

文章编号: 0258-7025(2004)08-0922-05

# 飞秒强激光脉冲与 H 原子团簇相互作用的 库仑爆炸过程模拟

夏 勇, 刘建胜, 倪国权, 徐至展

(中国科学院上海光学精密机械研究所强光光学重点实验室, 上海 201800)

**摘要** 运用经典粒子动力学模拟方法,研究了飞秒强激光脉冲( $10^{15} \sim 10^{16}$  W/cm<sup>2</sup>)与正二十面体构型氢原子团簇 H<sub>13</sub>, H<sub>55</sub>, H<sub>147</sub> 和 H<sub>309</sub> 的相互作用。通过模拟分析团簇的膨胀过程,发现团簇的膨胀是各向同性的,团簇的膨胀尺度  $R(t)/R(0)$  随团簇尺寸的增大而减小,即团簇尺寸愈大,与激光相互作用后膨胀碎解过程愈慢。研究表明,随着团簇中原子数目的增多,团簇库仑爆炸后所产生的离子的动能相应增大。由于正二十面体的对称壳层结构,离子动能分布具有尖峰结构。团簇库仑爆炸后离子的最大动能  $E_{\max}$  与团簇库仑爆炸前的尺寸的平方成正比。且  $E_{\max}$  随激光光强  $I$  增加而增大。但是当  $I$  增大到一定值  $I_s$  时,  $E_{\max}$  将出现饱和,这是因为  $I$  的增强已经不再改变团簇内原子的电离状态。随着团簇尺寸的增大,激光光强饱和值和离子能量将会继续提高。

**关键词** 非线性光学;飞秒强激光;团簇;库仑爆炸

中图分类号 O 437 文献标识码 A

## 3-D Simulations on Coulomb Explosions of Hydrogen Atomic Clusters Irradiated by an Intense Femtosecond Laser Pulse

XIA Yong, LIU Jian-sheng, NI Guo-quan, XU Zhi-zhan

(Laboratory for High Intensity Optics, Shanghai Institute of Optics  
and Fine Mechanics, The Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China)

**Abstract** Using classic particle dynamics simulations, the interaction process between an intense femtosecond laser pulse ( $10^{15} \sim 10^{16}$  W/cm<sup>2</sup>) and icosahedral hydrogen atomic clusters H<sub>13</sub>, H<sub>55</sub>, H<sub>147</sub> and H<sub>309</sub> has been studied. The expansion process of the clusters during and after laser irradiation has been examined, showing that the expansion of clusters is isotropic. The expansion scale  $R(t)/R(0)$  decreases with the increasing cluster size. This conclusion means that if the cluster size becomes larger, the process of expansion and explosion becomes slower. It is revealed that with an increase in the number of atoms in the cluster, the kinetic energy of ions generated in the Coulomb explosion of the ionized hydrogen clusters increases. Because of the symmetrical shell structure of the icosahedron, the distribution of the ionic kinetic energy features some pinnacles. It is also found that the calculated maximal kinetic energy  $E_{\max}$  of the produced ions from Coulomb explosion of H<sub>n</sub> clusters is roughly proportional to the square of the original cluster size. If laser intensity  $I$  increases, the maximal kinetic energy  $E_{\max}$  of the produced ions also increases. But after  $I$  reaches a certain value  $I_s$ , the maximal kinetic energy  $E_{\max}$  of the produced ions no longer increases, i. e., it will be saturated. The reason is that the atoms in the cluster have been fully ionized, so the increase of laser intensity  $I$  doesn't change the ionized state of the atoms in the cluster. It is concluded that with an increase in the cluster size, the kinetic energies of the produced ions and the laser saturation intensity increase too.

