

低密度大尺寸团簇形成的诊断研究*

杨 明 刘建胜† 蔡 懿 王文涛 王 成 倪国权 李儒新 徐至展

(中国科学院上海光学精密机械研究所强场激光物理国家重点实验室, 上海 201800)

(2007 年 4 月 10 日收到, 2007 年 5 月 22 日收到修改稿)

利用线性啁啾光谱测量法, 研究了背压对团簇尺寸的影响以及团簇形成过程中尺寸的变化过程. 同时发现低密度大尺寸团簇的形成, 可以作为相关实验需要的干净且重要的团簇靶.

关键词: 团簇, 飞秒强激光, 尺寸测量, 线性啁啾光谱散射

PACC: 3640, 5250

1. 引 言

当气体从一个高背压环境通过一个锥形喷嘴被喷射到真空之后, 气体的绝热膨胀过程导致温度急剧降低, 约 10^3 — 10^7 个分子由范德瓦耳斯力作用聚集在一起, 形成一个宏观类似气态而微观类似固态的物质形态, 被称为团簇^[1]束流. 由于其同时具有气体和固体的部分性质, 团簇对强激光与物质相互作用的研究有极大的帮助. 因此, 飞秒强激光与团簇的相互作用一直是一个活跃的领域^[2-4]. 关于团簇源的各种条件不仅对团簇的形成有重要的影响, 而且对于相关领域的研究也有很大的关系. 例如, 近年来提出的团簇激光核聚变中, 制备出大尺寸的团簇是很关键的内容. 为了估算团簇的尺寸大小, Hagena 曾经提出一个经验公式^[5, 6]

$$\Gamma^* = k [d / \tan(\alpha)]^{1.85} p_0 T_0^{-2.29},$$

这里的 d 为喷嘴直径(以 μm 为单位), α 是喷嘴的半张角(当半张角等于 45° 时气体为声速膨胀, 当半张角变小时, 膨胀速度超过声速), p_0 为气体的背压(以 Pa 为单位), T_0 为初始时刻气体的温度, k 是一个依赖于气体种类的常数(Kr 气的 k 值约为 2900, Ar 气为 1700, Ne 气为 180, He 气为 4). 但是由于其只能粗略估算团簇尺寸, 所以不能保证它与所有情况下的团簇尺寸都很好符合, 而且对喷气后团簇

形成的过程无法描述. 人们通常采用瑞利散射法对团簇尺寸进行测量. 因为已知在瑞利散射的情况下, 散射光的强度与散射颗粒直径的六次方成正比^[7], 所以不同颗粒之间的尺寸比例可以通过对应的散射光的强度关系进行确定, 一旦确立一个基准之后, 可以根据瑞利散射公式得到不同散射光强度对应的散射颗粒大小. 但是, 在利用瑞利散射法获得团簇尺寸大小的时候, 也导致了无法避免的误差. 因为散射光的强度不但与散射颗粒的直径有关, 同时也与散射颗粒的密度成正比关系. 当直径不变而密度变化的时候, 散射光强度也将会发生变化. 已经知道改变喷气背压的同时, 团簇尺寸和密度都可能会改变, 因此散射光强度的变化不但表征了团簇尺寸的变化, 同时也包含着密度改变. 瑞利散射法假设了喷气量与背压成正比, 但实际由于背压对气阀的影响, 它们的关系并非完全线性的. 所以当背压在很大范围内变化时, 密度的变化将给尺寸的测量带来很大误差. 而且, 当气体从喷嘴喷出之后, 会在真空中急剧扩散, 密度迅速降低且无法估计, 这将对团簇尺寸随时间变化的研究带来很大的测量误差. 为了避免瑞利散射法所带来的局限, 本文利用线性啁啾光谱测量法, 研究了背压对团簇尺寸的影响以及团簇形成过程中尺寸的变化过程. 同时观察到了低密度大尺寸团簇源的形成, 可以作为相关实验需要的干净且重要的团簇靶.

* 国家重点基础研究发展计划(973)项目(批准号: 2006CB806000)国家自然科学基金(批准号: 10674145)和专项基金(批准号: 10523003)资助的课题.

