

与闪电过程有关的 NII 离子能级寿命的理论计算*

袁 萍¹⁾²⁾ 刘欣生¹⁾ 张义军¹⁾ 颀录有²⁾ 董晨钟²⁾

¹⁾中国科学院寒区旱区环境与工程研究所,兰州 730000)

²⁾西北师范大学物理与电子工程学院,兰州 730070)

(2002 年 1 月 26 日收到,2002 年 3 月 16 日收到修改稿)

用相对论多组态 Dirac-Fock 方法,系统地计算了与闪电过程有关的 NII 离子 $2p^2$, $2s2p^3$, $2p3s$, $2p3p$, $2p3d$ 组态能级之间的辐射跃迁概率,并由此推算出这些组态的 35 个能级的寿命.计算中考虑了相对论效应、电子关联、延迟效应等重要贡献.与已有的理论计算比较,目前计算的结果更接近最新实验值.据此,进一步给出了 $2p3d^3F$ 能级寿命新的理论预言值.

关键词:跃迁概率,能级寿命,多组态 Dirac-Fock 方法

PACC:3270F,3120,3130

1. 引 言

氮是地球大气和星际含量最丰富的元素之一.有关 NII 离子基本特性的资料对天体等离子体、大气物理、大气化学以及实验室等离子体等相关领域的研究都有非常重要的意义.奇氮化合物是导致对流层中 O_3 浓度增加,进而影响大气环境和全球气候的重要因素,而闪电过程是自然界产生奇氮化合物的主要途径之一.根据测量和模式计算结果,全球由闪电生成的奇氮化合物年产量为 $(2-20) \times 10^{12} \text{ g} \cdot \text{a}^{-1}$ (以纯氮计)^[1].许多关于闪电通道特性的光谱实验^[2,3]已证实:通道等离子体中 NI, NII 的低激发态占主要地位.因此,它们的基本参数对雷电的物理机制及化学效应的深入研究有尤为重要的参考价值.

经过理论和实验工作者多年的努力, NII 离子能级和波长的数据已较完善,各种理论计算与实验观测结果符合得非常好.有关激发态寿命的研究,实验上主要是利用束泊光谱技术来实现的,由于级联效应的影响以及离子被囚禁时间的限制,一些寿命较长的激发态,如 $2p3p^1S_0$, 1D_2 , 3S_1 , $^3D_{1,2,3}$ 等在不同的实验观测中得到的结果差别仍很大^[4-13].理论方面, Fawcett 曾用 Hartree-Fock 方法计算了 $2p3s-2p^2$,

$2p3d-2p^2$ 等辐射跃迁的波长、振子强度,以及 $2p3s^1P_1$ 能级和 $2p3d$ 各能级的寿命^[14]. Victor 等人用模型势方法也得到了 $2p3d$ 各态的寿命^[15],但与 Fawcett 的结果相比仍有较大差别. Bell 等人用组态相互作用程序(CIV3)做了较系统的理论计算^[16,17].他们在非相对论 L-S 耦合框架下,通过考虑一些主要的电子关联效应,对所有组态采用相同的单电子轨道函数,再引入赝轨道对不同组态加以修正,研究了 NII $2p^2$, $2s2p^3$, $2p3s$, $2p3d$, $2p4s$, $2p4p$ 组态的辐射跃迁概率及能级寿命.但与最新的实验比较,有些能级的寿命仍存在一些问题,需要进一步的工作来完善.其中 $2p3d^3F$, $2p3p^3D$ 三重态正好涉及 500.3 和 568.0nm 等几条在闪电光谱实验研究^[2]中观测到的重要谱线,因此,这些能级寿命的精确度对深入研究雷电过程中奇氮化合物的生成,探索闪电形成和发展过程中光谱特征与通道电流、大气电场的关系将有十分重要的实际意义.

关于原子精细结构的计算,近年来有许多新的方法和大量的工作^[18,19].其中在多组态 Dirac-Fock (MCDF)方法^[20]基础上发展的系统考虑延迟和相关效应的理论方法^[21],为从理论上处理含 p , d 和 f 等开壳层的复杂原子结构性质提供了良好途径^[22].本文根据雷电物理研究对原子结构数据的需求,利用这一方法系统地计算了 NII 离子 $2p^2$, $2s2p^3$, $2p3s$,

* 国家自然科学基金(批准号:49975003),国家自然科学基金重大项目(批准号:40135010),中国科学院知识创新工程项目(批准号:210037)和国家教育部骨干教师基金(GG-140107361002)资助的课题.

2p3p 2p3d 组态能级之间的辐射跃迁概率,还得到了这些能级寿命的更高精度计算值.

2. 理论与方法

本工作采用的计算程序 GRASP92^[23](1996 修改版本)基于完全相对论下的多组态 Dirac-Fock 方法,对不同组态分别计算其单电子轨道函数,且系统考虑了延迟和相关效应.关于 MCDF 方法的基本理论在许多文献中已有详细描述^[20],这里只作简要介绍.