**Key words** nonlinear optics; intense femtosecond laser pulse; cluster; Coulomb explosion

收稿日期:2003-05-22;收到修改稿日期:2003-06-18

基金项目:国家 973 计划(G1999075200)资助项目。

作者简介:夏 勇(1978—),男,江苏人,中国科学院上海光学精密机械研究所硕士研究生,主要从事强场团簇物理研究。

E-mail: yxia@siom. ac. cn

## 1 引 言

近年来,飞秒强激光脉冲与团簇相互作用的研究成为一个热点。强激光与团簇的相互作用大大不同于强激光与气体和固体的相互作用。原子气体对激光能量的吸收效率很低,这限制了其作为 X 射线源和在其他一些方面的应用;固体对激光能量的吸收效率较高,但是固体靶的衬底会将固体工作介质吸收的激光热量快速传走,使产生的激光等离子体的温度降低。而团簇则兼有气体靶和固体靶的优点<sup>[1]</sup>,单个团簇个体的密度如同固体,而团簇喷流(或束流)介质的平均密度很低,和气体可比。同时,经由团簇这座连接原子、分子和固体的桥梁,可以获得强激光与物质相互作用的完整图像。

团簇一般由高压气体经喷嘴向真空超声绝热膨胀,冷却引起超饱和导致原子成核而形成。由于团簇靶的体效应,团簇与飞秒强激光的相互作用和单个原子或分子与飞秒强激光相互作用完全不同,引起高电荷态<sup>[2~5]</sup>,兆电子伏特离子<sup>[3,4]</sup>和千电子伏特电子产生<sup>[6]</sup>,以及超短 X 射线辐射<sup>[2]</sup>等一系列新现象。1999 年,Ditmire 等用 D<sub>2</sub> 团簇与飞秒强激光脉冲相互作用,实现了“台式聚变”<sup>[7]</sup>。

目前已建立了几种理论模型来解释团簇与强激光的相互作用。等离子体微球模型<sup>[1,3,4]</sup>把团簇处理为等离子体微球,其满足流体动力学方程。等离子体通过激光驱动的电子与离子的碰撞(或逆韧致辐射)被加热,接着发生库仑爆炸。这种模型认为团簇中原子的电离主要有碰撞电离和隧道电离。另一种为“电离点火”模型<sup>[8]</sup>,可用蒙特卡罗方法模拟。这种模型认为团簇中原子增强的域上电离由激光场和邻近离子的库仑场共同作用而成。当激光场足够强时,库仑场被压低,原子的电子被快速剥离。最近,又提出一种相干电子运动模型<sup>[9]</sup>。这种模型认为团簇中原子高电荷态由相干运动的电子的碰撞电离导致。

下面将根据经典粒子动力学理论,模拟氢原子团簇与飞秒强激光相互作用,给出团簇库仑爆炸后的粒子动能分布、团簇的膨胀过程以及离子最大动能与团簇尺寸和激光光强的关系。

## 2 理论模型

对于由 van der Waals 力结合的原子团簇,理论上一般用短程势(如 Lennard-Jones 势)来描述。通

常情况下这种团簇,如惰性气体原子团簇的稳定几何构型为闭壳层正二十面体结构。包含  $K$  层的二十面体结构团簇拥有的原子数为

$$N_K = (10K^3 + 15K^2 + 11K + 3)/3 \quad (1)$$

如当  $K = 1, 2, 3, 4$  时,  $N_K$  分别为 13, 55, 147 和 309。下面将重点研究在正二十面体框架下 H<sub>13</sub>, H<sub>55</sub>, H<sub>147</sub>, H<sub>309</sub> 与飞秒强激光相互作用的情况。考虑到实际的团簇喷流中团簇尺寸有宽广的分布,且对某一尺寸的团簇存在大量的异构体,相互作用过程之复杂使计算难以进行。这里假定氢原子团簇取多层正二十面体构型可以简化计算,得到飞秒强激光脉冲与氢原子团簇相互作用过程的主要结论。当飞秒强激光辐照惰性气体团簇如 Ar<sub>*n*</sub>, Kr<sub>*n*</sub> 和 Xe<sub>*n*</sub> 时,在激光脉冲的初始阶段,团簇原子的电离机制主要是由光场导致的隧道电离。当一定数目的电子电离后,这些电子在激光场驱动下碰撞其他原子使其电离,这时碰撞电离也成为一种重要的电离机制<sup>[1]</sup>。然而,对于 H 原子,它只有一个电子,再加上本文研究的 H 原子团簇的尺寸较小,碰撞电离机制很小,可以被忽略。

