arrays, 缩写为 SOSA) 模型理论^[2, 3], 对高 Z 元素重离

子发射的带结构谱成功地进行了解释, 并将其用于激光等离子体的诊断及辐射不透明度计算, 开辟了一个更为广阔的研究领域.

八十年代以来, 国内外学者发表了一些 Au 元素离子谱数据, 主要涉及类镍及其附近几个等电子序列离子的外壳层共振线跃迁, 数据较零散^[4-11]. Kiyokawa 等人^[4]发表了 Au 激光等离子体类 Co 附近等电子序列离子的内壳层跃迁的光谱数据. Zigler 等人^[5]分析了 Au 元素从类 Ni 至类 Ge 离子的 $3d-n$ ($n = 5, 6$) 不可分辨跃迁光谱, 实验数据也来源于 Kiyokawa 等人的实验. Bauche-Arnoult 等人^[6]发表了对 Kiyokawa 等人的实验数据的新解释. Tragin 等人^[7]发表了 Ta 至 Pb 等七种元素类 Ni 共振线及其附近等电子序列离子 $3d-n$ ($n = 5, 6, 7, 8, 9$) 细致带结构谱, $3p-n$ ($n = 4, 5, 6$) 和 $3s-n$ ($n = 4, 5$) 内壳层跃迁的数据, 是相对较系统的实验和理论数据. 在国内, 仅对 Au $n = 3, 4$ 类 Ni 离子谱进行过理论研究^[8].

本工作在“星光-Ⅱ”强激光装置上进行了打靶实验, 用平晶谱仪测量了 Au 离子在 0.3—0.4 nm 范围的 X 射线发射谱. 建立了相对论性次组态平均能计算程序, 结合自旋-轨道劈裂跃迁系理论, 计算了 Au 元素类 Cu 至类 Ge 离子细致带结构谱, 对实验谱进行了分析辨认和归类.

* 国家自然科学基金 (批准号: 19674049) 和中国工程物理研究院基金 (批准号: 20000216) 资助的课题.

2 实验技术和数据处理

在“星光-Ⅱ”钼玻璃激光装置上,聚焦三倍频激光束(波长为 $0.35 \mu\text{m}$)于真空靶室内的固体平面微点靶表面,产生了激光等离子体,形成了高剥离态热等离子体光源.靶直径小于 0.6 mm ,靶的纯度为 99.99% ,激光能量为 $7\text{--}15 \text{ J}$,焦斑直径为 $200\text{--}250 \mu\text{m}$,激光脉宽为 $600\text{--}800 \text{ ps}$.用 PET($2d = 0.8742 \text{ nm}$)平晶谱仪记录了 $0.3\text{--}0.4 \text{ nm}$ 波长范围内软 X 射线谱,采用天津工业用 NIII 型 X 射线胶片单发记录.观测到了十分丰富又极富有特征的共振线和细致带结构谱孤立峰的复合谱.

记录实验的谱片经暗室处理后,用黑密度仪扫描,形成位置与黑度的数据文件.将此文件移植到微机上进行数据处理.数据处理包括数据的光滑(离散褶积滑动变换法)、寻峰、减本底和实验谱波长计算.为了提高波长计算精度,采用常规法和多项式最小二乘法曲线拟合法相结合的方法,使得波长在 $0.3\text{--}0.4 \text{ nm}$ 范围内的单强峰波长误差为 $\pm 0.0002 \text{ nm}$,对弱和宽峰的小于 $\pm 0.0005 \text{ nm}$.

3 理论计算

Bauche-Arnoult 提出的不可分辨跃迁系理论模型,这实际上是一种统计的方法,即把一个不可分辨的跃迁系用跃迁能的权重强度分布来描述,第 n 个分量的通式为

$$\mu_n = \sum_{a,b} [b | H | b - a | H | a]^2 W_{ab} / W, \quad (1)$$

式中 $a \in A, b \in B$ 分别是跃迁系始态和终态,求和是对所有的本征态求和.总权重为

$$W = \sum_{a,b} W_{a,b}. \quad (2)$$

两处主要的特征量是分布的平均波数 T_{av} 和方差 σ^2 .为了与实验比较,必须选择一个线型来描述分布函数,因只有前两级统计分布量已知,最好选用曲线是高斯函数,中心在 μ_1 处,半高全宽度 $\text{FWHM} = 2.355\sigma$.

$$\sigma^2 = \mu_2 - (\mu_1)^2, \quad (3)$$

$$T_{av} = \mu_1 = [E_{av}(B) - E_{av}(A)] - \delta E(B \rightarrow A), \quad (4)$$

式中 $E_{av}(A)$ 和 $E_{av}(B)$ 分别是 A, B 的平均波数, σ^2 和 δE 的数值计算公式可以用 Racah 代数和二次量子化方法推导出,它们可表示为直接库仑积分 F^k , 交换积分 G^k 和自旋-轨道积分 ξ 的线性组合, Bauche-Arnoult 详细给出了不同类型跃迁系的 σ^2 和 δE 的解析表达式^[3].

