

ОБЗОРЫ АКТУАЛЬНЫХ ПРОБЛЕМ

Эволюция больших кластеров под действием ультракороткого сверхмощного лазерного импульса

В.П. Крайнов, М.Б. Смирнов

Рассматривается эволюция больших кластеров при облучении их полем сверхсильного лазерного ультракороткого импульса. Возбуждение кластера, сопровождаемое его многократной ионизацией, генерацией рентгеновского излучения и последующим взрывом, происходит из-за взаимодействия электронной подсистемы с лазерным полем. Обсуждается рост электронной температуры и заряда кластерного иона в процессе этого взаимодействия. Показано, что перепоглощением фотонов в такой плазме можно пренебречь. Рассматриваются оптимальные условия для эффективного поглощения лазерного излучения в большом кластере. Установлено, что такое поглощение имеет место только на поверхности кластера. Дан обзор работ по генерации рентгеновского излучения и высоких гармоник падающего излучения из горячего кластерного иона. Показано, что оптическая плотность лазерной плазмы для резонансных радиационных переходов многозарядных ионов, образующихся в кластере, относительно мала. Обсуждаются процессы расширения и распада кластера во время и после окончания лазерного импульса.

PACS numbers: 36.40.-c, 52.40.Nk, 61.46.+w, 85.42.+m

Содержание

1. Введение (969).
 2. Постановка экспериментов (970).
 3. Свойства металлических кластеров (971).
 4. Структура больших кластеров (972).
 - 4.1. Холодные кластеры и кластерные ионы.
 - 4.2. Горячие кластерные ионы.
 5. Ионизация кластеров (977).
 - 5.1. Внутренняя ионизация.
 - 5.2. Ионизация при неупругих электрон-ионных столкновениях.
 - 5.3. Проникновение лазерного излучения в кластер.
 - 5.4. Внешняя ионизация.
 6. Поглощение излучения кластером (982).
 7. Рентгеновское излучение (983).
 - 7.1. Статистическое равновесие с учетом рентгеновского излучения.
 - 7.2. Перепоглощение резонансных фотонов.
 - 7.3. Излучение резонансных фотонов.
 - 7.4. Экспериментальные данные.
 8. Излучение гармоник (986).
 9. Расширение кластеров (986).
 10. Заключение (988).
- Список литературы (989).

1. Введение

При облучении больших кластеров, содержащих несколько тысяч атомов или молекул, полем сверхсильного ультракороткого лазерного импульса (длительностью порядка сотни фемтосекунд, т.е. порядка 30 периодов лазерного поля) образуется сильно возбужденная материя [1, 2]. Нагрев электронов проводимости в случае металлических кластеров (или первично ионизованных электронов в случае кластеров из атомов инертных газов), с одной стороны, и отсутствие возможности быстрого отвода тепла, как в обычной плазме, с другой стороны, позволяют достигать значительно большего возбуждения электронной подсистемы по сравнению с изолированными атомами и молекулами. При этом атомарные ионы практически не нагреваются. После быстрой начальной многократной ионизации в течение основной части лазерного импульса вещество кластерного иона представляет собой идеальную плазму, состоящую из электронов и многозарядных атомарных ионов. Эволюция кластера в лазерном поле изучалась как экспериментально [3, 4], так и теоретически [5, 6] посредством различных численных и аналитических методов.

Мы рассмотрим модели кластерной плазмы, позволяющие проанализировать свойства этой системы в процессе создания плотной плазмы лазерным импульсом. Эти модели описывают нагрев кластера, когда средняя энергия электрона (т.е. электронная температура T) увеличивается до нескольких килоэлектронвольт. При этом существенную роль играют столкновительные процессы. В результате электрон-электронных столкновений может установиться максвелловское распределение при определенном соотношении между сред-

В.П. Крайнов. Московский физико-технический институт, 141700 Долгопрудный, Московская обл., Институтский пер. 9, Российская Федерация
E-mail: krainov@cyberax.ru
М.Б. Смирнов. Max-Born Institute, Abt. B2
Rudower Chaussee 6, 12489 Berlin, Germany
Российский научный центр "Курчатовский институт", 123182 Москва, пл. Курчатова 1, Российская Федерация
E-mail: smirnov@mbi-berlin.de

Статья поступила 24 мая 2000 г.

ней тепловой энергией электрона $3T/2$ и его средней колебательной энергией $U_p = F^2/4\omega^2$ в лазерном поле, причем первая величина может быть как больше, так и меньше второй. Отметим, что здесь и далее мы, как правило, используем атомную систему единиц $m_e = e = \hbar = 1$. Электронная температура T растет со временем до тех пор, пока не становится заметным расширение кластерного иона.

При воздействии лазерного импульса наряду с нагревом часть электронов покидает кластер или под действием непосредственно поля лазерного импульса, или путем теплового испарения с поверхности кластера. Таким образом, заряд Z' кластерного иона растет со временем в течение лазерного импульса. Ниже мы приведем простое соотношение между ростом электронной температуры T и заряда кластерного иона Z' .

Сделаем простые оценки, чтобы подтвердить идеальность кластерной плазмы. Условие идеальности имеет простой вид

$$NZ^3 \ll T^3,$$

где N — концентрация атомов в кластере, Z — средний заряд атомарного иона внутри кластера (не путать с зарядом кластера Z') и T — электронная температура. При высокой электронной температуре это неравенство обычно выполняется и не противоречит большой плотности кластерной плазмы (в том числе и для металлических кластеров, где плотность совпадает с плотностью жидкого металла, см. табл. 1). Например, для кластера из атомов натрия ($Z = 11$ в случае полной обдирки атома) и $T = 1$ кэВ получим $NZ^3/T^3 \sim 10^{-4}$.

Возбужденные атомарные многозарядные ионы внутри кластера испускают рентгеновское излучение. Будет показано, что вклад этого излучения в энергетический баланс в процессе нагрева кластера незначителен. Вычислена мощность радиационного излучения кластера. Однако спонтанные и вынужденные переходы в многозарядных ионах происходят за времена, которые быстро уменьшаются с ростом заряда атомарного иона. Эти процессы могут существенно изменить баланс между атомарными ионами в кластере. Поэтому в такой системе может играть существенную роль резонансное перепоглощение этого излучения другими атомарными ионами внутри кластера, что изменяет время радиационного перехода. Роль этого процесса будет также исследована.

2. Постановка экспериментов

Обсудим постановку типичных экспериментов по взаимодействию кластеров с мощными короткими лазерными импульсами. Основная часть экспериментов была проведена с кластерами из атомов благородных (инертных) газов или из простых двухатомных молекул. Число частиц в кластере варьировалось до одного миллиона. Ряд экспериментов выполнен с металлическими кластерами, число частиц в которых колебалось от нескольких единиц до тысячи. Размеры кластеров были обусловлены способом их получения.

Остановимся здесь на способах получения и диагностики кластеров из атомов инертных газов. Схема типичной экспериментальной установки представлена на рис. 1. Кластерный пучок формируется в процессе расширения газа при его истечении через сверхзвуковое

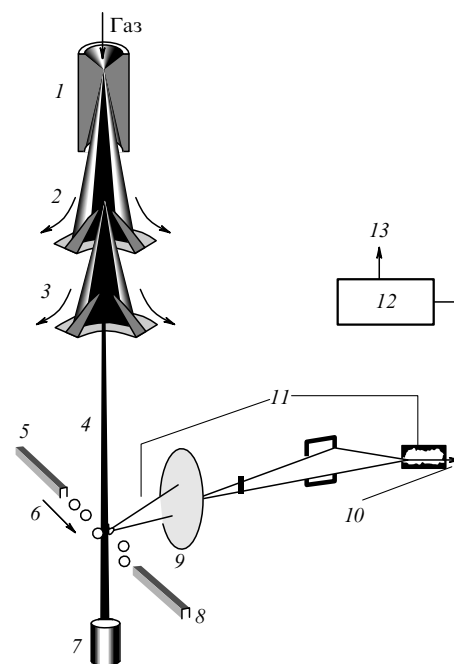


Рис. 1. Схема типичной экспериментальной установки для получения и диагностики кластеров: 1 — сопло, 2 — скиммер, 3 — коллиматор, 4 — кластерный пучок, 5 — катод, 6 — электронный пучок, 7 — клетка Фарадея, 8 — анод, 9 — щель, 10 — спектрограф рентгеновского излучения, 11 — рентгеновское излучение, 12 — усилитель, 13 — обработка данных.

сопло в вакуум. Диаметр сопла порядка 0,5 см. Газовый пучок при регулируемом давлении газа перед соплом в несколько десятков атмосфер и комнатной температуре выходил через сопло и направлялся в высоковакуумную камеру. Перед камерой предварительно отделялись квазистационарные ядра сверхзвуковой струи газа с помощью скиммера диаметром в несколько миллиметров (в некоторых экспериментах скиммер не использовался). Возможность образования кластеров из атомов определяется значением эмпирического безразмерного параметра Хагена [7, 8]

$$\Gamma = k \left(\frac{d}{\tan \alpha} \right)^{0,85} \frac{p}{T_0^{2,29}}.$$

Здесь d — диаметр критического сечения сверхзвукового сопла, мкм, 2α — угол раствора сопла, p — давление, мбар, k — эмпирический коэффициент, разный для различных атомов (например, $k = 2900$ для атомов криптона и $k = 180$ для атомов неона). Наконец, T_0 — исходная температура газа. Кластеризация начинается при параметре Хагена $\Gamma > 300$ [9, 10]. При $\Gamma > 50\,000$ кластеры содержат уже более 10 000 атомов каждый.

Диаметр получаемого кластерного пучка составляет от 0,5 до 2 см. Диагностика кластеров проводится с помощью рэлеевского рассеяния. Диапазон интенсивностей и длин волн лазерного излучения, использованного в экспериментах, весьма широк: интенсивность варьировалась от 10^{15} до 10^{20} Вт см $^{-2}$, а длина волны — от 248 до 800 нм. Длительность лазерного импульса составляла от нескольких десятков фемтосекунд до десятков пикосекунд.

Первая серия экспериментов была проведена группой Роудса [11, 12]. Использовалось лазерное излучение с

пиковой интенсивностью от 10^{16} до 10^{20} Вт см $^{-2}$, длиной волны 248 нм и длительностью импульса около 270 фс. Фокальный диаметр составлял $\sim 0,3$ мм. Лазерное излучение фокусировалось в области кластеризации на 2 мм ниже выпускного клапана (скиммер отсутствовал). Число частиц в кластере достигало 30. Для образования кластеров использовались атомы инертных газов: ксенона, криптона и аргона.

Аналогичные эксперименты были проведены в работах [13, 14] с использованием другого источника лазерного излучения интенсивностью 10^{18} Вт см $^{-2}$, с длиной волны 800 нм и длительностью импульса 90 фс. Фокальный диаметр составлял около 0,6 мм. Основной целью экспериментов было исследование рентгеновского излучения, генерируемого (см. раздел 7) излучательными переходами в многозарядных ионах кластеров. Обсуждались перспективы лазерного излучения ультрафиолетового и светового диапазона для получения мощного рентгеновского излучения (см. также [15]).

Следующая группа экспериментов [5, 6] отличается наибольшей полнотой исследований. Изучались кластеры из атомов ксенона и криптона, а также молекул CO_2 . Получены энергетические спектры ионизированных электронов и атомарных ионов, данные по генерации гармоник, изучалась эффективность поглощения лазерного излучения кластерами. Длительность лазерного импульса составляла ~ 1 пс, длина волны — 800 нм, пиковая интенсивность — от 10^{15} до 10^{17} Вт см $^{-2}$. Кластеры содержали от 10^3 до 10^6 атомов. Доля атомов, составляющих кластеры в газовом пучке, достигала 10 %. Область взаимодействия лазера с кластерами находилась в 20 см от выпускного клапана и имела размер порядка 1 мм.

В работах [16, 17] основное внимание обращено на получение энергетических спектров ионов после взрыва кластера, а также исследованы спектры рентгеновского излучения. Как и в предыдущей группе экспериментов, область взаимодействия находилась вдали от сопла, однако параметры лазерного импульса сильно отличались. Сначала использовался неодимовый лазер с длиной волны 1064 нм, длительностью импульса 30 пс и интенсивностью порядка 10^{14} Вт см $^{-2}$. Затем эксперименты проводились с титан-сапфировым лазером (длина волны 790 нм), причем длительность лазерного импульса составляла от 60 до 200 фс, а пиковая интенсивность излучения — от 10^{16} до 10^{18} Вт см $^{-2}$.

Ряд экспериментальных работ [18–20] был посвящен взаимодействию металлических кластеров с мощным лазерным излучением. Использовались лазеры с интенсивностью до 10^{16} Вт см $^{-2}$, длиной волны 800 нм и длительностью от 100 фс до 1 пс. Число частиц в кластере изменялось от 20 до 1000. В экспериментах применялись кластеры из атомов платины, серебра и свинца. Измерялась зависимость выхода многозарядных ионов от длительности лазерного импульса при постоянной энергии в импульсе. При определенной длительности выход многозарядных ионов был максимален.

3. Свойства металлических кластеров

Одна из основных тем данного обзора — эволюция больших металлических кластеров в поле сверхсильного лазерного импульса. Их основные свойства представ-

лены в обзорных работах [21–25]. В металлических кластерах, как и в обычном жидком металле, валентные электроны в большой степени делокализованы. В случае щелочных элементов единственный валентный s-электрон полностью делокализован. Для описания структуры больших металлических кластеров, как правило, используется так называемая *модель желе*. Согласно этой модели кластер представляет собой сферическую жидкую каплю (ее размеры малы по сравнению с длиной волны лазерного излучения), имеющую резкую поверхностную границу для положительных ионов. При этом ионы распределены равномерно по объему кластера. Облако электронов проводимости слегка выходит за эту границу наружу, причем тем меньше, чем больше размер кластера. Мы уже говорили, что с высокой степенью достоверности электронный газ кластера можно считать идеальным. Таким образом, для большого кластера можно использовать известные объемные и поверхностные параметры жидких металлов. Конечно, такой подход не позволяет описать свойства, связанные, например, с оболочечной структурой малых кластеров.

Пусть R — радиус кластера в такой модели жидкой капли. Потенциал ионизации большого нейтрального кластера равен работе выхода W для соответствующего металла. Если мы имеем дело с кластерным ионом с зарядом $Z' \gg 1$, то следует добавить к работе выхода и кулоновскую энергию отрыва электрона. В предположении, что избыточный заряд кластерного иона Z' распределен по поверхности кластера, эта энергия равна Z'/R (см. обзор [22]). Тогда потенциал ионизации кластерного иона $J_{Z'}$ определяется простым выражением

$$J_{Z'} = W + \frac{Z'}{R}$$

(отметим, что при малых значениях $Z' \sim 1$ кулоновская энергия отличается от этой оценки; например, кулоновская энергия для заряда $Z' = 1$, распределенного по поверхности кластерного иона, равна $1/2R$).

Мы предполагаем (и проверим ниже), что доля вылетевших наружу электронов мала, т.е.

$$Z' \ll n',$$

где n' — полное число свободных электронов внутри кластера. Кроме того, в рамках модели жидкой капли мы полагаем, что плотность кластера равна плотности жидкого металла. Следовательно, радиус кластера

$$R = r_w n^{1/3},$$

где r_w — радиус Вигнера–Зейтца и n — число атомов кластера. В начале лазерного импульса это число совпадает с числом электронов проводимости n' (для щелочных атомов). В течение лазерного импульса количество свободных электронов n' существенно возрастает из-за внутренней ионизации атомов кластера.

Радиус Вигнера–Зейтца в рамках капельной модели может быть выражен через плотность ρ жидкого металла и массу M отдельного атома:

$$r_w = \left(\frac{3M}{4\pi\rho} \right)^{1/3} = \left(\frac{3}{4\pi N} \right)^{1/3}.$$

Здесь N — концентрация атомов в кластере.

