

ОБЗОРЫ АКТУАЛЬНЫХ ПРОБЛЕМ

Спектроскопия кластеров интенсивными импульсами вакуумного ультрафиолетового излучения лазеров на свободных электронах

Г.Н. Макаров

Разработанные недавно источники интенсивных фемтосекундных импульсов вакуумного ультрафиолетового (ВУФ) излучения — мощные лазеры на свободных электронах (ЛСЭ) — открывают новые возможности для исследования взаимодействия излучения с веществом. Проведена серия первых экспериментов с ЛСЭ по возбуждению атомных кластерных пучков. Показано, что процесс взаимодействия интенсивных импульсов ВУФ-излучения с кластерами существенно отличается от процесса взаимодействия с кластерными пучками импульсов оптического или ближнего инфракрасного (ИК) диапазона. Дан обзор результатов первых экспериментов по спектроскопии кластерных пучков интенсивными импульсами ВУФ-излучения ЛСЭ. Кратко рассмотрены принцип работы и параметры ЛСЭ. Проведён анализ возбуждения кластеров интенсивными сверхкороткими импульсами ИК- и ВУФ-излучения, рассмотрены параметры взаимодействия излучения с кластерами, а также механизмы формирования и нагрева кластерной плазмы в этих случаях. Отмечены общие концепции и принципиальные различия в возбуждении кластеров импульсами ИК- и ВУФ-излучения. Обсуждаются некоторые другие применения ЛСЭ ВУФ- и мягкого рентгеновского диапазона.

PACS numbers: 32.80. – t, 36.40. – c, 41.60.Cr, 42.55.Vc, 42.62.Fi, 52.50. – b, 82.50.Nr

DOI: 10.3367/UFNr.0179.200905b.0487

Содержание

1. Введение (487).
2. Качественная картина динамики кластера под действием лазерного импульса и некоторые параметры взаимодействия излучения с кластерами (489).
 - 2.1. Динамика кластера под действием лазерного импульса.
 - 2.2. Некоторые параметры взаимодействия излучения с кластерами.
3. Возбуждение кластеров интенсивными импульсами ИК-диапазона (491).
 - 3.1. Общие замечания.
 - 3.2. Механизмы ионизации атомов.
 - 3.3. Механизмы внутренней ионизации кластеров.
 - 3.4. Механизмы нагрева кластеров.
 - 3.5. Механизмы внешней ионизации кластеров.
4. Лазер на свободных электронах ВУФ-диапазона (496).
 - 4.1. Принципы работы лазера на свободных электронах.
 - 4.2. Основные элементы и параметры ЛСЭ.
 - 4.3. Свойства излучения лазера на свободных электронах.
5. Спектроскопия кластеров интенсивными импульсами ВУФ-излучения (500).

- 5.1. Первые эксперименты. Поглощение излучения кластерами.
- 5.2. Фотоэлектронная спектроскопия кластеров.
- 5.3. Фотоионная спектроскопия кластеров.
- 5.4. Результаты модельных расчётов по возбуждению кластеров ВУФ-импульсами.
- 5.5. Другие применения лазера на свободных электронах.

6. Заключение (513).

Список литературы (514).

1. Введение

Последние примерно десять-пятнадцать лет активно исследуются процессы взаимодействия интенсивных лазерных импульсов фемтосекундной длительности с атомными кластерными пучками (см., например, работы [1–18] и приведённые в них ссылки). Кроме фундаментальных аспектов взаимодействия излучения с веществом, основной целью этих исследований является получение фотонов или частиц, характеризующихся значительно большей энергией по сравнению с энергией кванта возбуждающего лазерного импульса, — генерация высоких гармоник и рентгеновского излучения, высокоэнергетических ионов, электронов и нейтронов. Кластерный пучок по своему строению занимает промежуточное положение между газовыми и твердотельными мишенями. Высокая плотность атомов в кластерах (сравнимая с плотностью атомов в твёрдом теле) позволяет, в отличие от газовых мишеней, вкладывать в кластеры большую удельную энергию, сопоставимую с таковой для твердотельных мишеней. С другой стороны,

Г.Н. Макаров. Институт спектроскопии РАН,
142190 г. Троицк, Московская обл., Российская Федерация
Тел. (496) 751-02-32. Факс (496) 751-08-86
E-mail: gmakarov@isan.troitsk.ru

Статья поступила 16 мая 2008 г.,
после доработки 18 июля 2008 г.

сравнительно небольшие размеры и изолированность кластеров в пучке предотвращают быструю релаксацию (или передачу) вложенной энергии, что позволяет достигать высокой степени возбуждения кластерной материи. Образующаяся в результате возбуждения кластеров интенсивными сверхкороткими лазерными импульсами высокоионизованная кластерная плазма является эффективным источником для получения рентгеновского излучения [19–31] и нейтронов [32–42].

Характерные размеры кластеров в пучке в таких экспериментах обычно составляют от 5 до 100 нм, а число атомов в кластере $N \approx 10^3 - 10^7$. При возбуждении интенсивными лазерными импульсами кластеры превращаются в полностью ионизованную плазму, которая вначале находится в области, занимаемой кластером, а далее под действием кулоновской и/или гидродинамической силы разлетается в окружающее пространство. Для возбуждения кластерной материи необходимо, чтобы длительность возбуждающего импульса была мала по сравнению с временем разлёта плазмы. Лишь в этом случае весь лазерный импульс взаимодействует с ещё не распавшимся кластером. Для характерного размера кластера около 10 нм ($N \approx 10^4$) и скорости разлёта ионов $10^7 - 10^8$ см s^{-1} время разлёта ионов составляет $10^{-13} - 10^{-12}$ с. Именно поэтому эффективное возбуждение кластеров, создание и сильный нагрев кластерной плазмы можно реализовать лишь при использовании интенсивных лазерных импульсов фемтосекундной длительности. Отметим, что время разлёта вещества в кластере сильно зависит от массы составляющих кластер атомов (см. раздел 2.1). Так, например, радиус дейтериевого кластера, первоначально равный 5 нм, при электронной температуре 1 кэВ удваивается всего за 20 фс [1], а радиус ксенонового кластера — примерно за 300 фс.

Подавляющее большинство экспериментов по возбуждению кластеров интенсивными фемтосекундными импульсами выполнено с лазерами ближнего ИК-диапазона (с титан-сапфировыми лазерами, имеющими длину волны излучения $\lambda \approx 800$ нм, см. обзоры [1–11]). Лишь несколько экспериментов проведено с лазерными импульсами ультрафиолетового (УФ) диапазона (например, [19, 43, 44]). Характерной особенностью взаимодействия импульсов ИК- и оптического диапазона с кластерами является то, что частота лазерного излучения существенно меньше характерной частоты атомных переходов. В то же время длина волны излучения значительно больше размера кластера. Это означает, что все атомы кластера находятся в одинаковых условиях относительно интенсивности возбуждающего импульса. Указанные особенности во многом определяют процесс взаимодействия ИК-лазерных импульсов с кластерами, а также последующую эволюцию кластерной плазмы (см. разделы 2 и 3).

Недавно появились источники интенсивных фемтосекундных импульсов ВУФ-излучения ($\lambda \leq 100$ нм). Это обладающие большим усилением мощные лазеры на свободных электронах, которые создаются на основе больших линейных ускорителей частиц. В настоящее время осуществляются два крупномасштабных проекта по ЛСЭ ВУФ- и мягкого рентгеновского диапазона — на ускорителях в Стэнфорде (США) [45, 46] и вблизи Гамбурга (Германия) [47–49]. На ускорителе в Германии уже получена генерация в дальней УФ- и мягкой

рентгеновской области спектра [50–53]. Лазеры ВУФ- и рентгеновского диапазона имеют широкие перспективы и открывают новые возможности для исследования процессов взаимодействия излучения с веществом. Они могут найти важное применение во многих областях науки (в физике, химии, биологии, материаловедении). Проведены первые эксперименты с указанными лазерами по возбуждению атомных кластерных пучков. В отличие от импульсов ИК-диапазона, частота ВУФ-излучения ЛСЭ сопоставима с характерной атомной частотой. Это имеет принципиальное значение для процесса взаимодействия лазерного излучения с кластерным пучком (см. разделы 2 и 5). Результаты показывают отличный от случая с ИК-импульсами характер взаимодействия импульсов ВУФ-излучения с кластерами.

В данном обзоре приведены результаты первых экспериментов по спектроскопии атомных кластерных пучков интенсивными импульсами ВУФ-излучения лазеров на свободных электронах. Кратко рассмотрены основные элементы и принцип работы ЛСЭ, его параметры, а также свойства импульсов излучения. Приведены параметры взаимодействия импульсов ИК- и ВУФ-излучения с атомными кластерами. Выполнен анализ процессов возбуждения кластеров интенсивными сверхкороткими импульсами ИК- и ВУФ-излучения. Рассмотрены механизмы ионизации и нагрева кластерной плазмы в этих двух случаях. Отмечены общие концепции и принципиальные различия в возбуждении кластеров импульсами ИК- и УФ-излучения. Указаны некоторые другие применения ЛСЭ ВУФ- и мягкого рентгеновского диапазона.

Обзор построен следующим образом. В разделе 2 обсуждается качественная картина динамики кластера под действием лазерного импульса и приведены некоторые важные параметры взаимодействия излучения с кластерами. В разделе 3 кратко рассмотрено возбуждение кластеров интенсивными импульсами ИК-диапазона. Это рассмотрение проведено с целью сравнения результатов по возбуждению кластеров импульсами ИК- и ВУФ-диапазона и более глубокого понимания существующих в этих случаях аналогий и различий. Анализируются механизмы ионизации кластеров, формирования и сильного нагрева кластерной плазмы при возбуждении ИК-импульсами. Раздел 4 посвящён краткому рассмотрению ЛСЭ ВУФ-диапазона. Описаны устройство и принцип работы лазера, приведены основные параметры импульсов излучения. Отмечены потенциальные возможности использования таких лазеров в некоторых других областях исследований. В разделе 5, который является центральным в обзоре, рассмотрена спектроскопия кластеров интенсивными импульсами ВУФ-излучения лазеров на свободных электронах. Приведены результаты первых экспериментов по возбуждению кластерного пучка ксенона импульсами ВУФ-излучения ЛСЭ, а также модели для объяснения полученных результатов. Проанализированы результаты экспериментов и модельных расчётов по фотоэлектронной и фотоионной спектроскопии кластерных пучков аргона и ксенона. Рассмотрены механизмы ионизации кластеров и сильного нагрева кластерной плазмы, а также механизмы поглощения кластерами большого числа фотонов из поля лазерного импульса. Проведено сравнение возбуждения кластеров интенсивными импульсами ИК- и ВУФ-излучения. Кратко рассмотрены некоторые другие применения ЛСЭ, в том числе в двухчастотных

экспериментах типа возбуждение–зондирование, а также для абляции материалов. В заключение приведены основные результаты исследований и вытекающие из них выводы.

2. Качественная картина динамики кластера под действием лазерного импульса и некоторые параметры взаимодействия излучения с кластерами

2.1. Динамика кластера под действием лазерного импульса

Прежде чем перейти непосредственно к рассмотрению возбуждения кластеров интенсивными лазерными импульсами ИК- и ВУФ-диапазонов, рассмотрим кратко качественную картину динамики кластера под действием лазерного импульса и приведём некоторые важные параметры взаимодействия излучения с кластерами. При возбуждении лазерным импульсом в кластере происходит [1–11] несколько процессов, а именно: 1) внутренняя ионизация атомов кластера, в результате которой образуются квазисвободные электроны и формируется наноплазма, 2) нагрев квазисвободных электронов внутри кластера, 3) внешняя ионизация кластера в результате эмиссии электронов из высокоионизованного кластера, 4) полная фрагментация кластера за счёт кулоновского и (или) гидродинамического взрыва. Указанные процессы имеют место во всех кластерах, облучаемых интенсивными лазерными импульсами, независимо от длины волны излучения. Некоторые из этих процессов, например процессы 1 и 2, 1 и 3, 2 и 3, могут совпадать по времени.

Таким образом, при взаимодействии с лазерным импульсом кластеры превращаются в систему многозарядных ионов и свободных электронов [1, 3, 4, 8, 9]. Часть электронов покидает кластер, и он заряжается положительно, а другая часть электронов удерживается самосогласованным полем кластера. Образующаяся система из многозарядных ионов и электронов неустойчива, и она распадается в результате разлёта ионов. Характерное время её распада τ_{exp} составляет [1, 18]:

$$\tau_{\text{exp}} \sim R_0 \left(\frac{m_i}{Z' k T_e} \right)^{1/2} \left(\frac{n_0}{n_e} \right)^{1/3}, \quad (2.1)$$

где R_0 — начальный радиус кластера, Z' — заряд кластерного иона, T_e — электронная температура кластера, m_i — масса иона, n_0 и n_e — начальная и текущая концентрации электронов, k — постоянная Больцмана. Отметим, что текущая концентрация электронов n_e сильно зависит от времени, поэтому при оценке времени расширения кластера необходимо учитывать эту зависимость. Поскольку разрушение данной системы происходит с ионными скоростями, время её распада может существенно превышать длительность лазерного импульса. Эта стадия развития образовавшейся плазмы отражается на её свойствах [1–4, 8, 9]. Рассматриваемый характер взаимодействия кластерного пучка с мощным и коротким ИК-лазерным импульсом позволяет вложить в электронную подсистему большую удельную энергию, достигающую 1–10 кэВ на электрон. Тем самым процесс поглощения кластерным пучком энергии лазерного импульса ведёт к образованию специфической горячей плазмы [1, 3, 4, 8, 9].

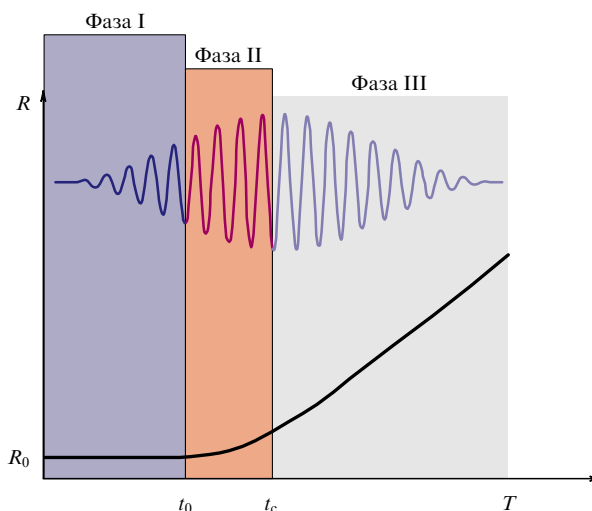


Рис. 1. Качественная картина динамики кластера при воздействии интенсивного лазерного импульса; $R(t)$ — зависящий от времени радиус кластера. Показаны: ионизация атомов (фаза I), критическая фаза расширения (фаза II) и релаксация (фаза III), а также возбуждающий лазерный импульс; T — полное время трёхстадийного процесса эволюции кластера [8].

Эволюцию кластера во времени можно рассматривать как трёхстадийный процесс (рис. 1) [8]. На первой стадии (фаза I) лазерный импульс взаимодействует с атомами кластера так, как будто атомы являются изолированными. Лазерное поле производит первичную однократную внутреннюю ионизацию нейтральных атомов кластера. Многократно заряженные атомные ионы внутри кластера (которых большинство) образуются за счёт соударений горячих электронов с атомами и ионами, а также за счёт ионизации атомов кулоновским полем заряженного кластера после вылета части электронов из кластера ("механизм зажигания", см. разделы 3.5 и 5.1). Происходит ионизация атомов кластера и формирование квазисвободных электронов внутри кластера. На стадии II, наиболее критической и интересной, кластер расширяется под действием кулоновских сил образовавшихся ионов. Расширение кластера приводит к уменьшению плотности ионов. С другой стороны, плотность квазисвободных электронов в кластере может и не уменьшаться. Эти электроны, которые формировались за счёт внутренней ионизации кластера (см. раздел 3), остаются связанными с кластером как целым, а не с отдельными ионами. Изменение их плотности определяется балансом между скоростями внутренней и внешней ионизации кластера в каждый момент времени. Наконец, на стадии III поглощение энергии из лазерного импульса уменьшается, поскольку импульс становится слабым, а затем и полностью прекращается. В течение этой фазы имеет место перераспределение энергии внутри кластера, например, за счёт процесса рекомбинации. Происходит полная фрагментация кластера и установление распределений электронов и ионов по энергии. Эта упрощённая, но довольно универсальная схема позволяет лучше понимать и определять различные механизмы поглощения энергии кластером. В случае короткого возбуждающего лазерного импульса процессы расширения кластера и установления равновесия происходят уже после окончания импульса.

2.2. Некоторые параметры взаимодействия излучения с кластерами

На рисунке 1 схематически показан также возбуждающий лазерный импульс. Если длительность импульса составляет около 100 фс, то число колебаний напряжённости поля в ИК-импульсе ($\lambda = 800$ нм, $\omega = 2\pi c/\lambda \cong \cong 2,4 \times 10^{15} \text{ с}^{-1}$) составляет примерно 37, а в ВУФ-импульсе ($\lambda = 100$ нм, $\omega \cong 2 \times 10^{16} \text{ с}^{-1}$) — около 300. Как отмечено в разделе 1, в случае ИК-импульсов частота лазерного поля ω значительно меньше атомной частоты ω_a ,

$$\omega \ll \omega_a = \frac{m_e e^4}{\hbar^3}, \quad (2.2)$$

где m_e и e — масса и заряд электрона соответственно, $\hbar$ — постоянная Планка, в то время как в случае ВУФ-импульсов частота лазера может превышать атомную частоту. Определённая соотношением (2.2) атомная частота $\omega_a \cong 4,13 \times 10^{16} \text{ с}^{-1}$, а соответствующая ей атомная длина волны составляет $\lambda_a \cong 45,6$ нм. Следовательно, при возбуждении кластеров ВУФ-импульсами длина волны излучения может быть меньше атомной длины волны или сравнима с ней, в то время как в случае возбуждения ИК-импульсами длина волны излучения значительно больше атомной длины волны. Все эти различия приводят к тому, что процесс возбуждения кластеров ВУФ-импульсами существенно отличается от процесса их возбуждения ИК-импульсами (см. разделы 3 и 5).

Для описания возбуждения кластеров интенсивными лазерными импульсами ИК- и ВУФ-диапазонов важно знать границы применимости теории возмущений. Теория возмущений перестаёт работать при интенсивностях излучения, превышающих критическую величину I^* , которая дается [8] соотношением

$$I^* \sim F^2 \sim 4\omega^2 \Delta E, \quad (2.3)$$

где ΔE — типичная разность энергий атома (например, потенциал ионизации), F — напряжённость электрического поля лазерного импульса и ω — частота излучения. Заметим квадратичную зависимость I^* от частоты. Вследствие этого, в случае возбуждения кластеров излучением ВУФ-диапазона теория возмущений применима даже при больших интенсивностях лазерного поля. Это проиллюстрировано в табл. 1, где приведены интенсивности, определяемые соотношением (2.3), для разных лазерных частот при величине $\Delta E = 1$ а.е. ($\approx 13,6$ эВ).

Соотношение, аналогичное (2.3), можно получить, если определить, при какой интенсивности лазерного поля электроны будут туннелировать через барьер, созданный совместным действием иона и лазерного поля, за время, меньшее длительности лазерного импульса. Эта интенсивность определяется параметром Келдыша

Таблица 1. Интенсивности лазерного излучения I^* , являющиеся граничными для процесса ионизации кластеров в рамках теории возмущений и точного решения согласно соотношению (2.3) для различных значений длины волны и частоты излучения [8]

λ , нм	780	100	3,5
$\hbar\omega$, эВ	1,59	12,4	350
I^* , Вт см $^{-2}$	5×10^{14}	3×10^{16}	2×10^{19}

$\gamma = T_1 \omega$, где T_1 — время туннелирования [54]. Параметр Келдыша можно переписать [8] в виде

$$\gamma = \sqrt{\frac{\Delta E}{2E_p}}. \quad (2.4)$$

Здесь E_p — пондеромоторная энергия (энергия "дрожания" или колебания) электрона в осциллирующем лазерном поле, которая определяется как

$$E_p = \frac{e^2 F^2}{4m_e \omega^2}. \quad (2.5)$$

Значение $\gamma = 1$ устанавливает примерную границу между режимом многофотонного возбуждения атомов, когда работает теория возмущений ($\gamma \gg 1$), и режимом, когда теория возмущений не работает ($\gamma \leq 1$). Отметим также, что в случае сравнительно протяжённых систем, таких, как кластеры, особенно важна напряжённость осциллирующего лазерного поля. Напряжённостью поля определяется амплитуда дрожания электронов x_{quiv} — амплитуда периодического движения электронов под действием лазерного поля:

$$x_{\text{quiv}} = \frac{eF}{m_e \omega^2}. \quad (2.6)$$

Эта амплитуда обычно сравнивается с радиусом кластера, который, например, для кластеров Xe_N с числом атомов $N = 10^4$ составляет около 50 Å. В таблице 2 приведены параметры Келдыша, а также абсолютные величины пондеромоторной энергии E_p и амплитуды колебания электронов x_{quiv} для некоторых рассматриваемых в обзоре длин волн лазеров при нескольких интенсивностях. Указанные параметры и величины определяют характер взаимодействия излучения с кластерами и используются при рассмотрении и анализе различных механизмов ионизации кластеров и нагрева кластерной плазмы (см. разделы 3 и 5).

В заключение этого раздела отметим, что, несмотря на короткие длины волн возбуждающего излучения в случае ЛСЭ ВУФ-диапазона, дипольное приближение остается справедливым. Это видно из сравнения амплитуды колебания электронов с длиной волны излучения (см. табл. 2). Последняя величина на порядки больше первой даже при высоких интенсивностях. Отметим

Таблица 2. Параметр Келдыша γ , амплитуда "дрожания" электронов x_{quiv} и пондеромоторная энергия E_p для длинных и коротких волн излучения лазеров при различных интенсивностях [8]

Длина волны, нм		Интенсивность, Вт см $^{-2}$		
		10^{14}	10^{16}	10^{18}
780	γ	1,55	0,15	0,015
	E_p , эВ	5,67	567	$56,7 \times 10^3$
	x_{quiv} , Å	8,28	82,8	828
100	γ	12,1	1,21	0,121
	E_p , эВ	93×10^{-3}	9,3	932
	x_{quiv} , Å	0,136	1,36	13,6
3,5	γ	345	34,5	3,45
	E_p , эВ	1×10^{-4}	0,01	1,1
	x_{quiv} , Å	0,0002	0,002	0,02

также, что взаимодействие лазерных импульсов с атомной системой имеет нерелятивистский характер, несмотря на большую амплитуду волны возбуждающего излучения [9]. Действительно, характерная скорость валентных электронов в атоме порядка $e^2/\hbar$, а для атомных ионов с зарядом $Z \sim 1$ эта скорость $v \sim Ze^2/\hbar$ имеет тот же порядок величины, так что параметр v/c , где c — скорость света, является малым, что и определяет нерелятивистский характер взаимодействия рассматриваемых атомов и ионов с электромагнитным полем.

