

Al<sup>+</sup> 离子  $3s^2\ ^1S_0 \rightarrow 3s3p\ ^3,^1P_1^o$  跃迁同位素偏移的理论研究

张婷贤 李冀光 刘建鹏

Theoretical study on the isotope shift factors for the  $3s^2\ ^1S_0 \rightarrow 3s3p\ ^3,^1P_1^o$  transitions in Al<sup>+</sup> ion

Zhang Ting-Xian Li Ji-Guang Liu Jian-Peng

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 67, 053101 (2018) DOI: 10.7498/aps.20172261

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.20172261>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2018/V67/I5>

---

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

[不同光线入射角度下超声速湍流边界层气动光学效应的实验研究](#)

Experimental investigation on aero-optics of supersonic turbulent boundary layers at different light incident angles

物理学报.2017, 66(24): 244201 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.244201>

[大气湍流中部分相干光束上行和下行传输偏振特性的比较](#)

Comparison of polarization property of partially coherent beam between propagating along an uplink path and a downlink path in atmospheric turbulence

物理学报.2015, 64(22): 224204 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.224204>

[取向比对椭球气溶胶粒子散射特性的影响](#)

Influence of aspect ratio on the light scattering properties of spherical aerosol particles

物理学报.2015, 64(22): 224205 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.224205>

[牙齿组织光热动态特性仿真与试验研究](#)

Simulation and experimental investigation of tooth tissue in photothermal radiometry dynamic response induced by modulated laser

物理学报.2015, 64(19): 194203 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.194203>

[大气折射对可见光波段辐射传输特性的影响](#)

Influence of atmospheric refraction on radiative transfer at visible light band

物理学报.2015, 64(18): 184203 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.184203>

# Al<sup>+</sup> 离子 3s<sup>2</sup> <sup>1</sup>S<sub>0</sub> → 3s3p <sup>3,1</sup>P<sub>1</sub><sup>o</sup> 跃迁同位素偏移 的理论研究\*

张婷贤<sup>1)2)</sup> 李冀光<sup>1)†</sup> 刘建鹏<sup>3)</sup>

1) (北京应用物理与计算数学研究所, 北京 100088)

2) (西北师范大学物理与电子工程学院, 兰州 730070)

3) (国防科技大学文理学院, 长沙 410073)

(2017年10月19日收到; 2017年12月14日收到修改稿)

在多组态 Dirac-Hartree-Fock 方法对 Al<sup>+</sup> 离子 3s<sup>2</sup> <sup>1</sup>S<sub>0</sub> → 3s3p <sup>3,1</sup>P<sub>1</sub><sup>o</sup> 两个跃迁同位素偏移因子精细计算工作的基础上, 细致研究了同位素偏移因子和能量本征值 (或跃迁能) 随着电子关联的收敛过程. 研究发现: 单个能级的同位素质量偏移因子随电子关联的收敛性与能量本征值随电子关联的收敛性之间有线性关系; 对于跃迁而言, 对电子关联的描述越充分, 质量偏移因子和跃迁能随电子关联的收敛性之间的线性关系越明显. 因此, 在计算模型中包含大规模的电子关联的情况下, 可以利用该线性关系根据跃迁能的误差评估同位素偏移因子的不确定度.

**关键词:** 多组态 Dirac-Hartree-Fock 方法, 电子关联效应, 同位素偏移, Al<sup>+</sup> 离子

**PACS:** 31.30.Gs, 32.10.Fn

**DOI:** 10.7498/aps.67.20172261

## 1 引言

在核物理研究中, 原子核的均方根半径 ( $r^2$ ) 是研究原子核性质的重要物理参数, 对同一元素该参数沿同位素链的变化反映原子核内相互作用的变化规律. 因此, 对不同同位素均方半径的确定不仅有助于发现奇异核, 而且有助于理解原子核内的多体相互作用从而发展核结构理论<sup>[1]</sup>. 从原子物理的角度出发, 结合对原子 (或离子) 同位素偏移的精密测量和原子结构高精度计算是提取原子核均方根半径的有效途径之一<sup>[2]</sup>. 该方法的优势在于其提取得到的核参数与核模型无关, 因此可以用于检验核模型. 特别是近年来共线激光光谱技术的发展已经可以测量产量较低的不稳定核素的同位素偏移. 但是在理论计算方面, 由于同位素偏移因子对电子关联效应的敏感性较强, 在有限的计算资源下难以对

多电子体系的计算精度进行准确地评估.

近年来, 对某些体系的大规模计算中发现, 在同位素质量偏移因子 (包括正规质量偏移因子和特殊质量偏移因子) 和跃迁能随电子关联的收敛过程中, 这两个物理量的收敛性之间存在线性关系. 以 Carette 和 Godefroid 对 C 原子和 C<sup>-</sup> 离子的研究为例, 当参考组态基组固定时, 随着活动空间中关联轨道的增加, C 原子的 2p<sup>2</sup> <sup>3</sup>P 态的能量本征值和特殊质量偏移因子均逐渐减小, 并近似成线性关系. 在活动空间大小一样、参考组态基组逐渐扩大的情况下, 特殊质量偏移因子逐渐增大, 能量本征值逐渐减小, 二者的收敛过程仍然近似成线性关系. 这反映出 C 原子的 2p<sup>2</sup> <sup>3</sup>P 态的能量本征值和特殊质量偏移因子随电子关联效应的收敛过程近似成线性关系<sup>[3]</sup>. 类似的情况还在 S<sup>-</sup> 离子、Cl 原子, Cl<sup>-</sup> 离子中被发现<sup>[4,5]</sup>. 后来, 他们又在对中性 Cu 的 4s <sup>2</sup>S<sub>1/2</sub> → 4p <sup>2</sup>P<sub>3/2</sub><sup>o</sup> 跃迁的研究工作中发现, 该跃迁

\* 国家自然科学基金 (批准号: 11404025, 91536106) 和中国博士后科学基金 (批准号: 2014M560061) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: li\_jiguang@iapcm.ac.cn

的质量偏移因子与跃迁能随电子关联的收敛性之间存在线性关系, 并且指出在他们的计算模型下, 计算所得的质量偏移因子的误差与跃迁能和实验结果之间的误差有一定的关联<sup>[6]</sup>. 最近, Liu等<sup>[7]</sup>在 $B^+$ 体系中同样发现了相似的线性关系, 而且用该线性关系对计算结果的不确定度进行了评估, 其评估结果与通过评估电子关联效应的收敛性及Breit相互作用所得不确定度基本一致. 但是, 到目前为止, 还没有对这些线性关系普适证明的报道. 另外, 对于大部分体系, 不论是实验还是理论, 给出跃迁能的结果要相对容易一些, 如果同位素偏移因子与跃迁能的收敛性之间确实存在线性关系, 这必然有助于对今后理论计算结果不确定度的评估.

