

Au 激光等离子体 X 射线发射光谱的理论研究*

唐京武^{1)†} 黄笃之¹⁾ 易有根²⁾

1) (湖南科技大学物理学院, 湘潭 411201)

2) (中南大学物理科学与技术学院, 长沙 410083)

(2009 年 11 月 6 日收到; 2010 年 2 月 2 日收到修改稿)

采用细致组态 (detailed configuration accounting, DCA) 方法和碰撞辐射模型 (collisional radiative equilibrium model), Cowan 的相对论的原子结构理论程序, 选取与初、末离子组态有关的平均组态, 取 Hartree-Fock-Slater 自洽势, 考虑了非局域热动力学平衡条件下等离子体的主要原子动力学过程, 建立了描述等离子体中碰撞辐射模型的离子布居和能级布居的速率方程, 得到了 Au 元素的离子分布和能级分布, 电荷态分布和平均电离度, 并模拟出 Au 激光等离子体的 5f—3d 跃迁的 X 射线发射光谱的谱线强度, 计算得出的谱线强度与实验数据相比符合得较好.

关键词: 碰撞辐射理论, 布居速率方程, 平均电离度, 发射光谱

PACC: 3220R, 5225D, 5265

1. 引 言

高 Z 元素靶材 Au 可以获取高的吸收效率和高的 X 射线光转换效率, 高功率激光与之相互作用在冕区产生高温等离子体, 导致激光能量转换为 X 射线光辐射能. 因此, Au 的 X 射线光辐射特性在惯性约束聚变 (ICF) 及其应用研究中倍受关注, 特别是其在高功率激光加热产生的 X 射线光光谱呈显著的非平衡特性和明显的带结构谱, 它不但可以提供激光等离子体诊断的相关信息^[1-5], 诸如电子温度和电子密度随时空的演化过程图象, 而且还可提供等离子体的时空电离态特性, 给出其相应的平均电离度, 电荷态分布和离子内各能级的布居概率^[6].

平均电离度是激光等离子体的重要物理参数之一, 但其诊断难度大, 尤其是对高 Z 等离子体而言. 诊断技术的发展对于惯性约束聚变、辐射不透明度、X 射线激光都具有重要的需求背景和广泛的现实意义. 等离子体的电离态特性研究包含平均电离度, 电荷态分布和离子内各能级的布居概率等三层次内容. 随着高功率激光电子温度和电子密度诊断技术的深入开展, 激光产生的低和中等 Z 材料元素的非平衡等离子体 K 壳层和 L 壳层吸收光谱和发射光谱的电离态特性研究已取得了很大的进

展^[7,8], 然而对于高 Z 元素, 例如 Au 离化为 M 壳层和 N 壳层的非平衡激光等离子体电离态特性研究却研究极少^[9-14]. 在 Au 腔靶的研究中, 激光等离子体呈现明显的非平衡 (non-local) 特性, 欲了解其辐射过程, 必须在一定的电子温度和电子密度的实验条件下求解布居速率方程, 因此, 对非平衡等离子体平均电离度, 电荷态分布和离子内各能级的布居概率研究就显得尤为重要.

本文以高 Z 材料 Au 激光等离子体的 5f—3d 跃迁的 X 射线发射光谱的谱线强度为主, 结合细致组态 (DCA) 方法和碰撞辐射模型 (collision radiation equilibrium model), 开展了高温、高密度和高 Z 等离子体的复杂电离态特性研究, 给出了其激光等离子体在不同电子温度和电子密度情况下的平均电离度, 电荷态分布和离子内各能级的布居概率. 本文拟建立高温、高密度和高 Z 激光等离子体的电离度诊断手段, 推动诊断学的发展, 且为 Au 等离子体提供基础、基准数据.

2. 理论方法

采用与初、末离子组态有关的平均组态, 产生 (hartree-fock-slater, HFS) 自洽势, 并且假定束缚电子与连续电子都是在自洽势中独立运动. 用 HFS 自

* 国家自然科学基金 (批准号: 10275056) 资助的课题.