对氢原子的每一个原子核和电子,它们除受到库仑力之外,还受到光场的作用。运用牛顿运动方程,建立一个 2 倍于团簇原子数的方程组

$$m_i \frac{d\vec{v}_i(\vec{r}_i, t)}{dt} = \sum_{j, j \neq i} \frac{q_i q_j}{4\pi\epsilon_0 |\vec{r}_i - \vec{r}_j|^2} \times \frac{\vec{r}_i - \vec{r}_j}{|\vec{r}_i - \vec{r}_j|} + e\nabla\phi(\vec{r}_i, t) \quad (2)$$

其中  $\vec{r}_i$  和  $\vec{r}_j$  为粒子(包括离子和电子)的位移,  $q_i$  和  $q_j$  为粒子的电荷,  $m_i$  为粒子的质量,  $\epsilon_0$  为介电常数。 $\phi$  为光场引起的电势。采用偶极近似,有

$$\phi(\vec{r}, t) = \vec{r} \cdot \vec{F}(t) \quad (3)$$

$\vec{F}(t)$  为入射光波的电场。对  $\vec{F}(t)$ , 取为 sin 函数和 Gaussian 线型的乘积

$$\vec{F}(t) = \vec{F}_0 \sin(\omega t) \exp\left(-\frac{\alpha t^2}{\Delta t^2}\right) \quad (4)$$

$F_0$  和  $\omega$  分别为光场的振幅和频率,而  $\alpha = 2\ln 2 \approx 1.386$ 。为了消除库仑场的奇异性,采用软核模型,引入一非零的软化参数  $a$ , 方程组(2) 改写为

$$m_i \frac{d\vec{v}_i(\vec{r}_i, t)}{dt} = \sum_{j, j \neq i} \frac{q_i q_j (\vec{r}_i - \vec{r}_j)}{4\pi\epsilon_0 (|\vec{r}_i - \vec{r}_j|^2 + a)^{3/2}} + e\nabla\phi(\vec{r}_i, t) \quad (5)$$

$a$  取为 0.0005 nm<sup>2</sup>。采用 Runge-Kutta 法解方程组(5)。为了提高计算的精度,采用了六阶 Runge-Kutta 法。

初始时,团簇中 H 原子在稳定状态,电子绕各

自原子核旋转。相邻原子间的距离取为 0.44 nm, 比实际数值偏大。当一束激光脉冲入射后, 团簇中电子和原子核都受到激光脉冲光场的作用, 由于电子的质量较小, 电子光场电离之后, 它的加速度比原子核大很多, 最终它们将飞离团簇。团簇中只剩下带正电的原子核。团簇在强大的库仑斥力的作用下, 发生“库仑爆炸”。原子核飞溅开来, 核与核之间的库仑势转化为离子的动能。

### 3 计算结果和分析

图 1 为  $H_{147}$  与波长 814 nm, 峰值功率密度  $1.4 \times 10^{16} \text{ W/cm}^2$ , 半高全宽 (FWHM) 25 fs 的激光脉冲作用的四幅快照 (大的黑点表示离子, 小的钻石样点表示电子)。在激光脉冲峰值前的 12.5 fs, 团簇开始膨胀。图 1 清晰地表示出团簇周围有许多电离的电子。这时团簇已经开始膨胀, 膨胀是各向同性的。在激光脉冲的峰值  $t = 0$  处, 大部分电子已经飞离了团簇, 团簇周围的电子密度下降很多。在  $t = 12.5 \text{ fs}$  处, 团簇已经膨胀到一定程度, 其膨胀基本上仍然为各向同性。

