

文章编号: 0258-7025(2004)Supplement-0195-03

飞秒强光下的库仑爆炸与离子的角分布研究

马日, 任海振, 陈建新, 李霞, 吴成印, 杨宏, 龚旗煌*

(北京大学物理学院, 北京大学人工微结构和介观物理国家重点实验室, 北京 100871)

摘要 通过对 CS_2 , CH_4 与 CH_3OH 三种分子在 110 fs , $10^{13}\sim 10^{16} \text{ W}\cdot\text{cm}^{-2}$ 作用下的离子碎片的飞行时间质谱研究, 得到线偏振、圆偏振下的质谱分布。 CS_2 分子在 $2.2\times 10^{16} \text{ W}/\text{cm}^2$ 的光脉冲作用下的碎片离子角分布显示了母体分子在库仑爆炸瞬间产生了空间准直(spatial alignment)。此外通过对 CH_4 与 CH_3OH 质谱的比较, 发现 CH_4 产生的 C 离子没有双峰结构, 由此分析得出 CH_4 在此强度范围内发生库仑协同爆炸, 这也与通过计算 CS_2 分子的爆炸碎片平动能(KER)所分析的结果一致。

关键词 库仑爆炸; 场致电离; 飞行时间质谱(TOFMS); 空间准直; 协同爆炸

中图分类号 O437

文献标识码 A

Coulomb Explosion and Angular Distribution of Ions in Intense Femtosecond Laser

MA Ri, REN Hai-zhen, CHEN Jian-xin, LI Xia, WU Cheng-yin,

YANG Hong, GONG Qi-huang

(State Key Laboratory for Mesoscopic Physics, Department of Physics, Peking University, Beijing 100871, China)

Abstract Mass spectras of CS_2 , CH_4 and CH_3OH were measured with a time-of-flight (TOF) under conditions with laser intensity varying from $10^{13} \text{ W}/\text{cm}^2$ to $10^{16} \text{ W}/\text{cm}^2$ and a pulse duration of 110 fs . Different mass spectras with linear polarization and circularly polarization were observed. The angular distribution of ions of CS_2 indicated a spatial alignment from the coulomb explosion of highly charged parent ion. Moreover, the comparision of mass spectra with CH_4 and CH_3OH does not exhibit a feature of the double peak splitted from C ions, which manifestes a concerted explosive process of CH_4 . This is consistent with the results of CS_2 analysed by the method of the kinetic energy release(KER).

Key words coulomb explosion; field ionization; time-of-flight mass spectra; spatial alignment; concerted explosion

1 引言

近年来飞秒啁啾脉冲放大(CPA)技术的发展使得激光诱导库仑爆炸的研究引起了浓厚的兴趣^[1,2]。当激光强度达到 $10^{15} \text{ W}/\text{cm}^2$ 时, 光场已可以与分子内部价电场相比, 大量的电子被强光场拉出, 形成高价的母体离子。高价的母体离子在飞秒脉冲作用下, 瞬间的解离产生高能离子。这种由于库仑排斥力而发生的爆炸, 称之为库仑爆炸(coulomb explosion)^[2-6]。由于分子结构的复杂性及在如此的场强下, 没有具体的理论描述此类相互作用。相比爆炸前的中性分子平衡位置 R_e , 爆炸瞬间的临界距离 R_c ^[7] 成为半经典理论描述的重要参量。

双原子分子的库仑爆炸被大量的研究及半经典

解释。相比而言, 多原子分子的研究则很少, 本文通过对 CS_2 , CH_4 与 CH_3OH ^[4-6] 三种分子在 110 fs , $10^{13}\sim 10^{16} \text{ W}/\text{cm}^2$ 光脉冲作用下的离子碎片研究, 得到线偏振、圆偏振光作用下的质谱分布。通过光场相对于实验系统的飞行时间质谱(TOFMS)飞行轴的转动, 针对不同的母体分子结构, 各种离子呈现不同的角分布。离子的角分布成为空间准直判断的重要依据。此外通过对 CH_4 与 CH_3OH 质谱的比较, 发现 CH_4 爆炸产生的 C 离子没有双峰结构, 由此分析得出 CH_4 在此强度范围内发生库仑协同爆炸。

2 实验装置

实验系统采用的是飞行时间质谱 (TOFMS) 及

基金项目: 自然科学基金项目(19884001, 10104003, 90101027)资助课题。

作者简介: 马日(1977-), 男, 北京大学物理学院博士研究生, 主要从事飞秒激光与气体分子相互作用的研究。

Email: mari@pku.edu.cn.

