

文章编号: 1007-4627(2002)02-0081-04

## Xe I 原子 $6s[3/2]_2$ 亚稳态寿命的理论研究\*

董晨钟<sup>1,2</sup>, 颌录有<sup>1</sup>, Stephan Fritzsche<sup>3</sup>

(1 西北师范大学物理与电子工程学院, 甘肃 兰州 730070;

2 兰州重离子加速器国家实验室原子核理论研究中心, 甘肃 兰州 730000;

3 德国 Kassel 大学物理系, D-34132 Kassel, Germany)

**摘要:** 利用多组态 Dirac-Fock(MCDF)理论方法, 系统地研究了延迟和相关效应对中性 XeI 原子  $5p^5 6s[3/2]_2 - 5p^6 1S_0$  (M2) 辐射跃迁的影响, 给出了亚稳态  $6s[3/2]_2$  的辐射寿命. 与最新的磁光阱实验观测结果比较, 目前的计算不仅大大提高了理论计算的精度, 而且解释了实验和以往理论偏差非常大的原因.

**关键词:** MCDF 方法; 延迟和相关效应; 辐射寿命

**中图分类号:** O562.3      **文献标识码:** A

### 1 引言

稀有气体元素 Xe 的原子量为 54, 原子的基组态为  $5p^6$ , 具有稳定的闭壳层结构. 其第一激发组态为  $5p^5 6s$ , 在  $jl$  耦合下, 可耦合成  $6s'[1/2]_1$ ,  $6s'[1/2]_0$ ,  $6s[3/2]_1$  以及  $6s[3/2]_2$  4 个能级. 其中  $6s[3/2]_2$  能级最低, 是一个亚稳态. 由于其在 Xe 原子钟的光频标以及激光冷却、磁光阱和超冷碰撞等实验研究中都扮演着非常重要的角色, 因此, 受到了人们普遍的关注. 1972 年 Van Dyck 等<sup>[1]</sup> 用飞行时间技术测量了亚稳态  $6s[3/2]_2$  的辐射寿命, 但由于实验技术以及测量过程中的各种困难, 他们仅得到了亚稳态寿命的下限. 1994 年 Walhout 等<sup>[2]</sup> 在磁光阱(MOT)中对亚稳态  $6s[3/2]_2$  的辐射寿命做了比较精确的测量, 其结果为  $(42.9 \pm 3.9)$ s. 然而, 与以往的理论结果相比较, 最新的实验结果要比以往的理论预言小 2—3 个因子. 尤其是与 1975 年 Small-Warren 等<sup>[3]</sup> 的理论计算结果相差甚大, 约为 3 倍. 为了解释这种偏差, Indelicato 等<sup>[4]</sup> 用 MCDF 方法计算了该亚稳态的寿命, 但是其结果仍然要比 Walhout 等人的实验值大 2 倍多. 实验与理论间如此大的偏差, 极大地吸引了理论和实验工作者的兴趣.

从理论上讲, 研究 Xe 原子 M2 跃迁的困难主要来自三个方面: (1) 由于两个母项  $2p^5(^2P_{1/2})$  和  $2p^5(^2P_{3/2})$  之间大的能级分裂, LS 耦合条件被完全打破, 结果使得能级  $2p^5(^2P_{1/2})6s$  和  $5p^5(^2P_{3/2})5d$  靠得非常近, 从而导致两组态间有很强的相互作用; (2) 在原子跃迁属性(如 M2 跃迁几率)的计算中, 涉及到从一个具有开壳层结构的激发态向稳定的闭壳层  $5p^6$  基态的跃迁, 由此导致的延迟效应会对跃迁几率的计算产生重要的影响; (3) 在高 Z 重原子中, 相对论效应和量子电动力学(QED)效应非常重要, 需要被系统地考虑. 因此, 要想获得满意的理论结果, 上述各个效应的影响就必须被综合考虑. 近年来, 在多组态 Dirac-Fock (MCDF)方法<sup>[5]</sup>基础上发展的考虑延迟和相关效应的理论方法<sup>[6]</sup>已经被广泛地用来研究了具有开的  $p$ 、 $d$  和  $f$  壳层的复杂原子的结构和性质<sup>[7-12]</sup>. 本文利用这一方法首先研究了不同相关近似下相关效应对束缚能和辐射跃迁初、末态波函数主要分量的影响; 其次, 分析了考虑和不考虑延迟效应两种情况下, 亚稳态  $6s[3/2]_2$  的寿命随相关组态波函数数目增大时的收敛行为; 最后, 通过对其他一些效应的估计, 给出了该亚稳态的寿命, 同时与最新的实验测量和以往的

