飞秒强激光场中大尺寸氩团簇爆炸机理的实验研究*

李邵辉¹²⁾ 王 成¹⁾ 刘建胜¹⁾ 王向欣¹⁾ 李儒新¹⁾ 倪国权^{1)*} 徐至展¹⁾

1(中国科学院上海光学与精密机械研究所强光实验室,上海 201800)

2(汕头大学物理系,汕头 515063)

(2004年3月9日收到2004年5月27日收到修改稿)

利用飞行时间谱 ,研究了在飞秒强激光场 60 fs 2×10^{16} W/cm²)作用下,大尺寸氩原子团簇 Ar,($\bar{n} = 3 \times 10^{3}$ — 3×10^{6} 原子/每团簇)的电离爆炸过程,测量了团簇爆炸所产生的氩离子的平均能量与团簇尺寸(气体背压)的关系,实验发现 随着气体背压的升高(团簇尺寸增大)。温离子的平均能量也相应升高,通过分析两个不同几何尺寸锥形 超声喷嘴所产生团簇爆炸后的离子能量 结合 Hagena 团簇尺寸规律,发现在激光参数保持不变的情况下,离子的平均能量由团簇尺寸唯一确定,分析表明 团簇尺寸在 3×10^{5} 原子/每团簇以下时,团簇膨胀的主要机理是库仑爆炸,随着团簇尺寸的进一步增大,团簇膨胀机理将由库仑爆炸向流体动力学膨胀过渡,在 $3 \times 10^{5} < \bar{n} < 3 \times 10^{6}$ 范围,氩团簇爆炸为两者共同作用的结果。

关键词:原子团簇,飞秒强激光,库仑爆炸,流体动力学膨胀

PACC: 3640, 5250

1. 引 言

啁啾脉冲放大概念的提出和相关技术的发展,出现了所谓的超强(功率密度 > 1×10^{15} W/cm²)超短(脉冲宽度 < 1 ps)激光脉冲.与此同时,光与物质相互作用研究也进入前所未有的全新阶段[1].由有限数目原子(或分子)组成的团簇(clusters) A_n ,是介于原子、分子和大块固体之间的中间物质形态.迄今为止,强激光与团簇相互作用研究最大量的工作集中于惰性气体(Ar, Xe)原子团簇.这种相互作用可以产生波长为0.2-0.3 nm的 x 射线辐射[2] 动能达3 keV 的电子和 1 MeV 的离子[3],以及 40 +的 Xe 离子高电荷态[4].强激光脉冲与氘团簇的相互作用成功实现了台式激光核聚变[5].这些结果展示了强激光-团簇相互作用在相干 x 射线[6]和中子源7]等方面可能的应用前景.

强激光脉冲与原子团簇介质(气体喷流或束流)相互作用相比于单体(monomer)介质有极大增强 原因是单个团簇局域上具有近固体密度.强激光脉冲与固体密度的团簇相互作用有团簇内(intracluster)过程发生[8].这个团簇内过程的概念与团簇内原子

在强激光脉冲的起始阶段发生的光场电离(隧道电 离)相联系.光场电离产生的电子在激光场驱动下运 动 将与团簇内的原子和离子发生碰撞 使原子发生 电子碰撞电离 离子进一步电离 除此之外 还包括 电子-电子,电子和团簇表面的碰撞,电子-离子碰撞 过程中电子对激光能量的逆韧致吸收等等,相互作 用接下来的过程已有一些理论模型对此加以描述. 两个主要模型分别为电离点火——库仑爆炸模型[9] 和等离子体微球流体动力学模型[10],库仑爆炸模型 认为,在激光脉冲的照射下,团簇内的原子被激光电 场电离,电离产生的自由电子在激光驱动下迅速脱 离团簇 使得团簇成为一个带正电的离子球 团簇内 离子电场和激光场的共同作用,使得团簇内离子进 一步电离(电离"点火"),如此反复 最后团簇内自由 电子全部脱离团簇 团簇积累大量的正离子 因正离 子间的强大库仑斥力而发生爆炸 离子的能量来自 团簇爆炸时离子间的库仑势能,流体动力学膨胀模 型认为,当一部分电子脱离团簇,团簇积累了一定的 正电荷后 其产生的势垒将阻止团簇内的部分自由 电子进一步脱离团簇 ,绝大多数的电子被束缚在团 簇内 团簇成为一个球对称的准中性等离子体球.团 簇内的电子通过逆韧致吸收将激光能量转化为自身

^{*}国家重点基础研究专项基金(批准号:G1999075200)和国家自然科学基金(批准号:29890210)资助的课题.