3. Возбуждение кластеров интенсивными импульсами ИК-диапазона

3.1. Общие замечания

Возбуждение кластеров сверхкороткими лазерными импульсами ИК-диапазона ($\lambda \approx 800$ нм) довольно хорошо изучено (см., например, работы [1–4, 8, 9] и ссылки в них). Типичные потоки лазерной энергии в таких экспериментах составляют $10^{14}–10^{20}$ Вт см $^{-2}$ при длительности импульса $\tau_p \sim 30–300$ фс. При высоких интенсивностях излучения напряжённость электрического поля в лазерной волне заметно превышает характерную напряжённость в атоме водорода. Так, характерная атомная величина для напряжённости электрического поля составляет

$$F_a = \frac{e}{a_0^2} = \frac{m_e^2 e^5}{\hbar^4} \cong 5,14 \times 10^9 \text{ В см}^{-1}, \quad (3.1)$$

а отвечающая этому полю интенсивность электромагнитной волны

$$I = \frac{cF_a}{8\pi} \cong 3,5 \times 10^{16} \text{ Вт см}^{-2}. \quad (3.2)$$

Здесь e — заряд электрона, a_0 — радиус Бора, m_e — масса электрона, $\hbar$ — постоянная Планка, c — скорость света. Поля, создаваемые лазерными импульсами современных установок, могут превосходить эту величину на несколько порядков, поэтому лазерный импульс способен ионизовать атомы кластеров в результате надбарьерного перехода электронов. Более того, это относится и к образовавшимся ионам. В результате быстрого возбуждения кластера в условиях отсутствия отвода тепла удастся достичь очень большого нагрева электронной подсистемы кластера (до 1–10 кэВ). При этом атомные ионы в начальный момент воздействия лазерного импульса 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 атомных ионов. В течение возбуждения лазерным импульсом и после него в таком сильно возбуждённом кластере развивается целый ряд процессов [1–11]. Происходит внутренняя и внешняя фотоионизация кластера, кулоновский и гидродинамический взрывы, генерация высоких гармоник и рентгеновского излучения, синтез ядер и генерация нейтронов.

3.2. Механизмы ионизации атомов

Процесс взаимодействия интенсивных ИК-лазерных импульсов с атомами, связанными в кластеры, существенно отличается от процесса взаимодействия с интен-

сивными импульсами атомов в газовой фазе, хотя первичный механизм ионизации атомов и формирования плазмы в обоих случаях аналогичен — туннельная или надбарьерная ионизация атомов. Однако последующие процессы ионизации и нагрева плазмы различны в этих двух случаях. В газе плотность атомов мала, так что столкновения между электронами и ионами во временной шкале лазерного импульса редки, и поэтому доминирующим механизмом образования плазмы является прямая оптическая ионизация атомов лазерным полем. При интенсивностях излучения, используемых в таких экспериментах ($10^{14}–10^{20}$ Вт см $^{-2}$), первоначальное образование электронов происходит за счёт туннельной (или надбарьерной) ионизации атомов [55].

В плазме, образованной за счёт туннельной ионизации атомов в газе, существуют три первичных механизма нагрева плазмы. Первый механизм — надпороговая ионизация (above threshold ionization, ATI) — это эффект отдельного атома. Он реализуется за счёт того, что при ионизации из лазерного поля поглощается дополнительная энергия, которая для линейно поляризованного поля оценивается [1] величиной

$$E_{\text{ATI}} = 2U_p \sin \Delta\varphi. \quad (3.3)$$

Здесь U_p — ponderomotorный потенциал в момент времени, когда происходит ионизация атома, который даётся [1] величиной U_p (эВ) = $9,3 \times 10^{-14} I(\text{Вт см}^{-2}) \times \lambda^2$ (мкм), и $\Delta\varphi$ — фаза, отсчитанная от пикового значения лазерного электрического поля, при которой ионизуется атом. Максимальная энергия электронов в такой модели достигает величины $2U_p$. Так, например, в случае ионизации атомов гелия (при параметрах излучения $\lambda = 800$ нм, $\tau_p = 100$ фс, $I = 10^{17}$ Вт см $^{-2}$) $E_{\text{ATI}} > 100$ эВ. Однако максимум распределения электронов по энергии находится при нулевых энергиях. В результате этого "температура" распределения (определяемая как $kT_e = (2/3)\langle E \rangle$) является довольно низкой, около 40 эВ. Результаты расчётов [55] и экспериментальных исследований [56] показывают, что в общем случае температура плазмы при ATI не превышает 50 эВ для газов He, Ar, Kr при возбуждении импульсами излучения на длине волны 800 нм, при длительности импульсов 100 фс и интенсивности 10^{17} Вт см $^{-2}$.

Другой механизм нагрева электронов — это упругие кулоновские столкновения движущихся под действием лазерного поля электронов с ионами в газе (обратное тормозное поглощение — inverse bremsstrahlung, IBS). Для типичных плотностей газа этот механизм менее важен по сравнению с механизмом ATI [57]. Скорость вложения энергии на электрон можно записать как

$$\frac{\partial E_{\text{col}}}{\partial t} = 2\nu_{ei} U_p, \quad (3.4)$$

где ν_{ei} — частота электрон-ионных столкновений (обычно определяется в пределе сильного и слабого поля [1, 3, 4]). В пределе сильного поля можно получить [1], что для плазмы He с температурой 10 эВ и плотностью ионов 10^{18} см $^{-3}$ при интенсивности 10^{16} Вт см $^{-2}$ скорость нагрева плазмы составляет примерно 3 эВ пс $^{-1}$. Таким образом, вклад этого механизма в нагрев газовой плазмы в общем случае для субпикосекундных лазерных импульсов очень мал.

Третий возможный механизм нагрева газовой плазмы — это стимулированное комбинационное (рамановское) рассеяние (SRS — stimulated Raman scattering) [58]. Однако результаты исследований показывают [59, 60] (см. также [1]), что этот механизм нагрева плазмы становится важным только при интенсивностях ИК-излучения, превышающих 10^{18} Вт см $^{-2}$, и не важен при меньших интенсивностях. Таким образом, температуры газов низкой плотности, облучаемых ИК-лазерными импульсами длительностью около 100 фс при интенсивностях менее 10^{17} Вт см $^{-2}$, для представляющих интерес газов обычно находятся в области 10–50 эВ. В случае же кластеров из-за высокой плотности атомов в кластере и большого числа столкновений между электронами и между электронами и ионами достигаются существенно более высокие температуры. Ниже в разделах 3.3–3.5 мы кратко рассмотрим механизмы ионизации и нагрева кластерной плазмы.

3.3. Механизмы внутренней ионизации кластеров

Существует целый ряд механизмов внутренней и внешней ионизации кластеров [1, 3, 4, 8, 9]. Мы лишь кратко рассмотрим наиболее известные из них. Обычно рассматривают [1] следующие три механизма внутренней ионизации, которые могут быть определяющими при взаимодействии лазерного излучения с атомами в кластере. Первый — это прямая оптическая ионизация атомов (туннельная или надбарьерная). Этот механизм наиболее важен на первых стадиях взаимодействия лазерного импульса с кластером, поскольку за счёт него образуются начальные электроны, которые формируют плазму. Скорость туннельной ионизации можно вычислить, используя усреднённую по циклу лазерного поля скорость ионизации атомов, полученную в классической работе Аммосова, Делоне и Крайнова [55]. Для произвольного атома эта скорость даётся выражением

$$W_{\text{tun}} = \omega_a \frac{(2l+1)(l+|m|)!}{2^{|m|}|m|!(l+|m|)!} \left(\frac{2e}{n^*}\right)^{n^*} \frac{1}{2\pi n^*} \times \\ \times I_p \left(\frac{2F}{\pi(2I_p)^{3/2}}\right)^{1/2} \left(\frac{2(2I_p)^{3/2}}{F}\right)^{2n^*-|m|-1} \times \\ \times \exp\left[-\frac{2(2I_p)^{3/2}}{3F}\right]. \quad (3.5)$$

Здесь l и m — квантовые числа угловых моментов (скорость усреднена по m для оболочки), ω_a — атомная частота ($\omega_a \cong 4,13 \times 10^{16}$ с $^{-1}$), n^* — эффективное главное квантовое число, $n^* = Z[2I_p(\text{эВ})]^{-1/2}$, Z — заряд иона, F — напряжённость лазерного поля в атомных единицах и I_p — ионизационный потенциал в атомных единицах. Указанная скорость является сильно нелинейной по отношению к лазерному полю. Чтобы имела место эффективная туннельная ионизация атомов в случае субпикосекундных импульсов, обычно требуются интенсивности лазерного излучения около 10^{14} Вт см $^{-2}$. Например, в случае 100-фемтосекундного импульса почти 100 %-ная ионизация атомов Ag происходит в случае, когда пиковая интенсивность излучения достигает $\sim 3 \times 10^{14}$ Вт см $^{-2}$ [1].

Надбарьерную ионизацию можно описать [3, 9] в рамках приближения Бете [61]. Если считать, что освобождающийся электрон находится в кулоновском поле

атомного остатка и лазерное поле не меняет потенциал ионизации атомной частицы, то электрический потенциал, действующий на электрон, имеет вид (в атомных единицах)

$$U = -\frac{Z}{r} + Fx, \quad (3.6)$$

где r — расстояние электрона от атомного остатка, x — координата вдоль поля, Z — заряд атомного остатка, F — текущая напряжённость поля волны. Надбарьерное освобождение электрона имеет место, если напряжённость поля удовлетворяет соотношению [3, 61]

$$F > \frac{I_p^2}{4Z}, \quad (3.7)$$

где I_p — потенциал ионизации атомной частицы. Используя потенциал ионизации водородоподобного иона $I_p = Z^2 I_0 / n^2$ (I_0 — потенциал ионизации атома водорода в основном состоянии, n — главное квантовое число, соотношение справедливо при больших значениях Z), получим для максимального заряда атомного иона, образуемого под действием поля напряженности F ,

$$Z = n^{4/3} \left(\frac{F}{F_a}\right)^{1/3}, \quad (3.8)$$

где параметр F_a даётся формулой (3.1). Соотношение (3.8) позволяет оценить зависимость заряда образующихся ионов от напряжённости поля [3, 9].

Второй механизм ионизации кластеров является, вероятно, наиболее важным в рассматриваемом случае возбуждения кластеров импульсами ближнего ИК-диапазона. Это — ионизация, которая имеет место вследствие неупругих столкновений между электронами и ионами в кластере. Как только при оптической ионизации появляются первоначальные электроны, образование ионов с высоким зарядовым состоянием происходит, главным образом, за счёт столкновительной ионизации как результат высокой плотности частиц в кластере. Скорость столкновительной ионизации обычно вычисляется [1, 3, 7] на основе эмпирической формулы Лотца [62]. Эта скорость на один ион, усреднённая по распределению Максвелла электронов по скоростям, определяется выражением

$$W_{kT} = n_e \frac{a_i q_i}{I_p (kT_e)^{1/2}} \int_{I_p/kT_e}^{\infty} \frac{\exp(-x)}{x} dx, \quad (3.9)$$

где n_e — плотность электронов, I_p — потенциал ионизации (в электронвольтах), a_i — эмпирическая константа, равная $4,5 \times 10^{-14}$ эВ 2 см $^{-3}$ [62], и q_i — число электронов во внешней оболочке иона. Энергия электронов должна удовлетворять соотношению $kT_e \geq I_p$. Для условий, которые реализуются в кластере, эта скорость может быть весьма высокой. Например, в кластере аргона с твердотельной плотностью и восьмикратно ионизованными атомами ($Z = 8$, $n_e = 2 \times 10^{23}$ см $^{-3}$) при температуре 1 кэВ скорость ионизации атомов аргона от Ar^{8+} до Ar^{9+} ($I_p = 422$ эВ) составляет 0,3 фс $^{-1}$. Поэтому этот механизм ионизации может быть ответственным за формирование высоких зарядовых состояний ионов при интенсивностях, значительно меньших пороговых интенсивностей, необходимых для туннельной ионизации

кластеров, при условии, что кластер достаточно нагрет. Заметим, что туннельная ионизация атомов Ag^{8+} до Ag^{9+} становится значительной только при интенсивности более 10^{18} Вт см $^{-2}$ [1].

Третий механизм — это столкновительная ионизация атомов кластера электронами в результате осциллирующих движений электронов в лазерном поле. Соотношение (3.9) учитывает только скорость столкновительной ионизации за счёт термической энергии электронов. Электроны в кластере имеют также скорость, связанную с их осциллирующим движением в лазерном поле. В общем случае расчёт скорости ионизации вследствие колебательных движений электронов — сложная проблема из-за большого числа кулоновских столкновений, которые преодолевают электроны, в результате которых синусоидальное движение электронов нарушается. Тем не менее скорость ионизации за счёт этого механизма можно оценить сверху, если рассматривать скорость электронов как чисто синусоидальную. Такая оценка сделана в работе [1]. При оценках авторы использовали выражение для зависящего от скорости частиц сечения столкновительной ионизации, приведённое в работе Лотца [62]:

$$\sigma_i = a_i q_i \frac{\ln(E_e/I_p)}{E_e I_p}, \quad (3.10)$$

где E_e — кинетическая энергия электронов, I_p — потенциал ионизации атома. Скорость ионизации на один ион определяется как

$$W_{\text{las}}(t) = n_e \sigma_i \frac{e F_{\text{in}}}{m_e \omega} |\sin \omega t|, \quad (3.11)$$

где F_{in} — электрическое поле внутри кластера (см. соотношение (3.14)).

Усреднённая по периоду лазерного поля скорость столкновительной ионизации на один ион составляет [1]

$$W_{\text{las}} \approx n_e \frac{a_i q_i}{2\pi I_p m_e^{1/2} U_p^{1/2}} \times \left\{ \left[3 + \frac{I_p}{U_p} + \frac{3}{32} \left(\frac{I_p}{U_p} \right)^2 \right] \ln \left[\frac{1 + \sqrt{1 - I_p/2U_p}}{1 - \sqrt{1 - I_p/2U_p}} \right] - \left(\frac{7}{2} + \frac{3I_p}{8U_p} \right) \sqrt{1 - \frac{I_p}{2U_p}} \right\}. \quad (3.12)$$

Отметим, что более простые выражения для скорости столкновительной ионизации атомов в кластере при различных соотношениях между U_p и I_p получены в работах [3, 4, 7]. На рисунке 2а приведена скорость ионизации для Ag^{8+} в функции U_p/I_p при плотности электронов 1×10^{23} см $^{-3}$. Рассматриваемая скорость ионизации сравнивается со скоростью термической ионизации, определённой соотношением (3.9), в функции kT_e/I_p . Из рисунка 2а видно, что эти две скорости имеют сопоставимые величины, если температура плазмы сравнима с пондеромоторной энергией лазерного поля внутри кластера.

3.4. Механизмы нагрева кластеров

Поскольку скорость термической ионизации кластера существенно зависит от электронной температуры, представляется важным исследование механизмов нагрева кластеров. Одной из первых работ, в которых исследова-

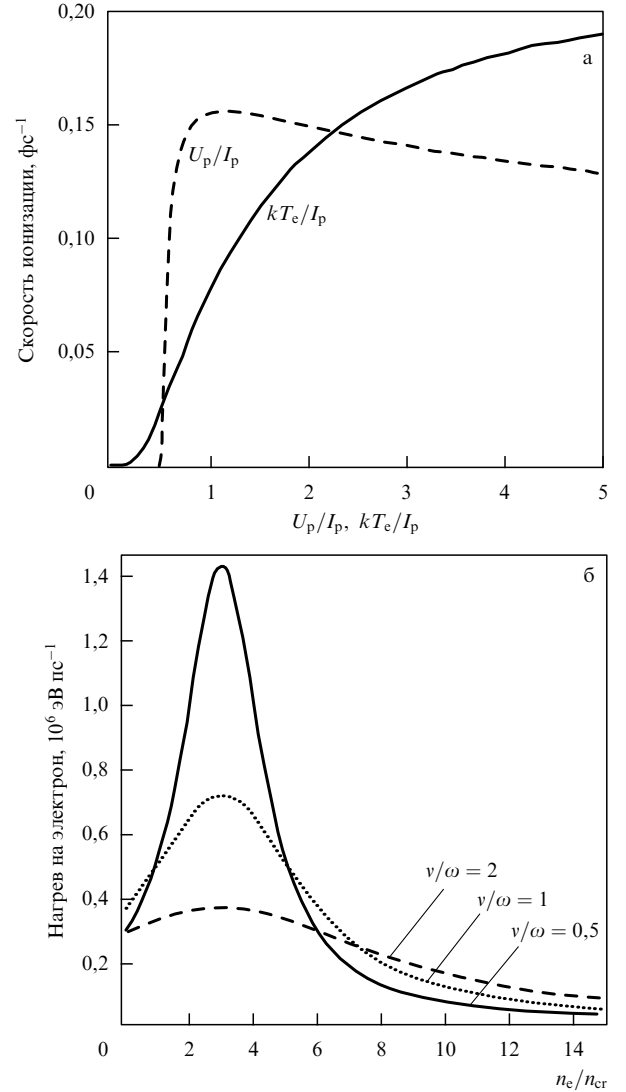


Рис. 2. (а) Вычисленная скорость ионизации ионов Ag^{8+} в плазме с электронной плотностью 10^{23} см $^{-3}$ термически нагретыми электронами (сплошная линия) и электронами, приводимыми в движение лазерным полем (штриховая линия) [1]. (б) Вычисленная на основе соотношения (3.17) скорость нагрева кластера лазерным импульсом с длиной волны 825 нм и интенсивностью 10^{16} Вт см $^{-2}$ в зависимости от концентрации электронов для трёх значений частоты столкновений [1].

лась динамика ионизации и нагрев кластеров, облучаемых интенсивными лазерными импульсами, является работа [1], в которой феноменологически рассмотрена наноплазменная модель кластера. Авторы анализировали взаимодействие лазерного импульса с кластером как с небольшим шариком высокоплотной плазмы. Плотность квазисвободных электронов внутри кластера $n_e(t)$ считалась пространственно однородной, но зависящей от времени. Зависимость плотности электронов от времени позволяет учесть индуцированную лазерным импульсом динамику. Предположение об однородности плазмы требует, чтобы размер кластера был существенно больше дебаевской длины экранирования:

$$\lambda_D = \sqrt{\frac{kT_e}{4\pi e^2 n_e}}. \quad (3.13)$$

Эта величина накладывает ограничение на пространственный размер плазмы с электронной температурой T_e . Например, для плазмы с плотностью, типичной для твёрдого тела (10^{23} см^{-3}), при $kT_e = 1000 \text{ эВ}$ получим $\lambda_D \sim 5 \text{ \AA}$. Следовательно, с помощью наноплазменной модели можно описывать только кластеры с радиусом $R \gg 5 \text{ \AA}$. Отметим, что при $kT_e \approx 1 \text{ кэВ}$ концентрация электронов в кластере превышает 10^{23} см^{-3} из-за многократной ионизации атомов. При дальнейшем увеличении температуры растёт и концентрация электронов, так что дебаевская длина λ_D всегда остается очень маленькой по сравнению с размерами рассматриваемых в данном обзоре кластеров.

Временная эволюция плотности электронов в рассматриваемой модели вычисляется самосогласованным образом: электрическое поле F_{in} внутри кластера зависит (через диэлектрическую проницаемость $\varepsilon(\omega)$) от плотности электронов $n_e(t)$, а изменение плотности $n_e(t)$ контролируется ионизацией атомов и ионов электрическим полем F_{in} . Поскольку в рассматриваемом случае диаметр кластеров значительно меньше длины волны лазерного излучения, можно считать, что поле внутри кластера равно полю внутри диэлектрической сферы, находящейся в постоянном поле. Величина этого поля даётся выражением [63]

$$F_{\text{in}} = \frac{3}{[2 + \varepsilon(\omega)]} F, \quad (3.14)$$

где F — электрическое поле в вакууме, а диэлектрическая проницаемость обычно берётся в форме Друде [64]:

$$\varepsilon(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega(\omega + i\nu_{ei})}, \quad (3.15)$$

где $\omega_p = \sqrt{4\pi e^2 n_e / m_e}$ — плазменная частота, а ν_{ei} — частота электрон-ионных столкновений.

Поскольку предполагается, что в кластере нет температурных градиентов, можно считать, что лазерный нагрев однороден во всём объёме кластера. Предполагается также, что первоначально энергия лазерного излучения вкладывается в свободные электроны в кластере и что вклад этой энергии происходит за счёт обратного тормозного поглощения. Скорость нагрева электронов можно найти, рассматривая скорость вложения энергии в диэлектрическую сферу. Усреднённая по циклу лазерного поля скорость нагрева составляет [1]

$$\frac{dE_e}{dt} = \frac{\omega}{8\pi} \text{Im}[\varepsilon] |F_{\text{in}}|^2. \quad (3.16)$$

С учётом соотношений (3.14) и (3.15) скорость нагрева на единичный объём принимает [1] вид

$$\frac{dE_e}{dt} = \frac{9\omega^2 \omega_p^2 \nu}{8\pi} \frac{1}{9\omega^2(\omega^2 + \nu^2) + \omega_p^2(\omega_p^2 - 6\omega^2)} |F|^2. \quad (3.17)$$

Следует заметить, что когда плотность электронов внутри кластерной сферы высока, т.е. когда $n_e/n_{e,\text{cr}} \gg 3$ (где критическая плотность электронов $n_{e,\text{cr}} = m_e \omega^2 / 4\pi e^2$), тогда величина поля внутри кластера, определённая соотношением (3.14), меньше величины поля в вакууме вне кластера. Это экранирование лазерного поля приводит к уменьшению скорости нагрева кластера. Однако, когда $n_e/n_{e,\text{cr}} = 3$, функция $|\varepsilon(\omega) + 2|$ проходит через минимум. В этом случае лазерное поле

внутри кластера усиливается по сравнению с внешним полем, и скорость нагрева кластера увеличивается [1]. Относительная амплитуда и ширина указанного резонанса, который называется резонансом Ми [65], определяется величиной частоты столкновений ν_{ei} . Зависимости скоростей нагрева, определяемых соотношением (3.17), от $n_e/n_{e,\text{cr}}$ для ряда фиксированных значений частоты столкновений ν_{ei} приведены на рис. 26. Видно, что по мере увеличения плотности электронов скорость нагрева кластера увеличивается, достигает максимума и затем уменьшается до значений, меньших скорости нагрева в вакууме, при $n_e/n_{e,\text{cr}} \geq 5$.

В работе [66] рассмотрена модель нагрева кластерной плазмы, основанная на аналогичных идеях, однако плотность электронов в кластере считалась зависящей от радиуса: $n_e = n_e(R, t)$. Установлено, что доминирующим механизмом поглощения энергии является резонансное поглощение электронов на поверхности кластера, когда реализуется условие $n_e \sim 3n_{e,\text{cr}}$. Такое резонансное поглощение со временем перемещается от поверхностных слоёв кластера во внутренние области и длится довольно долго (типично в течение почти всего возбуждающего лазерного импульса длительностью несколько сотен фемтосекунд), до тех пор, пока максимальная плотность во внутренней части кластера станет меньше указанной выше величины.

Рассмотренный феноменологический подход к описанию возбуждения кластеров основан на ряде предположений, которые нуждаются в подтверждении. В ряде последующих работ [67–77] возбуждение кластеров рассматривалось в рамках классической молекулярной динамики. С помощью современных компьютеров можно получить микроскопическое описание многочастичной динамики кластера. Многие результаты этих работ представлены в недавних обзорах [8, 9], а некоторые мы рассмотрим в разделе 5.4. Поэтому мы отметим лишь вытекающие из них наиболее важные положения.

Ключевой идеей при рассмотрении электронов в кластере [69], которая способствует более глубокому пониманию физики и успешному проведению численных расчётов, является разделение ионизации на внутреннюю и внешнюю (см. также работы [3, 8, 9]). Внутренняя ионизация означает возбуждение связанных электронов, приводящее к образованию так называемых квазисвободных электронов. Эти электроны не связаны с отдельными атомами, но связаны с кластерным ионом как целым, имеющим достаточно сильный пространственный заряд, чтобы удерживать электроны. Согласно указанным выше моделям квазисвободные электроны распространяются внутри кластера среди ионов и других квазисвободных электронов классическим образом, поэтому в расчёт включаются все взаимные кулоновские силы. При движении электронов учитывается их рассеяние на электронах и ионах, что является весьма важным из-за высокой плотности частиц в объёме кластера. Более того, в случае ИК- и ВУФ-частот квазисвободные электроны могут дополнительно нагреваться лазером, в результате чего, в конце концов, они инжектируются в континуум, что и представляет собой внешнюю ионизацию.

В режиме возбуждения кластеров ИК- и ВУФ-излучением лазер действует на электроны как классическое поле. Под действием осциллирующего лазерного поля квазисвободные электроны испытывают осцилляции с

достаточно большой амплитудой (см. табл. 2). При этом электроны испытывают существенный нагрев за счёт обратного тормозного поглощения, возникающего в результате повторяющихся столкновений электронов, приводимых в движение лазерным полем, с ионами. В случае же высокочастотного излучения поле осциллирует настолько быстро, что скорость электрона не может сильно увеличиться. Поэтому в классических уравнениях движения лазерное поле можно вообще не учитывать.