本文在之前对 $Al^+$ 离子 $3s^2\ ^1S_0 \rightarrow 3s3p\ ^3,1P_1^o$ 两个跃迁的同位素偏移因子精细计算的基础上, 进一步细致地讨论了同位素偏移因子随着电子关联的收敛过程. 发现在大规模计算中, 同位素偏移因子的收敛过程和跃迁能的收敛过程存在线性关系. 进一步, 我们尝试利用此线性关系对之前的计算结果给出不确定度.

## 2 理论方法

### 2.1 MCDHF方法和RCI方法

多组态Dirac-Hartree-Fock方法, 简称MCDHF方法<sup>[8]</sup>, 用具有相同宇称 $P$ 、总角动量 $J$ 以及 $J$ 的 $z$ 方向的分量 $M_J$ 的组态波函数 $\Phi$ 的线性组合表示原子态的波函数 $\Psi$ , 即

$$\Psi(\Gamma P J M_J) = \sum_{i=1}^{N_{CSF}} c_i \Phi(\gamma_i P J M_J), \quad (1)$$

式中 $c_i$ 是混合系数,  $\gamma_i$ 是描述组态波函数 $\Phi$ 所需其余量子数的统一标记. 组态波函数 $\Phi$ 又是单电子Dirac轨道波函数的乘积的线性组合. 理论上, (1)式中组态波函数 $\Phi$ 的个数应该是无数个时才能得到真实的原子态波函数. 但是, 在实际计算中只能选取有限多个组态波函数 $\Phi$ . 因此, 组态波函数 $\Phi$ 的个数以及选取条件就决定着对电子关联效应的描述程度. 在MCDHF方法中, 基于变分原理, 通过自洽场计算同时优化混合系数和轨道波函数使原子态的能量达到最低. 在得到单电子轨道基后, 可以通过进一步扩大组态空间, 利用相对论组态相互作用(RCI)的方法包含更多的电子关联, 但此时单电子轨道波函数是固定的, 只有混合系数可以被

继续优化. 另外, 在低频近似下的Breit相互作用也可以在RCI中被包括<sup>[9]</sup>:

$$B_{ij} = -\frac{1}{2r_{ij}} \left[ \boldsymbol{\alpha}_i \cdot \boldsymbol{\alpha}_j + \frac{(\boldsymbol{\alpha}_i \cdot \mathbf{r}_{ij})(\boldsymbol{\alpha}_j \cdot \mathbf{r}_{ij})}{r_{ij}^2} \right]. \quad (2)$$

### 2.2 同位素偏移

真实的原子核是由质子和中子构成的具有一定质量 $M$ 的有限量子体系, 其核电荷分布由原子核电荷均方半径描述. 因为不同同位素的中子数不同, 所以不同同位素具有不同的质量数和核电荷分布, 从而导致原子谱线的偏移, 这一偏移量被称之为同位素偏移(IS). 根据起因, 将同位素偏移分为由于原子核的有限质量引起的质量偏移(MS)和由于原子核的有限体积引起的场偏移(FS)<sup>[10,11]</sup>. 对于质量偏移部分, 近似到 $\alpha^2(m/M)$ 阶, 包含相对论的原子核核反冲效应的质量偏移的哈密顿量如(3)式, 其单体算符和两体算符分别对应着正规质量偏移(NMS)和特殊质量偏移(SMS)<sup>[12-15]</sup>,

$$\begin{aligned} H_{RMS} &= H_{RNMS} + H_{RSMS} \quad (3) \\ &= \frac{1}{2M} \sum_i \left\{ \mathbf{p}_i^2 - \frac{\alpha z}{r_i} \left[ \boldsymbol{\alpha}_i + \frac{(\boldsymbol{\alpha}_i \cdot \mathbf{r}_i) \mathbf{r}_i}{r_i^2} \right] \cdot \mathbf{p}_i \right\} \\ &\quad + \frac{1}{2M} \sum_{i \neq j} \left\{ \mathbf{p}_i \cdot \mathbf{p}_j - \frac{\alpha z}{r_i} \left[ \boldsymbol{\alpha}_i + \frac{(\boldsymbol{\alpha}_i \cdot \mathbf{r}_i) \mathbf{r}_i}{r_i^2} \right] \cdot \mathbf{p}_j \right\}. \quad (4) \end{aligned}$$

在此基础上, 将正规质量偏移因子 $K_{RNMS}$ 和特殊质量偏移因子 $K_{RSMS}$ 定义为<sup>[16]</sup>:

$$K_{RNMS} \equiv M \langle \Psi | H_{RNMS} | \Psi \rangle, \quad (5)$$

$$K_{RSMS} \equiv M \langle \Psi | H_{RSMS} | \Psi \rangle. \quad (6)$$

对于一个跃迁而言, 同位素 $A$ 和 $A'$ 之间的质量偏移因子 $\Delta K_{RMS}$ 为跃迁中上(u)下(l)能级之间质量偏移因子差值<sup>[17]</sup>, 即

$$\Delta K_{RMS} = K_{u,RMS} - K_{l,RMS}. \quad (7)$$

## 3 计算模型

物理量的计算精度主要取决于对电子关联的描述程度. 在多组态Dirac-Hartree-Fock理论框架下, 我们采用活动空间方法捕获电子关联效应, 因此, 组态空间的构建是计算的关键所在. 在本文的计算中, 组态空间是由从参考组态的单双激发所产生的组态构成. 在表1和表2中给出了各个模型的

参考组态的基组. 为了系统地描述电子关联, 根据微扰理论将电子关联划分为一阶关联和高阶关联, 其中一阶电子关联效应用从单参考组态单双激发形成的组态空间描述. 将  $1s$ ,  $2s$ ,  $2p$  轨道看作原子芯轨道 (C),  $3s$  和  $3p$  轨道看作价轨道 (V), 相应地, 一阶电子关联可以划分为价电子之间的关联 (VV 关联), 价电子与原子芯电子之间的关联 (CV 关联), 以及原子芯电子之间的关联 (CC 关联). 待一阶关联描述充分后, 将一阶关联组态空间中权重较大的组态加入参考组态基组, 用从多参考组态基组的单双激发形成的组态空间描述高阶电子关联效应. 因为从多参考组态的单、双激发就相当于从单参考组态的限制性的三、四激发, 而且我们选择的是权重较大的组态加入参考组态基组, 实质是优先考虑了较重要的高阶电子关联效应, 所以在有限的计算资源下大大提高了计算效率. 另外, 为了更真实地反映各个能级的波函数, 计算中对奇偶宇称的波函数分别进行优化. 详细的计算模型在之前的工作<sup>[18]</sup>中已经介绍过, 下面仅做简要说明.

