

高双激发 Intershell 共振态的辐射和 Auger 跃迁率*

苟 秉 联

北京理工大学应用物理系, 北京 100081

1992年3月12日收到

采用 Conventional infiguration (简称为 CI) 方法计算了类氩 Ar^{14+} 离子高双激发 Intershell ($n > N$) 共振态的辐射和 Auger 跃迁率, 并利用超球坐标方法和新量子数 $|(K, T)_{N'}^{A'+1} L^{\nu}|$ 来作系统分析. 计算结果表明, 对 $A = +1$ 态, Auger 过程是主要的, 辐射过程仅仅是对给定的多重簇 (manifold) 中更高的态才有意义. 对 $A = 0, -1$ 态, Auger 宽度更小. 对这些态, 辐射过程不可忽视. 对双激发的辐射跃迁有近似的选择定则 $\Delta n = 0, \pm 1$, ν 为带振动量子数.

PACC: 3120T

一、引 言

近年来, 国际上人们越来越重视对原子和离子的高双激发态的研究. 在实验上, 或者通过两步激光激发^[1], 或者通过多电荷离子和多电子靶在碰撞中的双捕获过程, 两电子的主量子数均很大的双激发态正在被研究中. 关于 H^{-} ^[2] 和 He^{2+} ^[3] 最新的实验数据已有报道. 双激发态的辐射和 Auger 跃迁率的知识对于了解多电荷离子, 原子和分子与表面碰撞中产生的双激发态的稳定性是很重要的. 辐射跃迁和 Auger 衰变的分支率决定双激发态将被观察为捕获电离或真正的双捕获. 双激发态寿命的估计对于了解离子与表面碰撞中的“洞原子”^[4]的组态也是很重要的. 高离化氩离子穿过薄膜产生氩的类氩激发态^[5], 在高温 Tokamak 等离子体中, 氩已被用来考察等离子体的状态.

在理论上, Watanabe 和 Lin^[6] 使用超球势曲线^[6]或分子轨道势曲线定量地研究了自离化过程, Chen 等人^[7]研究了转动系列, 这些讨论都限于主量子数是相对小的双激发态. 新近, 我们^[9]采用超球坐标方法和新量子数集研究了高双激发态的转动、振动和双 Rydberg 系列, 以及辐射和 Auger 跃迁的近似选择定则. Wollweier 等人^[10]采用分子轨道方法研究了辐射跃迁的近似选择定则. 但是, 这些讨论均仅限于 intrashell 态 ($n = N$). 对 intrashell 态仅有 $A = +1$. 对这些态 Auger 过程是主要的, 辐射过程仅仅是对给定的多重簇中更高的态才有意义.

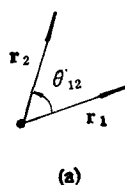
* 国家自然科学基金资助的课题.

两电子主量子数均是大的双激发态的理论计算是十分困难的,因为在这些态中电子关联起很重要的作用,由独立电子模型建立起来的组态 $Nl nl'$ 量子表述已失去意义. 在传统的 CI 方法中,关于电子关联的信息隐含在混合系数中,无法阐明电子是怎样关联的. 并且,在很窄的能量范围内态的数目很多,每一个态可能有的衰变通道数也是很大的. 本文采用超球坐标中的波函数去阐明电子是怎样关联的,它直接引入了两电子的角度和径向关联的坐标,特别适合于分析电子间的关联效应. 本文的目的在于考察是否存在一些简单的系统规律性,它们具有一般的意义. 特别是,希望确定关于双激发的辐射和 Auger 跃迁的近似选择定则,以便对每组双激发态可以筛选出一些主要的衰变通道. 本文研究了高离化 Ar^{16+} 离子的高双激发 intershell 态的辐射和 Auger 跃迁的规律性. 结果表明,与 $A = +1$ 态相比, $A = 0, -1$ 态的 Auger 宽度更小,对这些态,辐射跃迁过程是不能忽视的,对双激发态的辐射跃迁有近似的选择定则 $\Delta v = 0, \pm 1$, v 为带振动量子数.