[†] E-mail :gqni@mail.shcnc.ac.cn

的热运动动能,团簇成为高温等离子体,只要团簇尺寸足够大($\overline{n} \ge 1000$,团簇半径 $\ge 2.5 \, \mathrm{nm}$),团簇的膨胀、爆炸过程将主要受流体动力学压力 $P_{\mathrm{hyd}} = n_{\mathrm{e}} kT$ 支配,这里 n_{e} 为团簇内电子密度,kT 为电子热动能,电子能量在团簇膨胀过程中转化为离子的径向动能,

强激光脉冲与团簇相互作用引起团簇爆炸的过 程极为复杂 不仅与团簇的尺寸 还与团簇的组成元 素以及激光参量(包括激光强度、脉冲宽度)都有关 系.迄今有共识的是,由 H,,,D,等原子序数较低元 素组成的团簇 与强激光相互作用发生的都是库仑 爆炸[11,12]. 但是大尺寸惰性气体团簇 ,如 Ar, ,Kr, 和 Xe, 在强激光脉冲作用下的爆炸机理还不甚清楚. 在团簇组成元素的原子序数比较大和大尺寸团簇 (元大于几千)的情况下 ,团簇内原子在激光脉冲起 始阶段光场电离产生的电子数目相当多 因电子脱 离而使得团簇表面累积的正电荷也多,情况变得相 当复杂. 当团簇尺寸达到 104—106 这样的范围,理 论处理更难,实验结果就显得尤其重要,由于团簇爆 炸后有原子离子高电荷态 A^{+Z} 形成 ,而且 A^{+Z} 有宽 广的能量分布 ,所以如果只测量离子能量 ,而不知道 团簇爆炸时原子离子 A^{+Z} 的电荷态 + Z ,爆炸发生 的机理将很难判断.

Lezius 等^[13] 采用磁偏转飞行时间质谱 (MDTOFMS)对强激光脉冲与大尺寸 $Ar_n(\bar{n} \leq 1.8 \times$ 105 ★按照本文对团簇平均尺寸的同一判定标准,该 文中最大 Ar_n 尺寸 \overline{n} 为 5.5×10^4)相互作用产生的 原子离子的电荷态和离子能量进行同时测量,得出 Ar, 团簇在强激光场中的爆炸机理为库仑爆炸的结 论.这个结论已经突破了流体动力学模型的预 言[10].一个感兴趣的问题是,如果 Ar, 团簇的尺寸 进一步增大,情况会如何?流体动力学会不会起作 用 或者当团簇尺寸大到什么程度才会起作用?这 就是本实验的目的,本文报道飞秒强激光脉冲与大 尺寸 Ar_n 团簇($\bar{n} = 3 \times 10^3 - 3 \times 10^6$)相互作用的高 能氩原子离子产生以及离子能量与团簇尺寸 \bar{n} 的相 关性实验结果,根据文献 13 的结果 我们认为团簇 尺寸在小于 3×10⁵ 原子/每团簇时,团簇膨胀的主 要机理是库仑爆炸.随着团簇尺寸的进一步增大,团 簇膨胀机理将由库仑爆炸向流体动力学膨胀过渡, 在 $3 \times 10^5 < \overline{n} < 3 \times 10^6$ 范围 , 氩团簇爆炸为两者共 同作用的结果.

2. 实验装置

实验装置同文献 14]中所述.团簇由高压氩气 通过一超声喷嘴向真空绝热膨胀凝聚而成,团簇尺 寸通过改变气体背压控制,重复频率为 10 Hz,脉宽 约60 fs 啁啾脉冲放大的 Ti sapphire 激光经一 f/4 离 轴抛物面镜聚焦在喷嘴下方约 2 mm 处 ,焦点处的 激光功率密度约 2×10¹⁶ W/cm². 在与团簇喷流和激 光传输垂直方向上,团簇爆炸后产生的高能粒子经 一 skimmer 后,通过一无场的飞行管道,被微通道板 深测, 微通道板后面板接地, 前表面电位为 - 1500 V.在微通道板前方 5 mm 处放置一接地金属栅网, 以保证飞行管道为无场区. 微通道板输出的信号由 - 500 MHz 1 GS/s 数字存储示波器(LeCroy 9350 A) 记录.离子能量由 $E = \frac{1}{2}m(l/t)$ 计算求得 ,其中 , m 为离子质量 ,l 为飞行管道长度 ,t 为离子飞行时 间.能量分布 f(E)由时间飞行质谱信号 f(t)经公 式 f(E) = f(t) dE/dt] 变换求得 寫子的平均能