首先, 在自洽场计算中同时包含了 VV 和 CV 关联. 这里的组态空间是由从单参考组态 (即  $3s^2$  和  $3s3p$  分别作为奇偶宇称的参考组态) 限制性的单双激发到由关联轨道 (虚轨道) 构成的活动空间产生组态形成, 其中对单双激发的限制条件为: 原子芯轨道上至多有一个电子能被激发到关联轨道. 自洽场计算的起点是用 Dirac-Hartree-Fock 方法优化光谱轨道 (占据轨道), 并在随后的计算中保持固定. 为了同位素偏移因子能够稳定收敛, 如表 1 和表 2 中所示, 关联轨道是逐层加入的, 而且每次只优化最新加入的轨道. 在前期的测试计算中, 我们发现部分高角动量的关联轨道, 如  $7i$ ,  $7h$ ,  $8g$  等轨道, 对同位素偏移因子的影响很小, 因此为了提高计算效率, 这些轨道不包含在活动空间中. 我们把上述计算模型被标记为  $C_{1s}V-nl$ , 其中  $n$  和  $l$  分别代表最新加入的关联轨道的最大主量子数和轨道角量子数.

当自洽场计算的结果收敛之后, 将单电子轨道波函数固定, 通过进一步扩大组态空间在 RCI 计算中包括剩余的电子关联效应. 首先在 RCI 计算中包括的是  $2s$  和  $2p$  轨道的电子关联. 此时组态空间中被加入的是从单参考组态中  $2s$ ,  $2p$  轨道上双激发到最大活动空间所形成的组态. 相

应地, 此时的计算模型用  $CC_{2s}$  标记. 至此,  $Al^+$  离子中除  $CC_{1s}$  关联外的一阶电子关联效应均已被包括. 随后, 逐步把一阶关联中权重大于 0.05, 0.02, 0.01 的组态加入参考组态基组再次逐步扩大组态空间, 从而包扩了  $2s$ ,  $2p$  轨道和  $3s$ ,  $3p$  轨道之间的高阶关联效应. 将这部分计算模型依次标记为  $MR_1$ ,  $MR_2$ ,  $MR_3$ . 在  $MR_1$  模型中,  $\{2s^22p^63s^2; 2s^22p^63p^2\}$  和  $\{2s^22p^63s3p; 2s^22p^63p3d\}$  分别作为奇偶宇称的参考组态. 这里的关联轨道仍然是逐层添加, 直至该模型下的计算结果达到收敛. 待  $MR_1$  模型下的计算结果收敛后, 将  $\{2s^22p^43s^24p^2; 2s^22p^43s^23d^2; 2s^22p^53s3p3d\}$  和  $\{2s^22p^63s5p; 2s^22p^63s4p; 2s^22p^63d5p\}$  分别加入奇偶宇称的参考组态基组中, 构成  $MR_2$  模型中的参考组态基组. 同理,  $MR_2$  模型下的计算结果收敛后, 将  $\{2s^22p^43s^23p4p; 2s^22p^43s^23d4d; 2s2p^53s^24s4p; 2s^22p^43s^24p5p\}$  和  $\{2s^22p^43s3p4p^2; 2s^22p^43s3p4d^2\}$  加入参考组态基组, 即  $MR_3$ . 最后, 用 RCI 计算评估了 Breit 作用对  $Al^+$  离子的同位素偏移因子的贡献, 并将其作为计算结果的不确定度的一部分. 本文计算用 Grasp2K 程序包<sup>[19-21]</sup>完成.

为了反映计算得到的原子态波函数的品质, 在表 1 和表 2 中给出了各个模型下组态波函数的个数 (NCSF) 以及能量本征值 (单位:  $cm^{-1}$ ). 同时在图 1 中展示了本文所涉及的两个跃迁的跃迁能 (单位:  $cm^{-1}$ ) 随电子关联的变化. 从表 1 和表 2 中  $^1S_0$ ,  $^3P_1^o$  和  $^1P_1^o$  三个能级的能量本征值随组态空间的收敛可以看出, 最后一步得到的能量本征值最

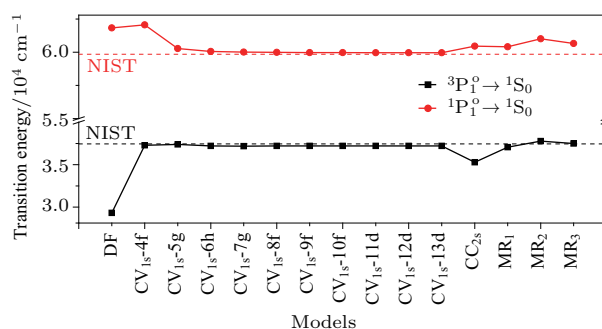


图 1  $Al^+$  离子  $3s3p\ ^3P_1^o \rightarrow 3s^2\ ^1S_0$  跃迁的跃迁能 (单位:  $cm^{-1}$ ) 随电子关联的变化

Fig. 1. Transition energies (in  $cm^{-1}$ ) of the  $3s3p\ ^3P_1^o \rightarrow 3s^2\ ^1S_0$  transitions in  $Al^+$  ion as a function of the computational models.

低, 因此, 此时得到的原子态波函数与真实情况最接近. 但在图 1 中最后计算的  $3s3p\ ^1P_1^o \rightarrow 3s^2\ ^1S_0$  的跃迁能与虚线标注的 NIST [22] 推荐值相比并不是最好的, 其误差为 1.35%. 这是由于初末态能级

的关联效应存在细微的不平衡, 这些误差需要用更大规模的计算来改进, 但这已经超出了我们目前的计算资源. 通过系统地考虑电子关联效应, 可以准确地给出物理量的误差范围, 并呈现在表 3 中.

