

团簇增强的纳秒激光电离产生 $\text{Xe}^{z+} (z \leq 20)$ 高价离子^{*}

罗晓琳¹⁾ 孔祥蕾¹⁾ 牛冬梅¹⁾ 渠洪波¹⁾ 李海洋¹⁾²⁾

¹⁾中国科学院安徽光学精密机械研究所, 合肥 230031)

²⁾中国科学院大连化学物理研究所, 大连 116023)

(2004 年 1 月 31 日收到, 2004 年 5 月 24 日收到修改稿)

利用功率密度为 $10^{11} - 10^{12} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$ 的 1064nm 纳秒激光电离氙原子团簇, 在飞行时间质谱中观察到电离态高达 +20 的高价离子. 不同脉冲束位置实验表明, 仅当激光作用于分子束的中段时, 才能观察到高价离子, 且高价离子的强度随束源压力的增加而迅速增强. 实验结果表明束中大尺寸团簇的存在与高价离子的形成密切相关. 讨论了高价离子产生的可能机理.

关键词: 氙, 纳秒激光, 高价离子, 飞行时间质谱

PACC: 3280, 3640

1. 引 言

原子、分子及团簇在强场中的光电离行为一直是强场物理学研究的重要内容. 许多实验表明, 强度在 $10^{14} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$ 以上的激光与团簇相互作用时, 可以产生高价态离子以及高能电子, 并产生强 x 射线发射甚至实现“台式核聚变”, 已引起广泛的重视^[1-7]. 氙气等惰性气体原子及其团簇的强场电离, 近年来也有不少研究^[1, 8-14]. Wabnitz 等^[1]利用功率密度为 $10^{13} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$ 的 98nm 软 x 射线激光, 对 Xe 原子团簇进行了电离实验, 他们观察到 Xe^{8+} , 并认为平均团簇内每个原子至少吸收了 30 个光子. Santra 等人^[8]经过研究, 发现如此高效率的能量吸收来源于原子结构和等离子体屏蔽共同影响的逆韧致共振吸收. 利用 $10^{17} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$ 的飞秒激光, Lezius 等人^[9]研究了氙高价离子的产生, 认为高价离子产生是库仑爆炸和流体动力学膨胀共同作用的结果. 使用 800nm 的飞秒脉冲激光, 林景全等^[10]研究了 Xe 等惰性气体原子团簇对激光的吸收, 他们的实验结果表明, 脉冲阀前端的工作压力、所使用的气体种类等因素对团簇的尺寸及团簇对激光的吸收有很大影响. 在一定

的条件下 Xe 团簇对激光的吸收可达 45%. 而 Li 等^[11]的研究表明, 大尺寸团簇对激光能量的吸收强烈地依赖于团簇的大小, 吸收效率甚至可高达 90%.

但在 $10^{11} - 10^{12} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$ 的光场下, 用纳秒激光电离分子或原子团簇的研究还比较缺乏. 我们曾经报道了在 532nm 纳秒光场下, 在氙气分子束的激光电离实验中, 观察到 Xe^{11+} 高价离子^[15], 以及利用氙气载带苯、甲醇等蒸气形成的分子束的实验中, 观察到 C^{3+} , I^{3+} 高价离子的现象^[16-18]. 本文利用能量更高的基频 1064nm, 25ns 的 Nd-YAG 激光和飞行时间质谱, 研究了氙气分子束的激光电离过程, 观察到了高达 +20 价的高价氙离子 Xe^{20+} .

2. 实 验

实验是在自制的飞行时间质谱仪上进行的^[16-18]. Xe 气由脉冲阀 (General9, 直径 0.8mm) 超声喷射形成脉冲束进入束源室, 穿过直径为 3mm 的小孔进入电离室. 波长为 1064nm 的调 Q YAG 脉冲激光 (SL803 Spectron Laser Systems) 脉宽 25ns, 经过焦距为 75mm 的透镜聚焦在脉冲束中心, 功率密度约

* 国家自然科学基金 (批准号 20073042) 和国家高技术研究发展计划 (批准号 2002AA649010, 2001AA640302) 资助的课题.