在原子结构的相对论理论中,对于具有 N 个电子的原子或离子体系,Dirac-Coulomb 哈密顿量用原子单位可表示为

$$H_{DC} = \sum_{i=1}^N \left(c\hat{\alpha} \cdot \hat{p} + \beta c^2 - \frac{z}{r_i} \right) + \sum_{i,j}^N \frac{1}{r_{ij}}, \quad (1)$$

其中 r_i 为第 i 个电子的位置, r_{ij} 为第 i 和 j 个电子之间的距离, c 为光速, $\hat{p} = i\nabla$ 为动量算符,算符 $\hat{\alpha}$ 和 β 为 4×4 阶 Dirac 矩阵.在中心势场近似下,单电子 Dirac 轨道波函数为

$$\psi_{n\kappa\mu} = \frac{1}{r} \begin{pmatrix} P_{n\kappa}(r) \chi_{\kappa\mu}(\theta, \phi) \\ i Q_{n\kappa}(r) \chi_{-\kappa\mu}(\theta, \phi) \end{pmatrix}, \quad (2)$$

κ 为 Dirac 量子数, μ 为角动量 j 的投影, $P_{n\kappa}(Q_{n\kappa})$ 为径向波函数的大(小)分量, $\chi_{\kappa\mu}$ 为一个 2 分量自旋角函数.

在 MCDF 方法中,系统的原子态波函数(ASF)近似表示为具有相同对称性的组态波函数(CSF)的线性组合

$$|\Psi_a(PJM)\rangle = \sum_{r=1}^{n_c} C_r(\alpha) |\Gamma_r(PJM)\rangle, \quad (3)$$

其中 $C_r(\alpha)$ 为组态混合系数, n_c 为组态波函数(CSF)的数目,它反映了计算中考虑电子关联的程度.为了更有效地考虑相关效应,我们采用了最早用于量子化学的活动空间方法来产生组态状态列表,然后通过多步优化,逐渐扩大所考虑的 CSF 数目.与以前的 MCDF 方法计算相比^[20],目前的方法可以在波函数的展开式中包含几万个 CSF,比以前增大了近 1—2 个数量级,从而使能级和波函数的计算精度得到了很大的改善.另外,计算中还考虑了 Breit 相互作用、QED 修正以及核效应等因素对能级的重要贡献.

在跃迁概率的计算中,单位时间量子体系从初态 i 到末态 f 的爱因斯坦自发辐射跃迁概率为

$$A_{ji} = \frac{2\pi}{2j_i + 1} \sum_{M_i} \sum_{M_f} |M_{ji}^{(L)}|^2, \quad (4)$$

其中 j_i 为激发态 i 的总角动量, M_{ji} 为从激发态 i 到较低的 f 态的跃迁矩阵元,可表示为

$$\begin{aligned} M_{ji}^{(L)} &= \langle \Psi_f(P_f J_f M_f) | O^{(L)} | \Psi_i(P_i J_i M_i) \rangle \\ &= \sum_{r,s} C_r(f) C_s(i) \Gamma_r(P_f J_f M_f) \\ &\quad \times |O^{(L)}| \Gamma_s(P_i J_i M_i), \end{aligned} \quad (5)$$

其中 $O^{(L)}$ 为辐射电磁场的 L 阶张量算符.

当考虑由于发射光子而引起的辐射跃迁初、末态电子密度的重排(即延迟效应)对跃迁初、末态的轨道波函数将不再严格正交.若用

$$D_{pq}(kl) = \langle \Psi_p | \Psi_q \rangle = \det\{d_{pq}(kl)\}$$

来表示与辐射跃迁初、末态相联系的两个行列式波函数的重叠积分(其中 $d_{pq}(kl) = \langle \psi_k | \psi_l \rangle$, ψ_k 和 ψ_l 分别表示一系列与初、末态相联系的单电子轨道波函数)则方程(5)中矩阵元可进一步表示为

$$\begin{aligned} &\Gamma_r(P_f J_f M_f) |O^{(L)}| \Gamma_s(P_i J_i M_i) \\ &= \sum_{p,q} \sum_{k,l} B_{rp} B_{sq} \langle \psi_k || O^{(L)} || \psi_l \rangle D_{pq}(kl), \end{aligned} \quad (6)$$

其中矩阵元 $\langle \psi_k || O^{(L)} || \psi_l \rangle$ 可通过下式计算:

$$\begin{aligned} \langle \psi_k || O^{(L)} || \psi_l \rangle &= \left(\frac{(2j_l + 1)\omega}{\pi c} \right)^{1/2} \\ &\quad \times (-1)^{j_l - 1/2} \begin{pmatrix} j_k & L & j_l \\ \frac{1}{2} & 0 & -\frac{1}{2} \end{pmatrix} \overline{M}_{kl}, \end{aligned} \quad (7)$$

其中 \overline{M}_{kl} 为径向积分,对于不同的跃迁类型(如电偶极、磁偶极等)有不同的表达式.在具体的计算中,径向积分 \overline{M}_{kl} 可以分别在长度和速度规范下计算,并用以检验所用波函数的精确性.

3. 结果与讨论

表 1 列出本工作得到的电偶极跃迁波长、概率以及振子强度的计算值,作为比较,也列出了文献[17, 24]报道的跃迁概率的理论和实验结果.对于大多数跃迁,长度和速度两种不同规范下得到的跃迁概率的一致性都比较好,大多在 5% 以内,而文献[17]报道的一致性为 10%,与 Musielok 等人的最新实验结果^[24]相比,除了个别跃迁外,目前计算所得跃迁概率的相对偏差普遍在 8% 以内,比 Bell 等人的计算^[17]有明显改善.另外,由于禁戒跃迁对延迟和相关效应的影响更为敏感^[22],目前计算所得它们

的跃迁概率与以往的理论结果相比改善更加显著. 并且,一些禁戒跃迁的概率较大,达到了可以与偶极跃迁概率相比拟的数量级,这将直接影响到能级寿命的精确计算.关于禁戒跃迁,我们在另一文中作详细讨论,本文只考虑它们对能级寿命计算的贡献.

