

中高 Z 元素原子、离子的电子碰撞电离与激发截面快速计算方法

周旭¹⁾²⁾³⁾ 王川¹⁾²⁾³⁾ 胡荣豪^{1)2)3)†} 陶冶豪¹⁾²⁾³⁾ 邓小良⁴⁾
梁亦寒^{4)‡} 李晓亚⁴⁾ 吕蒙^{1)2)3)††} 祝文军⁴⁾

1) (四川大学物理学院, 成都 610064)

2) (高能密度物理及技术教育部重点实验室, 成都 610065)

3) (辐射物理及技术教育部重点实验室, 成都 610065)

4) (中国工程物理研究院流体物理研究所, 绵阳 621000)

(2024 年 1 月 31 日收到; 2024 年 3 月 13 日收到修改稿)

中高 Z 元素的原子数据如碰撞电离和碰撞激发截面在聚变工程、X 射线与物质相互作用等工程及研究领域有非常广泛的需求. 高能密度等离子体中存在从基态到激发态的原子和各价态离子, 其碰撞电离和碰撞激发截面需要分别计算. 本文以 73 号元素钽 (Ta) 为例, 基于相对论性 Dirac-Fock 理论和扭曲波模型计算了基态 Ta 原子到 Ta⁷²⁺ 离子在入射电子能量范围为 1—150 keV 的碰撞电离与碰撞激发截面, 并与相关实验和理论模型符合较好. 通过分析 Ta 的碰撞电离和碰撞激发截面数据中的规律, 给出两种减少计算量的方法: 对初态能级进行随机抽样、筛去贡献小的反应道, 并对计算量的优化程度和误差做出评估. 最终结果可在误差 5% 内将计算效率提高一个数量级, 本文所提方法可推广至其他中高 Z 元素的计算.

关键词: 碰撞电离, 碰撞激发, 扭曲波模型, 原子数据

PACS: 31.15.-p, 31.15.A-, 34.50.Fa

DOI: 10.7498/aps.73.20240213

1 引言

中、高 Z 元素的高电荷态离子, 其原子数据在磁约束聚变、X 射线自由电子激光 (X-ray free electron laser, XFEL)、等离子体诊断等领域的研究中具有重要价值和广泛应用前景^[1-5]. 例如, 钨 (W) 由于其高熔点、高导热率、高耐辐照性能以及不与氦气反应的特点而成为热核聚变反应堆装置中最有前景的等离子体面壁材料, 但是钨基材料的缺陷明显, 有研究者提出使用含钽 (Ta) 复合材料的解决方案. 在运行条件下等离子体中的电子温度

可达到 25—40 keV, 此时 W 和 Ta 可能作为杂质进入等离子体, 发出强辐射损失能量从而影响磁约束聚变点火条件的实现. 另一方面 W 和 Ta 离子的辐射谱可以作为等离子体诊断工具^[6,7]. 因此, 随着 XFEL 装置的发展, Ta 等高 Z 元素的原子数据, 如能级、跃迁速率、碰撞电离/激发截面等, 受到了越来越多的关注.

X 射线与物质相互作用基本过程的截面通常很小, 但单个脉冲的高光子通量会增大光电离概率至饱和, 各种光子诱发的原子过程也会相互竞争. 由于内壳层电子的光电离截面远大于外壳层电子

† 通信作者. E-mail: ronghaohu@scu.edu.cn

‡ 通信作者. E-mail: drollor@126.com

†† 通信作者. E-mail: lvmengphys@scu.edu.cn

的光电离截面, 内壳层电子首先被电离直至内壳层电子全部电离, 成为“空心原子”. 在这一阶段, 原子反而不容易受到电离损伤. 在几十到几百飞秒内, 电子体系会通过荧光或俄歇效应退激, 放出光子或俄歇电子. 光电子和俄歇电子则都有可能产生碰撞激发或级联的碰撞电离等, 进一步提高物质的电离程度^[8,9]. 在原子与分子层面, 由于复杂的原子过程, 物质中出现了非热和非线性效应. 高度电离的原子携带大量正电荷冻结在原地, 彼此距离不变, 这使得库仑相互作用占主导地位, 引发库仑爆炸, 在飞秒到皮秒量级的时间内就足以严重破坏物质原有的结构, 这比热损伤的时间尺度 (ps 到 ns) 短得多, 即所谓非热效应^[10]. 非线性效应的表现多样, 例如三体复合的速率与自由电子密度的平方成正比, 在存在大量自由电子时三体复合速率会显著上升^[11]; 光电离产生级联的次级电离, 使得自由电子密度指数上升直至饱和, 这也是非线性效应的一种^[9]. 在介观尺度层面, 材料对 XFEL 的动态响应也是一个有重要意义的研究方向^[12].

因此, 利用强 X 射线脉冲的所有研究领域, 如温稠密物质、纳米晶体学相干衍射成像等, 都需要深入了解 X 射线照射后的原子过程, 需要理论模型和精确的模拟工具来预测被辐照物质的行为, 而提供准确全面的原子数据是模拟的基础. 理论计算工具方面, Parpia 等^[13,14] 开发了基于多组态 Dirac-Fock 方法 (MCDF) 的原子结构计算软件 GRASP92 和 GRASP2K; Jurek 等^[8,9] 开发了基于 Hatree-Fock-Slater 方法的专门用于 XFEL 与物质相互作用模拟的原子结构与过程数据计算程序 XATOM; Gu^[15] 开发了易于使用的完全基于相对论理论的原子结构与过程数据计算代码 FAC. 理论计算方面, Ta, W, Au 等高 Z 元素作为聚变设施中的面等离子体材料, 其高度电离态的原子过程数据在等离子体诊断中有重要作用^[16]. 例如, Jiao 等^[17] 基于 GRASP92 和 RATIP 程序计算了 Cd^+ 离子的部分电子碰撞激发截面^[18]; Althiyabi 等^[19] 基于多组态 Dirac-Hartree-Fock (MCDHF) 方法计算了类 Be 离子 Hf^{68+} 和 Ta^{69+} 的能级和跃迁数据, 并考虑了 Breit 相互作用和量子电动力学 (QED) 效应的影响; Zhong 等^[20] 使用 FAC 计算了类 Ni 离子 Ta^{45+} 的能级、跃迁、电子碰撞激发数据; Motoumba 等^[21] 基于相对论性组态相互作用多组态 Dirac-Hartree-Fock (MCDHF-RCI) 方法和半经验相对论修正的

Hartree-Fock (HFR) 方法计算了类 Er 离子 Lu^{3+} , Hf^{4+} , Ta^{5+} 的辐射跃迁速率; Aggarwal^[22] 使用 GRASP 计算了类 Ne 离子 Hf^{62+} , Ta^{63+} , Re^{65+} 的辐射跃迁速率, 并使用 FAC 进一步研究组态相互作用的影响; Chen 等^[16] 使用 FAC 计算了从 Hf^{48+} 到 Au^{55+} 的类 Cr 离子的能级和辐射跃迁速率; Jönsson 等^[23] 使用 GRASP2K 计算了类 F 离子 Si^{5+} - W^{65+} 的能级和辐射跃迁速率; Wang 等^[24] 提供了一种成像方法, 能够成像块体材料在 XFEL 照射条件下的动态压缩响应. 实验上, 随着实验装置和技术的发展, 研究者利用 EBIT^[25-27] 等装置也进行了一系列高精度的光子或电子与高 Z 离子碰撞过程的实验研究. Ralchenko 等^[28] 在 NIST-EBIT 上观测了 W^{54+} - W^{63+} 的 EUV 谱; 1970 年, Middleman 等^[29] 在加速器上测量了高能电子对于 Cu, In, Ta 等中高 Z 元素的内壳层碰撞电离截面; Müller 等^[30] 以 100 meV 的能量分辨率测量了 W^+ 离子的光电离截面; Santoni 等^[31] 研究了 Ta, Pt, Au 的近 4d 边辐射跃迁; Singh 等^[32] 测量了 Ta, Au, U 等高 Z 元素的 L 层特征 X 射线产生截面. 但中高 Z 元素的原子数据第一性原理计算需要考虑大量的原子组态, 其高昂的计算成本往往超过了我们的计算能力.

