

# 中等光强纳秒激光电离苯团簇产生多价碳离子的数值模拟和实验研究\*

赵无垠<sup>1)2)</sup> 王卫国<sup>1)</sup> 李海洋<sup>1)†</sup>

1) (中国科学院大连化学物理研究所, 大连 116023)

2) (中国科学院大学, 北京 100049)

(2013年12月9日收到; 2014年1月3日收到修改稿)

飞秒强激光与团簇相互作用产生多价离子的现象已被广泛报道, 然而近期多个研究小组发现当功率密度低至  $10^{10}$  W/cm<sup>2</sup> 的纳秒激光照射团簇时, 同样也观察到了多价离子的存在. 虽然可以用“多光子电离引发-逆韧致吸收加热-电子碰撞电离”电离机理对这种现象进行解释, 但是缺乏相应的数值模拟. 建立了一个简化的数值模型, 根据有质动力势  $U_p$  计算团簇内电子能量, 再由 Lotz 公式计算出相应的电离截面, 最后由动力学反应速率方程计算出团簇内多价碳离子随时间的演变. 详细分析了团簇尺寸、电子密度等关键参数对多价离子产生的影响. 数值模拟结果表明: 团簇电离在小于 0.7 ns 时间尺度内完成, C<sup>2+</sup>, C<sup>3+</sup> 和 C<sup>4+</sup> 多价离子强度达到平衡后, 离子相对强度由大到小依次为 C<sup>2+</sup>, C<sup>3+</sup>, C<sup>4+</sup>, 这与实验结果相一致; 多价离子的价态随着团簇尺寸的增加而升高, 半径为 5.6 nm 的苯团簇比半径为 3 nm 的苯团簇更容易产生高价态的离子, 这也与实验结果相一致.

**关键词:** 带电团簇, 碰撞电离, 数值模拟研究

**PACS:** 36.40.Wa, 34.80.Dp, 75.40.Mg

**DOI:** 10.7498/aps.63.103602

## 1 引言

由于自身的特性, 团簇对激光具有高的吸收效率, 同时在真空下自身体积有限吸收的能量不易向周围迅速扩散, 使得团簇与激光作用时会产生很多有趣的现象, 例如多价离子、高能电子、X射线甚至核聚变<sup>[1-3]</sup>. 近些年, 国内的一些研究机构在这方面取得了很多成果<sup>[4-15]</sup>. 目前已有多个理论可用于解释飞秒强激光与团簇相互作用产生多价离子的现象, 如 Rose-Petruck 等<sup>[16]</sup> 提出的“电离点火”模型, McPherson 等<sup>[17]</sup> 提出的“相干电子运动”模型以及 Ditmire 等<sup>[18]</sup> 建立的“纳米等离子体”模型. 这些理论中激光电磁场强度与分子价电子电场相当, 电子可以被直接剥离从而形成多价离子.

近些年来, 国内外学者发现功率密度低至  $10^9$ — $10^{11}$  W/cm<sup>2</sup> 的中等光强纳秒激光与团簇相互作用产生多价离子的现象具有普遍性. 先后在苯、氙气、氪气、氩和碘甲烷等团簇体系中观察到多价离子 C<sup>4+</sup>, Xe<sup>11+</sup>, Kr<sup>11+</sup>, N<sup>5+</sup> 和 I<sup>3+</sup> 的产生<sup>[19-25]</sup>. 这种现象引起了国际上其他研究小组的兴趣, 并开展了类似的研究工作<sup>[26,27]</sup>. 但多价离子在中等光强的纳秒激光场和飞秒强激光场中的产生机理有着本质的不同<sup>[28-30]</sup>, 关于多价离子在激光功率密度为  $10^{10}$  W/cm<sup>2</sup> 的中等光强激光场中的电离机理仍缺乏相应的研究. 鉴于苯的高度对称性, 国内外学者开展了大量关于中等光强激光电离苯团簇的实验工作并研究了相关的电离规律. Kong 等<sup>[23]</sup> 利用波长为 532 nm、功率密度为  $10^9$ — $10^{11}$  W/cm<sup>2</sup> 的纳秒激光研究了激光与苯团

\* 国家自然科学基金 (批准号: 11004190, 21077101) 和国家重大科学仪器设备开发专项基金 (批准号: 2011YQ05006903) 资助的课题.

† 通讯作者. E-mail: hli@dicp.ac.cn

簇相互作用, 通过比较扩散束和脉冲团簇束发现团簇是多价离子产生的必要条件, 同时发现多价离子来源于含苯团簇的库仑爆炸. Niu 等<sup>[31]</sup>研究了多价离子的价态分布与激光波长的关系, 结果表明长激光波长有利于多价离子的产生, 并将其归因于激光波长对电子逆韧致吸收获得能量的影响. Zhang 等<sup>[22]</sup>利用阻滞电压法测定了苯与激光相互作用产生的电子能量分布, 并发现在纳秒激光与团簇相互作用中产生了能量为几十电子伏至几百电子伏的电子, 从而为高能电子与离子碰撞产生多价离子的理论提供了实验依据.