表 1 各个计算模型下  $3s^2\ ^1S_0$  态的参考组态基组, 活动轨道 (AO), 组态波函数的个数 (NCSF) 以及能量本征值 (单位:  $\text{cm}^{-1}$ )  
Table 1. The reference configurations, the active orbitals (AO), the number of CSFs (NCSF) and the energy (in  $\text{cm}^{-1}$ ) for the  $3s^2\ ^1S_0$  state in various correlation models.

Model	Reference configurations	AO	NCSF	Energy/ $\text{cm}^{-1}$
DF	$\{2s^22p^63s^2\}$		1	-53141183
CV <sub>1s</sub> -4f		4s, 3p, 3d, 4f	61	-53151934
CV <sub>1s</sub> -5g		5s, 4p, 4d, 5f, 5g	254	-53154412
CV <sub>1s</sub> -6h		6s, 5p, 5d, 6f, 6g, 6h	616	-53155163
CV <sub>1s</sub> -7g		7s, 6p, 6d, 7f, 7g, 6h	1098	-53155440
CV <sub>1s</sub> -8f		8s, 7p, 7d, 8f, 7g, 6h	1603	-53155543
CV <sub>1s</sub> -9f		9s, 8p, 8d, 9f, 7g, 6h	2211	-53155592
CV <sub>1s</sub> -10f		10s, 9p, 9d, 10f, 7g, 6h	2922	-53155614
CV <sub>1s</sub> -11d		11s, 10p, 10d, 10f, 7g, 6h	3509	-53155624
CV <sub>1s</sub> -12d		12s, 11p, 11d, 10f, 7g, 6h	4163	-53155630
CV <sub>1s</sub> -13d		13s, 12p, 12d, 10f, 7g, 6h	4884	-53155632
CC <sub>2s</sub>		13s, 12p, 12d, 10f, 7g, 6h	14988	-53224021
MR <sub>1</sub>	$+ \{2s^22p^63p^2\}$	8s, 8p, 7d, 8f, 7g, 6h	23358	-53226127
MR <sub>2</sub>	$+ \{2s^22p^43s^24p^2; 2s^22p^43s^23d^2; 2s^22p^53s3p3d\}$	6s, 7p, 6d, 6f, 6g, 6h	229659	-53226927
MR <sub>3</sub>	$+ \{2s^22p^43s^23p4p; 2s^22p^43s^23d4d; 2s2p^53s^24s4p; 2s^22p^43s^24p5p\}$	5s, 6p, 5d, 4f, 5g	357223	-53227237

表 2 各个计算模型下  $3s3p\ ^3P_1^o$  态的参考组态基组, 活动轨道 (AO), 组态波函数的个数 (NCSF) 以及能量本征值 (单位:  $\text{cm}^{-1}$ )  
Table 2. The reference configurations, the active orbitals (AO), the number of CSFs (NCSF), and the energy (in  $\text{cm}^{-1}$ ) for the  $3s3p\ ^3P_1^o$  states in various correlation models.

Model	Reference configurations	AO	NCSF	Energy/ $\text{cm}^{-1}$	
				$^3P_1^o$	$^1P_1^o$
DF	$\{2s^22p^63s3p\}$		2	-53111869	-53079345
CV <sub>1s</sub> -4f		4s, 4p, 3d, 4f	600	-53114653	-53089871
CV <sub>1s</sub> -5g		5s, 5p, 4d, 5f, 5g	2326	-53117018	-53094133
CV <sub>1s</sub> -6h		6s, 6p, 5d, 6f, 6g, 6h	5573	-53117958	-53095104
CV <sub>1s</sub> -7g		7s, 7p, 6d, 7f, 7g, 6h	9860	-53118256	-53095425
CV <sub>1s</sub> -8f		8s, 8p, 7d, 8f, 7g, 6h	14292	-53118331	-53095553
CV <sub>1s</sub> -9f		9s, 9p, 8d, 9f, 7g, 6h	19594	-53118377	-53095619
CV <sub>1s</sub> -10f		10s, 10p, 9d, 10f, 7g, 6h	25766	-53118399	-53095643
CV <sub>1s</sub> -11d		11s, 11p, 10d, 10f, 7g, 6h	30696	-53118405	-53095660
CV <sub>1s</sub> -12d		12s, 12p, 11d, 10f, 7g, 6h	36146	-53118411	-53095667
CV <sub>1s</sub> -13d		13s, 13p, 12d, 10f, 7g, 6h	42116	-53118413	-53095670
CC <sub>2s</sub>		13s, 13p, 12d, 10f, 7g, 6h	223468	-53188733	-53163561
MR <sub>1</sub>	$+ \{2s^22p^63p3d\}$	8s, 8p, 8d, 8f, 7g, 6h	352702	-53189063	-53165717
MR <sub>2</sub>	$+ \{2s^22p^63s5p; 2s^22p^63s3p; 2s^22p^63d5p\}$	5s, 7p, 5d, 5f, 5g	400690	-53189141	-53165917
MR <sub>3</sub>	$+ \{2s^22p^43s3p4p^2; 2s^22p^43s3p4d^2\}$	4s, 6p, 5d, 4f	1327012	-53189741	-53166574

## 4 结果与讨论

### 4.1 单个能级的收敛

首先研究了  $3s^2 \ ^1S_0$  和  $3s3p \ ^1,^3P_1^o$  能级的同位素偏移因子和能量本征值随电子关联的收敛过程. 图2给出了上述能级的正规质量偏移因子  $K_{RNMS}$ (左)、特殊质量偏移因子  $K_{RSMS}$ (右) 和能量本征值的收敛过程. 图中的  $\delta K = |K(a) - K(b)|$ ,  $\delta E = |E(a) - E(b)|$ , 其中  $a$  代表每一步计算模型,