Таблица 1 содержит значения работы выхода W , радиуса Вигнера–Зейтца r_W , концентрации атомов N и энергии Ферми E_F для валентных электронов ряда одновалентных металлов в точке плавления.

Таблица 1. Основные параметры жидких металлов, используемые для описания кластеров [26, 27]

Металл	Z	$N, 10^{22} \text{ см}^{-3}$	$E_F, \text{ эВ}$	$r_W, \text{ А}$	$1/(r_W E_F)$	$W, \text{ эВ}$
Li	3	4,44	4,72	1,75	1,8	2,9
Na	11	2,44	3,23	2,14	2,2	2,75
Al	13	5,33	11,63	1,65	0,75	4,28
K	19	1,27	2,12	2,65	2,7	2,30
Cu	29	7,50	7,00	1,47	1,4	4,65
Mo	42	5,86	8,73	1,60	1,0	4,6
Ag	47	5,20	5,48	1,66	1,6	4,26
Cs	55	0,84	1,58	3,05	3,1	2,14
W	74	5,80	8,67	1,60	1,0	4,55
Au	79	5,29	5,51	1,65	1,6	5,1

Из данных табл. 1 следует, что кулоновская электростатическая энергия $1/r_W$ взаимодействия ближайших электронов друг с другом сопоставима с энергией Ферми для электронов проводимости. Следовательно, обменное взаимодействие, ответственное за установление границы Ферми, и прямое кулоновское взаимодействие между электронами имеют одинаковый порядок величины. Таким образом, электроны холодного кластера представляют собой существенно квантовую подсистему. Однако с ростом заряда кластерного иона и концентрации свободных электронов в кластере роль обменных эффектов уменьшается.

4. Структура больших кластеров

4.1. Холодные кластеры и кластерные ионы

Кресин [21] предложил использовать численную модель Томаса–Ферми для описания квантовомеханического распределения электронов в холодных металлических кластерах ($T = 0$). Эта модель не отражает оболочечные свойства малых кластеров. Для описания динамики взаимодействующих электронов наиболее часто применяется модель среднего поля Кона–Шэма [22, 23]. Теоретическим обоснованием этой модели служит теория зависящего от времени функционала плотности [24, 28]. В рамках последнего подхода расчеты проводятся в приближении зависящей от времени локальной плотности [29]. Оно применяется также для анализа столкновений кластеров с высокоэнергетическими ионами с использованием квазиклассического рассмотрения электронной подсистемы на основе уравнений Власова [30, 31]. Эмиссия электронов металлическими кластерами для процессов быстрого возбуждения рассмотрена в работе [32].

4.1.1. Нейтральные кластеры. Начнем с описания больших сферических холодных нейтральных кластеров ($T = 0$). В этом случае модель Томаса–Ферми можно упростить [33, 34]. Распределение положительных ионов описывается в рассмотренной выше модели желе. Введем обозначения: R — радиус ионной сферы, $n \gg 1$ — число атомов в кластере (или ионов в случае одновалентных металлических кластеров). Уравнение Пуассона для электростатического потенциала $\varphi(r)$ при $r < R$, т.е.

внутри ионной сферы, имеет вид (напомним еще раз, что всюду используется атомная система единиц $m_e = e = \hbar = 1$)

$$\Delta\varphi = \frac{d^2\varphi}{dr^2} + \frac{2}{r} \frac{d\varphi}{dr} = \frac{4}{3\pi} (2\varphi)^{3/2} - \frac{3n}{R^3}. \quad (1)$$

В большей части ионной сферы (кроме узкой области вблизи ее поверхности) этот потенциал постоянен: $\varphi = \varphi_0$. Таким образом, электрическое поле здесь отсутствует. Константу φ_0 можно найти из (1), приравняв нулю правую часть этого уравнения:

$$\varphi_0 = \frac{(9\pi n)^{2/3}}{2^{7/2} R^2} = \frac{(9\pi)^{2/3}}{2^{7/2} r_W^2}, \quad (2)$$

так как $R = r_W n^{1/3}$, причем радиус Вигнера–Зейтца r_W порядка 1 а.е. (см. табл. 1). Следовательно, и значение потенциала φ_0 порядка 1 а.е. Например, для кластера из атомов натрия получим $\varphi_0 = 3,1$ эВ.

Ищем решение уравнения (1) при $r < R$ в форме

$$\varphi(r) = \varphi_0 \left[1 - a \left(\frac{r}{R} \right)^k \right]. \quad (3)$$

Здесь $a \sim 1$ и $k \gg 1$ — константы, значения которых определены ниже. Отметим, что это решение отличается от константы φ_0 только вблизи поверхности кластера. Подставляя (3) в (1) и учитывая (2), находим значение константы k :

$$k^2 = \left(\frac{3}{\pi^2} \right)^{2/3} R n^{1/3} \approx 0,452 R n^{1/3} \gg 1. \quad (4)$$

Электронное облако слегка выходит за край ионной сферы. Будем искать убывающее решение для электростатического потенциала φ при $r > R$ в виде

$$\varphi(r) = \varphi_0 b \left(\frac{R}{r} \right)^l. \quad (5)$$

Здесь $b \sim 1$ и $l \gg 1$ — константы, которые определены ниже.

Сшивку потенциалов (3) и (5) и их производных при $r = R$ дает два уравнения для определения констант:

$$a + b = 1; \quad ak = bl. \quad (6)$$

Дополнительное уравнение возникает из условия, что число электронов в нейтральном кластере равно числу ионов n :

$$n = \frac{1}{3\pi^2} \int_0^\infty (2\varphi)^{3/2} r^2 dr. \quad (7)$$

Подставив соотношения (3) и (5) в (7), разложим подинтегральное выражение в ряд Тейлора при $r < R$:

$$n = \frac{(2\varphi_0)^{3/2}}{3\pi^2} \left\{ \int_0^R \left[1 - \frac{3a}{2} \left(\frac{r}{R} \right)^k \right] r^2 dr + \int_R^\infty b^{3/2} \left(\frac{R}{r} \right)^{3l/2} r^2 dr \right\}. \quad (8)$$

Вычислив простые интегралы, с учетом (2) и неравенства $k, l \gg 1$ перепишем это условие в следующей форме:

$$9al = 4b^{3/2}k. \quad (9)$$

Из (6) и (9) следует, что константа a определяется из решения трансцендентного уравнения

$$a + \left(\frac{9a^2}{4}\right)^{2/5} = 1. \quad (10)$$

Решая его, находим универсальные значения констант $a = 0,372$, и согласно (9) $b = 0,628$.

Чтобы вычислить характерные значения констант k и l , рассмотрим типичный пример кластера из $n = 10^5$ атомов натрия. Для этого воспользуемся данными табл. 1: радиус Вигнера–Зейтца $r_W = 2,14$ А и радиус этого кластера $R = r_W n^{1/3} = 99$ А = 188 а.е. Согласно (4) находим $k = 62,77$. Тогда из (6) получим $l = 37,16$. Таким образом, можно сделать вывод, что распределение электронов очень близко к ступенчатому и практически не отличается от распределения ионов.

Действительно, разность между электростатическим потенциалом φ внутри кластера и константой φ_0 важна лишь на малом расстоянии δ от поверхности кластера. Согласно (3) имеем

$$\delta = R - r \sim \frac{R}{k} = \frac{R}{63} \ll R.$$

Снаружи ионной сферы концентрация электронов быстро убывает. Расстояние δ' , на котором потенциал $\varphi(r)$ уменьшается практически до нуля, может быть найдено из (5):

$$\delta' = r - R \sim \frac{R}{l} = \frac{R}{37} \ll R.$$

При большом числе частиц модель Томаса–Ферми переходит в модель капли с резкой границей.

4.1.2. Кластерные ионы. Рассмотрим холодный кластерный ион с зарядом Z' . Вид решений (3) и (5) остается без изменений, но с другими константами. Число электронов теперь равно $n - Z'$, а условие (8) заменяется условием

$$n - Z' = \frac{(2\varphi_0)^{3/2}}{3\pi^2} \left\{ \int_0^R \left[1 - \frac{3a}{2} \left(\frac{r}{R} \right)^k \right] r^2 dr + \int_R^\infty b^{3/2} \left(\frac{R}{r} \right)^{3l/2} r^2 dr \right\}.$$

Вычисляя интегралы, вместо (9) получаем уравнение

$$9al = 4b^{3/2}k + 2kl \frac{Z'}{n}, \quad (11)$$

которое должно решаться совместно с уравнением (6). Исключив b и l , получим трансцендентное уравнение для определения константы a (вместо (10))

$$a + \left(\frac{9a^2}{4} - \frac{Z'ak}{2n} \right)^{2/5} = 1. \quad (12)$$

Рассмотрим тот же пример кластера из $n = 10^5$ атомов натрия, что и выше, но со степенью ионизации

кластерного иона, равной $Z'/n = 0,05$. Согласно (4) снова $k = 62,77$. Тогда из (12) следует, что $a = 0,723$. Следовательно, $b = 0,277$ и $l = 164$. Видно, что "хвост" электронной концентрации снаружи кластера гораздо меньше по сравнению с нейтральным кластером с тем же числом атомов. Из (12) также следует, что электронный "хвост" снаружи кластера вообще исчезает при достижении определенной (относительно малой) степени ионизации кластерного иона $Z'/n = 0,07$. Тогда $a = 1$ и $b = 0$.

В целом можно сделать вывод, что электронный "хвост" снаружи кластера убывает с ростом числа атомов n в кластере и с увеличением заряда Z' кластерного иона.

4.1.3. Зависящее от времени приближение Томаса–Ферми. Зависящее от времени приближение Томаса–Ферми в применении к трехмерной динамике кластеров развито в работе [35]. Мы представим упрощенную версию этого приближения.

Рассмотрим собственные колебания электронного облака внутри кластера. Используем здесь тот же метод, который был применен в [36] для расчета статической поляризуемости атомов и ионов в приближении Томаса–Ферми. Введем малое монохроматическое возмущение электрического потенциала $\varphi \rightarrow \varphi_0 + \delta\varphi$, $\delta\varphi \ll \varphi_0$. Тогда первая итерация уравнения Томаса–Ферми (1) при $r < R$ принимает вид

$$\Delta\delta\varphi = \frac{4}{\pi\epsilon} \sqrt{2\varphi_0} \delta\varphi. \quad (13)$$

Здесь

$$\epsilon = 1 - \left(\frac{\omega_p}{\Omega} \right)^2 < 0 \quad (14)$$

— диэлектрическая проницаемость, создаваемая свободными электронами кластера, Ω — частота собственных колебаний. Плазменная частота ω_p определяется известным соотношением (в данном случае мы полагаем, что поле лазерного излучения однородно по всему объему кластера)

$$\omega_p = \sqrt{4\pi N_e},$$

где N_e — концентрация электронов.

Следует отметить, что появление диэлектрической проницаемости кластера в электростатическом уравнении Пуассона (13) в отличие от (1) объясняется тем, что величина $\delta\varphi(r, t)$ рассматривается как внешнее возмущение по отношению к стационарному распределению зарядов в кластере, создающему диэлектрические свойства кластерной материи.

Введя обозначение

$$k^2 = -\frac{4}{\pi\epsilon} \sqrt{2\varphi_0} > 0, \quad (15)$$

перепишем уравнение (13) в сферических координатах при $r < R$:

$$\frac{\partial^2 \delta\varphi}{\partial r^2} + \frac{2}{r} \frac{\partial \delta\varphi}{\partial r} + \frac{1}{r^2 \sin \theta} \frac{\partial}{\partial \theta} \left(\sin \theta \frac{\partial \delta\varphi}{\partial \theta} \right) = -k^2 \delta\varphi. \quad (16)$$

Ищем решение этого уравнения в форме дипольных колебаний (при $r < R$)

$$\delta\varphi(r, t) = u(r) \cos \theta \cos \Omega t. \quad (17)$$

Подставляя (17) в (16), получаем обыкновенное дифференциальное уравнение для функции $u(r)$:

$$\frac{d^2 u}{dr^2} + \frac{2}{r} \frac{du}{dr} - \frac{2u}{r^2} = -k^2 u. \quad (18)$$

Его решение, регулярное в начале координат, имеет простой аналитический вид

$$u(r) = A \left(\frac{\sin kr}{kr^2} - \frac{\cos kr}{r} \right), \quad r < R. \quad (19)$$

Здесь A — произвольная константа, определяющая амплитуду собственных колебаний.

Далее найдем решение вне ионной сферы (при $r > R$). Дипольное решение уравнения Лапласа

$$\frac{\partial^2 \delta\varphi}{\partial r^2} + \frac{2}{r} \frac{\partial \delta\varphi}{\partial r} + \frac{1}{r^2 \sin \theta} \frac{\partial}{\partial \theta} \left(\sin \theta \frac{\partial \delta\varphi}{\partial \theta} \right) = 0, \quad (20)$$

регулярное на бесконечности, имеет вид

$$\delta\varphi(r, t) = \frac{B}{r^2} \cos \theta \cos \Omega t. \quad (21)$$

Здесь B — также константа.

Потенциал $\delta\varphi$ должен быть непрерывен на границе ионной сферы $r = R$. Из (19) и (21) следует, что

$$A \left(\frac{\sin kR}{kR^2} - \frac{\cos kR}{R} \right) = \frac{B}{R^2}. \quad (22)$$

Второе граничное условие состоит в непрерывности нормальной проекции вектора электрической индукции при $r = R$, т.е.

$$A \varepsilon \frac{d}{dr} \left(\frac{\sin kr}{kr^2} - \frac{\cos kr}{r} \right) \Big|_{r=R} = -B \frac{2}{R^3}. \quad (23)$$

Деля (23) на (22) почленно, мы исключаем константы A и B . Тем самым мы находим неявное выражение для собственной частоты Ω дипольных колебаний электронного облака кластера в приближении Томаса — Ферми:

$$\Omega = \omega_p \sqrt{1 + \frac{2(kR \cot kR - 1)}{(kR)^2}}. \quad (24)$$

В пределе очень малого кластера $kR \ll 1$ из (24) получаем

$$\Omega = \frac{\omega_p}{\sqrt{3}}, \quad (25)$$

т.е. хорошо известную частоту Ми поверхностных дипольных колебаний маленького (по сравнению с длиной волны c/Ω) металлического шарика. Из (24) следует, что с ростом радиуса R частота собственных колебаний убывает по сравнению с частотой Ми. В противоположном пределе кластера больших размеров ($kR \gg 1$) после некоторых вычислений из (24) находим

$$\Omega = \frac{\omega_p}{\sqrt{1 + 0,31(R/l)^2}}. \quad (26)$$

Здесь введена так называемая *томас-фермиевская длина экранирования*

$$l = (2\varphi_0)^{-1/4}.$$

Если $R/l \ll 1$, то из (19) следует, что $u(r) \sim r$ при $r < R$. Таким образом, в этом пределе квантовое экранирование отсутствует и напряженность электрического поля внутри кластера однородна. Это и представляет собой классическое поверхностное дипольное колебание электронного облака как целого (без изменения плотности) с частотой Ми (аналогичное колебаниям Гольдхабера — Теллера при ядерном дипольном резонансе). Решение (19), (21) совпадает в этом пределе с решением, получаемым на основе классического приближения хаотических фаз [21]. Томас-фермиевское экранирование существенно при $R/l > 1$. Разумеется, оно не может быть получено в рамках классического приближения хаотических фаз [21].

Уравнение (24) содержит также и тривиальное решение $\Omega = \omega_p$ ($k^2 R^2 \rightarrow -\infty$), которое соответствует классическим объемным плазменным колебаниям (с изменением плотности). В атомных ядрах аналогичные колебания Штейнведела — Йенсена реализуются только для сверхтяжелых элементов.