表 2 列出能级寿命的计算结果,作为比较也列出已有的实验和理论值.本工作得到的能级寿命与最新实验值的相对偏差大多在 7% 以内,较以往的理论计算有明显改善,其中对 $2p3p^1D_2$, 1S_0 态寿命的改善更为显著. Bell 等人给出的 $2p3p^1D_2$ 的寿命值(7.11ns)基本上介于 $6.37^{[11]}$ 和 $8.8ns^{[10]}$ 之间,而目前的计算值 $6.513ns$ 仅与最新实验值^[11]差 2.2%; 对于 $2p3p^1S_0$ 态,目前计算值与最新实验结果^[11]则符合得更好.

$2p3d^3F$ 三重态涉及可见范围与闪电光谱有关的一些重要的跃迁谱线,关于它的寿命没有新的实验工作,目前计算与 McCroclin 等人报道的实验结果 $9.9ns^{[10]}$ 差别较大.该激发态衰减的主要途径是向 $2p3p^3D$ 能级的跃迁,从表 1 可以看出,本工作对这些谱线跃迁概率的计算与文献[24]的实验结果符合较好.如目前计算的 3F_3 态所有电偶极辐射跃迁概率之和的倒数为 $8.112ns$,文献[24]的实验值为

$7.955ns$.另外, $2p3d^3F-2p^2^3P$, $2p3d^3F-2p^2^1D$ 及 $2p3d^3F-2p3p^1P$ 等几条禁戒跃迁对寿命理论计算的贡献也较大.由此推断,McCroclin 等人的实验值 $9.9ns$ 偏大,本工作得到 $2p3d^3F_{1,2,3}$ 的寿命值分别为 6.423 , 6.452 和 $6.602ns$;关于 $2p3p^3D$, 3S 的寿命是许多相关领域关注的问题,并且已有很多实验工作,但结果之间有较大差异.本文的计算与 Bell 等人报道的理论值^[17]基本一致,但比 Kay 等人的实验结果^[4]小 25% 左右,虽然这两组三重态可能产生的向下跃迁较多,但计算得到的几条强谱线的跃迁概率与 Musielok 等人的最新实验值^[24]符合都比较好.因此,目前对这几个能级寿命的理论计算不应该有太大的误差,关于它们的寿命还有待于进一步的实验工作给予验证.

另外,延迟效应是跃迁概率理论计算中需要考虑的一个重要因素,尤其是对于低离化态离子 $\Delta n = 1$ 的跃迁,其作用更为突出^[22].从表 3 给出的个例可以看出,延迟效应对 $2p3s-2p^2$ 和 $2p3d-2p^2$ 跃迁的影响非常大;对于 $\Delta n = 0$ 的跃迁,考虑延迟效应后,结果也得到明显的优化.由此可见,这一效应直接影响着激发态寿命计算值的准确度.

表 1 电偶极跃迁波长、跃迁概率及振子强度

上能级	下能级	λ/nm	$A_{i/s^{-1}}$	$A_{j/s^{-1}}$	gf	$A_{\text{the}}/s^{-1}[17]$	$A_{\text{exp}}/s^{-1}[24]$		
$2s2p^3$	3P_0	$2p^2$	3P_1	91.597	1.2848(9)*	1.2929(9)	0.16897	1.30(9)	
$2p3s$	3P_0	$2p^2$	3P_1	67.178	1.0890(9)	1.0870(9)	0.07323	1.08(9)	
$2p3d$	3P_0	$2p^2$	3P_1	52.941	2.4366(9)	2.4216(9)	0.10453	2.41(9)	
			3D_1	446.130	8.0509(6)	7.9578(6)	0.02432	1.17(7)	
		$2p3p$	3S_1	498.877	7.4890(7)	7.4240(7)	0.25293	7.34(7)	7.5(7)
			3P_1	545.583	3.1124(7)	3.1479(7)	0.16209	3.39(7)	3.0(7)
$2s2p^3$	3D_1	$2p^2$	3P_0	108.399	2.1241(8)	2.1683(8)	0.11246	2.15(8)	
			3P_1	108.456	1.5289(8)	1.5051(8)	0.08406	1.58(8)	
			3P_2	108.553	1.0040(7)	1.0425(7)	0.00543	1.02(7)	
	3P_1	$2p^2$	3P_0	91.636	4.2764(8)	4.1986(8)	0.16144	4.32(8)	
			3P_1	91.602	3.2790(8)	3.2589(8)	0.12381	3.28(8)	
			3P_2	91.672	5.3659(8)	5.3870(8)	0.20394	5.39(8)	
$2p3s$	3P_1	$2p^2$	3P_0	67.141	3.4475(8)	3.4534(8)	0.07131	3.42(8)	
			3P_1	67.163	2.5600(8)	2.5725(8)	0.05376	2.55(8)	
			3P_2	67.200	4.3964(8)	4.3851(8)	0.09010	4.35(8)	
	1P_1	$2p^2$	1S_0	85.838	3.6342(7)	3.7849(7)	0.01336	2.81(7)	
			1D_2	74.698	3.8533(9)	3.8681(9)	0.97204	3.94(9)	
$2s2p^3$	3S_1	$2p^2$	3P_0	64.463	1.2009(9)	1.2023(9)	0.22453	1.20(9)	
			3P_1	64.484	3.5832(9)	3.5670(9)	0.67387	3.61(9)	