$b$  代表最后一步计算模型, 即  $MR_3$ . 图中实心方点对应的是在自洽场计算中物理量随 VV 和 CV 关联的收敛过程; 空心方点对应在 RCI 计算中随  $CC_{2s}$  关联的收敛过程; 空心三角则代表在 RCI 中随高阶关联的收敛过程. 对于能量本征值, 我们的计算结果已收敛到 0.001%, 对于质量偏移因子  $K_{RNMS}$  和  $K_{RSMS}$  则大约收敛到 0.1%, 这反映出同位素偏移因子对电子关联的敏感性较高, 对于能量本征值影响很小的电子关联, 对同位素偏移的影响不一定可以忽略. 另外, 从图中可以看出, 在自洽场过程中与

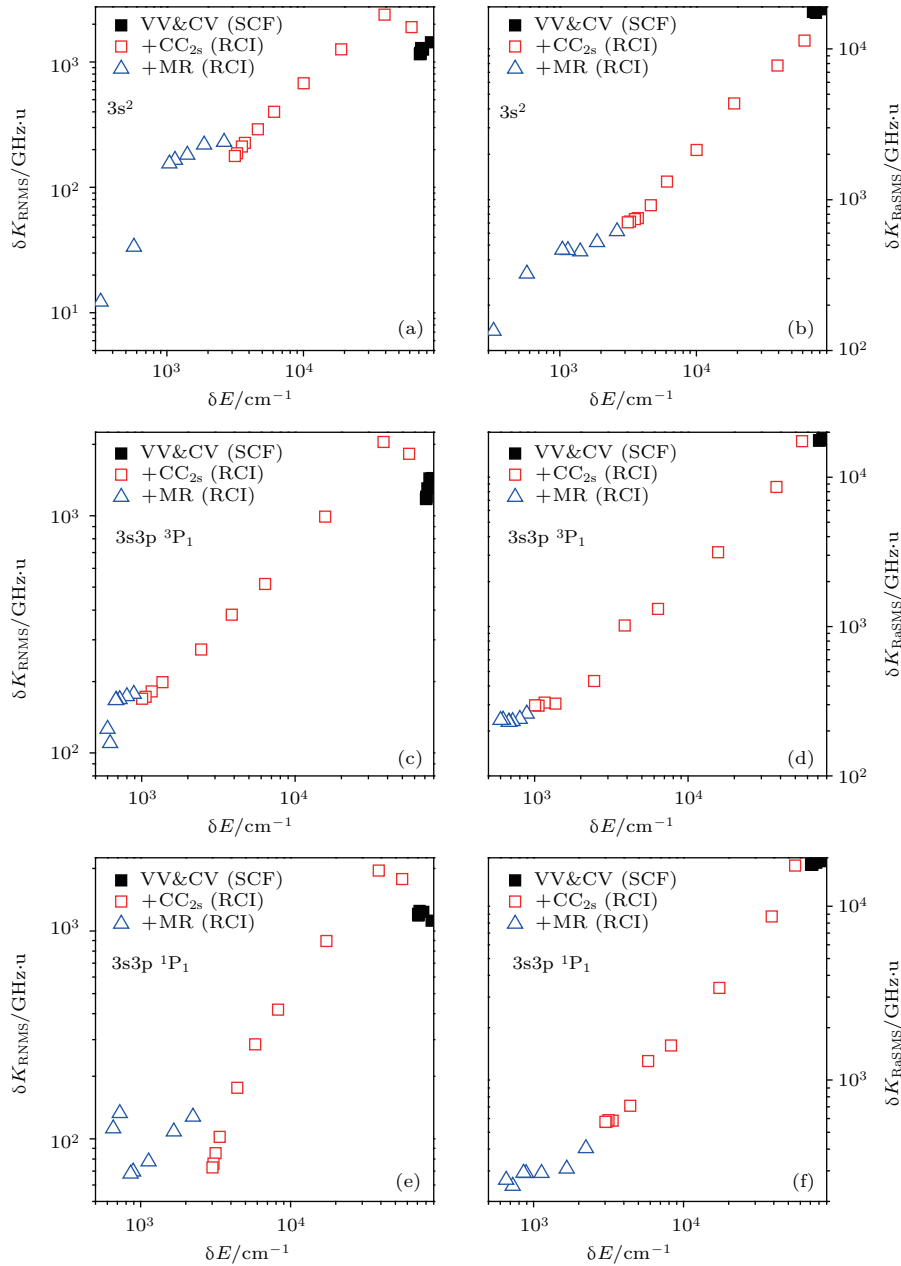


图2  $3s^2 \ (^1S_0)$  和  $3s3p \ (^1,^3P_1^o)$  的质量偏移因子 ( $K_{RNMS}$  和  $K_{RSMS}$  (单位: GHz·u) 与能量本征值  $E$  (单位:  $cm^{-1}$ ) 随电子关联的收敛

Fig. 2. The convergency of the NMS and SMS factor(in GHz·u) of the states  $3s^2 \ (^1S_0)$  and  $3s3p \ (^1,^3P_1^o)$  versus the eigenvalue energy (in  $cm^{-1}$ ).

MR 过程同位素偏移因子随能量本征值的收敛斜率不同, 这反映出在不同的计算模型下同位素偏移因子和能量本征值的收敛速度不同, 但是随着越来越多的关联被包括后, 能量本征值和同位素偏移因子的收敛速度趋于一致.

图 3 给出了  $3s^2\ ^1S_0$  和  $3s3p\ ^1,^3P_1^o$  各能级的正规质量偏移因子  $K_{RNMS}$  和特殊质量偏移因子  $K_{RSMS}$  在计算过程中每相邻两步计算结果的差值随能量本征值每相邻两步的差值的变化. 图中的  $\delta K = |K(\alpha) - K(\beta)|$ ,  $\delta E = |E(\alpha) - E(\beta)|$ , 此时

$\alpha$  代表每一步计算模型,  $\beta$  代表  $\alpha$  之前一步的计算模型. 与图 2 的标示方法相同, 即实心方点部分对应在自洽场计算中物理量随 VV 和 CV 关联的收敛过程, 空心方点对应在 RCI 计算中随  $CC_{2s}$  关联的收敛过程, 空心三角代表随高阶关联的收敛过程. 从图 3 可以看出, 对于单个能级, 其同位素偏移因子和能量本征值随电子关联的收敛性之间近似存在线性关系, 这进一步说明这两种物理量在每一步收敛过程中都是相关的. 当电子关联对能量本征值的影响减小时对同位素偏移因子的影响也相应地