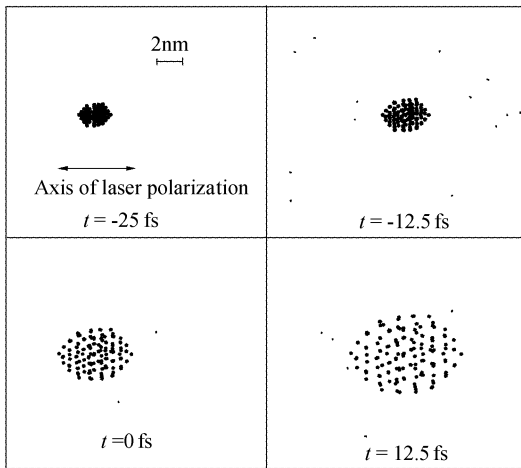


图 1  $H_{147}$  与峰值光强为  $1.4 \times 10^{16} \text{ W/cm}^2$  的激光脉冲相互作用的四幅快照

大的黑点表示离子, 小的钻石样点表示电子

Fig. 1 Four snapshots of a 147-atom hydrogen cluster at different times in the laser field with a peak intensity of  $1.4 \times 10^{16} \text{ W/cm}^2$

Ions are shown as the large dark particles, and the electrons are shown as the small diamond particles

为定量描述团簇的膨胀, 引入团簇的有效半径  $R_{\text{eff}}$  这一概念,  $R_{\text{eff}}$  定义为团簇所有原子的位移的均方根

$$R_{\text{eff}} = \sqrt{\frac{1}{n} \sum_{i=1}^n R_i^2} \quad (6)$$

$R_i$  为第  $i$  个原子距离初始时刻团簇中心的位移。 $R(0)$  为初始时刻  $R_{\text{eff}}$  的值。图 2 为团簇膨胀的定量描述。由图 2 可见, 开始时由于库仑爆炸团簇膨胀得比较迅速, 大约 40 fs 后团簇膨胀为原来线径的十几倍。这时离子间的距离已经比较大, 它们之间的库仑斥力变得很小, 离子开始作匀速运动。可以取一个合适的  $R(t)/R(0)$  的值, 将其定义为团簇已经解体。为了让团簇在解体之前可以吸收尽可能多的激光能量, 可根据图 2 来选择合适的激光脉宽。图 2 的另一个特点是随着团簇的尺寸的增大, 它的膨胀尺度  $R(t)/R(0)$  随之减小。

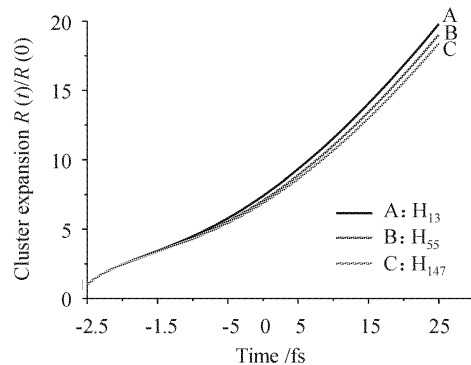


图 2 团簇的膨胀过程

$t = 0$  时刻激光脉冲达到峰值。激光脉冲参数:

$I = 1.4 \times 10^{16} \text{ W/cm}^2$ ,  $\lambda = 814 \text{ nm}$ ,  $\Delta t = 25 \text{ fs}$

Fig. 2 Expanding process of the clusters during the laser pulse

at  $t = 0$  the laser intensity is at the peak. Irradiation parameters: laser intensity  $1.4 \times 10^{16} \text{ W/cm}^2$ ; wavelength 814 nm; pulse width  $\Delta t = 25 \text{ fs}$