通过对团簇种类、团簇尺寸、载气条件和激光条件等参数的分析<sup>[21,23,24]</sup>, 本研究小组提出了一个电离机理用于解释纳秒激光与团簇相互作用, 即“多光子电离引发-逆韧致吸收加热-电子碰撞电离”<sup>[19]</sup>. 该电离机理可以定性解释不同团簇体系与中等光强的纳秒激光相互作用产生多价离子的现象<sup>[32-37]</sup>. 文献<sup>[26, 27, 38]</sup>多次引用该电离机理解释激光电离团簇产生多价离子的现象. 但是, 关于纳秒激光与团簇相互作用的数值模拟研究尚未见报道.

为了进一步研究中等光强纳秒激光与团簇相互作用, 本文选取苯团簇和功率密度为  $10^{10}$  W/cm<sup>2</sup>、波长为 532 nm 的纳秒激光作为研究对象, 对提出的“多光子电离引发-逆韧致吸收加热-电子碰撞电离”机理进行了数值模拟, 并与实验结果进行对比. 数值模拟了团簇尺寸、电子密度和多价离子分布随时间的变化. 同时, 通过比较模拟结果和实验结果, 研究了团簇尺寸对多价离子产生的影响.

## 2 多价电离机理和数值模型

在纳秒激光与团簇作用的初始阶段, 由于激光功率密度只有  $10^9-10^{11}$  W/cm<sup>2</sup>, 团簇内的电子和离子只能通过少量的分子吸收多个光子电离产生. 电离产生的电子受到离子核的库仑吸引, 被束缚在近似液态密度的团簇中. 在交变激光场作用下, 被束缚的电子与中性原子或分子发生碰撞, 通过逆韧致吸收从激光场中获取能量. 电子能量随着电子从激光场中获得能量的增加而不断增大. 当电子能量大于分子或离子的电离势时, 电子会与周围的分子、离子发生碰撞电离产生新的离子、电子. 碰撞电离前的电子和新生电子继续通过逆韧致吸收加热

获得能量, 再次引发新的碰撞电离过程, 并以此方式循环下去从而导致雪崩电离. 同时, 团簇表面的电子会通过热运动不断离开团簇, 由于团簇带正电荷使得其内部产生库仑排斥力. 当这种排斥力大于团簇的内聚力时, 就会发生库仑爆炸, 释放出大量的多价离子和电子<sup>[19]</sup>.

在数值模拟激光与团簇作用时考虑了逆韧致吸收、碰撞电离、库仑爆炸等过程. 首先, 由电子与离子的碰撞频率和有质动力势  $U_p$  计算出电子能量; 然后, 根据 Lotz 公式计算相应的碰撞电离截面和反应速率常数; 最后, 通过速率方程计算出团簇内多价离子  $C^{q+}$  ( $q = 2-4$ ) 的演变. 在膨胀过程中团簇遵守动量守恒和能量守恒. 由于多价离子主要来源于电子与离子的碰撞电离, 数值模拟了团簇内电子密度随时间的演变. 图 1 为团簇与激光相互作用过程示意图.

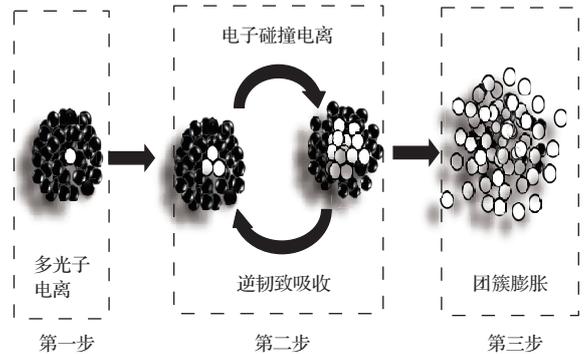


图1 团簇与激光相互作用过程示意图

### 2.1 逆韧致加热

前期研究结果表明高能电子碰撞电离是多价离子的主要产生过程<sup>[22]</sup>. 高能电子的产生主要依赖于逆韧致吸收, 它被认为是团簇吸收激光能量的重要机理之一. Dawson 和 Oberman<sup>[39]</sup>研究了在低强度激光场下团簇通过逆韧致吸收获得能量的过程. 该机理被推广到高强度激光场下的研究<sup>[40,41]</sup>. 在交变激光电场作用下, 电子在团簇中做振荡运动, 电子通过与中性或带电粒子相碰撞而使电子能量升高. 在激光场作用下, 电子单次碰撞所获得的能量  $\Delta E$  为

$$\begin{aligned} \Delta E &\approx 2U_p = 2 \times \frac{e^2 I \lambda^2}{8\pi^2 \epsilon_0 m_e c^3} \\ &= 1.86 \times 10^{-13} I \lambda^2, \end{aligned} \quad (1)$$

其中,  $I$  为激光功率密度, 单位为 W/cm<sup>2</sup>;  $\lambda$  为激光波长, 单位为  $\mu\text{m}$ ;  $e$  为单位电荷的电量;  $m_e$  为电

子质量;  $c$  为光速;  $\epsilon_0$  为真空介电常数;  $\Delta E$  的单位为 eV.