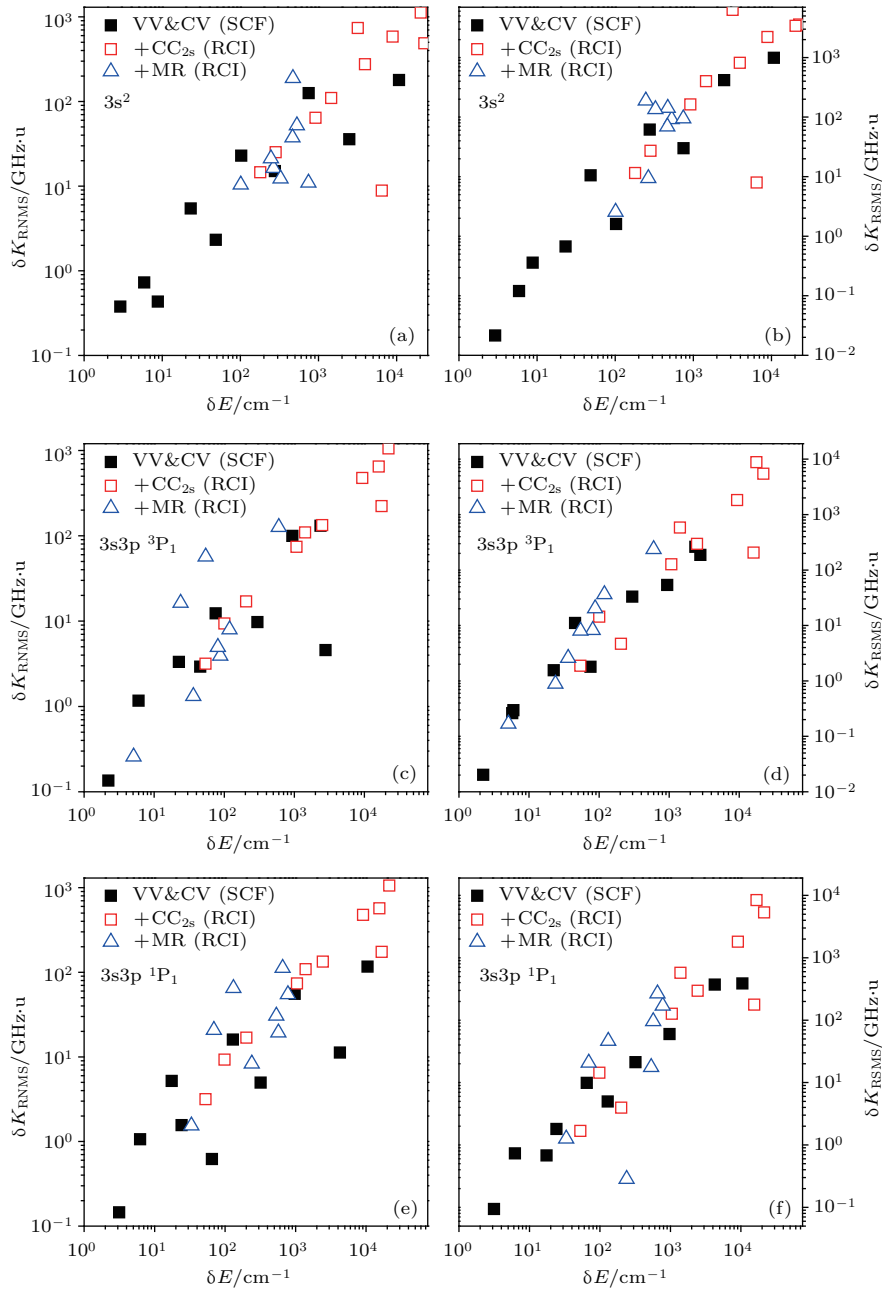


图 3  $3s^2\ (^1S_0)$  和  $3s3p\ (^1,^3P_1^o)$  的质量偏移因子 ( $K_{RNMS}$  和  $K_{RSMS}$  (单位: GHz.u) 与能量本征值  $E$  (单位:  $\text{cm}^{-1}$ ) 相邻两步的差值随电子关联的变化

Fig. 3. Convergence of the NMS and SMS factor (in GHz.u) of the states  $3s^2\ (^1S_0)$  and  $3s3p\ (^1,^3P_1^o)$  versus the eigenvalue energy (in  $\text{cm}^{-1}$ ) with the adjacent steps.

减小. 相比于自洽场计算部分,  $\delta K$  和  $\delta E$  之间线性关系在 RCI 计算中随  $CC_{2s}$  关联的收敛过程中更明显. 类似的情况同样出现在 Liu 等<sup>[7]</sup> 对  $B^+$  的研究中. 在图 3 中, 物理量随高阶关联的收敛过程中  $\delta K$  和  $\delta E$  之间线性关系不明显, 主要是由于我们的计算模型中所包含的高阶关联有限. 在 Liu 等对  $B^+$  的计算模型中直接采用了从单参考组态的三、四激发形成组态空间的方法描述高阶关联, 因此对高阶关联的描述很充分. 但是受限于计算资源, 我们的计算中仅包含了重要的高阶关联, 这导致得出的线性关系不及  $B^+$  的明显.

### 4.2 跃迁的收敛

图 4 给出了  $3s^2\ ^1S_0 \rightarrow 3s3p\ ^3,^1P_1^o$  两个跃迁的同位素质量偏移因子  $\Delta K_{RNMS}$  和  $\Delta K_{RSMS}$  每相邻两步的差值随跃迁能  $\Delta E$  的每相邻两步差值的变

化规律. 对于跃迁而言, 其同位素偏移因子和跃迁能都是该跃迁初末态的相应物理量的差值, 由于初末态之间存在相互抵消作用, 因此相比于单个能级, 跃迁所对应的收敛过程中的线性关系较差. 另外, 由于在我们的计算中对奇偶宇称的波函数是分别优化的, 不可避免地造成对初末态收敛的不平衡, 这种不平衡会破坏跃迁同位素偏移因子和跃迁能之间的线性关系. 从图 4 中可以看出, 在大规模的计算中, 跃迁能与同位素偏移因子之间确实存在线性关系, 相比于自洽场计算和  $CC_{2s}$  关联部分的收敛过程, 高阶关联部分的收敛过程中的线性关系更明显. 对于正规质量偏移因子  $K_{NMS}$  在非相对论框架下有标度关系,  $\Delta K_{NMS} = -\nu/1823$ , 其中  $\nu$  是跃迁频率<sup>[23]</sup>. 对于  $Al^+$  离子我们的计算结果表明相对论的原子核反冲效应对质量偏移因子的影响不超过 4%, 因此在正规质量偏移因子与跃迁能随