续表 1

			3P_2	64.518	6.00733(9)	6.01253(9)	1.12467	6.021(9)	
	1P_1	$2p^2$	1S_0	74.584	1.25688(9)	1.26213(9)	0.32696	1.251(9)	
			1D_2	66.028	3.16395(9)	3.18617(9)	0.64588	3.177(9)	
2p3d	3D_1	$2p^2$	3P_0	53.351	2.47287(9)	2.47594(9)	0.31016	2.350(9)	
		2p3p	3P_0	592.944	3.01151(7)	2.98058(7)	0.51620	3.209(7)	2.82(7)
		$2p^2$	3P_1	53.365	1.81880(9)	1.80409(9)	0.23295	1.633(9)	
		2p3p	3D_1	478.103	2.40189(7)	2.41874(7)	0.24421	2.474(7)	2.35(7)
			3P_1	594.212	2.23964(7)	2.24583(7)	0.31581	2.255(7)	
		$2p^2$	3P_2	53.388	1.03188(8)	1.04057(8)	0.01451	9.273(7)	
		2p3p	3D_2	479.501	8.35500(6)	8.29350(6)	0.08608	7.639(6)	8.47(6)
			3P_2	596.267	1.31535(6)	1.30749(6)	0.02407	1.332(6)	1.20(6)
	3P_1	$2p^2$	3P_0	52.936	7.87552(8)	7.81220(8)	0.10328	7.178(8)	
		2p3p	3P_0	545.375	8.10738(6)	8.17539(6)	0.13036	9.040(6)	8.03(6)
		$2p^2$	3P_1	52.949	6.51211(8)	6.46239(8)	0.08299	6.707(8)	
		2p3p	3D_1	446.688	1.87033(6)	9.84464(5)	0.01678	2.457(6)	
			3S_1	499.575	7.57602(7)	7.35907(7)	0.76059	7.467(7)	7.71(7)
			3P_1	546.418	9.81659(6)	9.95113(6)	0.14711	1.017(7)	9.40(6)
		$2p^2$	3P_2	52.972	1.02130(9)	1.01400(9)	0.13495	1.027(9)	
		2p3p	3D_2	447.889	6.37969(6)	5.10760(6)	0.05755	9.279(6)	
			3P_2	548.155	1.27804(7)	1.21384(7)	0.18528	1.319(7)	1.14(7)
	1P_1	$2p^2$	1S_0	63.520	2.29245(9)	2.30791(9)	0.66843	2.355(9)	
		2p3p	1S_0	844.096	1.70605(7)	1.67742(7)	0.54029	2.215(7)	
			1P_1	392.018	7.29084(7)	7.35233(7)	0.53157	7.010(7)	
		$2p^2$	1D_2	57.207	3.83842(6)	3.25840(6)	0.00037	4.000(6)	
		2p3p	1D_2	628.614	5.63437(6)	4.07922(6)	0.07170	7.732(6)	
2s2p ³	3D_2	$2p^2$	3P_1	108.459	2.85257(8)	2.86125(8)	0.25558	2.898(8)	
			3P_2	108.555	9.22862(7)	9.31131(7)	0.08275	9.350(7)	
		3P_2	$2p^2$	91.602	3.17058(8)	3.23291(8)	0.20017	3.215(8)	
			3P_2	91.671	9.68429(8)	9.71368(8)	0.61003	9.760(8)	
	1D_2	$2p^2$	1D_2	77.596	3.12149(9)	3.14801(9)	0.14449	3.102(9)	
2p3s	3P_2	$2p^2$	3P_1	67.102	2.82231(8)	2.81594(8)	0.09559	2.713(8)	
			3P_2	67.139	8.24170(8)	8.29343(8)	0.28557	8.130(8)	
2p3d	3F_2	2p3p	3D_1	500.275	9.86321(7)	9.78101(7)	1.82413	9.728(7)	1.07(8)
			3D_2	501.781	1.79840(7)	1.80328(7)	0.31866	1.613(7)	1.85(7)
			3D_3	504.210	3.62192(5)	3.31513(5)	0.00747	3.771(5)	< 9(5)
	1D_2	2p3p	1P_1	444.840	1.08025(8)	1.06430(8)	1.72102	1.137(8)	
		$2p^2$	1D_2	58.216	2.79884(9)	2.80374(9)	0.77758	2.809(9)	
		2p3p	1D_2	776.458	7.94817(6)	8.38734(6)	0.35467	8.508(6)	
	3D_2	$2p^2$	3P_1	53.358	3.56984(9)	3.51342(9)	0.76400	3.140(9)	
		2p3p	3D_1	477.578	3.67072(6)	3.69708(6)	0.06533	3.181(6)	3.90(6)
			3P_1	593.366	4.01092(7)	4.23288(7)	1.07801	4.262(7)	3.55(7)
		$2p^2$	3P_2	53.381	1.02575(9)	1.01510(9)	0.21910	9.034(8)	
		2p3p	3D_2	478.950	2.55140(7)	2.48382(7)	0.43357	2.478(7)	2.58(7)
			3P_2	595.415	1.21675(7)	1.19365(7)	0.31866	1.270(7)	9.97(6)
			3D_3	481.162	5.13310(6)	4.92670(6)	0.09308	4.667(6)	5.48(6)
	3P_2	$2p^2$	3P_1	52.964	4.86920(8)	4.98549(8)	0.11647	4.884(8)	