Отметим, что в случае ступенчатого распределения концентрации электронов классическое приближение хаотических фаз [21] дает две частоты колебаний: $\Omega = \omega_p/\sqrt{3}$ и $\Omega = \omega_p$. Однако динамическая поляризуемость кластера для ступенчатого распределения электронной концентрации не содержит резонанса при $\Omega = \omega_p$, так как соответствующая сила осциллятора равна нулю [21]. Согласно нашему квантовому подходу, основанному на приближении Томаса — Ферми, также имеются две моды колебаний, но более низкая частота уменьшается по сравнению с частотой Ми $\Omega = \omega_p/\sqrt{3}$ при увеличении размера кластера вследствие эффекта томас-фермиевского экранирования.

Рассмотрим типичный пример кластера из $n = 40$ атомов натрия. В этом случае $R/l = 9,5 \gg 1$. Из (24) следует, что $\Omega = 0,18\omega_p$. Таким образом, частота собственных колебаний металлических кластеров меньше частоты Ми $\Omega = \omega_p/\sqrt{3}$. Для натрия плазменная частота равна $\omega_p = 5,80$ эВ и, следовательно, $\Omega = 1$ эВ. Истинное значение собственной частоты согласно данным экспериментов несколько больше. Это объясняется тем фактом, что в расчетах не учитывалась диффузность распределения электронов. Диффузная граница электронного облака уменьшает эффект томас-фермиевского экранирования. Учет диффузности требует численных расчетов.

Можно сделать вывод, что квантовый металлический кластер принципиально отличается от маленького металлического шарика: собственная частота поверхностных колебаний кластера меньше частоты Ми из-за томас-фермиевского экранирования.

4.1.4. Динамическая поляризуемость кластера. В предыдущем разделе мы исследовали собственные дипольные поверхностные колебания электронного облака в металлическом кластере. Здесь рассмотрим вынужденные дипольные колебания, вызываемые внешним электромагнитным (лазерным) полем напряженностью $F \cos \omega t$. Вместо (21) решение дифференциального урав-

нения (20) вне ионной сферы (при $r > R$) имеет вид

$$\delta\varphi = F \left[-r + \frac{\alpha(\omega)}{r^2} \right] \cos \theta \cos \omega t, \quad (27)$$

где $\alpha(\omega)$ — динамическая поляризуемость кластера.

Решение уравнения (16) находится аналогично решению (19), но, разумеется, с фиксированной константой A и с заменой $\Omega \rightarrow \omega$:

$$\delta\varphi = A \left(\frac{\sin kr}{kr^2} - \frac{\cos kr}{r} \right) \cos \theta \cos \omega t,$$

причем согласно (15) имеем

$$k^2 = \frac{4\omega^2}{\pi(\omega_p^2 - \omega^2)l^2}$$

и $l = (2\varphi_0)^{-1/4}$ — томас-фермиевская длина экранирования.

Сшивка электрических потенциалов при $r = R$ дает уравнение

$$A \left(\frac{\sin kR}{kR^2} - \frac{\cos kR}{R} \right) = F \left[-R + \frac{\alpha(\omega)}{R^2} \right]. \quad (28)$$

Сшиваем далее нормальные компоненты вектора электрической индукции:

$$A\varepsilon \frac{d}{dr} \left(\frac{\sin kr}{kr^2} - \frac{\cos kr}{r} \right)_{r=R} = -F \left(1 + \frac{2\alpha(\omega)}{R^3} \right). \quad (29)$$

Деля (28) на (29) почленно, исключаем величины F и A и определяем динамическую поляризуемость:

$$\alpha(\omega) = R^3 \left[1 + \frac{3(1 - kR \cot kR)}{2(\varepsilon - 1)(1 - kR \cot kR) - \varepsilon(kR)^2} \right]. \quad (30)$$

Как и должно быть, динамическая поляризуемость обращается в бесконечность при собственных частотах, определяемых соотношением (24). Выражение (30) обобщает формулу (25) из работы [21] с учетом томас-фермиевского экранирования.

Рассмотрим различные предельные случаи общего выражения (30). Сначала возьмем предел кластеров малых размеров $R \ll l$ (отсутствие томас-фермиевского экранирования). В пределе высоких частот $\omega \gg \omega_p$ из (30) находим

$$\alpha(\omega) = R^3 \left[\frac{4R^2}{15\pi l^2} - \frac{1}{3} \left(\frac{\omega_p}{\omega} \right)^2 \right]. \quad (31)$$

Если $R/l \ll \omega_p/\omega \ll 1$, то из (31) следует, что

$$\alpha(\omega) = -\frac{n}{\omega^2}. \quad (32)$$

Это согласуется с хорошо известным высокочастотным пределом динамической поляризуемости [26] для $n = (4\pi R^3/3)N_e$ свободных электронов кластера.

Если выполняются неравенства $\omega_p/\omega \ll R/l \ll 1$, то из (31) следует, что

$$\alpha(\omega) = \frac{4}{15\pi} R^3 \left(\frac{R}{l} \right)^2 \ll R^3. \quad (33)$$

В статическом пределе $\omega \rightarrow 0$, $\varepsilon \rightarrow -\infty$ из (30) получаем

$$\alpha(0) = R^3.$$

Это хорошо известное классическое выражение для статической поляризуемости маленького металлического шарика. Конечно, если учесть диффузный характер электронного облака, то статическая поляризуемость возрастает по сравнению с приведенной величиной.

Наконец, согласно (31) $\alpha = 0$ при значении частоты

$$\omega = \omega_p \sqrt{\frac{5\pi}{4}} \frac{l}{R} \gg \omega_p. \quad (34)$$

На рисунке 2 динамическая поляризуемость $\alpha(\omega)$ приведена как функция частоты при значении $R/l = 0,5$ (слабое томас-фермиевское экранирование). В этом пределе резонансная частота равна частоте Ми $\omega_p/\sqrt{3}$ согласно результатам предыдущего раздела.

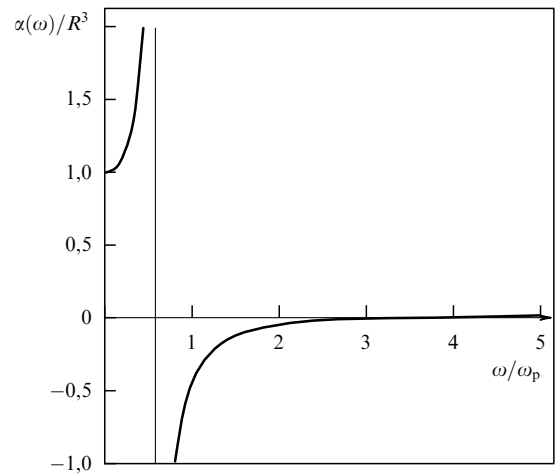


Рис. 2. Динамическая поляризуемость небольшого кластера ($R = 0,5l$) в единицах куба радиуса кластера как функция отношения частоты лазерного поля к плазменной частоте. Показан резонанс Ми.

Далее мы рассмотрим предел больших кластеров $R/l \gg 1$, соответствующий всем реальным металлическим кластерам с числом атомов $n \gg 1$. Из (30) следует, что вблизи резонансной частоты $\omega = \Omega$ (см. (26)) динамическая поляризуемость имеет резонансный характер

$$\alpha(\omega) = \frac{\text{const}}{\Omega^2 - \omega^2}. \quad (35)$$

Статическая поляризуемость для всех случаев равна R^3 .

Более сложное по сравнению с приближением Томаса–Ферми приближение зависящей от времени локальной плотности было использовано для определения оптического отклика в кластерах серебра [37]. Энергия возбуждения поверхностного плазменного колебания была найдена равной около 4 эВ, что согласуется с данными эксперимента [38].

В работе [39] вычислялась мнимая часть динамической поляризуемости для кластеров, содержащих порядка 100 атомов. Снова использовалось приближение зависящей от времени локальной плотности и приближение хаотических фаз.

При расширении кластера после воздействия лазерного импульса частота поверхностного плазменного колебания уменьшается со временем. В работе [20] в рамках приближения хаотических фаз показано, что в течение 350 фс после начала расширения кластера из 18 атомов платины эта частота уменьшается до 1,5 эВ, в результате чего достигается резонанс с частотой возбуждающего лазерного импульса (рис. 3).

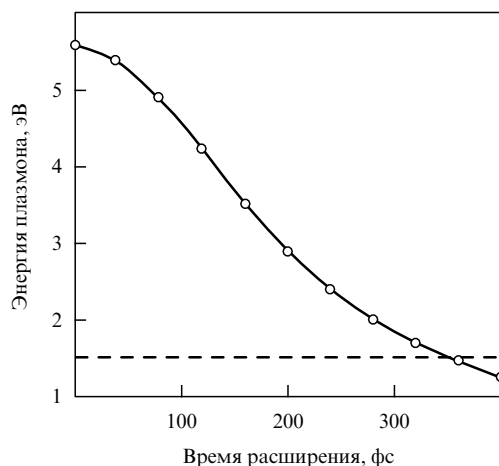


Рис. 3. Зависимость от времени энергии плазмона для расширяющегося кластера из 18 атомов платины с зарядом $Z' = 9$ [20]. Горизонтальная прямая показывает энергию фотона лазерного излучения.

Отметим, что зависящее от времени приближение Томаса–Ферми может быть получено из уравнений Власова путем интегрирования функции распределения по импульсам [24]. В результате гидродинамические уравнения для концентрации электронов $N_e(r, t)$ и локального поля средних скоростей электронов $\mathbf{v} = \nabla\psi$ (ψ — потенциал скоростей) записываются в виде

$$\frac{\partial N_e}{\partial t} + \text{div}(N_e \mathbf{v}) = 0; \quad (36)$$

$$\frac{\partial \psi}{\partial t} + \frac{1}{2}(\nabla\psi)^2 + \frac{\delta H}{\delta N_e} = 0. \quad (37)$$

Здесь H — функционал полной энергии в приближении локальной плотности.

4.2. Горячие кластерные ионы

Модель Томаса–Ферми для атома при произвольной электронной температуре недавно детально исследовалась Пертом [40]. Вместо ступенчатого распределения, соответствующего нулевой температуре, концентрация электронов вычисляется, исходя из распределения Ферми–Дирака. Однако в общем случае расчеты могут быть выполнены только численно. Мы рассмотрим здесь предел высоких температур $T \gg E_F$, который реализуется при облучении кластеров полем сверхсильного лазерного импульса (значения энергии Ферми E_F даны в табл. 1).

В случае горячего кластерного иона с $n \gg 1$ ионами и $n - Z'$ электронами (Z' — заряд кластера) согласно результатам предыдущего раздела сначала мы имеем дело с однородным распределением заряда по объему кластера. Тогда электрический потенциал внутри ионной сферы ($r < R$) может быть найден из электростатической

теоремы Гаусса:

$$\varphi(r) = \varphi(0) - \frac{2\pi}{3} \rho r^2. \quad (38)$$

Здесь $\rho = Z'/(4\pi R^3/3)$ — однородная плотность заряда в кластерном ионе. Потенциал (38) уменьшается на поверхности кластера при $r \sim R$. При вычислении концентрации электронов согласно классическому уравнению Больцмана (T — электронная температура)

$$N_e(r) \sim \exp\left[\frac{\varphi(r)}{T}\right]$$

мы находим, что происходит перераспределение электронов: их концентрация уменьшается на поверхности кластера и соответственно возрастает во внутренней области. Следовательно, плотность суммарного заряда электронов и ионов ρ уменьшается внутри кластера и возрастает на его поверхности. Это выравнивает электростатический потенциал. В итоге можно предположить, что потенциал является весьма плавной функцией радиальной координаты r , за исключением малой области вблизи границы кластера, где он быстро спадает. Само согласованное распределение электронов определяется уравнением Пуассона. Вычислим это распределение в предположении, что $Z' \ll n$, т.е. степень ионизации кластера мала.

При $r < R$ уравнение Пуассона имеет вид

$$\frac{d^2 \varphi}{dr^2} + \frac{2}{r} \frac{d\varphi}{dr} = \frac{3}{r_W^3} \left[\exp\left(\frac{\varphi - \varphi_0}{T}\right) - 1 \right]. \quad (39)$$

Здесь постоянная величина φ_0 представляет собой аналог химического потенциала. Граничные условия запишем в форме

$$\frac{d\varphi}{dr}(r=0) = 0; \quad \varphi(R) = \frac{Z'}{R}; \quad \frac{d\varphi}{dr}(r=R) = -\frac{Z'}{R^2}. \quad (40)$$

Предполагая кластер большим, мы пренебрегаем различием радиусов электронной и ионной сфер. При $r > R$ решение представляет собой кулоновский потенциал кластерного иона с зарядом Z' :

$$\varphi(r) = \frac{Z'}{r}.$$

Число электронов внутри кластера может быть выражено через потенциал:

$$n - Z' = \frac{3}{r_W^3} \int_0^R \exp\left(\frac{\varphi(r) - \varphi_0}{T}\right) r^2 dr. \quad (41)$$

Это соотношение получается также из (39), если умножить уравнение (39) на r^2 и проинтегрировать по r , принимая во внимание граничные условия (40). Таким образом, условие (41) не является новым, так как оно следует из уравнения (39) и граничных условий (40).

Для упрощения выкладок введем ряд обозначений:

$$x \equiv \frac{r}{R}; \quad \varphi(r) \equiv \frac{Z'}{R} \psi(x).$$

Тогда уравнение (39) принимает вид (при $x < 1$)

$$\psi'' + \frac{2}{x} \psi' = \frac{3n}{Z'} \left\{ \exp \left[\frac{Z'(\psi - \psi_0)}{RT} \right] - 1 \right\}. \quad (42)$$

Здесь $\psi_0 \equiv (R/Z')\varphi_0$. Граничные условия (40) записываются в форме

$$\psi'(0) = 0; \quad \psi(1) = 1; \quad \psi'(1) = -1. \quad (43)$$

Решение при $x > 1$ имеет вид

$$\psi(x) = \frac{1}{x}. \quad (44)$$

Ясно, что функция $\psi(x) \sim 1$ во всей области изменения переменной x .

Рассмотрим далее пограничный слой вблизи поверхности кластера $x = 1$. Правую часть уравнения (42) можно разложить в ряд Тейлора, так как в окрестности $x = 1$ величина

$$\frac{Z'}{RT} [\psi(x) - \psi_0] \ll 1.$$

Тогда получим простое линейное дифференциальное уравнение

$$\psi'' + \frac{2}{x} \psi' = \frac{3n}{RT} [\psi(x) - \psi_0].$$

Введем новую функцию

$$\Phi(x) = \psi(x) - \psi_0$$

и подставим ее в предыдущее уравнение:

$$\Phi'' + \frac{2}{x} \Phi' = \frac{3n}{TR} \Phi. \quad (45)$$

Следует отметить, что для больших кластеров всегда выполняется неравенство $3n/RT \gg 1$. Ищем решение уравнения (45) в виде

$$\Phi(x) = B \frac{\sinh kx}{x}.$$

Фактор k определяется соотношением

$$k = \sqrt{\frac{3n}{RT}}.$$

Из граничных условий (43) следует, что $\Phi'(1) = -\psi'(1) = -1$. Следовательно, константа

$$B = -\frac{2}{k} \exp(-k) \ll 1$$

и функция Φ мала по сравнению с единицей. Таким образом,

$$\psi(x) = \psi_0 - \frac{2}{k} \exp(-k) \frac{\sinh kx}{x}.$$

Так как $\psi(1) = 1$, то из предыдущего уравнения следует, что

$$\psi_0 = 1 + \frac{1}{k}.$$

Окончательно решение запишем как

$$\psi(x) = 1 + \frac{1}{k} \left[1 - 2 \exp(-k) \frac{\sinh kx}{x} \right].$$

Это решение удовлетворяет всем трем граничным условиям (43). Электрический потенциал, удовлетворяющий всем граничным условиям, при $r < R$ принимает вид

$$\varphi(r) = \frac{Z'}{R} \left\{ 1 + \frac{1}{k} \left[1 - 2R \exp(-k) \frac{\sinh(kr/R)}{r} \right] \right\}. \quad (46)$$

Можно сделать вывод, что распределение электронов внутри кластера с большой точностью является квазиоднородным. Отклонение имеет место только вблизи поверхности кластера.

