

超短脉冲强激光与团簇的相互作用*

满宝元 张杰

(中国科学院物理研究所光物理开放实验室 北京 100080)

摘要 超短脉冲强激光与团簇的相互作用已被证明能够产生能量高达 MeV 量级的高能离子和中子以及非常强的 X 射线辐射. 文章介绍了原子团簇在超短脉冲强激光场的作用下的加热、电离和膨胀等机制. 对这种相互作用的深入研究可能会对激光核聚变和 X 射线激光等应用领域产生重大影响.

关键词 原子团簇, 激光与团簇的相互作用, 库仑爆炸, 团簇膨胀机制

INTERACTION OF ULTRASHORT LASER PULSES WITH CLUSTERS

MAN Bao-Yuan ZHANG Jie

(Laboratory of Optical Physics, Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100080)

Abstract Very intense X-ray emission, high-energy ions and neutrons with energies up to MeV have been produced in the interaction process of ultrashort laser pulses with atomic clusters. In this paper, the concept of the atomic clusters is introduced and their formation described. The mechanism of the heating, ionization and expansion of clusters by ultrashort laser pulses is then discussed in detail. It is hoped that clusters can play an important role in the fields of laser nuclear fusion and X-ray lasers.

Key words atomic clusters, interaction of laser with clusters, Coulomb explosion, expansion mechanism of clusters

1 引言

自从 50 年代 Becker^[1]等人提出了用超声喷注加冷凝的方法产生原子分子团簇以来,关于团簇的研究已经取得了很大的进展,目前在实验上已经取得了一些十分有意义的结果.对团簇进行研究不仅在化学、冶金、新材料的发现和制备等领域有着不可估量的应用前景,而且为固体物理、表面物理和原子分子物理等基础学科的研究也提供了一种新的强有力的手段.特别是近几年来,超短脉冲激光与团簇相互作用的研究已引起了人们的极大重视.由于此相互作用过程能产生能量高达 MeV 量级的高能离子和中子^[2,3]以及非常强的 X 射线辐射^[4].因此对这种相互作用的研究有望对激光核聚变和 X 射线激光等研究领域产生重大的影响.

2 团簇的基本概念及简介

原子和分子团簇,简称团簇(clusters)是几个乃

至上千个原子、分子或离子通过物理或化学结合力组成相对稳定的微观聚集体,其物理和化学性质随所包含的原子数目而变化.团簇的尺寸是几埃至几百埃的范围,用分子描述显得太大,用小块固体描述又显得太小;许多性质既不同于单个原子分子,又不同于固体或液体;也不能对两者的性质作简单的线性外延和内插得到.因此人们把团簇看作是介于原子分子和宏观固体之间物质结构的新层次,称之为物质的“第五态”.正因为如此,团簇作为各种物质由原子和分子向大块物质转变过程中的特殊物相或过渡态,有助于我们认识大块凝聚物质的某些性质和规律.

在团簇的形成过程中,当团簇包含某些特殊数目的原子时,其结构特别稳定.这些特殊的数目称之为“幻数”(magic numbers),它类似于原子中的电子轨道的壳层结构.当团簇尺寸较小时,每增加一个原子,团簇的结构发生变化,即所谓的“重构”.而当团簇的尺寸达到一定大小时,则变成大块固体的晶体

* 国家自然科学基金和国家“八六三”高技术计划资助项目
1999-08-05 收到初稿,1999-09-07 修回

结构,此时除了表面原子存在弛豫外,增加原子数则不再发生重构,其性质也不再发生显著改变.这个尺寸称之为临界尺寸,或叫做“关节点”.各种不同物质的关节点可能是不同的.有关团簇的性质及结构的进一步介绍请参考文献[5].

人工制备和检测团簇是研究团簇的基础,团簇的基本制备方法有两种:一是用粒子(包括分子、离子、电子和光子)轰击靶物质而溅射出团簇;二是蒸发(热蒸发和激光蒸发)气体原子或使固态靶气化经超声喷嘴后冷却凝聚而成.在方法二中,当高压气体通过喷嘴进入真空时,在绝热膨胀过程中,随机的热运动能量转化成径向的定向运动动能,导致了气体内部温度的下降,结果在室温下,原子或分子之间的相互作用能形成团簇.原子间的引力可归结为范德瓦尔斯力或氢键力.团簇的形成效果主要是由气源的温度和压强、喷嘴的形状和口径大小以及形成的原子间的键的强度来确定[6].