续表 1

	2p3p	³ D ₁	447.728	4.01814(4)	3.22023(4)	0.00070	7.00(4)		
		³ S ₁	500.876	7.65780(7)	7.50204(7)	1.34607	7.75(7)	7.8(7)	
		³ P ₁	547.975	4.78642(6)	4.94170(6)	0.11899	4.83(6)	4.7(6)	
	2p ²	³ P ₂	52.987	1.91920(9)	1.92685(9)	0.44179	1.924(9)		
	2p3p	³ D ₂	448.933	1.53433(6)	9.73232(5)	0.01562	1.364(6)		
		³ P ₂	549.722	2.31268(7)	2.34481(7)	0.60089	2.437(7)	2.26(7)	
		³ D ₃	450.877	7.42752(6)	6.32940(6)	0.10708	1.049(7)		
2s2p ³	³ D ₃	2p ²	³ P ₂	108.571	3.71730(8)	3.72094(8)	0.47221	3.82(8)	
2p3d	³ F ₃	2p3p	³ D ₂	500.275	1.12420(8)	1.11912(8)	2.73268	1.043(8)	1.14(8)
			³ D ₃	502.714	1.08462(7)	1.01416(7)	0.28370	1.069(7)	1.17(7)
	³ D ₃	2p ²	³ P ₂	53.373	4.39155(9)	4.35421(9)	1.25007	4.064(9)	
		2p3p	³ D ₂	478.240	2.45547(6)	2.43139(6)	0.05869	2.018(6)	2.50(6)
			³ P ₂	594.318	5.52724(7)	5.63004(7)	2.02881	5.528(7)	4.66(7)
			³ D ₃	480.469	3.46044(7)	3.34860(7)	0.81433	3.128(7)	3.44(7)
	¹ F ₃	2p ²	¹ D ₂	57.465	4.01056(9)	3.98072(9)	1.41757	3.511(9)	
		2p3p	¹ D ₂	661.244	5.98301(7)	6.46297(7)	2.60770	6.358(7)	
	³ F ₄	2p3p	³ D ₃	500.669	1.28863(8)	1.28951(8)	3.87350	1.151(8)	1.29(8)
2p3p	³ P ₀	2s2p ³	³ D ₁	127.680	6.40388(7)	6.41690(7)	0.01692	6.82(7)	
			³ P ₁	162.983	2.65265(6)	2.57650(6)	0.00145	2.561(6)	
		2p3s	³ P ₁	462.278	9.86495(7)	9.85712(7)	0.31024	9.967(7)	1.11(8)
	¹ S ₀	2p3s	¹ P ₁	343.808	1.98432(8)	1.97641(8)	0.34809	2.024(8)	
		2s2p ³	¹ P ₁	868.961	9.96080(5)	1.10727(6)	0.00142	1.048(6)	
	¹ P ₁	2p3s	¹ P ₁	648.424	2.86316(7)	2.89757(7)	0.54143	2.864(7)	
		2s2p ³	¹ D ₂	489.668	4.21752(6)	3.73558(6)	0.05303	4.241(6)	
	³ D ₁	2s2p ³	³ P ₀	174.526	1.21525(7)	1.24515(7)	0.01856	1.407(7)	
		2p3s	³ P ₀	567.762	2.83012(7)	2.81854(7)	0.41466	2.877(7)	2.68(7)
		2s2p ³	³ D ₁	134.645	5.33881(6)	5.34418(6)	0.00459	5.465(6)	
			³ P ₁	174.505	9.29032(6)	8.96286(6)	0.01493	1.038(7)	
		2p3s	³ P ₁	568.796	1.84520(7)	1.89568(7)	0.26585	1.953(7)	1.78(7)
		2s2p ³	³ D ₂	134.642	2.03531(6)	1.98052(6)	0.00174	2.011(6)	
			³ P ₂	174.508	6.91258(5)	5.70723(5)	0.00113	6.850(5)	
		2p3s	³ P ₂	573.230	1.39895(6)	1.38453(6)	0.02157	1.300(6)	1.43(6)
	³ S ₁	2s2p ³	³ P ₀	167.591	8.75134(6)	8.93971(6)	0.01231	9.975(6)	
		2p3s	³ P ₀	500.400	8.29733(6)	8.11171(6)	0.09141	8.217(6)	8.74(6)
		2s2p ³	³ P ₁	167.511	2.76472(7)	2.74763(7)	0.04034	2.971(7)	
		2p3s	³ P ₁	501.203	2.25216(7)	2.27061(7)	0.23024	2.190(7)	2.33(7)
		2s2p ³	³ P ₂	167.574	4.48661(7)	4.31923(7)	0.07182	4.852(7)	
		2p3s	³ P ₂	504.643	3.31742(7)	3.21658(7)	0.34488	3.332(7)	3.33(7)
	³ P ₁	2s2p ³	³ P ₀	162.906	6.19171(5)	5.93539(5)	0.00098	6.062(5)	
		2p3s	³ P ₀	460.829	3.36568(7)	3.25130(7)	0.31291	3.321(7)	3.92(7)
		2s2p ³	³ D ₁	127.622	1.68651(7)	1.64613(7)	0.01302	1.724(7)	
			³ P ₁	162.888	4.61520(5)	4.14156(5)	0.00071	3.892(5)	
		2p3s	³ P ₁	461.084	2.28184(7)	2.35800(7)	0.21818	2.362(7)	2.68(7)
		2s2p ³	³ S ₁	645.911	9.49846(3)	9.20332(3)	0.00028	1.592(4)	
			³ D ₂	127.619	5.05442(7)	4.71983(7)	0.03922	5.097(7)	
			³ P ₂	162.890	2.06560(6)	1.43390(6)	0.00389	1.642(6)	
		2p3s	³ P ₂	464.425	4.30306(7)	4.79074(7)	0.41161	4.588(7)	5.07(7)