收稿日期: 2002-03-20; 修改日期: 2002-04-05

\* 基金项目: 教育部优秀青年教师资助计划项目; 教育部高等学校骨干教师资助计划(GG-140107361002); 兰州重离子加速器国家实验室原子核理论研究中心基金资助项目

作者简介: 董晨钟(1962-), 男(汉族), 甘肃泾川人, 博士, 教授, 博士生导师, 从事原子光谱和原子碰撞研究.

理论计算结果作了比较. 结果表明, 目前的理论计算精度得到了显著提高.

## 2 理论计算方法

有关多组态 Dirac-Fock(MCDF)理论方法, 详细的描述请参看文献[5]. 在 MCDF 方法中, 任一原子态  $\alpha$  的波函数  $|\alpha(PJM)\rangle$  由具有相同宇称和总角动量的组态波函数  $|\Gamma_r(PJM)\rangle$  线性组合而成, 即

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

式中  $C_r(\alpha)$  为组态混合系数,  $n_c$  是组态波函数的个数. 具体计算中, 电子与电子间的相关效应可以通过系统地选择组态波函数而予以考虑[5].

Xe 原子的基组态具有稳定的闭壳层结构, 当一个电子被激发变为开壳层结构时, 延迟效应非常明显[11, 12]. 为了系统考虑延迟效应以及得到更好的辐射跃迁初、末态的波函数, 计算中我们首先根据宇称和总角动量 ( $J^P$ ) 将跃迁初、末态的能级分为两组, 一组为  $5p^6 (J^P = 0^+)$ , 只有一个能级 ( $^1S_0$ ); 另一组为  $5p^5 6s (J^P = 2^-)$ , 也只有一个能级 ( $6s[3/2]_2$ ). 然后用 GRASP92[5] 程序的扩展能级优化模式(EOL)分别独立计算了跃迁初、末态的波函数和能级. 表 1 展示了分别相应于基态  $5p^6 (^1S_0)$  和激发态  $5p^5 6s[3/2]_2$  情况下外层的  $5s, 5p$  轨道的平均半径值. 从表中可以看出, 激发态的平均轨道半径总是小于基态的平均轨道半径, 尤其是对于子壳层  $5p_{1/2}$  和  $5p_{3/2}$ , 基态和激发态平均轨道半径的不一致更为明显, 其偏差超过了 4%. 这说明延迟效应对电子密度的影响比较大. 另外, 由于对跃迁初、末态波函数的分开独立计算, 跃迁初、末态的轨道波函数已不再严格的正交. 为了进一步考虑这一效应对跃迁几率的影响, 在辐射跃迁几率的计算中我们进一步包括了各种重叠积分的贡献[6].

为了考虑电子相关效应的影响, 用活动空间方法[5, 6]系统地产生基态和激发态的各种组态波函数(CSF)列表. 具体来说, 就是将组态  $5s^2 5p^6$  和  $5s^2 5p^5 6s + 5s^2 5p^5 5d$  作为参考组态, 分别考虑  $5s$  和  $5p$  轨道占据的电子向更高的  $[ns, np, (n-1)d]$  ( $n = 6-10$ ) 活动基的单电子激发以及双电子激发形成的所有组态波函数. 表 2 列出了几种不同相关近似下组态波函数的数目. 由于随着  $n$  和  $l$  的增

大, 组态波函数的数目增加的很快. 因此, 限于计算条件, 目前计算中我们仅考虑了  $n \leq 10$  以及  $l \leq 3$  时的各种相关近似. 另外, 我们对轨道占据的电子被激发到  $4f, 5g$  以及来自  $4d$  内壳层的 Core-Core 相关效应的影响也进行了分析. 就目前考虑的 M2 跃迁, 这些相关近似已经包括了最重要的相关效应, 能够为我们提供一个非常好的收敛结果.