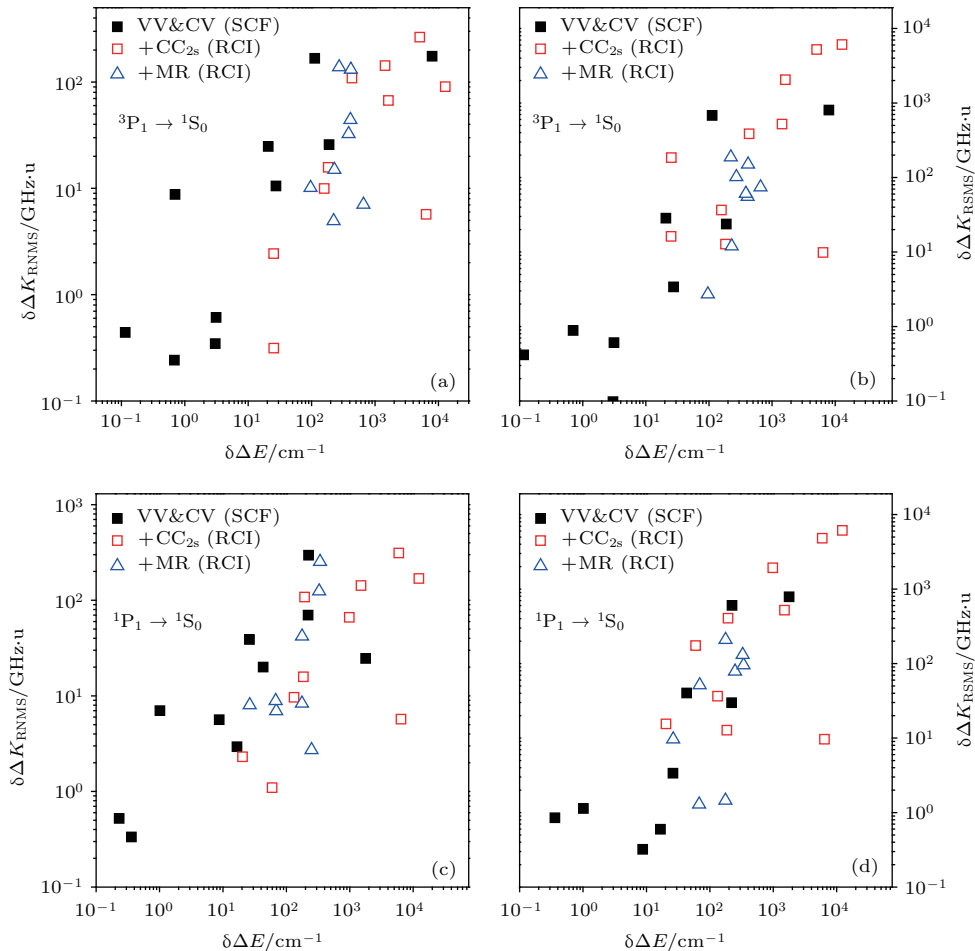


图 4  $3s^2\ ^1S_0 \rightarrow 3s3p\ ^3,^1P_1^o$  跃迁的质量偏移因子 ( $\Delta K_{RNMS}$  和  $\Delta K_{RSMS}$  (单位: GHz·u) 与跃迁能  $\Delta E$  (单位:  $cm^{-1}$ ) 相邻两步的差值随电子关联的变化

Fig. 4. Convergence of the NMS and SMS factor (in GHz·u) of the transitions  $3s^2\ ^1S_0 \rightarrow 3s3p\ ^3,^1P_1^o$  versus the transition energy (in  $cm^{-1}$ ) with the adjacent steps.

电子关联的收敛速度基本一致的情况下,也就是电子关联描述较充分的情况下,正规质量偏移因子与跃迁能的收敛过程呈现线性关系并不意外.对于特殊质量偏移因子,单从其算符形式很难看出线性关系的存在,但它本质上是与电子的动能相关的,因此推测可能存在线性关系,并通过大规模数值计算予以验证.

### 4.3 不确定度评估

表3中给出了用两种评估方法得到的同位素偏移因子的不确定度.一种是通过评估电子关联

效应和Breit作用所得结果,一种是用图4中高阶关联所对应的数值点线性拟合得到的直线结合我们计算的跃迁能与实验结果误差所得的不确定度.在本文的计算模型下,两种方法所得不确定度差距较大,其原因主要由于在我们的计算中对高阶关联的捕获有限,因此高阶关联所对应的数值个数有限导致图4中线性关系的拟合误差较大.但是,在计算资源更优越的条件下,我们可以对高阶关联的描述程度更充分,从而得到的线性关系也会更准确,相应地,用该线性关系评估得到的不确定度也更为可靠.

表3 两种不确定度评估方式下所得结果对比, line代表用本文线性关系所得结果, correlation代表之前工作中通过评估各个电子关联效应贡献所得结果

Table 3. Comparing of the uncertainties which are evaluated by the different method, the “line” means the results evaluated using the linearity in this work, the “correlation” means the uncertainties in our previous work.

	$3s^2\ ^1S_0 \rightarrow 3s3p\ ^3P_1^o$		$3s^2\ ^1S_0 \rightarrow 3s3p\ ^1P_1^o$	
	Line	Correlations	Line	Correlations
$K_{RNMS}/\text{GHz}\cdot\text{u}$	-608 (18)	-608 (86)	-931 (9)	-931 (36)
$K_{RSMS}/\text{GHz}\cdot\text{u}$	-989 (4)	-989 (149)	-268 (22)	-268 (127)

## 5 结 论

通过研究Al<sup>+</sup>中 $3s^2\ ^1S_0 \rightarrow 3s3p\ ^3,1P_1^o$ 跃迁的同位素偏移因子和跃迁能随电子关联的收敛性,发现在Al<sup>+</sup>体系中同位素偏移因子和跃迁能随电子关联的收敛性之间确实存在线性关系.而且通过这一线性关系可以根据理论计算的跃迁能和实验结果的符合程度实现对同位素偏移因子的理论计算结果的不确定度予以评估.由于计算资源有限,在本文的计算模型下用两种方法评估所得的不确定度相差较大,而该偏差可以通过在计算模型中包含更充分的高阶关联的方法来减小.对于暂时没有同位素偏移实验结果的多电子体系,上述线性关系提供了一种有效评估不确定度的方法.鉴于同位素偏移因子与能量本征值或跃迁能的收敛性之间的线性关系已经在多个体系中被发现,我们猜测这种线性关系并非偶然,但是需要在更多体系中予以验证.