由于 F^k 和 G^k 随 $(Z - S)$ 线性变化 (S 为屏蔽因子),而 ξ 是近似地随 $(Z - S)^2$ 变化,所以对于高 Z 元素,自旋-轨道积分 ξ 起决定作用,因而一个 nl 相同的跃迁系又劈裂成若干个纯 jj 耦合的子跃迁系,形成彼此分开的孤立峰.

对 ^{79}Au 元素,我们用 SOSA 理论公式计算了 $3d-n(n=5,6,7)$ 类 Ni 及其附近等电子序列离子的 $(nlj)^{N+1} - (nlj)^N n' l' j' - (nlj)^N n' l' j' - (nlj)^N n'' l'' j''$ 和 $(nl)^N n' l' j' - (nl)^N n'' l'' j''$ 类型的 jj' 跃迁带的平均波长和半高全宽度.其中所涉及到的 F^k, G^k 和相对论组态平均能,国外均采用相对论多参数势方法 (RELAC) 得到,国内尚无此程序;当前国内常用的相对论性原子结构计算程序是多组态 Dirac-Fock 程序包 (MCDF),该程序未能给出组态平均能计算子程序,不能直接获得组态平均能的数据,本工作通过调用若干 MCDF 程序包中的子程序,建立相对论性(即次组态)平均能的计算程序得到次组态平均能.在计算中,考虑 $l(l=s, p, d, f)$ 电子为旁观电子,对于类 Cu 离子选 $4s, 4p, 4d, 4f$ 为旁观电子,类 Zn 离子选 $4s, 4p, 4s, 4d, 4s, 4f, 4p^2, 4p, 4d, 4p, 4f, 4d^2, 4d, 4f, 4f^2$ 为旁观电子,类 Ga 离子选 $4s^2, 4p, 4s^2, 4d, 4s^2, 4f, 4s, 4p^2, 4s, 4p, 4d, 4s, 4p, 4f$ 为旁观电子,类 Ge 离子选 $4s^2, 4p^2, 4s^2, 4p, 4d, 4s^2, 4p, 4f, 4s^2, 4p^2, 4s^2, 4p, 4d, 4s^2, 4p, 4f, 4s^2, 4d^2, 4s^2, 4d, 4f, 4s, 4p^3, 4s, 4p^2, 4d, 4s, 4p^2, 4f$ 为旁观电子.所以每个 jj' 跃迁系实际上是多个线跃迁的高斯函数的叠加.具体结果见表 1 和表 2,表中取类 Ni 离子共振线实验谱的半高全宽度为 0.00065 nm .

4 结果与分析

^{79}Au 元素在 $0.3\text{--}0.4 \text{ nm}$ 范围内的激光等离子体 X 射线发射谱,呈现出一系列孤立的峰(见图 1).除共振线外,每一个峰实际上是由一个或 n 个子跃迁叠加而成细致带结构谱.从实验谱可看出: $3d-7f$ 和 $3d-6f$ 带结构谱之间距较 $3d-6f$ 和 $3d-5f$ 的间距要小. $3d-6f$ 和 $3d-5f$ 的细致带结构谱是

表 1 $^{79}\text{Au}_{\text{XLVIII}}-^{79}\text{Au}_{\text{LII}}$ 离子 $3d-7f$ δf 混合谱的中心波长 $\lambda/0.1 \text{ nm}$ 和半高全宽 $\text{FWHM } \lambda/0.1 \text{ nm}$