团簇库仑爆炸后的离子动能分布如图 3 所示。图 3 表明随着团簇内包含原子数目的增多, 团簇爆炸后的离子动能分布相应地向高能区移动, 离子的最大动能也相应增大。对  $H_{309}$ ,  $E_{\text{max}} = 240.0 \text{ eV}$ ; 对  $H_{147}$ ,  $E_{\text{max}} = 130.0 \text{ eV}$ ; 对  $H_{55}$ ,  $E_{\text{max}} = 51.4 \text{ eV}$ ; 对  $H_{13}$ ,  $E_{\text{max}} = 15.0 \text{ eV}$ 。随着团簇所含原子数目的增大, 库仑爆炸后离子之间的库仑斥力也相应增强, 导致最终的离子动能增加。离子的动能分布具有尖峰结构, 这与团簇构造的对称性有关。对于实际的团簇喷流介质, 由于团簇尺寸分布和其构造的相对多样性, 离子能谱将有平滑的形状。

这里给出的离子动能与 Ditmire 用经典动力学模拟 Ar 原子团簇<sup>[7]</sup> 给出的离子动能相比小很多。这是由于 H 原子只含一个电子, 其离子的最高电离

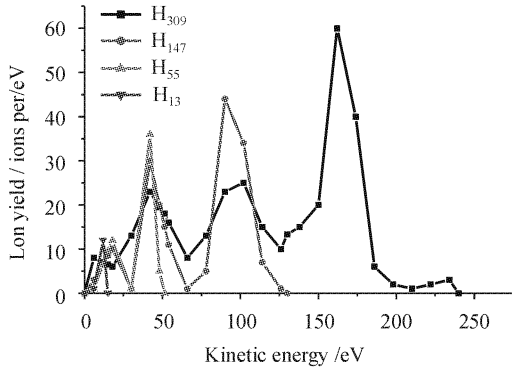
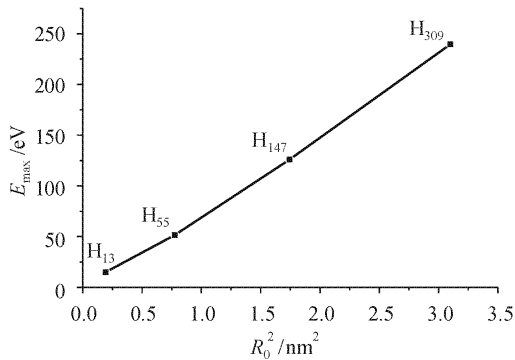


图 3 团簇库仑爆炸后的离子动能分布

激光脉冲参数:  $I = 1.4 \times 10^{16}$  W/cm<sup>2</sup>,  $\lambda = 814$  nm,  $\Delta t = 25$  fs

Fig. 3 Kinetic energy distributions of the produced ions from Coulomb explosion

Irradiation parameters; laser intensity  $1.4 \times 10^{16}$  W/cm<sup>2</sup>; wavelength 814 nm; pulse width  $\Delta t = 25$  fs图 4 氢原子团簇库仑爆炸后的离子最大动能  $E_{\max}$  与团簇初始半径平方  $R_0^2$  的关系激光脉冲参数:  $I = 1.4 \times 10^{16}$  W/cm<sup>2</sup>,  $\lambda = 814$  nm,  $\Delta t = 25$  fsFig. 4 Calculated maximal kinetic energy  $E_{\max}$  of the ions from Coulomb explosion of  $H_n$  clusters as a function of the square of the cluster sizeIrradiation parameters; laser intensity  $1.4 \times 10^{16}$  W/cm<sup>2</sup>; wavelength 814 nm; pulse width  $\Delta t = 25$  fs

价态也就是 +1 价, 在 Ditmire 等的工作中, Ar 离子有很高的价态 ( $7^+ \sim 10^+$ ), 这使得氩团簇的库仑爆炸要猛烈得多。考虑到这一点, 就不难理解两者离子能量存在很大差别的原因。