在激光场作用下, 电子与团簇中的中性分子或离子碰撞激烈. 团簇中电子与离子的碰撞频率  $\nu_{ei}$  为

$$\nu_{ei} = \frac{4}{9} \left( \frac{2\pi}{3} \right)^{1/2} \frac{Z^2 e^4 n_i}{m_e^{1/2} (k_B T_e)^{3/2}} \ln \Lambda, \quad (2)$$

其中,  $T_e$  为团簇内电子平均温度,  $Z$  为团簇内离子的平均价态,  $n_i$  为团簇内离子的密度,  $k_B$  为玻尔兹曼常数,  $\ln \Lambda$  为标准库仑对数. 在波长为 532 nm、功率密度为  $10^{10}$  W/cm<sup>2</sup> 的激光作用下, 电子单次碰撞获得的能量约为  $10^{-4}$  eV, 虽然其与在飞秒强激光场作用下电子单次碰撞获得的能量相比相差 3 个数量级, 但纳秒激光脉冲宽度比飞秒激光脉冲宽度宽 4 个数量级左右, 而且电离阈值会随着脉冲宽度的增加而降低<sup>[42]</sup>. 由于团簇初始分子密度高达  $10^{23}$  cm<sup>-3</sup>, 团簇中电子与离子的碰撞频率可以达到  $10^{14}$  Hz, 在皮秒量级时间里, 电子能量即可达到几十电子伏. 因此纳秒激光与团簇相互作用也能产生高能电子, 高能电子可通过碰撞电离产生多价离子.

## 2.2 碰撞电离

电子以逆韧致吸收方式不断增加能量, 当电子能量高于分子或离子的电离势时, 就会发生碰撞电离产生新的离子和电子. 具有一定能量的电子的碰撞电离截面  $\sigma$  可由下列 Lotz 公式计算得到<sup>[43,44]</sup>:

$$\sigma = \sum_{j=1}^N a_j q_j \frac{\ln(E/L_j)}{EL_j} \{1 - b_j \times \exp[-c_j(E/L_j - 1)]\} \quad (E \geq L_j), \quad (3)$$

其中,  $E$  为入射电子能量;  $L_j$  为第  $j$  子壳层电子的束缚能, 对于离子的最外壳层而言,  $L_j$  取相应价态离子的电离势;  $q_j$  为第  $j$  子壳层等价电子数目;  $a_j$ ,  $b_j$ ,  $c_j$  为与元素相关的常数.

碰撞电离过程中离子产生的速率方程如下:

$$\begin{aligned} \frac{dM^{2+}}{dt} &= y_2[M^{+}] - y_3[M^{2+}], \\ \frac{dM^{3+}}{dt} &= y_3[M^{2+}] - y_4[M^{3+}], \\ &\vdots \\ \frac{dM^{(j-1)+}}{dt} &= y_{(j-1)}[M^{(j-2)+}] - y_j[M^{(j-1)+}], \end{aligned}$$

$$\frac{dM^{j+}}{dt} = y_j[M^{(j-1)+}], \quad (4)$$

其中  $y_j$  为离子由  $M^{(j-1)+}$  生成  $M^{j+}$  的反应速率常数.

按照经典动力学理论, 碰撞电离的反应速率常数为

$$y_j = n_e \int \sigma_v d\nu, \quad (5)$$

其中,  $n_e$  为团簇内电子密度,  $\nu$  为电子速度,  $\sigma_v$  为速度为  $\nu$  的电子对应的碰撞电离截面. 团簇中碰撞频率达到  $10^{14}$  Hz 左右<sup>[32]</sup>, 碰撞十分激烈, 并认为团簇内电子速度分布符合麦克斯韦分布<sup>[18]</sup>.

## 2.3 团簇膨胀

在电离过程中团簇是一个包含高密度的离子和电子的等离子体小球. 它的膨胀力主要来自以下两方面: 一方面是由于库仑排斥力造成的, 通过逆韧致吸收电子能量不断升高从而使电子有足够的能量逃离团簇, 当电子离开团簇后整个团簇带正电, 正电荷的相互排斥作用造成团簇膨胀, 即库仑膨胀; 另一方面是团簇内热电子向外逃逸而拉动冷的重离子一起向外运动, 即流体力膨胀.

库仑排斥力是由团簇表面电子的逃逸造成的, 当处于团簇表层的电子能量超过团簇表面电势后, 电子就会从团簇表面逃逸出来. 团簇表面热电子的发射符合如下公式<sup>[29]</sup>:

$$\frac{dn_e}{dt} = \frac{2}{\pi} (T_e R)^2 \exp\left(-\frac{Zn_i - n_e}{RT_e}\right), \quad (6)$$

其中  $R$  为团簇半径. 电子从团簇中逃出后, 团簇带正电荷, 而正电荷之间会产生库仑排斥力, 在团簇内部形成的库仑压强  $P_{Coul}$  为<sup>[18]</sup>

$$P_{Coul} = \frac{Q^2 e^2}{8\pi R^4}, \quad (7)$$

其中  $Q$  为团簇所带电荷.

在团簇内部, 流体力产生的压强  $P_e$  为

$$P_e = n_e k_B T_e. \quad (8)$$

在膨胀过程中团簇始终遵循动量守恒和能量守恒. 根据动量守恒定律可得出团簇半径  $R$  和团簇内压强  $P$  存在如下关系<sup>[18,45]</sup>:

$$\frac{\partial^2 R}{\partial t^2} = 3 \frac{P}{n_i m_i} \frac{1}{R} = 3 \frac{P_e + P_{Coul}}{n_i m_i} \frac{1}{R}, \quad (9)$$

其中  $m_i$  为离子质量. 根据能量守恒, 电子从激光场中所获得的能量  $G$  等于团簇膨胀所消耗能量与

碰撞电离所消耗能量之和, 即

$$\int_0^t dG = \int_0^t V dP + \int_0^t P dV + E_{\text{ionization}}, \quad (10)$$

其中,  $G$  为通过逆韧致吸收获得的能量,  $V$  为团簇体积,  $E_{\text{ionization}}$  为碰撞电离所消耗能量.

