

## 飞秒强激光场中氢原子团簇的各向异性膨胀\*

张春艳<sup>1)2)</sup> 赵清<sup>1)</sup> 傅立斌<sup>2)</sup> 刘杰<sup>2)†</sup>

1) (北京理工大学理学院物理系, 北京 100081)

2) (北京应用物理与计算数学研究所, 北京 100088)

(2011年10月11日收到; 2011年11月30日收到修改稿)

利用 LAMMPS 程序研究了氢原子团簇在飞秒强激光场下的动力学行为, 讨论了引起小氢原子团簇各向异性膨胀的原因. 通过对外电离过程中团簇内部电子的行为以及团簇各个方向上最外层质子距离团簇中心的距离随时间的变化情况的分析, 发现团簇的膨胀呈现各向异性, 且引起这种各向异性的根源在于团簇内部电子的抖动以及逃逸. 对氢原子团簇与强激光场相互作用过程中质子各能量分量以及各向异性程度随时间变化情况进行了研究, 发现各向异性程度是随时间变化的, 这种各向异性程度首先随着激光电场的增强而增加, 随后又逐渐减小, 直到最后趋于某一大于 1 的稳定值. 分析了激光脉冲结束后质子的平均能量与观测角之间的关系, 并将分析结果与 Ditmire 小组的实验结果进行了比较, 发现我们的模拟结果在定性上与实验相符合.

**关键词:** 飞秒强激光场, 氢原子团簇, 分子动力学模拟

**PACS:** 36.40.-c, 52.50.Jm

## 1 引言

随着激光技术的发展, 激光强度已突破拍瓦量级, 其与物质的相互作用一直是很多研究小组研究的对象<sup>[1-4]</sup>. 团簇作为介于原子分子与固体间的一种中间物质结构层次, 在强激光场的辐照下表现出了不同于气体与固体的特性: 高激光能量吸收率<sup>[1,5,6]</sup>、产生高能高电荷态离子<sup>[2,7,8]</sup>、辐射强 X 射线<sup>[1,9,10]</sup>、产生高次谐波<sup>[11,12]</sup> 以及引发核聚变<sup>[13,14]</sup> 等. 正因如此, 强激光场与团簇的相互作用倍受研究者们的关注. 然而, 大多数的研究主要集中于考察高能离子<sup>[15]</sup>、高电荷态离子<sup>[16-18]</sup> 以及强 X 射线<sup>[19-21]</sup> 的产生机制, 离子能量在各个方向上的分布情况并没有引起太多人的注意. 直到 2001 年, Kumarap-pan 等<sup>[22]</sup> 在研究强激光场与 Ar 团簇相互作用时才发现离子能量分布在空间各个方向上是不对称的. 他们利用强度为  $8 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$  的

激光照射包含  $2 \times 10^3$ — $4 \times 10^4$  个 Ar 原子的团簇, 观察到了离子能量在空间上存在低能对称和高能不对称性, 高能离子沿激光场极化方向喷射出. 随后他们在研究中等强度 ( $I \approx 10^{16} \text{ W/cm}^2$ ) 激光场与  $\text{N}_2$ , Xe 等团簇相互作用时也观察到了相同的现象<sup>[23-25]</sup>. 对于多电子原子或分子团簇的各向异性的产生, 人们指出了两种不同的机制. 一种解释指出, 团簇离子能量分布的各向异性是由团簇的极化场引起的<sup>[23]</sup>. 团簇在激光场的作用下, 在激光场偏振方向产生了极化电荷, 在极化电荷产生的空间电场的作用下, 团簇内部的离子在激光偏振方向上获得额外净加速度. 另一种解释指出, 各向异性的产生是由团簇空间电场分布不均造成的<sup>[25-27]</sup>. 激光场能够引起团簇内部的自由电子在激光偏振方向上发生抖动, 在抖动过程中, 电子会偏向团簇的一极, 而与之相对的另一极会产生很强的空间电场, 在场致电离机制下产生更高价态的离子, 使得这一区域的离子所受的库仑斥力更大. 以上对各向异性

\* 国家重点基础研究发展计划 (批准号: 2007CB921500, 2011CB921500) 资助的课题.

† E-mail: liu.jie@iapcm.ac.cn

的解释都依赖于离子价态的空间分布,因而仅适用于多电子原子或分子团簇.