† E-mail: tangjw09@gmail.com

沿势计算束缚电子的结合能和波函数,按照 Cowan 的准相对论理论,忽略波函数中的小分量,同时将 j_{\pm} 轨道上的两个大分量加权平均为 1 轨道的波函数. 该理论体现在大分量满足的方程中量子数 k 取加权平均值 (-1) , 即单电子径向波函数满足相对论修正的 Schrödinger 方程 (以 Ryd 为能量单位)

$$\left\{ -\frac{d^2}{dr^2} + \frac{l(l+1)}{r^2} + V_{\text{scf}}(r) - \frac{\alpha^2}{4} [\varepsilon - V_{\text{scf}}(r)]^2 - \frac{\alpha^2}{4} \left[1 + \frac{\alpha^2}{4} [\varepsilon - V_{\text{scf}}(r)] \right]^{-1} \times \frac{dV_{\text{scf}}}{dr} \left(\frac{1}{\phi} \frac{d\phi}{dr} - \frac{1}{r} \right) \right\} \phi(r) = \varepsilon \phi(r), \quad (1)$$

式中等号左边第四项为质量-速度修正项,第五项为 Darwin 修正项, $V_{\text{scf}}(r)$ 为在平均组态下的 HFS 势,

$$V_{\text{scf}}(r) = -\frac{2Z}{r} + V_c(r) - \left[\frac{24}{\pi} \rho(r) \right]^{1/3}, \quad (2)$$

式中 $V_c(r) = \sum_{m=1}^q w_m \int_0^{\infty} \frac{2}{r_{<}} \phi_m^2(r_2) dr_2$ 为电子在平均场中的经典势能, $r_{<}$ 取在 r 与 r_2 中的较小者, q 为轨道数, w_m 为轨道电子占据数, $\rho(r) = \frac{1}{4\pi r^2} \sum_{m=1}^q w_m \phi_m^2(r)$ 为球电子的平均密度.

计算过程中还可以将等离子体环境中的电子温度和密度考虑进出,计算出组态平均的自发线辐射,电子碰撞激发和退激发过程,电子电离和三体复合过程,自电离和双电子复合过程,自由电子波函数采用库仑波函数或扭曲波近似.

在建立速率方程时需考虑如下原子动力学过程: 1) 自发线辐射; 2) 电子碰撞激发和退激发; 3) 电子碰撞电离; 4) 辐射复合; 5) 三体复合; 6) 双电子复合; 7) 自电离. 假设自由电子服从 Maxwell 分布,电子碰撞占优的能级之间可达到相对热动平衡. 近简并的各能级之间、高激发态与自由态之间均近似处于热动平衡. 计算中将主量子数截断到某一 n_c , 认为 $n > n_c$ 的态处于热动平衡. 描述 r 度电离离子 (简称 r 离子) 基态布居数原子动力学的速率方程为

$$\begin{aligned} \frac{dN^r(g)}{dt} = & \sum_{j=1}^{n_c} [A^r(j,g) + Y^r(j,g)] N^r(j) \\ & - \sum_{j=1}^{n_c} X^r(g,j) N^r(g) + (R^{r+1}(g,g) \\ & + R_{3b}^{r+1}(g,g) N^{r+1}(g) - S^r(g,g) N^r(g) \\ & + S^{r-1}(g,g) N^{r-1}(g) - (R^r(g,g) \\ & + R_{3b}^r(g,g)) N^r(g) + \sum_{j=1}^{n_c} (S^{r-1}(j,g) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} & + B^{r-1}(j,g)) N^{r-1}(j) - \sum_{j=1}^{n_c} (R^r(g,j) \\ & + R_{3b}^r(g,j) + D^r(g,j)) N^r(g), \\ & (r = r_{\min}, \dots, r_{\max}), \quad (3) \end{aligned}$$

r_{\min} 和 r_{\max} 分别为所考虑离子系统中最小和最大电离度. 这里约定 r 表示离子的电离度, g 为基态, j 为第 j 激发态, n_c 为各离子最后一个激发态, n_c 以上的激发态处于热动平衡. $A^r(i,j)$, $X^r(i,j)$, $Y^r(i,j)$, $R^r(i,j)$, $R_{3b}^r(i,j)$, $S^r(i,j)$, $B^r(i,j)$ 和 $D^r(i,j)$ 分别表示 r 离子 i 态到 j 态的线跃迁速率、电子碰撞激发速率、电子碰撞退激发速率、辐射复合速率、三体复合速率、电子碰撞电离速率、自电离速率和双电子复合速率,各速率的单位为 s^{-1} . $N^r(j)$ 表示处于 j 能态的 r 离子数密度,单位为 cm^{-3} .