† E-mail: hlh@aiofm.ac.cn

为 $10^{12} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$. 离子由 1850V 的加速电场加速, 经过 500mm 的无场飞行区, 由二级微通道板探测. 脉冲阀的开启、激光的触发及离子信号的采集 (存储示波器 TDS224, Tektronix) 之间的时序关系, 由一五通道脉冲延迟发生器控制. 在脉冲阀进样频率为 10Hz 条件下, 束源室真空优于 10^{-2} Pa , 电离室真空优于 10^{-4} Pa . 实验中 Xe 的纯度大于 99.999%, 所采集的信号都经过 128 次平均. 实验记录了脉冲束不同位置 and 不同束源压力下的质谱图.

图 1 是当激光作用于 Xe 脉冲束的中段记录到的飞行时间质谱图, 图中可清楚观察到一系列高价离子信号, 可分辨的最高价为 +20 价. 更仔细地观察发现, 质谱图中信号的强度分布不是随着离子价态的增加而单调减弱, 高价离子在 1—9 价之间强度随离子价态减小, 对于 10—20 价离子, 可看出 18 价离子对应的峰较强, 而在该峰的两侧, 各离子的强度均呈下降趋势. 其中 10—12 价离子非常微弱, 几乎观察不到.

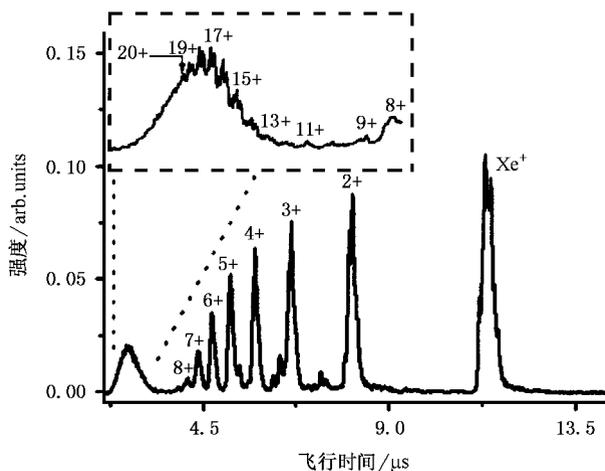


图 1 Xe 高价离子的飞行时间质谱图

调节脉冲阀的开启时间与激光之间的相对延时, 得到激光与脉冲束不同位置相互作用的结果, 如图 2 所示. 可以看出, 当激光作用于脉冲束的前段 (0.57ms) 和后段 (1.92ms) 时, 观察到的离子信号仅为 Xe^+ . 而当激光作用于脉冲束的中段 (0.62—1.42ms) 时, 不仅观察到 Xe^+ 离子信号, 还观察到非常强的高价离子信号 Xe^{z+} ($z = 2—20$), 同时峰形也有一定程度的加宽.

图 3 是在脉冲束中段, 不同束源压力下得到的飞行时间质谱图. 从图中可以看出, 随着压力的降低, 质谱图中高价离子信号的强度迅速减弱. 当 Xe

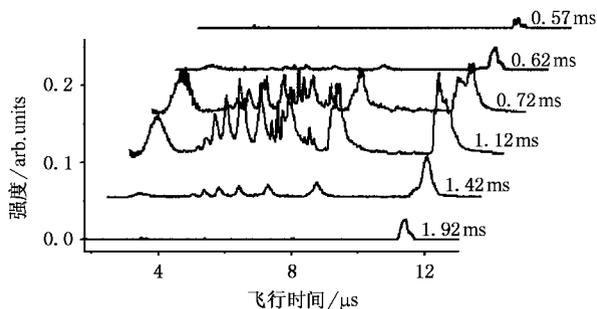


图 2 不同脉冲束位置的飞行时间质谱图

压力降到 0.1MPa 时, 高价离子信号已非常微弱, 而当压力降到 0.05MPa 时, 基本观察不到高价离子信号. 这说明高价离子的形成与脉冲束的压力有着非常密切的关系, 只有在压力足够大的条件下, 才能产生高价离子.