* 通信联系人: qhgong@pku.edu.cn

光电子能谱^[9]。测量离子角分布时,在光路上可放置一1/2波片或1/4波片,相当于偏振矢量对于飞行轴的转动。 CS_2 , CH_4 与 CH_3OH 样品气体通过脉冲阀(Park Inc.,USA)进入真空系统。为避免空间电荷效应^[8],真空室内始终保持 10^{-4} Pa左右的进气压。

飞秒激光系统为钛蓝宝石啁啾放大系统(TSA-10, Spectra-Physics Inc.,USA),该系统产生的810 nm, 110 fs及10 Hz重复频率的光脉冲,并通过150 mm的透镜聚焦于真空室。

3 结果和讨论

3.1 CS_2 分子

图1为810 nm, 110 fs脉冲下 CS_2 分子在强度 2×10^{15} W/cm²的水平偏振和垂直偏振的飞行时间质谱。其中外场区电压 V_1, V_2 分别为960 V和800 V。从两图中可以看到完整的母体离子信号 CS_2^+ 和 CS_2^{2+} ,且信号在两种偏振下有类似的强度和形状。 $\text{S}^{m+}(m=1\sim 5)$ 和 $\text{C}^{n+}(n=1\sim 3)$ 等单价和高价的碎片离子信号也被观察到。重要的是S, C的各价离子产生了双峰分裂,即发生了库仑爆炸^[9]。库仑爆炸产生了很大的离子平动能相比,母体离子的单峰结构则有可忽略的动能。水平偏振下 $\text{S}^{m+}(m=1\sim 5)$ 及弱 C^+ 信号观测到,而 C^{2+} 和 C^{3+} 几乎完全没有。相反在垂直偏振光脉冲作用下,仅有 $\text{C}^{n+}(n=1\sim 3)$ 和 S^+ 谱峰出现。 $\text{S}^{m+}(m=2\sim 5)$ 几乎消失。这说明了高价的碎片离子在发生爆炸之前发生了空间准直(Spatial Alignment)。

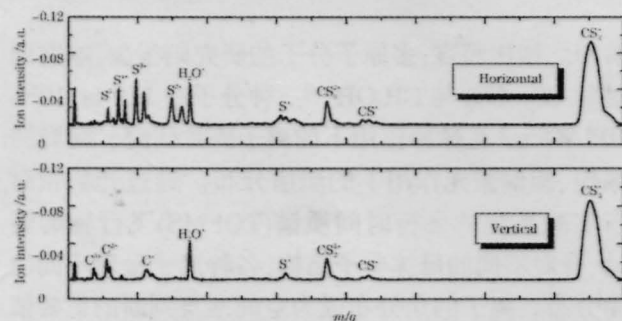


图1 810 nm, 110 fs, 2×10^{15} W/cm²激光脉冲下的 CS_2 分子的飞行时间质谱(TOFMS)

Fig.1 TOF mass spectra of CS_2 induced by 810 nm, 110 fs laser pulses at intensity of 2×10^{15} W/cm²

为了证明这种空间准直的中间态过程,我们测量了 $\text{S}^{m+}(m=1\sim 5)$ 及 $\text{C}^{n+}(n=1\sim 3)$ 等离子体的角分布。图2展现了 S^{2+} 和 C^{3+} 高度的各向异性分布。 S^{2+} 沿着光矢量方向有最大的分布。相反地, C^{3+} 在垂直光场方向有最大分布。产生这种几乎垂直分布的原因在于S离子的初动量与C离子的初动量分别平行、垂直

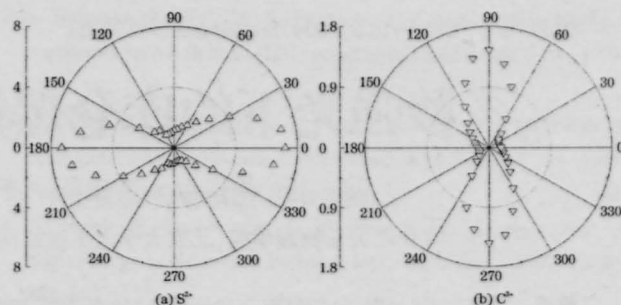


图2 S^{2+} 和 C^{3+} 在激光强度 2.2×10^{15} W/cm²下的高度各向异性分布

Fig.2 Highly anisotropic angular distributions for S^{2+} and C^{3+} ions at a laser intensity of 2.2×10^{15} W/cm²