Проверим выполнение условия (41) для полного числа электронов. Подставляя (46) в (41) и разлагая подынтегральное выражение в (41) в ряд Тейлора, с учетом неравенства $k \gg 1$ получаем

$$\begin{aligned} n - Z' &= \frac{3}{r_w^3} \int_0^R \left(1 + \frac{\varphi(r) - \varphi_0}{T} \right) r^2 dr = \\ &= n - \frac{6Z' \exp(-k)}{kTr_w^3} \int_0^R \sinh\left(\frac{kr}{R}\right) r dr. \end{aligned}$$

Вычисляя интеграл, находим

$$n - Z' = n - \frac{3Z'n}{k^2 RT} = n - Z',$$

что и должно быть.

Распределение концентрации электронов внутри кластера имеет вид

$$\begin{aligned} N_e(r) &= \frac{3}{4\pi r_w^3} \exp\left[\frac{\varphi(r) - \varphi_0}{T}\right] \approx \\ &\approx \frac{3n}{4\pi R^3} \left[1 - \frac{2Z' \exp(-k)}{kTr} \sinh\left(\frac{kr}{R}\right) \right]. \end{aligned}$$

Концентрация электронов на самой поверхности кластера $r = R$

$$N_e(R) = \frac{3n}{4\pi R^3} \left(1 - \frac{Z'}{kTR} \right).$$

Величина

$$\frac{Z'}{kTR} = \sqrt{\frac{Z'^2}{3nTR}} \ll 1.$$

Например, в случае $T = 1$ кэВ, $n = 10^5$, $Z' = 10^4$, $R = 100$ А находим, что эта величина равна 0,22.

Выше мы предполагали, что сферическая форма кластера не изменяется при воздействии лазерного импульса. Однако это справедливо только для больших кластеров. Маленькие кластеры, состоящие из поляризуемых частиц, могут образовывать другие равновесные конфигурации в поле лазерного излучения, вид которых сильно зависит от частоты излучения [41].

5. Ионизация кластеров

5.1. Внутренняя ионизация

Выберем для примера большой кластер, состоящий из 10^5 атомов. Вид атомов при воздействии сверхсильного лазерного импульса несуществен. Возьмем, например, атомы натрия ($Z = 11$), линейно поляризованное поле лазерного излучения с пиковой интенсивностью $I = 10^{15}$ Вт см $^{-2}$, частотой излучения $\omega = 1$ эВ и длитель-

ностью лазерного импульса $\tau = 50$ фс. Такой кластер имеет радиус $R = 100$ А.

Лазерный импульс вначале индуцирует дипольное возбуждение, заставляющее колебаться центр масс облака валентных электронов относительно ионной сферы. Эти колебания представляют собой поверхностные плазменные колебания Ми (см. предыдущий раздел). Период их колебаний для кластера из атомов натрия равен 1,5 фс. Однако очень скоро коллективные колебания возмущаются из-за ионизации атомов кластера. Распад поверхностного плазмона аналогичен затуханию Ландау. Для кластеров с 50–1000 атомами время такой релаксации плазмона составляет около 10 фс. При дальнейшем увеличении числа атомов n в кластере это время убывает как $n^{-1/3}$.

Столкновения электронов друг с другом происходят столь часто, что в кластере не возникает никаких температурных или иных градиентов. Электронная температура в кластере в течение лазерного импульса достигает значения порядка 1 кэВ (см. следующий раздел). Она однородна из-за высокой теплопроводности. Распределение электронов по энергиям изотропно и описывается классическим распределением Максвелла. Области, где справедливо распределение Максвелла, схематически показаны на рис. 4. Здесь $v_T = \sqrt{T}$ — тепловая скорость электронов, $v_F = F/\omega$ — полевая скорость. Распределение Максвелла справедливо в области слабых лазерных полей $v_T > v_F\sqrt{Z}$ и в области очень сильных лазерных полей $v_F > Zv_T$ [42].

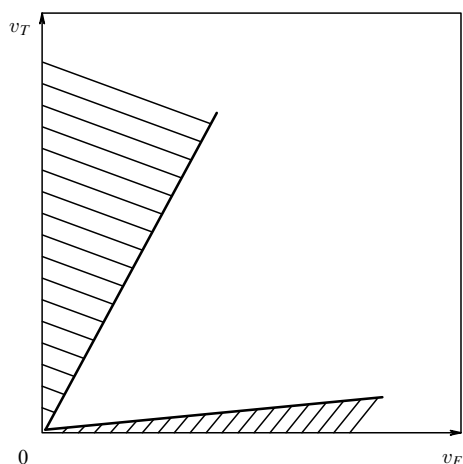


Рис. 4. Области применимости (заштрихованы) распределения Максвелла для случая $Z = 11$ [42]. По оси абсцисс отложена полевая скорость колебаний электрона в лазерном поле, по оси ординат — тепловая скорость электрона.

Нагрев электронной подсистемы происходит преимущественно из-за упругих электрон-ионных столкновений (обратный тормозной эффект), а также из-за других процессов (см. следующий раздел). Мы увидим, что

атомы в кластере полностью ионизируются из-за неупругих электрон-ионных столкновений. Тогда концентрация электронов становится равной $N_e = ZN$, причем концентрация атомов для жидкого металлического натрия равна (см. табл. 1) $N = 2,44 \times 10^{22}$ см $^{-3}$.

Плазма в кластере быстро приходит в состояние теплового равновесия, так как характерное время между электрон-электронными столкновениями мало по сравнению с длительностью лазерного импульса. Это время можно оценить как [43]

$$\tau_{ee} = \frac{3T^{3/2}}{4\sqrt{2\pi} N_e \ln A} \sim 1 \text{ фс}. \quad (47)$$

Здесь $\ln A \sim 10$ — типичное значение кулоновского логарифма. Такие столкновения представляют собой один из механизмов затухания, приводящих электронную подсистему к состоянию теплового равновесия.

Во всех приведенных оценках мы предполагаем, что кластер — это маленький плазменный шарик. Такое представление справедливо, если радиус кластера R велик по сравнению с длиной дебаевского экранирования r_D . При температуре $T = 1$ кэВ для кластера из атомов натрия последняя оценивается как

$$r_D = \sqrt{\frac{T}{4\pi N_e}} = 4,5 \text{ А}.$$

Мы рассматриваем в этом разделе так называемую *внутреннюю ионизацию*, когда электроны удаляются из своих атомов, но остаются внутри кластера. Внутренняя ионизация в кластерах обусловлена, в основном, неупругими электрон-ионными столкновениями. Равновесная концентрация N_Z различных атомарных ионов с зарядом Z определяется статистическим уравнением Саха [44] (если равновесие определяется только столкновениями)

$$\frac{N_Z N_e}{N_{Z-1}} = 2 \left(\frac{T}{2\pi} \right)^{3/2} \exp \left(-\frac{E_{Z-1}}{T} \right). \quad (48)$$

Здесь E_{Z-1} — потенциал ионизации атомарного иона с зарядом $Z - 1$.

Условие полного отрыва электронов всех атомарных оболочек может быть приближенно записано в форме $N_Z = N_{Z-1} = N/2$, где Z — теперь заряд атомного ядра ($Z = 11$ в рассматриваемом случае атомов натрия). Тогда водородоподобный потенциал ионизации $E_{Z-1} \approx Z^2/2$, и условие полной ионизации всех атомарных оболочек принимает вид ($N_e = ZN$)

$$ZN = 2 \left(\frac{T^*}{2\pi} \right)^{3/2} \exp \left(-\frac{Z^2}{2T^*} \right). \quad (49)$$

В рассматриваемом случае атомов натрия из этого уравнения мы получим значение $T^* = 0,34$ кэВ. В таблице 2 приведены значения температуры T^* для

Таблица 2. Электронная температура T^* , требуемая для полной внутренней ионизации атомов в кластере, и показатель экспоненты $u(T^*) = Z^2/2T^*$

Атом	Li	Na	Al	K	Cu	Mo	Ag	Cs	W	Au
T^* , кэВ	0,046	0,34	0,50	0,78	2,06	3,77	4,54	4,90	10,2	11,4
$u(T^*)$	2,66	4,84	4,60	6,30	5,55	6,36	6,62	8,40	7,30	7,45

полной внутренней ионизации атомов в различных металлических кластерах, рассчитанные согласно (49).

Внутренняя ионизация может быть обусловлена, помимо неупругих электрон-ионных столкновений, также и надбарьерной ионизацией атомарных ионов полем лазерного излучения.

Роудс с сотрудниками [11, 45] предложили другой механизм внутренней ионизации кластеров из атомов инертных газов полем сверхсильного лазерного импульса. Импульс производит многократную ионизацию одновременно одной или нескольких валентных оболочек (или всей электронной оболочки атома в зависимости от интенсивности импульса). Это происходит в области вблизи поверхности кластера, где лазерное поле не экранировано. Образованные n свободных электронов рассматриваются как одна квазичастица с массой nm_e и зарядом ne , так как она имеет небольшой размер по сравнению с расстоянием до соседних атомов в достаточно разреженном кластере из атомов инертных газов. Эта квазичастица колеблется как целое под действием лазерного поля. В процессе таких колебаний она сталкивается с соседними атомарными ионами, в результате чего сечение неупругого соударения увеличивается в $n \gg 1$ раз по сравнению со случаем соударения одного электрона. Дальнейшая внутренняя ионизация кластера происходит в результате обдирки внутренних электронов атомов указанной квазичастицей. При этом появляются вакансии во внутренних электронных оболочках и генерируется жесткое рентгеновское излучение [12].

Ионы с высокой кратностью заряда (например, Xe^{20+} , Kr^{18+}) действительно возникают при взаимодействии сверхсильного лазерного излучения (интенсивностью порядка 10^{15} Вт см $^{-2}$) с кластерами из атомов инертных газов [46]. При этом нет большой разницы по сравнению с металлическими кластерами, так как начальная ионизация может производиться непосредственно полем лазерного излучения. На рисунке 5 демонстрируется появление ионов вплоть до Xe^{20+} .

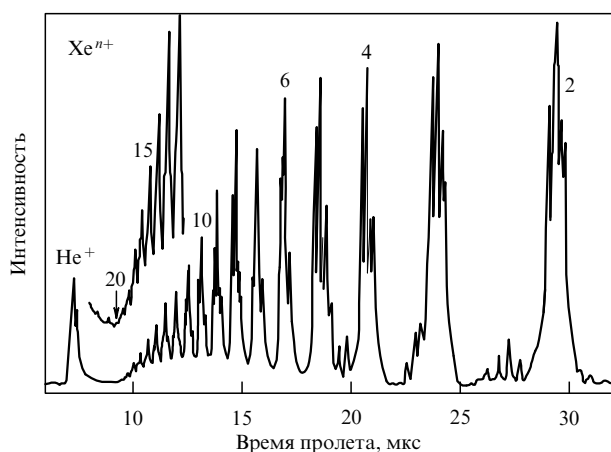


Рис. 5. Времяпролетный спектр многозарядных кластерных ионов ксенона, ионизованных лазером с длиной волны 624 нм [46].

5.2. Ионизация при неупругих электрон-ионных столкновениях

Полная внутренняя ионизация всех атомарных оболочек кластера, рассмотренная в предыдущем разделе, требует

определенного времени для своей реализации, которое должно быть меньше длительности ультракороткого лазерного импульса. В данном разделе приведем ряд оценок этого времени.

Многократная внутренняя ионизация возникает из-за неупругого столкновения горячих электронов с многозарядными ионами кластера. Сечение этого процесса (в атомных единицах) дается хорошо известной полуэмпирической формулой Лотца [47]

$$\sigma = 2,17q \frac{\ln(E/E_Z)}{EE_Z}. \quad (50)$$

Здесь E — кинетическая энергия налетающего электрона, E_Z — потенциал ионизации рассматриваемого атомарного иона с зарядом Z , q — число электронов в ионизуемой атомарной оболочке. Далее мы используем водородоподобное значение $E_Z = Z^2/2$. Следовательно, скорость рассматриваемого процесса получается из (50) в виде

$$w = N_e v \sigma = \frac{17,34N}{vZ} \ln \frac{v}{Z}. \quad (51)$$

Здесь v — скорость налетающего электрона, N_e — концентрация электронов, N — концентрация атомов в кластере (все величины измеряются в атомных единицах).

Скорость электрона имеет две компоненты: тепловую скорость $\sqrt{T}$ и индуцированную полевою скорость F/ω . В более типичном случае $\sqrt{T} > F/\omega$ (см. оценки в конце раздела 2) следует усреднить (51) по распределению Максвелла. Предполагая $T \ll Z^2/2$ (см. табл. 2), находим

$$w = 13,8 \frac{N\sqrt{T}}{Z} \exp\left(-\frac{Z^2}{2T}\right). \quad (52)$$

В противоположном пределе $\sqrt{T} < F/\omega$ можно просто подставить значение $v = F/\omega$ в (51):

$$w = \frac{17,34\omega N}{FZ} \ln \frac{F}{\omega Z}. \quad (53)$$

Конечно, мы здесь предполагаем, что столкновительная ионизация имеет место в максимуме напряженности электрического поля $F \cos \omega t$. Из (53) видно, что для указанного режима должно выполняться условие, ограничивающее снизу напряженность поля: $F/\omega > Z$. Оно более сильное, чем приведенное выше условие $F/\omega > \sqrt{T}$.

В рассмотренном примере кластера из атомов натрия при $T = 1$ кэВ, интенсивности лазерного излучения $I = 10^{15}$ Вт см $^{-2}$ (напряженности поля $F = 0,166$ а.е.), частоте лазерного излучения $\omega = 1$ эВ находим, что отношение $\omega\sqrt{T}/F = 1,35$. Так как значение $F/\omega = 4,5 < Z = 11$, то механизм ионизации является тепловым и определяется соотношением (52). При полной ионизации всех атомарных оболочек кластера с атомами натрия мы получаем из (52) $w = 0,22$ фс $^{-1}$. Таким образом, электрон-ионные столкновения происходят весьма часто в течение длительности ультракороткого лазерного импульса.

5.3. Проникновение лазерного излучения в кластер

Электромагнитное поле лазерного излучения проникает внутрь кластера и затухает в нем. Глубина проникнове-

ния δ , связанная с возбуждением плазменных колебаний, может быть оценена как мнимая часть длины волны внутри кластера [48]:

$$\delta = \frac{c}{\omega \sqrt{|\varepsilon|}}. \quad (54)$$

Диэлектрическая проницаемость, входящая в это соотношение,

$$\varepsilon = 1 - \frac{4\pi ZN}{\omega^2} < 0. \quad (55)$$

В нашем случае кластера из атомов натрия для видимого диапазона частот имеем $|\varepsilon| = 370$ и $\delta = 100$ А. Таким образом, эта часть затухания лазерного излучения несущественна. Можно сделать вывод, что плазменные колебания могут быть возбуждены только в условиях резонанса.