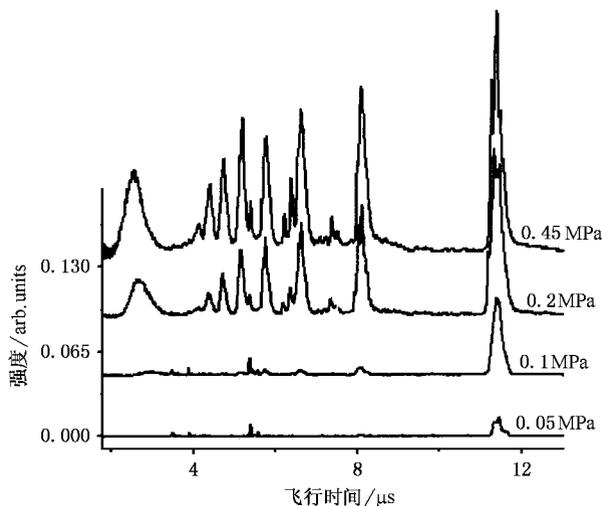


图 3 不同 Xe 压力下的飞行时间质谱图

3. 讨 论

3.1. 不同脉冲束位置影响

将 Nd-YAG 激光波长调整为 266nm, 其余条件不变, 再次进行脉冲束不同位置的激光电离实验, 实验结果如图 4 所示. 图中清楚可见, 在脉冲束的前段 (0.60ms) 和后段 (1.92ms), 未观察到大尺寸的团簇, 仅观察到 Xe_2^+ , 且强度也相对较弱, 而在脉冲束中段 (0.62—1.42ms), 观察到丰富的团簇离子信号 Xe_n^+ ($n = 2—15$). 结合图 2 可知, 在脉冲束的前段和后段, 1064nm 激光电离实验中未观察到高价离子信

号.而当含有丰富团簇的脉冲束中段与 1064nm 激光进行相互作用时,观察到了一系列高价离子信号.1064nm 激光与团簇大量存在的脉冲束中段作用时,才能观察到高价离子,这说明实验能否观察到高价离子与分子束中大尺寸团簇的存在直接相关,团簇与单体在强光场中有着不同的电离方式和过程.

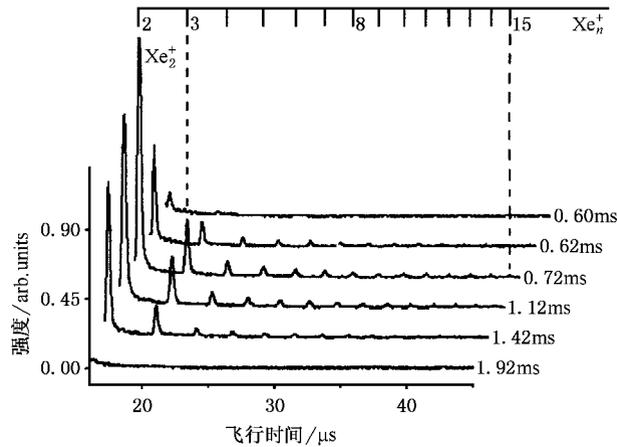


图 4 266nm 下不同脉冲束位置的飞行时间质谱图

3.2. 不同束源压力影响

通过改变脉冲束的束源压力,可以进一步说明高价离子的产生与团簇的关系.压力越大,束中团簇尺寸也越大,其关系由 Hagena 参数关系式^[19]给出:

$$\Gamma^* = k \frac{(d/\tan\alpha)^{0.85} P_0}{T_0^{2.29}}, \quad (1)$$

式中 d 为气体阀门的喷嘴直径(μm), α 为与气体喷嘴形状有关的参量(对于超音速射流,其值小于 45°), P_0 为阀门内气体的压力(MPa), T_0 为气体的工作温度, k 为与气体种类有关的常量,对于惰性气体 Xe,其值为 $5500^{[20]}$.在本实验中, $d = 500\mu\text{m}$, $\alpha = 40^\circ$, $T_0 = 293\text{K}$,取团簇尺寸 $n - \Gamma^{*2.2[21]}$,则不同气压下脉冲束内团簇尺寸 n 及直径 d 列于表 1.