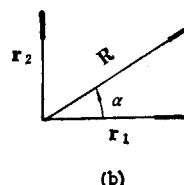
二、理论与方法

为了描述两电子原子的关联态,采用超球坐标代替通常的球坐标(见图 1)

$$R = (r_1^2 + r_2^2)^{1/2}, \quad \alpha = \arctan(r_2/r_1) \quad (1)$$



(a) 两电子组态



(b) 笛卡尔坐标与超球坐标之间的联系示意图

图 1

式中 R 标度原子的尺寸,电子间的关联由 α 和 θ_{12} 两个角度来描述. 经过坐标变换后,两电子原子超球坐标的 Hamiltonian^[1] 为

$$\left(-\frac{d^2}{dR^2} + \frac{A^2 + 15/4}{R^2} + \frac{2C}{R} - 2E \right) (R^{5/2}\Psi) = 0, \quad (2)$$

$$A^2 = -\frac{1}{\sin \alpha \cos^2 \alpha} \frac{d}{d\alpha} \left(\sin^2 \alpha \cos^2 \alpha \frac{d}{d\alpha} \right) + \frac{I_1^2}{\cos^2 \alpha} + \frac{I_2^2}{\sin^2 \alpha}, \quad (3)$$

$$C = -\frac{z}{\cos \alpha} - \frac{z}{\sin \alpha} + \frac{1}{(1 - \sin 2\alpha \cos \theta_{12})^{1/2}}, \quad (4)$$

式中 C 为有效电荷. 绝热近似下,两电子波函数表示为

$$\Psi_\mu^*(R, Q) = F_\mu^*(R) \phi_\mu(R; Q) / (R^{5/2} \sin \alpha \cos \alpha), \quad (5)$$

式中 μ 表示通道, n 表示 μ 通道中第 n 个态.

采用 ${}_n(K, T)_{N-2n+1} L^\pi$ 这样新的分类表述代替独立电子模型的 $nl nl'$ 表述. 在此表示中, L, S 和 π 有通常的物理意义, n 和 N 分别为外部和内部电子的主量子数. 量

子数 K , T 和 A 由 Herrick 和 Sinanoglu^[12] 采用群论方法引出, 以此代替 l 和 l' 描述两电子的关联。

对每一个量子数 N , K 和 T 的取值范围为

$$\begin{aligned} T &= 0, 1, 2, \dots, \min(L, N-1), \\ K &= N-1-T, N-3-T, \dots, -(N-1-T), \end{aligned} \quad (6)$$

A 由下式给出:

$$\begin{aligned} A &= \pi(-1)^{S+T}, \quad K > L-N; \\ 0, \quad K &\leq L-N, \end{aligned} \quad (7)$$

其中 π 为这状态的字称, 对 $\pi = (-1)^{L+1}$ 的态 $T \neq 0$ 。

这里强调 A 仅能取 $+1, -1$ 和 0 值。 A 为 $+1$ 或 -1 , 对应着对称或反对称的径向伸展, $A=0$ 的态, 两电子间径向关联很小, 类似于单激发态。 平均表面电荷密度曲线表明, $A=+1$ 通道有一个波腹结构在 $\alpha = \pi/4$ 处, 而 $A=-1$ 通道则有一个节点结构在 $\alpha = \pi/4$ 附近。 $K \approx -\langle r_< \cos \theta_{12} \rangle$, $r_<$ 表示内电子的半径, 有正值 K 的态, 两电子位于核的相反的两边, 而有负值 K 的态中两电子位于核的同侧。 T 是总角动量在相互作用轴上的投影。 具有相同的关联量子数 K , T 和 A 的通道具有相同的关联模式, 关联量子数与两个角的节点结构相联系。 对于一个给定的 T , 能用在 θ_{12} 轴上的节点数 n 表示 θ_{12} 轴上的振动, 振动量子数由 $\nu = N - K - 1$ 给出。