本研究基于相对论性 Dirac-Fock 理论和扭曲波 (distorted wave, DW) 模型计算了从基态 Ta 到 Ta^{72+} 入射电子能量范围为 1—150 keV 的碰撞电离与碰撞激发截面, 并将结果与相关实验和计算数据进行比较. 基于截面数据的变化规律, 我们提出了一种通用的数据处理方法来提高计算效率. 通过对细致能级模型 (detailed level accounting, DLA) 的原始计算结果进行求和, 获得了细致组态模型 (detailed configuration accounting, DCA) 的截面数据. 通过深入研究这些数据的规律, 提供了两种降低计算量的策略: 一是对初态能级进行随机抽样, 二是剔除贡献微小的反应道. 对这些策略在计算量优化方面的效果进行了评估, 并指出这些方法具有在更重元素计算中推广应用的潜力.

2 计算理论

2.1 原子结构

计算中使用的波函数均由原子结构及性质计算程序 FAC 计算得到, 其中单电子波函数可表示

为 Dirac 旋量:

$$\varphi_{n\kappa m} = \frac{1}{r} \begin{pmatrix} P_{n\kappa}(r)\chi_{\kappa m}(\theta, \phi, \sigma) \\ iQ_{n\kappa}(r)\chi_{-\kappa m}(\theta, \phi, \sigma) \end{pmatrix}, \quad (1)$$

式中, $\chi_{\kappa m}$ 为自旋球谐函数; n 为主量子数; κ 为相对论角动量量子数, 与轨道角动量 l 和总角动量 j 的关系为 $\kappa = (l - j)(2j + 1)$; m 为总角动量的第三分量. 原子的波函数由单电子波函数的 Slater 行列式线性叠加得到, 叠加系数根据哈密顿量的对角化确定, 波函数的大小分量 $P_{n\kappa}$ 和 $Q_{n\kappa}$ 通过求解 Dirac 方程获得. 对于体系中的自由电子, 可将 (1) 式中的 n 替换为能量 ε 得到连续态波函数, 而归一化条件改为

$$\int_0^\infty [P_{\varepsilon(r)}P_{\varepsilon'(r)} + Q_{\varepsilon(r)}Q_{\varepsilon'(r)}] dr = \pi \delta(\varepsilon - \varepsilon'). \quad (2)$$

2.2 碰撞激发截面

从初态 ψ_0 到 ψ_1 的碰撞激发截面可以由碰撞强度 Ω_{01} 表示:

$$\sigma_{01} = \frac{\pi}{k_0^2 g_0} \Omega_{01}, \quad (3)$$

其中 g_0 为初态的统计权重, k_0 为入射电子的动量, 在原子单位制下, 与入射电子的能量 ε_0 的关系为

$$k_0^2 = 2\varepsilon_0 \left(1 + \frac{\alpha^2}{2} \varepsilon_0 \right), \quad (4)$$

式中 α 为精细结构常数. 碰撞强度可由下式求得

$$\Omega_{01} = 2 \sum_{\kappa_0 \kappa_1} \sum_{J_T} [J_T] \times \left| \langle \psi_0 \kappa_0, J_T M_T | \sum_{i < j} \frac{1}{r_{ij}} | \psi_1 \kappa_1, J_T M_T \rangle \right|^2, \quad (5)$$

其中 κ_0 和 κ_1 分别为入射电子和出射电子的相对论角动量量子数, J_T 为目标态与自由电子的连续态耦合的总角动量, M_T 为总角动量的投影, $[J] = 2J + 1$. Dirac 方程的求解和矩阵元的计算见文献 [15].

2.3 碰撞电离截面

相对论扭曲波模型中, 碰撞电离截面可以通过将碰撞激发截面中末态中的一个束缚态电子轨道替换为自由态电子轨道 (即电离电子的轨道) 得到. 即:

$$\sigma_{01}(\varepsilon_0, \varepsilon) = \frac{1}{k_0^2 g_0} \Omega_{01}, \quad (6)$$

其中 g_0 为初态的统计权重, k_0 为入射电子的动量, ε 为电离电子的能量, 系数与 (3) 式的差异来自于束缚态与连续态的归一化条件差异. 碰撞强度的表达式为

$$\Omega_{01} = 2 \sum_{\kappa_0 \kappa_1 \kappa} \sum_{J_T} [J_T] \times \left| \langle \psi_0 \kappa_0, J_T M_T | \sum_{i < j} \frac{1}{r_{ij}} | \psi_1 \kappa_1, \varepsilon \kappa, J_T M_T \rangle \right|^2, \quad (7)$$

其中, κ 为电离电子的相对论角动量量子数. (6) 式所得的截面是入射电子能量为 ε_0 , 电离电子能量为 ε 的微分截面, 欲得到固定入射电子能量的总截面还需对 ε 积分:

$$\sigma(\varepsilon_0) = \int_0^{(\varepsilon_0 - I)/2} \sigma(\varepsilon_0, \varepsilon) d\varepsilon, \quad (8)$$

其中, I 为电离能, $I = \varepsilon_0 - (\varepsilon_1 + \varepsilon)$, 同时 I 也是初态与末态的能量差.

3 数值结果和讨论

3.1 组态平均截面

首先, 对从 FAC 得到的原始数据进行了插值和拟合的预处理, 见补充材料 A 和补充材料 B (online). 经过预处理的原始数据为 DLA 能级之间的截面数据, 为便于应用及探究规律, 还需要对其求和及平均得到 DCA 组态之间的截面数据. 即先对 DLA 初态能级相同 DLA 末态能级不同的反应道求和, 再对 DLA 初态不同的求和截面求加权平均. 设 DLA 反应道为 $i \rightarrow j$, 所属的 DCA 反应道为 $C \rightarrow C'$, 则上述过程可表示为

$$\sigma_{C \rightarrow C'} = \frac{\sum_{i \in C, j \in C'} g_i \sigma_{i \rightarrow j}}{\sum_{i \in C} g_i}, \quad (9)$$

其中 g_i 为能级 i 的统计权重, $g_i = 2J_i + 1$, J_i 为能级 i 的总角动量.

经过估计, 计算 Ta 的碰撞电离截面涉及的 DLA 反应道约有 2.60×10^7 个, 而计算 Ta 的碰撞激发截面涉及的 DLA 反应道约有 $4.21 \times 10^8 - 1.32 \times 10^9$ 个. 即若不进行任何优化, Ta 碰撞激发的计算量为碰撞电离计算量的 20—60 倍, 且碰撞电离的计算量已经相当大.