表 1 不同 Xe 压力进样时形成团簇的尺寸及直径

P_0/MPa	$\Gamma^*(\times 10^3)$	$n(\times 10^3)$	d/nm
0.05	1.6	0.04	1.8
0.10	3.2	0.20	3.2
0.15	4.8	0.50	4.2
0.20	6.4	0.94	5.2
0.25	8.0	1.53	6.2
0.30	9.6	2.29	7.2
0.35	11.2	3.21	8.0
0.40	12.7	4.30	8.8
0.45	14.3	5.58	9.6

可见,随着束源压力的增加,束内团簇的尺寸也迅速增加,当束源压力大于 0.1MPa 时,脉冲束内平均每个团簇都包含两百个以上原子,团簇的平均直径可达几个纳米量级.从前面不同束源压力的实验结果可知,当压力为 0.05MPa 时,基本观察不到高价离子,而当压力增加到 0.1MPa 时,开始出现微弱的高价离子信号.随着压力的增大,高价离子信号也迅速增强,当压力增大到 0.2MPa 时,高价离子信号的强度已与一价离子信号的强度相当.束源压力决定了束中团簇的尺寸和大小,团簇的尺寸又直接影响到高价离子的形成,这进一步说明只有在束中团簇尺寸和浓度均足够大的条件下,才能观察到高价离子信号.

3.3 高价离子产生的可能机理

与我们实验结果相似的是, Castleman 等人^[14]在利用功率密度为 $10^{15} \text{W}\cdot\text{cm}^{-2}$ 的 800nm 飞秒激光的实验中,也观察到 Xe^{20+} , 并发现这些高价离子的产生,与分子束中团簇的存在有着直接的联系.最近, Wabnitz 等人^[1]利用功率密度为 $10^{13} \text{W}\cdot\text{cm}^{-2}$ 的 x 射线激光,对 Xe 原子团簇进行了电离实验,他们观察到氙的 8 价离子,也发现团簇尺度与高价离子产生密切相关.与 Castleman 的实验相比,我们实验的光强为其 $1/1000$;与 Wabnitz 的实验相比,我们激光强度为其 $1/10$,单光子能量还不足其 $1/10$.需要指出的是我们实验中高价离子的强度分布与 Castleman 和 Wabnitz 的实验存在明显不同.他们的实验中,高价离子强度都随着离子价态增加而快速下降.从前面描述已知,我们实验中高价离子的强度分布并不是随着离子价态的增加而单调下降,而是有着下降、上升再下降的过程.不同激光功率密度的实验说明,即使在 $10^{11} \text{W}\cdot\text{cm}^{-2}$ 光场强度下,亦能发生相类似的过程,离子价态并没有明显降低,这与 Wabnitz 的实验也有不同.他们实验中的离子价态随激光强度的减弱而降低,在 $10^{11} \text{W}\cdot\text{cm}^{-2}$ 光场强度下,仅能观察到 Xe^+ .离子强度的不同分布及随光强变化的不同规律表明实验中产生高价离子的机理和过程与 Castleman 和 Wabnitz 的实验可能存在不同.

对于强光场下原子的电离过程,一般利用 Keldysh 系数 $\gamma^{[22]}$ 对原子的电离方式进行判断. Keldysh 系数的计算方法为

$$\gamma = \frac{\omega_0 \sqrt{2E_{\text{IP}} m_e}}{eE_0}, \quad (2)$$

式中 ω_0 为激光圆频率, E_{IP} 为分子的电离能, m_e 为电子质量, e 为电子电荷, E_0 为激光脉冲的电场强度峰值. 若 $\gamma \ll 1$, 则原子的电离途径主要为隧道电离, 而 $\gamma \gg 1$ 则表示电离途径主要为多光子电离. 本实验光场强度的大小为 $3.8 \times 10^{12} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$, 对应 Xe^+ 的 γ 为 3.9, 对应 Xe^{2+} 的 γ 为 5.1, 隧道电离的概率可能不大.