由于激发态到基态的线跃迁速率较大,通常激发态布居数较小,因此,对激发态,只考虑单激发态及可自电离为基态的多电子激发态. 另外,同一种离子的各激发态之间可以相互耦合,而这些激发态只能与更高电离级离子的基态耦合,忽略激发态间的电离及复合过程. 影响 r 离子 i 激发态布居数的原子动力学速率方程为

$$\begin{aligned} \frac{dN^r(i)}{dt} = & \sum_{j=i+1}^{n_c} (A^r(j,i) + Y^r(j,i)) N^r(j) \\ & - \sum_{j=i+1}^{n_c} X^r(i,j) N^r(i) + \sum_{j=g}^{i-1} X^r(j,i) N^r(j) \\ & - \sum_{j=g}^{i-1} (A^r(i,j) + Y^r(i,j)) N^r(i) \\ & + (R^{r+1}(g,i) + R_{3b}^{r+1}(g,i) \\ & + D^{r+1}(g,i)) N^{r+1}(g) \\ & - (|S^r(i,g) + B^r(i,g)) N^r(i) \end{aligned} \quad (4)$$

($i = 1, 2, \dots, n_c; r = 0, 1, \dots, Z-1$), 因为激发态的变化为快过程,能快速响应基态的变化,而基态的弛豫时间比激发态的弛豫时间长得多,因此,对于描述离子布居和能级布居的动力学速率方程组可采用准稳态近似,即

$$\begin{aligned} \frac{dN^r(i)}{dt} = 0, \quad (i = 1, 2, \dots, n_c) \\ \frac{dN^r(g)}{dt} \neq 0. \end{aligned} \quad (5)$$

假设谱线跃迁上能态 i 的离子数密度为 $N(i)$, 由 i 向下能态 j 自发辐射跃迁的速率为 $A(i,j)$, 则单位体积辐射源在单位时间内辐射的光子数为 $N(i)A(i,j)$. 若辐射频率为 $\nu(i,j)$, 且辐射是各向同

性的,则辐射源单位体积、单位时间、沿某一方向单位立体角内发出的辐射能为

$$\frac{1}{4\pi}h\nu(i,j)A(i,j)N(i) \quad (\text{Jm}^{-3}\text{s}^{-1}\text{sr}^{-1}), \quad (6)$$

如果等离子体是光性薄的,那么辐射强度是指沿某一方向的单位立体角内、单位时间内通过单位视在面积的辐射能,即

$$I(i,j) = \int \frac{1}{4\pi}h\nu(i,j)A(i,j)N(i)ds, \quad (7)$$

积分沿观测方向等离子体深度进行.若等离子体是均匀的,则

$$I(i,j) = \frac{1}{4\pi}h\nu(i,j)A(i,j)N(i)D \quad (\text{Wm}^{-2}\text{sr}^{-1}), \quad (8)$$

式中 D 为观测方向上等离子体厚度.辐射强度也是辐射源表面亮度.

3. 计算结果与讨论

我们取最大主量子数 $n_c = 9$, 发展了一套计算高功率激光产生的任何原子序数的等离子体辐射发射光谱的程序.利用 Cowan 准相对论能级组态平均理论,在已建立的原子自洽场能级数据库和原子参数数据库的基础上可以得到任何所需要的元素原子或离子的能级和原子参数,包括所有电离度的占有组态及其轨道能和激发轨道能;通过求解速率布居方程确定重要电离度,根据 Boltzmann 分布,挑出重要组态.最后将所有重要组态用碰撞辐射模型处理,得出光谱辐射强度数据.在本文工作中,在计算碰撞辐射参数时,采用全相对论理论计算.每个重要电离度约有 10000 个组态参与了 CRE 的计算,其中所挑组态总布居达 96% 以上,由此可以确保计算的收敛性.