3. 实验结果与讨论

氫气经喷嘴向真空绝热膨胀产生的团簇平均尺寸 \overline{n} 取决于 Hagena 参数 $\Gamma^{*[15]}$,

其中,d 为喷嘴的喉口直径, α 为喷嘴的半张角, p_0 为气体背压, T_0 为气体的源室温度,k 是由气体种类所决定的冷凝常数,对于氩气,k=1700.参考我们以前的实验结果[16],团簇的具体尺寸,可由文献[17]给出的公式估算:

$$\overline{n} = 100 \left(\frac{\Gamma^*}{1000} \right)^{1.8}$$
 (2)

为了获得更大的团簇尺寸,通常的办法是增大气体背压 P_0 ,但是最终将受限于真空系统的抽运能力.另一个途径是改变喷嘴几何尺寸,在这种情况下,团簇尺寸范围可大为扩展,在团簇气体密度对以团簇尺寸为参量的实验结果不产生明显影响的前提下(实际情况如此),这是一个可行的方法.在实验中我们使用两种喷嘴 A 和 B ,喷嘴 A 的喉径 $d=700\mu$ m, 半张角 $\alpha=3.3^\circ$;喷嘴 B 的喉径 $d=300\mu$ m,

半张角 $\alpha = 5.2^{\circ}$. 在氩气背压 $P_0 = (2-32) \times 10^{5} \, \text{Pa}$ 范围 ,氩团簇的平均尺寸 π 的变化范围为 $3 \times 10^{3} - 3 \times 10^{6}$ 原子/每团簇 ,大大超过文献 13]中的 Ar_n 团 簇平均尺寸上限 5.5×10^{4} .

图 1(a)为使用喷嘴 A,气体背压 $P_0 = 8 \times 10^5 \, Pa$ 的团簇喷流与激光脉冲相互作用得到的氩离子飞行时间谱.图中第一个向下的尖峰为团簇爆炸产生的 x 射线产生的光电子信号和高能电子信号所构成,尖峰后面的宽峰为离子信号.由于 x 射线到达微通道板的时间可以忽略不计,我们以第一个尖峰的起始时刻作为离子信号的时间零点,从而计算出氩离子能量及能谱分布.图 1(b)为与图 1(a)相对应的离子能谱分布.计算得到氩离子平均能量 $\bar{E}=60$ keV.

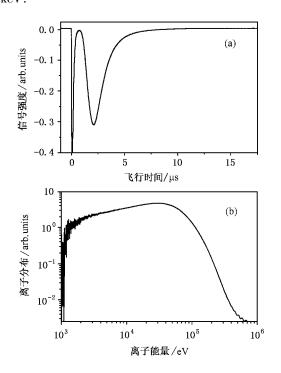


图 1 使用超声喷嘴 A 得到的氩离子飞行时间谱(a)和相应的离子能谱(b),气体背压 $P_0 = 8 \times 10^5 \, \mathrm{Pa}$,激光功率密度 $\sim 2 \times 10^{16} \, \mathrm{W/cm}^2$

图 3 为使用喷嘴 *B*,在其他实验参数与图 1 相同时得到的氩离子飞行时间谱和离子能谱.相比而

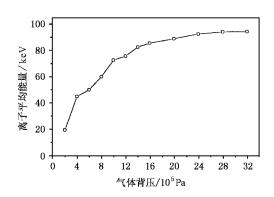


图 2 使用超声喷嘴 A 得到的氩离子平均能量 \overline{E} 随气体背压的变化 激光功率密度 $\sim 2 \times 10^{16}$ W/cm²)

言,虽然激光功率密度和气体背压相同,但后者的低能离子成分明显增多,高能离子成分明显减少,离子的平均能量也下降为 $\bar{E} = 27 \text{ keV}$,说明离子能量并非取决于气体背压。图 4 为使用超声喷嘴 B 所得到离子平均能量随气体背压的变化。