续表 1

3D_2	$2s2p^3$	3D_1	134.535	1.02718(6)	9.98404(5)	0.00144	1.062(6)	
		3P_1	174.319	1.90185(7)	1.71531(7)	0.04553	1.902(7)	
	$2p3s$	3P_1	566.829	3.36393(7)	3.48192(7)	0.79761	3.731(7)	3.28(7)
		3D_2	134.531	4.86372(6)	4.57289(6)	0.00719	5.065(6)	
	$2s2p^3$	3P_2	174.322	6.14412(6)	4.98490(6)	0.01718	6.190(6)	
		3P_2	571.232	1.12761(7)	1.20909(7)	0.28036	1.208(7)	1.14(7)
	$2s2p^3$	3D_3	134.508	1.28430(6)	1.26270(6)	0.00174	1.318(6)	
		3D_1	127.528	6.45599(5)	6.31946(5)	0.00082	7.064(5)	
	3P_2	3P_1	162.734	5.68153(5)	5.33935(5)	0.00182	5.492(5)	
		3P_1	460.278	2.41582(7)	2.44813(7)	0.37047	2.452(7)	2.74(7)
$2s2p^3$	3S_1	643.501	1.16578(4)	6.13217(3)	0.00036	1.646(4)		
	3D_2	127.525	9.74432(6)	8.94505(6)	0.01273	1.045(7)		
$2p3s$	3P_2	162.736	2.08504(6)	1.86198(6)	0.00949	1.911(6)		
	3P_2	463.177	7.74280(7)	7.90261(7)	1.19082	7.860(7)	8.86(7)	
$2s2p^3$	3D_3	127.504	4.93508(7)	4.88291(7)	0.06745	5.731(7)		
	1D_2	1P_1	399.616	1.36726(8)	1.35954(8)	1.54092	1.314(8)	
$2s2p^3$	1P_1	1342.82	7.82022(5)	8.01600(5)	0.06244	7.784(5)		
	1D_2	333.066	2.69547(6)	2.43644(6)	0.02989	2.498(6)		
3D_3	3D_2	134.358	7.89098(5)	8.06660(5)	0.00160	7.801(5)		
	3P_2	174.031	2.52699(7)	2.35313(7)	0.09748	2.532(7)		
$2p3s$	3P_2	568.117	4.81645(7)	4.90639(7)	1.68368	5.105(7)	4.84(7)	
	3D_3	134.334	6.72658(6)	6.33141(6)	0.01311	6.610(6)		

注： A_1 为长度规范下的跃迁概率值， A_v 为速度规范下的跃迁概率值， A_{ohc} 为文献 [17] 所给长度规范下的跃迁概率值。*(9)表示 $\times 10^9$ 。

表 2 能级寿命(单位 ns)的理论实验值比较

能级	目前计算		其他理论	实验
	τ_1	τ_v		
$2p3s$	3P_0	0.918	0.920	
	3P_1	0.865	0.864	$0.889^{[17]*}$ $0.9^{[6,30-32]*}$ $0.763^{[9]*}$ $0.69^{[33]*}$ $0.82^{[34]*}$
	3P_2	0.904	0.900	
	1P_1	0.255	0.254	$0.257^{[14]}$ $0.239^{[16]}$ $0.249^{[17]}$ $0.8^{[6]}$ $0.213^{[9]}$ $0.22^{[13,30]}$ $0.267^{[35]}$ $0.43^{[36]}$ $0.35^{[37]}$ $0.286^{[25]}$
$2p3d$	3P_0	0.392	0.394	$0.409^{[16]*}$ $0.394^{[17]*}$ $0.356^{[9]*}$ $0.24^{[34]*}$
	3P_1	0.386	0.389	$0.409^{[16]*}$ $0.394^{[17]*}$ $0.356^{[9]*}$ $0.24^{[34]*}$
	3P_2	0.396	0.397	$0.365^{[14]}$ $0.234^{[15]}$ $0.409^{[16]*}$ $0.394^{[17]*}$ $0.459^{[25]}$ $0.356^{[9]*}$ $0.24^{[34]*}$ $0.457^{[38]}$
	3D_1	0.222	0.223	$0.21^{[14]}$ $0.12^{[15]}$ $0.253^{[16]}$ $0.241^{[17]}$ $0.257^{[25]}$ $0.241^{[9]*}$ $0.24^{[34]*}$ $0.209^{[39]}$
3D_2	0.215	0.217	$0.23^{[14]}$ $0.12^{[15]}$ $0.253^{[16]}$ $0.241^{[17]}$ $0.257^{[25]}$ $0.241^{[9]*}$ $0.24^{[34]*}$ $0.219^{[39]}$	
3D_3	0.223	0.225	$0.21^{[14]}$ $0.12^{[15]}$ $0.253^{[16]}$ $0.241^{[17]}$ $0.257^{[25]}$ $0.241^{[9]*}$ $0.24^{[34]*}$ $0.217^{[39]}$	
1P_1	0.408	0.406	$0.32^{[14]}$ $0.2^{[15]}$ $0.421^{[16]}$ $0.406^{[17]}$ $0.483^{[25]}$ $0.473^{[9]}$ $0.41^{[34]}$ $0.410^{[39]}$	
3F_2	6.423	6.470		
3F_3	6.452	6.516	$7.8^{[17]*}$ $9.9^{[10]*}$	
3F_4	6.602	6.623		
1D_2	0.344	0.342	$0.289^{[14]}$ $0.463^{[15]}$ $0.347^{[16]}$ $0.338^{[17]}$ $0.365^{[9]}$ $0.37^{[34]}$ $0.346^{[38]}$	