对于隧道电离的概率的计算公式为^[20]

$$W = \Delta t \cdot \left(\frac{e}{\pi} \right)^{3/2} \frac{\sqrt{3} (2E_{IP})^{9/4}}{Z^{5/2}} \left(\frac{16eE_0^2}{ZE_0} \right)^{2Z/(\sqrt{2E_{IP}}-3/2)} \times \exp \left[- \frac{\chi (2E_{IP})^{3/2}}{3E_0} \right], \quad (3)$$

式中 Δt 为激光脉宽, E_{IP} 为 $Z-1$ 价离子的电离能, E_0 为激光脉冲的电场强度峰值, 式中各物理量的单位均为原子单位. 计算可得隧道电离产生 Xe^+ 的概率为 10^{-42} .

多光子电离的概率为 $W = \sigma I^N \tau^{23}$, 其中 σ 为多光子电离的吸收截面, I 为激光的功率密度, N 是电离所需吸收的光子数, τ 为激光脉宽. 本实验使用的激光脉宽为 25 ns, 波长为 1064 nm, 多光子电离产生 Xe^+ 要同时吸收的光子数 N 为 11, 对应的 σ 为 3×10^{-133} , 计算得到的多光子电离产生 Xe^+ 的概率 W 为 10^{-2} . 此计算结果也与上面得到的 Keldysh 系数 γ 结果相一致, 可见实验中主要的电离方式应为多光子电离.

对于波长为 1064 nm 的红外激光, 单光子能量仅为 1.168 eV. 由表 2^[20] 可知, 电离产生 Xe^+ 要同时吸收 11 个光子, 而产生 Xe^{20+} 则要同时吸收近 500 个光子, 这在传统的多光子电离过程中是难以想像的. 因此, 在我们的激光电离实验中, 除发生了一般的多光子电离过程, 还发生了更为重要的能量吸收过程.

表 2 氙的电离势^[20]

价态	+1	+2	+3	+4	+5	+6	+7	+8	+9	+10
电离势/eV	12.1	21.1	32.1	46.7	59.7	71.8	92.1	106.0	171.0	202.0
价态	+11	+12	+13	+14	+15	+16	+17	+18	+19	+20
电离势/eV	233.0	263.0	294.0	325.0	358.0	390.0	421.0	452.0	549.0	583.0

至今, 存在三种模型描述团簇与激光的相互作用过程, 并解释实验中观察到的许多奇特的现象. McPherson 等^[24] 利用相干电子运动 (CEMM) 模型解释团簇内产生内壳层空穴以及高电离态离子的机理, 进而解释团簇内反常的 x 射线辐射. 这种模型本身并不完善, 理论也不很清楚, 无法给出定量的描述. Rose-Petruck 等^[25] 提出的电离点火 (IIM) 模型, 指出由于团簇内部离子产生的电场与激光场的共同作用引起团簇内部原子的迅速电离, 从而产生高电离态的离子. 但是这种模型采用 Monte-Carlo 方法模拟团簇在激光场的运动, 不能描述团簇内部原子的集体行为, 而且只能模拟较小的团簇. 第三种描述激光与团簇相互作用的模型是 Ditmire 等^[41] 提出的流体动力学模型, 该模型能较好地解释团簇的膨胀过程、共振吸收效应及高离子态离子的产生等实验现象. 他们把团簇近似看成是一介质球, 在激光场的作用下电离产生电子, 团簇在膨胀过程中, 决大多数电子留在团簇内部, 使之能近似为一等离子体球, 等离子体球内原子的电离主要是通过电子的碰撞电离. 由于团簇内部高密度电子的产生, 团簇主要通过逆韧

致吸收加热, 并伴随流体动力学膨胀和库仑爆炸. 该模型把团簇近似看成是等离子体小球, 因而要求团簇足够大 (直径 2.0 nm 以上).