辐射跃迁率由下式给出(单位为 au)

$$W_r = 2\alpha^3 \omega^2 f, \quad (8)$$

式中 f 为振子强度, ω 为初、末态的能量差。

Auger 宽度(单位为 Ry) 由下式计算:

$$\Gamma_A = 4\pi |\langle \Psi_i | 1/r_{12} | \Psi_f \rangle|^2, \quad (9)$$

式中 $\Psi_i = |n_1 l_1 n_2 l_2 LS\rangle$ 为初态束缚态, 由 CI 方法求解, $\Psi_f = |n_0 l_0 n s l s LS\rangle$ 为末态, 一个电子落到更内的壳层 $n_0 l_0$, 而另一个电子被排斥到一个连续轨道 $n s l s$, 连续态由纯 Coulomb 波函数描述。 跃迁矩阵元可表示为

$$\langle \Psi_i | 1/r_{12} | \Psi_f \rangle = \sum_k a_k R^k(n_1 l_1 n_2 l_2; n_0 l_0 n s l s) \delta(S'S) \delta(L'L), \quad (10)$$

式中 $R^k(n_1 l_1 n_2 l_2; n_0 l_0 n s l s)$ 为 Slater 型积分。

Auger 跃迁率为

$$W_A(10^{12}/s) = 20.6 \Gamma_A (\text{mRy}). \quad (11)$$

三、结果与讨论

在有限的 CI 方法中, 初态 $\gamma(5, 0)_s^+ 1S^e$ 由 $6l7l$ 的线性组合给出。 辐射过程是由单偶极算符给出, 产生末态 $_{\gamma}(K, T)_s^+ 1P^o$, $n=6$ 或 7 , $N \leq 6$, 换言之, 一个电子的主量子数保持不变, 而另一个电子跃迁到更小的 N 通道。 这里, 对末态的 l 和 l' 值没有选择定则而言, 因为除了 $1snp$ 态外, 末态均是双激发态并且组态混合对每一个态而言都是很大的。 初态 $\gamma(5, 0)_s^+ 1S^e$ 还可通过 Auger 过程衰变, 末态由 $Nl \in l'S^e$ 表示。 在表 1 中

表 1 类氩 $\text{Ar}^{16+}, (5,0) {}^1S^o$ 态的辐射和 Auger 跃迁率的计算

N	Auger 能量 (Ry)	Auger 跃迁率 ($10^{12}/s$)	分支率($\times 100$)	辐射跃迁率 ($10^{12}/s$)	分支率 ($\times 100$)
1	308.387	0.35	0.6	6.43	12.1
2	65.387	3.72	7.0	1.33	2.5
3	20.387	12.44	23.4	0.42	0.8
4	4.637	28.28	53.3	0.12	0.2
5				0.03	0.1
总计		44.79	84.3	8.33	15.7

列出 Auger 能量,对每一主量子数 $N(\leq 6)$ 给出部分 Auger 和辐射跃迁率,对应每一个跃迁还给出分支率。由表 1 可见,对 Auger 衰变过程, $N=4$ 通道是主要的,此时, Auger 电子具有最小的能量。 $N=5$ 为能量不允许的,即电子不能有足够的能量离化成自由电子。辐射跃迁主要衰变到 $1s6p {}^1P^o$ 态,它具有最大的光子能量。 Auger 跃迁率随 N 的减小迅速减小,而辐射跃迁率随 N 的减小而迅速增加。对总过程, Auger 分支率为 85%,辐射分支率为 15%,即对于核电荷数 $z=18$ 的氩原子而言,双激发态的衰变过程明显地以 Auger 过程为主。

辐射跃迁率,正如(8)式所示,是比例于 $\omega^2 D^2$ 。这里 ω 为初末态能量差, D 为初末态之间的偶极矩阵元。辐射跃迁率对 $N=1$ 是最大的,因为 ω 对这样的跃迁是大的,但是,对于一个固定的 N ,其对应的可能的末态多重簇中,不同态之间 ω 是相差不大的,从而辐射跃迁率的差别反映了偶极矩阵元的大小。在表 3 中列出对每一个 N ,辐射过程产生的末态的振子强度,在对应的 $2N-1$ 个态中,注意到仅仅具有与初态近似相同的振动量子数的态是主要的。