† E-mail: michaeljs_liu@siom.ac.cn

2. 实 验

实验装置如图 1 所示,氩团簇由高压气瓶经由脉冲气阀和锥形喷嘴向真空中进行超声绝热膨胀而生成,实验所用喷嘴直径为 0.03 mm,喷嘴的半张角为 5° . 喷嘴的喷气频率为 0.5 Hz,每次喷气的开阀时间为 0.5 ms,真空靶室的气压为 10^{-3} Pa. 喷气背压变化范围为 $(1-40) \times 10^5$ Pa. 激光由 10 Hz 钛宝石啁啾脉冲放大激光器输出,光谱宽度约为 20 nm,由光栅对压缩最短可至 50 fs,实验中使用的为 300—500 fs 负啁啾光. 参与相互作用的能量约为 100 mJ. 直径 50 mm 的光斑由焦距为 200 mm 的离轴抛物面镜聚焦至半高宽为 $10 \mu\text{m}$ 的光斑,焦点处的峰值激光强度约为 $2 \times 10^{17}/\text{cm}^2$. 散射光由一个双透镜系统收集、聚焦至光谱仪的狭缝,放大倍率为 1.

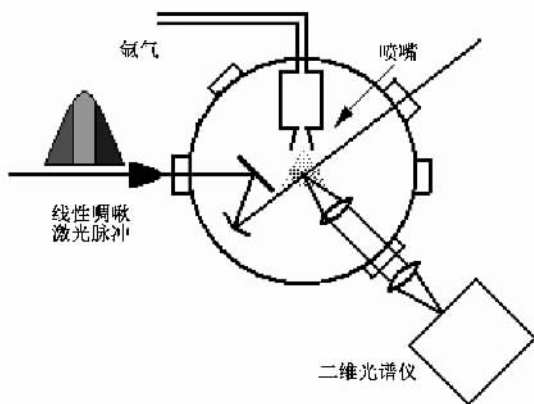


图 1 实验装置图

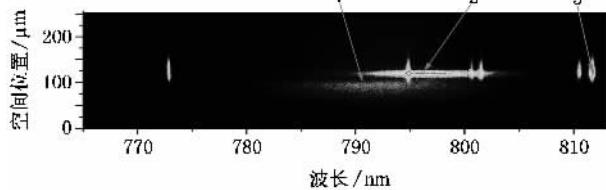


图 2 激光脉宽为 450 fs 的负啁啾脉冲与 10^5 Pa 背压下产生的团簇相互作用的散射光谱图

图 2 所示为实验中测量到的光谱图,此时激光为脉宽 450 fs 的负啁啾光,横向坐标为光谱,纵向坐标为狭缝长度. 由图中可看到光谱主要由三部分构成,分别为 1) 被喷嘴散射的激光, 2) 被团簇散射的激光, 3) 氩离子线谱. 比较分别由喷嘴和团簇散射的激光,可以看到团簇散射光相对于喷嘴散射光在光谱上有红移. 由于喷嘴散射光可以被看作入射激

光光谱,可以知道在激光与团簇相互作用过程中,散射激光存在有红移现象.

将受到强激光加热的团簇简化为一个均匀等离子体球,散射光可看作由膨胀的等离子体球的光散射. 当球半径远小于驱动激光的波长且探测平面距离团簇很远时,可得到散射强度为^[8]

$$I_s(t) = \frac{a^6(t)}{\lambda^4} \left| \frac{\epsilon - 1}{\epsilon + 1} \right|^2 |E(t)|^2,$$