表 1 基态和激发态中电子的平均轨道半径\*

轨道	基态	激发态
	$5p^6 (^1S_0)$	$5p^5 6s[3/2]_2$
$5s$	1.901 1	1.856 1
$5p_{1/2}$	2.238 2	2.153 3
$p_{3/2}$	2.347 9	2.246 6

\* 原子单位.

表 2 不同相关近似下组态波函数的数目

参考组态	活动基( $ns, np, (n-1)d$ )					
	$J^P$	6	7	8	9	10
$5s^2 5p^6$	$0^+$	53	238	403	701	1 081
$5s^2 5p^5 6s + 5s^2 5p^5 5d$	$2^-$	963	5 562	14 059	17 579	22 131

## 3 结果和讨论

图 1 展示了不同相关近似下相关效应对束缚能的相对贡献, 这里相对贡献是指相邻的  $n$  和  $n-1$  活动基下束缚能间的偏差. 从图中可以看出, 不管是对基态  $^1S_0$  还是激发态  $6s[3/2]_2$ , 活动基  $n = 7, 8$  时相关效应对束缚能的影响最大. 而且随着  $n$  的增大, 即组态波函数数目的增大, 基态的束缚能显然要比激发态的束缚能收敛的快. 目前计算表明, 在  $n = 10$  时, 理论计算的激发能已经与实验符合的很好, 其偏差仅为 0.9%. 除了束缚能, 波函数的展开系数也是一个与相关效应联系紧密的量, 计算结果表明, 对于基态和激发态, 它们都只有一个主要的波函数分量, 其余的分量都很小 ( $\leq 0.009$ ). 图 2 展示了相关效应对  $6s[3/2]_2$  和  $5p^6 ^1S_0$  的波函数主要分量的影响. 从图中可见, 在  $n$  比较大时, 相关效应对激发态  $6s[3/2]_2$  的影响都要比对基态  $^1S_0$  的大, 这正好与上面讨论的有关束缚能的收敛行为一致.

图 3 给出了在考虑延迟和不考虑延迟两种情况下, 亚稳态  $6s[3/2]_2$  寿命在不同相关近似下的变化行为. 可见, 当考虑延迟效应时, 随着  $n$  的增大 (即