续表 2

2s2p ³	¹ F ₃	0.246	0.247	0.22 ^[14] 0.28 ^[17] 0.258 ^[25]	<0.8 ^[4] 0.246 ^[9] 0.22 ^[34] 0.249 ^[35]
	⁵ S ₂	0.584(7)	0.580(7)	0.645 ^[17] 0.543 ^[26,27] 0.64 ^[28] 0.58 ^[29]	0.588 ^[40] 0.54 ^[41] 0.42 ^[42]
	³ D ₁	2.664	2.647		
	³ D ₂	2.649	2.637	2.61 ^{[17]*}	2.8 ^{[32]*} 2.7 ^{[33]*} 3.2 ^{[34]*}
	³ D ₃	2.690	2.687		
	³ P ₀	0.778	0.773		
	³ P ₁	0.774	0.778	0.769 ^{[17]*}	0.4 ^{[6]*} 0.84 ^{[8]*} 0.81 ^{[32]*} 0.82 ^{[33]*} 0.77 ^{[34]*}
	³ P ₂	0.778	0.772		
	¹ D ₂	0.320	0.318	0.321 ^[17]	0.33 ^[8] 0.361 ^[9] 0.32 ^[30] 0.27 ^[32] 0.52 ^[33] 0.6 ^[34] 0.46 ^[36]
	³ S ₁	0.0927	0.0927	0.0922 ^[17]	0.1 ^[31]
2p3p	¹ P ₁	0.226	0.225	0.226 ^[17]	0.217 ^[9] 0.25 ^[30] 0.23 ^[31,36] 0.26 ^[34]
	¹ P ₁	28.739	28.712	28.7 ^[16,17]	28.7 ^[4] 10 ^[5] 24 ^[6]
	³ D ₁	12.535	12.503		
	³ D ₂	12.442	12.643	12 ^{[16,17]*}	16.8 ^{[4]*} 8.7 ^{[5]*} 20 ^{[6]*} 2.1 ^{[7]*} 1.46 ^{[8]*} 1.77 ^{[9]*} 16.5 ^{[10]*}
	³ D ₃	12.353	12.541		
	³ S ₁	6.757	6.878	6.54 ^[16,17]	8.2 ^[4] 5.8 ^[5] 12.48 ^[11]
	³ P ₀	5.905	5.899		
	³ P ₁	5.839	5.841	5.72 ^{[16,17]*}	6.7 ^{[7]*} 6.05 ^{[11]*} 6.0 ^{[12]*}
	³ P ₂	6.024	6.012		
	¹ D ₂	6.513	6.570	7.11 ^[16,17]	15.3 ^[5] 8.8 ^[10] 6.37 ^[11] 6.3 ^[12]
¹ S ₀	4.496	4.509	4.6 ^[16] 4.7 ^[17]	9.4 ^[5] 4.48 ^[11] 5.3 ^[13]	

注: τ_1 为长度规范下的寿命值, τ_v 为速度规范下的寿命值, 2s2p³ ⁵S₂ 的寿命值 0.584(7) 表示 0.584×10^7 ns. * 表示文献给出的是不同 J 值的平均值.

表 3 考虑延迟效应与不考虑延迟效应时跃迁概率的对比(单位 s⁻¹)

跃	迁	考虑延迟效应		不考虑延迟效应		A_{exp}	
		A_1	A_v	A_1	A_v		
2p3s	³ P ₂ — 2p ²	³ P ₁	2.8223(8)	2.8159(8)	7.6723(7)	1.3715(8)	
2p3d	³ F ₂ — 2p3p	³ D ₁	9.8632(7)	9.7810(7)	1.1463(8)	1.2522(8)	1.0(8)
2p3d	¹ D ₂ — 2p3p	¹ P ₁	1.0802(8)	1.0643(8)	1.2593(8)	1.3999(8)	
2p3d	³ D ₂ — 2p ²	³ P ₁	3.5698(9)	3.5134(9)	6.9769(8)	2.9484(8)	
2p3d	³ D ₂ — 2p3p	³ D ₁	3.6707(6)	3.6970(6)	3.4824(6)	3.6025(6)	3.9(6)
2p3d	³ D ₂ — 2p3p	³ P ₁	4.0109(7)	4.2328(7)	4.3067(7)	6.1834(7)	3.5(7)
2p3d	³ P ₂ — 2p3p	³ P ₁	4.7864(6)	4.9417(6)	4.9197(6)	3.5393(6)	4.7(6)

4. 结 论

本工作用近年来在 MCDF 方法基础上发展的系统考虑延迟和相关效应的理论方法, 得到了 NII 离子与闪电过程有关的激发态能级的寿命. 与最新实

验相比, 其结果比以往的理论计算有明显改善, 尤其是对 2p3p ¹D₂, ¹S₀ 能级寿命的改善更为显著; 同时还给出了 2p3d ³F 能级寿命新的理论预言值, 为雷电物理过程以及天体物理等相关领域的研究工作提供了更为可靠的数据.

- [1] Wang M X 1999 *Atmospheric Chemistry* (Beijing: Meteorology Press) p 135 (in Chinese) 王明星 1999 大气化学(北京: 气象出版社) 第 135 页
- [2] Orville R E 1968 *J. Atmos. Sci.* **25** 827
- [3] Weidman C, Boye A and Crowell L 1989 *J. Geophys. Res.* **94** 13249
- [4] Kay L and Sadler D A 1994 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **27**

2877

- [5] Fink U, McIntire G N and Bashkin S 1968 *J. Opt. Soc. Am.* **58** 475
- [6] Hesser J E and Lutz B 1968 *J. Opt. Soc. Am.* **58** 1513
- [7] Berry H G, Bickel W S, Bashkin S, Desesquelles J and Schectman R M 1971 *J. Opt. Soc. Am.* **61** 947
- [8] Dumont P D 1972 *Physica* **62** 104