Рассматривались и другие механизмы нагрева кластеров [78–80]. Так, в работе [80] был сделан вывод о том, что основным механизмом является индуцированный поляризацией лазера нагрев электронов. По мнению авторов, разность фаз между осциллирующим электронным облаком кластера и движущим электроны лазерным полем приводит к поглощению излучения и нагреву кластера. Однако несколько позднее в [81] аргументировалось, что поляризация действует против дефазировки и поэтому не может быть ответственна за увеличение поглощения энергии. В работе [81] предложен механизм нагрева, в основе которого лежит процесс обратного рассеяния квазисвободных электронов от ионных (некулоновских) потенциалов. При таком рассеянии электроны передают электромагнитному полю лазерного импульса энергию, которая затем тратится на дальнейший нагрев электронов. По оценке авторов [81] этот механизм приводит, вследствие большого сечения рассеяния, примерно к десятикратному увеличению выхода рентгеновского излучения.

В работах [82–84] исследовалось поглощение лазерного импульса атомными кластерами, имеющими диаметр около 10 нм, при интенсивности около 10^{16} Вт см $^{-2}$ в условиях резонанса между плазменной частотой кластера и утроенной частотой излучения титан-сапфирового лазера. Резонанс возникает и исчезает в процессе расширения кластера. Установлено, что в момент резонанса происходит усиленная ионизация атомов, которая приводит к образованию многозарядных ионов внутри кластера. При этом происходит также генерация второй гармоники лазерного импульса.

В работе [85] показано, что часть квазисвободных электронов в кластере поглощает достаточно большую энергию и проходит через весь кластер за один лазерный период. При этом на границе кластера гармоническое колебание электронов нарушается, что приводит к увеличению поглощения энергии из поля лазерного импульса за счёт обратного тормозного эффекта. Обратное тормозное поглощение может быть довольно эффективным. Так, выполненные в работе [86] расчёты показывают, что эффективность нагрева кластеров за счёт обратного тормозного поглощения существенно (примерно на два порядка) больше в случае, когда учитываются столкновения электронов с кластерным ионом как целым, а не только с атомными ионами. Подробный анализ взаимодействия интенсивных импульсов ближнего ИК-излучения, а также импульсов ВУФ-излучения ЛСЭ с кластерами выполнен недавно в работах [80, 87, 88]. Эти работы мы рассмотрим в разделе 5.4.

3.5. Механизмы внешней ионизации кластеров

Рассмотрим кратко механизмы внешней ионизации кластера и образования кластерного иона. В случае металлических кластеров, когда имеются электроны проводимости, первоначальный механизм ионизации заклю-

чается в удалении этих электронов с поверхности кластера электромагнитным полем возбуждающего лазерного импульса. Этот механизм ионизации принято называть *холодной* ионизацией [3]. Такой процесс заканчивается, когда сила притяжения электрона к образовавшемуся кластерному иону превышает силу, действующую со стороны электромагнитного поля. На основе закона Кулона можно определить заряд Z' кластерного иона по окончании этого процесса:

$$Z' = FR^2. \quad (3.18)$$

Отметим, что при холодной ионизации число удалённых от кластера электронов мало по сравнению с полным числом электронов в кластере. Так, например, при интенсивности поля 10^{15} Вт см $^{-2}$ (при напряжённости поля $8,5 \times 10^8$ В см $^{-1}$) в кластере натрия радиусом $R = 215$ Å (число атомов в кластере $N = 10^6$) $Z' = 27300$ [3], в то время как число электронов в кластере $ZN = 1,1 \times 10^7$.

В кластерах благородных газов внешняя ионизация может происходить за счёт подавления электростатического барьера кластерного иона сверхсильным электромагнитным полем лазерного импульса [3, 4, 89, 90]. Предполагается, что такие электроны за атомное время ($\sim 10^{-16} - 10^{-17}$ с) покидают как родительский атом, так и кластер. В работе [89] на примере кластеров, состоящих из 1100 атомов ксенона, показано, что в лазерном поле с интенсивностью 10^{16} Вт см $^{-2}$ надбарьерная ионизация приводит к образованию кластерного иона с зарядом $Z' = 1200$. Дальнейшая ионизация происходит в рамках другого механизма. Образованный кластерный ион можно рассматривать как проводящую сферу с зарядом, сосредоточенным в тонком слое на его поверхности. Сверхсильное кулоновское поле в этом слое выбивает из ближайших атомных ионов дополнительные электроны, которые летят к центру кластера. Эти электроны, приобретая большую скорость, затем покидают кластер. Показано, что в результате такого процесса заряд кластерного иона увеличивается до $Z' = 2600$. Это так называемый *механизм зажигания* [91]. Например, напряжённость электрического поля на поверхности кластера с 25-ю 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 напряжённости поля. Таким образом, поля, созданные в начале ионизации, "зажигают" кластер, вызывая его дальнейшую ионизацию (отсюда и название механизма).

Ещё один механизм испускания электронов с поверхности кластера — это обычная термоэлектронная эмиссия. Она описывается [3] формулой Ричардсона–Дешмана для тока термоэмиссии со сферической поверхности кластера (в атомных единицах) [92, 93]:

$$\frac{dZ'}{dt} = A_0 T_e^2 4\pi R^2 \exp\left(-\frac{I_{Z'}}{T_e}\right). \quad (3.19)$$

Здесь $A_0 = 1/(2\pi)^2$ — так называемый параметр Ричардсона, величина $I_{Z'} = Z'/R$ — потенциал ионизации кластерного иона с зарядом $Z' \gg 1$, когда можно пренебречь работой выхода. Результаты показывают [3], что термоэмиссия представляет собой гораздо более эффек-

тивный механизм ионизации кластеров, чем полевая (холодная) эмиссия. Например, в случае рассмотренного выше кластера натрия с 10^6 атомами (полное число электронов составляет $1,1 \times 10^7$) при интенсивности $I = 10^{15}$ Вт см $^{-2}$ испускается 270000 электронов. Степень ионизации кластера оказывается, тем не менее, небольшой (около 2,4 %).

В работе [94] рассматривалась стохастическая внешняя ионизация и сильный стохастический нагрев кластеров. По мнению автора, в результате случайного блуждания в энергетическом пространстве электрон может набрать достаточную энергию, чтобы преодолеть кластерный потенциал и оказаться в континууме. В этом случае происходит внешняя ионизация кластера. Получены оценки для скорости нагрева и времени внешней стохастической ионизации кластера. Стохастический нагрев возможен также при движении электрона в поле падающей и отражённой от кластера лазерных волн. Особенно сильный нагрев за счёт этого механизма происходит при релятивистских интенсивностях лазерного излучения [94]. В заключение этого раздела отметим, что существуют и другие механизмы нагрева и внешней ионизации кластеров (см., например, работы [3, 4, 8, 9]).

4. Лазер на свободных электронах ВУФ-диапазона

Во многих областях исследований (в физике, химии, биологии, медицине, материаловедении, геофизике) требуются мощные источники рентгеновского излучения с длительностью импульсов в фемтосекундном диапазоне [45, 95–97]. С помощью таких источников можно, например, в реальном времени наблюдать протекание химических реакций на атомарном уровне или получить мгновенный снимок сложной молекулы. Такое излучение, характеризующееся экстремально высокой интенсивностью и перестраиваемое в широкой области длин волн, можно получить с помощью обладающих большим усилением лазеров на свободных электронах [98–103]. Достигнутый в последнее время прогресс в технологии ускорителей даёт основание полагать, что именно ЛСЭ станут наиболее перспективными источниками получения перестраиваемого в широкой области спектра ВУФ- и рентгеновского излучения [104–108]. Недавно получена генерация ЛСЭ на длине волны 32 нм при длительности импульса 25 фс [50–52], а также на длине волны 13,3 нм при длительности импульса около 10 фс [53]. В ближайшей перспективе предполагается получить генерацию на длине волны около 6 нм [109], а до 2010–2012 годов — на длине волны 0,1–0,15 нм [104] (см. раздел 5.5.3). Излучение лазера характеризуется довольно высокой степенью когерентности, а пиковая мощность лазерных импульсов составляет около 1 ГВт [50, 110, 111]. Проведены первые успешные эксперименты с такими лазерами как по исследованию параметров излучения самих лазеров [50, 110, 111], так и по их применению для возбуждения атомных и кластерных пучков [51–53, 112]. Продемонстрировано также их применение в других физических экспериментах [53, 113, 114]. Результаты исследований показывают [113, 114] (см. также работу [115]), что интенсивные импульсы ВУФ-излучения ЛСЭ могут найти применение во многих областях науки и практики.

4.1. Принципы работы лазера на свободных электронах

Рассмотрим принцип работы ЛСЭ, обладающего большим усилением и излучающего импульсы в УФ-области спектра, построенного на основе электронного синхротрона вблизи Гамбурга в Германии в рамках большого международного проекта TESLA (TeV-Energy Superconducting Linear Accelerator) [49, 50, 110, 111, 116]. Над его реализацией работают 39 институтов из 9 стран, в том числе Германии, Франции, Италии, США, России [49, 50]. Целью проекта является строительство 500-гигаэлектронвольтового (в системе центра масс) e^+e^- линейного коллайдера в комплексе с рентгеновским лазером [96]. Основными составными частями ЛСЭ являются ускоритель, генерирующий очень качественный (bright) высокоэнергетический электронный пучок, и ондуляторный магнит. В ондуляторе под воздействием периодической последовательности поперечных магнитных полей электроны движутся с релятивистскими скоростями по осциллирующему пути. При этом они эмитируют излучение в узкую полосу в окрестности резонансной длины волны λ_{ph} , определяемой соотношением

$$\lambda_{ph} = \frac{\lambda_u}{2\gamma^2} \left(1 + \frac{K^2}{2} \right), \quad (4.1)$$

где

$$\gamma = \frac{E_e}{m_e c^2} \text{ — релятивистский фактор электронов,}$$

$$K = \frac{e B_u \lambda_u}{2\pi m_e c} \text{ — параметр ондулятора.}$$

Здесь E_e — энергия электрона, m_e — масса покоя электрона, e — элементарный заряд, c — скорость света в вакууме, λ_u — период ондулятора и B_u — пиковое значение магнитного поля в ондуляторе.

Благодаря взаимодействию электронов с излучением, генерируемым в ондуляторе, в ЛСЭ достигаются большие коэффициенты усиления ($\geq 10^3$ – 10^4), в результате чего с помощью ЛСЭ можно получить излучение существенно более высокой интенсивности по сравнению с излучением, получаемым в синхротронах. Если плотность заряда электронного пучка достаточно высока и длина ондулятора большая, то это взаимодействие индуцирует периодическую осцилляцию плотности заряда в электронном сгустке (пучке) с периодом, определяемым резонансной длиной волны λ_{ph} . Как только индуцируется эта "микроруппировка" (microbunching), многие электроны начинают излучать когерентно на резонансной длине волны, увеличивая тем самым интенсивность излучения, а следовательно, и глубину модуляции плотности электронов.

Указанный механизм приводит к экспоненциальному росту интенсивности излучения вдоль ондулятора. Из-за большого усиления лазерный эффект и насыщение в рассматриваемом лазере достигаются за один проход электронного пучка через ондулятор [98–103]. Поэтому, в отличие от случая с обычными лазерами или ЛСЭ, характеризующимися малым усилением, в данном лазере не требуются зеркала. Таким образом, обладающий большим усилением ЛСЭ является очень удобным источником интенсивного излучения в области дальнего

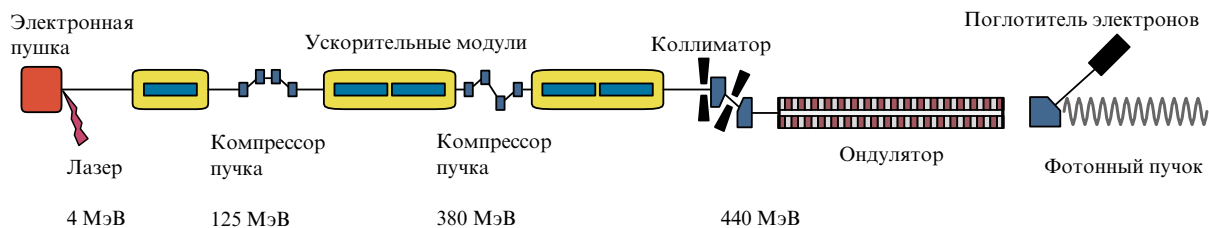


Рис. 3. Схема лазера на свободных электронах ВУФ-диапазона, построенного на линейном ускорителе в Гамбурге [50].

ультрафиолета, где нет подходящих зеркал для лазеров. Лазерный процесс в ЛСЭ может быть инициирован спонтанным ондуляторным излучением. Тогда ЛСЭ работает в так называемом режиме SASE [49, 102, 103, 116] (Self-Amplified Spontaneous Emission — самоусиленное спонтанное излучение) без введения внешнего сигнала.

При работе в режиме SASE мощность излучения экспоненциально растёт с расстоянием z вдоль ондулятора:

$$P(z) = AP_{\text{in}} \exp\left(\frac{2z}{L_g}\right), \quad (4.2)$$

где L_g — длина усиления поля излучения, P_{in} — мощность, A — фактор связи [101, 102]. В случае идеального электронного пучка в одномерной теории ЛСЭ $A = 1/9$ [49]. Поскольку в области коротких волн нет перестраиваемых лазеров, в качестве начального задающего сигнала P_{in} используется спонтанное ондуляторное излучение, эмитированное во входной части ондулятора.

Рассматриваемый лазер, работающий в режиме SASE, способен обеспечивать примерно на восемь порядков большие пиковые яркости излучения (поток фотонов на указанную полосу частот и на единицу объёма фазового пространства) по сравнению с синхротронным излучением, получаемым на накопительных кольцах [50, 97]. При этом длительность импульса излучения составляет около 100 фс (на полувысоте), и реализуется почти полная поперечная когерентность излучения. Два главных преимущества ЛСЭ следуют из соотношения (4.1) — это возможность перестройки длины волны излучения за счёт изменения энергии электронов или величины магнитного поля и возможность получения фотонов с очень короткой длиной волны при высоких энергиях электронов. Наиболее короткая длина волны излучения, достигнутая таким способом, составляет 13,3 нм [53]. Лазер с указанной длиной волны был успешно использован в экспериментах [53].

4.2. Основные элементы и параметры ЛСЭ

С момента первого наблюдения генерации ЛСЭ в режиме SASE [49] элементы и параметры лазера постоянно совершенствуются [49, 50, 110, 111]. Во многом это обусловлено необходимостью получить максимальное усиление и генерацию в более коротковолновой области [50, 104, 109]. К настоящему времени максимальное усиление и насыщение усиления достигнуты [49, 116], а генерация уже наблюдалась на длине волны 13,3 нм [53]. Схематическое изображение элементов и узлов ЛСЭ показано на рис. 3. Электронные пучки

формируются в фотоинжекторе (в электронной пушке) с помощью цуга лазерных импульсов [117] и ускоряются до энергии 445 МэВ в линейном ускорителе [118]. Заряд электронных пучков составляет от 0,5 до 1 нКл. При промежуточных энергиях 125 и 380 МэВ пучки электронов сжимаются в продольном направлении [119], в результате чего пиковая величина тока увеличивается от первоначальной величины 50–80 А до примерно 1–2 кА, что необходимо для работы ЛСЭ. Ондюлятор, имеющий общую длину 30 м [120], состоит из постоянных магнитов из NbFeB с фиксированными промежутками между ними 12 мм. Длина периода ондулятора $\lambda_u = 27,3$ мм, а пиковая величина магнитного поля $B_u = 0,47$ Тл. На выходе из ондулятора электронный пучок отклоняется с помощью двухполюсного магнита, а излучение ЛСЭ направляется в экспериментальный зал. Основные параметры лазера приведены в табл. 3.

Для ЛСЭ требуется сгруппированный электронный пучок очень высокого качества, характеризующийся большой величиной пикового тока, низкой излучательной способностью, малым разбросом по скоростям и небольшой длиной. Такой пучок может быть сформирован лишь на линейном ускорителе. Инжектор электронов состоит из фотокатода, расположенного в радиочастотном резонаторе, работающем на частоте 1,3 ГГц. Пиковое значение ускоряющего поля на фотокатоде составляет 40 МВ м^{-1} [117]. Катод, изготовленный из Cs_2Te , облучается УФ-лазерным импульсом гауссовой формы

Таблица 3. Основные параметры ЛСЭ ВУФ-диапазона [49, 50, 110, 111]

Электронный пучок	
Энергия пучка, МэВ	240–440
Заряд электронного пучка (сгустка), нКл	2,7–3,3
Заряд излучающей части пучка, нКл	0,1–0,2
Пиковый ток, кА	$1,3 \pm 0,3$
Среднеквадратичное отклонение энергии, кэВ	150 ± 50
Ондюлятор	
Период ондулятора λ_u , см	2,73
Пиковое поле ондулятора, Тл	0,47
Средняя β -функция, м	1,2
Длина магнита ондулятора, м	13,5
Лазерное излучение	
Длина волны, нм	13,6–180
Энергия в импульсе, мкДж	30–100
Длительность импульса на полувысоте, фс	50^{+50}_{-20}
Пиковая мощность излучения, ГВт	1
Средний уровень мощности излучения, мВт	до 5
Ширина спектра (на полувысоте)	1 % от длины волны
Размер пятна на выходе из ондулятора, мкм	250
Расходимость излучения (на полувысоте), мкрад	130 ± 30

длительностью около 4 пс от твердотельного лазера, работающего в режиме синхронизации мод и генерирующего пуг импульсов. Лазерный импульс синхронизован с радиочастотным импульсом.

После секции, содержащей инжектор электронов, находятся пять ускоряющих модулей (см. рис. 3) длиной 12,2 м каждый. Эти модули обеспечивают энергию электронного пучка около 440 МэВ, которая согласно соотношению (4.1) необходима для работы ЛСЭ на длине волны 32 нм. В действительности ускоритель может обеспечивать и большие энергии для электронов, что позволяет получать излучение в области длин волн около 10 нм [53]. Система, включающая ондулятор, разделена на шесть сегментов длиной 4,5 м каждый. В промежутках между сегментами (длина промежутка 60 см) расположены квадрупольные магниты для фокусировки и диагностики электронного пучка. Обязательным условием для нормальной работы ЛСЭ является реализация очень хорошего перекрытия электронного пучка с полем излучения, генерируемого внутри ондулятора. Поэтому необходима тщательная юстировка всех элементов системы. Результаты экспериментов показывают [50], что во всех модулях ондулятора формирующиеся поля характеризуются очень высоким качеством, так что ожидаемые отклонения орбит электронов от идеальных не превышают 10 мкм [50].

4.3. Свойства излучения лазера на свободных электронах

Основные характеристики излучения ЛСЭ (коэффициент усиления, угловая расходимость, энергия и длительность импульса, разброс по энергии в импульсе, спектральная ширина импульса) исследовались как экспериментально [49, 50, 111], так и с помощью модельных расчётов [121–123]. Впервые работа ЛСЭ в режиме SASE наблюдалась в [49, 116]. Было установлено, что коэффициент усиления за один проход превышает величину 10^3 – 10^4 . За счёт изменения энергии ускорителя была продемонстрирована перестройка длины волны излучения в довольно широкой области от 80 до 180 нм (рис. 4а). Затем было достигнуто максимальное усиление лазера и наблюдалось насыщение коэффициента усиления во всей указанной области [110, 111]. На рисунке 4б показана зависимость измеренной энергии в импульсе излучения от активной длины ондулятора, которая определялась как расстояние, на котором имело место перекрытие электронного и фотонного пучков. Эти измерения были сделаны [111] на длине волны 98 нм. Результаты, приведённые на рис. 4б, чётко показывают экспоненциальный рост энергии (мощности) лазера, работающего в режиме SASE, в зависимости от длины ондулятора. Для характерной длины усиления мощности полученная зависимость даёт величину $L_g = 67 \pm 5$ см. Энергия в импульсе, в зависимости от длины волны излучения и величины заряда электронного пучка, находится в области 10–100 мкДж. Согласно результатам расчёта [119, 122], на длине волны 30 нм и при величине заряда электронного пучка 1 нКл энергия в импульсе может достигать 100 мкДж.

Важным параметром лазерного пучка является угловая расходимость (пространственная когерентность). На рисунке 5а показано изображение, которое индуцировал лазерный импульс на кристалле Се:YAG. Кристалл располагался на пути лазерного пучка за сеткой

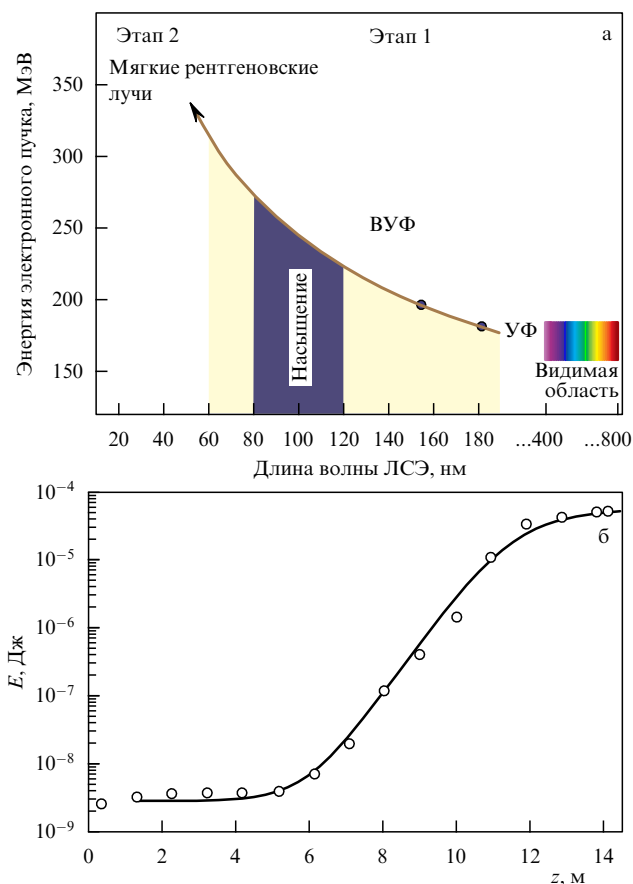


Рис. 4. (а) Область перестройки длины волны ЛСЭ ВУФ-диапазона за счёт изменения энергии электронного пучка. После достижения энергии пучка 1 ГэВ (этап 2) лазер будет генерировать в мягкой рентгеновской области [111]. (б) Средняя энергия в импульсе излучения ЛСЭ в зависимости от активной длины ондулятора. Кружки — экспериментальные результаты, сплошная кривая — результаты численного расчёта с использованием параметров, указанных в табл. 3 [111].

из золота многоканального детектора. Сетка помещалась на расстоянии 18,5 м от выходного конца ондулятора. На изображении хорошо видны проволоки. По известной величине расстояния между проволоками (0,31 мм) полученное изображение позволяет определить размер лазерного пятна (3 мм на полувысоте). Это соответствует угловой расходимости лазерного пучка 130 ± 30 мкрад (на полувысоте). Ошибка обусловлена, главным образом, неопределённостью в определении продольного расположения точки, в которой из спонтанного шума начинается лазерный процесс. Имеет место хорошее согласие между результатами эксперимента и теории (рис. 5б). Измеренная угловая расходимость сопоставима с дифракционной расходимостью. Это указывает на высокую степень поперечной когерентности лазерного пучка [50].