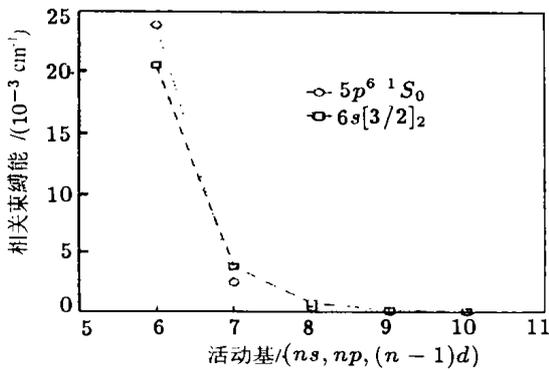


图 1 相关效应对激发态  $6s[3/2]_2$  和基态  $1S_0$  束缚能的相对贡献

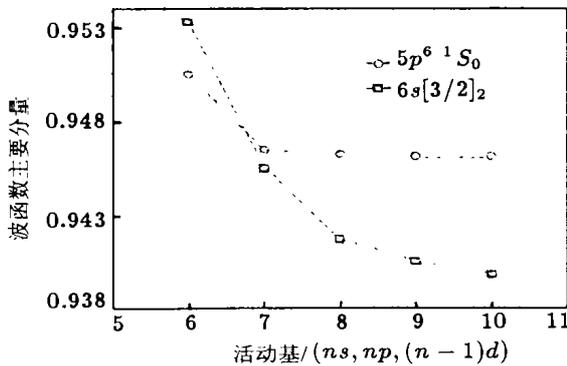


图 2 相关效应对激发态  $6s[3/2]_2$  和基态  $1S_0$  波函数主要分量的影响

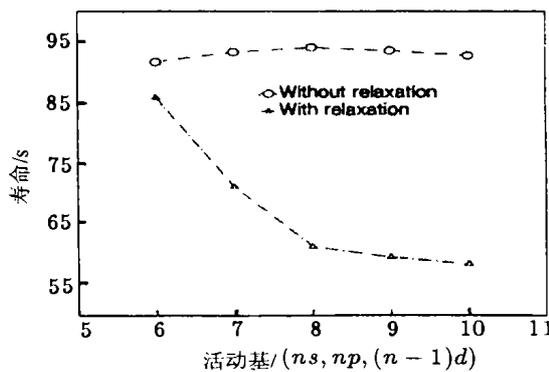


图 3 延迟和相关效应对亚稳态  $6s[3/2]_2$  寿命的影响

考虑的相关效应的增多), 亚稳态  $6s[3/2]_2$  的寿命数值快速地减小(逐步接近实验值), 特别是在  $n = 6-8$  区间, 变化最快. 另外, 正如我们期望的那样, 在  $n \geq 9$  时, 其变化趋于缓慢, 而寿命的数值也仅减少了 2.86 s. 然而, 当不考虑延迟效应时, 即假设有相同对称性的波函数彼此正交而忽略它们之间所有的重叠效应时, 亚稳态寿命的数值随  $n$  的

变化很小. 这说明, 在辐射跃迁几率的系统计算中, 延迟和相关效应都非常重要, 不能被忽略.

表 3 Xe I 原子亚稳态  $6s[3/2]_2$  的激发能、辐射寿命以及与实验和其它理论结果的比较

	方法及作者	能量/cm <sup>-1</sup>	寿命/s
理论	本工作	67 644	58.5
	Indelicato et al. [4]		96
	Small-Warren et al. [3]		150
实验	Walhout et al. [2]	67 068	42.9 ± 3.9

为了得到亚稳态  $6s[3/2]_2$  寿命更为精确的理论值, 我们进一步考虑了来自  $4d$  内壳层的 Core-Core 间的相关以及轨道占据的电子被激发到  $4f$  和  $5g$  时的相关效应. 结果表明, 前者对寿命的贡献仅为  $-2.4$  s, 而后者对寿命的贡献分别为 1.82 和 0.88 s. 这些相关效应总的贡献为 0.3 s.

表 3 列出了亚稳态  $6s[3/2]_2$  的辐射寿命(包括  $n = 10$  时直接计算所得结果 58.20 s 加上上面提到的 0.3 s 的修正). 作为比较, 表中也列出了最新的实验和以往的一些理论结果. 从表中可以看出, 与以往的理论相比, 目前的计算最为接近新的实验结果. 当然, 我们也注意到目前的计算与最新实验结果之间仍然有 36% 的偏差. 我们认为这种偏差可能主要来自以下几个方面: (1) 虽然目前的计算已经包括了许多重要的相关效应, 但是限于计算的条件, 仍然有一些相关效应, 比如来自  $4s$  和  $4p$  子壳层的 Core-Core 相关效应以及更高的活动基  $n$  和  $l$  相关近似下价电子之间的相关效应未能被系统地考虑; (2) 对于高  $Z$  重元素, Breit 相互作用和 QED 效应很重要, 但在目前的计算中我们只能将其作为微扰, 部分地包括在计算中; 另外, 正如 Walhout 等人已经指出的, 由于  $5p^5 6s[3/2]_1$  和  $5p^6 1S_0$  之间的强的电偶极跃迁, 由核自旋引起的  $6s[3/2]_2$  和  $6s[3/2]_1$  间任何小的混合, 都有可能引起  $6s[3/2]_2 - 5p^6 1S_0$  (M2) 的跃迁几率的改变. 我们期待着将来就这一问题能够得到更为深入的研究, 并给出更好的理论解释.