3 强激光场下团簇的电离和加热机制

Ditmire 等人[7]对超短脉冲强激光与团簇相互作用理论进行了较详细的描述.超短脉冲强激光与团簇相互作用过程大致可包括激光能量的吸收、原子的离化和团簇的膨胀 3 个过程.本节首先对前两个过程进行讨论.

3.1 电离机制

在超短脉冲强激光与团簇相互作用过程中,原子的主要电离机制是直接的光电离和碰撞电离.

光电离在激光与团簇作用的初始阶段是最重要的,因为它产生了形成等离子体的初始电子.在激光脉冲的初期,光电离的主要机制是隧穿电离.

碰撞电离来源于电子与离子之间的非弹性碰撞.一旦光电离产生部分电子,由于簇内具有很高的密度,碰撞离化将产生高电荷态.对于普通电子,其速度遵守麦克斯韦分布.另外,团簇中的电子还将在激光电场作用下高速振荡,因而有一振荡速度,这部分激光驱动的电子具有更高的温度(超热电子).利用 Lotz[8]给出的离化几率经验公式,可求出这两种电子产生的离化率,计算结果如图 1 所示.图中给出了 Ar^{8+} 离子由普通电子产生的离化率随着 $k_B T_e/I_p$ 的变化以及超热电子产生的离化率随着 U_p/I_p 的变化关系.其中 I_p 是电离势, U_p 是有质动力势.由图可见,普通电子导致的离化率随着电子温度的增加而逐渐增大,而超热电子导致的离化率则

很快达到最大值,然后随着有质动力势的增加而减小.这是由于当激光很强时会产生场强电离抑制的原因.比较两条曲线可看出,当等离子体的温度与团簇内激光场的有质动力势相当时,这两种离化几率大小比较接近.

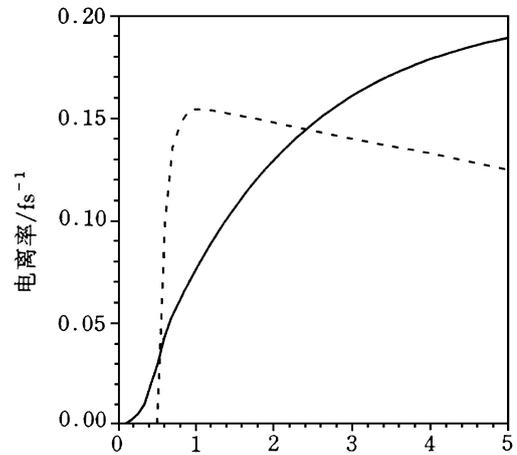


图 1 Ar^{8+} 离子由热电子产生的离化率随着 $k_B T_e/I_p$ 的变化(实线)以及由超热电子产生的离化率随着 U_p/I_p 的变化(虚线)

3.2 团簇的加热机制

把激光与团簇的相互作用看作是激光与一个小的低密度等离子体球之间的相互作用,并假设团簇内无温度梯度,即整个团簇体积内的温度是均匀的,且激光的大部分能量通过逆韧致吸收沉积在团簇内的自由电子上.团簇内单位体积的加热速率为[7]:

$$\frac{\partial u}{\partial t} = \frac{9 \omega^2 \omega_p^2 \nu}{8 \pi} \frac{1}{9 \omega^2 (\omega^2 + \nu^2) + \omega_p^2 (\omega_p^2 - 6 \omega^2)} \cdot |E_0|^2, \quad (1)$$

其中, $\omega_p = \sqrt{4 \pi e^2 n_e / m_e}$ 是等离子体频率.此式说明,加热速率与激光强度 $|E_0|^2$ 和频率 ω 、电子与离子的碰撞频率 ν 、电子密度 n_e 等密切相关.图 2 给出了对应 3 个碰撞频率加热速率随电子密度的变化关系.当团簇球内的电子密度满足 $n_e/n_{\text{crit}} \gg 3$ 时 ($n_{\text{crit}} = m_e \omega^2 / 4 \pi e^2$ 为临界电子密度),由于团簇内部对激光电场能量密度的屏蔽作用,导致团簇内场强比团簇周围真空中的场强弱,降低了加热速率.然而,随着团簇的膨胀,电子密度逐渐降低,当 $n_e/n_{\text{crit}} = 3$ 时,团簇内场强和加热速率相对团簇外有一明显的增强,即团簇内剩余的电子对激光的吸收有一共振峰,产生快速加热,电子温度有一突然上升,此时的电子即为超热电子,此过程前的电子为普通电子,关于两种电子的产生和特性可参阅文献[9].