Импульсы излучения ЛСЭ, работающего в режиме SASE, характеризуются большим разбросом по энергии. На рисунке 6 показаны энергии большого числа последовательных импульсов. Большие флуктуации являются ожидаемыми, поскольку процесс усиления излучения начинается с дробового шума. Теоретически энергия импульса излучения лазера должна флуктуировать [49]

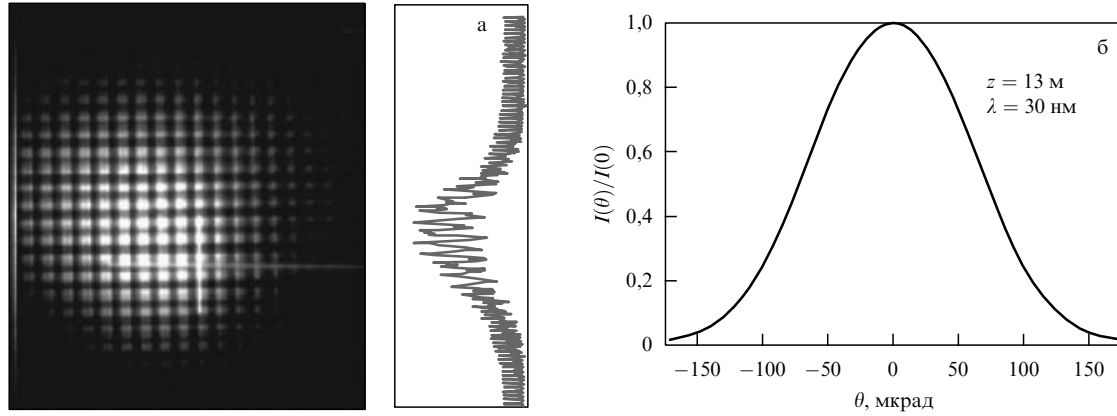


Рис. 5. (а) Изображение единичного импульса ЛСЭ ВУФ-диапазона на кристалле Се:YаG, расположенном за сеткой (изготовленной из золотой проволоки) многоканального детектора. (б) Расчётная [119] угловая расходимость излучения ЛСЭ в дальней зоне [50].

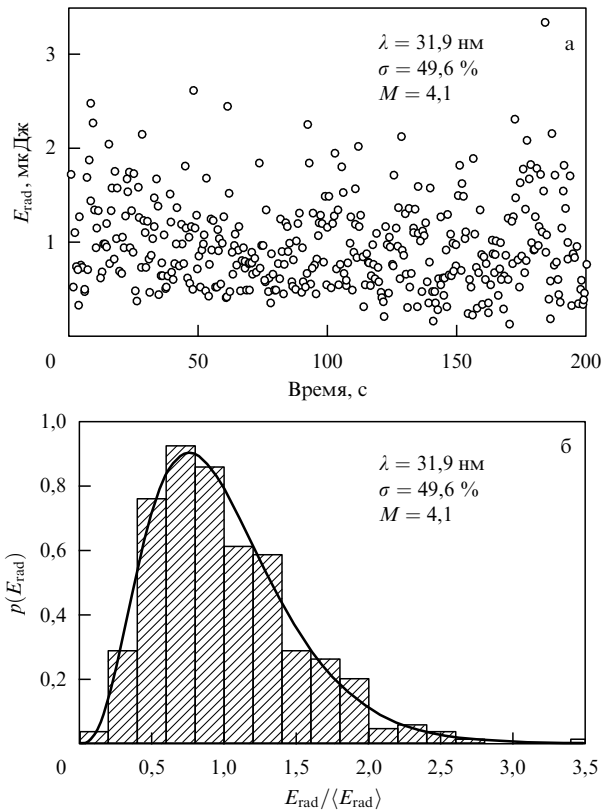


Рис. 6. Измеренные значения энергии большого числа последовательных импульсов ЛСЭ. (а) Изменение энергии ЛСЭ от импульса к импульсу. (б) Измеренное распределение вероятности энергии излучения (гистограмма). Сплошной линией показано гамма-распределение (соотношение (4.3)) для $M = 4,1$, которое получено из вариации энергии, показанной на рис. а [50].

согласно гамма-распределению:

$$p(E) = \frac{M^M}{\Gamma(M)} \left(\frac{E}{\langle E \rangle} \right)^{M-1} \frac{1}{\langle E \rangle} \exp \left(-M \frac{E}{\langle E \rangle} \right), \quad (4.3)$$

где

$$M = \frac{\langle E \rangle^2}{\langle (E - \langle E \rangle)^2 \rangle},$$

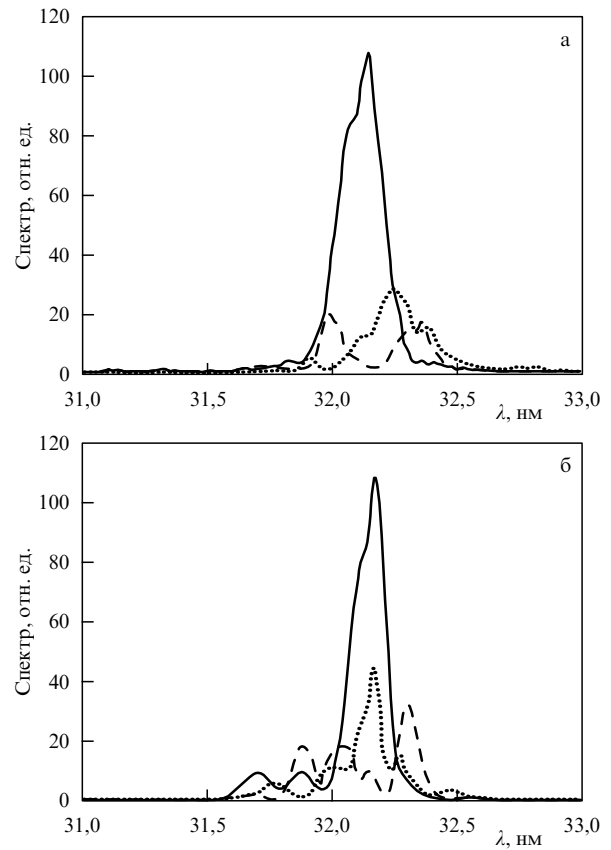


Рис. 7. (а) Спектры трёх отдельных импульсов ЛСЭ ВУФ-диапазона. (б) Результаты вычислений структуры спектра ЛСЭ, работающего в режиме экспоненциального усиления [119]. Показаны результаты для трёх различных импульсов (сплошная, штриховая и пунктирная линии). Отметим, что число пиков в спектре в среднем равно числу пиков (когерентных волновых пакетов) во временной структуре импульса излучения [50].

при условии, что процесс усиления ЛСЭ находится в режиме экспоненциального роста [103, 122]. Здесь $\langle E \rangle$ — средняя энергия фотона, Γ — гамма-функция. Параметр M — величина, обратная нормированной изменяющейся величине E , — определяет число оптических мод в импульсе излучения и обеспечивает взаимосвязь между средним числом пиков в спектре генерации одиночного импульса и флуктуациями энергии в импульсе. Резуль-

таты измерений приведены на гистограмме на рис. 6б. Она хорошо соответствует гамма-распределению (4.3) с параметром $M = 4,1$.

Длительность импульса излучения лазера была определена на основе измерений спектральной ширины импульса (рис. 7). Измеренные спектры трёх импульсов на рис. 7а были получены с помощью решёточного спектрометра (имеющего разрешение 0,04 нм), снабжённого высокочувствительной ПЗС-камерой (ПЗС — прибор с зарядовой связью). Длительность импульса на полувывоте определяется из спектральной ширины $\Delta\omega$ пиков в спектре одиночного импульса на основании соотношения $\tau_{\text{rad}} \cong 2\pi/(\Delta\omega) \cong 25 \pm 5$ фс. При средней энергии импульса излучения 10 мкДж это соответствует средней мощности 0,4 ГВт в импульсе и примерно 1 ГВт в отдельном пике. Отметим, что длительность импульса генерации ЛСЭ можно грубо оценить также по длительности пиковой части сгустка электронов, которая в описываемых экспериментах составляла около 50 фс [50]. Во многих экспериментах важным параметром является яркость излучения лазера. Для ЛСЭ ВУФ-диапазона, работающего на длине волны 30 нм, максимальная яркость составляет около 10^{28} фотонов/(с мм² мрад²) в 0,1 % ширины полосы [50].

5. Спектроскопия кластеров интенсивными импульсами ВУФ-излучения

5.1. Первые эксперименты.

Поглощение излучения кластерами

5.1.1. Результаты наблюдений. Первые эксперименты по возбуждению кластеров ВУФ-излучением лазера на свободных электронах были выполнены в работе [124]. Исследовалось взаимодействие интенсивного излучения ЛСЭ ($\lambda = 98$ нм) с атомами и кластерами ксенона. Эти объекты были выбраны в связи с тем, что их можно ионизовать единичными фотонами указанной длины волны с энергией 12,7 эВ (энергия ионизации атомов ксенона составляет 12,13 эВ [125]). Атомы и кластеры облучались импульсами длительностью около 100 фс при интенсивности примерно от 4×10^{10} до 7×10^{13} Вт см⁻². Образующиеся ионы детектировались времяпролётным масс-спектрометром.

В экспериментах наблюдались очень широкие массовые пики ионов (рис. 8). Следовательно, ионы имеют довольно большую кинетическую энергию, что связано с процессом кулоновского взрыва кластеров. Число ионов с различным зарядом и их кинетическая энергия сильно зависят от интенсивности возбуждающего излучения. Это хорошо видно на рис. 8, на котором показаны масс-спектры ионов при возбуждении кластеров ксенона, состоящих из 1500 атомов. При наиболее высокой для данного эксперимента интенсивности 7×10^{13} Вт см⁻² детектируются ионы с зарядом вплоть до 8⁺. При уменьшении интенсивности возбуждающего излучения интенсивность ионных пиков, соответствующих многократно заряженным ионам, резко уменьшается. Так, при 2×10^{11} Вт см⁻² наблюдаются только однократно заряженные ионы Xe^+ с довольно высокой кинетической энергией.

Сильная зависимость сигналов от интенсивности чётко показывает, что нелинейные оптические процессы доминируют при используемых уровнях мощности. Если

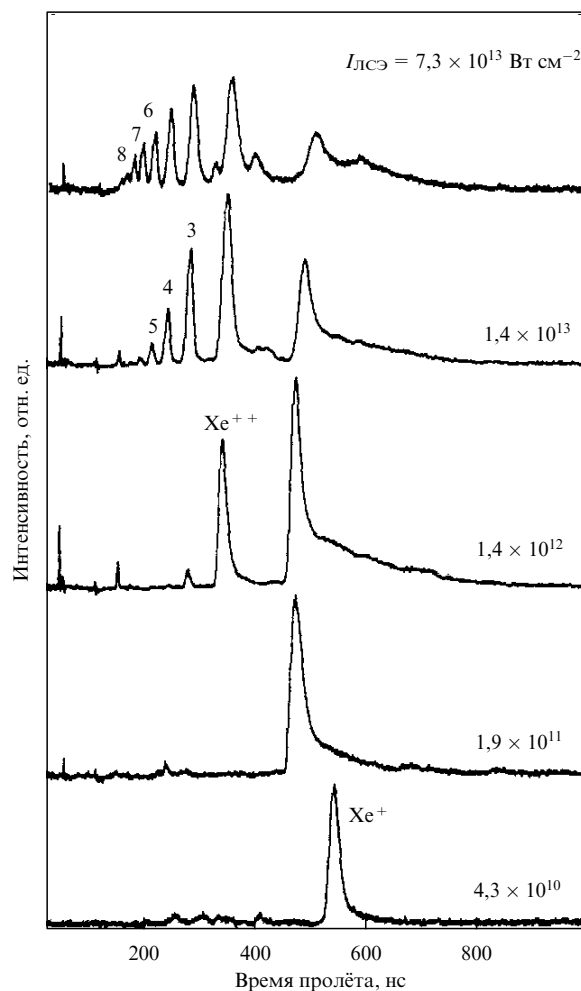


Рис. 8. Времяпролётные масс-спектры кластеров Xe_N ($N = 1500$), полученные после облучения импульсами ВУФ-излучения ЛСЭ на длине волны 98 нм при различных значениях интенсивности [124].

интенсивность растёт от 2×10^{11} до 7×10^{13} Вт см⁻², то средний заряд увеличивается от 1 до примерно 2,5. Поэтому при наиболее высокой интенсивности каждый атом в кластере, состоящем из 1500 атомов ксенона, теряет в среднем 2–3 электрона [124].

Средняя кинетическая энергия ионов определяется из измерений времени пролёта (см. рис. 8). Она сильно зависит от заряда и размера кластера. Для иона Xe^{7+} наблюдались значения кинетической энергии, превышающие 2 кэВ. В небольших кластерах кинетическая энергия увеличивается квадратично с увеличением заряда кластера. Такое поведение является сильным аргументом в пользу того, что кластер распадается за счёт кулоновского взрыва [126]. Из результатов, приведённых на рис. 8, можно заключить, что из поля лазерного импульса поглощается до нескольких сотен электрон-вольт энергии на атом.

Наблюдаемые в работе [124] эффекты в кластерах при их возбуждении коротковолновым ВУФ-излучением являются неожиданными, поскольку кулоновский взрыв начинается при значении интенсивности всего около 10^{11} Вт см⁻², что намного меньше величины, необходимой для кулоновского взрыва в ИК-области. Более того, частота возбуждающего излучения столь высока, что непосредственное влияние лазерного поля на движение

электронов незначительно [127]. В рассматриваемых экспериментах установлено, что полевая ионизация, которая является доминирующим процессом ионизации кластеров ИК-излучением, не даёт вклада в процесс ионизации в случае ЛСЭ на 98 нм. Электронное движение, индуцированное электрическим полем лазерного импульса, также не является решающим фактором в этих экспериментах, и индуцированный лазером прямой выброс электронов из кластера не должен происходить. Следовательно, чтобы понять поглощение, ионизацию и динамику взрыва кластеров при возбуждении УФ-излучением ЛСЭ, необходимо рассматривать дополнительные процессы и другие механизмы ионизации кластеров.

5.1.2. Интерпретация результатов. Авторы работы [124] рассматривали ионизацию кластеров как двухступенчатый процесс, по аналогии с их ионизацией ИК-излучением [69, 128]. На первой ступени атомы внутри кластера теряют, по крайней мере, по одному электрону, которые затем почти свободно движутся внутри кластера (внутренняя ионизация). На второй ступени электроны удаляются от кластера в бесконечность (внешняя ионизация). Внутренняя ионизация кластеров легко объяснима, поскольку энергия фотонов ЛСЭ превышает энергию ионизации атомов Хе. Поэтому можно полагать, что валентные электроны в кластере переводятся в возбуждённые состояния (в зону проводимости). При интенсивности более 10^{13} Вт см $^{-2}$ это происходит в течение первых нескольких фемтосекунд импульса ЛСЭ, поскольку сечение поглощения очень велико (30–50 Мб) [129].

Чтобы лучше понять процессы поглощения излучения и механизмы ионизации кластеров, авторы [124] выполнили модельные расчёты движения электронов в кластерах Хе $_{13}$ и Хе $_{55}$. При расчёте движения свободных электронов внутри кластера учитывались силы, действующие на электрон от ионов и электронов самого кластера, а также поле лазерного импульса. В результате расчётов установлено, что на длине волны 98 нм при интенсивности 10^{14} и 10^{16} Вт см $^{-2}$ электроны из кластера эмитируются изотропно, в то время как в типичных условиях экспериментов с лазерами оптического диапазона (800 нм, 10^{16} Вт см $^{-2}$) электроны преимущественно эмитируются в направлении поляризации электрического поля лазерного импульса. Это подтверждает факт полевой ионизации кластеров в последнем случае. Аналогичный результат получен также в работе [130] (рис. 9). Изотропная эмиссия электронов от кластера в случае их возбуждения ЛСЭ на 98 нм является сильным аргументом в пользу того, что полевая ионизация не имеет места. По мнению авторов, электрон, прежде чем покидает кластер, многократно рассеивается внутри него, в результате чего кластер сильно нагревается.

Авторы [124] полагают также, что многократно заряженные ионы образуются на поверхности кластера за счёт полевой ионизации в сильном кулоновском поле ионов, содержащихся в кластере [70, 91]. Электрическое поле на поверхности большого кластера с высоким зарядом обычно составляет 10–50 В Å $^{-1}$. Это почти в 20 раз больше напряжённости поля ЛСЭ при интенсивности 10^{14} Вт см $^{-2}$. Для формирования ионов Хе $^{8+}$ достаточно, чтобы напряжённость поля составляла около 30 В Å $^{-1}$ [131]. Приведённые аргументы позволяют объяснить формирование многократно заряжен-

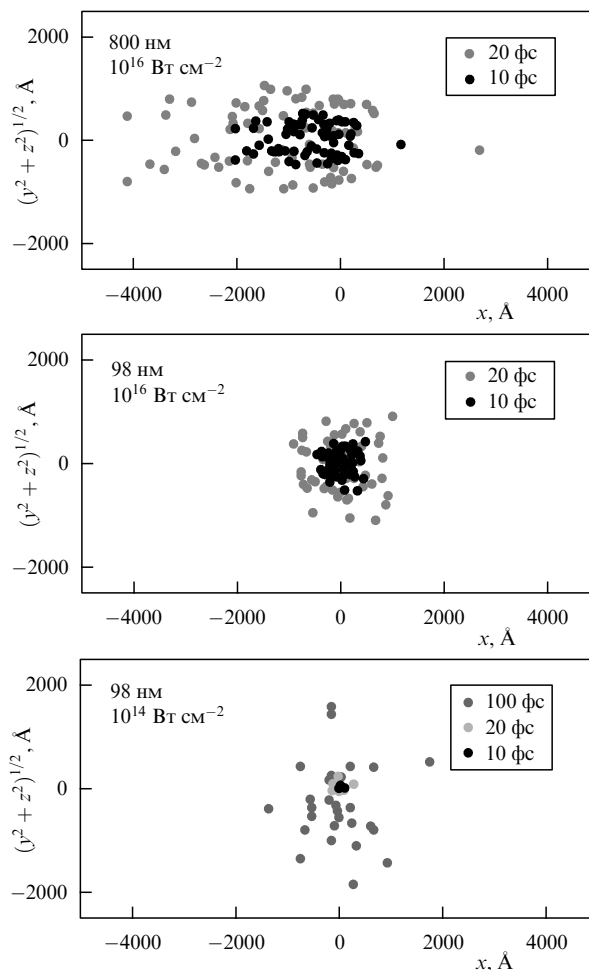


Рис. 9. Результаты расчёта движения электронов и процесса ионизации кластеров Хе $_{13}$ после воздействия на них ИК-, а также мягкого рентгеновского излучения. Траектории электронов вычислялись для импульсов длительностью 100 фс, имеющих одинаковую энергию в обоих случаях облучения. Положение электронов показано через 10, 20 и 100 фс после начала воздействия лазерного импульса. Поляризация лазерного излучения параллельна оси x [130].

ных ионов в случае возбуждения кластеров УФ-излучением ЛСЭ (см. также работы [130, 132–134]). Однако такая аргументация ставит вопрос о том, почему в случае возбуждения кластеров ксенона интенсивными ИК-лазерными импульсами столь высокие зарядовые состояния не наблюдаются. Вероятно, высокие зарядовые состояния при возбуждении кластеров ксенона УФ-излучением ЛСЭ формируются за счёт процессов столкновительной ионизации и термализации кластеров (см. раздел 5.4). В последующих исследованиях показано также [133], что эмитированные из кластера электроны характеризуются больцмановским распределением по энергии, а их средняя температура при УФ-возбуждении составляет всего около 30–40 эВ, в то время как при возбуждении ИК-излучением на 800 нм температура эмитированных электронов достигает 1–10 кэВ. Таким образом, полученные результаты демонстрируют другой (по сравнению с ИК-излучением) механизм ионизации кластеров и показывают, что УФ-излучение ЛСЭ является весьма эффективным для возбуждения кластеров.

5.2. Фотоэлектронная спектроскопия кластеров

Фотоэлектронная спектроскопия даёт дополнительную и более детальную (по сравнению с масс-спектроскопической) информацию о нелинейных процессах, имеющих место при возбуждении атомов и кластеров интенсивным излучением. Так, например, наблюдение высокоэнергетических электронов с энергией до 3 кэВ в случае возбуждения кластеров импульсами оптического диапазона подтверждает описание процесса взаимодействия излучения с кластером в рамках так называемой модели кластерной наноплазмы [1, 3, 135]. Фундаментальный вопрос о том, какие концепции для описания поглощения и ионизации вещества при возбуждении излучением оптического диапазона можно использовать для случая возбуждения вещества интенсивными ВУФ-импульсами, имеет большое значение не только для кластерной физики, но и вообще для взаимодействия излучения с веществом. Исследование фотоэмиссии электронов и ионов позволяет прояснить этот вопрос и, в частности, даёт информацию о механизмах ионизации в пределе коротких волн.

В работе [133] детально изучена ионизация кластеров интенсивным ВУФ-излучением ЛСЭ, работающего на длине волны 95 нм, с помощью фотоэлектронной спектроскопии, а также расчётов, выполненных на основе модели Томаса–Ферми [126]. Интенсивность лазерного излучения составляла $\sim 4 \times 10^{12}$ Вт см $^{-2}$. Исследования проводились с кластерами Ag_N и Xe_N ($N = 70\text{--}900$). Кластеры формировались за счёт сверхзвукового расширения газа из сопла. Средний размер кластеров варьировался при изменении давления газа над соплом [136], и в данных экспериментах он подбирался в области между 70 и 900 атомов на кластер.

Излучение ЛСЭ ($\hbar\omega \cong 13$ эВ, длительность импульса ~ 100 фс, энергия в импульсе 0,3–5 мкДж) фокусировалось эллиптическим зеркалом на кластерный пучок; размер пятна составлял примерно 20 мкм. Максимальная интенсивность излучения в фокусе достигала около 10^{14} Вт см $^{-2}$. Формирующиеся при взаимодействии лазерного излучения с кластерами электроны детектировались в направлении поляризации лазера микроканальной пластиной времяпролётного масс-спектрометра. Указанный метод позволял анализировать кинетическую энергию электронов в диапазоне от нескольких электронвольт до нескольких килоэлектронвольт. Экспериментальная кривая распределения электронов $I(t)$ переводилась в распределение (спектр) кинетической энергии $I(E)$, с учётом того, что $I(E) \propto t^3 I(t)$. На рисунке 10 показаны фотоэлектронные спектры, полученные от кластеров Ag_{300} (а) и атомов Ag (б), кластеров Xe_{70} (в) и атомов Xe (г), облучённых импульсами ВУФ-лазера при интенсивности $\sim 4 \times 10^{12}$ Вт см $^{-2}$. При такой интенсивности кластеры благородных газов полностью распадаются на многократно заряженные атомные фрагменты за счёт кулоновского взрыва [124, 132].