2007年 Ditmire 小组在研究强激光场下氢原子团簇的行为时,观察到氢原子团簇的膨胀同样存在各向异性<sup>[28]</sup>. 对于强激光场下氢原子团簇的膨胀呈现各向异性的原因,他们认为,电子云的抖动可能是导致各向异性膨胀的根源<sup>[29]</sup>. 文献<sup>[29]</sup>指出,如果产生各向异性则团簇与激光必须满足一定的条件:  $R_0 \geq d_0$  ( $d_0 = 3|e|F_0/m_e\omega_{p0}^2$ ), 其中  $R_0$  表示团簇的初始半径,  $d_0$  表示电子云的中心位置到团簇中心位置的距离,  $e$ ,  $m_e$  分别表示电子的电荷量和质量,  $F_0$  表示激光电场的振幅,  $\omega_{p0}$  表示等离子体频率. 然而在我们的模拟以及文献<sup>[28]</sup>中,当  $R_0 < d_0$  时,氢原子团簇的膨胀同样是各向异性的. 对于半径相对较小的单电子原子团簇——氢原子团簇,以上所提到的三种机制显然不能适用于解释其各向异性膨胀的原因. 因而寻求更为合理的机制来解释小氢原子团簇的各向异性膨胀显得尤为必要. 然而,自 Ditmire 小组的实验之后,还没有专门对小氢原子团簇的各向异性膨胀展开细致深入的研究,没有对这种现象给出令人信服的解释. 本文就是以此为契机,展开对小氢原子团簇各向异性膨胀的研究.

关于强激光场下团簇的膨胀机理,人们通常采用以下两种简化模型进行描述: 1) 纯库仑爆炸模型<sup>[3,30]</sup>, 即当激光强度足够高时,团簇能够发生陡直电离,团簇内部的离子由于受到库仑力的作用而发生各向同性膨胀; 2) 流体力学模型<sup>[4,31]</sup>, 当团簇尺寸较大,而激光强度相对较弱时,大部分自由电子会滞留于团簇内部,团簇可看作是准中性的等离子体微球,在电子热效应作用下等离子体微球经历各向同性的流体力学膨胀. 然而在大多数情况下,电子既不会被瞬间剥离,又不会永久滞留于团簇内部. 在这种情况下团簇内部空间电场的分布并不是各向同性的,无法再利用库仑爆炸模型或者流体力学模型进行解释. 因而我们采用更为精准的分子动力学模型来研究强激光场下氢原子团簇爆炸的物理过程.

本文采用分子动力学模拟方法研究了强激光场下氢原子团簇的动力学行为. 通过观察强激光场与团簇相互作用过程中团簇的构象图以及团簇中电子的动力学行,解释了氢原子团簇各向异性膨胀

的原因; 研究了强激光场与氢原子团簇相互作用过程中团簇内质子各能量分量随时间变化的情况以及团簇膨胀各向异性程度随时间的变化情况,并且将计算结果与实验结果<sup>[28]</sup>做了对比.

## 2 强激光场与氢原子团簇相互作用的分子动力学模型

在考虑强激光场与氢原子团簇相互作用时,我们做了如下近似,即团簇内部原子在发生电离以前,电子为束缚电子,团簇内部原子呈电中性,不受激光场的作用,而当激光脉冲达到一定强度时,氢原子团簇即刻发生内电离,此后团簇内部的质子与自由电子均被当做是经典粒子,满足经典牛顿运动方程:

$$\frac{d\vec{p}_i}{dt} = q_i e \vec{F}(t) - \sum_{j \neq i} \nabla \Phi_{ij}, \quad (1)$$

其中  $p_i$ ,  $q_i$  分别表示粒子的动量和价态,  $e$  表示电子电量,  $F$  表示激光电场强度,  $\Phi_{ij}$  表示粒子间相互作用势. 本文中粒子间相互作用势的形式为

$$\Phi_{ij} = \begin{cases} \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{q_i q_j}{r_{ij}}, & (2a) \\ \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{q_i q_j}{r_{ij}} + \frac{c}{r_{ij}^6}, & (2b) \end{cases}$$

其中 (2a) 式表示电子与电子、质子与质子间的相互作用势形式,式中  $\epsilon_0$  表示真空介电常数,  $r_{ij}$  表示发生相互作用的两粒子间的相对距离; (2b) 式表示电子与质子间的相互作用势形式,与 (2a) 式不同的是,在此,为了避免因电子与质子无限靠近而使相互作用势趋于无穷,我们引入了势能排斥项  $\frac{c}{r_{ij}^6}$ , 在计算氢原子团簇时我们取  $c = 0.1$ .

在模拟过程中我们采用沿  $Z$  轴方向偏振的高斯激光脉冲,其形式为

$$\vec{F}(t) = F_0 \exp \left[ -2.773 \left( \frac{t}{T} \right)^2 \right] \sin(\omega t) \vec{e}_z, \quad (3)$$

其中  $F_0$ ,  $T$ ,  $\omega$  分别表示激光电场的振幅、半高宽以及振荡频率. 时间  $t$  可从  $-\infty$  取到  $\infty$ , 当  $t = 0$  时,激光强度取最大值. 但在本文中,我们所取的相互作用时间间隔是从团簇发生内电离时刻开始到激光电场强度下降到  $0.5 \text{ V/\AA}$  时刻终止.