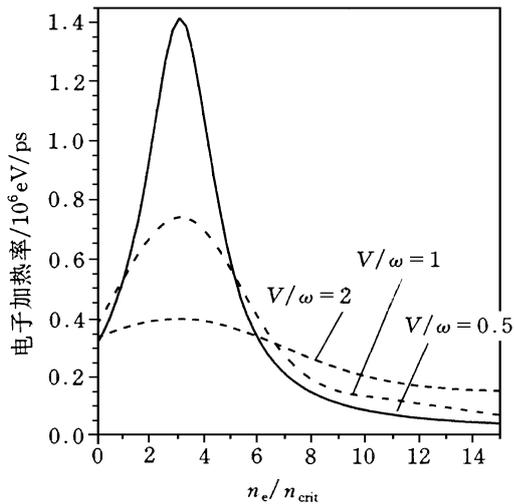


图2 由波长825nm,功率密度为 $10^{16} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$ 的脉冲激光产生的对应3个碰撞频率的加热率随电子密度的变化

4 团簇的膨胀机制

当激光打到团簇上时,主要有两个力作用在团簇上使团簇发生膨胀:第一个是与超热电子相关连的压力,被加热的电子向外膨胀推动冷的重离子一起向外运动;作用于团簇的另一个力来源于团簇上的电荷集结.团簇内最热的电子会有一个足够大的平均自由程以至于它们能够自由地直接流出团簇,而且,如果电子的能量大得足以克服团簇上的电荷集结时,它们将完全离开团簇.如果电荷集结足够大的话,团簇将以类似于分子光电离的方式经历一个库仑爆炸.对于小团簇在强激光场中爆炸可用库仑爆炸模型较好地来描述.但对大的团簇,仅用库仑爆炸模型来描述是很不准确的,还必须考虑电子和离子的运动和场强.

4.1 团簇的库仑爆炸

Last 等人^[10]最近对 Xe 团簇 ($n = 2, 3, 6, 13$) 的库仑爆炸动力学进行了研究.库仑爆炸是一个超快(飞秒)过程,其时间演化过程可用简单的模型解析地表达出来.原子间距离由初始距离 R_0 膨胀到 R 所需要的时间可写成

$$\bar{\tau} = t_0 Z(\xi), \quad (2)$$

其中 t_0 和 $Z(\xi)$ 是与初始距离及原子的电荷有关的参数.由此模型出发可以得到团簇的库仑爆炸时间和各个粒子的终态动能.例如对 Xe 团簇的计算结果如表1所示.由此可见,离子动能正比于电荷 q 的平方,并随着团簇大小的增加而超线性地增加;库仑爆炸时间与电荷成反比,随着团簇大小的增加而

减小.实际上爆炸时间是超短的,对 $q > 2$ 为几十飞秒,对 $q = 2$ 为 100—150fs.

表1 计算的 Xe 团簇的库仑爆炸时间和每个离子的终态动能

q		2	4	6	8	10
τ_c / fs	Xe ₂	155	77.7	51.8	38.8	31.1
	Xe ₃	127	63.5	42.3	31.7	28.8
	Xe ₆	101	50.6	33.8	25.3	20.4
	Xe ₁₃	108	54.2	35.5	25.6	19.9
T_f / eV	Xe ₂	6.7	26.8	60.3	107	167
	Xe ₃	13.4	53.6	121	214	335
	Xe ₆	31.5	126	284	504	788
	Xe ₁₃	55.1	220	516	988	1646

I. Last 等人还用分子动力学模拟对 Xe_n 团簇的库仑爆炸进行了研究.得到如下结论:(1)速度随着团簇的增大而增大,随电荷的增加成线性地增加;(2)爆炸时间随团簇的增大而减小,随电荷数的增加而减小.这些结论与上述解析式的结果是一致的.综合上述结果可以得到,在一定尺度范围内,团簇越大以及产生的电离态越高,库仑爆炸中离子的动能或速度越大,爆炸时间越短,即爆炸越强烈.