方程(3)和(4)为采用碰撞辐射模型计算的离子布居和能级布居的动力学速率方程,考虑到等离子体环境中的电子温度和密度后,计算过程中的线跃迁速率、电子碰撞激发速率、电子碰撞退激发速率、辐射复合速率、三体复合速率、电子碰撞电离速率、自电离速率和双电子复合速率分别取自文献^[8,10-12],最后采用迭代法求解速率方程获取碰撞辐射理论的非平衡激光等离子体的离子布居和能级布居概率.为了校验理论模型的正确性,我们模拟了 Au 激光等离子体的 $5f-3d$ 跃迁的 X 射线发射光谱在不同的电子温度和电子密度情况下的定态

平均电离度和谱线跃迁强度,图 1 和图 2 为 Au 等离子体在确定的电子密度 $5 \times 10^{21}/\text{cm}^3$ 和不同的电子温度的情况下用速率布居方程组计算的光谱跃迁的各电离度的能级布居概率和发射光谱强度.由图可以看出,不同的电子温度对应着不同的电荷态分布,电子温度的变化对其各电离度的布居概率影响比较明显,随着电子温度从 2.0 keV, 2.5 keV 升高到 3.0 keV,类镍金离子,类钴金离子和类铁金离子 ($\text{Au}^{51+}, \text{Au}^{52+}, \text{Au}^{53+}$) 高电荷态离子布居概率增加,类砷金离子,类镓金离子和类镱金离子 ($\text{Au}^{46+}, \text{Au}^{47+}, \text{Au}^{48+}$) 低电荷态离子布居概率减少,平均电荷态分布向高电荷态移动,平均电离度增加.结果表明在确定的电子密度情况下,电子温度变化对金离子的布居概率分布十分敏感,电子温度的高低会造成平均电离度的变化.这主要是由于当电子温度升高时,能量增加造成离子内壳层电子逐步被电离,离子布居概率增加,造成电离度增大的缘故.