Другая часть затухания обусловлена электрон-ионными соударениями. В τ -приближении стационарное кинетическое уравнение Больцмана имеет вид (при $\omega \ll v_{ei}$)

$$F \cos \omega t \frac{df_0}{dv_x} = -v_{ei} f'. \quad (56)$$

Здесь f' — малое возмущение равновесной максвелловской функции распределения f_0 , x — направление вектора напряженности линейно поляризованного лазерного излучения, v_{ei} — вероятность упругого электрон-ионного соударения в единицу времени. Последняя имеет хорошо известный вид [43] (см. также выше (47))

$$v_{ei} = \frac{4\sqrt{2\pi} Z^2 N}{3T^{3/2}} \ln \Lambda = 2,5 \text{ фс}^{-1}. \quad (57)$$

Мы видим, что эта величина порядка частоты лазерного излучения $\omega \approx 2 \text{ фс}^{-1}$.

Следует отметить, что выражение (57) справедливо для быстрых электронов ($T \gg Z^2$). В случае медленных электронов ($T \ll Z^2$) ситуация оказывается более сложной [49]. Выражение (57) справедливо только при выполнении условия на частоту лазерного излучения $Z\omega \ll T^{3/2}$, когда электроны рассеиваются, в основном, на малые углы. Если выполняется противоположное неравенство $Z\omega \gg T^{3/2}$, то вероятность электрон-ионных соударений зависит от лазерной частоты и записывается в следующей форме [49]:

$$v_{ei} = \frac{4\pi^{3/2} N}{15 \times 3^{5/6} \sqrt{2T}} \frac{\Gamma(1/3)}{\Gamma(2/3)} \left(\frac{2Z^2}{\omega} \right)^{2/3}.$$

В этом пределе существенно рассеяние электронов на большие углы, и поэтому кулоновский логарифм отсутствует.

Вычислим среднюю энергию, приобретаемую электроном в единицу времени от лазерного излучения (напомним, при условии $\omega \ll v_{ei}$):

$$\frac{dE}{dt} = \langle v_x F \cos \omega t \rangle = \frac{F^2}{2} \left\langle \frac{v_x}{v_{ei}} \frac{df_0}{dv_x} \right\rangle. \quad (58)$$

Мы произвели здесь замену $\langle \cos^2 \omega t \rangle \rightarrow 1/2$. Вычисляя в (58) простой интеграл с функцией распределения Мак-

свелла f_0 и учитывая (57), находим плотность мощности $P_a = N_e dE/dt$, которая поглощается в единицу объема кластера:

$$P_a = \frac{F^2}{Z \ln \Lambda} \left(\frac{2T}{\pi} \right)^{3/2}. \quad (59)$$

Интенсивность лазерного излучения $I = cF^2/8\pi$ убывает с глубиной z проникновения в кластер. Соответствующее уравнение имеет вид

$$\frac{dI}{dz} = -P_a = -\frac{8\pi}{cZ \ln \Lambda} \left(\frac{2T}{\pi} \right)^{3/2} I. \quad (60)$$

Его решение соответствует экспоненциальному затуханию излучения:

$$I(z) = I_0 \exp\left(-\frac{z}{l}\right),$$

где глубина проникновения лазерного излучения в кластер l определяется соотношением

$$l = \frac{cZ \ln \Lambda}{8\pi} \left(\frac{\pi}{2T} \right)^{3/2}. \quad (61)$$

В случае кластера из атомов натрия и температуры $T = 1$ кэВ глубина $l = 1,7$ А. Эта величина мала по сравнению с радиусом кластера R .

В противоположном пределе $\omega \gg v_{ei}$ плотность мощности, поглощаемой внутри единицы объема кластера, дается известным соотношением теории вынужденного тормозного эффекта при электрон-ионных соударениях [50]

$$P_a = \frac{F^2}{\omega^2} v_{ei} N_e = I \frac{32\pi\sqrt{2\pi} Z^3 N^2}{3c\omega^2 T^{3/2}} \ln \Lambda. \quad (62)$$

Отметим, что величина F^2/ω^2 представляет собой энергию, которую приобретает электрон от электромагнитного поля при каждом соударении с ионом. В этом пределе длина проникновения лазерного излучения в кластер

$$l' = \frac{3c\omega^2 T^{3/2}}{32\pi\sqrt{2\pi} Z^3 N^2 \ln \Lambda} = 1,5 \text{ А}. \quad (63)$$

Таким образом, видно, что в обоих пределах $\omega \ll v_{ei}$ и $\omega \gg v_{ei}$ глубина проникновения лазерного излучения внутрь кластера мала по сравнению с его размерами. Приведенные выше результаты справедливы для однородной плазмы.

Многочисленная внутренняя ионизация может быть произведена также свободными электронами вблизи поверхности кластера: эти электроны получают энергию порядка пондеромоторной энергии $F^2/4\omega^2$ от электромагнитного поля. Такой механизм эффективен в случае длинноволнового лазерного излучения [51].

Следовательно, можно сделать вывод, что лазерное излучение не проникает внутрь кластера и поглощается в тонком слое вблизи его поверхности (конечно, большая часть лазерного излучения отражается от кластера). Причиной поглощения являются эффективные электрон-ионные соударения.

5.4. Внешняя ионизация

Рассмотрим ионизацию кластера, т.е. удаление электронов из кластера на бесконечность с образованием кластерного иона. В случае металлического кластера первоначально имеются электроны проводимости кластера. Первый механизм ионизации состоит в удалении этих электронов с поверхности кластера внешним электромагнитным полем (*холодная* ионизация). Такой процесс заканчивается, когда сила притяжения электрона к образованному кластерному иону превышает силу, действующую со стороны электромагнитного поля. На основе закона Кулона можно определить заряд кластерного иона Z' при окончании указанного процесса:

$$Z' = FR^2. \quad (64)$$

Например, при интенсивности лазерного излучения $I = 10^{15}$ Вт см $^{-2}$ (напряженности поля $F = 8,5 \times 10^8$ В см $^{-1}$) и $R = 215$ А находим $Z' = 27200$. Число испущенных электронов на основе указанного механизма мало по сравнению с полным числом электронов в горячем кластере из атомов натрия (последнее равно $Zn = 1,1 \times 10^7$).

В работе [52] исследована первоначальная многократная ионизация больших кластеров из атомов благородных газов путем подавления электростатического барьера в сверхсильном электромагнитном поле. Предполагается, что такие электроны за атомное время покидают как родительский атом, так и кластер. Как пример в рамках одномерной модели рассматривается ионизация кластеров, состоящих из 1100 атомов ксенона, в лазерном поле интенсивностью 10^{16} Вт см $^{-2}$. Найдено, что надбарьерная ионизация приводит к образованию кластерного иона с зарядом $Z' = 1200$. Дальнейшая ионизация происходит в рамках другого механизма. Равновесное состояние образованного кластерного иона можно рассматривать как проводящую сферу с зарядом, сосредоточенным в тонком слое на его поверхности (см. раздел 4). Сверхсильное кулоновское поле в этом слое выбивает дополнительные электроны из атомарных ионов в направлении к центру кластера. Эти электроны, приобретая большую скорость, затем покидают кластер. Найдено, что в результате заряд кластерного иона увеличивается до $Z' = 2600$. Это — так называемый *механизм зажигания* [53]. Например, напряженность электрического поля на поверхности кластера с 25 атомами неона, когда все атомы однократно ионизованы, составляет величину порядка $F = 5 \times 10^{12}$ В см $^{-1}$. Надбарьерная ионизация в таком поле весьма сильная и, в свою очередь, приводит к дальнейшему увеличению напряженности поля (отсюда и название механизма). Итак, поля, созданные в начале ионизации, "зажигают" кластер, вызывая дальнейшую ионизацию.

В случае кластеров из атомов благородных газов ситуация схожа со случаем металлических кластеров. Конечно, никаких электронов проводимости в кластере из атомов благородных газов нет перед началом лазерного импульса. Однако надбарьерная ионизация атомов и атомарных ионов благородных газов полем лазерного излучения быстро приводит к образованию электронов проводимости. Условие Бете для надбарьерной ионизации имеет простой вид [54, 55]:

$$F \geq \frac{E_Z^2}{4Z}, \quad (65)$$

где E_Z — потенциал ионизации атомарного иона, Z — заряд этого иона. Например, для атомов неона $E_1 = 21,5$ эВ, и однократная ионизация всех атомов кластера происходит при напряженности поля $F = 8,0 \times 10^8$ В см $^{-1}$. Такая ионизация происходит очень быстро (за атомное время, т.е. порядка 0,01 фс). Однако надбарьерная ионизация образованного атомарного иона Ne^+ таким полем согласно (65) невозможна, поскольку потенциал ионизации этого иона равен 41,0 эВ и требуемая напряженность поля $F = 1,5 \times 10^9$ В см $^{-1}$. Конечно, в последнем случае возможна туннельная ионизация, но она происходит за очень большое время.

Согласно соотношениям (64), (65) можно найти степень внешней ионизации кластера Z' в рамках механизма "зажигания". Исключая напряженность поля F из этих соотношений, находим

$$Z' = \frac{R^2 E_Z^2}{4Z}.$$

Например, для кластера из 1000 атомов ксенона получаем $R = 25$ А, и при полной двукратной ионизации атомов ксенона находим $Z' = 330$.

Экспериментальные данные для кластеров из молекул CH_2I , облучаемых фемтосекундным титан-сапфировым лазером с длиной волны 795 нм [56], показывают, что ионизация этих кластеров может иметь место как вследствие механизма "зажигания", так и в рамках модели когерентного электронного движения [11].

Еще один механизм испускания электронов с поверхности кластера — это обычная термоэмиссия. Она описывается известной формулой Ричардсона–Дэшмена для тока термоэмиссии со сферической поверхности кластера (в атомных единицах) [57, 58]:

$$\frac{dZ'}{dt} = A_0 T^2 4\pi R^2 \exp\left(-\frac{J_{Z'}}{T}\right). \quad (66)$$

Здесь $A_0 = 1/(2\pi^2)$ — так называемый параметр Ричардсона. Величина $J_{Z'} = Z'/R$ — потенциал ионизации кластерного иона с зарядом $Z' \gg 1$, когда можно пренебречь работой выхода.

Эта зависимость подтверждается экспериментальными данными [59] (рис. 6). Логарифм скорости испускания электронов для небольших анионных кластеров из вольфрама с числом частиц от 4 до 20 в соответствии с (66) представляет собой прямую линию как функция обратной температуры $1/T$.

Интегрируя соотношение (66) по времени τ действия лазерного импульса, получаем конечный заряд кластерного иона (с учетом неравенства $J_{Z'} \gg T$)

$$Z' = TR \ln \frac{2TR\tau}{\pi} \gg TR. \quad (67)$$

Для рассмотренного выше примера кластера из атомов натрия $Z' = 240\,000$. Таким образом, термоэмиссия представляет собой гораздо более эффективный механизм ионизации кластеров по сравнению с полевой (холодной) эмиссией. При интенсивности $I = 10^{15}$ Вт см $^{-2}$ находим, что для натриевого кластера с 10^6 атомами (полное число электронов в нем равно $1,1 \times 10^7$) всего испускается около 270 000 электронов. Степень ионизации кластера оказывается, тем не менее,

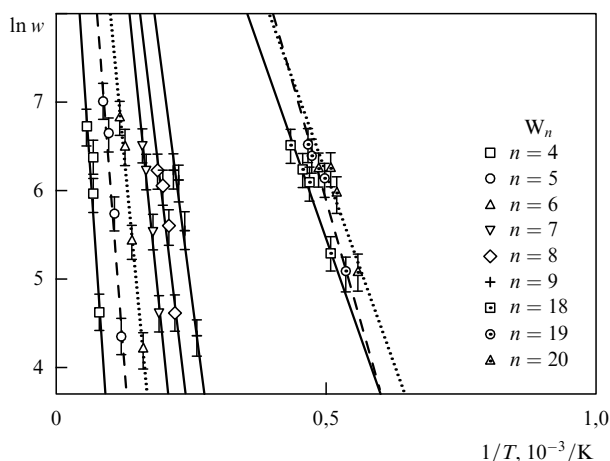


Рис. 6. Экспериментальные значения вероятности испускания электронов в единицу времени как функции обратной электронной температуры для кластерных анионов вольфрама с различным числом частиц n [59]. Скорость испускания электронов измеряется в единицах $1/\text{с}$.

малой: для рассматриваемого кластера из вольфрама она равна 2,4 %. Аналогичные простые расчеты могут быть сделаны на основе приведенных выше соотношений для других металлических кластеров, а также кластеров из атомов инертных газов с произвольным числом частиц и другими параметрами.

Ионизация небольших кластеров ($n < 100$), облучаемых интенсивными лазерными импульсами, в рамках метода функционала плотности с зависимостью от времени на основе распределения Больцмана изучалась в работе [60]. Отметим, что уравнения Власова являются квазиклассическим приближением этого метода.

В рамках того же метода было показано [30], что большинство испускаемых электронов вылетают из кластера на начальной стадии лазерного импульса, а именно, приблизительно через 5–10 фс после включения импульса.

Согласно экспериментальным данным работы [18] увеличение длительности лазерного импульса приводит к более эффективной внешней ионизации металлических кластеров. Дополнительная ионизация объясняется удалением электронов из атомарных ионов во время кулоновского взрыва кластера. Определенный вклад может внести и туннельная ионизация длинными лазерными импульсами. Расчет ее вероятности проводится на основе модели Аммосова – Делоне – Крайнова [61].

Энергетические спектры фотоэлектронов рассчитаны в работе [62] для металлических кластеров, содержащих порядка 100 атомов. Как и для атомов, реализуется экспоненциальное убывание числа фотоэлектронов с увеличением их кинетической энергии.

В работе [63] предложен еще один механизм внешней ионизации кластеров. Исследовался интенсивный резонанс Ми для сферического кластерного иона Na_{93}^{+} , возбуждаемый фемтосекундным лазером, в результате чего происходила внешняя ионизация этого кластерного иона. Измерялись размеры кластерных ионов и их зарядовое распределение. Наблюдался выход большого числа двухзарядных и трехзарядных кластерных ионов. В то же время указанный эффект отсутствовал при облучении наносекундным лазерным импульсом с теми же

длиной волны и энергией в импульсе. Процесс эффективной внешней ионизации коротким лазерным импульсом объясняется автоионизацией при возбуждении резонанса Ми. Простая оценка времени жизни резонанса Ми составила величину порядка 10 фс.

Из содержания данного раздела можно сделать следующие выводы:

- 1) ионизация больших кластеров, облучаемых сильными ультракороткими лазерными импульсами, реализуется путем термоэмиссии с поверхности кластера;
- 2) степень ионизации мала;
- 3) лазерное излучение не проникает внутрь кластера из-за сильного поглощения на поверхности — электроны поглощают электромагнитную энергию при упругих столкновениях с ионами.

6. Поглощение излучения кластером

В этом разделе мы обратимся к процессу поглощения электромагнитного излучения нагретым кластером. Наблюдаемое сечение поглощения можно аппроксимировать лоренцевой кривой [64, 65] (в некоторых случаях ее форма оказывается более сложной [66, 67]):

$$\sigma_a(\omega) = \sigma_{\max} \frac{\Gamma^2}{(\omega - \omega_0)^2 + \Gamma^2}.$$

Здесь ω — частота излучения, ω_0 — резонансная частота, Γ — ширина резонансной линии, $\sigma_{\max}$ — максимальное сечение поглощения.

Имеются два механизма поглощения. Первый определяется поверхностными плазменными колебаниями, и $\omega_0 = \omega_p/\sqrt{3}$ — частота Ми [5]. Второй механизм связан с переходами между состояниями отдельных атомарных ионов в кластере [68]. Тогда ω_0 — частота такого перехода. В обоих случаях сечение поглощения пропорционально числу $n'(T)$ проводящих электронов в кластере при заданной (высокой) электронной температуре. Например, для кластера из атомов калия имеем

$$\sigma_{\max} = (3,4 \pm 0,6) \times 10^{-17} n' \text{ см}^2.$$

Число n' увеличивается с ростом температуры. Ниже мы не будем конкретизировать механизм поглощения, а предположим, что указанное сечение не зависит от интенсивности лазерного излучения.