При взаимодействии ВУФ-излучения с кластерами формируется широкое распределение фотоэлектронов по кинетической энергии. Энергия электронов уменьшается примерно экспоненциально согласно соотношению

$$w(E_e) = w_0 \exp\left(-\frac{E_e}{E_0}\right), \quad (5.1)$$

где $E_0 \sim 8,5$ эВ (для Ag) и $\sim 8,9$ эВ (для Xe). В дополнение к этим "термическим" электронам, в случае кластеров Ag_N в спектре отчётливо наблюдается также асиммет-

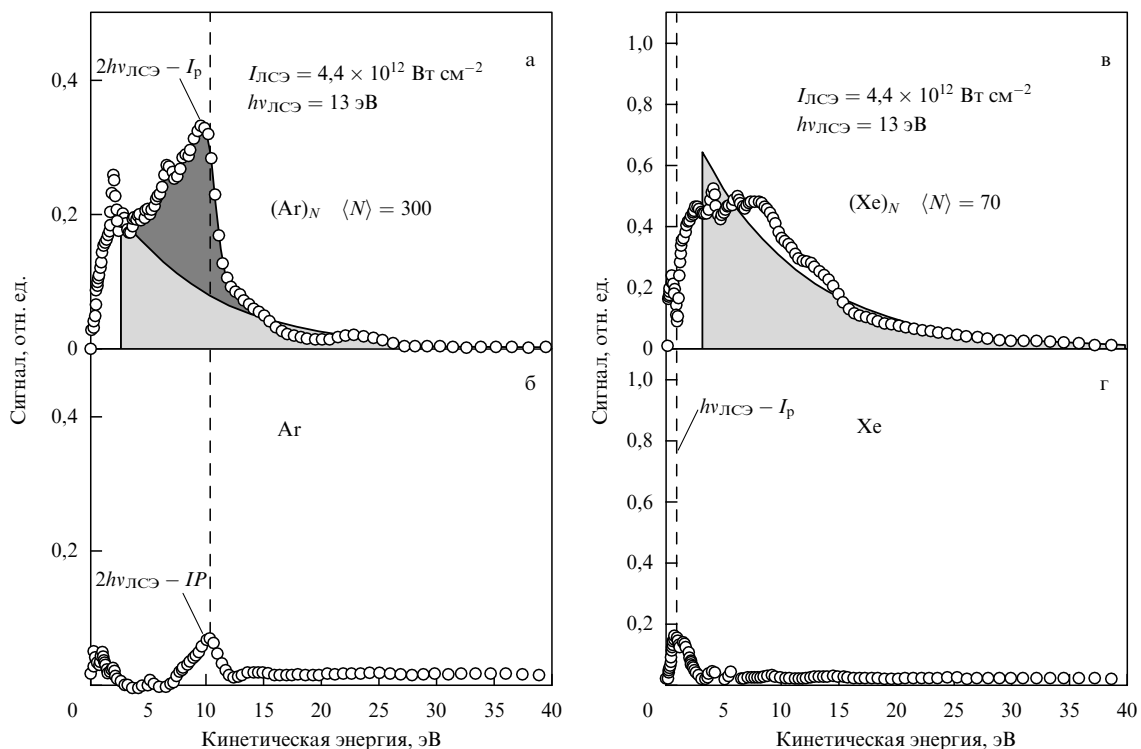


Рис. 10. Фотоэлектронные спектры, полученные от кластеров Ag_{300} (а), атомов Ag (б), кластеров Xe_{70} (в) и атомов Xe (г), облучённых импульсами излучения ЛСЭ ($\lambda = 95$ нм, $\tau_p = 100$ фс) при интенсивности $4,4 \times 10^{12}$ Вт см $^{-2}$ [133]; I_p — ионизационный потенциал атомов Ag (а, б) и Xe (в, г).

ричный пик при 10,4 эВ. Из сравнения спектров фотоэлектронов от кластеров Ag_N и от атомов Ag (рис. 10б) можно заключить, что указанный пик связан с двухфотонной ионизацией нейтральных атомов Ag, которые присутствуют в кластерном пучке. Отметим, что энергия фотона ЛСЭ значительно меньше первого потенциала ионизации атома Ag (15,76 эВ), но больше такового для атома Хе (12,13 эВ). Следовательно, для ионизации атома Ag требуются два фотона, а для ионизации атома Хе — один. Исследовалось также влияние размера кластера на распределение кинетической энергии эмитированных электронов (на примере кластеров Ag_{300} и Ag_{900}) при одинаковой интенсивности импульсов ЛСЭ. Установлено, что кинетическая энергия эмитированных электронов увеличивается с размером кластера [133].

Основной результат, полученный в работе [133], состоит в том, что максимальная кинетическая энергия электронов, эмитированных из кластера, облучаемого импульсами ВУФ-излучения ЛСЭ, небольшая (≤ 40 эВ). Распределение энергии примерно соответствует тепловому (больцмановскому) распределению. Это находится в явном контрасте со случаем возбуждения кластеров высокоинтенсивными импульсами оптического диапазона, когда от кластера эмитируются электроны с энергией в несколько килоэлектронвольт [1, 3, 9, 135].

Чтобы лучше понять процесс ионизации, в частности, формирование термического распределения эмитированных фотоэлектронов, авторы работы [133] выполнили расчёты для кластеров Ag_{55} , используя нестационарную модель Томаса – Ферми [126]. В этой модели осцилляции электронного облака внутри кластера рассматриваются как движение жидкости, характеризующейся определённой плотностью и скоростью. Не вдаваясь в детали вычислений, рассмотрим основные результаты. На рисунке 11а, б приведены вычисленные спектры кинетической энергии свободных электронов, эмитированных в процессе взрыва (расширения) кластеров, облучённых импульсами ВУФ-излучения при пиковых интенсивностях 10^{14} и 10^{12} Вт см^{-2} . Отчётливо виден экспоненциальный (тепловой) характер распределений электронов по энергии, соответствующих температуре электронного газа $E_0 = 6,6 \pm 0,4$ эВ (а) и $4,2 \pm 0,2$ эВ (б). С увеличением интенсивности возбуждающего импульса средняя кинетическая энергия фотоэлектронов смещается в сторону более высоких энергий. Вычисленная электронная температура при интенсивности 10^{12} Вт см^{-2} примерно в два раза меньше полученной экспериментально. Это авторы [133] связывают с тем, что вычисления были сделаны (с целью ограничения компьютерного времени) для кластера меньшего размера (Ag_{55}) по сравнению с кластером, который исследовался в эксперименте (Ag_{300}), а кинетическая энергия электронов существенно больше для кластеров большего размера [133].

Полученные фотоэлектронные спектры (рис. 11а, б) являются прямым экспериментальным подтверждением активированной разогревом электронной эмиссии. Такой процесс был недавно предсказан на основе вычислений [130], в которых, однако, не учитывалась динамика ионов. Процесс ионизации можно интерпретировать следующим образом. При возбуждении кластера ВУФ-излучением ЛСЭ параметр Келдыша $\gamma \gg 1$, поэтому реализуется многофотонный режим ионизации атомов кластера [124]. Это подтверждается также результатами эксперимента — наблюдением двухфотонной

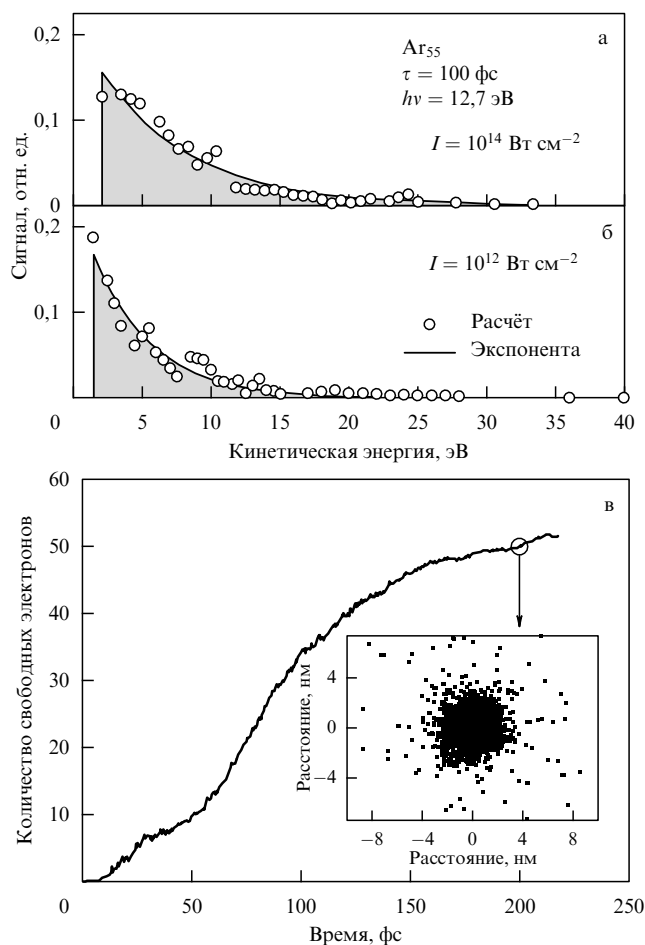


Рис. 11. Расчётные спектры фотоэлектронов от кластеров Ag_{55} , облучённых лазерными импульсами с пиковой интенсивностью 10^{14} Вт см^{-2} (а) и 10^{12} Вт см^{-2} (б), вычисленные на основе нестационарной модели Томаса – Ферми. Экспоненциальными зависимостями показаны подгоночные значения для распределений кинетической энергии электронов [133]. (в) Расчётное число эмитированных электронов в зависимости от времени облучения кластеров при интенсивности 10^{12} Вт см^{-2} . На вставке приведена двумерная проекция псевдочастиц, которая показывает распределение электронной плотности "в момент снимка" в конце лазерного импульса [133].

ионизации нейтральных атомов Ag (рис. 10б). Следовательно, в самом начале взаимодействия кластеров с импульсом ВУФ-излучения внутренняя ионизация кластеров происходит, главным образом, за счёт двухфотонного (в случае кластеров Ag) или однофотонного (в случае кластеров Хе) поглощения атомами внутри кластера. Через несколько фемтосекунд формируется плазма, и подавляющее число образовавшихся электронов оказывается связанным с плотным кластерным ионным ядром кулоновскими силами. Вклад энергии при этом контролируется, главным образом, столкновительным нагревом плазмы [74, 137, 138], который более эффективен в больших кластерах и при более высоких интенсивностях излучения (рис. 11а, б). Квазисвободные электроны внутри кластера, которые приобретают достаточно большую энергию и способны преодолеть потенциальный барьер, покидают плотное кластерное ионное ядро. Происходит внешняя ионизация кластера.

Дополнительная информация о динамике ионизации была получена на основе расчёта числа эмитированных электронов в зависимости от времени облуче-

ния (рис. 11в). Расчёты были выполнены при интенсивности излучения 10^{12} Вт см $^{-2}$ (как на рис. 11б). Полученная зависимость чётко показывает, что в самом начале ВУФ-импульса, когда плазма уже сформировалась, из-за сильного кулоновского притяжения почти нет электронов, которые смогли бы покинуть кластер. Такое поведение полностью отличается от случая возбуждения кластеров на оптических частотах, когда значительная часть электронов мгновенно "выталкивается" от поверхности кластера передним фронтом лазерного импульса в направлении поляризации лазера в результате полевой ионизации [130, 135] (см. раздел 5.1 и рис. 9).

На рисунке 11в видно также, что большая часть электронов эмитируется с задержкой во времени, после того как импульс ЛСЭ уже прошёл и начался процесс расширения ионов. В случае больших кластеров ($N > 1000$) основная часть электронов эмитируется уже после выключения импульса. Вставка на рис. 11в показывает двумерную проекцию псевдочастиц, которые моделируют электроны. Этот "мгновенный снимок", полученный после истечения 200 фс от начала импульса, чётко показывает, что электронная эмиссия происходит во времени и далее и что она изотропна (см. также раздел 5.1 и рис. 9). Эти результаты интерпретируются следующим образом. Согласно вычислениям, электроны претерпевают много актов рассеяния внутри кластера, прежде чем внешняя ионизация приведёт к статистическому перераспределению энергии между электронными степенями свободы [139]. Так как длительность импульса ЛСЭ мала по сравнению с характерным временем электрон-фононной связи (около 10^{-12} с), то установившаяся сразу после возбуждения импульса температура электронов существенно выше температуры ионов, поскольку поглощённая энергия лазера первоначально идёт на ионизацию атомов и нагрев электронного газа. Электроны, находящиеся вблизи поверхности кластера и принадлежащие высокоэнергетическому хвосту температурного распределения, могут отрываться от кластера в ходе кулоновского расширения, поскольку при расширении кулоновский барьер понижается. В результате имеет место задержанное освобождение термически возбуждённых электронов, которое можно назвать термоэлектронной эмиссией, в противоположность термоионной эмиссии, когда электронные и ядерные степени свободы находятся в равновесии [140].

Недавно в работе [141] методом времяпролётной спектроскопии исследовалась фотофрагментация кластеров Ag_N ($N \sim 10^3$) при облучении импульсами ЛСЭ длительностью около 25 фс на длине волны 32 нм ($\hbar\omega = 38$ эВ) при интенсивности 3×10^{13} Вт см $^{-2}$. Установлено, что энергия эмитированных фотоэлектронов составляет примерно от 2 до 23 эВ. Обнаружена другая динамика фотоэлектронов по сравнению со случаем возбуждения на длине волны 95 нм ($\hbar\omega = 12,7$ эВ). Кроме медленной термоэлектронной эмиссии, которая характерна при возбуждении кластеров на $\lambda = 95$ нм, авторы наблюдали интенсивную мгновенную эмиссию электронов от кластера. Эта быстрая эмиссия вызвана электронами, которые уже в результате первичной ионизации атомов получают довольно большую кинетическую энергию ($E_e = \hbar\omega - I_p \approx 22,2$ эВ) и преодолевают потенциальный барьер кластерного иона.

Итак, результаты исследований показывают, что при возбуждении атомных кластеров интенсивными импуль-

сами ВУФ-излучения ЛСЭ кинетическая энергия эмитированных от кластеров электронов небольшая. При пиковой интенсивности $\sim 4 \times 10^{12}$ Вт см $^{-2}$ распределение кинетической энергии эмитированных электронов уменьшается экспоненциально до энергии 30–40 эВ. Характерная электронная температура составляет менее 10 эВ. Вычисления с помощью нестационарной модели Томаса–Ферми, в которых учитываются эффекты столкновительного нагрева электронов, подтверждают ионизацию кластеров как термоэлектронную эмиссию. Низкоэнергетические электроны покидают кластер с задержкой во времени. Эмиссия электронов изотропна и не зависит от поляризации лазера. Эти результаты находятся в явном контрасте с результатами, наблюдаемыми при возбуждении кластеров на оптических частотах, когда имеет место, во-первых, полевая ионизация с освобождением поверхностных электронов на переднем фронте лазерного импульса и, во-вторых, задержанная эмиссия высокоэнергетических (≥ 1 кэВ) электронов, которая описывается моделью наноплазмы. Различные механизмы ионизации объясняют также тот факт, почему электроны, эмитированные при взаимодействии ВУФ-излучения с кластерами, имеют гораздо меньшую энергию, чем в случае возбуждения кластеров на оптических частотах.

5.3. Фотоионная спектроскопия кластеров

В работе [132] изучено возбуждение кластеров аргона Ar_N ($N = 170–900$) интенсивными импульсами ВУФ-излучения ЛСЭ методом фотоионной спектроскопии. Длина волны излучения лазера перестраивалась в довольно широкой области от 80 до 120 нм. Это позволяло настраивать излучение в резонанс с полосами поглощения объёмных и поверхностных экситонов в кластерах аргона, которые находятся в области 100 и 105 нм соответственно [142], и тем самым исследовать влияние энергии возбуждения на поглощение кластеров для случаев резонансного и нерезонансного возбуждения. Кластеры аргона формировались при сверхзвуковом расширении газа, вытекающего из конического сопла (диаметр отверстия 100 мкм) с полным углом раствора 30° . Средний размер кластеров варьировался за счёт изменения давления газа над соплом и в данных экспериментах составлял $N = 170–900$. Энергия импульса ЛСЭ изменялась в диапазоне между 0,3 и 5 мкДж, а длительность импульса составляла около 50 фс. Излучение лазера фокусировалось в пятно размером примерно 20 мкм. В этих условиях максимальная интенсивность излучения в фокусе достигала около 10^{13} Вт см $^{-2}$. Формирующиеся ионы детектировались с помощью времяпролётного масс-спектрометра, в котором в качестве детектора использовалась микроканальная пластина.

Чтобы исследовать зависимость вложенной в кластер энергии от конкретной электронной структуры, соответствующей объёмным и поверхностным атомам [142], длина волны лазера настраивалась на определённые полосы поглощения кластеров, как это показано на рис. 12 для кластера Ar_{800} . Спектр на рис. 12 был получен в работе [142] методом возбуждения флуоресценции с помощью синхротронного излучения. Фиксируя длину волны излучения ЛСЭ на 105, 100,6 и 96,6 нм, можно было реализовать селективное по расположению (site-selective) возбуждение атомов в кластере, хотя ширина

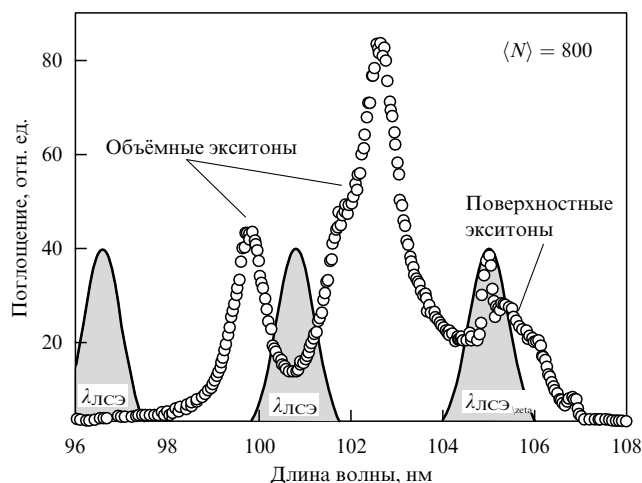


Рис. 12. Спектр фотопоглощения кластеров Ag_{800} , полученный в работе [142]. Излучение ЛСЭ могло настраиваться в резонанс с поверхностными или объемными экситонами, а также находиться вне резонанса с экситонами [132].

спектра излучения лазера была довольно большой — примерно 0,5–1 % от длины волны излучения.

На рисунке 13а приведены времяпролётные спектры, полученные в случае возбуждения кластеров аргона на трёх различных длинах волн излучения при одинаковой пиковой интенсивности около $1,5 \times 10^{13}$ Вт см⁻². Результаты показывают, что кластеры Ag_{900} полностью дезинтегрируются на многократно заряженные атомные фрагменты. Из лазерного поля поглощается довольно много фотонов. Отметим, что для ионизации атома аргона требуются, по крайней мере, два фотона ЛСЭ, поскольку потенциал ионизации составляет 15,76 эВ [125]. По времени пролёта ионов можно определить распределение ионных фрагментов Ar^{q+} по кинетической энергии, что непосредственно даёт информацию об эффективности вложения энергии в кластер. Установлено, что при пиковой интенсивности около 10^{13} Вт см⁻² ионизация кластеров не зависит от длины волны возбуждающего излучения. Следовательно, при такой интенсивности электронная структура первоначально возбуждённых состояний не влияет на процесс ионизации. Вклад энергии одинаков как в случае резонансного возбуждения объемных или поверхностных экситонов, так и для нерезонансного возбуждения кластеров. Это видно на рис. 13а по идентичному распределению кинетической энергии фрагментов Ar^{q+} . Наоборот, при низкой пиковой интенсивности излучения, около 10^{11} Вт см⁻², которая достигалась за счёт смещения кластерного пучка на 3 мм от фокальной точки, масс-спектры существенно отличаются (рис. 13б). В случае нерезонансного возбуждения возникают пики больших кластерных фрагментов (Ar_2^+ , Ar_3^+).

Полученные результаты можно понять, если учесть, что кулоновский взрыв кластеров контролируется процессом ионизации и скоростью нагрева кластерной плазмы. Поэтому полная поглощённая из лазерного импульса энергия существенным образом зависит от скорости внутренней ионизации, поскольку она определяет плотность формируемой плазмы, а следовательно, и скорость нагрева плазмы (см. разделы 3.3 и 3.4). В рамках такого рассмотрения энергия, поглощённая кла-

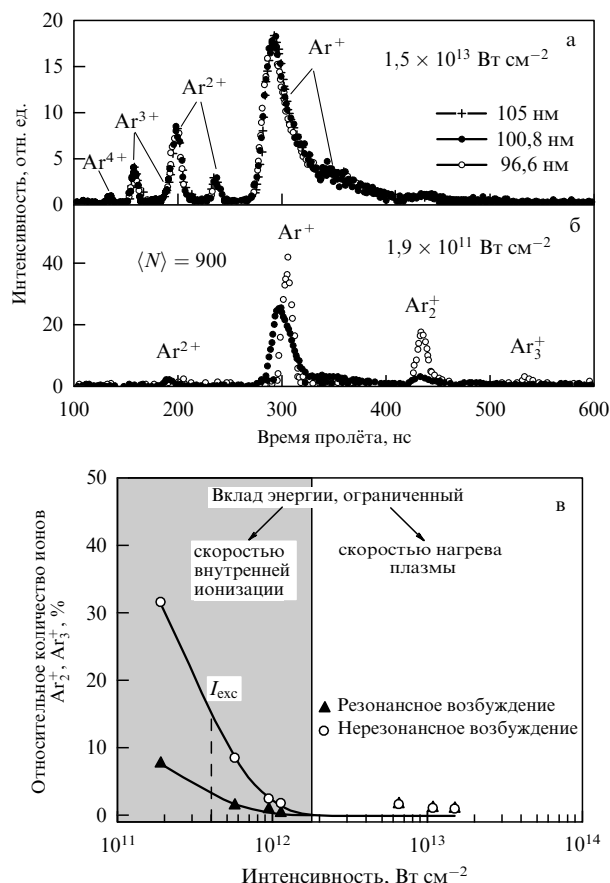


Рис. 13. Времяпролётные масс-спектры, полученные после облучения кластеров Ag_{900} излучением ЛСЭ на трёх различных длинах волн (в случае возбуждения поверхностных или объемных экситонов, а также нерезонансного возбуждения) при различной интенсивности излучения: $1,5 \times 10^{13}$ (а) и $1,9 \times 10^{11}$ Вт см⁻² (б). Спектры получены из области, расположенной на расстоянии 3 мм от фокуса линзы [132]. (в) Относительное количество ионов Ar_2^+ и Ar_3^+ , образующихся при облучении кластеров Ag_{900} , в зависимости от интенсивности лазерного излучения. Резонансное возбуждение объемных экситонов сравнивается с нерезонансным возбуждением [132].

стерами аргона при пиковой интенсивности около $1,5 \times 10^{13}$ Вт см⁻², контролируется, главным образом, скоростью нагрева плазмы, в то время как при низкой пиковой интенсивности, около $1,9 \times 10^{11}$ Вт см⁻², лимитирующим поглощение энергии фактором является скорость внутренней ионизации кластеров в начальной части лазерного импульса. В этих условиях электронная структура кластеров начинает играть существенную роль, что и приводит к большому различию в сечениях поглощения в случае резонансного и нерезонансного возбуждения. При нерезонансном возбуждении поглощённая энергия меньше, в результате чего в масс-спектре имеются пики больших кластерных фрагментов. При числе поглощённых фотонов, превышающем некоторую критическую величину, ионные пики Ar_2^+ , Ar_3^+ уменьшаются, поскольку кластеры начинают фрагментироваться преимущественно на атомные ионы.

На рисунке 13в показаны зависимости относительных содержаний ионов Ar_2^+ и Ar_3^+ в масс-спектре кластеров Ag_{900} от пиковой интенсивности возбуждающего излучения в случае резонансного и нерезонансного возбуждения объемных экситонов в кластере. При интенсивности,

превышающей интенсивность насыщения экситонного поглощения $I_{\text{exc}} \sim 4 \times 10^{11}$ Вт см⁻², резонансное возбуждение приводит к полному разрушению кластера. С другой стороны, в случае нерезонансного возбуждения при такой же интенсивности в масс-спектре присутствует значительное количество ионов Ar_2^+ . При несколько более высокой интенсивности, $\sim 1,8 \times 10^{12}$ Вт см⁻², обе кривые совпадают. Это означает, что сильно поглощающие экситонные состояния уже не увеличивают скорость внутренней ионизации при высоких интенсивностях. Следовательно, можно предположить, что в этом режиме в течение первых нескольких фемтосекунд каждый атом в кластере аргона становится однократно ионизованным за счёт одновременного поглощения двух фотонов из поля лазерного импульса. Поэтому наблюдаемые эффекты при высоких интенсивностях можно объяснить следующим образом. После начальной ионизации атомов кластера формируется плазма, которая на начальном этапе состоит из одного свободного электрона на каждый ион. Вклад энергии при этом в основном контролируется поглощением плазмы, которое критически зависит от плотности ионов и среднего заряда на ион. Квазисвободные электроны, которые за счёт столкновительного нагрева получают энергию, достаточную для преодоления потенциального барьера, покидают плотное кластерное ядро в результате термоэлектронной эмиссии [124].