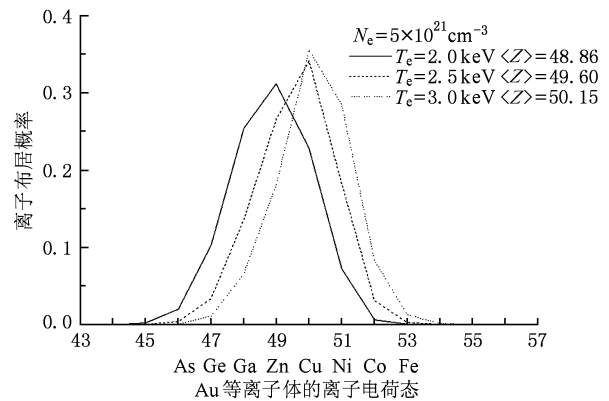


图 1 Au 等离子体在电子密度 $5 \times 10^{21}/\text{cm}^3$ 的离子布居概率

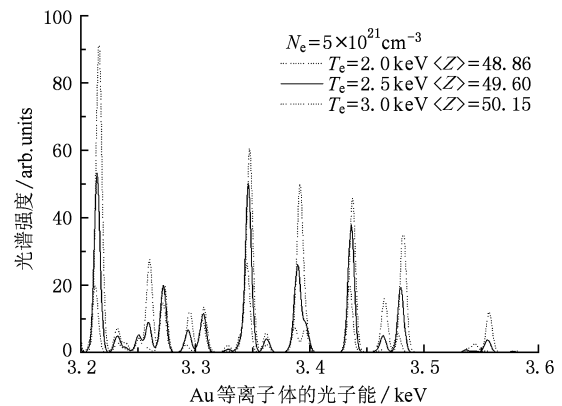


图 2 Au 等离子体在电子密度 $5 \times 10^{21}/\text{cm}^3$ 的等离子体的发射光谱强度

图3和图4为Au等离子体在确定的电子温度2.0 keV和不同的电子密度的情况下用速率布居方程组计算的其各电离度的离子布居概率和发射光谱强度.由图可以看出,不同的电子密度亦会形成不同的电荷态分布,电子密度的变化影响着各电离度的布居概率,电子密度的变化对其各电离度的离子布居概率分布亦非常明显,随着电子密度增加,类镍金离子,类钴金离子和类铁金离子(Au^{51+} , Au^{52+} , Au^{53+})高电荷态离子布居概率增加,类砷金离子,类镉金离子和类镓金离子(Au^{46+} , Au^{47+} , Au^{48+})低电荷态离子布居概率减少,平均电荷态分布向高电荷态方向移动,平均电离度增加.结果表明在确定的电子温度情况下,电子密度变化对金离子的布居概率分布亦十分敏感,电子密度的大小会造成平均电离度的变化.这主要是由于当电子密度从 $3 \times 10^{21}/\text{cm}^3$, $5 \times 10^{21}/\text{cm}^3$ 增加到 $8 \times 10^{21}/\text{cm}^3$ 时,等离子体自由电子增多,电子之间碰撞的概率加大,使离子布居概率增加,造成电离度增大的缘故.

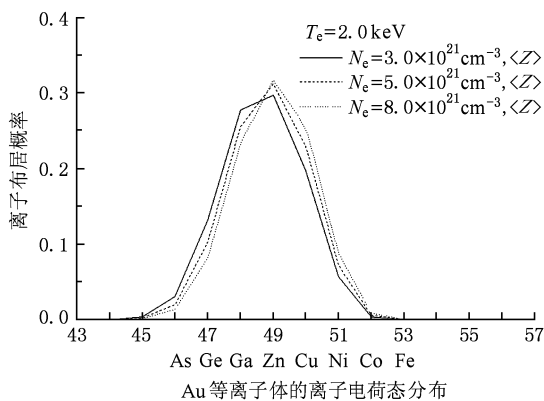


图3 Au等离子体在电子温度2.0 keV的离子布居概率

最近,“神光-Ⅱ”激光装置上测得了Au激光等离子体在光子能量范围为3.0—3.6 keV的Au激光等离子体的5f—3d跃迁的X射线发射光谱的谱线强度^[14],采用双示踪元素X射线能谱诊断高功率激光产生Au的等离子体的电子温度范围初步估计为1.5—2.5 keV,电子密度范围初步估计为 $(5-8) \times 10^{21}/\text{cm}^3$ ^[15],我们在考察了多点的电子温度和电子密度后,发现Au激光等离子体电子温度为2.0 keV,电子密度为 $8.0 \times 10^{21}/\text{cm}^3$ 时的计算结果与实验符

合得最好.表1和图5为我们计算的Au元素等离子体在该温度、密度条件下各电离度的组态数和通过碰撞辐射方程求解得出的离子布居概率,模拟的定态平均电离度为49.02.

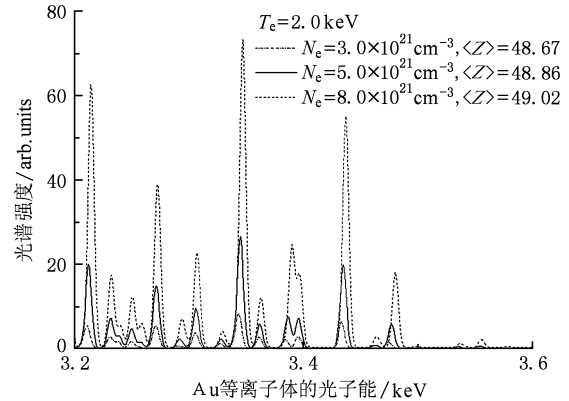


图4 Au等离子体在电子温度2.0 keV的等离子体的发射光谱强度

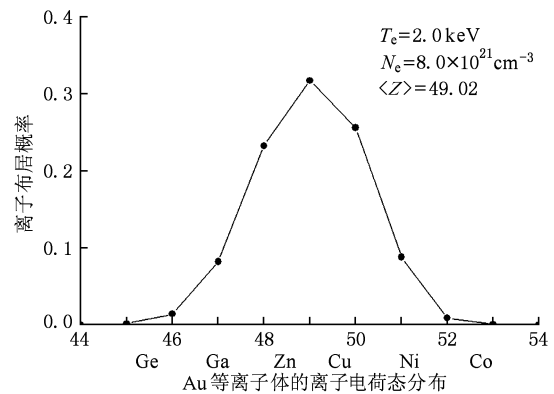


图5 Au等离子体在电子温度2.0 keV,电子密度 $8.0 \times 10^{21}/\text{cm}^3$ 的离子布居概率

图6为用DCA方法和碰撞辐射模型计算的Au腔靶激光等离子体的5f—3d跃迁的X射线发射光谱的谱线强度与“神光-Ⅱ”激光装置实验测量的其跃迁谱线强度结果的比较. DCA方法和碰撞辐射模型为在电子温度为2.0 keV,电子密度 $8.0 \times 10^{21}/\text{cm}^3$ 时得出最好的结果,计算得出的定态平均电离度为 $\langle Z \rangle = 49.02$,从图上看, Au激光等离子体发射的光子能量在3.0—3.6 keV范围内,计算发射光谱结果与实验符合得比较好.根据相对论多组态