4.2 团簇膨胀的动力学模型

对于大的团簇,其膨胀应是库仑力和由于电子运动而产生的流体动力的共同作用的结果.我们可以设想一个膨胀流体球并利用其能量守恒来计算膨胀速率,在膨胀过程中整个球内保持均匀的温度和密度(但在减小)^[11]

$$P_4 \pi r^2 \frac{\partial r}{\partial t} = \frac{\partial K}{\partial t}, \quad (3)$$

这里, P 是球表面上的总压力, K 是膨胀团簇粒子的动能.如果忽略冷离子的压力, P 可分解成两项,分别来源于电子压力(流体动力)和库仑力:

$$P = P_e + P_c$$

关于团簇的膨胀过程, Ditmire^[12] 利用 Runge-Kutta-Felberg 算法对经典的粒子运动方程进行积分的方法对 Ar 团簇的膨胀过程进行了模拟,如图3所示是在4个时刻的瞬态过程.所用的激光脉宽为100fs.在激光到达最大强度($1 \times 10^{15} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$)前的15fs时(大约初次电离后的60fs),团簇开始膨胀,此时产生了427个电子,许多(~100个)仍然被约束在团簇内或团簇的周围,团簇本身基本上各向同性膨胀.当激光到达最大强度($t=0$)时,还有许多电子仍然处于膨胀团簇的附近.20fs后,团簇附近的电子密度已经下降,此时团簇继续近似以各向同性向外膨胀.图4为对应6,13,55个原子的3种团簇产生的电子数(实线表示)以及已逃出团簇体积的电子数(虚线表示)随着时间的变化关系.图4表明,团簇电离的时间和程度随着团簇的增大而增加;电子逃

出团簇体积的时间也随着团簇的增大而增加.在最小的6个原子的团簇中,一旦发生电离,大多数电子很快跑出团簇,然而对于55个原子的团簇,只有在激光脉冲的后期大部分电子才逃出团簇.原因在于,在激光脉冲的初始阶段,激光场产生的隧穿电离是

主要的电离机制,产生的部分电子在激光场的作用下在脉冲的后期通过碰撞继续电离团簇.由于大的团簇具有更大的空间电荷力,能够更长时间地将电子约束在团簇内,使碰撞电离的持续时间变长,从而导致整个电离时间变长,电离程度增加.

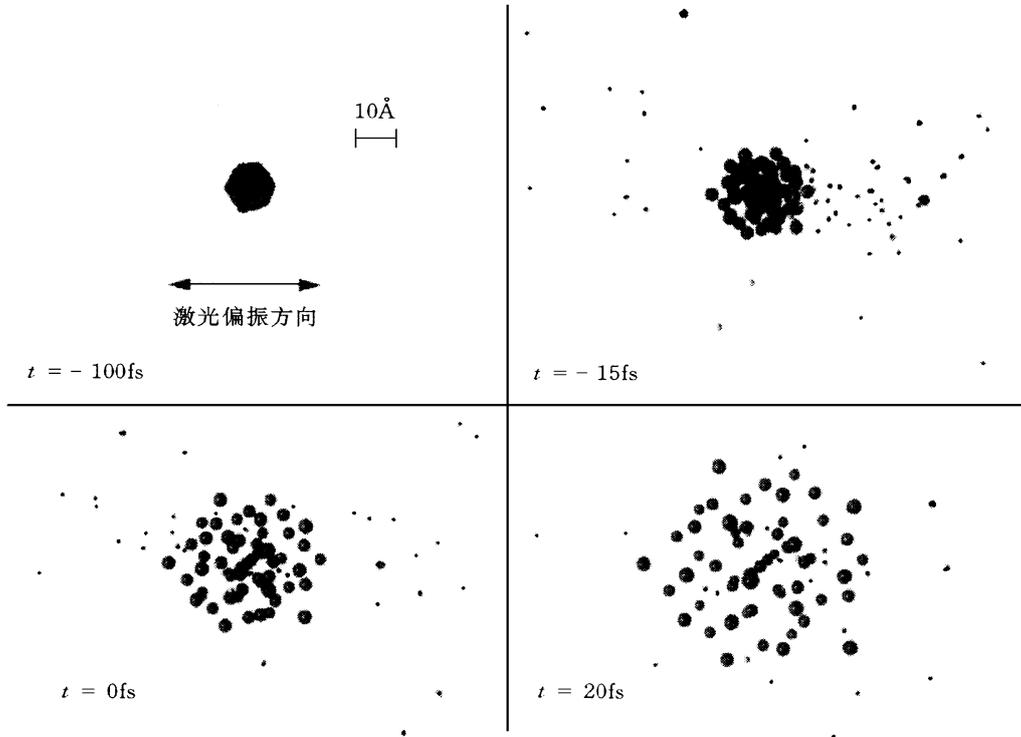


图3 一个含有55个原子的Ar团簇在功率密度为 $1 \times 10^{15} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$ 的激光场作用下在4个时刻的瞬态过程.深色的小球表示离子,浅色的小点表示电子