Чтобы определить среднее зарядовое состояние кластера и полную энергию, поглощённую кластером, авторы [132] выполнили модельные расчёты полученных в эксперименте времяпролётных масс-спектров. В основу расчётов были положены измеренные значения средней кинетической энергии и ширины распределений ионных фрагментов ($\text{Ar}^+ - \text{Ar}^{6+}$). Результаты расчётов для кластеров Ar_N , содержащих 170 атомов, подвергшихся облучению излучением ЛСЭ в полосе поглощения объёмных экситонов при интенсивности $3,2 \times 10^{13}$ Вт см⁻² на длине волны 100,8 нм, показаны на рис. 14а. Для сравнения на рис. 14б представлены экспериментальные результаты. Видно довольно хорошее согласие расчётных и экспериментальных данных. Расчёт показывает, что каждый атом в кластере теряет два электрона и поглощает до 20 фотонов в течение импульса ЛСЭ длительностью 50 фс. Если принять, что кластеры нагреваются в процессе последовательного поглощения одиночных фотонов, то это будет соответствовать среднему сечению поглощения на атом $\sigma_{\text{exp}} = 24,1$ Мб.

С целью выяснения механизмов поглощения энергии в кластерах при их облучении ВУФ-излучением, авторы [132] выполнили расчёты методом молекулярной динамики (МД) классического движения электронов под действием интенсивного лазерного импульса [130] согласно модели, предложенной в работе [70]. Модель включает эффекты столкновительного нагрева квазисвободных электронов и ионов внутри кластера, такие как обратное тормозное поглощение и резонансное поглощение плазмы [143]. Вычисления выполнены для кластера аргона, состоящего из 147 атомов, с двумя квазисвободными электронами на каждый атом. Электроны движутся внутри кластера как точечные заряды под действием кулоновских сил и лазерного поля. Временная зависимость полной энергии, поглощённой 294-мя электронами, движущимися под действием лазерного поля при интенсивности $3,2 \times 10^{13}$ Вт см⁻² на длине

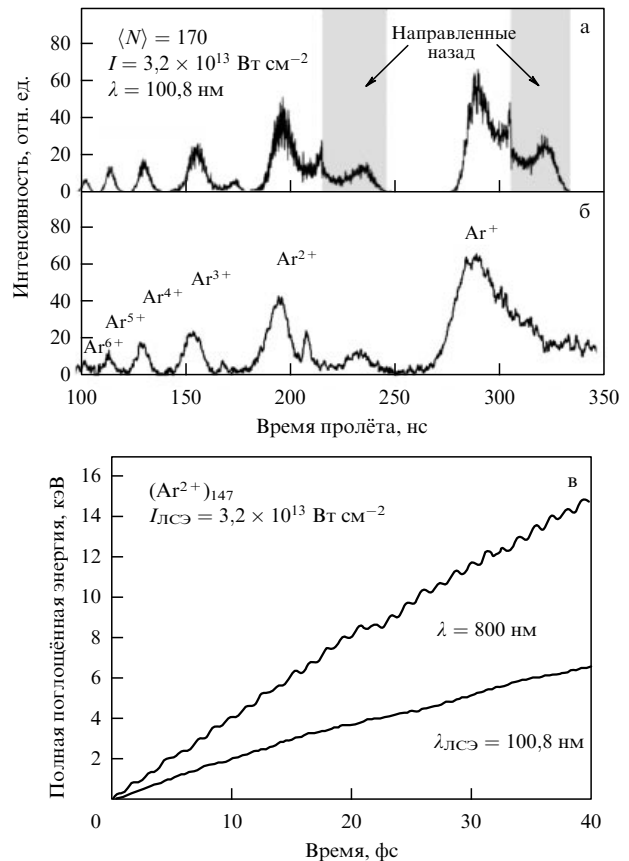


Рис. 14. Сравнение вычисленных (а) и измеренных (б) времяпролётных масс-спектров, полученных при облучении кластеров Ar_{170} на длине волны 100,8 нм при интенсивности излучения $3,2 \times 10^{13}$ Вт см⁻². На спектрах показаны также ионы Ar^+ и Ar^{2+} , вылетающие в полусферу, противоположную направлению на детектор [132]. (в) Зависимости от времени расчётной энергии, поглощённой кластерной плазмой Ar_{147} , содержащей по два квазисвободных электрона на один ион, в лазерном поле при интенсивности $3,2 \times 10^{13}$ Вт см⁻² для случаев $\lambda = 100,8$ и 800 нм [132].

волны 100,8 нм, показана на рис. 14в. Для сравнения приведены также расчётные данные для длины волны 800 нм. В случае большой длины волны (низкой частоты) электроны движутся за лазерным полем более легко и, в результате, более эффективно поглощают энергию благодаря столкновительному нагреву. При возбуждении на 100,8 нм лазерное поле осциллирует с частотой, существенно большей частоты электронного газа [69]. Поэтому поглощение за счёт классических процессов рассеяния значительно меньше для коротких волн. Для 100,8 нм график показывает почти линейное увеличение поглощённой энергии со временем. Из наклона этой зависимости можно оценить сечение поглощения: $\sigma_{\text{sim}} = 5,8$ Мб, что значительно меньше экспериментальной величины $\sigma_{\text{exp}} = 24,1$ Мб. Следует отметить, что расчётное значение сечения поглощения завышено, поскольку в расчётах электроны уже изначально считались квазисвободными, а расширение кластеров не учитывалось. Столь большое различие между результатами эксперимента и расчёта нельзя интерпретировать в рамках стандартной модели обратного тормозного поглощения. Оно объясняется с помощью результатов недавних теоретических работ [74, 137], в которых стандартная модель обратного тормозного поглощения была значительно развита. Эти работы мы рассмотрим в разделе 5.4.

Таким образом, в работе [132] показано, что специфическая электронная структура кластеров практически не играет роли в динамике взрыва кластеров при пиковых интенсивностях более $1,8 \times 10^{12}$ Вт см⁻² и существенна при низкой пиковой интенсивности, около $1,9 \times 10^{11}$ Вт см⁻². Это и приводит к большому различию в сечениях поглощения в случае резонансного и нерезонансного возбуждения. При высоких интенсивностях внутренняя ионизация атомов для обоих случаев возбуждения насыщается и поглощение энергии контролируется, главным образом, скоростью нагрева плазмы. Расчёты МД показывают, что стандартный столкновительный нагрев плазмы не может объяснить столь большого поглощения энергии.

5.4. Результаты модельных расчётов по возбуждению кластеров ВУФ-импульсами

Полученные в работах [124, 130, 132, 133] результаты по взаимодействию интенсивных импульсов ВУФ-излучения ЛСЭ с кластерами вызвали значительный интерес, поскольку существующими "стандартными" моделями ионизации и нагрева кластеров трудно объяснить наблюдаемые в эксперименте столь высокие зарядовые состояния ионов [124]. Нагрев кластеров за счёт многофотонных процессов кажется маловероятным [112, 124], нагрев за счёт плазменных резонансов опровергается экспериментальными фактами [132, 133], а макроскопические механизмы нагрева кластеров (типа поглощения поверхностью кластера [80]) возможны лишь в случае, когда величина амплитуды колебания электронов сравнима с диаметром кластера. В рассматриваемом же случае взаимодействия импульсов ВУФ-излучения ЛСЭ с кластерами эта амплитуда меньше одного боровского радиуса (см. табл. 2).

Наиболее вероятным объяснением полученных результатов является нагрев кластеров за счёт обратного тормозного поглощения валентных электронов, освободившихся после однофотонной ионизации кластеров, и последующей ионизации атомов с освобождением внутренних электронов за счёт столкновений свободных электронов с ионами. Однако скорости этого процесса слишком малы, чтобы объяснить наблюдаемые высокие зарядовые состояния кластеров. В настоящее время существует несколько механизмов для объяснения эффективного нагрева кластеров при возбуждении ВУФ-импульсами (см., например, работу [8] и приведённые там ссылки). К таковым, например, относятся: атомный, не кулоновский вклад в обратное тормозное поглощение [137], усиленная зарядом однофотонная ионизация [74] и многочастичная рекомбинация (МЧР) (many-body recombination — MBR) [80, 87, 88]. Рассмотрим кратко эти механизмы.

В работе [137] развит статистический подход. Кластер трактуется как объёмная плазма, которая нагревается за счёт облучения ВУФ-излучением. По мнению авторов [137], в плотной кластерной плазме электроны испытывают влияние не просто обычного кулоновского потенциала. Большое значение имеют также эффекты экранировки ионов электронами. Чтобы объяснить большую величину поглощённой энергии, авторы ввели модифицированный кулоновский потенциал вида

$$V_Z(R) = -\frac{Z + [Z' - Z] \exp(-\alpha_Z R)}{R} \exp\left(-\frac{R}{\lambda_D}\right), \quad (5.2)$$

где Z — заряд иона, Z' — заряд ядра и λ_D — дебаевская длина. Параметр α_Z введён для того, чтобы получить плавный переход от потенциала вида $-Z/R$ для $\alpha_Z R \gg 1$ к потенциалу вида $-Z'/R$ в случае $R \rightarrow 0$. Параметр α_Z был выбран так, чтобы точно воспроизвести первый ионизационный потенциал одиночного атома.

Система уравнений решалась для зависящих от времени вероятностей $n_0(t)$, $n_1(t)$, ... для зарядовых состояний атомов вместе с выражением для временной эволюции электронной температуры в предположении, что механизмом нагрева плазмы является обратное тормозное поглощение. При решении вначале использовался стандартный атомный потенциал, а затем модифицированный потенциал (5.2). Установлено [137], что использование этого подхода приводит к увеличению числа поглощённых из поля лазерного импульса фотонов примерно на порядок, а также к довольно хорошему согласию полученных при расчёте распределений зарядовых состояний ионов с экспериментальными данными работы [124].

По мнению авторов, поглощение большого числа фотонов происходит за счёт обратного тормозного эффекта и столкновительных процессов типа $(e, 2e)$, происходящих в течение возбуждающего импульса. Поглощение многих фотонов происходит не за одну ступень. Каждый плазменный электрон за время импульса рассеивается многократно, но при каждом столкновении с ионом поглощается только один фотон. В дальнейшем устанавливается больцмановское распределение электронов и ионов с общей температурой. В результате формируются ионы с высоким зарядовым числом.

Суть усиленной зарядом однофотонной внутренней ионизации кластеров [74] при возбуждении лазерным излучением на длине волны 100 нм заключается в следующем. В случае возбуждения отдельного атома энергия фотона (12,7 эВ) достаточна только для однократной ионизации Хе. Однако ситуация существенно изменяется в случае возбуждения кластера. Присутствие зарядов соседних атомов в кластере приводит к понижению эффективного порога для внутренней ионизации атомов. Эффективная энергия связи для внутренней ионизации атомов кластера в этом случае равна

$$E_{\text{eff}} = E_{\text{bar}} - E_b, \quad (5.3)$$

где E_{bar} — энергия ближайшего барьера для атома или иона, который должен быть ионизован, а E_b — энергия связанного электрона (энергия связи электрона в атоме плюс потенциальная энергия взаимодействия электрона с лазерным полем и окружающими ионами). В условиях, когда поглощается фотон, имеющий энергию лазерного поля $\hbar\omega > |E_{\text{bar}}|$, в результате ионизации атома отрывается внешний электрон, и с этого момента электрон трактуется как классическая частица. Этот процесс, в принципе, может повторяться до тех пор, пока не произойдёт полная ионизация всех атомов в кластере. На практике, однако, оказывается, что почти во всех случаях ионизация атомов Хе происходит в основном за счёт отрыва только 5s- и 5p-электронов (см. раздел 5.5.3 и работу [53]). Рассматриваемый механизм приводит [74] к значительному понижению потенциалов ионизации атомов в кластере, формированию атомных ионов с более высоким зарядовым состоянием и к гораздо более сильному поглощению по сравнению с поглощением за счёт обычного тормозного эффекта.

Подробный анализ взаимодействия интенсивных импульсов ВУФ-излучения ЛСЭ, а также импульсов ближнего ИК-излучения с кластерами выполнен недавно в работах [80, 87, 88]. Авторы провели этот анализ в рамках плотной, сильно связанной плазмы (strongly coupled plasmas — SCP). Подход авторов основан на том, что при взаимодействии интенсивных фемтосекундных лазерных импульсов с кластерами формируется SCP. Такая плазма характеризуется высокой плотностью заряженных частиц и частыми многочастичными столкновениями между электронами, между электронами и ионами и между ионами. Это привело авторов к открытию нового механизма нагрева электронов, который заключается в том, что частые многочастичные столкновения приводят к интенсивной рекомбинации свободных электронов в возбуждённые состояния, из которых происходит эффективная повторная ионизация атома с освобождением этих электронов. Авторы назвали этот процесс нагревом за счёт МЧР. Именно повторная ионизация атомов и ионов приводит к большому поглощению излучения кластерами и, как следствие, к сильному нагреву кластеров и формированию ионов с большим зарядовым числом.

В отличие от макроскопической плазмы, наноплазму, которая образуется при взаимодействии интенсивных лазерных импульсов с кластерами и содержит конечное число частиц, можно анализировать с помощью метода МД. Это один из типов плазмы, в котором можно выполнить точные вычисления для большого числа частиц. Кроме того, полученные в вычислениях результаты, отражающие зарядовое состояние ионов, а также энергию ионов и электронов, можно сравнить с имеющимися экспериментальными данными. Это является чувствительным тестом для калибровки численных расчётов. Результаты таких исследований являются также надёжной базой для теоретического описания макроскопической плазмы. Выполненный авторами работ [80, 87, 88] анализ процесса взаимодействия кластеров с интенсивными лазерными импульсами на основе метода МД позволил существенно продвинуться в понимании фундаментальных свойств сверхбыстрой динамики электронов в плотной кластерной плазме.

Анализ взаимодействия ВУФ-излучения с кластерами авторы [87, 88] выполнили на примере кластера Xe_{1000} , размер которого несколько меньше размера кластера Xe_{1500} , исследованного в эксперименте с ЛСЭ [124]. Однако другие параметры модели были близки к экспериментальным, что позволяет сравнить результаты моделирования и эксперимента на качественном уровне. Количественное описание в любом случае затруднено из-за имеющих место неопределённостей в определении размера кластеров и формы импульса ВУФ-лазера (см. раздел 4.3).

На рисунке 15а–г приведены распределения ионов, полученные для кластера Xe_{1000} , облучённого ВУФ-лазером при интенсивностях $1,5 \times 10^{12}$, $1,5 \times 10^{13}$ и 7×10^{13} Вт см⁻², а также для кластера Xe_{80} , облучённого при интенсивности 2×10^{13} Вт см⁻². Во всех вычислениях длина волны излучения $\lambda = 98$ нм, а длительность импульса составляет 100 фс (на полувысоте). Зарядовые состояния ионов определялись на момент времени, соответствующий окончанию лазерного импульса, когда свободные электроны покидали кластер. Имеет место довольно хорошее согласие результатов вычисле-

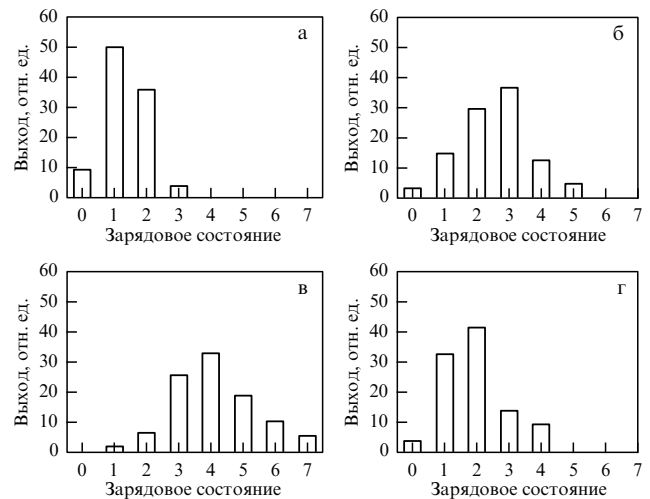


Рис. 15. Распределения зарядовых состояний ионов, формирующихся при взаимодействии кластеров Xe с излучением ЛСЭ на длине волны 98 нм при длительности импульса 100 фс: (а–в) Xe_{1000} при интенсивностях $1,5 \times 10^{12}$, $1,5 \times 10^{13}$ и 7×10^{13} Вт см⁻² соответственно; (г) Xe_{80} при интенсивности $2,0 \times 10^{13}$ Вт см⁻² [88].

ний с экспериментом [124] (см. рис. 8 и 15). При интенсивности излучения $1,5 \times 10^{12}$ и $1,5 \times 10^{13}$ Вт см⁻² (рис. 15а, б) образуются зарядовые состояния вплоть до Xe^{3+} и Xe^{5+} соответственно, в хорошем согласии с экспериментом по возбуждению кластеров импульсами ЛСЭ. При интенсивности излучения 7×10^{13} Вт см⁻² наблюдались ионы вплоть до Xe^{7+} , что всего лишь на одно зарядовое состояние меньше наблюдаемого экспериментально. В общем случае вычисленные функции распределения ионов по зарядам имеют максимумы, несколько смещённые в сторону более высоких зарядов, чем это имеет место в эксперименте. Различие связано с тем, что в расчётах [87, 88] не проводилось усреднение интенсивности лазерного пучка по сечению. Учёт поперечного распределения интенсивности пучка для кластеров Xe_{80} показал [88], что это приводит к улучшению согласия результатов расчёта и эксперимента.

На рисунке 16 приведены результаты, которые демонстрируют, что многочастичная рекомбинация электро-

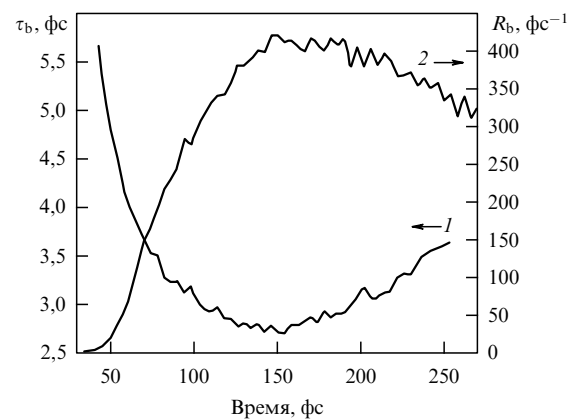


Рис. 16. Время жизни τ_b (по уровню $1/e$) многочастичной рекомбинации связанных электронов (кривая 1) и скорости R_b МЧР (число электронов, которые рекомбинируют в связанные состояния за 1 фс) (кривая 2) в зависимости от времени [88].

нов на связанные состояния и последующая повторная ионизация атома являются основными факторами, определяющими динамику электронов в плотной, сильно связанной кластерной плазме. Авторы [87, 88] вычислили время жизни τ_b (по уровню $1/e$) и скорость R_b многочастичной рекомбинации, определяемую скоростным уравнением

$$\frac{dn_b}{dt} = -\frac{n_b}{\tau_b} + R_b(t). \quad (5.4)$$

Здесь n_b — число связанных за счёт МЧР электронов, а R_b — функция температуры и плотности свободных электронов. На рисунке 16 видно (кривая 1), что время жизни связанных электронов составляет порядка нескольких фемтосекунд. Оно уменьшается в начале лазерного импульса, достигает минимального значения примерно в максимуме, а затем снова медленно увеличивается в хвостовой части импульса.

Расчёты [87, 88] показали также, что величина поглощённой в плотной плазме энергии за счёт обратного тормозного эффекта существенно (примерно на порядок величины) превышает поглощённую энергию, получаемую в стандартных теориях обратного тормозного поглощения [144]. Основным фактором, приводящим к увеличению эффективности нагрева плотной плазмы за счёт обратного тормозного поглощения, является новый механизм нагрева — многочастичная рекомбинация (рис. 17). Многочастичные столкновения приводят к эффективной рекомбинации электронов в возбуждённые связанные состояния (рис. 17а, б). Как показано на рис. 17, оставшиеся свободные электроны поглощают энергию во время перехода одного из электронов в связанное возбуждённое состояние (рис. 17б). Дальнейшие столкновения приводят либо к повторной ионизации атома с освобождением рекомбинированного электрона, либо к рассеянию электрона из высоковозбуждённого состояния на более низкие состояния. В результате заселяется широкая область возбуждённых состояний. Цикл нагрева за счёт МЧР заканчивается, когда рекомбинированный электрон вторично возбуждается или атом ионизируется за счёт поглощения фотона (рис. 17в). Поскольку рекомбинированные электроны непрерывно обращаются вокруг иона, излучение поглощается более эффективно по сравнению со случаем нагрева кластеров за счёт обычного обратного тормозного эффекта, когда для поглощения излучения электрону необходимо сначала найти ион. Указанные предположения подтверж-

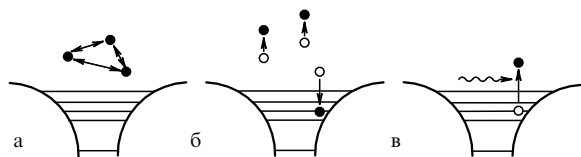


Рис. 17. Схема нагрева кластера за счёт МЧР, которая реализуется в цикле, состоящем из трёх процессов. Столкновения двух или более электронов вблизи иона (а) приводят к МЧР в высоковозбуждённое связанное состояние (б). Дальнейшие столкновения рассеивают электрон в более глубокие связанные состояния и тем самым заселяют широкий диапазон спектра возбуждённых состояний. Полная энергия многоэлектронной-ионной системы сохраняется (б). Энергия поглощается за счёт вторичной ионизации атома лазерным излучением с освобождением рекомбинированных связанных электронов (в) [88].

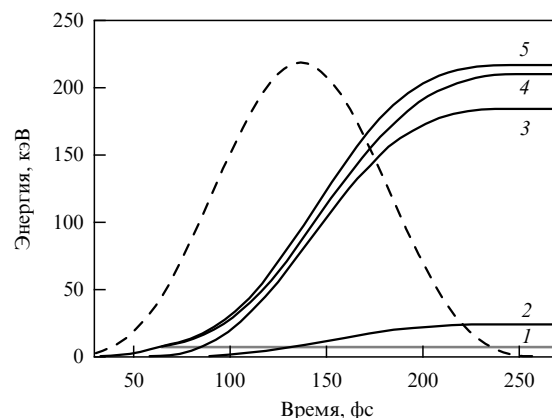


Рис. 18. Поглощённая энергия в зависимости от времени для различных механизмов нагрева кластера Xe_{1000} при интенсивности $7 \times 10^{13} \text{ Вт см}^{-2}$ (как на рис. 15в): 1 — однофотонное поглощение, 2 — обратное тормозное поглощение, 3 — поглощение за счёт МЧР, 5 — суммарное поглощение, показанное кривыми 1–3, 4 — полная поглощённая энергия, полученная расчётом методом МД. Штриховой линией показана форма импульса ЛСЭ [88].

даются приведёнными ниже количественными результатами.

Доминирующий вклад МЧР в суммарную поглощённую энергию демонстрирует рис. 18, на котором показана зависимость поглощённой энергии от времени для параметров излучения, указанных на рис. 15в. Кривая 4 показывает полную поглощённую энергию, полученную в модельных расчётах. Кривые 1 и 2 соответственно иллюстрируют поглощение вследствие однофотонной ионизации и нагрева кластерной плазмы за счёт обратного тормозного поглощения, вычисленного на основе стандартной теории [90, 145]. Кривая 3 характеризует энергию, поглощённую электронами, которые рекомбинировали в возбуждённые состояния. Эта энергия примерно на порядок больше энергии, которая идёт на первичную однофотонную ионизацию и нагрев кластера за счёт обычного тормозного поглощения. Таким образом, показано, что нагрев за счёт МЧР является доминирующим механизмом нагрева кластерной плазмы. Кривая 5 иллюстрирует полную поглощённую энергию (суммарную энергию, кривые 1–3). Довольно хорошее совпадение кривых 4 и 5 подтверждает тот факт, что три механизма нагрева (кривые 1–3) в основном и определяют полную поглощённую энергию.