从以上对实验结果的分析可知, 本实验中高价离子的形成与大尺寸团簇的存在密切相关, 因而我们认为实验中高价离子产生的可能机理是: 在激光脉冲的前端, 主要的电离方式为多光子电离, 原子团簇同时吸收若干个光子, 电离形成纳米尺度的等离子体. 等离子体中的电子和离子在相互碰撞的过程中, 会发生与激光场的逆韧致共振吸收, 电子温度迅速增加, 在等离子体内部通过电子碰撞电离形成高价态的团簇离子, 最终产生高电离态的原子离子. 逆韧致共振吸收效率与激光场的频率以及等离子体共振频率相关, 激光频率与等离子体共振频率越接近, 逆韧致吸收效率越高, 最终产生的原子离子的电离态也越高^[20].

利用以上模型, 可以较好的理解本文与文献 [15] 之间的不同. 文献 [15] 利用 532 nm 激光电离氙原子团簇, 观察到 Xe^{11+} 离子. 本文将激光波长调整为 1064 nm, 观察到电离态高达 +20 的高价离子. 实

验中也将激光波长调整为四次谐波的 266nm,在观察到大量团簇信号的同时,仅观察到 Xe^{2+} . 不同波长的激光在焦点处的功率密度约差一个量级,但不同激光功率密度的实验表明,即使功率密度减弱一个量级,仍能发生类似现象,离子价态并没有明显降低,说明激光功率密度不是影响离子价态的决定因素. 分析认为激光频率是影响激光与物质相互作用的关键因素,1064nm 激光频率低,更靠近形成的等离子体的共振频率,有利于电子的逆韧致共振吸收过程,电子温度更高,通过电子碰撞电离形成的团簇离子价态更高,最终形成更高电离态的原子离子.

一般来说,逆韧致共振吸收主要发生在临界密度附近,且其时间尺度只有几十个飞秒^[26],与我们实验中的激光脉宽 25ns 相比,这个时间还不足激光脉宽的 0.01%. 我们的实验确实观察到了飞秒实验中相似的现象,这说明在纳秒强场电离中团簇等离子体的膨胀速度可能比飞秒实验中的速度低得多. 如何全面认识实验中的现象,特别是团簇对纳秒激光的吸收和电离,还需要进一步实验和理论研究.

对张伟、张先、阚瑞峰、王宾、刘颖、温丽华、梁峰、邵士勇等同志在实验中给予的大力支持和有益讨论表示感谢.