表1 Au等离子体的电荷态分布和布居概率

电荷态	Au^{46+}	Au^{47+}	Au^{48+}	Au^{49+}	Au^{50+}	Au^{51+}	Au^{52+}
布居概率	0.01167	0.05578	0.1606	0.2877	0.2996	0.1590	0.02286

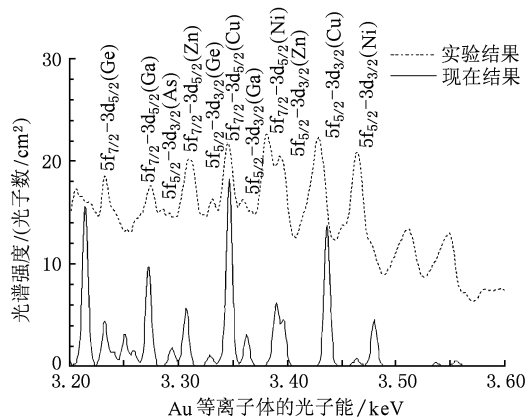


图6 Au 腔靶激光等离子体 5f—3d 发射光谱和理论谱的比较

Dirac-Fock 方法,还可很方便地精确标识出具体的 Au 激光等离子体的 5f—3d 跃迁的光谱类型,从图 6 中可以看出,虽然理论计算结果与实验谱相比,在谱线能量位置上符合较好,但在谱线宽度、背景处理上都还有待于作进一步的研究。

4. 结 论

根据细致组态 (DCA) 方法和碰撞辐射模型 (collision radiation equilibrium model),我们采用

Cowan 的准相对论的原子结构理论程序,选取与初、末离子组态有关的平均组态,取 Hartree-Fock-Slater 自洽势,考虑了非局域热力学平衡条件下等离子体的主要原子动力学过程,建立了描述等离子体中碰撞辐射模型的离子布居和能级布居的速率方程,得到了 Au 元素的离子分布和能级分布,确定了等离子体中 Au 元素的电荷态分布和定态平均电离度及离子的布居概率,并模拟出 Au 等离子体的 5f—3d 跃迁的 X 射线发射光谱的谱线强度;另外本文还建立了一套计算激光产生的高温高密度非平衡等离子体辐射的离子分布和平均电离度的理论与程序框架,并能在一定的电子温度和电子密度实验条件下,对激光等离子体进行发射光谱线的理论模拟,以满足对等离子体的电荷态分布和平均电离度地诊断需求,从而建立高温、高密度和高 Z 激光等离子体的电离度诊断手段. 光谱的计算结果与实验数据的比对表明本文建立的电荷态分布和平均电离度的诊断与电子温度、电子密度的关系是密切相关的. 从我们对 Au 激光等离子体的 5f—3d 跃迁的 X 射线发射光谱的谱线强度特性进行了细致的研究来看,计算结果与实验也符合较好,结果表明本文建立的电荷态分布和平均电离度的诊断与电子温度、电子密度的关系是切实可行的。