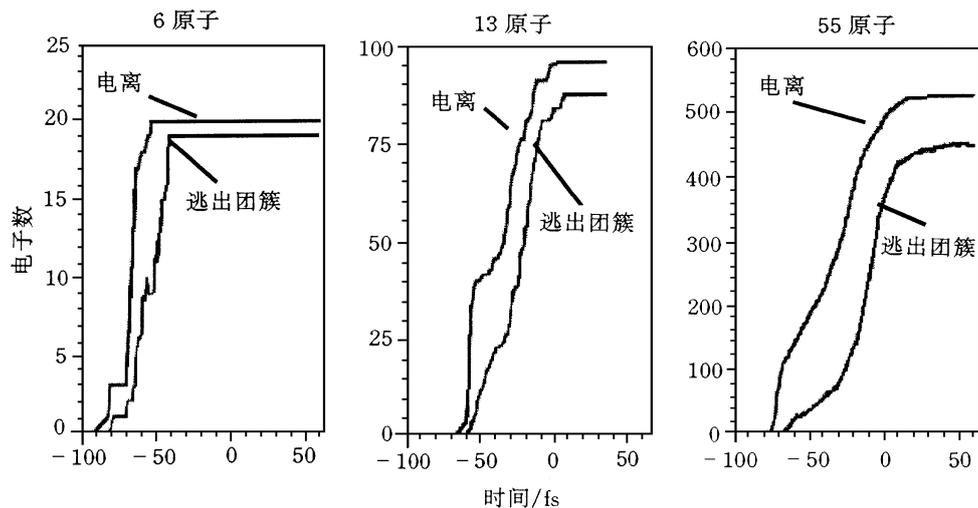


图4 对应6,13,55个原子的3种团簇产生的电子数(实线表示)以及已逃出团簇体积的电子数(虚线表示)随着时间的变化

5 台式激光核聚变和台式 X 射线激光的希望

5.1 台式激光核聚变装置

人类正在面临地球上化石能源枯竭的威胁,作为理想的替代能源——受控核聚变是人类奋力追求的目标.惯性约束聚变(ICF)给人们带来了很大希望.近几年得到了科学家们的极大重视.目前激光核聚变研究受限于低重复率的巨型国家激光设施,如 NOVA 激光(10 路激光的基频总输出能量为 80—100kJ).建造这样的激光装置需要很高费用.最近的一些研究已经表明,超短脉冲激光能够激发大的团簇,产生超热微等离子体,释放出动能高达 1 MeV 的带电离子^[7],这个能量比小分子的库仑爆炸产生的离子能量高 4 个量级,这为产生核聚变所需要的具有足够平均离子能的等离子体提供了可能. Dimitire 等人^[3]最近的研究向实现台式激光核聚变迈进了一大步.他们利用一台基于啁啾脉冲放大技术的桌面激光器产生了脉宽为 35fs、波长为 820nm、输出能量为 120 mJ 的激光脉冲,该激光束被聚焦在氙气喷流的出射口处.喷射氙气被低温冷却到 -170℃,通过绝热膨胀产生了大的氙团簇.用瑞利散射测量技术估计平均团簇的直径大约为 50 Å.为了确定激光能量对氙团簇的耦合系数,他们测量了激光脉冲在氙气喷流内的吸收系数.结果表明,当气体最初被冷却到 -170℃,背气压超过 30atm 时,激光能量的 90% 被淀积在等离子体中.而在纯氙气时(在 20℃ 形成喷射的情况,此时无团簇形成),激光能量中只有很小部分(<5%)被等离子体所吸收.这充分地说明了在加热氙等离子体过程中,激光与团簇相互作用的重要性.利用光学相干测量,他们得到了等离子体中平均氙原子密度是 $1.5 \times 10^{19} \text{cm}^{-3}$,再与吸收系数结合起来对离子能量进行了估计.结果说明,平均氙离子能量至少是 2.5keV.具有这样能量的离子足以驱动核聚变 $\text{D} + \text{D} \rightarrow \text{He}^3 + \text{n}$ 事件的发生,从而获得能量为 2.45 MeV 的高能中子.从实验上,他们利用中子探测器探测到了大量的能量为 MeV 的粒子,在距等离子体 3 个位置处探测到的粒子的飞行时间谱(TOF)均在对应中子能量为 2.45 MeV 的位置有一明显的峰.这充分证实了在团簇等离子体中 DD 聚变反应的存在.而且实验还证实,当喷流冷却温度高于 -120℃ 时,没有观察到中子,在这个温度用瑞利散射不再看到大的团簇的形