### 3 数值计算结果与实验结果的比较

#### 3.1 模拟条件选取

模拟中选取的苯团簇是半径为 5.6 nm 的球体. 激光功率密度为  $3.9 \times 10^{10} \text{ W/cm}^2$ , 波长为 532 nm. 模拟参数的选取与实验条件尽量一致. 实验中苯团簇是通过超声膨胀产生, 由 0.23 MPa 的 Ar 气体通过苯溶液后鼓泡载带苯蒸汽至脉冲阀, 在束源室内超声膨胀产生团簇, 实验装置见文献 [22, 46]. 文献 [47, 48] 分别从理论和实验角度研究了超声膨胀法产生的团簇尺寸. 根据文献 [47] 中的 (12) 式和文献 [49] 中的表 1 所列参数可估算出苯团簇的半径约为 5.6 nm. 下面如果没有特别说明则团簇半径均为 5.6 nm. 为了说明团簇尺寸对团簇与激光相互作用的影响, 分别选取了半径为 5.6 和 3 nm 的苯团簇进行研究.

团簇密度近似为液体苯的密度, 即为 0.78 g/mL. 对于苯团簇  $(\text{C}_6\text{H}_6)_n$ , 由于 H 原子相对于 C 原子质量较小, H 对大质量数 C 膨胀的影响小 [50], 可将苯团簇近似为  $(\text{C}_6)_n$ . 由于激光波长远大于团簇尺寸, 激光与团簇作用过程中团簇内分子所受到的激光场近似相同.

为了简化模拟过程, 数值模拟时假定初始阶段团簇内通过多光子电离产生一个电子, 然后通过逆韧致吸收该电子能量不断增加, 当电子能量超过电离阈值后发生碰撞电离产生两个电子. 该过程不断循环直到最终的库仑爆炸, 从而产生大量多价离子.

#### 3.2 团簇尺寸随时间的变化

图 2 给出了苯团簇受到波长为 532 nm、功率密度为  $3.9 \times 10^{10} \text{ W/cm}^2$  的激光照射时, 团簇半径随时间的变化. 在前 300 ps, 团簇半径几乎不发生变化, 300 ps 后团簇半径迅速增加. 刚开始团簇膨胀速度较慢, 这是由于团簇内电子数目较少且能量低, 团簇的库仑膨胀和流体力膨胀都较弱. 随着电离的进行, 团簇内电子数目迅速增加, 同时从团簇

中逃逸出来的电子数目也增多, 团簇内的库仑膨胀和流体力膨胀均增强, 由 (9) 式可知在 300 ps 后团簇半径迅速增加.

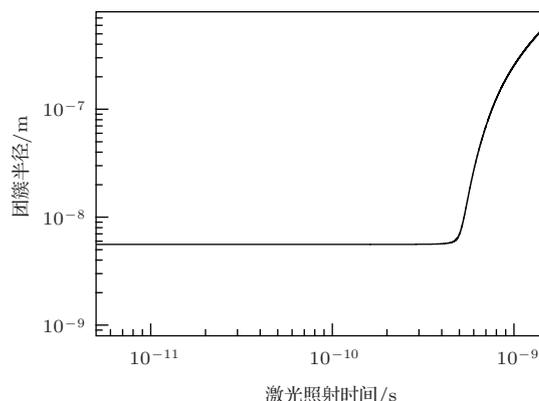


图 2 苯团簇受到波长为 532 nm、功率密度为  $3.9 \times 10^{10} \text{ W/cm}^2$  的激光照射时, 团簇半径随时间的变化

#### 3.3 团簇内电子密度随时间的变化

图 3 给出了团簇内电子密度随时间的变化. 在前 100 ps 电子密度变化十分缓慢, 紧接着迅速升高, 在 500 ps 左右电子密度达到最大值为  $5 \times 10^{23} \text{ cm}^{-3}$ , 接着团簇内电子密度迅速下降. 电离的起始阶段, 团簇内电子数目少, 电子密度低. 随着时间的增加, 在 100—700 ps 之间时, 一方面团簇的膨胀造成团簇内电子密度减小, 另一方面团簇内雪崩式电离造成团簇内电子数目不断增加, 在两者的共同作用下, 500 ps 时团簇内电子密度达到最大值. 500 ps 后团簇内电子数目的增加对团簇内电子密度的影响小于团簇体积膨胀对团簇内电子密度的影响, 从而团簇内电子密度和离子密度迅速减小. 同时根据 (5) 式可知, 离子产生的速率常数与团簇内电子密度成正比, 电子密度的降低导致团簇内通过碰撞电离产生离子的速率减小, 抑制了团簇内电子的产生速率, 进一步加快了团簇内电子密度的降低. 此外, 团簇内电子的逃逸也是团簇内电子密度下降的一个原因.