由于在强激光场的作用下,原子的库仑势场会受到激光电场的抑制而形成势垒,随着激光强度的

增加, 势垒会越来越低直到被完全抑制, 这时电子可以自由地脱离原子核的束缚而电离, 这就是所谓的势垒压低电离 (barrier suppression ionization)<sup>[32]</sup>, 本文中我们所选择的激光强度足以将氢原子库仑势垒完全抑制, 因而在判断团簇是否发生内电离时, 我们选择势垒压低电离机制, 即团簇内部粒子要发生电离则必须满足:

$$2[eFB(k+1)]^{\frac{1}{2}} \geq U_b, \quad (4)$$

其中  $B = 14.385 \text{ eV/\AA}$ ,  $k$  表示离子价态,  $U_b$  表示电离能. 对于氢原子  $U_b = 13.6 \text{ eV}$ , 要使氢原子团簇发生内电离, 则  $F \geq 3.214 \text{ V/\AA}$ .

### 3 飞秒强激光场中氢原子团簇的各向异性膨胀

当氢原子团簇发生内电离后, 团簇内部的电子以及质子可以当做是经典带电粒子, 从而受到激光场的作用. 在激光场的作用下, 氢原子团簇逐步发生外电离, 同时团簇向各个方向膨胀. 由团簇的构象以及内部质子各能量分量随时间的变化情况, 可以比较清晰地看到氢原子团簇内部粒子的运动是各向异性的, 在激光偏振方向上呈现明显的优越性.

#### 3.1 团簇在激光场中的膨胀

我们采用所建立的模型模拟了强度  $I =$

$5 \times 10^{18} \text{ W/cm}^2$ 、脉宽  $T = 40 \text{ fs}$  的激光场下半径为  $20 \text{ \AA}$ 、密度为  $0.055 \text{ \AA}^{-3}$  的氢原子团簇的膨胀过程. 图 1 显示飞秒强激光场与氢原子团簇相互作用过程中, 从内电离发生时刻  $t = 0 \text{ fs}$  开始到  $t = 19 \text{ fs}$  的时间间隔内, 团簇的构象在  $xoz$  平面内的变化情况. 图中灰色圆点表示电子, 黑色圆点表示质子. 由图我们可以看到, 激光并没有在瞬间将电子完全剥离开, 而是经历了将近  $19 \text{ fs}$  的过程, 在这个过程中, 团簇内部的电子因为受到激光场的作用而沿激光场极化方向振荡, 每次振荡将会有一部分电子逃逸出团簇之外. 图 2, 图 3 分别表示团簇内部的电子数以及团簇内部电子的中心位置在  $z$  轴方向随时间的变化情况. 电子的逃逸会引起两个关联效应: 1) 电子振荡引起的空间电场的各向异性分布无法得到中和, 电子振荡过程中会被拉向团簇的一极, 使得氢原子团簇的另一极拥有更强的空间电场, 该区域的质子所受的库仑斥力更大, 且由图 2 我们可以看到, 在每一个激光振荡周期内团簇内部的电子数都在减少, 从而导致由电子振荡引起的质子极向加速度的平均值不为零; 2) 电子在每一次的振荡过程中, 将会有一部分电子逃逸出团簇之外, 在逃逸过程中电子会拉动团簇极端上的质子沿电子飞出方向运动, 从而使得该极的质子获得额外的极向加速度. 这两关联效应将会导致氢原子团簇的膨胀呈现各向异性. 由图 4, 我们可以比较直观地看到, 团簇在激光场极化方向上的膨