3.2 初态能级随机抽样

根据 (9) 式, 可以看出 DCA 反应道截面来自于末态能级不同初态能级相同的 DLA 反应道截面的求和, 最终的总截面是通过初态能级不同的总截面求平均得到的. 设初态能级为 i , 对应的中间总截面为 $\sigma_i = \sum_{j \in C'} \sigma_{i \rightarrow j}$ 若这些中间总截面彼此已经很接近, 则其平均值与单个的中间总截面也不会有很大差距, 由此则可以通过计算少量的中间总截面代替计算全部的中间总截面, 同时保持所得结果与全部中间总截面的平均值的偏差在合理的范围内, 从而减少计算量. 复杂的电子组态 (有一个或多个不满电子亚层/有角动量较高的不满电子亚层) 可能有数百到数千个不同的初态能级, 计算量的减少是可观的.

首先探究中间总截面相对于其平均值的偏差. 为了得到更明显的统计规律, 选择初态能级较多的 DCA 组态, 以下有的选择的是对应离子的高度激发态, 并无物理上的显著性, 在实际情况与蒙特卡罗模拟中不会以很高的比例出现, 选择这些组态

只是为了得到更多的初态能级. 结果如图 1 所示, 图中均取入射电子能量 $E_0 = 75 \text{ keV}$.

图 1 中, 横轴为初态能级的编号, 由 FAC 按照能量由低到高给出; 纵轴为相对偏差 (relative difference), 记为 $RD = (\sigma_i - \bar{\sigma})/\bar{\sigma}$, $\bar{\sigma}$ 按照 (9) 式计算, σ_i 为初态能级 i 的中间总截面; 图 1(a)–(c) 的图例表示碰撞电离中被电离的电子亚层, 图 1(d) 的图例表示碰撞激发中被激发的电子亚层. 如无说明, 本文中的电子亚层均指非相对论性电子亚层, 即按照主量子数 n 和轨道角动量子数 l 区分的电子亚层.

由图 1 可以看到在所示的情况下, 初态能级的中间总截面与最终的平均截面相对偏差在 $\pm 5\%$ 以内, 重点在于中间总截面彼此之间没有数量级上的差异. 另一方面, 不同初态能级的中间总截面呈现出一定分布规律. 如图 1(a) 大致呈一斜线, 关于中部中心对称; 图 1(b) 则呈现出阶梯状, 而以上两者中的数据点均没有整齐排列成一条曲线, 而是在曲线两侧显示出一定的随机分布; 图 1(c) 则同时具

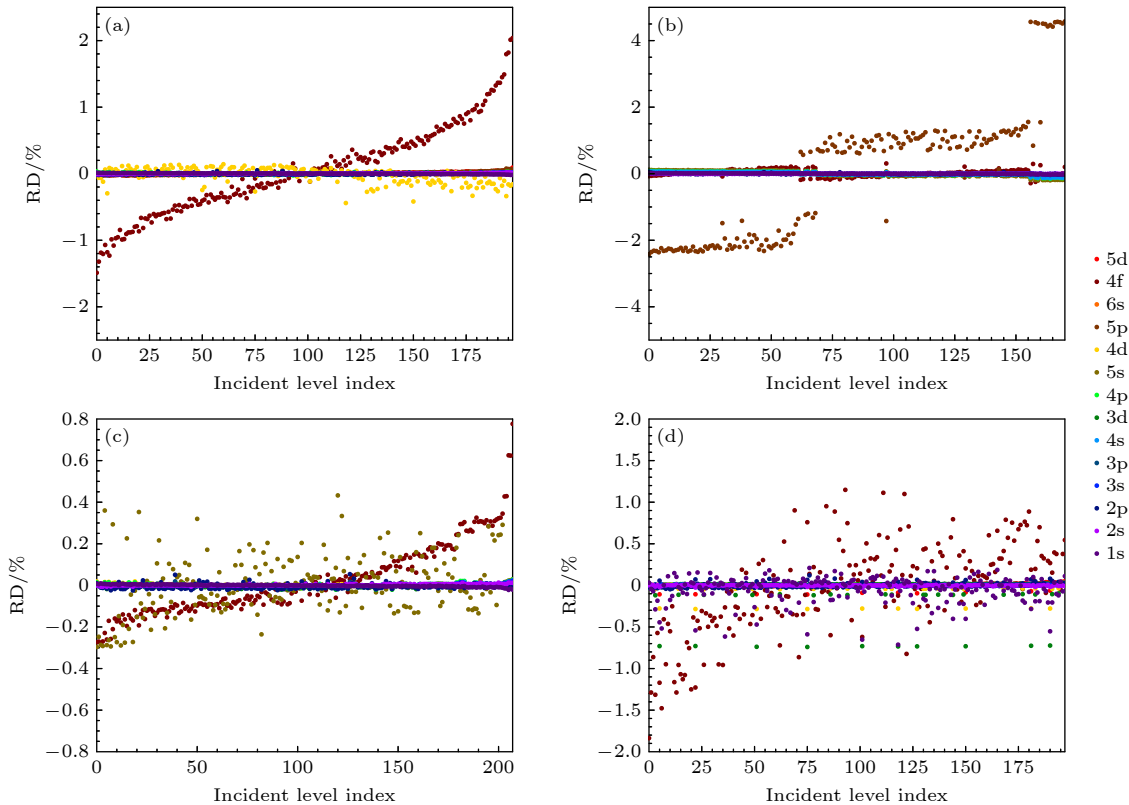


图 1 中间总截面相对于其均值的偏差 (a) $\text{Ta}^{4+}[\text{Xe}]6s^04f^5d^{10}$ 碰撞电离截面; (b) $\text{Ta}^{9+}[\text{Kr}]5s^24d^{10}p^46s^04f^{12}$ 碰撞电离截面; (c) $\text{Ta}^{16+}[\text{Kr}]5s^14d^{10}p^06s^04f^{10}$ 碰撞电离截面; (d) $\text{Ta}^{4+}[\text{Xe}]6s^04f^5d^{10}$ 碰撞激发截面, 激发到 6p 亚层

Fig. 1. Deviation between pre-averaging total cross-section and averaged total cross-section: (a) Electron-impact ionization (EII) cross-section of $\text{Ta}^{4+}[\text{Xe}]6s^04f^5d^{10}$; (b) EII cross-section of $\text{Ta}^{9+}[\text{Kr}]5s^24d^{10}p^46s^04f^{12}$; (c) EII cross-section of $\text{Ta}^{16+}[\text{Kr}]5s^14d^{10}p^06s^04f^{10}$; (d) EIE cross-section of $\text{Ta}^{4+}[\text{Xe}]6s^04f^5d^{10}$, excited to 6p subshell.

有一条斜线和随机分布; 图 1(d) 则完全是随机分布, 没有可观察的形状. 也注意到同一个子图内往往只有个别 DCA 反应道表现出不一致性, 这个反应道对应的电子亚层总是部分占据的, 其余电子亚层的不同初态的中间总截面彼此之间差距不明显. 具体规律的成因复杂、类型多样, 不能用简单的函数来表示. 正是这种分布规律的存在使得我们不能简单取图 1 中靠中部位置 (能级差接近总体的平均值) 的几个能级代表整体, 而需要在初态能级中随机采样以消除具体规律的影响. 这种分布规律的存在是我们进行随机采样的物理基础.