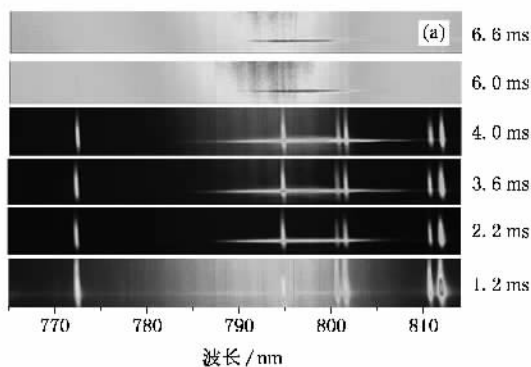
这里 $a(t)$ 是团簇的尺寸, λ 为激光波长, $E(t)$ 为激光强度, ϵ 为等离子体的极化常数. 当团簇被激光激发之后,团簇尺寸膨胀,且其内部的电场强度增大导致 ϵ 增大. 当激光入射之后,由于强激光场作用,团簇中氩原子被光场直接电离,电子被强电磁场拉出团簇,随着电子数增多,碰撞电离占据主导地位^[1,9],由于团簇内部库仑力与流体动力学作用^[10],体积开始缓慢加速膨胀,此时内部电子密度很大,影响散射光的因子 $\left| \frac{\epsilon - 1}{\epsilon + 1} \right|^2$ 变化缓慢. 当团簇内电子密度降低至阈值密度的三倍时,由于加速度在长时间的积累,团簇膨胀速度很快,尺寸迅速增大,团簇内电子密度迅速降低, $\left| \frac{\epsilon - 1}{\epsilon + 1} \right|^2$ 变化对散射截面影响显著. 这些因素,包括团簇尺寸 $a(t)$ 和极化常数 $\left| \frac{\epsilon - 1}{\epsilon + 1} \right|^2$ 的变化都导致了散射截面急剧增加^[11]. 对于负啁啾脉冲,高频率短波长在前,首先入射到团簇上,低频率长波长在后,入射到团簇的时间较晚. 由于团簇的尺寸在整个光入射时间段内是变大的,这就导致高频率短波长时散射颗粒较小,而低频率长波长时散射颗粒较大. 尺寸的变化都将极大地提高散射截面,也就相应地提高散射光的强度. 这样,长波部分的散射激光将因为爆炸膨胀的团簇极大地增强. 在散射光谱上,出现散射光中长波部分强度远大于短波部分,即散射光相对于入射光的红移现象. 因为不同尺寸团簇的膨胀速度不同,散射光的红移量也会因此而不同. 膨胀过程所需时间为^[12]

$$\tau_R = \frac{r_0}{v} \left[\left(\frac{n_0}{3n_c} \right)^{1/3} - 1 \right],$$

其中 r_0 为团簇的初始半径, v 为团簇的膨胀速度, n_0 为团簇内电子的初始密度, n_c 为电子的阈值密度. 虽然由于膨胀速度也随尺寸的增大而增大,无法得出 τ_R 与 r_0 的准确关系,但可以证明,无论是库仑爆炸还是流体动力学爆炸,爆炸时间都是随着尺寸的增加而增加^[1],以往关于团簇与强激光相互作

用的实验研究也证实了这个结论^[11,13]. 所以大尺寸团簇会需要更多的时间来膨胀到足够大, 此时被加强的散射光波长也就更加长, 于是大红移量也就对应着大尺寸的团簇. 同时团簇本身的运动速度相对较小, 在数百飞秒的时间尺度以内可以认为其相对静止, 也就是说在激光入射的过程中团簇密度是不变的. 因此在整个过程中, 团簇密度对散射光强度的影响是不变的, 因此它给光谱红移所带来的影响可以忽略不计, 瑞利散射法受密度影响的局限性得以避免. 且高强度的激光以及爆炸后的大散射系数使得即使在极低的团簇密度情况下也有较强的散射, 对于低密度团簇也有很好的测量效果. 同时氦离子线谱强度正比于离子数量, 又对应于相互作用区域的原子数目. 因为相互作用区域体积相对稳定, 可以认为离子线谱的强度与团簇的密度成正相关关系, 可以在一定程度上作为测量团簇密度的参考.