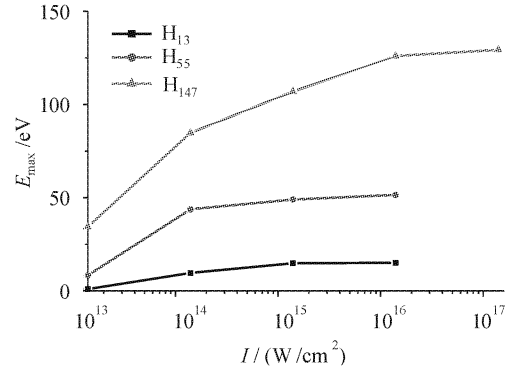
对于同种原子组成的团簇, 如果每个原子电离后的电荷  $q$  相同, 原子密度  $\rho$  均匀一致, 那么团簇爆炸后具有最大动能的离子处在团簇表面<sup>[10]</sup>, 有

$$E(R_0) = (4\pi/3)Bq^2\rho R_0^2 \quad (7)$$

$B$  为一具有能量量纲的常数,  $R_0$  为团簇的初始半径。方程 (7) 给出  $E(R_0) \propto R_0^2$  这个关系。图 4 表示  $H_n$  团簇库仑爆炸后的最大离子动能  $E_{\max}$  与团簇初

始半径平方  $R_0^2$  的关系。图中所示基本上为线性关系, 这个结果与方程 (7) 的理论预言一致。

离子最大动能  $E_{\max}$  与激光光强  $I$  [ $1.4 \times (10^{13} \sim 10^{17})$  W/cm<sup>2</sup>] 的关系示于图 5。在光强较低时,  $E_{\max}$  随  $I$  增加而增大, 但是, 当  $I$  增大到一定值时,  $E_{\max}$  将饱和, 这是因为  $I$  的增强已经不再改变团簇内原子的电离状态, 即团簇内原子已经全部电离。

图 5 氢原子团簇库仑爆炸后的离子最大动能  $E_{\max}$  与激光光强  $I$  [ $1.4 \times (10^{13} \sim 10^{17})$  W/cm<sup>2</sup>] 的关系激光脉冲参数:  $\lambda = 814$  nm,  $\Delta t = 25$  fsFig. 5 Simulations of the Coulomb explosion of  $H_n$  clusters, presenting the dependence of the  $H^+$  maximal energy on the laser intensityirradiation parameters; wavelength 814 nm; pulse width  $\Delta t = 25$  fs

## 4 结 论

运用牛顿运动方程, 模拟了正二十面体氢原子团簇  $H_{13}$ ,  $H_{55}$ ,  $H_{147}$  和  $H_{309}$  与飞秒强激光脉冲 ( $10^{15} \sim 10^{16}$  W/cm<sup>2</sup>) 相互作用过程。结果表明, 随着团簇内原子数目的增多, 爆炸后的离子动能增大。由于正二十面体的对称结构, 离子动能分布具有尖峰结构。对团簇的膨胀过程研究表明, 随着团簇尺寸的增大, 团簇膨胀尺度减小。为了增大库仑爆炸后氢离子的动能, 应采用大尺寸团簇和具有合适脉宽的强激光脉冲。当激光强度增大到一定程度后, 离子动能的增加不再明显, 出现饱和效应。

## 参 考 文 献

- 1 T. Ditmire, T. Donnelly, A. M. Rubenchik *et al.*. Interaction of intense laser pulses with atomic clusters [J]. *Phys. Rev. A*, 1996, **53**(5): 3379~3402
- 2 T. Ditmire, T. Donnelly, R. W. Falcone *et al.*. Strong X-ray emission from high-temperature plasmas produced by intense irradiation of clusters [J]. *Phys. Rev. Lett.*, 1995, **75**(17): 3122~3125