Уравнение баланса энергии для нагретого кластерного иона с зарядом Z' имеет вид

$$\frac{d}{dt}(Z'J_{Z'}) + \frac{3}{2} \frac{d(n'T)}{dt} = I\sigma_a(n')n. \quad (68)$$

Здесь n — число атомов в кластере, I — интенсивность лазерного излучения, $J_{Z'}$ — потенциал ионизации кластерного иона (см. раздел 2).

Первый член в левой части (68) соответствует энергии электронов, вылетающих из кластера в единицу времени, второй описывает нагрев кластерных электронов. Правая часть (68) представляет собой энергию лазерного излучения, поглощаемую кластером в единицу времени. При этом следует иметь в виду, что обмен энергией между двумя электронами происходит гораздо интенсивнее, чем обмен энергией между электроном и ионом. Поэтому для электронов справедливо распределение Максвелла, и можно определить электронную темпера-

туру T . Тепловая энергия электрона значительно больше энергии Ферми (см. табл. 1). Поэтому тепловая энергия электрона представляет собой классическую величину $3T/2$.

Выше уже отмечалось, что испарение электронов аналогично хорошо известному явлению термоэмиссии [57, 58], а полевой эмиссией можно пренебречь. Для тока термоэмиссии можно использовать хорошо известную формулу Ричардсона – Дэшмена (66). Из (67) следует, что с логарифмической точностью выполняется соотношение

$$J_{Z'} = CT, \quad (69)$$

где $J_{Z'} = Z'/R$, а величина

$$C = \ln\left(\frac{2TR\tau}{\pi}\right) \quad (70)$$

с логарифмической точностью может рассматриваться как константа. Также с логарифмической точностью мы заменили здесь текущее время t на длительность лазерного импульса τ . Подчеркнем еще раз, что в потенциале ионизации мы пренебрегаем работой выхода. Окончательно находим

$$Z' = CRT. \quad (71)$$

Таким образом, уравнение баланса энергии (68) можно переписать в виде

$$\frac{d}{dt} \left(\frac{3}{2} n' T + C^2 R T^2 \right) = I \sigma_a(n') n = I \sigma_a(n) n'. \quad (72)$$

Интегрируя это уравнение по времени, для электронной температуры T после окончания лазерного импульса получаем

$$T \left(1 + \frac{2}{3n'} C^2 R T \right) = \frac{2}{3} I \sigma_a(n) \tau. \quad (72)$$

Рассмотрим пример кластера из $n = 10^5$ атомов натрия, облучаемого лазерным импульсом длительностью $\tau = 50$ фс и пиковой интенсивностью $I = 10^{15}$ Вт см $^{-2}$. В этом случае сечение поглощения $\sigma_a(n) \approx 0,7$ А 2 и $R = 100$ А. Из (70) находим константу $C = 12$. Забегая вперед, считаем, что кластер нагревается столь сильно, что каждый атом натрия в кластере теряет все свои 11 электронов (см. табл. 2), так что $n' = 1,1 \times 10^6$. Из уравнения (72) следует, что после окончания лазерного импульса электронная температура $T = 1$ кэВ. Экспериментальные данные [6] подтверждают эти оценки (рис. 7).

В работе [69] наблюдались испущенные электроны с температурами от 1 до 2 кэВ из кластеров, состоящих из $n = 1000 - 2000$ атомов ксенона. Эти кластеры облучались лазерными импульсами с пиковой интенсивностью $I = 10^{16}$ Вт см $^{-2}$.

Кулоновские столкновения высокоэнергетических электронов с холодными ионами могут приводить к передаче тепловой энергии от электронов к ионам. Время выравнивания электронной температуры T и ионной температуры T_i дается соотношением

$$\tau_{eq} = \frac{3M_i}{4\sqrt{2\pi} N Z^2 \ln A} \left(T + \frac{1}{M_i} T_i \right)^{3/2}.$$

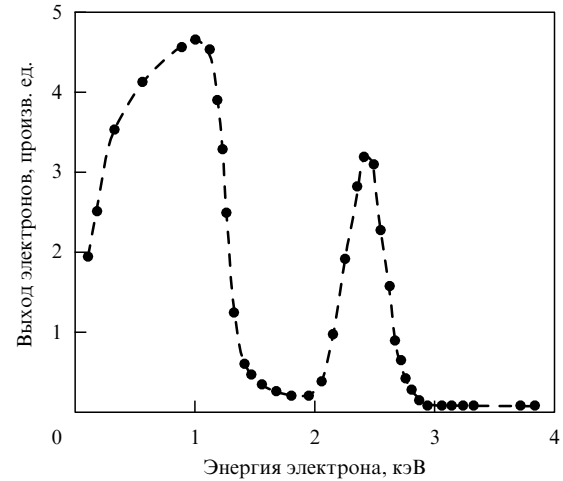


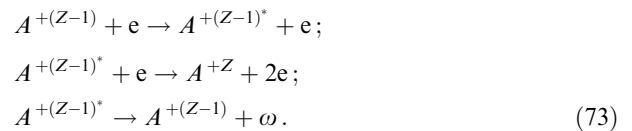
Рис. 7. Экспериментальный энергетический спектр электронов для кластера из 2100 атомов ксенона [6].

Здесь M_i — масса иона. Из этой формулы следует, что, например, для кластера из атомов аргона с $Z = 8$ и электронной температуры $T = 1$ кэВ (а ионы предполагаются изначально холодными) время выравнивания обеих температур составляет около 30 пс. Таким образом, этот механизм передачи энергии совершенно несуществен для кластеров, нагреваемых фемтосекундными лазерными импульсами. Преимущественный механизм передачи энергии от электронов к ионам обусловлен радиальным расширением кластера (см. раздел 9).

7. Рентгеновское излучение

7.1. Статистическое равновесие с учетом рентгеновского излучения

Излучение многозарядных ионов изменяет статистическое равновесие между атомарными ионами с различными зарядами Z . Рассмотрим упрощенную схему этого излучения совместно со столкновительным возбуждением и ионизацией:



Здесь A^{+Z} характеризует основное состояние атомарного иона с зарядом Z , а A^{+Z*} — возбужденное состояние этого иона. Распад возбужденного состояния может происходить по двум каналам: дальнейшая ионизация и испускание рентгеновского фотона с переходом снова в основное состояние.

Вероятность возбуждения (первая строка в (73)) при электрон-ионном столкновении может быть определена с использованием известных полумпирических соотношений [70]. В частности, вероятность возбуждения из основного водородоподобного состояния многозарядного иона в его первое возбужденное состояние (а.е.) имеет вид

$$k_{exc} = \frac{4,62}{Z^3} \frac{\sqrt{u(1+u/4)}}{1+3u/2} \exp\left(-\frac{3u}{4}\right) \ln\left(16 + \frac{4}{3u}\right). \quad (74)$$

Здесь введено обозначение

$$u \equiv \frac{Z^2}{2T}. \quad (75)$$

Константа скорости для обратного процесса тушения возбуждения может быть получена из (74) на основе принципа детального равновесия с учетом, что концентрации ионов в основном и возбужденном состояниях удовлетворяют закону Больцмана

$$k_q = k_{\text{exc}} \frac{g_0}{g_{\text{exc}}} \exp\left(\frac{3u}{4}\right). \quad (76)$$

Отношение статистических весов для водородоподобного 1s–2p-перехода $g_{\text{exc}}/g_0 = 3$. Подставляя (74) в (76), находим

$$k_q = \frac{1,54}{Z^3} \frac{\sqrt{u(1+u/4)}}{1+3u/2} \ln\left(16 + \frac{4}{3u}\right). \quad (77)$$

Теперь проанализируем процесс (вторая строка в (73))

$$A^{+(Z-1)*} + e \rightarrow A^{+Z} + 2e,$$

принимая во внимание только первое возбужденное водородоподобное 2p-состояние, рассмотренное выше. Уравнение статистического равновесия Саха для этого процесса имеет вид

$$\frac{N_Z N_e}{N_{Z-1}^*} = \frac{2}{3} \left(\frac{T}{2\pi}\right)^{3/2} \exp\left(-\frac{J_{Z-1}^*}{T}\right). \quad (78)$$

В этом соотношении число 3 ответственно за статистический вес 2p-состояния, а число 2 — за статистический вес электрона с двумя проекциями спина. Величина N_Z представляет собой концентрацию атомарных ионов с зарядом Z в основном 1s-состоянии, N_e — концентрация электронов, а N_{Z-1}^* — концентрация ионов с зарядом $Z-1$ в возбужденном 2p-состоянии. Потенциал ионизации этих ионов приближенно равен $J_{Z-1}^* \approx Z^2/8$.

Наконец, в случае процесса (третья строка в (73))

$$A^{+(Z-1)*} \rightarrow A^{+(Z-1)} + \omega$$

связь между концентрациями этих компонент в статистическом равновесии дается снова уравнением Саха:

$$\frac{N_{Z-1}^* N_e^{\text{ph}}}{N_{Z-1} N_a^{\text{ph}}} = 3 \exp\left(-\frac{J_{Z-1} - J_{Z-1}^*}{T}\right). \quad (79)$$

Здесь $J_{Z-1} \approx Z^2/2$ — потенциал ионизации для основного 1s-состояния, величина

$$N_a^{\text{ph}} = N_e k_q \tau_r$$

представляет собой число фотонов, поглощенных в 1s-состоянии атомарного иона, причем τ_r — время жизни для спонтанного 2p–1s-перехода. Наконец, величина

$$N_e^{\text{ph}} = N_e k_q \tau_r + 1$$

представляет собой число фотонов, испущенных из 2p-состояния (в соответствии с соотношением Эйнштейна). В водородоподобном приближении время спонтанного

перехода дается формулой

$$\tau_r = \frac{\tau_0}{Z^4}, \quad \tau_0 = 1,6 \text{ нс}.$$

В рассматриваемых здесь случаях реализуется неравенство $N_a^{\text{ph}} \ll 1$.

Перемножая почленно уравнения (78) и (79), находим

$$\frac{N_Z N_e}{N_{Z-1}} \left(1 + \frac{1}{N_e k_q \tau_r}\right) = 2 \left(\frac{T}{2\pi}\right)^{3/2} \exp\left(-\frac{J_{Z-1}}{T}\right).$$

Условие полной ионизации всех атомных оболочек атомарных ионов в кластере с учетом резонансно возбужденного состояния записывается в виде $N_Z = N_{Z-1}$, где Z — теперь заряд атомного ядра. Таким образом, получаем уравнение для определения температуры T_b , при которой достигается полная ионизация:

$$1 + \frac{1}{N_e k_q \tau_r} = \frac{2}{N_e} \left(\frac{T_b}{2\pi}\right)^{3/2} \exp\left(-\frac{J_{Z-1}}{T_b}\right). \quad (80)$$

Например, в случае кластера из атомов молибдена отсюда находим $T_b = 28 \text{ кэВ}$. Эта величина значительно больше, чем T^* (см. табл. 2). Такое же утверждение справедливо и для кластеров из других атомов. Следовательно, можно сделать вывод, что в рассматриваемом случае столкновительное возбуждение неэффективно и всегда имеет место прямая ионизация.

7.2. Перепоглощение резонансных фотонов

Рассмотрим перепоглощение резонансных фотонов в кластерной плазме. Вследствие перепоглощения эффективное время жизни резонансно возбужденных состояний атомарных ионов увеличивается. Будем считать уширение спектральных линий, создаваемое резонансными излучательными переходами, по Хольцмарку. Такое уширение создается статическими кулоновскими полями окружающих атомных ядер с зарядом Z . Тогда для сечения поглощения находим

$$\sigma_a = \left(\frac{\pi c}{\omega}\right)^2 \frac{g_{\text{exc}}}{g_0} \frac{1}{\tau_r \Delta\omega}.$$

Здесь спектральная ширина по Хольцмарку равна [70]

$$\Delta\omega = 12,5(n'^2 - n^2)N^{2/3} = 37,5N^{2/3}.$$

Частота 2p–1s-перехода $\omega = 3Z^2/8$, $n = 1$ и $n' = 2$ — главные квантовые числа состояний излучательного перехода.

Таким образом, сечение поглощения для такого радиационного перехода можно представить в виде

$$\sigma_a = \left(\frac{8\pi c}{3}\right)^2 \frac{1}{12,5\tau_0 N^{2/3}}$$

(заряд атомного ядра Z выпадает из этого соотношения). Как и выше, $\tau_0 = 1,6 \times 10^{-9} \text{ с}$. Полученное выражение для сечения поглощения можно использовать для расчета универсальной вероятности перепоглощения резонансного фотона в центре спектральной линии на сферическом кластере радиуса R :

$$\eta = \sigma_a R N = \sigma_a r_w n^{1/3} N = \left(\frac{8\pi c}{3}\right)^2 \frac{r_w N^{1/3}}{12,5\tau_0} n^{1/3} = 10^{-3} n^{1/3}.$$

Здесь r_W — радиус Вигнера–Зейтца (см. табл. 1), n — как и выше, число атомов в рассматриваемом кластере. Величина N отсутствует в этом выражении. Видно, что даже для кластеров с $n = 10^6$ атомами $\eta = 0,1$. Таким образом, перепоглощение резонансных фотонов существенно в рассматриваемой кластерной плазме.

Эффективное возбуждение верхнего уровня атомарного иона с учетом рентгеновского излучения рассматривалось в работе [71]. Показано, что усиление рентгеновского излучения может быть реализовано в процессе кулоновского взрыва кластера.

7.3. Излучение резонансных фотонов

Из соотношения (79) следует, что равновесное число резонансно возбужденных атомарных ионов

$$N_{Z-1}^* = \frac{N_a^{\text{ph}}}{N_e^{\text{ph}}} 3N_{Z-1} \exp\left(-\frac{3u}{4}\right). \quad (81)$$

Здесь использовано обозначение (как и выше) $u = Z^2/2T$. Мощность излучения резонансных фотонов в кластерной плазме

$$P_r = \frac{N_{Z-1}^* N_e^{\text{ph}} \hbar \omega}{\tau_r},$$

где $\hbar \omega = 3Z^2/8$ — энергия излучаемого фотона для $2p-1s$ -перехода. Приведенная мощность отнесена к единице объема кластерной плазмы. Подставляя (81) в это соотношение, находим

$$P_r = \frac{9}{16} Z^3 N^2 k_q \exp\left(-\frac{3u}{4}\right). \quad (82)$$

Как и ранее, мы предполагаем, что имеет место полная ионизация атомарных ионов в кластере, т.е. $N_e = ZN$, $N_{Z-1} = N/2$.

Подставив (77) в (82), представим излучаемую мощность в виде

$$P_r = 0,867 N^2 \frac{\sqrt{u(1+u/4)}}{1+3u/2} \exp\left(-\frac{3u}{4}\right) \ln\left(16 + \frac{4}{3u}\right). \quad (83)$$

Теперь можно вычислить максимальную излучаемую мощность как функцию электронной температуры T (т.е. как функцию переменной u). Такой максимум реализуется при значении $u = 0,24$. Окончательно находим (в атомных единицах)

$$P_r^{\text{max}} = 0,81 N^2.$$

Таблица 3 содержит значения максимальной излучаемой мощности и электронные температуры, соответствующие этой мощности, для ряда металлических кластеров.

Таким образом, излучаемая мощность достаточно велика. Согласно результатам предыдущего раздела

Таблица 3. Параметры кластерной плазмы, соответствующие максимальной мощности излучения резонансно возбужденных водородоподобных ионов

Металл	Li	Na	Al	K	Cu
T , кэВ	0,5	6,9	9,6	20,5	47,7
P_r^{max} , 10^{19} Вт см $^{-3}$	4,8	1,23	6,0	0,33	12,0

перепоглощение этих резонансных фотонов внутри кластера неэффективно, так что фотоны испускаются вне кластера.