## 参 考 文 献:

- [1] Van Dyck R S, Jr, Johnson C E, *et al.* Lifetime Lower Limits for the  $^3P_0$  and  $^3P_2$  Metastable States of Neon, Argon, and Krypton [J]. *Phys Rev*, 1972, **A5**: 991.
- [2] Walhout M, Witte A, Rolston S L. Precision Measurement of the Metastable  $6s[3/2]_2$  Lifetime in Xenon [J]. *Phys Rev Lett*, 1994, **72**: 2 843.
- [3] Small-Warren N E, Chow Chiu L Y. Lifetime of the Metastable  $^3P_2$  and  $^3P_0$  States of Rare-gas Atoms [J]. *Phys Rev*, 1975, **A11**: 1 777.
- [4] Indelicato P, *et al.* (unpublished work, 1994).
- [5] Parpia F A, Froese Fischer C, Grant I P. GRASP92: A package of large-scale relativistic atomic structure calculations [J]. *Compt Phys Commun*, 1996, **94**: 249.
- [6] Fritzsche S, Froese Fischer C, Dong C Z. REOS99: A revised program for transition probability calculations including relativistic, correlation, and relaxation effects [J]. *Comput Phys Commun*, 2000, **124**: 340.
- [7] Dong C Z, Fritzsche S, Fricke B, *et al.* Branching Ratios and Lifetimes for the Low-lying Levels of FeX [J]. *Mon Not R Astron Soc*, 1999, **307**: 809.
- [8] Fritzsche S, Dong C Z, Gaigalas G. Theoretical Wavelengths and Transition Probabilities for the  $3d^9 - 3d^8 4p$  and  $3d^8 4s - 3d^8 4p$  Transition Arrays in Ni II [J]. *At Data Nucl Data Tables*, 2000, **76** (1): 155.
- [9] Dong C Z, Fritzsche S, Fricke B. Theoretical Investigations on the  $3d^9 4p - 3d^{10}$  Spectrum of CuII [J]. *Spec Rel Phenon*, 2001, **114—116**: 157.
- [10] Dong C Z, Fritzsche S, Fricke B, *et al.* Ab-initio Calculations for Forbidden M1 Transitions in  $Ar^{13+}$  and  $Ar^{14+}$  [J]. *Phys Scr*, 2001, **T92**: 294.
- [11] 颌录有, 董晨钟, 马新文等. 类 Ne 等电子系列离子 ( $Z=11, \dots, 18$ )  $2p^5 3s - 2p^6$  辐射跃迁的多组态相对论理论计算 [J]. *物理学报*, 2002 (待发表).
- [12] 颌录有, 董晨钟, 周效信等. 延迟和相关效应对 Ne 原子  $2p^5 3s^1 \ ^3P_1 - 2p^6 1S_0$  跃迁的影响 [J]. *原子与分子物理学报*, 2002, **19** (1): 54.

## Theoretical Study on Lifetime of Metastable State $6s[3/2]_2$ of Atomic Xenon \*

DONG Chen-zhong<sup>1,2</sup>, XIE Lu-you<sup>1</sup>, Stephan Fritzsche<sup>3</sup>

(1 College of Physics and Electronic Engineering, Northwest Normal University, Lanzhou 730070, China;

2 Center of Theoretical Nuclear Physics, National Laboratory of Heavy Ion Accelerator of Lanzhou, Lanzhou 730000, China;

3 Physics Department, University of Kassel, D-34132 Kassel, Germany )

**Abstract:** The recent high precision measurement on the lifetime of metastable  $6s[3/2]_2$  state of atomic xenon shows a difference with previous prediction by a factor of 2—3. In the present work, a new theoretical method which can systematically treat relaxation and correlation effects on the basis of the MCDF method is used to study the M2 transitions between the  $5p^5 6s$  and  $5p^6$  configurations. By including the correlation contributions of the single and double excitations from the  $5l$  subshells up to the  $10l$  orbital layers, the present study reduces greatly the existing discrepancy between the theoretical prediction and experimental measurement in the lifetime of the metastable  $6s[3/2]_2$  state.

**Key words:** MCDF; relaxation and correlation effect; lifetime

\* **Foundation item** ; Foundation for Excellence Young Teacher by the Ministry of Education; Foundation for University Key Teacher by the Ministry of Education (GG-140107361002); Foundation of Center of Theoretical Nuclear Physics, National Laboratory of Heavy Ion Accelerator of Lanzhou