- [1] Wabnitz H, Bittner L, de Castro A R B, Döhrmann R, Gürtler P, Laamann T, Laasch W, Schulz J, Swiderski A, von Haefen K, Möller T, Faatz B, Fateev A, Feldhaus J, Gerth C, Hahn U, Saldin E, Schneidmiller E, Sytchev K, Tiedtke K, Treusch R and Yurkov M 2002 *Nature* **420** 482
- [2] Ditmire T, Tisch J W G, Springate E, Mason M B, Hay N, Smith R A, Marangos J and Hutchinson M H R 1997 *Nature* **386** 54
- [3] Wiehle R and Witzel B 2002 *Phys. Rev. Lett.* **89** 223002
- [4] Ditmire T, Donnelly T, Rubenchik A M, Falcone R W and Perry M D 1996 *Phys. Rev. A* **53** 3379
- [5] Cheng Y L, Zhao Y P, Xiao Y F, Xia Y Q, Chen J X and Wang Q 2003 *Acta. Phys. Sin.* **52** 2453 (in Chinese) 程元丽、赵永蓬、肖亦凡、夏元钦、陈建新、王 骐 2003 *物理学报* **52** 2453]
- [6] Siedschlag C and Rost J M 2003 *Phys. Rev. A* **67** 013404
- [7] Honda H and Miura E 2000 *Phys. Rev. A* **61** 023201
- [8] Santra R and Greene C H 2003 *Phys. Rev. Lett.* **91** 233401
- [9] Lezius M, Dobosz S, Normand D and Schmidt M 1998 *Phys. Rev. Lett.* **80** 261
- [10] Lin J Q, Zhang J, Li Y J, Chen L M, Lü T Z and Teng H 2001 *Acta. Phys. Sin.* **50** 457 (in Chinese) 林景全、张 杰、李英骏、陈黎明、吕铁铮、滕 浩 2001 *物理学报* **50** 457]
- [11] Li S H, Wang C, Liu J S, Wang X X, Zhu P P, Li R X, Ni G Q and Xu Z Z 2003 *Chin. Phys.* **12** 1229
- [12] Liu J S, Li R X, Zhu P P, Xu Z Z and Liu J R 2001 *Acta. Phys. Sin.* **50** 1121 (in Chinese) 刘建胜、李儒新、朱频频、徐至展、刘晶儒 2001 *物理学报* **50** 1121]
- [13] Springate E, Hay N, Tisch J W G, Ditmire T, Hutchinson M H R and Marangos J P 2000 *Phys. Rev. A* **61** 063201
- [14] Snyder E M, Buzza S A and Castleman Jr A W 1996 *Phys. Rev. Lett.* **77** 3347
- [15] Luo X L, Kong X L, Niu D M, Qu H B and Li H Y 2004 *Acta. Phys. - Chim. Sin.* **20** 225 (in Chinese) 罗晓琳、孔祥蕾、牛冬梅、渠洪波、李海洋 2004 *物理化学学报* **20** 225]
- [16] Kong X L, Luo X L, Zhang X Y and Niu D M 2003 *Acta. Phys. - Chim. Sin.* **19** 469 (in Chinese) 孔祥蕾、罗晓琳、张先 、牛冬梅 2003 *物理化学学报* **19** 469]
- [17] Kong X L, Luo X L, Niu D M and Li H Y 2004 *Acta. Phys. Sin.* **53** 70 (in Chinese) 孔祥蕾、罗晓琳、牛冬梅、李海洋 2004 *物理学报* **53** 70]
- [18] Kong X L, Niu D M, Luo X L, Li H Y 2004 *Acta. Chim - Phys. Sin.* **17** 513 (in Chinese) 孔祥蕾、牛冬梅、罗晓琳、李海洋 2004 *化学物理学报* **17** 513]
- [19] Hagena O F and Obert W 1972 *J. Chem. Phys.* **56** 1793
- [20] Krainov V P and Smirnov M B 2002 *Physics Reports* **370** 237
- [21] Farges J, de Feraudy M F and Torchet G 1986 *J. Chem. Phys.* **84** 3491
- [22] Keldysh V 1965 *Sov. Phys. JEPT* **20** 1307
- [23] Huillier A L, Lompré L A, Mainfray G and Manus C 1983 *J. Phys. B : At. Mol. Phys.* **16** 1363
- [24] McPherson A, Thomson B D and Borisov A B 1994 *Nature* **370** 631
- [25] Rose-Petrucci C, Schafer K J and Barty C P J 1997 *Phys. Rev. A* **55** 1182
- [26] Kim K Y, Alexeev I, Parra E and Milchberg H M 2003 *Phys. Rev. Lett.* **90** 023401

Cluster-enhanced generation of multicharged xenon ions in nanosecond laser ionization of xenon beam *

Luo Xiao-Lin¹⁾ Kong Xiang-Lei¹⁾ Niu Dong-Mei¹⁾ Qu Hong-Bo¹⁾ Li Hai-Yang^{1)†}

¹⁾*Anhui Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Hefei 230031, China*

²⁾*Dalian Institute of Chemical Physics, Chinese Academy of Sciences, Dalian 116023, China*

(Received 31 January 2004 ; revised manuscript received 24 May 2004)

Abstract

Multicharged xenon ions with charge up to 20 have been observed in laser ionization of xenon beam by a 25ns Nd :YAG 1064nm laser with a laser intensity of 10^{11} — 10^{12} $\text{W} \cdot \text{cm}^{-2}$. Experimental results indicate that the multicharged ions appeared only when the laser interacted with the middle part of the pulsed beam, and its intensity increases with the increase of the backing pressure of Xe source gas. These indicate that the clusters in the beam is essential to the production of multicharged ions. We also discuss the possible mechanism of the generation of the multicharged ions.

Keywords : xenon , nanosecond laser , multicharged ions , time-of-flight mass spectrometry

PACC : 3280 , 3640

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 20073042) and the National High Technology Development Program of China (Grant Nos. 2002AA649010 and 2001AA640302).

† E-mail : hli@aiofm.ac.cn