7.4. Экспериментальные данные

Эксперименты, демонстрирующие роль кластеров в рентгеновском излучении (энергия фотона порядка нескольких килоэлектронвольт), выполнялись на кластерах из атомов криптона [72]. В них наблюдались переходы в L-оболочке (длина волны порядка 5–7,5 А). Генерация мгновенного рентгеновского излучения во время действия лазерного импульса объясняется образованием вакансий во внутренних оболочках атомов кластера.

Результаты измерения абсолютного выхода рентгеновского излучения, возникающего при облучении кластеров из атомов ксенона полем лазера с длительностью 2 пс, изложены в работе [73]. Было найдено, что при энергии в импульсе лазера, равной 300 мДж, энергия рентгеновского излучения (за импульс) с частотой выше 1 кэВ составила около 10 мкДж. Обнаружена также определенная зависимость выхода рентгеновского излучения от размеров кластера.

Наконец, в работе [17] авторы исследовали рентгеновское излучение, возникающее при облучении больших кластеров из атомов криптона интенсивным ультракоротким лазерным импульсом интенсивностью выше 5×10^{17} Вт см $^{-2}$. Найдено, что рентгеновское излучение изотропно, а максимальный коэффициент преобразования энергии инфракрасного лазерного излучения в рентгеновское излучение равен $1,7 \times 10^{-8}$. Рентгеновское излучение объяснялось появлением сильно "ободраных" атомарных ионов при ударной ионизации электронами L-оболочки атомов в нагретой лазером кластерной плазме. На рисунке 8 представлен выход рентгеновского излучения в зависимости от пиковой интенсивности I лазерного излучения. Видно, что сигнал рентгеновского излучения растет как $I^{3/2}$. Такое поведение объясняется просто увеличением фокального объема с ростом интенсивности I , коль скоро выход ионов с данной кратностью заряда достигает насыщения.

Интенсивное рентгеновское излучение наблюдалось также в работе [74] при облучении больших кластеров с

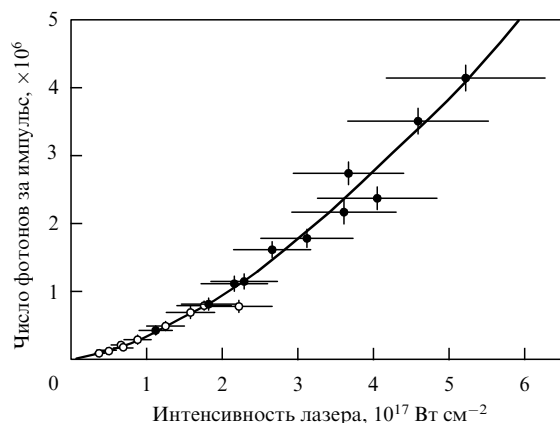


Рис. 8. Измеренный выход рентгеновского излучения в зависимости от пиковой интенсивности лазерного импульса [17]. Рентгеновское излучение возникает при излучательных переходах в L-оболочку атомов больших криптоновых кластеров.

радиусом порядка 100 Å мощными лазерными импульсами. В этой работе обнаружено, что резонансное поглощение играет важную роль в процессе взаимодействия кластера со сверхсильным лазерным излучением. Для данного размера кластера имеется оптимальная длительность лазерного импульса, при которой поглощение лазерного излучения максимально. Максимальный коэффициент поглощения соответствует максимуму выхода мягкого рентгеновского излучения. Авторы работы [74] могли контролировать эффективность преобразования лазерного излучения в рентгеновское путем изменения длительности лазерного импульса.

Рентгеновское излучение из атомных кластеров сильно зависит от длины волны лазерного излучения. Согласно данным работы [75] при облучении кластеров из атомов ксенона ультрафиолетовым импульсом с длиной волны 248 нм выход рентгеновского излучения (опять для L-оболочки) приблизительно в 3000 раз больше, чем при облучении инфракрасным импульсом с длиной волны 800 нм и с той же интенсивностью.

8. Излучение гармоник

Двумерная модель для расчета усиленной генерации гармоник из кластерных аргоновых ионов, облучаемых ультракоротким (порядка 25 фс) лазерным импульсом с умеренным значением пиковой интенсивности (порядка 10^{14} Вт см⁻²), представлена в работе [76]. Интенсивность гармоник с небольшими номерами (ниже 15-й) в кластере оказалась примерно на два порядка величины больше, чем для атомарного аргона. Кроме того, плато в зависимости интенсивности гармоник от их номера значительно длиннее для аргонного кластера, чем для атомарного аргона. Это объясняется тем, что ионизованные кластеры имеют не только высокий потенциал ионизации, но и большую поляризуемость в сравнении с атомарными ионами.

Простая модель генерации гармоник в атомных кластерах предложена в работе [77]. Зависящее от времени уравнение Шрёдингера решалось для упрощенной одномерной системы. Кластер представлен в виде одномерной цепочки атомов, выстроенных вдоль направления поляризации лазерного излучения, интенсивность которого изменялась в интервале от 10^{13} до 10^{14} Вт см⁻². Атомы были размещены на одинаковых расстояниях друг от друга и предполагались одноэлектронными. Поле атомного остова моделировалось сглаженным одномерным кулоновским потенциалом. Главный результат численного расчета — кластеры представляют собой среду, в которой генерация гармоник значительно эффективнее, чем в образце из изолированных атомов того же типа. Для не слишком высоких гармоник (порядка 9–13-й) и при умеренных интенсивностях лазерного излучения фактор усиления был порядка 10. Другой общий результат — диапазон интенсивности, в котором имеет место эффективная генерация гармоник в кластерах, значительно уже, чем в изолированных атомах. Однако при большой интенсивности лазерного излучения генерация гармоник в среде из изолированных атомов сравнима или даже больше, чем в среде из кластеров.

Изложенное выше подтверждается также результатами экспериментальной работы [78]. Показано, что среда кластеров средних размеров из несколько тысяч

атомов инертных газов генерирует высокие гармоники значительно интенсивнее, чем среда из изолированных атомов при той же плотности. Для 3–9-й гармоник фактор усиления составляет ~ 5 . При этом зависимость эффективности генерации гармоник от интенсивности лазерного излучения в среде из кластеров значительно более резкая, чем в среде из изолированных атомов. Максимальный номер гармоники в среде из кластеров выше, чем в среде из изолированных атомов.

В работе [79] приведены аргументы в пользу закона N^3 для интенсивности гармоник в кластерах (N — средняя концентрация атомов). Это заметно отличается от закона N^2 в атомарных газах.

В небольших металлических кластерах вместо генерации гармоник наблюдалось, наоборот, усиление падающего лазерного фемтосекундного импульса. Такое усиление обусловлено возбуждением поверхностного плазменного резонанса Ми. Расчеты, основанные на методе функционала плотности, показали, что эффект не зависит от размера кластера. В рамках того же подхода в работах [80, 81] было найдено, что плазменный резонанс Ми представляет собой довольно гармоническое колебание, так что генерация высших гармоник этого резонанса из-за ангармоничности колебаний неэффективна.

9. Расширение кластеров

Для кластеров из атомов благородных газов при воздействии лазерного импульса наблюдались различные механизмы их расширения [3]. В то время как аргонный кластер расширяется из-за кулоновского отталкивания атомарных ионов, его образующих, в кластерах из атомов ксенона имеют место как кулоновское отталкивание, так и газодинамическое расширение вследствие повышенного давления внутри кластера. В частности, кинетические энергии ионов при газодинамическом расширении больших кластеров из атомов ксенона таковы, что можно сделать вывод об электронной температуре порядка 1,5 кэВ. Однако наиболее высокоэнергетические ионы получаются при их кулоновском отталкивании. Наблюдаемые зависимости энергии ионов от их заряда нельзя объяснить в рамках обычной коронарной теории плазмы [82]. Хорошо согласуется с экспериментальными данными простая модель кулоновского взрыва [3].

В работе [6] приведены результаты эксперимента по фотоионизации кластеров из атомов инертных газов фемтосекундным лазерным импульсом большой интенсивности (более 10^{16} Вт см⁻²). Регистрировались энергии электронов и ионов после взрыва кластера. Они найдены достаточно большими. Распределение электронов по энергиям во взрывающемся кластере содержит электроны с кинетическими энергиями до 3 кэВ, что на несколько порядков величины больше, чем энергии, наблюдаемые при надпороговой ионизации отдельных атомов или молекул [61]. Средние энергии ионов при взрыве кластера составляют десятки килоэлектронвольт, а максимальная энергия иона достигала 1 МэВ (рис. 9). Наблюдались ионы с кратностью заряда вплоть до Xe^{40+} .

Эти экспериментальные результаты хорошо объясняются теоретической моделью, которая рассматривает кластер как маленький плазменный шарик. Кластер ионизуется лазерным полем и внутренними столкновениями (см. выше) и начинает расширяться. При расшире-

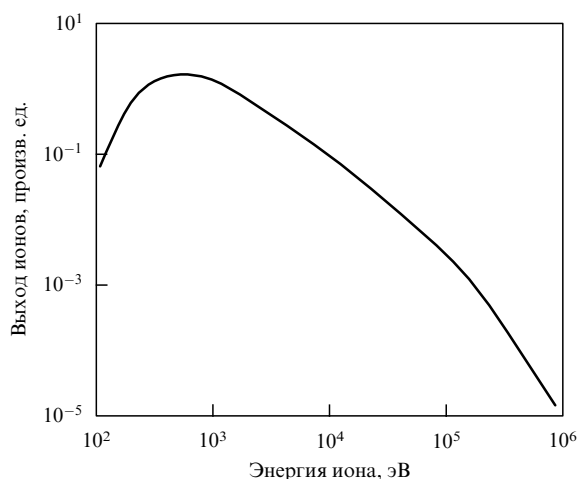


Рис. 9. Экспериментальный энергетический спектр ионов для кластера из 2500 атомов ксенона [6] при пиковой интенсивности лазерного импульса 2×10^{16} Вт см $^{-2}$.

нии концентрация электронов уменьшается, и в какой-то момент возникает резонанс частоты лазерного поля и частоты поверхностного резонанса Ми. Это приводит к быстрой передаче электромагнитной энергии электронам, вызывая резкий пик в электронной температуре. В этот момент атомарные ионы кластера быстро обдираются до высоких зарядовых состояний горячими электронами, и кластер взрывается. Такие коллективные явления весьма важны в случае кластера, в то время как они отсутствуют при лазер-атомном взаимодействии.

При взрыве кластеров, состоящих из сотен и тысяч атомов, при воздействии сверхсильного лазерного импульса образовывались ионы с большими энергиями и зарядами. Наблюдаемая картина весьма похожа на процесс расширения твердотельной, нагретой лазером плазмы в вакуум. Напротив, при кулоновском взрыве малых молекул и малых кластеров в сильных лазерных полях возникают только ионы с небольшими энергиями и зарядами.

В рамках классической плазменной модели двух жидкостей можно игнорировать инерцию электронов в сравнении с инерцией гораздо более массивных ионов. Тогда уравнения для ионной жидкости принимают вид [83]

$$\frac{\partial N_i}{\partial t} + \text{div}(N_i \mathbf{v}_i) = 0; \quad (84)$$

$$\frac{\partial \mathbf{v}_i}{\partial t} + (\mathbf{v}_i \nabla) \mathbf{v}_i = -\frac{Z}{M_i N_i} \nabla p_e. \quad (85)$$

Здесь N_i — концентрация атомарных ионов, $\mathbf{v}_i$ — их скорость, M_i — масса иона, Z — заряд иона, p_e — давление электронной подсистемы. Первое уравнение представляет собой закон сохранения числа ионов, второе уравнение — закон сохранения импульса. Эти уравнения описывают движение ионной жидкости под действием давления электронов. Высокотемпературные электроны образуют амбиполярный потенциал, который может ускорять ионы. Соответствующая сила дается правой частью уравнения (85).

Чтобы рассчитать эту силу, нужно знать уравнение состояния для электронов. Самое простое приближение, основанное на высокой теплопроводности кластерной плазмы, — изотермическое уравнение состояния [6]. Отметим, что реальное расширение кластера не изотермическое: электронная температура является довольно сложной функцией времени. Из расчетов работы [6] следует, что взрыв большого кластера из атомов ксенона определяется газодинамической силой, содержащейся в правой части (85), а не кулоновским отталкиванием многозарядных атомарных ионов друг от друга. Типичное расширение кластера со временем показано на рис. 10. Из кривой рис. 10г следует, что кластерная плазма действительно обладает довольно высокой теплопроводностью, о чем шла речь выше.

Результаты измерений кинетической энергии ионов при взаимодействии интенсивного фемтосекундного лазерного импульса с большими кластерами из молекул HI (при комнатной температуре) приведены в работе [4]. При взрыве кластеров образуются протоны с энергией в несколько килоэлектронвольт и ионы йода с энергией порядка 100 кэВ. Было показано, что кластеры из двухатомных молекул с различными атомами эффективнее поглощают энергию лазерного излучения, чем кластеры из атомов или из двухатомных молекул с одинаковыми атомами.

Как уже отмечалось выше, лазерное поле не проникает внутрь кластера, поглощаясь на его поверхности.

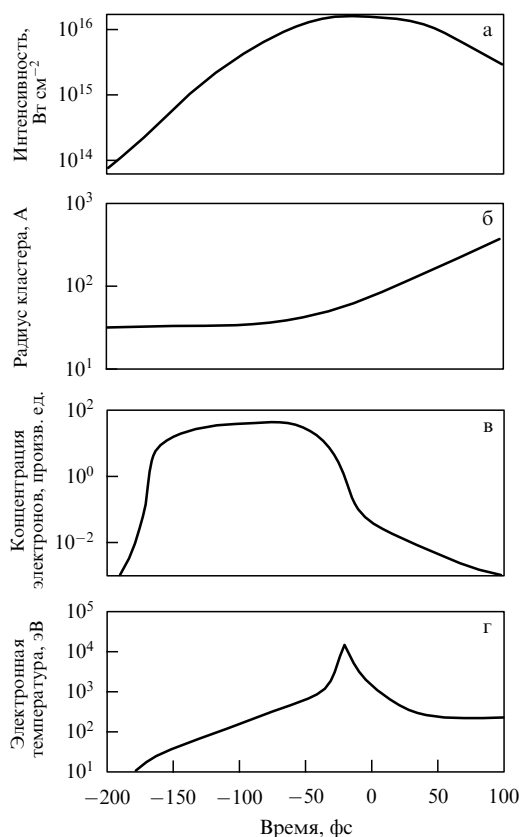


Рис. 10. Теоретический расчет эволюции кластера из 1800 атомов ксенона (радиус 30 А), облучаемого лазерным импульсом длительностью 140 фс и интенсивностью 2×10^{16} Вт см $^{-2}$ [6]: (а) огибающая лазерного импульса; (б) радиус расширяющегося кластера; (в) концентрация электронов; (г) электронная температура.

Однако когда кластер взрывается, его плотность сильно уменьшается и проникновение лазерного излучения внутрь кластера усиливается. Это приводит к дополнительной внутренней ионизации в расширяющемся кластере [84]. Для кластеров из 1000 атомов ксенона заряд Z атомарных ионов ксенона при кулоновском взрыве составил от 8 до 18.

Ступенчатый взрыв атомных кластеров в сильном лазерном поле рассмотрен в работе [85] в рамках модели Томаса–Ферми (детальные расчеты в одномерной модели содержатся в работе [86]). При взрыве проявляется оболочечная структура, так что отдельные слои кластера взрываются последовательно. Первые ионы обладают довольно высокими кинетическими энергиями из-за кулоновского отталкивания и эффективной передачи энергии от горячих электронов наружному слою кластера.