成.这些结果说明,大的氙团簇是导致 DD 聚变的直接因素.在最佳的实验条件下,他们获得了每焦耳入射能量产生 10^5 聚变中子的效率,这个效率接近于大规模激光驱动核聚变实验的值.这些研究结果说明,超短脉冲激光与团簇的相互作用研究为实现台式激光核聚变带来了希望.

5.2 台式 X 射线激光装置

X 射线激光是具有分子分辨率成像系统的理想光源.X 射线激光研究的一个重要目标是在尽可能短的波长上实现具有饱和输出能量、相干性好的激光辐射^[13,14].要产生这个波段范围的 X 射线激光,也需要大型的激光装置,这为该波段 X 射线激光的应用带来了困难.目前的 X 射线激光的增益介质大都采用包含大量电子跃迁能量处于 X 射线波段的高次离化的离子的高温高密度的等离子体.由于超短脉冲激光与原子团簇的相互作用能够产生由很高能量的电子和离子组成的等离子体,因此,这样的等离子体具有辐射 X 射线的的能力,并有可能成为 X 射线激光的增益介质.近几年已有一些研究者^[15,16]用超短脉冲激光照射 Xe, Ar, Kr 等惰性气体喷流,观察到了非常强的 X 射线辐射.研究表明,团簇兼有气体靶所固有的均匀性和固体靶所固有的高密度等优点,避免了固体靶所固有的密度梯度和高的热传导等缺点,因此其对激光的吸收率甚至比固体靶还要高.即使用小规模短脉冲激光加热团簇所产生的等离子体也能够提供一种强的 X 射线辐射源,获得较高的 X 射线转化效率.这给台式 X 射线激光的实现带来了很大的希望. Dimitire 等人^[15]用脉宽 140fs、波长 825nm、功率密度为 $10^{14} - 10^{17} \text{W} \cdot \text{cm}^{-2}$ 的激光脉冲辐照 Kr, Ar, N₂ 等气体团簇,对该过程产生的 X 射线辐射进行了时间分辨研究.他们首先用散射测量技术证实,元素质量较大的 Ar 和 Kr 气体喷流能形成大的团簇,而较轻的 He 和 Ne 气体没有团簇的形成.而且,用少量的(1%—10%)易形成大团簇的 Kr, Ar, N₂ 等气体与本身不易形成团簇的 He 气混合能够强烈地增强重元素团簇对激光的吸收,结果使 He 气体原子的 Ly α 辐射信号在最大强度处增加了近两个量级. Ly α 辐射信号大幅度地增强是由于掺杂气体团簇对激光能量的有效吸收而形成的超热等离子体造成的.这种来源于由混合气体形成的等离子体的辐射能持续长达 150ns 的时间.最近, Mcpherson^[4]和 Borisov 等人^[17]在研究超短脉冲激光与 Xe 团簇的相互作用时,观察到了波长短于 2.8 Å 的强 X 射线辐射,他们把这

种短波长的 X 射线辐射归于所谓的“空心”原子。处于强场中的团簇原子,许多内壳层电子被打掉,外壳层电子向内壳层跃迁时可以产生波长很短的辐射。他们的研究为获得更短波长的 X 射线激光提供了可能。

超短脉冲激光与固体密度等离子体相互作用产生的高次谐波具有很高的相干特性,是一种极有希望的新兴光源,已成为 X 射线激光的有力竞争对手。最近的一些研究已经证明,超短脉冲激光与团簇的相互作用能够产生具有高能量转化效率的高次谐波。与单原子气体比较,团簇能够产生更高阶的谐波,对于给定的谐波阶数具有更高的输出强度,谐波信号对激光强度具有更强的非线性依赖性,从而通过高次谐波产生短波长的相干辐射。