3 T. Ditmire, J. W. G. Tisch, E. Springate *et al.*. High-energy ions produced in explosions of superheated atomic clusters [J]. *Nature (London)*, 1997, **386**:54~56

4 Zhu Pinpin, Li Zhong, Liu Jiansheng *et al.*. Energy spectrum calculations of ions from Ar atomic clusters explosions irradiated by a superintense femtosecond laser pulse [J]. *Acta Optica Sinica*, 2001, **21**(10):1157~1160  
朱频频,黎忠,刘建胜等.飞秒强激光作用下 Ar 原子团簇离子能谱计算[J]. *光学学报*, 2001, **21**(10):1157~1160

5 M. Lezius, S. Dobosz, D. Normand *et al.*. Explosion dynamics of rare gas clusters in strong laser fields [J]. *Phys. Rev. Lett.*, 1998, **80**(2):261~264

6 Y. L. Shao, T. Ditmire, J. W. G. Tisch *et al.*. Multi-keV electron generation in the interaction of intense laser pulses with Xe clusters [J]. *Phys. Rev. Lett.*, 1996, **77**(16):3343~3346

7 T. Ditmire, J. Zweiback, V. P. Yanovsky *et al.*. Nuclear fusion from explosions of femtosecond laser-heated deuterium clusters [J]. *Nature*, 1999, **398**(6727):489~492

8 C. Rose-Petruck, K. J. Schafer, K. R. Wilson *et al.*. Ultrafast electron dynamics and inner-shell ionization in laser driven clusters [J]. *Phys. Rev. A*, 1997, **55**(2):1182~1190

9 K. Boyer, B. D. Thompson, A. McPherson *et al.*. Evidence for coherent electron motions in multiphoton X-ray production from Kr and Xe clusters [J]. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, 1994, **27**(18):4373~4389

10 I. Last, I. Schek, J. Jortner *et al.*. Energetics and dynamics of Coulomb explosion of highly charged clusters [J]. *J. Chem. Phys.*, 1997, **107**(17):6685~6692



• 广告

	<h2>上海瀚宇光纤通信技术有限公司</h2>	
<h3>Your Reliable Partner to R&amp;D in Laser Optics and Fiber Optics</h3>		
 <p>SLD 系列产品</p>	<p>上海瀚宇光纤通信技术有限公司是一家专业致力于服务国内光通信领域科研机构,高校,企业的研究人员的专业公司.为国内光通信领域的研究,试验,新产品开发等项目提供支持.</p>	 <p>保偏器件</p>
 <p>特种光纤</p>	<p>上海瀚宇和世界上许多知名公司和大学保持着良好的技术和市场方面的合作,致力于建立面向全球的多渠道合作体系,为国内的光通信领域的研发提供高端的器件和相关产品,从而推进国内光通信领域的前进步伐.</p>	 <p>特种光器件</p>
 <p>大功率泵浦</p>	<p>上海瀚宇立足于持续提供全球领先的技术和产品,服务的领域包括:</p> <p>光纤传感领域                      光纤激光器领域          光纤放大器领域                      激光应用领域</p>	 <p>普通光无源器件</p>
 <p>偏振控制产品</p>	<p>上海瀚宇目前能够提供比较丰富的产品:</p> <p>光偏振控制以及保偏产品系列          特种光器件系列          特种光纤系列          高端光纤激光器, 高端光纤放大器系列          高功率泵浦激光器系列          普通光无源器件等</p>	 <p>高端光纤激光器</p>
<p>公司地址: 上海市闵行区剑川路 910 号 2 号楼 3 楼          公司电话: 021-54704521; 021-54704615          公司邮件: <a href="mailto:business@shconnet.com.cn">business@shconnet.com.cn</a></p>		<p>邮政编码: 200240          公司传真: 021-54704522          公司网站: <a href="http://www.shconnet.com.cn">www.shconnet.com.cn</a></p>