表 2 类氩 $\text{Ar}^{16+}, (K,0) {}^1S^o$ 振动系列的辐射和 Auger 跃迁率 ($10^{12}/s$) 的计算

$(K,T)=(5,0)$			$(3,0)$		$(1,0)$		$(-1,0)$		$(-3,0)$		$(-5,0)$	
N	Γ_A	Γ_R	Γ_A	Γ_R	Γ_A	Γ_R	Γ_A	Γ_R	Γ_A	Γ_R	Γ_A	Γ_R
1		6.43		2.81		0.11		0.49		0.66		0.46
2	3.72	1.33	1.29	0.48	2.16	0.22	0.78	0.09	0.08	0.21	0.02	0.25
3	12.44	0.42	27.87	0.36	5.56	0.12	11.86	0.12	2.69	0.08	0.06	0.17
4	28.28	0.12	132.00	0.22	164.82	0.15	50.67	0.10	50.69	0.06	0.96	0.14
5		0.06		0.11		0.12		0.13		0.14		0.12
总计	44.44	8.36	161.16	3.98	172.54	0.72	63.31	0.93	53.46	1.15	1.04	1.14

表 2 给出对 $6171 {}^1S^o$ 多重簇中 6 个态的部分和总的辐射以及 Auger 跃迁率。固定 n, N, L, S 和 π , 这些态由 (K,T) 量子数区别,具有不同的振动量子数,可看作 6171 多重簇中的振动系列。随着 K 值的减小,总的 Auger 跃迁率最初增加,在 $K=1$ 附近达到极大值,对应负值 K 又逐渐减小。而总的辐射跃迁率几乎保持非常小。从而除了系列的最后一个 Auger 分支率仅占 48% 外, Auger 分支率对整个系列几乎都是主要的,但是,辐射过程对给定的多重簇中更高的态已变得不可忽略。

表 3 给出 6171S^e 振动系列各态的辐射跃迁振子强度值。对初态和末态均用 K, T 和振动量子数 ν 表示。本文计算结果表明双激发态的辐射跃迁有近似的选择定则 $\Delta\nu = 0, \pm 1$, $\Delta\nu$ 越大的跃迁倾向于有更小的振子强度。如果初态有大的 ν_i , 而末态没有同

表 3 类氦 $\text{Ar}^{16+}, (K, 0)^+1\text{S}^e$ 各态振子强度的计算 ($f < f_{\max}(\times 100) \times 0.02$ 被忽略)

$(K, T) = (5, 0)$ $\nu_i = 0$				$(3, 0)$ 2 $f \times 100$	$(1, 0)$ 4 $f \times 100$	$(-1, 0)$ 6 $f \times 100$	$(-3, 0)$ 8 $f \times 100$	$(-5, 0)$ 10 $f \times 100$
$n, N,$	K, T	ν_i	$f \times 100$					
6, 1,	0, 0,	0	2.09	1.02	0.45	0.18	0.06	0.02
6, 2,	1, 0,	0	7.11	0.82	—	—	—	—
	0, 1,	1	0.45	0.09	0.12	—	0.07	0.12
	-1, 0,	2	—	1.23	1.48	0.61	0.08	—
6, 3,	2, 0,	0	14.16	0.23	—	—	—	—
	1, 1,	1	1.32	0.57	—	—	0.02	—
	0, 0,	2	—	7.43	1.28	—	0.04	—
	-1, 1,	3	0.01	0.96	0.15	0.33	0.06	0.71
	-2, 0,	4	—	—	1.77	2.18	0.16	0.21
6, 4,	3, 0,	0	25.24	—	—	—	—	—
	2, 1,	1	2.86	1.53	—	—	—	—
	1, 0,	2	—	19.27	—	0.19	—	—
	0, 1,	3	—	3.53	1.38	—	0.38	—
	-1, 0,	4	—	—	12.09	0.44	0.70	—
	-2, 1,	5	—	—	2.26	0.88	0.23	2.36
	-3, 0,	6	—	—	0.26	5.70	1.66	2.30
6, 5,	4, 0,	0	45.33	—	—	—	—	—
	3, 1,	1	5.98	3.13	—	—	—	—
	2, 0,	2	—	40.58	0.84	—	—	—
	1, 1,	3	—	9.13	5.10	—	—	—
	0, 0,	4	—	—	33.82	1.49	—	—
	-1, 1,	5	—	—	9.30	5.78	0.82	0.41
	-2, 0,	6	—	—	—	26.95	2.69	0.73
	-3, 1,	7	—	—	—	7.01	6.09	4.45
	-4, 0,	8	—	—	—	—	26.93	13.21
6, 6,	5, 0,	0	3.97	17.61	1.49	—	—	—
	4, 1,	1	381.83	32.83	—	—	—	—
	3, 0,	2	—	26.77	33.37	—	—	—
	2, 1,	3	34.86	14.22	64.24	1.82	—	—
	1, 0,	4	—	3.09	46.44	51.53	—	—
	0, 1,	5	22.99	—	19.41	90.16	4.33	—
	-1, 0,	6	—	—	3.22	57.15	70.19	—
	-2, 1,	7	—	—	—	20.71	104.55	6.61
	-3, 0,	8	—	—	—	2.56	53.58	75.35
	-4, 1,	9	21.84	—	—	—	16.50	69.87
	-5, 0,	10	—	—	—	—	—	—