于光矢量,为此我们相比于几何准直(geometric alignment)机理下的角度依靠电离,此时发生的是动力学准直(dynamic alignment)^[10]。

3.2 CH_4 和 CH_3OH 分子

甲烷分子在110 fs, 810 nm, 2×10^{15} W/cm²不同偏振的激光脉冲作用下的飞行时间质谱如图3所示。从图中可以看出, $\text{CH}_m^+(m=0\sim 4)$ 和 $\text{C}^{n+}(n=1\sim 4)$ 在水平和垂直偏振激光作用下具有相同的强度和形状,这表明这些离子(1)具有较大的动能,但相对于激光偏振各向同性分布,或者(2)平动能很小,几乎为零。通过测量这些离子的半高宽度,发现原子离子 $\text{C}^{n+}(n=1\sim 4)$ 的半高宽度接近或者小于母体离子 CH_4^+ 和 H_2O^+ 的半高宽度。这些观察表明:甲烷分子在飞秒强激光作用下产生的原子离子 $\text{C}^{n+}(n=1\sim 4)$ 的平动能几乎为零。而半高宽度比母体离子小,是因为产生这些高价母体离子需要更高的激光强度,因此电离区域小。甲烷是一个正四面体分子,C原子位于正四面体的中心。只有在协同爆炸即分子内各键同时断裂的情况下,C的高价碎片离子的平动能才能为零。但是由于碳氢的原子量差别比较大,库仑爆炸产生的能量按照动量守恒,能量将主要分配给

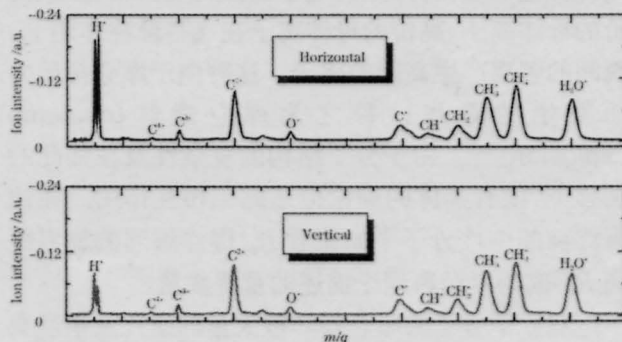


图3 810 nm, 110 fs, 2×10^{15} W/cm²激光脉冲下 CH_4 分子的飞行时间质谱

Fig.3 TOF mass spectra of CH_4 induced by 810 nm, 110 fs laser pulses at intensity of 2×10^{15} W/cm²

氢原子。因此为了验证此种多原子分子的协同爆炸模型,我们又对甲醇和一氧化碳分子在超短超强激光场作用下的库仑爆炸进行了研究,如图4。另外我们还测量了这两种分子库仑爆炸产生的碳和氧离子的平动能:

$$E_{\text{Kinetic energy}} = \frac{(V_1 - V_2)^2}{8md^2} q^2 \Delta t^2$$

V_1, V_2 分别为外场区极板加速电压, q, m 为离子的

电荷及质量。 d 是极板间距, Δt 为向前向后飞行离子到达极板的时间差。通过比较平动能,我们断定甲醇分子库仑爆炸产生的碳氧离子是通过甲醇分子离子直接爆炸产生的。这也就支持了上面论述的多原子库仑协同爆炸模型。此外对 CS_2 的 S, C 离子的同样的能量计算表明 C 有很小的能量,说明了 CS_2 分子爆炸也是个协同过程。