### 参考文献

[1] Campbell P, Moore I D, Pearson M R 2016 *Prog. Part. Nucl. Phys.* **86** 127

[2] Cheal B, Cocolios T E, Fritzsche S 2012 *Phys. Rev. A* **86** 042501  
 [3] Carette T, Godefroid M R 2011 *Phys. Rev. A* **83** 062505  
 [4] Carette T, Godefroid M R 2010 *Phys. Rev. A* **81** 042522  
 [5] Carette T, Godefroid M R 2013 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **46** 095003  
 [6] Carette T, Godefroid M R 2016 *arXiv*: 1602.06574.  
 [7] Liu J P, Li J G, Zou H X 2017 *Chin. Phys. B* **26** 23104  
 [8] Grant I P 2007 *Relativistic Quantum Theory of Atom and Molecules* (New York: Spinger)  
 [9] Li J G, Jönsson P, Godefroid M R, Dong C Z, Gaigalas G 2012 *Phys. Rev. A* **86** 052523  
 [10] Tupitsyn I I, Shabaev V M, Crespo López-Urrutia J R, Draganić I, Soria Orts R, Ullrich J 2003 *Phys. Rev. A* **68** 022511  
 [11] Filippin L, Beerwerth R, Ekman J, Fritzsche S, Godefroid M R, Jönsson P 2016 *Phys. Rev. A* **94** 062508  
 [12] Palmer C W P 1987 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **20** 5987  
 [13] Torbohm G, Fricke B, Rosén A 1985 *Phys. Rev. A* **31** 2038  
 [14] Filippin L, Godefroid M R, Ekman J, Jönsson P 2016 *Phys. Rev. A* **93** 062512  
 [15] Filippin L, Bieroń J, Gaigalas G, Godefroid M R, Jönsson P 2017 *Phys. Rev. A* **96** 042502  
 [16] Gaidamauskas E, Nazé C, Rynkun P, Gaigalas G, Jönsson P, Gaigalas G 2011 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **44** 175003

- [17] Li J G, Godefroid M R, Wang J G 2016 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **49** 115002
- [18] Zhang T X, Xie L Y, Li J G, Lu Z H 2017 *Phys. Rev. A* **96** 012514
- [19] Jönsson P, He X, Fischer C F, Grant I 2007 *Comput. Phys. Commun.* **177** 597
- [20] Jönsson P, Gaigalas G, Bieron J, Fischer C F, Grant I 2013 *Comput. Phys. Commun.* **184** 2197
- [21] Nazé C, Gaidamauskas E, Gaigalas G, Godefroid M R, Jönsson P 2013 *Comput. Phys. Commun.* **184** 2187
- [22] Kramida A, Ralchenko Y, Reader J 2016 *NIST Atomic Spectra Database* (Version 5) <https://www.nist.gov/pml/atomic-spectra-database>
- [23] Godefroid M R, Fischer C F, Jönsson P 2001 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **34** 1079

## Theoretical study on the isotope shift factors for the $3s^2\ ^1S_0 \rightarrow 3s3p\ ^3,^1P_1^o$ transitions in $Al^+$ ion\*

Zhang Ting-Xian<sup>1)2)</sup> Li Ji-Guang<sup>1)†</sup> Liu Jian-Peng<sup>3)</sup>

1) (Institute of Applied Physics and Computational Mathematics, Beijing 100088, China)

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

3) (College of Liberal Arts and Science, National University of Defense Technology, Changsha 410073, China)

( Received 19 October 2017; revised manuscript received 14 December 2017 )

### Abstract

The accurate calculation of the isotope shift factors is helpful in extracting the mean-square charge radius of the nucleus, which is an important nuclear parameter to investigate the nuclear properties and improve nuclear structure theories. However, for atomic systems with many electrons the uncertainties of the calculated isotope shift factors are difficult to evaluate accurately, since high sensitivity of the isotope shift factor to the electron correlation and limitation of the computational resource. Based on the calculations of the isotope shift factors of the  $3s^2\ ^1S_0 \rightarrow 3s3p\ ^3,^1P_1^o$  transitions in  $Al^+$  by using the multi-configuration Dirac-Hartree-Fock method, the convergences of these physical quantities with the expansion of the configuration space are investigated in detail. In our calculation, the electron correlations are divided into the first-order correlation and the higher-order correlations according to the perturbation theory, and captured by using the active space approach. The effect of the first-order correlation are considered by including configuration state functions (CSFs) that are generated by the single and double substitutions from the occupied orbitals in the single reference configuration set. After the first-order correlation effect are taken into account adequately, the reference configuration sets are augmented by adding the dominant CSFs from the first-order correlation configuration space, in order to consider the higher-order correlation effect. We find that the convergence of the mass shift factors (including the normal shift factor and the specific mass shift factor) is linearly correlated with the convergence of the level energies in our computational model. For the transitions, the linear correlation of the convergence between the mass shift factors and the transition energies is not so good as that for the levels involved in the transitions due to the limited computational resource, but it can be improved with the expansion by including more higher-order correlation related 2s and 2p core electrons. Furthermore, we made use of the linear correlation to estimate the uncertainties of our isotope shift factors, and obtain the reasonable value of error. The authors hope that the linear correlation between the convergence of the mass shift factors and the level or transition energies can be proved and explained in more atomic systems, and the linear correlation can be used to evaluate accurately the uncertainties of the mass shift factors for the atoms and ions with many electrons in the near future.

**Keywords:** multi-configuration Dirac-Hartree-Fock method, electron correlation, isotope shift,  $Al^+$  ion

**PACS:** 31.30.Gs, 32.10.Fn

**DOI:** 10.7498/aps.67.20172261

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grants Nos. 11404025, 91536106) and the China Postdoctoral Science Foundation (Grant No. 2014M560061).

† Corresponding author. E-mail: [li\\_jiguang@iapcm.ac.cn](mailto:li_jiguang@iapcm.ac.cn)