Transition $j-j'$	Ion	实 验				理 论		
		本工作 λ_{FWHM}	本工作 相对强度	Tragin λ_{FWHM}	Kiyokawa λ_{FWHM}	本工作 λ_{FWHM}	Tragin λ_{FWHM}	Zigler λ_{FWHM}
$3d_{5/2}-7f_{7/2}$	Ni	3.012	33	3.012		3.011(0.007)	3.014	
$3d_{3/2}-7f_{5/2}$	Zn	3.035	33	3.032		3.028(0.009)		
$3d_{5/2}-7f_{7/2}$	Cu	3.053	36	3.055		3.055(0.008)	3.057(0.007)	
$3d_{3/2}-7f_{5/2}$	Ga	3.077	33	3.076		3.070(0.013)		
$3d_{5/2}-7f_{7/2}$	Zn	3.101	35	3.099		3.098(0.013)		
$3d_{3/2}-7f_{5/2}$	Ge	3.119	35	3.118		3.114(0.012)		
$3d_{5/2}-7f_{7/2}$	Ga	3.145	36	3.145		3.142(0.013)		
$3d_{3/2}-6f_{5/2}$	Ni	3.158(0.011)	40	3.160	3.179	3.158(0.007)	3.162	3.161
$3d_{3/2}-6f_{5/2}$	Cu	3.200(0.019)	49	3.201	3.212	3.198(0.014)	3.202(0.007)	3.206(0.004)
$3d_{5/2}-6f_{7/2}$	Ni	3.232	49	3.232		3.233(0.007)	3.234	3.233
$3d_{3/2}-6f_{5/2}$	Zn	3.239(0.019)	50	3.241	3.246	3.239(0.018)	3.245(0.009)	3.240(0.004)
$3d_{5/2}-6f_{7/2}$	Cu	3.274(0.016)	58	3.274	3.280	3.275(0.016)	3.276(0.008)	3.282(0.004)
$3d_{3/2}-6f_{5/2}$	Ga	3.274(0.016)	58	3.274	3.280	3.279(0.017)	3.271	3.286(0.010)
$3d_{5/2}-6f_{7/2}$	Zn	3.316(0.015)	56	3.317	3.324	3.318(0.018)	3.321(0.011)	3.317(0.013)
$3d_{5/2}-6f_{7/2}$	Ga	3.360(0.019)	54	3.362	3.369	3.360(0.017)	3.364	3.364(0.014)
$3d_{5/2}-6f_{7/2}$	Ge	3.402(0.022)	47	3.404		3.403(0.019)		

表 2 $^{79}\text{Au}_{\text{XLV}}-^{79}\text{Au}_{\text{LII}}$ 离子 $3d-5f$ 混合谱的中心波长 $\lambda/0.1 \text{ nm}$ 和半高全宽 $\text{FWHM } \lambda/0.1 \text{ nm}$

Transition $j-j'$	Ion	实 验				理 论		
		本工作 λ_{FWHM}	本工作 相对强度	Tragin λ_{FWHM}	Bauché ^[6] λ_{FWHM}	本工作 λ_{FWHM}	Tragin λ_{FWHM}	Bauché ^[6] λ_{FWHM}
$3d_{3/2}-5f_{5/2}$	Ni	3.588	80	3.588	3.587(0.006)	3.589(0.007)	3.590	3.587
$3d_{3/2}-5f_{5/2}$	Cu	3.626(0.016)	99	3.626(0.009)	3.625(0.009)	3.626(0.014)	3.626(0.009)	3.626(0.008)
$3d_{3/2}-5f_{5/2}$	Zn	3.665	100	3.664(0.010)	3.685(0.010)	3.663(0.019)	3.668(0.010)	3.660(0.010)
$3d_{5/2}-5f_{7/2}$	Ni	3.677(0.008)	92	3.678	3.679(0.006)	3.683(0.007)	3.681	3.677
$3d_{3/2}-5f_{5/2}$	Ga	3.703(0.021)	84	3.703	3.704	3.700(0.018)	3.706	3.706
$3d_{5/2}-5f_{7/2}$	Cu	3.718(0.020)	95	3.718(0.009)	3.718(0.009)	3.723(0.017)	3.717(0.009)	3.717(0.009)
$3d_{3/2}-5f_{5/2}$	Ge	3.741	79	3.741		3.738(0.019)		
$3d_{5/2}-5f_{7/2}$	Zn	3.760(0.016)	97	3.758(0.012)	3.758(0.012)	3.762(0.020)	3.761(0.012)	3.752(0.012)
$3d_{3/2}-5f_{5/2}$	As	3.781	77	3.779				
$3d_{5/2}-5f_{7/2}$	Ga	3.802(0.018)	88	3.799	3.800	3.800(0.018)	3.800	3.800
$3d_{5/2}-5f_{7/2}$	Ge	3.844(0.021)	81	3.840		3.838(0.023)		

明显分开的,而 $3d-7f$ 和 $3d-6f$ 的已开始交叉.