6 结束语

超短脉冲激光与团簇相互作用研究是近几年内的事,目前还处于研究的初级阶段,所得到的实验结果并不多。现在已提出的理论模型还不能完全很好地来描述这个超快的相互作用过程,而且关于相互作用机制的解释还很不一致,甚至对产生 X 射线辐射机制的解释,不同研究小组之间也明显存在着矛盾。我们提到的上述一些模型含有许多假设和近似,具有一定的局限性。因此,为了把该研究尽早地应用到激光核聚变和 X 射线激光等实际中,更深入的实

验和理论研究是必需的。

致谢 感谢李英骏、林景全博士的有益讨论。

参 考 文 献

- [1] Becker E W. *Z. Phys.*, 1956, 146: 333—338
- [2] Ditmire T, Tisch J W G, Springate E *et al.* *Nature*, 1997, 386: 54—56
- [3] Ditmire T, Zweiback J, Yanovsky V P *et al.* *Nature*, 1999, 398: 489—492
- [4] Mcpherson A, Luk T S *et al.* *Nature*, 1994, 370: 631—634
- [5] 王广厚等. *物理学进展*, 1987, 7: 1—81 [WANG Guang Hou *et al.* *Progress in Physics*, 1987, 7: 1—81 (in Chinese)]
- [6] Hagena O F, Obert W. J. *Chem. Phys.*, 1972, 56: 1793—1082
- [7] Ditmire T, Donnelly T, Rubenchik A M *et al.* *Phys. Rev. A*, 1996, 53: 3379—3402
- [8] Lotz W. *Z Phys.*, 1968, 216: 241—247
- [9] Shao Y L, Ditmire T *et al.* *Phys. Rev. Lett.*, 1996, 77: 3343—3346
- [10] Last I, Schek I, Jortner J. J. *Chem. Phys.*, 1997, 107: 6685—6692
- [11] Haught A F, Polk D H. *Phys. Fluids*, 1970, 13: 2825—2841
- [12] Ditmire T *et al.* *Phys. Rev. A*, 1998, 57: R4094—R4097
- [13] Zhang J *et al.* *Science*, 1997, 276: 1098—1100
- [14] Zhang J *et al.* *Phys. Rev. Lett.*, 1997, 78: 3856—3859
- [15] Ditmire T *et al.* *Phys. Rev. Lett.*, 1995, 75: 3122—3125
- [16] Kondo K, Borisov A B *et al.* *J. Phys. B: Mol. Opt. Phys.*, 1997, 30: 2707—2716
- [17] Borisov A B *et al.* *J. Phys. B: Mol. Opt. Phys.* 1996, 29: L43—L50

评述文章扫描

- 1 **The road to the neutrino**(Allan Franklin. *Phys. Today*, 2000, No. 2)
- 2 **Negative pressures and cavitation in liquid helium**(Humphrey Maris, Sebastien Balibar. *Phys. Today*, 2000, No. 2)
- 3 **Physicists triumph at ‘Guess My Number’**(Andrew M Steane, Wim van Dam. *Phys. Today*, 2000, No. 2)
- 4 **Creating and characterizing individual molecular bonds with a scanning tunneling microscope**(Charles Day. *Phys. Today*, 2000, No. 2)
- 5 **Can physics save fish stocks?**(Kjartan G Magnússon. *Phys. World*, 2000, No. 2)
- 6 **Novel crystals from pressured metals**(Roger Cowley. *Phys. World*, 2000, No. 2)
- 7 **Experimental attosecond science makes its debut**(Paul Corkum. *Phys. World*, 2000, No. 2)
- 8 **Simplicity works for superfluid helium**(Roger Bowley. *Phys. World*, 2000, No. 2)
- 9 **Pulsar may be strange star**(Deepto Chakrabarty. *Phys. World*, 2000, No. 2)
- 10 **The underdoped phase of cuprate superconductors**(Bertram Batlogg, Chandra M Varma. *Phys. World*, 2000, No. 2)
- 11 **Silicon germanium makes its mark**(Douglas Paul. *Phys. World*, 2000, No. 2)
- 12 反斯托克斯荧光制冷的研究进展与综述(秦伟平. *物理学进展*, 2000 年第 2 期)
- 13 光折变聚合物材料的研究进展(袁保红等. *物理学进展*, 2000 年第 2 期)
- 14 电流变和磁流变液体(陶荣甲. *物理学进展*, 2000 年第 2 期)