设采样的初态能级为集合 C^* , 则采样后截面的平均值发生的变化如下:

$$\sigma = \frac{\sum_{i \in C} g_i \sigma_i}{\sum_{i \in C} g_i} \rightarrow \sigma = \frac{\sum_{i \in C^*} g_i \sigma_i}{\sum_{i \in C^*} g_i}. \quad (10)$$

若采样点个数过多, 起不到减少计算量的效果, 而若采样点个数过少, 易导致相对偏差偏大, 影响计算结果的准确性. 因此需要在减少计算量与确保准确性之间权衡. 以下通过固定采样点个数进行蒙特

卡罗实验, 观察偏差数据点分布的方式在 1—100 之间寻找最适合的采样点个数, 对于每种采样点个数的选择进行了 500 次重复实验, 结果如图 2 所示.

图 2 横轴 m 为采样点个数, 纵轴 RD 为相对偏差; 每个散点表示一次蒙特卡罗实验, 并对每个 m 值的所有实验中的最高最低值进行了标记. 图 2 中的插图含义与图 1 相同, 显示相应碰撞电离 DCA 反应道的各初态能级的中间总截面相对于平均值的相对偏差. 根据图 2 可以看出随着 m 值增大, 数据点逐渐收敛, 而收敛的速度越来越缓. 在各种情形中, 决定数据点偏离程度的是小图中数据的极差, 而小图中散点的分布可以影响收敛的速度, 集中在最高和最低值附近时收敛速度减缓 (图 2(a)). 当 $m > 30$ 后收敛不明显, 因而取 $m = 30$ 作为最优采样点个数.

设 DCA 初态 C 中有 n 个能级, 使用初态能级随机采样后, 需要计算的 DLA 反应道个数减少为原来的 m/n . 对于能级很多的初态, 优化是显著的. 例如对于图 2(d) 的 $\text{Ta}^{20+}[\text{Kr}]5s^04d^{10}5p^06s^04f^7$ 组态 (有 327 个能级), 计算量减少了 90.8%.

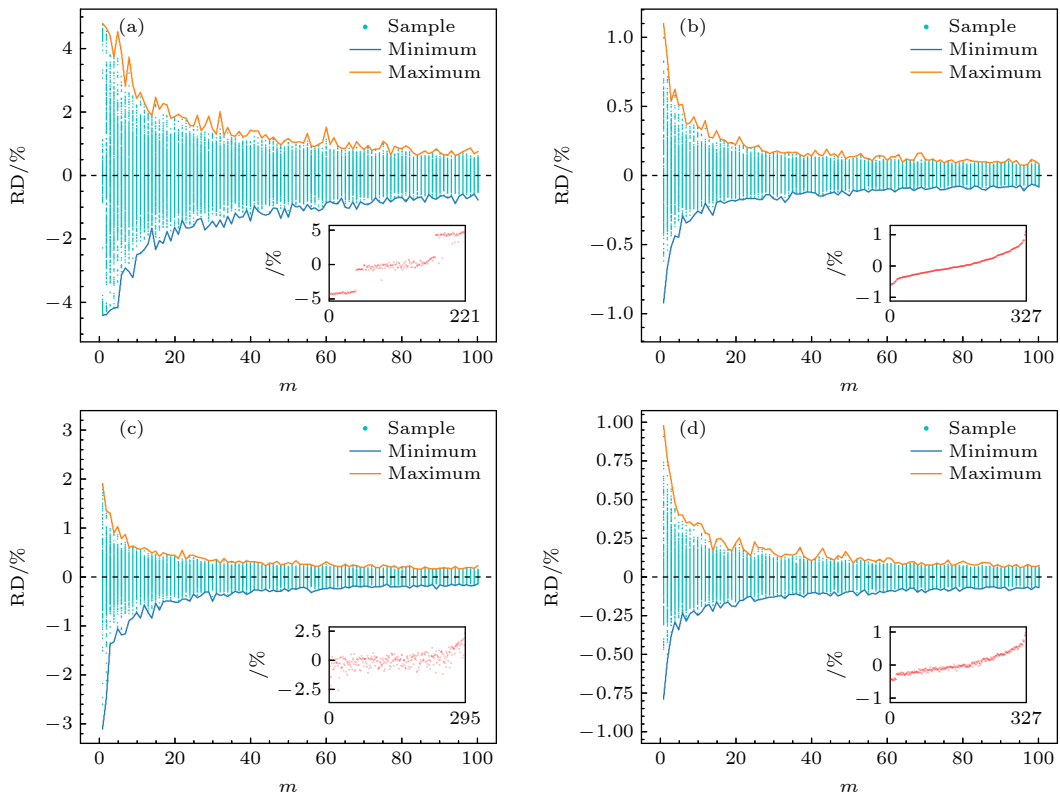


图 2 通过蒙特卡罗实验评估采样点个数的最佳选择 (碰撞电离) (a) $\text{Ta}^{10+}[\text{Kr}]5s^24d^{10}5p^36s^04f^{12}$, 5p 亚层; (b) $\text{Ta}^{12+}[\text{Xe}]6s^04f^7$, 4f 亚层; (c) $\text{Ta}^{15+}[\text{Kr}]5s^04d^{10}5p^6s^04f^6$, 4f 亚层; (d) $\text{Ta}^{20+}[\text{Kr}]5s^04d^{10}5p^06s^04f^7$, 4f 亚层

Fig. 2. Evaluation of optimal number of sample points via Monte-Carlo experiment (EII): (a) $\text{Ta}^{10+}[\text{Kr}]5s^24d^{10}5p^36s^04f^{12}$, on 5p; (b) $\text{Ta}^{12+}[\text{Xe}]6s^04f^7$, on 4f; (c) $\text{Ta}^{15+}[\text{Kr}]5s^04d^{10}5p^6s^04f^6$, on 4f; (d) $\text{Ta}^{20+}[\text{Kr}]5s^04d^{10}5p^06s^04f^7$, on 4f.

3.3 略去较小截面

为便于快速定量估计碰撞电离截面, 引入解析的 BEB (binary encounter Bethe) 公式^[33]:

$$\begin{aligned} \sigma_{nl}(E_0) = & \frac{4\pi a_0^2 N_{nl} (R/B_{nl})^2}{(E_0 + U_{nl})/B_{nl} + 1} \\ & \times \left\{ \frac{1}{2} Q \left[1 - \frac{1}{(E_0/B_{nl})^2} \right] \ln \left(\frac{E_0}{B_{nl}} \right) + (2 - Q) \right. \\ & \left. \times \left[1 - \frac{1}{E_0/B_{nl}} - \frac{\ln(E_0/B_{nl})}{E_0/B_{nl} + 1} \right] \right\}, \quad (11) \end{aligned}$$

式中 a_0 为玻尔半径, R 为里德伯能量, N_{nl} 为被电离亚层的电子数, B_{nl} 为轨道电子束缚能, U_{nl} 为轨道电子的平均动能, 定义为 $U_{nl} \equiv \langle \mathbf{p}^2 \rangle / 2m$, Q 为参数, 此处仅用于估计, 取 $Q = 1$ 即可, E_0 为入射电子动能, σ_{nl} 为指定电子亚层的碰撞电离截面. 计算中使用的轨道电子束缚能和轨道电子机械能数据来自 XATOM^[8].