#### 3.4 理论结果与实验结果的比较

当苯团簇受到波长为 532 nm、功率密度为  $3.9 \times 10^{10} \text{ W/cm}^2$  的激光照射时, 团簇内  $\text{C}^{q+}$  ( $q = 1-3$ ) 强度随时间变化的模拟结果如图 4 (a) 所示. 在电离起始阶段 (0—250 ps), 团簇内离子强度的变化十分缓慢. 在 250—500 ps 之间团簇内的  $\text{C}^+$  迅速增加并达到最大值. 随着时间的增加,  $\text{C}^{2+}$  和

$C^{3+}$  依次出现, 离子数目也快速增加, 此时  $C^+$  数目不断减小并趋于稳定. 700 ps 后团簇内的  $C^{q+}$  ( $q = 1-3$ ) 数目和价态分布不再随时间变化. 达到平衡后, 离子相对强度由大到小依次为  $C^{2+}$ ,  $C^{3+}$ ,  $C^{4+}$ . 图 4(b) 给出了苯团簇与功率密度为  $3.9 \times 10^{10} \text{ W/cm}^2$  的纳秒激光相互作用实验中得到的质谱图. 苯团簇采用“种子气”(seed beam)技术产生, 仪器介绍详见文献 [22, 46]. 图 4(b) 中,  $C^+$  离子强度明显高于图 4(a) 所示的  $C^+$  离子强度, 这是由于数值模拟中并没有考虑  $C^+$  的其他来源, 例如多光子电离、背景信号和空间内苯分子的电离等. 图 4(b) 中多价离子  $C^{2+}$  和  $C^{3+}$  的分布与图 4(a) 所示曲线一致, 多价离子强度由大到小也依次为  $C^{2+}$ ,  $C^{3+}$ ,  $C^{4+}$ , 这进一步证明了电离机理的合理性.

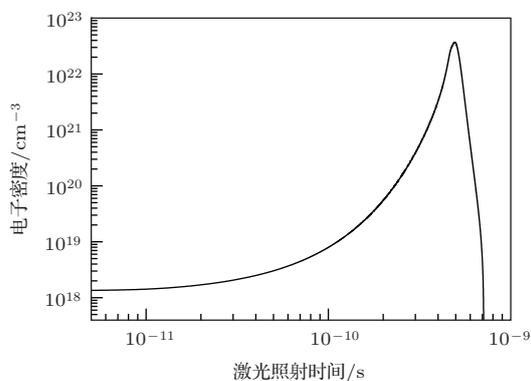


图3 苯团簇受到波长为 532 nm、功率密度为  $3.9 \times 10^{10} \text{ W/cm}^2$  的激光照射时, 团簇内电子密度随时间的变化

前期的实验发现, 团簇尺寸对于多价离子的产生非常关键. 我们就团簇尺寸对多价离子产生的影响进行了数值模拟研究. 选取的团簇半径分别为 5.6 和 3 nm. 从图 4(a) 可以看出, 达到平衡后,  $C^{3+}$  离子强度约是  $C^{2+}$  离子强度的二分之一, 多价离子强度由大到小依次为  $C^{2+}$ ,  $C^{3+}$ ,  $C^{4+}$ . 团簇半径为 3 nm 时, 只发现有  $C^+$  和  $C^{2+}$ , 而未见  $C^{3+}$  (图 5(a)). 模拟结果表明, 半径为 5.6 nm 的苯团簇的离子价态要高于半径为 3 nm 的苯团簇的离子价态. 这是由于团簇在发生膨胀时, 根据 (9) 式可知团簇的膨胀速度与团簇半径和质量有关, 即大尺寸的团簇膨胀速度快, 小尺寸的团簇膨胀速度慢. 比较图 4(a) 和图 5(a) 可以看出, 图 4(a) 中离子强度达到平衡时所用的时间是 700 ps, 图 5(a) 中离子强度达到平衡时所用的时间是 600 ps. 团簇膨胀速度越慢, 电子通过逆韧致吸收获得的能量越多, 同时

碰撞电离的时间越长, 越有利于多价离子的形成.

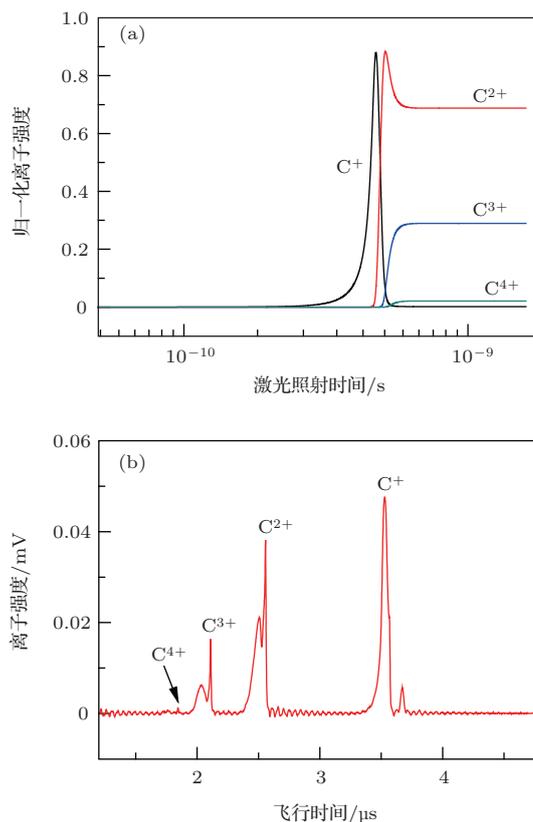


图4 苯团簇受到波长为 532 nm、功率密度为  $3.9 \times 10^{10} \text{ W/cm}^2$  的激光照射时, 团簇内多价离子强度随时间的变化 (a) 模拟结果; (b) 实验结果, 激光延迟为 320  $\mu\text{s}$