图 3 所示是相同背压情况下, 不同的激光与喷气之间延迟所对应的的光谱, 此时激光脉冲为 300 fs 负啁啾光, 中心波长 794 nm. 将散射光谱减去无喷气时的激光散射背景, 可得到团簇的散射光谱, 将散射光谱的中心波长与激光中心波长进行比较后, 即



可算出散射光相对于激光的红移量. 当激光入射时间分别落后于气阀喷气时间 1.2, 2.2, 3.6, 4.0, 6.0, 6.6 ms 时, 散射光红移量分别为 1.5, 3.9, 4.1, 4.6, 4.8, 4.9 nm. 当延迟不断增加的时候, 团簇散射光的红移逐渐增大, 即喷气后团簇尺寸随着时间的增加而增加. 同时, 812 nm 处离子线谱强度在开始时由于喷气而增加, 然后持续减小, 即喷气停止以后随着时间的增加, 团簇密度在逐渐减小. 这是 Hagen 经验公式所无法指出的. 气体由喷嘴喷出后, 在真空中迅速逸散开, 密度迅速降低. 在逸散过程中, 开始形成的小尺寸团簇或气体分子碰撞到其他分子或团簇而沉积成大尺寸团簇. 在以往利用瑞利散射法测量的工作中, 团簇的尺寸变化曾被认为是一个单峰过程, 即团簇尺寸先增加, 约在 3 ms 处达到一个最大值, 然后开始降低^[7]. 我们的实验证明, 在此时间尺度以内, 瑞利散射强度增加是因为团簇尺寸增加, 而散射光强度减少实际上是由于团簇的密度降低, 此时团簇的尺寸实际仍然在继续增加. 因此在测量延迟时间很大时团簇尺寸的实验中, 由于气体的逸散效应, 瑞利散射法需要同时配合团簇密度的测量才能得到更加准确的结果.

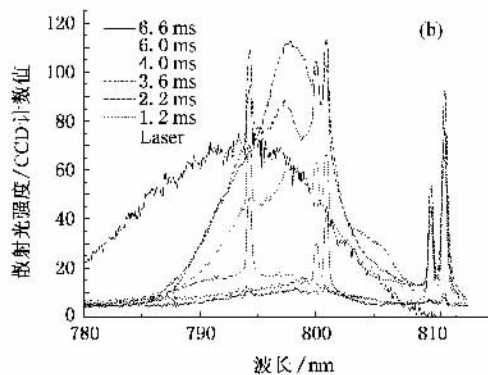


图 3 (a) 10×10^5 Pa 背压下不同延迟的散射光光谱 (b) 减去背景之后得到的 CCD 计数值曲线

图 4 所示是在不同背压情况下, 延迟 2 ms 即团簇刚形成时刻的散射光光谱, 此时激光脉冲为 500 fs 负啁啾光, 中心波长 805 nm. 当背压逐渐由 2×10^5 Pa 逐渐增加到 6×10^5 , 10×10^5 , 20×10^5 , 40×10^5 Pa 时, 同样可以计算出团簇散射光的红移逐渐由几乎为零增大到 2.8, 3.7, 4.6, 5.0 nm, 即在此延迟时间处, 团簇尺寸随着背压的增加而增加. 同时, 827 nm 处离子线谱的强度在增大, 即随着背压的增加, 团簇密度在逐渐增加. 这与 Hagen 公式所表述的团簇尺寸与背压关系是一致的. 由于气体背压增加, 每次气阀喷气时会有更多气体分子喷出, 以至于喷嘴

附近气体分子密度增加. 气体分子有更大概率与其他分子相遇而通过范德瓦耳斯力聚集在一起形成团簇, 从而形成更大尺寸团簇. 这对大尺寸团簇的产生具有重要的参考价值. 但是, 通常团簇与强激光相互作用的理论研究集中在单个团簇在强激光场中的爆炸, 建立的模型也都只考虑空间中只有一个团簇. 而实际上喷嘴喷气的过程中有相当多的气体进入真空并形成团簇, 因此在团簇爆炸的过程中, 它们都会因为互相作用而与单团簇模型不符, 给理论研究带来困难. 尤其当研究大尺寸团簇时, 由于团簇尺寸与密度都随着背压的增加而增加, 团簇之间强