Многочарядные атомарные ионы, образованные при кулоновском взрыве, при дальнейшем взаимодействии с полем лазерного излучения теряют оставшиеся электроны, и их заряд увеличивается. Результаты наблюдения этого процесса изложены в [87].

Как показано в недавней экспериментальной работе [88], при облучении кластеров последовательно двумя лазерными импульсами высокой интенсивности взрыв кластеров усиливается. В этой работе измерялись энергии атомарных ионов, образующихся при взрыве кластера из атомов ксенона. Кластер облучался двумя фемтосекундными лазерными импульсами: сначала полем второй гармоники (длина волны 390 нм), затем полем основной частоты (длина волны 780 нм). Интенсивность каждого из импульсов была порядка 10^{15} Вт см $^{-2}$. При оптимальном значении задержки между двумя импульсами максимальная энергия ионов увеличивалась в 2 раза: со 100 до 200 кэВ. Энергия лазерного импульса, требуемая для получения данной кинетической энергии атомарного иона, оказалась значительно меньше, когда кластер облучается двумя импульсами различной частоты, чем при облучении одним импульсом. Причина указанного эффекта заключается в том, что нагревание кластера существенно усиливается, когда концентрация электронов (падающая со временем при расширении кластера) соответствует резонансной частоте M_i для поля второй гармоники: $\omega_M = \sqrt{4\pi N_e(t)}/3 = 2\omega$. В некоторый более поздний момент времени $t' > t$ кластер нагревается второй раз, когда реализуется резонанс частоты M_i с основной частотой лазера: $\omega_M = \sqrt{4\pi N_e(t')}/3 = \omega$. Действительно, в процессе расширения кластера $N_e(t') < N_e(t)$.

На рисунке 11 показаны четыре снимка аргонового кластера из 55 атомов в различные моменты времени при облучении лазерным импульсом с пиковой интенсивностью 10^{15} Вт см $^{-2}$ [89]. Ионы изображены большими кружочками, а электроны — черными точками. Кластер начинает расширяться за 15 фс до момента достижения максимума интенсивности лазерного импульса. К этому времени имеется 427 свободных электронов, появившихся в результате ионизации атомов аргона (внутренняя ионизация). Как видно из рисунка, около 100 электронов при этом еще находятся внутри кластера. Сам кластер расширяется изотропно. В пике интенсивности (момент времени $t = 0$) еще много электронов расположено вблизи расширяющегося кластера. Спустя 20 фс концентрация электронов в кластере уменьшается,

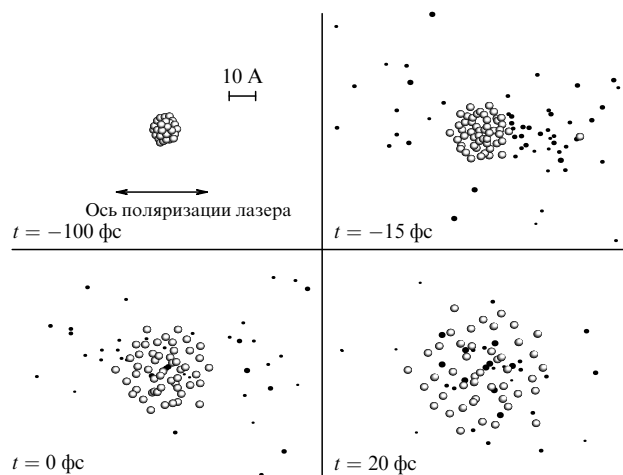


Рис. 11. Снимки кластера из 55 атомов аргона, облучаемого лазерным импульсом длительностью 200 фс, в различные моменты времени [89]. Максимум интенсивности соответствует моменту времени $t = 0$.

а сам кластер продолжает изотропно расширяться из-за кулоновских сил отталкивания.

10. Заключение

Недавно опубликован подробный обзор свойств кластерной плазмы [25]. Данный обзор посвящен эволюции больших кластеров, облучаемых сверхсильными ультракороткими лазерными импульсами. Кластер возбуждается из-за взаимодействия электронной подсистемы с полем лазерного импульса.

Как экспериментальные, так и теоретические исследования эволюции кластеров в поле сверхсильных ультракоротких лазерных импульсов находятся в настоящее время в начальной стадии. Многие вопросы, обсуждавшиеся в данном обзоре, требуют дальнейшего изучения, которое может повлиять на ряд приведенных результатов. Например, при рассмотрении испарения электронов с поверхности горячего кластера используется хорошо известная формула Ричардсона–Дэшмана, которая не учитывает зарядку кластера в процессе испарения. Это определенно уменьшает ток термоэлектронной эмиссии из кластерного иона по мере увеличения его заряда.

Детального изучения требует такой вопрос, как роль поверхности кластерного иона в нагреве электронов. Энергия свободного электрона кластера, упруго отражающегося от поверхности внутрь кластера в присутствии лазерного поля, всякий раз при отражении повышается на величину порядка колебательной энергии F^2/ω^2 . Упругое отражение обусловлено большим зарядом кластерного иона вследствие сильной внешней ионизации. Неясно в настоящее время, насколько этот эффект конкурирует с вынужденным обратным тормозным эффектом.

Недавние исследования фотоионизации атомарных кластеров фемтосекундными лазерными импульсами высокой интенсивности (10^{16} Вт см $^{-2}$ и выше) показали, что, возбуждая большие кластеры, можно получить сверхнагретую микроплазму, которая испускает атомарные ионы с кинетической энергией до 1 МэВ. В частности, в случае дейтериевых кластеров возможно создать

плазму со средней энергией ионов, достаточной для реакции ядерного синтеза. В работе [90] сообщается о наблюдении такой реакции при взрыве дейтериевых кластеров, нагретых мощным лазером с высокой частотой повторения импульса. Найдено, что на 1 Дж падающей энергии лазерного излучения образуется около 10^5 нейтронов (согласно ядерной реакции $d + d \rightarrow \text{He}^3 + n$). Эти результаты должны побудить провести дальнейшие эксперименты по реакциям термоядерного синтеза, используя небольшие мощные лазеры. Настольный источник нейтронов может найти широкое применение в материаловедении.

Работа была частично поддержана Российским фондом фундаментальных исследований (грант № 99-02-17810). Один из нас (М. Смирнов) благодарит Институт Макса Борна (Берлин) за поддержку. Мы признательны В. Беккеру за стимулирующие дискуссии по проблемам, обсуждаемым в данном обзоре.

Список литературы

- Sullivan A et al. *Opt. Lett.* **21** 603 (1996)
- Boehly T R et al. *Opt. Commun.* **133** 495 (1997)
- Lezius M et al. *Phys. Rev. Lett.* **80** 261 (1998)
- Tisch J W G et al. *Phys. Rev. A* **60** 3076 (1999)
- Ditmire T et al. *Phys. Rev. A* **53** 3379 (1996)
- Ditmire T et al. *Phys. Rev. A* **57** 369 (1998)
- Hagena O F *Surf. Sci.* **106** 101 (1981)
- Hagena O F *Rev. Sci. Instrum.* **63** 2374 (1992)
- Wormer J et al. *J. Chem. Phys.* **75** 402 (1981)
- Hagena O F, Obert W J. *Chem. Phys.* **56** 1793 (1972)
- Boyer K et al. *J. Phys. B* **27** 4373 (1994)
- Borisov A B et al. *J. Phys. B* **28** 2143 (1995)
- Kondo K et al. *J. Phys. B* **30** 2702 (1997)
- Schröder W A et al. *J. Phys. B* **31** 5031 (1998)
- Honda H et al. *Phys. Rev. A* **61** 023201 (2000)
- Lezius M et al. *J. Phys. B* **30** L251 (1997)
- Dobosz S et al. *Phys. Rev. A* **56** R2526 (1997)
- Döppner T et al. *Int. J. Mass Spectr.* **192** 387 (1999)
- Schumacher M et al. *Eur. Phys. J. D* **9** 411 (1999)
- Köller L et al. *Phys. Rev. Lett.* **82** 3783 (1999)
- Kresin V V *Phys. Rep.* **220** 1 (1992)
- De Heer W A *Rev. Mod. Phys.* **65** 611 (1995)
- Brack M *Rev. Mod. Phys.* **65** 677 (1995)
- Calvayrac F et al. *Phys. Rep.* (2000) (in press)
- Смирнов Б М *УФН* **170** 495 (2000)
- Киттель Ч *Введение в физику твердого тела* (М.: Наука, 1978)
- Handbook of Chemistry and Physics* 79th ed. (Ed. D R Lide) (London: CRC Press, 1998 – 1999)
- Gross E K U, Kohn W *Adv. Quantum Chem.* **21** 255 (1990)
- Calvayrac F, Reinhard P G, Suraud E *Phys. Rev. B* **52** R17056 (1995)
- Gross M, Guet C *Phys. Rev. A* **54** R2547 (1996)
- Fomichev S V, Zaretsky D F *J. Phys. B* **32** 5083 (1999)
- Ullrich C A, Reinhard P G, Suraud E *Phys. Rev. A* **57** 1938 (1998)
- Смирнов М Б, Крайнов В П *ЖЭТФ* **115** 2014 (1999)
- Смирнов М Б, Крайнов В П *Laser Phys.* **9** 943 (1999)
- Doms A, Reinhard P G, Suraud E *Eur. Phys. J. D* **2** 191 (1998)
- Виноградов А В, Шевелько В П *Труды ФИАН СССР* **119** 159 (1980)
- Yabana K, Bertsch G F *Phys. Rev. A* **60** 3809 (1999)
- Tiggesbäumker J et al. *Phys. Rev. A* **48** R1749 (1993)
- Bertsch G F, Van Giai N, Vinh Mau N *Phys. Rev. A* **61** #033202 (2000)
- Pert G J *J. Phys. B* **32** 249 (1999)
- Claro F, Rojas R *Appl. Phys. Lett.* **65** 2743 (1994)
- Chichkov B N, Shumsky S A, Uryupin S A *Phys. Rev. A* **45** 7475 (1992)
- Силин В П *ЖЭТФ* **47** 2254 (1964)
- Ландау Л Д, Лифшиц Е М *Статистическая физика* 4-е изд. (М.: Наука, 1995) § 104
- Boyer K, Rhodes C K *J. Phys. B* **27** L633 (1994)
- Snyder E M, Buzza S A, Castleman A W *Phys. Rev. Lett.* **77** 3347 (1996)
- Lotz W Z. *Phys.* **216** 241 (1968)
- Ландау Л Д, Лифшиц Е М *Электродинамика сплошных сред* 2-е изд. (М.: Наука, 1982) § 93
- Krainov V P *J. Phys. B* **33** 1585 (2000)
- Федоров М В *Электрон в сильном световом поле* (М.: Наука, 1991)
- LaGattuta K J *Eur. Phys. J. D* **2** 267 (1998)
- Last I, Jortner J J. *Phys. Chem. A* **102** 9655 (1998)
- Rose-Petruck C et al. *Phys. Rev. A* **55** 1182 (1997)
- Бете Г, Солпитер Э *Квантовая механика атомов с одним и двумя электронами* (М.: Физматгиз, 1960) § 54
- Brunner W *Appl. Phys. B* **64** 443 (1997)
- Ford J V et al. *J. Chem. Phys.* **110** 6257 (1999)
- Neuman W *The Mechanism of Thermoemitting Arc Cathode* (Berlin: Akademie-Verlag, 1987)
- Hoyaux M F *Arc Physics* (New York: Springer-Verlag, 1968)
- Weidele H et al. *J. Chem. Phys.* **110** 8754 (1999)
- Calvayrac F et al. *Eur. Phys. J. D* **4** 207 (1998)
- Delone N B, Krainov V P *Multiphoton Processes in Atoms* 2nd ed. (Berlin: Springer, 2000)
- Reinhard P G, Suraud E *Acad. Sci. Paris* **327** Ser. II b893 (1999)
- Schlipper R et al. *Phys. Rev. Lett.* **80** 1194 (1998)
- Tiggesbäumker J et al. *Chem. Phys. Lett.* **190** 42 (1992)
- Bréchnignac C et al. *Phys. Rev. Lett.* **70** 2036 (1993)
- Haberland H et al. *Phys. Rev. Lett.* **69** 3212 (1992)
- Haberland H et al. *Phys. Rev. Lett.* **77** 1415 (1996)
- Смирнов Б М *УФН* **167** 1169 (1997)
- Shao Y L et al. *Phys. Rev. Lett.* **77** 3343 (1996)
- Вайнштейн Л А, Собельман И М, Юков Е А *Возбуждение атомов и уширение спектральных линий* (М.: Наука, 1979)
- Brunner W, Ritze H H *Appl. Phys. B* **67** 47 (1998)
- McPherson A et al. *Phys. Rev. Lett.* **72** 1810 (1994)
- Ditmire T et al. *Appl. Phys. Lett.* **71** 166 (1997)
- Ditmire T et al. *Phys. Rev. Lett.* **75** 3122 (1995)
- Zweiback J, Ditmire T, Perry M D *Phys. Rev. A* **59** R3166 (1999)
- Hu S X, Xu Z Z *Appl. Phys. Lett.* **71** 2605 (1997)
- Véniard V, Taieb R, Maquet A *Phys. Rev. A* **60** 3952 (1999)
- Donnelly et al. *Phys. Rev. Lett.* **76** 2472 (1996)
- Tisch J W G et al. *J. Phys. B* **30** L709 (1997)
- Reinhard P G, Suraud E *Eur. Phys. J. D* **3** 175 (1998)
- Calvayrac F, Reinhard P G, Suraud E *J. Phys. B* **31** 1367 (1998)
- Hora H J. *Opt. Soc. Am.* **65** 882 (1975)
- Wickens L M, Allen J E *J. Plasma Phys.* **22** 167 (1979)
- Last I, Jortner J *Phys. Rev. A* **60** 2215 (1999)
- Brewczyk M et al. *Phys. Rev. Lett.* **80** 1857 (1998)
- Brewczyk M, Rzażewski K *Phys. Rev. A* **60** 2285 (1999)
- Poth L et al. *Chem. Phys.* **230** 309 (1998)
- Springate E et al. *Phys. Rev. A* **61** 063201 (2000)
- Ditmire T *Phys. Rev. A* **57** R4094 (1998)
- Ditmire T et al. *Nature* (London) **398** 489 (1999)

The evolution of large clusters under the action of ultra-short super-intense laser pulses

V.P. Krainov

*Moscow Institute of Physics and Technology,
141700 Dolgoprudnyi, Moscow Region, Russian Federation,
E-mail: krainov@cyberax.ru*

M.B. Smirnov

*Max-Born Institute, Abt. B2, Rudower Chaussee 6, 12489 Berlin, Germany,
Russian Research Center "Kurchatov Institute",
pl. Kurchatova 1, 123182 Moscow, Russian Federation
E-mail: smirnov@mbi-berlin.de*

The evolution of large clusters exposed to a super-intense ultra-short laser pulse is considered. Cluster excitation results from the interaction of the electron subsystem with the laser field. Multiple ionization, X-ray emission, and harmonic generation in clusters irradiated by the laser field are reviewed. The increase in the electron temperature and that in the charge of the cluster ion are discussed. The reabsorption of X-ray photons is found to be relatively small. The optimal conditions are analyzed for the efficient absorption of laser radiation by large clusters. This absorption occurs on the surface of the cluster only. The optical density of the cluster plasma is found to be small for resonance radiative transitions of multicharged atomic ions inside the cluster. Expansion and explosion of the cluster during and after the pulse are discussed.

PACS numbers: **36.40.-c**, 52.40.Nk, **61.46. + w**, **85.42. + m**

Bibliography — 90 references

Received 24 May 2000