图 4(b) 和图 5(b) 分别选取脉冲束前段的延迟时间为 320 和 290  $\mu\text{s}$ , 这里延迟时间是指激光相对于脉冲阀开启的时间延迟. 图 5(b) 给出了延迟时间为 290  $\mu\text{s}$  时的质谱图. 在脉冲电压的控制下, 从脉冲阀中喷出的苯在束源室中发生超声膨胀形成团簇. 大尺寸的团簇获得的初始速度小, 向下运动到达电离区需要的时间长, 反之, 小尺寸的团簇所需要的时间短. 因此, 延迟时间为 320  $\mu\text{s}$  时的团簇尺寸大于延迟时间为 290  $\mu\text{s}$  时的团簇尺寸. 当延迟时间为 320  $\mu\text{s}$  时, 达到平衡后,  $C^{2+}$  离子强度最强,  $C^{3+}$  离子强度最大值达到  $C^{2+}$  离子强度峰值的二分之一, 这与数值模拟结果一致. 延迟时间为 290  $\mu\text{s}$  时, 图 5(b) 中有  $C^+$  和  $C^{2+}$  而未见  $C^{3+}$ , 这与图 5(a) 中的数值模拟结果一致. 延迟时间为 320  $\mu\text{s}$  时的团簇离子的整体价态要高于延迟时间为 290  $\mu\text{s}$  时的团簇离子的整体价态. 在这里需要指出的是通过控制延迟时间能够得到不同尺寸的团簇, 但由于团簇的具体尺寸难以测定, 因而很难将延迟时间和团簇的具体尺寸一一对应. 在团簇束的前段, 随着延迟时间的增加团簇尺寸增大, 团

簇尺寸越大越有利于多价离子的产生,表明模拟结果与实验结果一致.

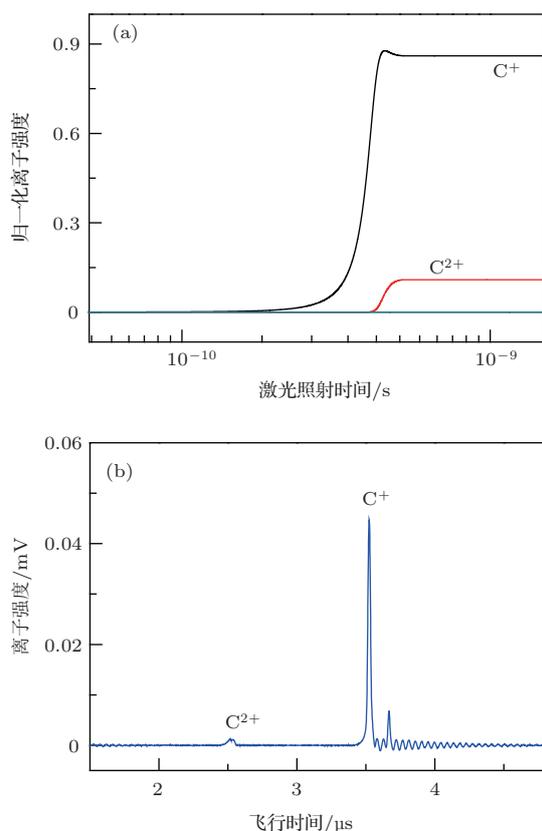


图5 苯团簇受到波长为 532 nm、功率密度为  $3.9 \times 10^{10}$  W/cm<sup>2</sup> 的激光照射时,半径为 3 nm 的团簇内多价离子强度随时间的变化 (a) 模拟结果; (b) 实验结果,激光延迟为 290  $\mu$ s

## 4 结 论

本文选取苯团簇和功率密度为  $10^{10}$  W/cm<sup>2</sup>、波长为 532 nm 的中等光强纳秒激光作为研究对象,对提出的“多光子电离引发-逆韧致吸收加热-电子碰撞电离”电离机理进行了数值模拟分析,模拟了纳秒激光场中多价离子  $C^{2+}$  和  $C^{3+}$  的产生过程,发现纳秒激光与团簇的作用时间在亚纳秒. 多价离子分布的数值模拟结果与实验结果一致,表明“多光子电离引发-逆韧致吸收加热-电子碰撞电离”电离机理能够反映多价离子的产生过程,离子与高能电子的碰撞电离是形成多价离子的重要途径. 此外,还考察了团簇内团簇尺寸、电子密度和多价离子分布随时间的变化. 实验结果和模拟结果均表明,大尺寸的团簇有利于高价态的多价离子产生. 对于激光功率密度低至  $10^{12}$  W/cm<sup>2</sup> 的皮秒激光,场致电离很弱,多价离子的产生同样能够用该模型进行解释. 但相对于功率密度为  $10^9$ — $10^{11}$  W/cm<sup>2</sup> 的激

光而言,由于此时激光光强较强,因而需要考虑多光子电离阶段团簇的解离对多价离子产生的影响,并对模型进行相应修正. 同时,由于电子逆韧致吸收加热需要若干皮秒到十几皮秒,这要求激光的脉冲宽度要大于几十皮秒. 对激光与团簇相互作用的进一步研究将对深入认识电离的微观过程具有重要意义.