经实验与理论计算以及与国外结果比较,辨认出孤立的峰分别属于类 Ni、类 Cu、类 Zn、类 Ga、类 Ge 和类 As 离子的 $3d_j^{10}4l^m \sim 3d_j^9 n f_j \cdot 4l^m$ ($m = 0, 1, 2, 3, 4, 5; n = 5, 6, 7; l = s, p, d, f$) 类型的跃迁系. 按 Moseley 定律,⁷³Ta, ⁷⁴W, ⁷⁵Re, ⁷⁸Pt, ⁷⁹Au, ⁸⁰Ag 和

⁸²Pb 的同一组态 $(\lambda R)^{1/2}$ 与 Z 之间的线性率高于 99.995%,说明本辨认是自治和可靠的. 识别和归类结果见表 1 和表 2. 实验谱是各种离子跃迁谱叠加的综合谱,谱的本底很高,很难找出单一的孤立峰,故在表中,仅能给出实验谱中能较明显分离孤立峰的半高全宽度(FWHM)值,且作参考. 在表 2 中,

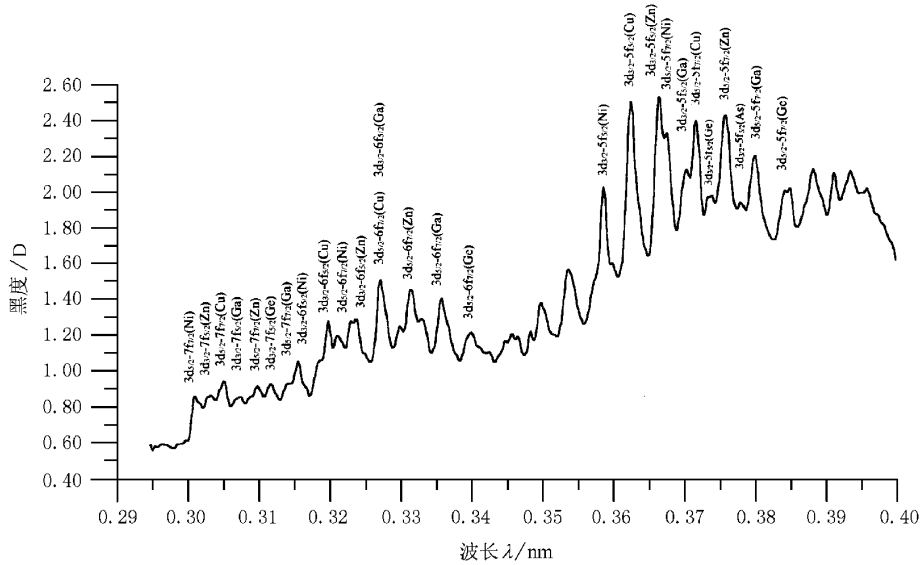


图1 Au的X射线实验谱

$3d_{3/2}-5f_{5/2}$ 类 Zn 离子与 $3d_{5/2}-5f_{7/2}$ 类 Ni 离子和 $3d_{3/2}-5f_{5/2}$ 类 Ga 离子与 $3d_{5/2}-5f_{7/2}$ 类 Cu 离子的 FWHM 是通过解析高斯叠加峰而得到的结果. 表中给出的相对强度值已对谱仪前挡光用的 Be 窗的穿透率进行修正, 但未对胶片的响应进行修正, 并以峰的黑度值百分比为峰的相对强度, 仅作参考.

通过数据表, 可看出: 本工作的理论计算与实验谱的中心波长互相符合得很好, 与 Tragin 等, Bauche-Arnoult 等和 Kiyokawa 等的结果符合得很好, 与 Zigler 的理论计算符合得也较好. 除 Zigler 把波长为 0.3179 nm 线谱辨认为 $3d_{3/2}-5f_{5/2}$ 类 Ni 离子共振线外, 还发现对于同一 $3d-n$ ($n=5, 6$) 跃迁的孤立峰, 相邻电荷态离子细致结构带谱的中心波长间隔几乎相等. 对于 $3d_{3/2}-5f_{5/2}$ 各离子间隔约为 0.0038 nm, $3d_{5/2}-5f_{7/2}$ 各离子间隔约为 0.0042

nm, $3d_{3/2}-6f_{5/2}$ 各离子间隔约为 0.0043 nm, $3d_{5/2}-6f_{7/2}$ 各离子间隔约为 0.0039 nm.

本工作建立的相对论性次组态平均能计算程序得到的理论计算数据与国外用 RELAC 程序计算的数据符合得很好.