本文的定量计算及 BEB 公式均表明, 不同电子亚层在相同入射电子能量下的碰撞截面可以有数量级上的差距 (图 3), 因此减少计算量还可以采取略去对于总截面影响很小的截面的方法.

由图 3 可见, 不同电子亚层的碰撞电离截面相差巨大, 在入射电子能量 100 keV 附近观察, 从最小的 1s 截面到最大的 5d 截面跨过 6 个数量级, 即 1s 电离截面对于总截面的贡献仅有 10^{-6} 量级. 亦可观察到 BEB 公式的结果反映了准确的数量级和函数趋势. 以入射电子能量 75 keV 为标准, 获得碰撞电离截面从大到小排列的电子亚层顺序. 在 1—150 keV 范围内求得每个电子亚层的截面相对于总截面的占比, 再把占比按照求得的顺序依次累加, 结果如图 4 所示.

由图 4(a) 可见, 在 1—150 keV 范围内, 对于总碰撞电离截面有较大贡献的事实只有少数电子亚层. 仅 5d 亚层的电离截面就能占约 60%; 5d, 6s, 4f, 5p 的截面之和占总截面的 95% 以上 (黑虚线为 95%). 由于其余电子亚层对于总截面的贡献不到 5%, 可以略去以降低计算量.

得到图 4(a) 的过程中已经对所有的截面进行了计算, 才得出其中只有 4 个电子亚层的截面占主要贡献的结论. 因此在碰撞电离计算中找出贡献最大的电子亚层实际上不能减少碰撞电离的计算量. 若需要通过找出贡献最大的电子亚层以减少碰撞电离的计算量, 可借助解析的 BEB 公式. 如图 4(b) 所示, 除了占比最大的 5d 亚层被低估外, 其余亚层的截面占比是基本准确的. 比较 (5) 式和 (7) 式, 可见相比于碰撞激发, 碰撞电离的碰撞强度计算仅仅是把 (5) 式中末态的束缚态波函数换成了自由态波函数, 因此同初态的碰撞电离截面与碰撞激发截面应当存在关联.

接下来探究碰撞激发截面中各 DCA 反应道截面的占比. 一个 DCA 反应道的末态同时有被激发的电子亚层和激发到的电子亚层, 被激发的电子亚层为在原本占据的电子亚层中任选一个, 而激发到的电子亚层不封闭, 因此应该先确定其选择范围. 对 Ta 原子 (电子组态 $[\text{Xe}]6s^2 4f^{14} 5d^3$) 的 50 个激发到电子亚层 ($l+n \leq 13$ 及 8i 亚层) 的碰撞激发截面 (入射电子能量 75 keV) 进行了计算, 其中 7p 以内 ($l+n \leq 8, n \leq 7$) 的 19 个电子亚层的碰撞激发截面占 97%. 同时估算了这 50 个电子亚层以外的所有电子亚层对于总截面贡献可忽略不计 (约 0.01%). 即将末态限制在 7p 电子亚层以内, 总截面最多偏小 3%. 从而将激发到电子亚层的选择

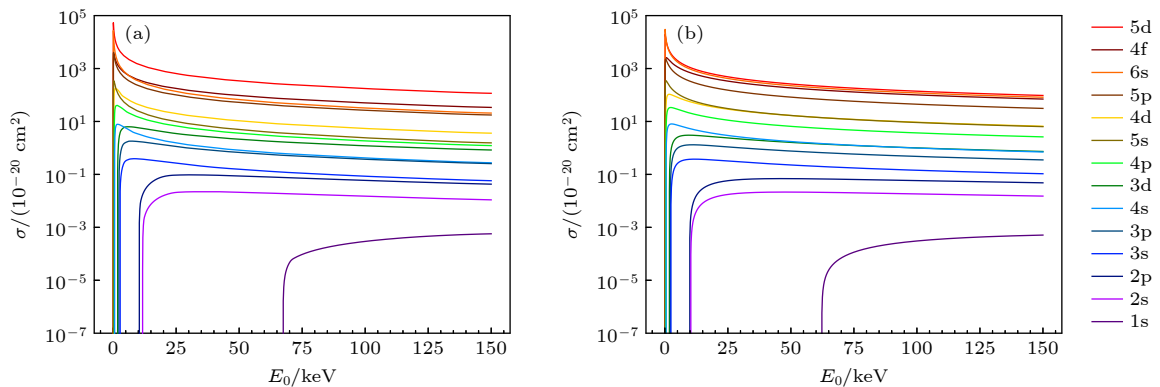


图 3 Ta 原子的碰撞电离截面 (a) 本文的计算结果; (b) BEB 模型的估算结果

Fig. 3. Collisional ionization cross-section of Ta atom: (a) Our calculation; (b) BEB model estimation.

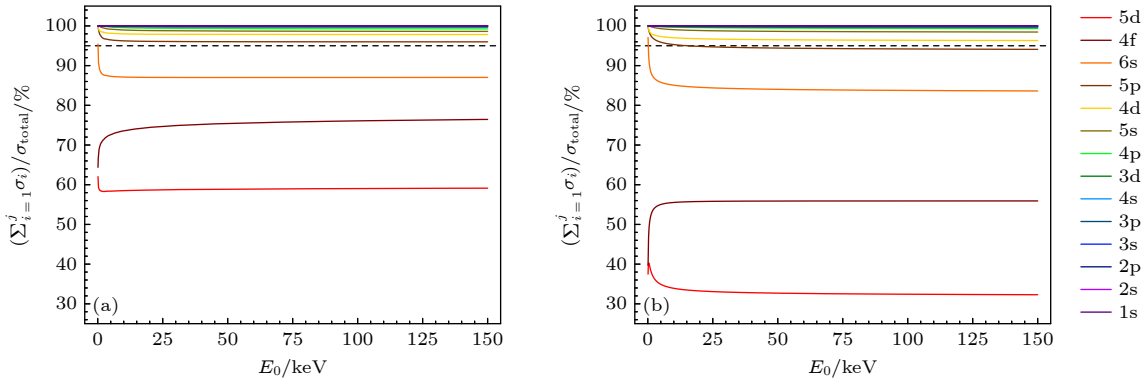


图 4 Ta 原子碰撞电离截面的累积占比 (a) 本文的计算结果; (b) BEB 模型的估计结果

Fig. 4. Accumulated ratio of EII cross-section of Ta atom: (a) Our calculation; (b) BEB model estimation.

范围限制在 7p 以内是可行的. 以下将以 7p 以内的碰撞激发截面之和作为碰撞激发总截面.