续表 3

$(K, T) = (5, 0)$ $\nu_i = 0$				$(\frac{3}{2}, 0)$ $f \times 100$	$(\frac{1}{2}, 0)$ $f \times 100$	$(-\frac{1}{2}, 0)$ $f \times 100$	$(-\frac{3}{2}, 0)$ $f \times 100$	$(-\frac{5}{2}, 0)$ $f \times 100$
$n, N,$	K, T	ν_f	$f \times 100$					
7, 1,	0, 0,	0	0.29	—	0.07	0.21	0.25	0.17
7, 2,	1, 0,	0	1.62	—	0.31	0.13	—	—
	0, 1,	1	0.10	0.86	0.80	0.14	0.01	0.10
	-1, 0,	2	—	0.59	0.07	0.36	0.51	1.56
7, 3,	2, 0,	0	5.22	0.33	0.24	—	—	—
	1, 1,	1	0.22	4.30	0.79	—	—	—
	0, 0,	2	—	3.79	0.20	1.88	0.40	—
	-1, 1,	3	—	0.25	2.61	3.03	0.12	0.52
	-2, 0,	4	—	—	1.32	—	3.40	7.55
7, 4,	3, 0,	0	17.15	1.14	—	—	—	—
	2, 1,	1	0.39	13.95	—	—	—	—
	1, 0,	2	—	15.01	2.98	1.18	—	—
	0, 1,	3	—	0.61	19.07	1.80	0.37	—
	-1, 0,	4	—	—	10.75	3.66	6.68	—
	-2, 1,	5	—	—	0.50	13.89	6.57	1.73
	-3, 0,	6	—	—	—	5.03	2.14	34.53
7, 5,	4, 0,	0	89.51	5.06	—	—	—	—
	3, 1,	1	0.69	59.20	—	—	—	—
	2, 0,	2	—	83.73	20.54	—	—	—
	1, 1,	3	—	1.14	111.07	—	—	—
	0, 0,	4	—	—	73.38	48.33	—	—
	-1, 1,	5	—	—	1.28	148.88	2.16	—
	-2, 0,	6	—	—	—	57.38	98.18	—
	-3, 1,	7	—	—	—	1.03	155.60	4.69
	-4, 0,	8	—	—	—	—	34.48	238.44

样值的 ν_f , 在此情况下, 更小的 $\Delta\nu$ 跃迁是主要的。在文献[9]中考察了双激发 intrashell 态的平均表面电荷密度曲线, 指出更高的振动态在 θ_{12} 轴上有更多的节点结构, 并且随 ν 的增加电荷的主要贡献移向更小的 θ_{12} 区域, 即当初末态有相似的振动量子数时, 初末态角度函数的贡献在相同的 θ_{12} 区域, 所以对振子强度的贡献大。在文献[10]中 Briggs 等人采用分子轨道研究了 intrashell 态的辐射跃迁的近似选择定则, 并引用我们的数据来支持他们的理论。现在的工作, 进一步证明了对双激发态无论 intrashell 态还是 intershell 态普遍存在辐射跃迁的近似选择定则 $\Delta\nu = 0, \pm 1$ 。