用自旋-轨道劈裂跃迁组理论模型, 能较成功地由高 Z 元素由于众多谱线大量叠加而形成的孤立峰. 用孤立峰可以确定激光等离子体的离化度, 还可以用孤立峰的相对强度比确定等离子体的电子温度. 所以, 在激光等离子体的诊断中, 细致结构谱的透彻研究具有较重要的应用价值, 对高 Z 元素原子结构计算提供实验数据.

本工作得到“星光-Ⅱ”运行组全体同志的大力支持, 在此向他们表示衷心感谢.

[1] C. Bauche-Arnoult, J. Bauche, M. Klapisch, *Phys. Rev.*, **A20** (1979) 2424.
 [2] C. Bauche-Arnoult, J. Bauche, M. Klapisch, *Phys. Rev.*, **A25** (1982) 2641.
 [3] C. Bauche-Arnoult, J. Bauche, M. Klapisch, *Phys. Rev.*, **A31** (1985) 2248.
 [4] S. Kiyokawa, T. Yabe, N. Miyayaga, K. Okada, H. Hasegawa, T. Mochizuki, T. Yamanaka, C. Yamanka, T. Kagawa, *Phys. Rev.*, **54** (1985), 1999.

[5] A. Zigler, M. Klapisch, P. Mandelbaum, *Phys. Lett.*, **A117** (1986) 31.
 [6] C. Bauche-Arnoult, E. Luc-Koenig, J. F. Wyart, J. P. Geindre, P. Audebert, P. Monier, J. C. Gauthier, C. Cheenais-Popovics, *Phys. Rev.*, **A33** (1986) 791.
 [7] N. Tragin, J. P. Geindre, P. Monier, J. C. Gauthier, C. Chenais-Popovics, J. F. Wyart, C. Bauche-Arnoult, *Phys. Scripta*, **37** (1988) 72.

- [8] Y. Q. Zhou ,B. H. Zhang ,G. H. Yang ,A. L. Lei ,C. Z. Dong ,
Acta Physica Sinica **43**(1994) ,1623 (in Chinese) [周裕清、
张保汉、杨国洪、雷安乐、董晨钟 ,物理学报 ,**43**(1994) ,
1623]
- [9] B. Lin ,Y. Q. Zhou ,B. H. Zhang ,G. H. Yang ,J. Li ,W. Kang ,
High Power Laser and Particle Beam ,**8**(1996) ,197(in Chi-
nese) [林 彬、周裕清、张保汉、杨国洪、李 军、亢 武 强激
光与粒子束 **8**(1996) ,197]
- [10] Y. Q. Zhou ,B. H. Zhang ,A. L. Lei ,*Phys. Lett.* ,**A204**(1995) ,
379.
- [11] X. L. Cheng ,Z. H. Zhu ,A. P. Ye ,W. M. Jiang ,Y. Q. Zhou ,
Chinese J. Atomic and Molecular Physics ,**11**(1994) ,
29(in Chinese) [程新路、朱正和、叶安培、江文勉、周裕清 原
子与分子物理学报 ,**11**(1994) ,29]

ANALYSIS OF FINE STRUCTURE OF X-RAY SPECTRA FROM LASER-IRRADIATED GOLD DOT*

YANG GUO-HONG ZHANG JI-YAN ZHANG BAO-HAN ZHOU YU-QING LI JUN

(*Research Center of Laser Fusion ,China Academy of Engineering Physics ,Mianyang 621900 , China*)

(Received 3 January 2000 ; revised manuscript received 2 June 2000)

ABSTRACT

The X-ray emission spectra from highly stripped plasma of gold has been observed by focusing a Nd-glass frequency-tripled laser beam onto the surface of the gold dot at the XINGGUANG II laser facilities. The spectra of gold ions in the range of 0.0003 nm—0.0004 nm was recorded using the plate PET($2d = 0.8742$ nm) crystal spectrometer. The code of average energy of relativistic subarrays was built on the basis of the code MCDF(Multi-Configuration-Dirac-Fock). Using the spin-orbit-split-arrays(SOSA) formalism , mean wavelengths and full widths at half height of isolated peaks of subarrays of lower charged gold ions , isoelectronic with Cu , Zn , Ga and Ge , was calculated. Twenty-six lines are interpreted , they pertain mainly to transitions of $3d-nf$ ($n = 5, 6, 7$) of gold ions from Ni-like to As-like. These results of experiment and calculation have important application in plasma diagnostics and examination of high Z elemental atomic structure calculation.

Keywords : gold , fine structure , SOSA , unresolvable transition approximation , X-rays

PACC : 5225P , 3220R , 5250J

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 19674049) and by the Science Foundation of China Academy of Engineering Physics (Grant No. 20000216).