在碰撞电离计算中, 对总截面贡献最大的 5d, 6s, 4f, 5p 电子亚层都有很小的电离能, 因此探究在碰撞激发计算中反应的能级差 (末态能级能量减初态能级能量) 与碰撞激发截面的关系, 结果如图 5 所示 (入射电子能量 $E_0 = 78$ keV). 图中的每一个点对应一个 DCA 反应道的截面和能级差, 用不同颜色标记被激发电子亚层, 用不同形状标记激发到电子亚层. DCA 反应道的能级差由 DLA 反应道的能级差按照下式平均得到:

$$\Delta E_{C \rightarrow C'} = \frac{\sum_{i \in C, j \in C'} g_i g_j \Delta E_{i \rightarrow j}}{\sum_{i \in C, j \in C'} g_i g_j}, \quad (12)$$

式中 g_i , g_j 为统计权重. 使用 (12) 式可以避免 DCA 反应道 $C \rightarrow C'$ 中可能没有包含全部的 DLA 反应道 $i \rightarrow j$ 的问题. 根据图 4 可以看出, 除 6s 和 5d (电离能仅几 eV, 且存在能级交错) 外, DCA 反应道的能级差由初态决定, 而能级差对于碰撞激发截面的大小不起决定性的作用, 从而在能级差相差很小的范围内可以有数量级差别很大的碰撞激发截面. 另一方面, 从对于总截面的贡献而言, 大多数的 DCA 反应道贡献很小, 而贡献最大的截面的确聚集在能级差最小的区域. 因此, 可以以碰撞电离的计算结果作为参照, 只保留被激发电子亚层为 5d, 6s, 4f, 5p 的碰撞激发截面. 经计算, 这些 DCA 反应道的碰撞激发截面之和占总碰撞激发截面的 99.8%, 而 DCA 反应道个数占原来的 28.5%.

最后, 将计算结果与实验结果和其他理论研究结果进行对比, 分别选择了 Ta 原子的最内亚层 (1s 亚层) 和最外亚层 (6s 亚层) 的碰撞电离截面

进行比较, 同时计算了 Cu 原子的最内亚层 (1s 亚层) 碰撞电离截面进行比较, 还计算了 Ta^{1+} 离子的总碰撞电离截面与实验结果进行比较, 结果如图 6 所示.

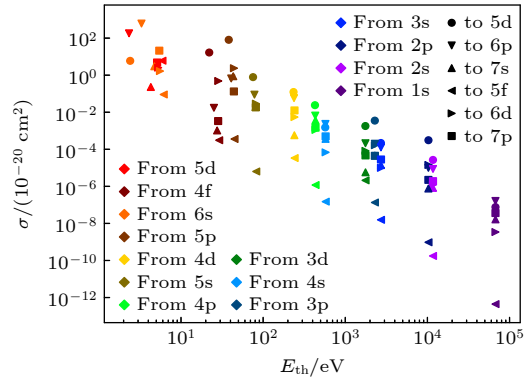

 图 5 Ta 原子碰撞激发截面与 DCA 反应道能级差的关系
 Fig. 5. EIE cross-section of Ta atom vs. DCA reaction channel threshold energy.

图 6(a), (b) 中, DMEMP, GKLTV, MBELL, DM 为不同的理论 (半经典) 模型, 而图 6(b) 中的散点来自 3 组不同的实验数据 [34-36]. 图 6(a), (b) 的理论计算数据来自于文献 [37], 图 6(c) 中 DW (distorted wave) 模型与 CC (closed-coupling) 模型的数据来自于文献 [38], 图 6(d) 的实验数据来自于文献 [39]. 图 6(a) 中, DMEMP, GKLTV, MBELL 模型给出了很接近的结果, 本文结果也在这个范围内, 且在这种情形下 (Ta 的 1s 亚层碰撞电离截面, 1—150 keV) 是否进行采样差别极小, 而 DM 模型则与其他结果分歧较大. 如图 6(b) 所示, 在 0—30 keV 内, 本文结果与实验结果符合较好, 在曲线的峰值区域其他 4 个半经典模型有一定分歧; 在 30—100 keV 范围内, 本文结果比其他理论模型

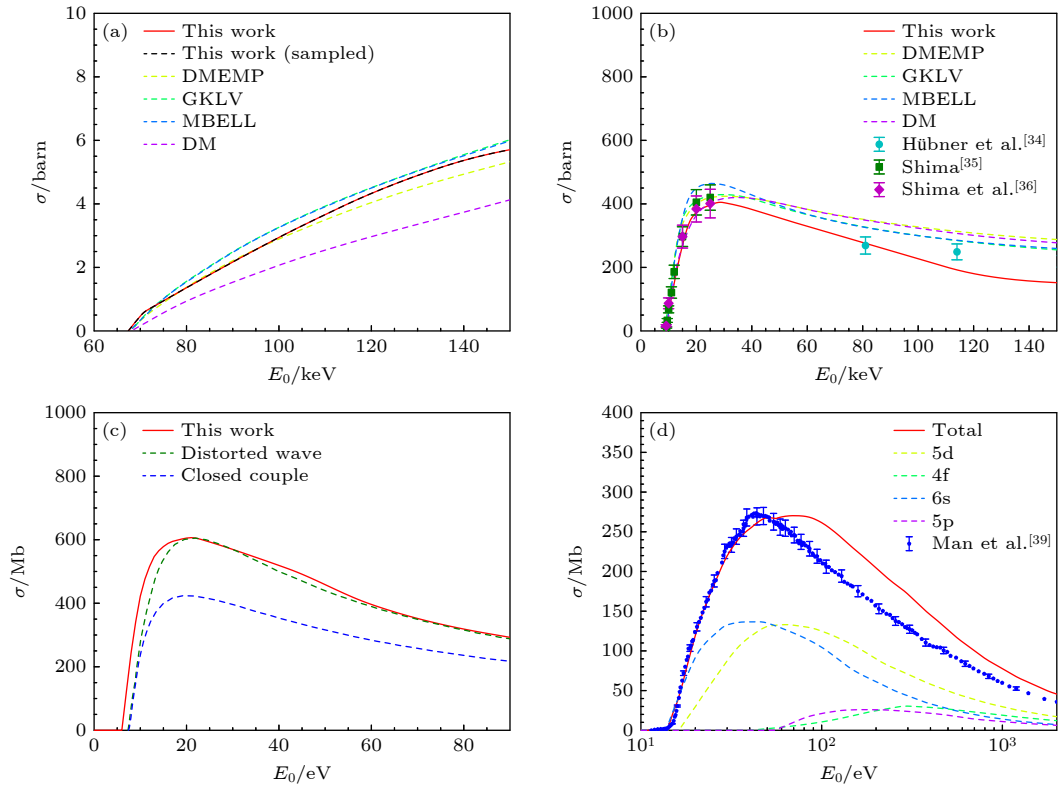


图 6 基于 DW 方法计算的碰撞电离截面与实验和理论结果比较 (a) Ta 原子的 1s 亚层碰撞电离截面; (b) Cu 原子的 1s 亚层碰撞电离截面; (c) Ta 原子的 6s 亚层碰撞电离截面; (d) Ta^{1+} 离子的总碰撞电离截面及贡献最大的几个电子亚层的碰撞电离截面 (5d, 4f, 6s, 5p)

Fig. 6. EII cross-sections based on DW method compared to experimental and theoretical results: (a) EII cross-section of 1s shell of Ta atom; (b) EII cross-section of 1s shell of Cu atom; (c) EII cross-section of 6s shell of Ta atom; (d) total EII cross-section of Ta^{1+} ion, alongside with EII cross-section of the most-contributing subshells (5d, 4f, 6s, 5p).