## 参考文献

- [1] Jha J, Krishnamurthy M 2008 *J. Phys. B* **41** 041002
- [2] Sumeruk H A, Kneip S, Symes D R, Churina I V, Belolipetski A V, Dyer G, Landry J, Bansal G, Bernstein A, Donnelly T D, Karmakar A, Pukhov A, Ditmire T 2007 *Phys. Plasmas* **14** 062704
- [3] Ditmire T, Smith R A, Marjoribanks R S, Kulcsár G, Hutchinson M H R 1997 *Appl. Phys. Lett.* **71** 166
- [4] Li S H, Wang C, Liu J S, Wang X X, Li R X, Ni G Q, Xu Z Z 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 636 (in Chinese) [李邵辉, 王成, 刘建胜, 王向欣, 李儒新, 倪国权, 徐至展 2005 物理学报 **54** 636]
- [5] Sun Y Q, Chen L M, Zhang L, Mao J Y, Liu F, Li D Z, Liu C, Li W C, Wang Z H, Li Y J, Wei Z Y, Zhang J 2012 *Acta Phys. Sin.* **61** 075206 (in Chinese) [孙彦乾, 陈黎明, 张璐, 毛婧一, 刘峰, 李大章, 刘成, 李伟昌, 王兆华, 李英骏, 魏志义, 张杰 2012 物理学报 **61** 075206]
- [6] Cang Y, Dong Q L, Wu H C, Sheng Z M, Yu W, Zhang J 2004 *Chin. Phys. Lett.* **21** 2414
- [7] Liu H J, Gu Y Q, Wang H B, Zheng Z J, Ge F F, Wen X L, Jiao C Y, He Y L, Wen T S, Huang W Z, Wang G C, Zhou W M, Zhang S G, Wang X X, Zhou K N, Wang X D, Huang X J, Ni G Q 2005 *Chin. Phys. Lett.* **22** 1174
- [8] Zheng L, Wang C, Li S H, Liu B C, Ni G Q, Li R X, Xu Z Z 2006 *Chin. Phys.* **15** 697
- [9] Li S H, Wang C, Liu J S, Wang X X, Zhu P P, Li R X, Ni G Q, Xu Z Z 2004 *Chin. Phys. Lett.* **21** 481
- [10] Li S H, Wang C, Zhu P P, Wang X X, Li R X, Ni G Q, Xu Z Z 2003 *Chin. Phys. Lett.* **20** 1247
- [11] Lin J Q, Zhang J, Li Y J, Chen L M, Lü T Z, Teng H, Man B Y, Zhao L Z 2001 *Chin. Phys. Lett.* **18** 211
- [12] Wang Q, Cheng Y L, Zhao Y P, Xia Y Q, Chen J, X, Xiao Y F 2003 *Chin. Phys. Lett.* **20** 1309
- [13] Du H C, Wang H Q, Liu Z Y, Sun S H, Li L, Ma L L, Hu B T 2010 *Chin. Phys. B* **19** 035202
- [14] Li H Y, Liu J S 2010 *Acta Phys. Sin.* **59** 7850 (in Chinese) [李洪玉, 刘建胜 2010 物理学报 **59** 7850]
- [15] Li H Y, Liu J S, Wang C, Ni G Q, Li R X, Xu Z Z 2006 *Chin. Phys. Lett.* **23** 2956
- [16] Rose-Petrucci C, Schafer K J, Wilson K R, Barty C P J 1997 *Phys. Rev. A* **55** 1182
- [17] McPherson A, Thompson B D, Borisov A B, Boyer K, Rhodes C K 1994 *Nature* **370** 631