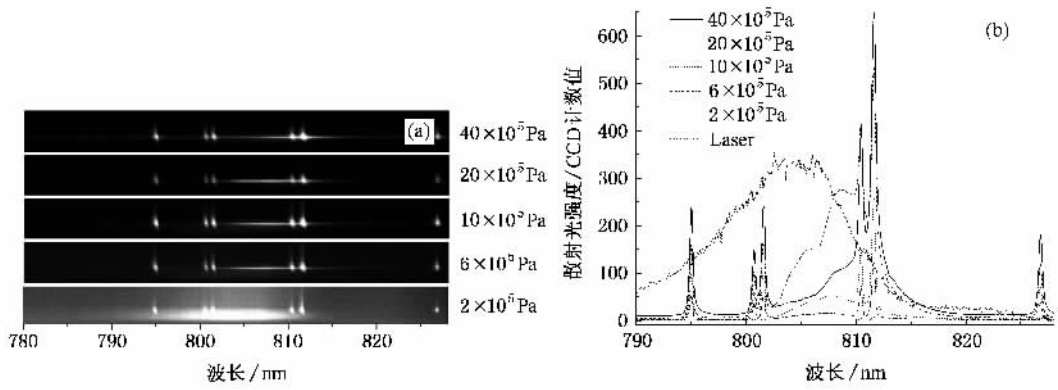


图 4 (a)不同背压下团簇形成初期散射光谱;(b)减去背景之后得到的 CCD 计数值曲线

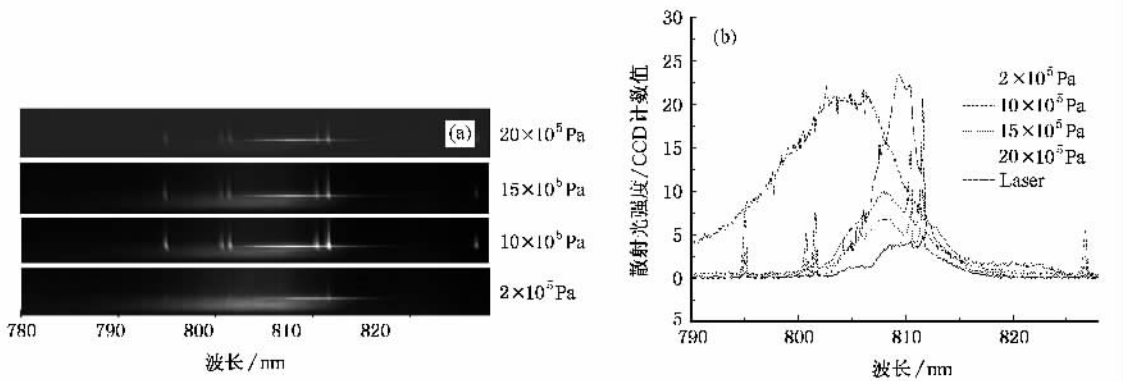


图 5 大延迟(7 ms)情况下不同背压下的散射光谱 (b)减去背景之后得到的 CCD 计数值曲线,其中 20×10^5 Pa 背压的散射光强度缩小到 1/20

烈的相互作用导致实验与单团簇理论模型之间有极大的区别.为了更好的研究大尺寸团簇与强激光的相互作用,需要制造出一种低密度大尺寸的团簇源.

根据图 3 所得到的团簇尺寸与喷气后延迟时间的关系,可以知道根据团簇尺寸及密度随延迟时间不同的变化趋势有可能可以被利用来得到低密度大尺寸团簇.图 5 是分别在 7 ms 的喷气激光延迟的情况下,不同背压下产生的团簇散射光谱,实验条件与图 4 的实验相同.从图 4 中可以看到,在喷嘴刚打开之后,高背压下产生的团簇密度和尺寸都较大,随着时间增加,极低密度情况下的团簇尺寸迅速增加,当延迟时间到达 7 ms 时, 2×10^5 , 10×10^5 , 15×10^5 , 20×10^5 Pa 背压下所测得光谱的红移分别为 6.0, 3.3, 4.8, 5.0 nm. 2×10^5 Pa 背压下产生团簇尺寸最大,且此时 827 nm 处离子线谱几乎不可见,相应波长处的 CCD 计数值与背景噪声相当,可以认为团簇的密度很低;而 20×10^5 Pa 背压下产生的团簇虽然较开始时更大,但相对 2×10^5 Pa 而言较小,且此时 827 nm 处离子线谱强度约为 2×10^5 Pa 背压 2 ms 延

迟情况下相应波长的 150 倍左右,团簇的密度还比较大.因此,在低背压大延迟的情况下,得到的大尺寸低密度的团簇源更为理想.根据 Hegen 的经验公式,可以算出 40×10^5 Pa 背压下在延迟为 2 ms 的情况下得到的团簇尺寸为 4.6×10^5 ,测得散射谱红移量为 5.0 nm,因此 2×10^5 Pa 背压下在延迟为 7 ms 时得到团簇每个包含的 Ar 原子多于 4.6×10^5 ,有可能达到 10^6 量级.