根据 Hagena 参数定义公式(1),对于喷嘴 A 和 B 在相同的气体背压 P_0 下 有 $\Gamma^*(A) \approx 3\Gamma^*(B)$, 即在喷嘴 A 使用气体背压 P_0 下产生的平均团簇尺 寸 $\overline{n}(A)$ 与在喷嘴 B 使用 $3P_0$ 背压下产生的平均团 簇尺寸 $\overline{n}(B)$ 相同.从(2)式可知,在相同气体背压 下 用喷嘴 A 产生的团簇尺寸的是喷嘴 B 产生的团 簇尺寸的 7 倍.更大尺寸团簇与激光脉冲的相互作 用 造成离子的能谱分布更趋向高能端(见图 1(b) 和图 3(b)).在图 2 和图 4 中,虽然气体背压的变化 范围都是(2-32)×10⁵Pa,但是由于喷嘴不同,在同 样气体背压范围产生的团簇尺寸范围不同(图2中 团簇尺寸约为 2×10⁴—3×10⁶ 原子/每团簇 ,图 4中 团簇尺寸约为 3×103-5×105 原子/每团簇),因此 导致离子平均能量随气体背压的变化不同.图2的 曲线显示 随气体背压增大 离子平均能量先按指数 上升,后趋于饱和(约90 keV);由图4的曲线可见, 随气体背压增大 离子平均能量近于线性增长 这些 结果反映了相互作用产生的离子能量与团簇尺寸的 关系,将图2和图4结合在一起,按(1)(2)式得到 团簇尺寸随气体背压 P_0 的变化 然后在图 5 给出氩 团簇与 2×10¹⁶ W/cm² 激光脉冲相互作用产生的离 子平均能量随团簇尺寸的变化.从图 5 可见 在团簇 尺寸交叠(喷嘴 A 和 B)区域 离子能量与团簇尺寸 变化曲线有较好的符合,它一方面说明从(1)(2)式 给出团簇尺寸的估算对于本实验使用的气体背压范 围(2-32)× 10^5 Pa 和喷嘴 A, B 是适合的;同时更重

要的是,它说明在激光参数保持不变的情况下,离子的平均能量由团簇尺寸唯一确定。图 5 表明,氩离子的平均能量随团簇尺寸的变化可以分成两个区域(图中箭头所示位置为两个区域的交接点).在团簇平均尺寸 $\overline{n} \leq 3 \times 10^5$ 范围,氩离子的平均能量 \overline{E} 与团簇尺寸 \overline{n} 近似呈 $\overline{E} \propto \overline{n}^{0.5}$ 的关系。在 $\overline{n} \geq 3 \times 10^5$,随团簇尺寸 \overline{n} 的增大,氩离子平均能量 \overline{E} 增长趋缓。

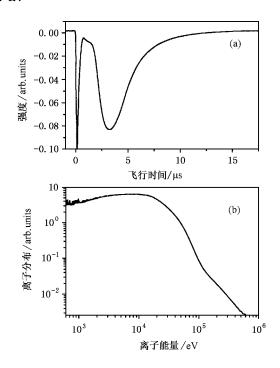


图 3 使用超声喷嘴 B 得到的氫离子飞行时间谱和相应的离子 能谱 其余条件与图 I 相同

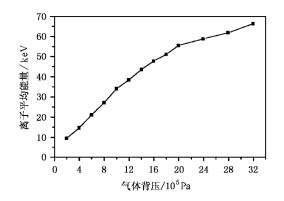
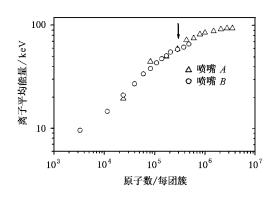