都低, 但与 80 keV 附近的一个实验数据点符合较好; 在 100 keV 后, 本文结果偏低, 这是由于 FAC 采用的扭曲波近似模型中取波函数的 $Q_{n\kappa}$ 分量为 0, 导致忽略了横向相互作用项, 这一近似在入射电子能量低于 10 倍电离能时产生的误差较小 [15,40]. 由图 6(c) 可知, 本文结果与同为 DW 模型的计算结果基本吻合, 仅电离能的计算有约 1 eV 的差异; 也可见 DW 模型与 CC 模型在这种情形下 (Ta 的 6s 亚层碰撞电离截面, 0—100 eV) 的分歧较大. 在图 6(d) 中, 可见 Ta^{1+} 离子的总碰撞电离截面主要贡献由 5d 亚层和 6s 亚层提供, 峰值出现在入射电子能量较低的 0—100 eV 范围内; 我们的总截面结果在 0—40 eV 范围内与实验结果符合较好, 得到的峰值与实验结果接近, 但峰位略有差异; 60 eV 后的结果与实验结果有一定差距.

4 结 论

基于相对论性 Dirac-Fock 理论和扭曲波模

型, 计算了从基态 Ta 到 Ta^{72+} 入射电子能量范围为 1—150 keV 的碰撞电离与碰撞激发截面. 为了方便推广到更重元素的计算, 根据碰撞电离和碰撞激发截面数据与电子亚层的关系, 提出了一种通用的数据预处理方法, 在 95% 的精度内保留截面信息并提高计算效率. 基于截面数据与电子亚层的规律, 通过对 DLA 精细程度的原始计算结果进行求和, 得到了 DCA 精细程度的截面数据. 我们提出了两种可减少计算量的方法. 1) 发现初态能级不同的单个 DCA 反应道截面相差很少且呈一定统计规律, 因此对于初态能级较多的 DCA 反应道, 可以对初态能级进行随机抽样再对截面取平均. 通过评估, 我们认为取 30 个采样点可以达到计算效率与精确度的平衡, 最多可减少 90% 的 DLA 反应道计算. 2) 通过分辨贡献微小的 DCA 反应道, 发现对总碰撞电离截面有明显贡献的 DCA 反应道很少, 可以将 DCA 反应道个数减少到原来约 30%, 而损失的精度在 5% 以内. 最后, 将本文结果与相关实验和计算数据进行了对比, 在 1—150 keV 入

射电子能量范围内, 我们的计算结果与实验测量值和理论模型的计算值都有很好的一致性.

参考文献

- [1] Ackermann W, Asova G, Ayvazyan V, et al. 2007 *Nat. Photon.* **1** 336
- [2] Emma P, Akre R, Arthur J, et al. 2010 *Nat. Photon.* **4** 641
- [3] Ishikawa T, Aoyagi H, Asaka T, et al. 2012 *Nat. Photon.* **6** 540
- [4] Jia H Y, Huang S L, Jiao Y, et al. 2022 *High Power Laser Part. Beam* **34** 05401 (in Chinese) [贾豪彦, 黄森林, 焦毅等 2022 强激光与粒子束 **34** 05401]
- [5] Zhao Z T, Wang D, Gu Q, et al. 2017 *Synchrotron Radiat. News* **30** 6
- [6] Du J Y 2019 *M. S. Thesis* (Wuhan: Huazhong University of Science and Technology) (in Chinese) [杜靖元 2009 硕士学位论文 (武汉: 华中科技大学)]
- [7] Ma X Y, Dong C Z, Wu Z W, Jiang J, Jie L Y 2012 *Acta Phys. Sin.* **61** 213401 (in Chinese) [马小云, 董晨钟, 武中文, 蒋军, 颢录有 2012 物理学报 **61** 213401]
- [8] Jurek Z, Son S K, Ziaja B, Santra R 2016 *J. Appl. Cryst.* **49** 1048
- [9] Son S K, Young L, Santra R 2011 *Phys. Rev. A* **83** 033402
- [10] Medvedev N, Tkachenko V, Lipp V, Li Z, Ziaja B 2018 *Appl. Phys. Lett.* **113** 131101
- [11] Renner O, Rosmej F B 2019 *Matter Radiat. Extremes* **4** 024201
- [12] Barber J L, Barnes C W, Sandberg R L, Sheffield R L 2014 *Phys. Rev. B* **89** 184105
- [13] Parpia F A, Fischer C F, Grant I P 1996 *Comput. Phys. Commun.* **94** 249
- [14] Jönsson P, He X, Fischer C F, Grant I P 2007 *Comput. Phys. Commun.* **177** 597
- [15] Gu M F 2008 *Can. J. Phys.* **86** 675
- [16] Chen Z B, Tian Y S, Sang C C, Wan X L, Wang K, Guo X L 2019 *Atomic Data Nucl. Data Tables* **129-130** 101278
- [17] Fritzsche S 2012 *Comput. Phys. Commun.* **183** 1525
- [18] Jiao F, Jiang J, Jie L Y, Zhang D H, Dong C Z, Chen Z B 2015 *Acta Phys. Sin.* **64** 233401 (in Chinese) [焦飞, 蒋军, 颢录有, 张登红, 董晨钟, 陈展斌 2015 物理学报 **64** 233401]
- [19] Althiyabi A, El-Sayed F 2022 *Atomic Data Nucl. Data Tables* **147** 101528
- [20] Zhong J Y, Zhang J, Zeng J L, Zhao G, Gu M F 2005 *Atomic Data Nucl. Data Tables* **89** 101
- [21] Motoumba E B, Yoca S E, Quinet P, Palmeri P 2020 *Atomic Data Nucl. Data Tables* **133-134** 101340
- [22] Aggarwal K M 2019 *Atomic Data Nucl. Data Tables* **125** 261
- [23] Jönsson P, Alkauskas A, Gaigalas G 2013 *Atomic Data Nucl. Data Tables* **99** 431
- [24] Wang C, Liang Y H, Hu R H, He K, Gao G L, Yan X, Yao D, Wang T, Li X Y, Tian J S, Zhu W J, Lü M 2023 arXiv: 2306.08948v1 [physics. optics]
- [25] Henderson J R, Beiersdorfer P, Bennett C L 1990 *Phys. Rev. Lett.* **65** 705
- [26] Knapp D A, Marrs R E, Elliott S R, Magee E W, Zasadzinski R 1993 *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. A* **334** 305
- [27] Clementson J, Beiersdorfer P, Gu M F 2010 *Phys. Rev. A* **81** 012505
- [28] Ralchenko Y, Draganic I N, Tan J N, Gillaspay J D, Pomeroy J M, Reader J, Feldman U, Holland G E 2008 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **41** 021003
- [29] Middleman I M, Ford H I, Hofstadter R 1970 *Phys. Rev. A* **2** 1429
- [30] Müller A, Schippers S, Hellhund J, Holste K, Kilcoyne A L D, Phaneuf R A, Ballance C P, McLaughlin B M 2015 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **48** 235203
- [31] Santoni A, Derossi A, Finetti P, Agostino R G, Luo B 1992 *Phys. Rev. B* **46** 15660
- [32] Singh N, Mittal R, Singh B, Allawadhi K L, Sood B S 1986 *Phys. Rev. A* **34** 3459
- [33] Kim Y K, Rudd M E 1994 *Phys. Rev. A* **50** 3954
- [34] Hübner H, Ilgen K, Hoffmann K W 1972 *Z. Physik.* **255** 269
- [35] Shima K 1980 *Phys. Lett. A* **77** 237
- [36] Shima K, Nakagawa T, Umetani K, Mikumo T 1980 *Phys. Rev. A* **24** 72
- [37] Patory M A R, Uddin M A, Haque A K F, Shahjahan M, Basak A K, Talukder M R, Saha B C 2009 *Int. J. Quantum Chem.* **109** 897
- [38] Pindzola M S, Loch S D, Colgan J P 2022 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **55** 235203
- [39] Man K F, Smith A C H, Harrison M F A 1987 *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* **20** 4895
- [40] Llovet X, Powell C J, Salvat F, Jablonski A 2014 *J. Phys. Chem. Ref. Data* **43** 013102