В заключение этого раздела отметим, что в работе [138] в рамках микроскопического подхода исследовалось взаимодействие коротких лазерных импульсов на длине волны 800 и 100 нм с небольшим кластером Xe_{54} . Установлено, что в обоих случаях ударная ионизация не существенна. Доминирующим механизмом является ионизация квазистатическим радиальным электрическим полем (механизм зажигания, см. раздел 3.5), возникающим в результате внешней ионизации кластера. Нагрев и внешняя ионизация кластера зависят от длины волны излучения. На длине волны 800 нм, когда амплитуда колебаний электронов сравнима с размером кластера, поглощение энергии происходит, главным образом, за счёт столкновений электронов с пограничной областью кластера, в то время как на длине волны 100 нм превалирует поглощение за счёт обратного тормозного эффекта.

5.5. Другие применения лазера на свободных электронах

Построенный в Гамбурге ЛСЭ применялся также в других экспериментах, а именно для исследования многофотонной ионизации атомов и молекул в газовой фазе [51–53, 112], фотоэлектрического эффекта при сверхвысоких интенсивностях излучения [53], фотоабляции материалов [113] и в двухчастотных экспериментах по ионизации атомов благородных газов в пучке [114]. В разделах 5.5.1–5.5.3 мы кратко рассмотрим эти применения ЛСЭ.

5.5.1. Многофотонная ионизация атомов и молекул. Фотоионизация в вакуумной ультрафиолетовой области обычно используется для исследования многоэлектронной динамики свободных атомов и молекул [146]. До недавнего времени для этой цели, из-за отсутствия других источников, использовалось синхротронное излучение. Однако при уровнях мощности, достигаемых с помощью синхротронного излучения, все процессы ведут себя линейно с интенсивностью излучения. Лишь недавний прогресс в получении интенсивного излучения ВУФ-диапазона с помощью ЛСЭ [49–53] и генерации высоких гармоник [147–149] расширил возможности исследования сверхбыстрых нелинейных эффектов по взаимодействию высокоинтенсивного электромагнитного поля с веществом. Стал возможным переход исследований из оптического диапазона [150] в спектральную область, в которой энергия кванта излучения больше порога ионизации атомов и молекул.

В работе [112] исследовалась многофотонная ионизация атомов Ag и Xe в атомном пучке с помощью времяпролётной масс-спектрометрии. Атомы облучались интенсивными импульсами ЛСЭ на длине волны 98 нм (энергия фотона $\sim 12,7$ эВ), при длительности импульсов около 100 фс и интенсивности излучения до 10^{13} Вт см $^{-2}$. В эксперименте измерялись масс-спектры образующихся ионов. При указанной длине волны излучения энергия фотона достаточна для однофотонной ионизации Xe ($\sim 12,13$ эВ [125]), но она меньше величины первого ионизационного потенциала атомов Ag (15,76 эВ) и ионизационного потенциала ионов Xe $^{+}$ (21,2 эВ). Следовательно, для ионизации нейтральных атомов Ag и ионов Xe $^{+}$ уже необходимо поглощение двух фотонов ЛСЭ.

В эксперименте при интенсивности излучения $\sim 10^{13}$ Вт см $^{-2}$ детектировались многократно заряженные ионы ксенона вплоть до Xe $^{6+}$ и ионы аргона вплоть до Ar $^{4+}$. На основе данных о зависимости выхода ионов от интенсивности лазерного излучения авторы сделали вывод о механизмах многофотонных процессов ионизации. По мнению авторов, при интенсивности $\sim 10^{12}$ – 10^{13} Вт см $^{-2}$ ионизация характеризуется последовательными многофотонными процессами. Установлено, что выход многократно заряженных ионов насыщается при интенсивностях в 5 и 30 раз меньших, чем это имеет место при ионизации этих же атомов импульсами излучения на длинах волн 193 [151] и 564 нм [152] соответственно. Таким образом, результаты экспериментов подтверждают предсказания теории [153] о том, что интенсивности насыщения выхода ионов уменьшаются с увеличением частоты излучения лазера.

В работе [51] исследовалась многофотонная двукратная ионизация молекулярного азота (N $_2$). В эксперимен-

тах импульсы ЛСЭ длительностью 25 фс, следующие с частотой 1 МГц, с числом фотонов в импульсе до 10^{12} и энергией фотона 38 эВ ($\lambda \approx 32,6$ нм) фокусировались в пятно диаметром 26 мкм. Соответствующие величины для плотности фотонов $\geq 10^{17}$ фотонов см $^{-2}$ и интенсивности излучения $\geq 2 \times 10^{13}$ Вт см $^{-2}$ являются максимальными значениями, которые были достигнуты до сих пор в мягкой рентгеновской области спектра. Молекула азота, имеющая простую двухатомную структуру, была выбрана в связи с тем, что при энергии фотона 38 эВ возможна нелинейная двухфотонная ионизация азота (первый и второй ионизационные потенциалы составляют 15,6 и 23,3 эВ соответственно [125]). В рассматриваемой работе [51] наблюдалась многофотонная двукратная ионизация молекул азота, при которой первый поглощённый фотон приводит к однократной ионизации молекулы азота, а второй фотон — к ионизации образующегося иона. На основе полученных результатов авторы пришли к выводу, что последовательная многофотонная ионизация является более эффективным процессом, чем прямой многофотонный процесс. Последовательный процесс можно рассматривать даже как усиленный за счёт резонанса прямой многофотонный процесс, происходящий через реальный, а не виртуальный уровень. Следует, однако, отметить, что интерпретация многофотонной ионизации атомов и молекул ВУФ-излучением находится пока только на начальном этапе.

В недавней работе [53] с помощью мощных импульсов ЛСЭ изучен фотоэффект в крайнем ультрафиолете. Исследовалась фотоионизация атомов Xe на длине волны 13,3 нм ($\hbar\omega \approx 93$ эВ) при сверхвысоких интенсивностях, достигаемых с помощью ЛСЭ. Эксперименты проводились в диапазоне интенсивностей возбуждающего излучения примерно от 10^{12} до 10^{16} Вт см $^{-2}$. Длительность лазерных импульсов составляла 10 ± 2 фс [154]. С помощью времяпролётного масс-спектрометра наблюдались ионы с зарядовым состоянием вплоть до Xe $^{21+}$, что значительно больше зарядовых состояний, которые наблюдались при фотоионизации Xe на длине волны 800 нм (Xe $^{8+}$) при одинаковой с данными экспериментами интенсивности 10^{16} Вт см $^{-2}$ [155]. Чтобы формировались ионы Xe $^{21+}$, из лазерного поля должно поглотиться около 5 кэВ энергии на атом (или более 57 фотонов с энергией 93 эВ) за время импульса около 10 фс. Исследовались зависимости зарядового состояния ионов от интенсивности излучения. Отметим, что поскольку пондеромоторная энергия электронов в лазерном поле существенно (на несколько порядков) меньше энергии кванта излучения, подходы, применяемые для описания процесса взаимодействия излучения с кластерами в оптической области, не годятся для описания этого процесса в исследуемом диапазоне. Подходящий теоретический подход для описания взаимодействия УФ-излучения с веществом в крайней УФ-области при высоких интенсивностях излучения пока не разработан.

В работе [52] с помощью ЛСЭ исследовалась вероятность одно-, двух-, трёх- и четырёхфотонных процессов ионизации атомов неона и гелия. Атомы возбуждались импульсами излучения длительностью около 25 фс, следующими с частотой повторения 5 кГц, при интенсивности до 10^{14} Вт см $^{-2}$. Чтобы установить механизмы ионизации и сопоставить между собой различные последовательные и многофотонные схемы возбуждения,

эксперименты были выполнены при двух различных энергиях фотонов: 42,8 и 38,4 эВ. Энергии фотонов были немного выше и немного ниже порога для последовательной двухфотонной двукратной ионизации Ne через Ne^+ при энергии около 41,0 эВ (первый и второй ионизационные потенциалы составляют 21,56 и 40,96 эВ соответственно [125]). В этих двух случаях может наблюдаться существенное различие в характере нелинейных зависимостей выхода ионов от интенсивности лазерного излучения. В ходе указанных экспериментов [52] были определены сечения двухфотонной ионизации атомов неона и гелия, ионов Ne^+ и Ne^{2+} , а также установлена доминирующая роль последовательных многофотонных переходов через ионные и резонансные состояния по сравнению с прямыми многофотонными переходами через виртуальные состояния.

5.5.2. Абляция материалов. Интересное применение ЛСЭ ВУФ-диапазона описано в работе [113]. Исследовался характер абляции органической полимерной плёнки полиметилметакрилата (polymethylmethacrylate — PMMA) и кремния одиночными импульсами крайнего УФ-излучения, которые генерировались из плазменного фокуса Z-пинча или из лазерной плазмы. Характеристики абляции, полученные с помощью плазменных источников излучения, сравнивались с таковыми, полученными при облучении указанных образцов УФ-излучением ЛСЭ.

При облучении органических полимеров интенсивным излучением крайнего ультрафиолета в вакууме макроскопическое количество облучённого материала переходит в вакуум. Источники излучения низкой интенсивности удаляют материал за счёт индуцированной фотонами десорбции из облучаемой поверхности (сухое травление или испарение синхротронным излучением). Каждый фотон крайнего УФ-излучения может разорвать любую химическую связь. Энергия фотона также обычно больше энергии связи атомов в кристалле. Высокоэнергетические фотоны крайнего УФ-излучения возбуждают электроны из внутренних атомных оболочек. За этим процессом следует каскад оже-переходов, приводящий к формированию обеднённых электронами областей, которые быстро распадаются за счёт кулоновского взрыва. Фотоны, которые поглощаются вблизи поверхности, могут приводить к разрушению образца на маленькие кусочки, которые выбрасываются в вакуум. При использовании излучения низкой интенсивности материал удаляется только с поверхности и приповерхностных слоёв образца.

Совершенно иная ситуация имеет место при использовании одиночных импульсов излучения высокой энергии. В этом случае реализуется большая локальная доза облучения и высокая скорость поступления этой дозы. Поэтому большое число актов, вызывающих структурные нарушения материала, происходит почти одновременно в относительно толстом облучаемом слое, если поглощение излучения материалом не очень велико. Значительная часть поглощённой энергии термализуется, быстро перегревая облучаемый слой, который изменяется также химически. Перегретая фрагментированная часть образца представляет собой уже новую фазу, которая устремляется в вакуум. В конечном счёте, сверхкороткие высокоинтенсивные импульсы ЛСЭ могут вызвать быстрое разрушение облучаемых твёр-

дых тел, переводя значительное число электронов из валентной зоны в зону проводимости.

В случае ЛСЭ образцы PMMA и кремния облучались на длине волны 86 нм ($h\nu \approx 14,3$ эВ) импульсами длительностью < 100 фс при интенсивности излучения $\sim 10^{12}$ Вт см $^{-2}$. В результате проведённых исследований установлено [113], что облучение PMMA плазменными источниками УФ-излучения приводит к сильному нагреву образца и большим морфологическим изменениям облучаемой поверхности. Происходит разложение материала, образование чёрного налёта углерода (сажи) на поверхности и формирование пузырей. В то же время, при облучении PMMA импульсами ЛСЭ поверхность остается довольно ровной, состав и структура облучаемой поверхности практически не изменяются (рис. 19). По глубине образованного на поверхности за серию импульсов облучения пятна (~ 25 мкм), которая была измерена методом оптической спектроскопии, установлено, что за один импульс удаляется примерно 70 нм материала с облучаемой поверхности. Поскольку длина ослабления излучения ЛСЭ в PMMA составляет около

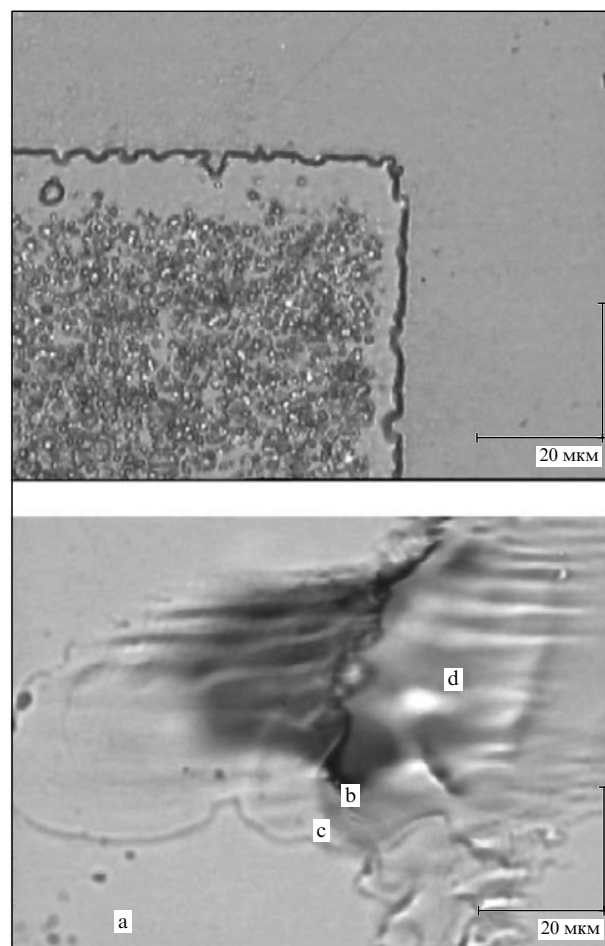


Рис. 19. Поверхность образцов плёнки PMMA после облучения импульсами крайнего УФ-излучения. Вверху — облучение наносекундным импульсом Si-плазмы. Образец расположен за сетчатым контактом на расстоянии 50 см от источника. Внизу — облучение импульсами ЛСЭ на длине волны 86 нм. Кратер образован в результате облучения пленки 380-ю импульсами с энергией 5 мкДж, длительностью < 100 фс при угле падения 55° . В точках а–д производился анализ состава плёнки после облучения по спектрам комбинационного рассеяния [113].

10 нм [156], можно заключить, что абляция РММА имеет место при интенсивности, которая примерно на три порядка меньше используемой в экспериментах. Таким образом, полученные результаты являются весьма обнадеживающими для использования в перспективе коротковолнового ВУФ-излучения ЛСЭ для микрообработки миниатюрных деталей и поверхностей.

5.5.3. Двухчастотная двухфотонная ионизация атомов Хе.

В данном разделе мы кратко рассмотрим применение ЛСЭ в комбинации с другими лазерами. В недавней работе [114] описана уникальная экспериментальная установка для исследования взаимодействия излучения ЛСЭ с веществом. Установка включает ЛСЭ, работающий в крайнем УФ-диапазоне ($\lambda = 13,7$ нм, длительность импульса $\tau_p = 10\text{--}50$ фс), лазер мощных сверхкоротких импульсов ИК-диапазона ($\lambda = 800$ нм, $\tau_p = 110$ фс) и пикосекундный лазер видимого диапазона ($\lambda = 523$ нм, $\tau_p = 12$ пс). Комбинация ЛСЭ с синхронизованным фемтосекундным ИК-лазером или пикосекундным лазером видимого диапазона открывает большие возможности для проведения различных экспериментов по двухчастотному возбуждению—зондированию атомов и молекул в газовой фазе, кластеров, а также плазмы и конденсированных сред. С помощью комбинации этих лазеров получены первые результаты по двухфотонной двухчастотной фотоионизации атомов благородных газов с высоким временным разрешением. Рассмотрим кратко метод и полученные результаты.

В методе возбуждение—зондирование для анализа фотоэлектронного сигнала, индуцированного фотонами ЛСЭ в присутствии мощного лазерного излучения оптического или ближнего ИК-диапазона, используется фотоэлектронная спектроскопия [114, 157]. Наилучшим методом измерения времени задержки между двумя импульсами во временной шкале, сопоставимой с длительностью импульсов ЛСЭ и оптического лазера (в фемтосекундном диапазоне), является метод двухчастотной надпороговой (туннельной) ионизации. В случае, когда импульсы излучения крайнего УФ- и ближнего ИК-диапазона перекрываются в пространстве и во времени, фотоэлектроны, генерированные УФ-импульсом, оказываются в поле зондирующего импульса оптического лазера, где они могут поглотить один или несколько фотонов излучения указанного лазера. Это приводит к возникновению боковых полос (side bands — SB) в соответствующем фотоэлектронном спектре атома мишени [158, 159]. Интенсивность и форма боковых полос сильно зависят от временных и пространственных профилей двух фемтосекундных импульсов [160], поэтому эти параметры можно использовать для исследования характеристик импульсов ЛСЭ [158, 161], а также для непосредственного измерения времени задержки между двумя лазерными импульсами [159]. Изменение времени задержки между импульсами осуществляется с помощью оптической линии задержки, которая контролируется компьютером. Синхронизация двух импульсов разной частоты в схеме возбуждение—зондирование была продемонстрирована на примере атомов ксенона как газ-мишени.

В эксперименте импульсы лазеров фокусировались в зону пересечения с пучком атомов ксенона. Измерялся выход электронов, индуцированный двухчастотной ионизацией атомов ксенона с освобождением 5р-элект-

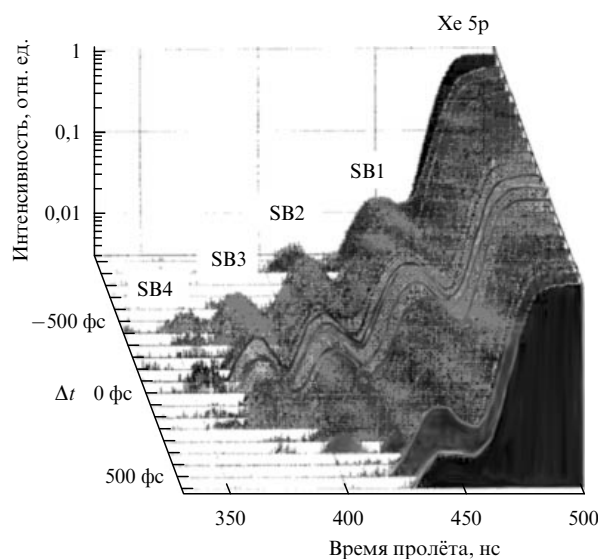


Рис. 20. Времяпролётные спектры, полученные при двухфотонной двухчастотной ионизации атомов ксенона излучением ЛСЭ крайнего УФ-диапазона и лазера оптического диапазона. Различные спектры представлены в функции времени задержки между импульсами ЛСЭ ($\lambda = 13,8$ нм, $\tau_p = 20$ фс) и оптическими импульсами ($\lambda = 800$ нм, $\tau_p = 120$ фс, энергия в импульсе 20 мкДж) [114].

ронов на длине волны ЛСЭ 13,7 нм ($\hbar\omega = 89,9$ эВ) (рис. 20). Каждый времяпролётный масс-спектр, показанный на рисунке, усреднялся по 250-ти импульсам обоих лазеров. Интенсивное поле лазера ближнего ИК-диапазона приводит к формированию довольно интенсивных боковых полос (SB1–SB4, см. рис. 20), которые формируются за счёт поглощения до четырёх оптических фотонов. Видно, что боковые полосы наблюдаются только во временном интервале около 600 фс. Ширина временного перекрытия импульсов (~ 600 фс), полученная на основе формирования боковых полос в спектре, определяется в основном временным разбросом импульсов ЛСЭ по отношению к импульсу оптического диапазона. По ширине полосы можно определить, что временное разрешение составляет около 250 фс [159]. Существенно улучшить разрешение (до 50 фс) позволяет то, что спектр можно детектировать за один лазерный выстрел [114]. При этом временная задержка между импульсами измеряется в каждом выстреле. Таким образом, указанная экспериментальная установка и используемый метод позволяют проводить исследование взаимодействия импульсов ЛСЭ крайнего УФ-диапазона с веществом с высоким временным разрешением, порядка 50 фс. Потенциальные возможности применения лазеров на свободных электронах рентгеновского диапазона для исследования вещества с высоким временным и пространственным разрешением в экспериментах типа возбуждение—зондирование рассмотрены в работе [115].

В заключение этого раздела отметим, что благодаря большим новым возможностям, которые открывает применение ЛСЭ ВУФ-диапазона во многих областях исследований и приложений, вызван большой интерес к созданию таких лазеров — источников света четвёртого поколения [104–108]. На стадии реализации или разработки в настоящее время находится [104] около полутора десятка проектов по созданию ЛСЭ ВУФ- и рентгеновского диапазона — в США [104, 162–164], Германии [104,

165–171], Японии [104, 172–175], Италии [104, 176–178], Франции [104, 179], Англии [104, 180], Южной Кореи [104, 181]. Проекты, осуществляемые в Стэнфорде (США) и Гамбурге (Германия), нацелены на то, чтобы уже в ближайшее время (до 2010–2012 гг.) получить с помощью ЛСЭ рентгеновское излучение с длиной волны 1–1,5 Å [104].

6. Заключение

Запуск лазеров на свободных электронах ВУФ-диапазона позволил существенно расширить параметры взаимодействия излучения с веществом, в частности, с атомными кластерными пучками, и дал возможность исследовать характер взаимодействия кластеров с лазерным полем при других, не реализованных ранее условиях. Результаты исследований показывают, что изменение длины волны возбуждающего излучения существенно меняет относительную роль коллективных и столкновительных процессов в плотной кластерной плазме. Предложены новые механизмы взаимодействия излучения ЛСЭ ВУФ-диапазона с кластерами инертных газов, включающие точный учёт атомного потенциала [137], усиленную зарядом ионизацию [74], эффекты столкновительного нагрева [124, 130], многочастичные столкновения и рекомбинацию [87, 88]. Многие из этих механизмов гораздо более эффективны для нагрева плотной кластерной плазмы, чем обычное вынужденное обратное тормозное поглощение.

Результаты исследований не дают единого простого описания процесса поглощения интенсивных лазерных импульсов кластерами. Они демонстрируют наличие большого числа механизмов и процессов, которые имеют место при возбуждении кластеров сверхмощными сверхкороткими лазерными импульсами. Эти механизмы и процессы зависят не только от параметров возбуждающего лазерного излучения, но также от размера кластера и времени, в течение которого эволюционирует кластерная плазма. При определённых условиях некоторые из этих механизмов и процессов становятся доминирующими. Вместе с тем, следует отметить, что эволюция кластерной плазмы начинается с ионизации атомов и ионов кластера сильной электромагнитной волной как наиболее быстрого процесса первичного образования свободных электронов. Это создаёт условия для последующего развития кластерной плазмы, которое может происходить по различным каналам. В случае возбуждения кластеров ВУФ-излучением ЛСЭ первоначальное формирование свободных электронов происходит за счёт прямых и последовательных однофотонных или многофотонных процессов ионизации атомов и ионов кластера, а в случае возбуждения излучением видимого или ИК-диапазона — за счёт надбарьерной (туннельной) ионизации атомов и ионов кластера в поле сильной электромагнитной волны.

Результаты исследований взаимодействия интенсивных лазерных импульсов сверхкороткой длительности с кластерами показывают, что существуют разнообразные механизмы поглощения энергии лазерного импульса и нагрева кластерной плазмы. При возбуждении кластеров на длине волны 800 нм основным механизмом поглощения энергии является резонансное поглощение. Этот механизм затрагивает почти все оптически активные электроны в кластере и поэтому доминирует над дру-

гими механизмами поглощения. Лишь в условиях, когда резонансное поглощение по каким-либо причинам невозможно, начинают превалировать другие механизмы. При возбуждении кластеров ВУФ-излучением на длине волны 100 нм ситуация совершенно иная. Эффективными механизмами поглощения энергии являются обратное тормозное поглощение, многочастичная рекомбинация и, возможно, другие механизмы. Однако причины столь высокого поглощения пока не вполне выяснены. Вероятно, будущие эксперименты прояснят эту ситуацию.