3. 结 论

在团簇形成过程以及尺寸的研究中,实验证明线性喇曼光散射光谱测量法比瑞利散射法具有很大的优越性.尤其对于低密度团簇以及团簇尺寸动态变化的定性分析具有更好的准确性.在对背压和延迟时间与团簇尺寸的关系研究中,我们发现它们具有正相关关系,对以前瑞利散射法所做出的部分结论进行了讨论.同时,在低背压且延迟时间很大的情况下,我们观测到了大尺寸低密度的团簇.在极

低背压下团簇的沉积速度需要进一步研究, 以对团簇的形成机理有更好的了解. 同时使用这种方法进

行定量也需要更多理论与实验分析支持.

- [1] Ditmire T , Donnelly T , Rubenchik A M , Falcone R W , Perry M D 1996 *Phys. Rev. A* **53** 3379
- [2] Liu J S , Li R X , Zhu P P , Xu Z Z , Liu J R 2001 *Phys. Rev. A* **64** 33426
- [3] Islam M R , Saalman U , Rost J M 2006 *Phys. Rev. A* **73** 4
- [4] Martchenko T , Siedschlag C , Zamith S , Muller H G , Vracking M J J 2005 *Phys. Rev. A* **72** 12
- [5] Hagen O F 1992 *Rev. Sci. Instrum.* **63** 2374
- [6] Hagen O F , Obert O 1972 *Chem. Phys.* **56** 1793
- [7] Liu B C , Zhu P P , Li Z H , Ni G Q , Xu Z Z 2002 *Chin. Phys. Lett.* **19** 659
- [8] Born M , Wolf E 1999 *Principles of Optics* (Cambridge : Cambridge University Press)
- [9] Liu J S , Li R X , Zhu P P , Xu Z Z , 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]
- [10] 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]
- [11] Liu J S , Wang C , Liu B C , Shuai B , Wang W T , Cai Y , Li H Y , Ni G Q , Li R X , Xu Z Z 2006 *Phys. Rev. A* **73** 8
- [12] Zweiback J , Ditmire T , Perry M D 1999 *Phys. Rev. A* **59** R3166
- [13] Kim K Y , Alexeev I , Antonsen T M , Gupta A , Kumarappan V , Milchberg H M 2005 *Phys. Rev. A* **71** 4

Diagnosis and investigation of the formation of low density and large sized clusters *

Yang Ming Liu Jian-Sheng[†] Cai Yi Wang Wen-Tao Wang Cheng Ni Guo-Quan Li Ru-Xin Xu Zhi-Zhan
(State Key Laboratory of High Field Laser Physics , Shanghai Institute of Optics and Fine Optics Mechanism ,
Chinese Academy of Sciences , Shanghai 201800 , China)

(Received 10 April 2007 ; revised manuscript received 22 May 2007)

Abstract

The laser-cluster interaction has been an important research field for decades , which would play an important role in understanding the laser-matter interaction. In order to generate satisfactory cluster sources , all factors that would affect the generation of the clusters should be understood. In this paper , linearly chirped spectral scattering is employed to study the size of the clusters during the process. And also , low density and large sized clusters is observed , which could be important clean targets in future experiments.

Keywords : cluster , femtosecond intense laser , size estimation , linearly chirped spectral scattering

PACC : 3640 , 5250

* Project supported by the National Basic Research Program (973) of China (Grant No. 2006CB806000) , the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 10674145) , and the Special Foundation (Grant No. 10523003) .

[†] E-mail : michaeljs-liu@siom.ac.cn