Fast computation approach of electron-impact ionization and excitation cross-sections for atoms and ions with medium- and high- Z elements

Zhou Xu¹⁾²⁾³⁾ Wang Chuan¹⁾²⁾³⁾ Hu Rong-Hao^{1)2)3)†} Tao Zhi-Hao¹⁾²⁾³⁾
 Deng Xiao-Liang⁴⁾ Liang Yi-Han^{4)‡} Li Xiao-Ya⁴⁾ Lü Meng^{1)2)3)††}
 Zhu Wen-Jun⁴⁾

1) (*College of Physics, Sichuan University, Chengdu 610064, China*)

2) (*Key Laboratory of High Energy Density Physics and Technology, Ministry of Education, Chengdu 610065, China*)

3) (*Key Laboratory of Radiation Physics and Technology, Ministry of Education, Chengdu 610065, China*)

4) (*Institute of Fluid Physics, China Academy of Engineering Physics, Mianyang 621000, China*)

(Received 31 January 2024; revised manuscript received 13 March 2024)

Abstract

The atomic data of medium- and high- Z elements, such as electron-impact ionization and excitation cross-sections, possess extensive applications in fields such as fusion science and X-ray interactions with matter. There are atoms and ions in high energy density plasma, with different charge states and energy states ranging from ground states to highly excited states, and the cross-sections of each charge state and energy state need to be calculated. The bottlenecks limiting computational performance are the inevitable relativistic effects of medium- and high- Z elements and the extremely complex electronic configurations. Taking tantalum (Ta) for example, by using the relativistic Dirac-Fock theory and distorted wave model, we compute the electron-impact ionization and excitation cross-sections of Ta from the ground state atom up to Ta⁷²⁺ with the incident electron energy range of 1–150 keV. The detailed configuration accounting (DCA) reaction channel cross-sections are derived by summing and weighting the original detailed level accounting (DLA) cross-sections. After examining the data, two regularities are found. In terms of DLA, the pre-averaging DCA cross-sections have varying initial DLA energy levels but are typically close to each other. There is not a straightforward function that can explain the discrepancies between them. In terms of DCA, inner subshells typically contribute very little to the total cross-section as their ionization and excitation cross-sections are orders of magnitude smaller than those of outer subshells. We provide two techniques to reduce the computational costs based on the regularities. To minimize the total number of DLA reaction channels used in the computation, the initial DLA energy levels can be randomly sampled. Through a Monte Carlo numerical experiment, we determine the appropriate number of sampling points that can reduce the total number of DLA channels by an order of magnitude while maintaining a 5% error margin. In terms of impact ionization, since small cross-section DCA channels are insignificant, only a tiny portion of the DCA channels are required to preserve a 95% accuracy of the entire cross-section. It is possible to use the analytical Binary Encounter Bethe (BEB) formula to determine which DCA channels should be neglected before the computation to reduce computational costs. In terms of electron-impact excitation, just the cross-sections of the same excited subshells as the preserved ionized subshells, which are determined in the previous electron-impact ionization (EII) calculations, are needed. Finally, we compare our EII results with

† Corresponding author. E-mail: ronghaohu@scu.edu.cn

‡ Corresponding author. E-mail: drollor@126.com

†† Corresponding author. E-mail: lvmengphys@scu.edu.cn

theoretical and experimental results. In the low incident electron energy range of below 2 keV, our results accord with the theoretical result of the 6s EII cross-section of the Ta atom and the experimental result of the total EII cross-section of the Ta¹⁺ ion. In the high energy range of below 150 keV, our results are also consistent with the theoretical result of the 1s EII cross-section of the Ta atom and the experimental result of the 1s EII cross-section of the Cu atom. Our results reasonably match the previous experimental and theoretical results in low-energy range and high-energy range, inner subshell and outer subshell, indicating the accuracy of our calculation. The proposed optimizing strategy can be applied to various medium- to high-*Z* elements and is compatible to most computation codes.

Keywords: electron-impact ionization, electron-impact excitation, distorted wave model, atomic data

PACS: 31.15.-p, 31.15.A-, 34.50.Fa

DOI: [10.7498/aps.73.20240213](https://doi.org/10.7498/aps.73.20240213)

中高 Z 元素原子、离子的电子碰撞电离与激发截面快速计算方法

周旭 王川 胡荣豪 陶冶豪 邓小良 梁亦寒 李晓亚 吕蒙 祝文军

Fast computation approach of electron-impact ionization and excitation cross-sections for atoms and ions with medium- and high- Z elements

Zhou Xu Wang Chuan Hu Rong-Hao Tao Zhi-Hao Deng Xiao-Liang Liang Yi-Han Li Xiao-Ya Lü Meng Zhu Wen-Jun

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 73, 103104 (2024) DOI: 10.7498/aps.73.20240213

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.73.20240213>

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

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

质子碰撞电离过程中程函近似效应的理论研究

Influence of eikonal-initial-state on ionization of atom by proton

物理学报. 2018, 67(11): 113401 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20172465>

采用薄靶方法测量低能电子致Al, Ti, Cu, Ag, Au元素K壳层电离截面与L壳层特征X射线产生截面

Measurements of K-shell ionization cross sections and L-shell X-ray production cross sections of Al, Ti, Cu, Ag, and Au thin films by low-energy electron impact

物理学报. 2022, 71(17): 173402 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220162>

keV能量电子致Al, Ti, Zr, W, Au元素厚靶特征X射线产额与截面的研究

Characteristic X-ray yields and cross sections of thick targets of Al, Ti, Zr, W and Au induced by keV-electron impact

物理学报. 2020, 69(13): 133401 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200264>

超重元素Og($Z = 118$)及其同主族元素的电离能和价电子轨道束缚能

Ionization energy and valence electron orbital binding energy of superheavy element Og($Z = 118$) and its homologs

物理学报. 2022, 71(21): 213201 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220813>

8–9.5 keV正电子致Ti的K壳层电离截面的实验研究

Experimental study on Ti K shell ionization cross sections induced by 8–9.5 keV positrons

物理学报. 2018, 67(19): 192101 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180666>

光子与相对论麦克斯韦分布电子散射截面的蒙特卡罗计算方法

Monte Carlo method for computing relativistic photon-Maxwellian electron scattering cross sections

物理学报. 2018, 67(21): 215201 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180932>