- [18] Ditmire T, Donnelly T, Rubenchik A M, Falcone R W, Perry M D 1996 *Phys. Rev. A* **53** 3379
- [19] Wang W G, Li H Y, Niu D M, Wen L H, Zhang N Z 2008 *Chem. Phys.* **352** 111
- [20] Niu D M, Li H Y, Liang F, Luo X L, Wen L W 2005 *Appl. Phys. Lett.* **87** 034103
- [21] Niu D M, Li H Y, Liang F, Wen L H, Luo X L, Wang B, Qu H B 2005 *J. Chem. Phys.* **122** 151103
- [22] Zhang N Z, Wang W G, Cang H W, Wang H L, Li H Y 2009 *Chem. Phys. Lett.* **469** 14
- [23] Kong X L, Luo X L, Niu D M, Li H Y 2004 *Chem. Phys. Lett.* **388** 139
- [24] Luo X L, Li H Y, Niu D W, Wen L H, Liang F, Wang B, Xiao X 2005 *Phys. Rev. A* **72** 013201
- [25] Zhao W D, Wang W G, Qu P C, Hou K Y, Li H Y 2012 *Chem. Phys. Lett.* **543** 55
- [26] Sharma P, Vatsa R K, Kulshreshtha S K, Jha J, Mathur D, Krishnamurthy M 2006 *J. Chem. Phys.* **125** 034304
- [27] Das S, Badani P M, Sharma P, Vatsa R K 2011 *Curr. Sci.* **100** 1008
- [28] Saalman U, Siedschlag C, Rost J M 2006 *J. Phys. B* **39** R39
- [29] Krainova V P, Smirnov M B 2002 *Phys. Rep.* **370** 237
- [30] Döppner T, Müller J P, Przystawik A, Göde S, Tiggesbäumker J, Meiwes-Broer K H, Varin C, Ramunno L, Brabec T, Fennel T 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 053401
- [31] Niu D M, Li H Y, Liang F, Wen L H, Luo X L, Wang B, Hou K Y, Zhang X X 2005 *Chem. Phys. Lett.* **403** 218
- [32] Xiao X, Li H Y, Luo X L, Niu D M, Wen L H, Wang B 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 5098 (in Chinese) [肖雪, 李海洋, 罗晓琳, 牛冬梅, 温丽华, 王宾 2005 物理学报 **54** 5098]
- [33] Qu P C, Wang W G, Zhao W D, Zhang G Q, Li H Y 2012 *Acta Phys. Sin.* **61** 182101 (in Chinese) [曲丕丞, 王卫国, 赵无垠, 张桂秋, 李海洋 2012 物理学报 **61** 182101]
- [34] Niu D M, Li H Y, Luo X L, Liang F, Cheng S, Li A L 2006 *Chin. Phys.* **15** 1511
- [35] Luo X L, Kong X L, Niu D M, Qu H B, Li H Y 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 606 (in Chinese) [罗晓琳, 孔祥蕾, 牛冬梅, 渠洪波, 李海洋 2005 物理学报 **54** 606]
- [36] Xiao X, Li H Y, Luo X L, Niu D M, Wen L H, Wang B 2006 *Acta Phys. Sin.* **55** 661 (in Chinese) [肖雪, 李海洋, 罗晓琳, 牛冬梅, 温丽华, 王宾 2006 物理学报 **55** 661]
- [37] Zhang N Z, Cang H W, Wang W G, Miao S Y, Jin F, Wu Q H, Hua L, Li H Y 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 4556 (in Chinese) [张娜珍, 仓怀文, 王卫国, 苗书一, 金峰, 吴庆浩, 花磊, 李海洋 2009 物理学报 **58** 4556]
- [38] Karras G, Kosmidis C 2010 *Int. J. Mass Spectrom.* **290** 133
- [39] Dawson J, Oberman C 1962 *Phys. Fluids* **5** 517
- [40] Decker C D, Mori W B, Dawson J M, Katsouleas T 1994 *Phys. Plasmas* **1** 4043
- [41] Kostyukov I Y 2001 *JETP Lett.* **73** 393
- [42] Wang X L, Zhang N, Zhao Y B, Li Z L, Zhai H C, Zhu X N 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 354 (in Chinese) [王晓雷, 张楠, 赵友博, 李智磊, 翟宏琛, 朱晓农 2008 物理学报 **57** 354]
- [43] Lotz W 1967 *Z. Phys.* **206** 205
- [44] Lotz W 1968 *Z. Phys.* **216** 241
- [45] Hilse P, Moll M, Schlanges M, Bornath T 2009 *Laser Phys.* **19** 428
- [46] Zhang N Z, Wang W G, Zhao W D, Han F L, Li H Y 2010 *Chem. Phys.* **373** 181
- [47] Hagen O F 1992 *Rev. Sci. Instrum.* **63** 2374
- [48] Seki T, Matsuo J, Takaoka G H, Yamada I 2003 *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. B* **206** 902
- [49] Yang S, Daineka D V, Châtelet M 2003 *Chem. Phys. Lett.* **377** 595
- [50] Last S, Schek L, Jortner J 1997 *Chem. Phys.* **107** 6685

# Numerical simulation and experimental investigation of the production of multiply charged ions by the ionization of benzene cluster with a moderate intensity laser\*

Zhao Wu-Duo<sup>1)2)</sup> Wang Wei-Guo<sup>1)</sup> Li Hai-Yang<sup>1)†</sup>

1) (*Dalian Institute of Chemical Physics, Chinese Academy of Sciences, Dalian 116023, China*)

2) (*University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China*)

( Received 9 December 2013; revised manuscript received 3 January 2014 )

## Abstract

The production of multiply charged ions by the interaction of intense femtosecond laser with clusters has been widely reported. Recently, many groups discovered the multiply charged ions when the cluster was irradiated by a 532 nm nanosecond laser with the intensity as low as  $10^{10}$  W/cm<sup>2</sup>. Although this interesting phenomenon could be explained by the mechanism of “multiphoton ionization triggered-inverse bremsstrahlung heating-electron impact ionization”, there is a lack of numerical simulation to explain the generation of multiply charged ions. In this paper, numerical simulation is performed to study the generation process of multiply charged ions in the moderate intensity laser. Firstly, the electron energy is calculated according to ponderomotive potential. Secondly, the cross section of electron impact ionization is calculated on the basis of Lotz formula. Finally, the evolution of multiply charged ions in the cluster is calculated with the kinetic reaction rate equation. The effects of cluster size and electron density on multiply charged ions are investigated in detail. Simulation results show that the ionization process is completed and the balance among C<sup>2+</sup>, C<sup>3+</sup> and C<sup>4+</sup> is achieved in 0.7 ns. The relative intensity sequence of multiply charged ions is C<sup>2+</sup> > C<sup>3+</sup> > C<sup>4+</sup>, which is consistent with the experimental results. In addition, numerical simulation results show that the charge state of ions is increased with the increase of cluster size, which is consistent with the experimental results.

**Keywords:** charged cluster, impact ionization, numerical simulation studies

**PACS:** 36.40.Wa, 34.80.Dp, 75.40.Mg

**DOI:** [10.7498/aps.63.103602](https://doi.org/10.7498/aps.63.103602)

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11004190, 21077101) and the Special Foundation of State Major Scientific Instrument and Equipment Development of China (Grant No. 2011YQ05006903).

† Corresponding author. E-mail: [hli@dicp.ac.cn](mailto:hli@dicp.ac.cn)