图 4 使用超声喷嘴 B 得到的氩离子平均能量随气体背压的变化 ,其余条件与图 2 相同

前面已经讲过,仅仅从强激光脉冲与团簇相互作用的离子飞行时间谱得到的离子能谱与团簇尺寸的关系是无从对团簇的爆炸机理进行讨论的,本实



验结果的前提是基于 Lezius 等的磁偏转飞行时间质谱数据 13 , 团簇介质同样为氩团簇 . 在文献 13 中, 13 , 团簇平均尺寸直至 $\overline{n}=5.5\times10^4$ (与本文同一判定标准),团簇爆炸都为库仑爆炸 . 这一范围 ,在图 5处于箭头左边区域 . 在这一区域离子能量 \overline{E} 与团簇尺寸的关系为 $\overline{E}\propto\overline{n}^{0.5}$,一直延续到 $\overline{n}\approx3\times10^5$ (箭头所示). 如果相同的 $\overline{E}\propto\overline{n}^\beta$ 关系可以归结为相同的团簇爆炸机理 ,那么 本实验结果可以将 Lezius 等的 13 和报 团簇库仑爆炸尺寸上限推至 $\overline{n}\approx3\times10^5$. 下面的简单分析将会看到 ,在相同的原子离子平均价态 13 和相同的团簇膨胀尺度 13 13 的假定下,这个推论是可行的 .

团簇爆炸后离子的平均能量 Ē 取决于外电离 结束时团簇尺寸 $_{r}$ 和离子的平均价态 $_{,ar{E}}$ $_{\infty}$ $\frac{\overline{n} \quad Z^{-2}}{\overline{ \quad \ }}$ $\propto n^{-2/3}$ 其中 \sqrt{n} 为团簇内的原子数目 , Z 为氩离子 的平均价态.这一结果基于两个假设:1)在给定光强 下、离子的平均价态 Z 不随团簇尺寸有明显变化; 2)在外电离结束,团簇内离化产生的电子完全离开 团簇 团簇成为一正电荷离子球时 团簇的半径与其 初始半径基本呈线性关系,对这两个假定的有效性, 文献 18—21 所进行的团簇爆炸的数值模拟结果提 供了证据.这里得到的离子平均能量与团簇尺寸的 关系与实验结果稍有不同,我们认为,这主要是由于 实验中的团簇尺寸稍大造成. 文献 18-21]中采用 的团簇尺寸参数基本都小于 103 原子/团簇, 当团簇 尺寸继续增大时(如本文实验中的团簇尺寸范围 \bar{n} ≤3×10⁵) 完成外电离过程所需时间也将会随之变 长.团簇爆炸时的团簇尺寸 $_r$ 与其初始尺寸 $_r$ 。之比

值 应当随团簇尺寸的增大而稍有增长. 如果 $\frac{r}{r_0}$ \propto

 $\bar{n}^{1/6}$ 则 $\bar{E} \propto \bar{n}^{0.5}$,即是我们的实验结果.当 $\bar{n} \geqslant 3 \times 10^5$,在团簇内原子离子的平均电荷态几乎不变的假定条件下 ,团簇表面的正电荷积累增大 ,造成更多的电子被束缚在团簇内 ,按照 Ditmire 等的模型 $^{10.1}$,库仑力 $P_{\text{Coul}} \propto r^{-4}$,流体动力学压力 $P_{\text{hyd}} \propto r^{-3}$,随团簇尺寸 r 的增大 ,流体动力学压力渐增 ,对团簇爆炸逐渐起更大的作用 ,直至最后取代库仑斥力而起主要作用.这种变化反映在离子能量与团簇尺寸的关系曲线 ,即是随团簇尺寸 \bar{n} 的增大 ,氩离子平均能量 \bar{E} 增长趋缓 .

4. 结 论

利用飞行时间谱,我们进行了飞秒强激光脉冲与大尺寸氩原子团簇相互作用实验,得到了相互作用产生的氩离子能量与团簇尺寸的关系.实验结果表明,在团簇平均尺寸 $\bar{n} \leq 3 \times 10^5$ 原子时,氩离子的平均能量 $\bar{E} \propto \bar{n}^{0.5}$,团簇解离机理被认为主要是库仑爆炸.在 $\bar{n} \geq 3 \times 10^5$ 离子能量随团簇尺寸增大的增长趋缓,团簇爆炸是库仑斥力和流体动力学力共同作用的结果.