- [1] Glenzer S H, Rozmus W, MacGowan B J, Estabrook K G, Groot J D D, Zimmerman G B 1999 *Phys. Rev. Lett.* **82** 97
- [2] Fontes C J, Abdallah Jr J, Clark R E H, Kilcrease D P 2000 *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer.* **65** 223
- [3] He B, Yi Y G, Jiang S E, Tang Y J, Zheng Z J 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 6879 (in Chinese) [何彪、易有根、江少恩、唐永建、郑志坚 2009 物理学报 **58** 6879]
- [4] Yi Y G, Wang H L, Wu J, Yang J M, Zheng Z J, Tang G 2006 *J. Atom. Mol. Phys.* **23** 425 (in Chinese) [易有根、王华兰、吴劼、杨家敏、郑志坚、唐鹤 2006 原子与分子物理学报 **23** 425]
- [5] Duan B, Wu Z Q, Wang J G 2009 *Science in China G* **39** 241 (in Chinese) [段斌、吴泽清、王建国 2009 中国科学 G 辑 **39** 241]
- [6] Klapisch M, Bar-Shalom A, Oreg J 1998 *Phys. Plasmas.* **5** 1919
- [7] Foord M E, Glenzer S H, Thoe R S, Wong K L, Fournier K B, Albritton J R 2000 *J. Quantum Spectr. Rad. Trans.* **65** 231
- [8] Glenzer S H, Fournier K B, Wilson B G, Lee R W 2001 *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer.* **71** 355
- [9] Yi Y G, Zheng Z J, Yan J, Li P, Fan Q Y, Qiu Y B 2002 *Acta Phys. Sin.* **51** 2740 (in Chinese) [易有根、郑志坚、颜君、李萍、方泉玉、邱玉波 2002 物理学报 **51** 2740]
- [10] Zhang H, Cheng X L, Yang X D, Xie F J, Zhang J Y, Yang G H 2003 *Acta Phys. Sin.* **52** 3098 (in Chinese) [张红、程新路、杨向东、谢方军、张继彦、杨国洪 2003 物理学报 **52** 3098]
- [11] Cai J, Yi Y G, Zheng Z J, Yi Zao, Yan J, Qiu Y B 2009 *J. Atom. Mol. Phys.* **26** 284 (in Chinese) [蔡静、易有根、郑志坚、易早、颜君、邱玉波 2009 原子与分子物理学报 **26** 284]
- [12] Yi Y G, Zheng Z J, Yan J, Li P, Fan Q Y, Qiu Y B 2003 *High Power Laser and Particle Beams* **15** 145 (in Chinese) [易有根、郑志坚、颜君、李萍、方泉玉、邱玉波 2003 强激光与粒子束 **15** 145]
- [13] Yi Y G, Wan X W, Zheng Z J, Yan J, Li P, Fan Q Y, Qiu Y B 2003 *J. Atom. Mol. Phys.* **20** 173 (in Chinese) [易有根、王学文、郑志坚、颜君、李萍、方泉玉、邱玉波 2003 原子与分子物理学报 **20** 173]
- [14] Yang G H, Zhang J Y, Zhang B H, Zhou Y Q, Li J, 2000 *Acta Phys. Sin.* **49** 2389 (in Chinese) [杨国洪、张继彦、张保汉、

周裕清、李 军 2000 物理学报 **49** 2389]
[15] Chen B, Zheng J Y, Ding Y K, Li S W, Wang Y M, 2001 *Acta*

Phys. Sin. **50** 711 (in Chinese) [陈 波、郑志坚、丁永坤、
李三伟、王耀梅 2001 物理学报 **50** 711]

Theoretical calculations of X-ray spectra of Au plasma^{*}

Tang Jing-Wu^{1)†} Huang Du-Zhi¹⁾ Yi You-Gen²⁾

1) (*School of Physics, Hunan University of Science and Technology, Xiangtan 411201*)

2) (*Physics School of Science and Technology, Central South University, Changsha 410083*)

(Received 6 November 2009; revised manuscript received 2 February 2010)

Abstract

By using a detailed configuration accounting method in the collisional radiative equilibrium model, and Cowan's relativistic atomic structure code with respect to ionic averaged configurations and Hartree-Fock-Slater potential, we solve the rate equations for populations of all ionic and level populations of all excited states, in which main consider main atomic dynamic processes in a non-local thermodynamic equilibrium plasma can be considered, thereby obtaining the ionic populations and energy level populations and the ionic charge stage distribution and the average charge for Au. We also simulate and calculate the X-ray emission spectra of Au 5f—3d transition arrays. The calculated results are in good agreement with the experimental data for a well-characterized highly ionized Au plasma.

Keywords: collisional radiative equilibrium, rate equation, average charge, emission spectrum

PACC: 3220R, 5225D, 5265

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 10275056).

[†] E-mail: tangjw09@gmail.com