我们注意到, 对所有 intrashell 态, 仅有 $A = +1$, 对 intershell 态才有 $A = 0, \pm 1$ 。本文计算了 $4151^{2S+1}L^{\pi}$, $L = 1, 2, 3, 5$ 等态的多重簇各初态的总辐射和总 Auger 跃迁率, 结果列于表 4 中。表 4 表明, 辐射过程对量子数 A 没有明显地依赖, 随着 L 值增加, 辐射跃迁率几乎保持不变。对于 Auger 过程确不一样, $A = +1$ 的 Auger 过程是主要的, 对 $A = 0, -1$ 的态 Auger 跃迁率是相对小的, 对这些态辐射跃迁是不可忽

表 4 类氩 $\text{Ar}^{16+}4l5l^{-1}L^{\pi}$ 各态的辐射和 Auger 跃迁率的计算

初态	K, T, A	总辐射跃迁率 ($10^{12}/\text{s}$)	总 Auger 跃迁率 ($10^{12}/\text{s}$)
$^1\text{P}^o$	3,0,-1	2.219	3.759
	1,0,-1	3.612	13.336
	2,1,+1	7.560	406.181
	-1,0,-1	4.824	9.651
	0,1,+1	4.833	1046.177
	-3,0,0	2.727	4.184
	-2,1,+1	6.225	113.810
$^1\text{D}^o$	2,1,-1	4.266	8.526
	3,0,+1	7.715	145.952
	1,2,+1	3.660	352.747
	0,1,-1	4.726	21.589
	1,0,+1	7.948	509.324
	-1,2,+1	2.999	379.542
	-1,0,+1	5.183	186.430
	-2,1,0	5.944	81.277
$^1\text{F}^o$	3,0,-1	6.923	7.403
	1,2,-1	2.677	7.117
	1,0,-1	4.262	76.279
	2,1,+1	4.126	223.507
	0,3,+1	3.838	555.344
	-1,2,0	4.804	116.192
	0,1,+1	5.149	385.824
	-1,0,0	5.333	115.300
$^1\text{H}^o$	3,0,-1	3.757	25.369
	2,1,+1	5.682	276.561
	1,2,0	2.639	1031.991
	1,0,0	5.348	215.110

视的,当 L 值不太大时,这种现象是很明显的。

- [1] N. Morita and T. Suzuki, *J. Phys. B*, 21(1988), 1439.
- [2] P. G. Harris *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, 65(1990), 309.
- [3] M. Domke *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, 66(1991), 1306.
- [4] J. P. Briand *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, 65(1990), 159.
- [5] J. P. Briand *et al.*, *Phys. Rev.*, A28(1983), 1413.
- [6] C. D. Lin, *Phys. Rev.*, A10(1974), 1986.
- [7] S. Watanabe and C. D. Lin, *Phys. Rev.*, A24(1986), 17.
- [8] Z. Chen and C. D. Lin, *Phys. Rev.*, A40(1989), 6712.
- [9] B. C. Gou, Z. Chen and C. D. Lin, *Phys. Rev.*, A43(1991), 3260.
- [10] A. Wollweber, J. M. Rost and J. S. Briggs, *Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, 24(1991), L115.
- [11] C. D. Lin, *Astrophys. J.*, 187(1974), 385.
- [12] D. R. Herrick and O. Sinanoglu, *Phys. Rev.*, A11(1975), 413.

RADIATIVE AND AUGER RATES OF HIGH DOUBLY EXCITED INTERSHELL STATES

GOU BING-CONG

Department of Applied Physics, Beijing Institute of Technology, Beijing 100081

(Received 12 March 1992)

ABSTRACT

The radiative and Auger rates are calculated for doubly excited intershell states of Ar^{16+} . We adopt the conventional configuration interaction CI approach, but each state is labelled using the $_{\alpha}(K,T)_{\beta}^{2s+1}L^{\pi}$ designation. It is shown that, to intrashell states which all have $A = +1$, these states decay primarily by Auger process and radiative decay contributed significantly only for the highest states within a given manifold, but to intershell states the Auger widths are much smaller for $A = -1$ and $A = 0$ states. For these states the fluorescence yield may become non-negligible. The approximate selection rule $\nu = 0, \pm 1$ for radiative decay holds for these states as well.

PACC: 3120T