- [9] Kernahan J A ,Livingston A E and Pinnington E H 1974 *Can. J. Phys.* **52** 1895
- [10] McCrocklin W B and Head C E 1971 *J. Opt. Soc. Am.* **61** 619
- [11] Brink J A ,Coetzer F J ,Olivier J H I and VanDer Westhuizen P 1978 *Z. Phys.* **A 288** 1
- [12] Pinnington E H 1970 *Nucl. Inst. Meth.* **90** 93
- [13] Pinnington E H and Lin C C 1969 *J. Opt. Soc. Am.* **69** 717
- [14] Fawcett B C 1987 *At. Data Nucl. Data Table* **37** 367 and 411
- [15] Victor G A and Escalante V 1988 *At. Data Nucl. Data Table* **40** 227
- [16] Bell K L ,Ramsbottom C A and Hibbert A 1992 *J. Phys. B :At. Mol. Opt. Phys.* **25** 1735
- [17] Bell K L ,Hibbert A and Stafford R P 1995 *Phys. Scr.* **52** 240
- [18] Gou B C 1998 *Acta Phys. Sin.* **47** 403(in Chinese) 苟秉聪 1998 *物理学报* **47** 403]
- [19] Zhong Z P ,Zhang W H ,Xu K Z ,Feng R X and Li J M 1999 *Acta Phys. Sin.* **48** 816(in Chinese) 钟志萍、张卫华、徐克尊、凤任飞、李家明 1999 *物理学报* **48** 816]
- [20] Biemont E 1997 *J. Phys. B :At. Mol. Opt. Phys.* **30** 4207
- [21] Fritzsche S *et al* 2000 *Comput. Phys. Commun.* **124** 340
- [22] Dong C Z ,Fritzsche S ,Fricke B and Sepp W D 2001 *Phys. Scr.* **T 92** 294
- [23] Parpia F A ,Froese Fischer C and Grant I P 1996 *Comput. Phys. Commun.* **94** 249
- [24] Musielok J ,Bridges J M ,Djurovic S and Wiese W L 1996 *Phys. Rev. A* **53** 3122
- [25] McEachran R P and Cohen M 1982 *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* **27** 119
- [26] Hibbert A 1996 *Phys. Scr.* **T 65** 104
- [27] Brage T ,Hibbert A and Leckrone D S 1997 *Astrophys. J.* **478** 423
- [28] Hibbert A and Bates D R 1981 *Planet. Space Sci.* **29** 263
- [29] Dalgarno A ,Victor G A and Hartquist T W 1981 *Geophys. Res. Lett.* **8** 603
- [30] Dumont P D ,Baudinet-Robinet Y and Livingston A E 1976 *Phys. Scr.* **13** 365
- [31] Livingston A E ,Baudinet-Robinet Y and Dumont P D 1975 *Phys. Lett.* **A55** 207
- [32] Dumont P D ,Biemont E and Grevesse N 1974 *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* **14** 1127
- [33] Chang M W 1977 *Astrophys. J.* **211** 300
- [34] Buchet J P ,Poulizac M C and Carre M 1972 *J. Opt. Soc. Am.* **62** 623
- [35] Baudinet-Robinet Y ,Garnir M P ,Dumont P D and Resimont J 1990 *Phys. Rev. A* **42** 1080
- [36] Knystautas E J ,Brochu M and Drouin R 1973 *Can. J. Spectrosc.* **18** 153
- [37] Sorensen G 1979 *J. Phys.* **40** C1
- [38] Bastin T ,Baudinet-Robinet Y ,Garnir H P and Dumont P D 1992 *Z. Phys. D :At. Molec. Clust.* **24** 343
- [39] Dumont P D ,Garnir H P and Baudinet-Robinet Y 1991 *Z. Phys. D :At. Molec. Clust.* **21** 209
- [40] Trübert E *et al* 1998 *Phys. Rev. A* **58** 4449
- [41] Calamai A G and Johnson C E 1991 *Phys. Rev. A* **44** 218
- [42] Knight R D 1982 *Phys. Rev. Lett.* **48** 792

Theoretical calculation for the lifetimes of N II related to lightning process^{*}

Yuan Ping¹⁾²⁾ Liu Xin-Sheng¹⁾ Zhang Yi-Jun¹⁾ Xie Lu-You²⁾ Dong Chen-Zhong²⁾

¹⁾ Cold and Arid Regions Environmental and Engineering Research Institute ,Chinese Academy of Sciences ,Lanzhou 730000 ,China)

²⁾ College of Physics and Electronic Engineering ,Northwest Normal University ,Lanzhou 730070 ,China)

(Received 26 January 2002 ; revised manuscript received 16 March 2002)

Abstract

Transition probabilities have been calculated for transitions between the levels of $2p^2$ $2s2p^3$ $2p3s$ $2p3p$ and $2p3d$ configurations of NII. Large-scale multiconfiguration Dirac-Fock wave functions are applied to include the most important effects of relativity ,correlation ,and rearrangement of the electron density within the same(computational)model. From the transition probability lifetimes of all 35 levels are derived and compared with experiments and previous calculations. A remarkable improvement is shown in the accuracy of the results. New predicted values are also provided for lifetimes of $2p3d^3$ F levels.

Keywords : transition probability , lifetime , multiconfiguration Dirac-Fock method

PACC : 3270F , 3120 , 3130

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China(Grant No.49975003) ,the Major Program of the National Natural Science Foundation of China(Grant No.40135010) ,the Foundation of Knowledge Innovation Program of the Chinese Academy of Sciences(Grant No.210037) ,and the Foundation for University Key Teachers by the Ministry of Education of China(Grant No. GG-140107361002) .