В результате проведённых исследований показано, что некоторые концепции, известные из физики взаимодействия кластеров с интенсивными импульсами низкочастотного излучения, можно перенести на случай возбуждения кластеров фотонами большой энергии. Однако этот перенос требует более глубокого изучения происходящих процессов и более детального описания атомов в сформировавшейся плазме, чем это делалось раньше. Так, например, при возбуждении кластеров интенсивными импульсами ещё более коротковолнового (рентгеновского) излучения ($\lambda \approx 3–5$ нм, $\hbar\omega \approx 250–400$ эВ) ожидается полная ионизация атомных кластеров, которая приводит к гигантскому кулоновскому взрыву кластеров, поскольку процесс ионизации при взаимодействии кластеров с рентгеновским излучением происходит принципиально иным способом, чем при оптической накачке [182]. Ионизация начинается из внутренних оболочек атомов кластера, так как сечение ионизации в случае возбуждения рентгеновским излучением для внутренних оболочек больше, чем для внешних валентных оболочек [145]. Типичные значения обратной скорости ионизации составляют 1–10 фс [182], что намного меньше длительности лазерного импульса. Следовательно, возможна многократная однофотонная ионизация атомов кластера вследствие того, что опустошаемые лазерным импульсом внутренние оболочки атомов будут заполняться за счёт оже-процессов. Оже-релаксация практически не зависит от зарядового состояния атома и происходит быстро (за 0,2–5 фс) [183]. Вследствие такого, практически мгновенного заполнения электронами внутренних оболочек атомов, они могут быть ионизованы многократно в течение возбуждающего лазерного импульса. И это происходит в полной противоположности механизму ионизации атомов импульсами оптического диапазона, когда электроны первоначально удаляются из внешних оболочек.

Результаты экспериментального и теоретического исследования проясняют природу взаимодействия интенсивных фемтосекундных лазерных импульсов ВУФ-диапазона с атомными кластерами. Показано, что в этом новом режиме взаимодействия фотонов высокой энергии с кластерами возникает много интересного и удивительного. Создание ЛСЭ ВУФ- и рентгеновского диапазонов будет стимулировать дальнейшие эксперименты с кластерами, которые играют важную роль в исследовании и понимании процессов, происходящих при взаимодействии излучения с веществом. Поэтому есть основания полагать, что уже в самое ближайшее время будут получены новые интересные и важные данные, которые позволят установить новые закономерности и ещё дальше продвинуться в понимании физики возбуждения кластерной материи. Это, несомненно, будет способствовать ещё более глубокому пониманию

процесса взаимодействия излучения с веществом, а также широкому использованию кластерных пучков в научных исследованиях и в практических приложениях. В частности, важное практическое значение имеет определение порога разрушения вещества с большей точностью, чем это делается сегодня, а также получение снимков с высоким временным и пространственным разрешением (на уровне ангстрема). Это особенно важно для биологических применений указанных лазеров.

В заключение следует отметить, что разработка лазеров на свободных электронах ВУФ- и мягкого рентгеновского диапазона и проводимые с их помощью исследования по взаимодействию излучения с веществом имеют, прежде всего, фундаментальный характер. Для применения результатов исследований на практике потребуется время. Необходимо накопить данные и разработать соответствующие методы применения полученных результатов. Однако уже сейчас ясно, что эта область исследований, несомненно, является чрезвычайно важной для практических приложений. Весьма вероятно, что полученные результаты начнут применяться на практике (в нанотехнологии, материаловедении, биологии, медицине) уже в самое ближайшее время. Эта область исследований и разработок относится к одной из областей, которые определяют современный уровень развития новой техники и высокой технологии. Именно поэтому во многих развитых странах мира (в США, Германии, Японии, Франции, Италии, Англии) активно строятся или разрабатываются ЛСЭ ВУФ- и рентгеновского диапазона. В связи с этим вызывает сожаление тот факт, что в России из-за крайне низкого уровня финансирования науки нет таких лазеров и не проводятся аналогичные исследования. Это может привести к существенному отставанию развития в нашей стране многих высокотехнологичных процессов в целом ряде областей приложения.

Автор выражает глубокую благодарность Е.А. Николаевой за помощь в работе над литературой и А.Н. Петину за помощь в работе над рисунками. Автор глубоко благодарен рецензенту за ценные замечания. Работа выполнена при частичной финансовой поддержке РФФИ, гранты №№ 06-02-16634, 07-02-00165 и 09-02-00531.

Список литературы

1. Ditmire T et al. *Phys. Rev. A* **53** 3379 (1996)
2. Ditmire T et al. *Phys. Rev. A* **57** 369 (1998)
3. Крайнов В П, Смирнов М Б *УФН* **170** 969 (2000) [Krainov V P, Smirnov M B *Phys. Usp.* **43** 901 (2000)]
4. Krainov V P, Smirnov M B *Phys. Rep.* **370** 237 (2002)
5. Zweiback J et al. *Phys. Plasmas* **9** 3108 (2002)
6. Смирнов Б М *УФН* **173** 609 (2003) [Smirnov B M *Phys. Usp.* **46** 589 (2003)]
7. Smirnov M B, Krainov V P *Phys. Rev. A* **69** 043201 (2004)
8. Saalman U, Siedschlag Ch, Rost J M *J. Phys. B* **39** R39 (2006)
9. Крайнов В П, Смирнов Б М, Смирнов М Б *УФН* **177** 953 (2007) [Krainov V P, Smirnov B M, Smirnov M B *Phys. Usp.* **50** 907 (2007)]
10. Макаров Г Н *УФН* **176** 121 (2006) [Makarov G N *Phys. Usp.* **49** 117 (2006)]
11. Макаров Г Н *УФН* **178** 337 (2008) [Makarov G N *Phys. Usp.* **51** 319 (2008)]
12. Ditmire T et al. *Nature* **386** 54 (1997)
13. Last I, Jortner J *Phys. Rev. A* **73** 013202 (2006)
14. Springate E et al. *Phys. Rev. A* **61** 044101 (2000)
15. Auguste T et al. *J. Quantit. Spectrosc. Rad. Transf.* **71** 147 (2001)
16. Скобелев И Ю и др. *ЖЭТФ* **121** 88 (2002) [Skobelev I Yu et al. *JETP* **94** 73 (2002)]
17. Maltsev A, Ditmire T *Phys. Rev. Lett.* **90** 053002 (2003)
18. Parra E et al. *J. Opt. Soc. Am. B* **20** 118 (2003)
19. McPherson A et al. *Nature* **370** 631 (1994)
20. Dobosz S et al. *Phys. Rev. A* **56** R2526 (1997)
21. Ditmire T et al. *Appl. Phys. Lett.* **71** 166 (1997)
22. Стенц К и др. *Квантовая электроника* **30** 721 (2000) [Stenz C et al. *Quantum Electron.* **30** 721 (2000)]
23. Junkel-Vives G C et al. *J. Quantit. Spectrosc. Rad. Transf.* **71** 417 (2001)
24. Скобелев И Ю и др. *ЖЭТФ* **121** 1124 (2002) [Skobelev I Yu et al. *JETP* **94** 966 (2002)]
25. Magunov A I et al. *Laser Part. Beams* **21** 73 (2003)
26. Фукуда Й и др. *Письма в ЖЭТФ* **78** 146 (2003) [Fukuda Y et al. *JETP Lett.* **78** 115 (2003)]
27. Abdallah J (Jr.) et al. *Phys. Rev. A* **68** 063201 (2003)
28. Fukuda Y et al. *Laser Part. Beams* **22** 215 (2004)
29. Иванова Е П, Иванов А Л *ЖЭТФ* **127** 957 (2005) [Ivanova E P, Ivanov A L *JETP* **100** 844 (2005)]
30. Kim K Y et al. *Phys. Rev. E* **73** 066403 (2006)
31. Smirnov M B, Becker W *Phys. Rev. A* **74** 013201 (2006)
32. Ditmire T et al. *Nature* **398** 489 (1999)
33. Zweiback J et al. *Phys. Rev. Lett.* **84** 2634 (2000)
34. Zweiback J et al. *Phys. Rev. Lett.* **85** 3640 (2000)
35. Last I, Jortner J *J. Phys. Chem. A* **106** 10877 (2002)
36. Madison K W et al. *J. Opt. Soc. Am. B* **20** 113 (2003)
37. Madison K W et al. *Phys. Plasmas* **11** 270 (2004)
38. Madison K W et al. *Phys. Rev. A* **70** 053201 (2004)
39. Buerkens F et al. *Phys. Rev. E* **74** 016403 (2006)
40. Grillon G et al. *Phys. Rev. Lett.* **89** 165005 (2002)
41. Ter-Avetisyan S et al. *Phys. Rev. Lett.* **96** 145006 (2006)
42. Krainov V P, Smirnov B M *ЖЭТФ* **132** 634 (2007) [JETP **105** 559 (2007)]
43. McPherson A et al. *Phys. Rev. Lett.* **72** 1810 (1994)
44. Schroeder W A et al. *J. Phys. B* **31** 5031 (1998)
45. Arthur J et al. (The LCLS Design Study Group), Linac Coherent Light Source (LCLS) Design Study Report, SLAC-R-521 (Stanford, Calif.: Stanford Univ., 1998)
46. Arthur J *Rev. Sci. Instrum.* **73** 1393 (2002)
47. Richard F et al. (Eds), TESLA Technical Design Report, DESY 2001-01, Pt. I (Hamburg: DESY, 2001)
48. Materlik G, Tschentscher T (Eds) "The X-ray free electron laser", TESLA Technical Design Report, DESY 2001-011, Pt. V (Hamburg: DESY, 2001)
49. Andruszkow J et al. *Phys. Rev. Lett.* **85** 3825 (2000)
50. Ayvazyan V et al. *Eur. Phys. J. D* **37** 297 (2006)
51. Sorokin A A et al. *J. Phys. B* **39** L299 (2006)
52. Sorokin A A et al. *Phys. Rev. A* **75** 051402(R) (2007)
53. Sorokin A A et al. *Phys. Rev. Lett.* **99** 213002 (2007)
54. Келдыш Л И *ЖЭТФ* **47** 1945 (1964) [Keldysh L V *Sov. Phys. JETP* **21** 1135 (1965)]
55. Аммосов М В, Делоне Н Б, Крайнов В П *ЖЭТФ* **91** 2008 (1986) [Ammosov M V, Delone N B, Krainov V P *Sov. Phys. JETP* **64** 1191 (1986)]
56. Glover T E et al. *Phys. Rev. Lett.* **73** 78 (1994)
57. Rae S C, Burnett K *Phys. Rev. A* **46** 2077 (1992)
58. Kruer W L *The Physics of Laser Plasma Interactions* (Redwood City, Calif.: Addison-Wesley, 1988)
59. Blyth W J et al. *Phys. Rev. Lett.* **74** 554 (1995)
60. Crane J K et al. *J. Opt. Soc. Am. B* **13** 89 (1996)
61. Bethe H A, Salpeter E E *Quantum Mechanics of One- and Two-Electron Atoms* (Berlin: Springer, 1957) [Бете Г А, Соллптер Э *Квантовая механика атомов с одним и двумя электронами* (М.: Физматгиз, 1960)]
62. Lotz W Z. *Phys.* **216** 241 (1968)
63. Jackson J D *Classical Electrodynamics* 2nd ed. (New York: Wiley, 1975) [Джексон Дж *Классическая электродинамика* (М.: Мир, 1965)]
64. Ashcroft N W, Mermin N D *Solid State Physics* (New York: Holt, Rinehart and Winston, 1976) [Ашкрофт Н, Мермин Н *Физика твердого тела* (М.: Мир, 1979)]

65. Kreibig U, Vollmer M *Optical Properties of Metal Clusters* (Berlin: Springer, 1995)
66. Milchberg H M, McNaught S J, Parra E *Phys. Rev. E* **64** 056402 (2001)
67. Last I, Jortner J *Phys. Rev. A* **64** 063201 (2001)
68. Ditmire T *Phys. Rev. A* **57** R4094 (1998)
69. Last I, Jortner J *Phys. Rev. A* **60** 2215 (1999)
70. Last I, Jortner J *Phys. Rev. A* **62** 013201 (2000)
71. Ishikawa K, Blenski T *Phys. Rev. A* **62** 063204 (2000)
72. Toma E S, Muller H G *Phys. Rev. A* **66** 013204 (2002)
73. Siedschlag Ch, Rost J M *Phys. Rev. Lett.* **89** 173401 (2002)
74. Siedschlag Ch, Rost J-M *Phys. Rev. Lett.* **93** 043402 (2004)
75. Saalman U, Rost J-M *Phys. Rev. Lett.* **91** 223401 (2003)
76. Jurek Z, Faigel G, Tegze M *Eur. Phys. J. D* **29** 217 (2004)
77. Jungreuthmayer C et al *J. Phys. B* **38** 3029 (2005)
78. Saalman U *J. Mod. Opt.* **53** 173 (2006)
79. Saalman U, Rost J M *Eur. Phys. J. D* **36** 159 (2005)
80. Jungreuthmayer C et al. *Phys. Rev. Lett.* **92** 133401 (2004)
81. Deiss C, Rohringer N, Burgdörfer J *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. B* **235** 210 (2005)
82. Fomichev S V et al. *J. Phys. B* **36** 3817 (2003)
83. Fomichev S V et al. *Phys. Rev. A* **71** 013201 (2005)
84. Popruzenko S V, Zaretsky D F, Becker W J *J. Phys. B* **39** 4933 (2006)
85. Taguchi T, Antonsen T M (Jr.), Milchberg H M *Phys. Rev. Lett.* **92** 205003 (2004)
86. Костюков И Ю *Письма в ЖЭТФ* **73** 438 (2001) [Kostyukov I Yu *JETP Lett.* **73** 393 (2001)]
87. Jungreuthmayer C et al. *J. Phys. B* **38** 3029 (2005)
88. Ramunno L, Jungreuthmayer C, Brabec T *Laser Phys.* **17** 618 (2007)
89. Last I, Jortner J J. *Phys. Chem. A* **102** 9655 (1998)
90. Krainov V P *J. Phys. B* **33** 1585 (2000)
91. Rose-Petruck C et al. *Phys. Rev. A* **55** 1182 (1997)
92. Neumann W *The Mechanism of the Thermoemitting Arc Cathode* (Berlin: Akademie-Verlag, 1987)
93. Hoyaux M F *Arch. Phys.* (New York: Springer-Verlag, 1968)
94. Костюков И Ю *ЖЭТФ* **127** 1026 (2005) [Kostyukov I Yu *JETP* **100** 903 (2005)]
95. "A VUV free electron laser at the TESLA Test Facility at DESY", Conceptual Design Report, DESY, TESLA-FEL 95-03 (1995)
96. Brinkmann R et al. (Eds), DESY Report 1997-048 (1997)
97. Brinkmann R et al. (Eds), TESLA XFEL: First stage of the X-ray laser laboratory", Technical Design Report, DESY-2002-167 (2002)
98. Madey J M J *J. Appl. Phys.* **42** 1906 (1971)
99. Kondratenko A M, Saldin E L *Part. Accel.* **10** 207 (1980)
100. Derbenev Ya S, Kondratenko A M, Saldin E L *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res.* **193** 415 (1982)
101. Kim K-J *Phys. Rev. Lett.* **57** 1871 (1986)
102. Krinsky S, Yu L H *Phys. Rev. A* **35** 3406 (1987)
103. Saldin E L, Schneidmiller E A, Yurkov M V *The Physics of Free Electron Lasers* (Berlin: Springer, 2000)
104. Dattoli G, Renieri A *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. A* **507** 464 (2003)
105. Colson W B *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. A* **475** 397 (2001)
106. Sonntag B *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. A* **467** 8 (2001)
107. Couprine M E *C.R. Acad. Sci. IV* **1** 329 (2000)
108. Barletta W, Rizzuto C *Rev. Nuovo Cimento* **29** (6) 1 (2006)
109. Rossbach J (TESLA FEL Study Group) *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. A* **375** 269 (1996)
110. Ayvazyan V et al. *Phys. Rev. Lett.* **88** 104802 (2002)
111. Ayvazyan V et al. *Eur. Phys. J. D* **20** 149 (2002)
112. Wabnitz H et al. *Phys. Rev. Lett.* **94** 023001 (2005)
113. Juha L et al. *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. A* **507** 577 (2003)
114. Radcliffe P et al. *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. A* **583** 516 (2007)
115. Tschentscher Th *Chem. Phys.* **299** 271 (2004)
116. Rossbach J *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. A* **475** 13 (2001)
117. Krasilnikov M et al. "Optimizing the PITZ electron source for the VUV-FEL, in Proc. of EPAC 2004, Lucerne, Switzerland (2004) p. 360
118. Weise H "Superconducting RF structures — Test facilities and results", in Proc. of the 2003 Particle Accelerator Conf., Portland, Oregon Vol. 1 (Piscataway, NJ: IEEE, 2003) p. 673
119. Saldin E L, Schneidmiller E A, Yurkov M V "Expected properties of the radiation from VUV-FEL at DESY (femtosecond mode of operation)", in Proc. of the 2004 FEL Conf., p. 212
120. Pflüger J *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. A* **445** 366 (2000)
121. Saldin E L, Schneidmiller E A, Yurkov M V *Opt. Commun.* **148** 383 (1998)
122. Saldin E L, Schneidmiller E A, Yurkov M V *Opt. Commun.* **235** 415 (2004)
123. Saldin E L, Schneidmiller E A, Yurkov M V *Opt. Commun.* **281** 1179 (2008)
124. Wabnitz H et al. *Nature* **420** 482 (2002)
125. Lide D R (Ed.) *CRC Handbook of Chemistry and Physics* 74th ed. (Boca Raton: CRC Press, 1993-1994)
126. Rusek M, Lagarde H, Blenski T *Phys. Rev. A* **63** 013203 (2000)
127. Brewczyk M, Rzaewski K *J. Phys. B* **32** L1 (1999)
128. Krainov V P, Roshchupkin A S *J. Phys. B* **34** L297 (2001)
129. Samson J A R *Phys. Lett.* **8** 107 (1964)
130. Schulz J et al. *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. A* **507** 572 (2003)
131. Augst S et al. *Phys. Rev. Lett.* **63** 2212 (1989)
132. Laarmann T et al. *Phys. Rev. Lett.* **92** 143401 (2004)
133. Laarmann T et al. *Phys. Rev. Lett.* **95** 063402 (2005)
134. de Castro A R B et al. *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.* **144–147** 3 (2005)
135. Shao Y L et al. *Phys. Rev. Lett.* **77** 3343 (1996)
136. Buck U, Krohne R *J. Chem. Phys.* **105** 5408 (1996)
137. Santra R, Green C H *Phys. Rev. Lett.* **91** 233401 (2003)
138. Bauer D J. *Phys. B* **37** 3085 (2004)
139. Andersen J U, Bonderup E, Hansen K *J. Phys. B* **35** R1 (2002)
140. Riffe D M et al. *J. Opt. Soc. Am. B* **10** 1424 (1993)
141. de Castro A R B et al. *Int. J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.* **156** 25 (2007)
142. Wörmer J et al. *J. Chem. Phys.* **104** 8269 (1996)
143. Brantov A et al. *Phys. Plasmas* **10** 3385 (2003)
144. Pfalzner S, Gibbon P *Phys. Rev. E* **57** 4698 (1998)
145. Амусья М Я *Атомный фотоэффект* (М.: Наука, 1987) [Amusia M Ya *Atomic Photoeffect* (New York: Plenum Press, 1990)]
146. Becker U, Shirley D A (Eds) *VUV and Soft X-Ray Photoionization* (New York: Plenum Press, 1996)
147. Miyamoto N et al. *Phys. Rev. Lett.* **93** 083903 (2004)
148. Nabekawa Y et al. *Phys. Rev. Lett.* **94** 043001 (2005)
149. Hasegawa H et al. *Phys. Rev. A* **71** 023407 (2005)
150. Batani D et al. (Eds) *Atoms, Solids, and Plasmas in Super-Intense Laser Fields* (New York: Kluwer Acad./Plenum Publ., 2001)
151. Luk T S et al. *Phys. Rev. Lett.* **51** 110 (1983)
152. Perry M D et al. *Phys. Rev. Lett.* **60** 1270 (1988)
153. Santra R, Greene H *Phys. Rev. A* **70** 053401 (2004)
154. Ackermann W et al. *Nature Photon.* **1** 336 (2007)
155. Yamakawa K et al. *Phys. Rev. Lett.* **92** 123001 (2004)
156. Ferencz I E, Tóth Cs, Young J F J. *Vacuum Sci. Technol. B* **15** 828 (1997)
157. Wellhöfer M et al. *J. Instrum.* **3** 02003 (2008)
158. Meyer M et al. *Phys. Rev. A* **74** 011401(R) (2006)
159. Redcliffe P et al. *Appl. Phys. Lett.* **90** 131108 (2007)
160. Glover T E et al. *Phys. Rev. Lett.* **76** 2468 (1996)
161. Toma E S et al. *Phys. Rev. A* **62** 061801(R) (2000)
162. Arthur J et al. (LCLS Design Study Group, Report SLAC-R-521 (1998); LCLS Conceptual Design Report for the LCLS Project of the US Department of Energy, SLAC-R-593, UC-414 (2002)
163. Johnson E "DUV-FEL Current Status and Plans", in *TJNAF LPC Workshop, January 2001*
164. Doyuran A et al. *Phys. Rev. Lett.* **86** 5902 (2001)
165. "The TESLA Test Facility FEL Team: SASE FEL at the TESLA Facility, Phase 2", DESY Report TESLA-FEL 2002-01 (2002)
166. Treusch R, Feldhaus J *Eur. Phys. J. D* **26** 119 (2003)
167. Richter M et al. *Appl. Phys. Lett.* **83** 2970 (2003)
168. Dohlus M et al. *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. A* **530** 217 (2004)
169. Abo-Bakr M et al. *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. A* **483** 470 (2002)
170. Meseck A et al. *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. A* **528** 577 (2004)
171. Jaeschke E *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. A* **543** 85 (2005)
172. Shintake T et al. "Status of SCSS: SPring-8 Compact SASE Source Project", in *EPAC 2002: 8th European Particle Accelerator Conf., Paris, 3–7 June 2002*

173. Yamada K et al. *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. A* **528** 268 (2004)
174. Hosaka M et al. *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. A* **528** 291 (2004)
175. Hama H et al. *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. A* **528** 571 (2004)
176. Bocchetta C J et al. *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. A* **507** 484 (2003)
177. Renieri A *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. A* **507** 507 (2003)
178. Alesini D et al. *Laser Part. Beams* **22** 341 (2004)
179. Couprie M E et al. *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. A* **528** 557 (2004)
180. Poole M W, Mc Neil B W J *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. A* **507** 489 (2003)
181. Choi J et al. *J. Korean Phys. Soc.* **50** 1372 (2007)
182. Saalman U, Rost J-M *Phys. Rev. Lett.* **89** 143401 (2002)
183. Kochur A G et al. *J. Phys. B* **28** 387 (1995)

Cluster spectroscopy using high-intensity pulses from vacuum UV free electron lasers

G.N. Makarov

Institute of Spectroscopy, Russian Academy of Sciences,

142190 Troitsk, Moscow region, Russian Federation

Tel. (7-496) 751-02 32

Fax (7-496) 751-08 86

E-mail: gmakarov@isan.troitsk.ru

Free electron lasers (FELs), recently developed sources for producing intense femtosecond pulses of vacuum ultraviolet (VUV) radiation, offer new ways of studying the interaction of radiation with matter. In this paper, a first series of experiments on the laser excitation of atomic cluster beams are reviewed, which showed that intense VUV pulses interact with clusters very differently than their optical or near infrared (IR) counterparts do. First experimental results on cluster beam spectroscopy performed with VUV FEL pulses are examined. FEL operation principles and performance parameters are briefly discussed. How intense ultrashort IR and VUV pulses excite clusters is analyzed, interaction parameters between radiation and clusters are discussed, and the formation and heating mechanisms of cluster plasma are explored. What is similar and fundamentally different between the ways IR and VUV radiations excite clusters is pointed out. Other applications of VUV and soft X-ray FEL radiation are reviewed as well.

PACS numbers: **32.80.-t**, **36.40.-c**, 41.60.Cr, 42.55.Vc, 42.62.Fi, **52.50.-b**, 82.50.Hp

DOI: 10.3367/UFNr.0179.200905b.0487

Bibliography — 183 references

Received 16 May 2008, revised 18 July 2008

Uspekhi Fizicheskikh Nauk **179** (5) 487–516 (2009)

Physics – Uspekhi **52** (5) (2009)