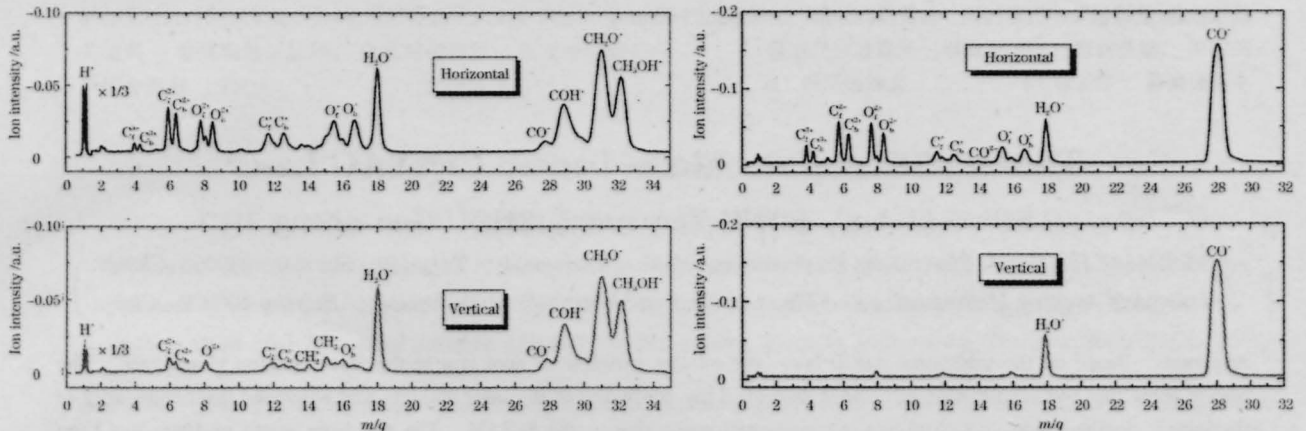


图4 810 nm, 110 fs, 2×10^{15} W/cm² 激光脉冲下 CH_3OH (左)及 CO (右)分子分别在水平、垂直偏振下的飞行时间质谱
Fig.4 TOF mass spectra of CH_3OH (left)and CO (right) induced by 810 nm, 110 fs laser pulses at intensity of 2×10^{15} W/cm²

4 结 论

通过对 CS_2, CH_4 与 CH_3OH 三种分子在 110 fs, 810 nm 光脉冲作用下的离子碎片研究,得到线偏振的质谱。特别是 CS_2 分子的碎片离子由于动力学准直而呈现高度的各向异性分布。通过对 CH_4 与 CH_3OH 质谱的比较,发现 CH_4 同 CS_2 分子都在此强度范围内发生了库仑协同爆炸。

参 考 文 献

- 1 R. J. Levis, G. M. Menkir, H. Rabitz. Selective bond dissociation and rearrangement with optimally tailored, strong-field laser pulses [J]. *Science*, 2001, **292**: 709-713
- 2 C. Y. Wu, Y. Xiong, N. Ji. Field ionization of aliphatic ketones by intense femtosecond laser [J]. *J. Phys. Chem. A*, 2001, **105**: 374-377
- 3 L. J. Frasinski, K. Codling, P. A. Hatherly. Covariance mapping: a correlation method applied to multiphoton multiple ionization[J]. *Science*, 1989, **246**: 1029-1031

- 4 C. Y. Wu, H. Z. Ren, T. T. Liu. Laser-induced dissociation and explosion of methane and methanol[J]. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, 2002, **35**: 2575-2582
- 5 H. Z. Ren, C. Y. Wu, R. Ma. Field ionization and coulomb explosion of methanol in an intense field of a femtosecond laser beam[J]. *Int. J. Mass. Spectrom.*, 2002, **219**: 305-313
- 6 C. Y. Wu, H. Z. Ren, T. T. Liu. Mass and photoelectron spectrometer for studying field-induced ionization of molecules[J]. *Int. J. Mass. Spectrom.*, 2002, **216**: 249-255
- 7 C. Cornaggia. Carbon geometry of C_3H_3^+ and C_3H_4^+ molecular ions probed by laser-induced Coulomb explosion [J]. *Phys. Rev. A*, 1995, **52**: R4328-R4331
- 8 M. V. Ammosov, F. A. Ilkov, M. G. Malakhov. Space-charge influence on the spectra of the ions and electrons formed by laser gas ionization[J]. *J. Opt. Soc. Am. B*, 1989, **6**: 1961-1963
- 9 H. Z. Ren, R. Ma, J. X. Chen. Field ionization and Coulomb explosion of CO in an intense femtosecond laser field [J]. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, 2003, **36**: 2179-2188
- 10 S. Banerjee, G. R. Kumar, D. Mathur. Dynamic and geometric alignment of CS_2 in intense laser fields of picosecond and femtosecond duration[J]. *Phys. Rev. A*, 1999, **60**: R3369-R3372