- [1] Perry M D and Mourou G 1994 Science 264 917
- [2] McPherson A , Thompson B D , Borisov A B , Boyer K and Rhodes C K 1994 Nature 370 631
- [3] Ditmire T, Tisch J W G, Spingate E, Mason M B, Hay N, Smith R A, Marangos J P and Hutchinson M H R 1997 Nature 386 54
- [4] Ditmire T, Spingate E, Tisch J W G, Shao Y L, Mason M B, Hay N, Marangos J P and Hutchinson M H R 1998 Phys. Rev. A 57 369
- [5] Ditmire T, Zweiback J, Yanovsky VP, Cowen TE, Hays G and Wharton KB 1999 Nature 398 489
- [6] Brabec T and Krausz F 2000 Rev. Mod. Phys. 72 545
- [7] Ditmire T 2002 Optics and Photonics News May 2002, 29
- [8] McPherson A , Luk T S , Thompson B D , Borisov A B , Shiryaev O B , Chen X , Boyer K and Rhodes C K 1994 Phys . Rev . Lett . 72 1810
- [9] Rose-Petruck C, Schafer K J, Wilson K R and Barty C P J 1997 Phys. Rev. A 55 1182
- [10] Ditmire T , Donnelly T , Robenchik A M , Falcone R W and Perry M D 1996 Phys . Rev . A 53 3379

- [11] Zweibuck J , Cowen T E , Hartley J H , Howell R , Wharton K B , Yanovesky V P , Hays G , Smith R A and Ditmire T 2002 *Phys* . *Plasmas* **9** 3108
- [12] Parks P B, Cowan T E, Stephens R B and Campbell E M 2001 Phys. Rev. A 63 063203
- [13] Lezius M, Dobosz S, Normand D and Schmidt M 1998 Phys. Rev. Lett. 80 261
- [14] 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* . **11** 1229
- [15] Hagena O F and Obert W 1972 J. Chem. Phys. 56 1793
- [16] $\,$ Li S H , Liu B C ,Ni G Q and Xu Z Z 2003 $\,$ Chin . Phys . $\bf 8$ 856
- [17] Dorchies F, Blasco F, Caillaud T, Stevefelt J, Stenz C, Boldarev A S and Gasilov 2003 Phys. Rev. A 68 023201
- [18] Zweibuck J , Smith R A , Cowen T E , Hays G , Wharton K B , Yanovesky V P and Ditmire T 2000 Phys . Rev . Lett . **84** 2634
- [19] Last I and Jortner J 2000 Phys. Rev. A 62 013201
- [20] Last I and Jortner J 2001 Phys. Rev. Lett. 87 033401
- [21] Krainov V P and Roshchupkin A S 2001 J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 34 L297

Experimental study on explosion mechanism of large agron clusters in intense laser pulses *

Liu Jian-Sheng¹) Wang Xiang-Xin¹) Li Ru-Xin¹) Ni Guo-Quan¹) Xu Zhi-Zhan¹)

Li Shao-Hui¹ Wang Cheng¹) Liu Jian-Sheng¹) Wang Xiang-Xin¹) Li Ru-Xin¹) Ni Guo-Quan¹) Xu Zhi-Zhan¹)

Li Shao-Hui¹ Wang Cheng¹) Liu Jian-Sheng¹) Wang Xiang-Xin¹) Li Ru-Xin¹) Ni Guo-Quan¹) Xu Zhi-Zhan¹)

Li Ru-Xin¹) Ni Guo-Quan¹) Xu Zhi-Zhan¹)

(Received 9 March 2004; revised manuscript received 27 May 2004)

Abstract

By using time-of-flight spectroscopy , the ionization and explosion of large argon clusters ($\bar{n} = 3 \times 10^3 - 3 \times 10^6$) in the intense femtosecond pulsed laser field (60 fs 2×10^{16} W/cm²) has been studied , and the dependence of average energy of ions emitted from argon clusters on the gas backing pressure has been measured. By comparing the average ion energies obtained with two different supersonic conical nozzles and considering the Hagena 's scaling law of clusters , we have found that the average ion energy is determined by the cluster size when the laser parameters are kept unchanged. The experimental results indicated that when the cluster size is less than 3×10^5 atoms per cluster , the Coulomb repulsion force is the dominating factor in the expansion mechanism. Beyond this size , for $3 \times 10^5 < \overline{n} < 3 \times 10^6$, the expansion is the result of the combined effect of both the Coulomb repulsion force and the hydrodynamic force , and the latter will play the dominating role for increasing cluster size.

Keywords: atomic clusters, femtosecond intense laser, Coulomb explosion, hydrodynamic expansion

PACC: 3640, 5250

^{*} Project supported by the Special Foundation for State Major Basic Research Program of China (Grant No. G1999075200) and the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 29890210).

[†]E-mail :gqni@mail.shene.ae.en