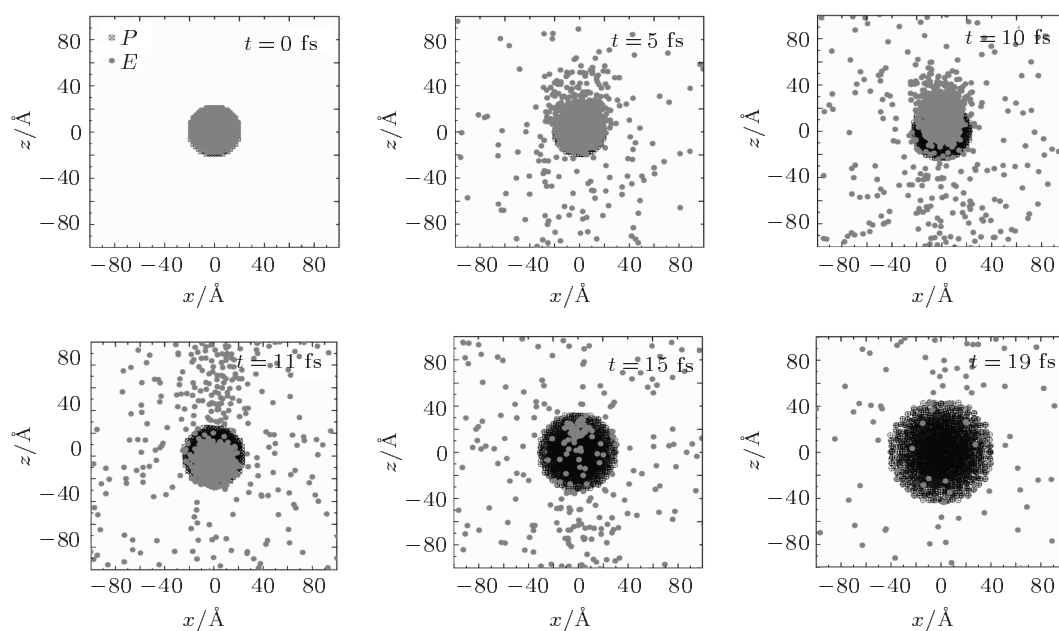


图 1 强激光场下团簇构象随时间的变化

胀速度要大于垂直于激光场极化方向上的膨胀速度.

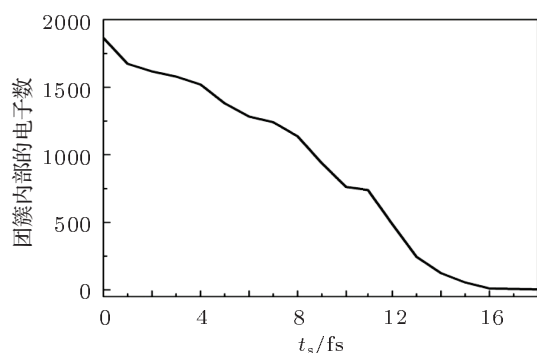


图2 外电离过程中团簇内部电子数随时间的变化

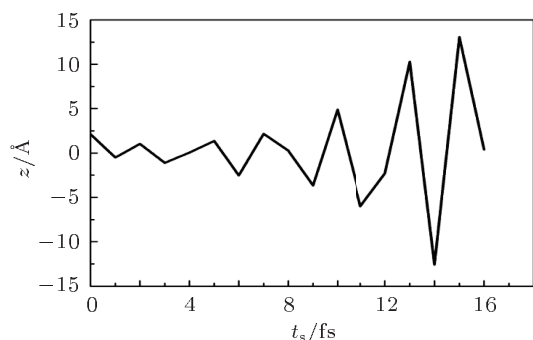


图3 团簇内部电子的中心位置在 z 轴方向随时间的变化

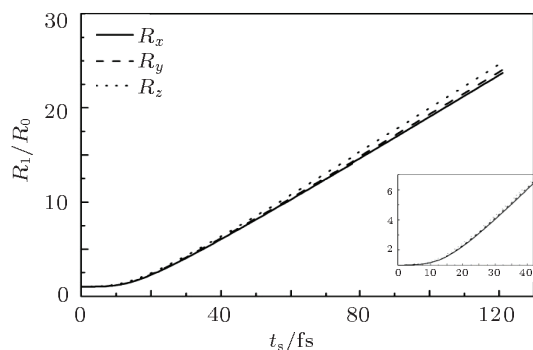


图4 团簇各方向上最外层质子与团簇中心的距离随时间的变化  $R_i$  分别表示  $R_x, R_y, R_z$ , 内插图是对外电发生时刻开始到外电发生 40 fs 这个过程放大的结果

### 3.2 质子能量的各向异性

在考察强激光场下氢原子团簇中质子能量随时间的变化情况时,我们将质子各能量分量 ( $E_x, E_y, E_z$ ) 分别进行了研究.图5显示了强激光场与团簇相互作用时,质子各能量分量随时间变化的情况.由图我们看到,团簇膨胀后质子能量的  $z$  分量

要明显大于  $x$  与  $y$  分量,由此说明质子的能量分布是呈各向异性的.

为了更加清晰地呈现质子能量分布的各向异性程度,我们引入  $\eta = E_z/E_x$  来表示质子能量分布的各向异性程度,图6即呈现了其随时间的变化情况.由图可以看到,随着时间的推移,质子能量分布的各向异性程度在内电离完成后的很短时间内达到某个峰值,然后开始迅速下降,并且在激光场较强的时候,这种各向异性程度会跟随激光场振荡,直到最后趋于某一大于1的稳定值.在内电离完成后  $t_s = 0$  fs 到  $t_s = 10$  fs 时间间隔内,团簇内部存在大量自由电子,这部分电子受激光电场的作用发生抖动,受3.1节所指出的电子逃逸关联效应的影响,使得质子能量在激光极化方向上的分量明显大于质子能量垂直于激光场极化方向上的分量.而在内电离发生后的  $t_s = 10$  fs 到  $t_s = 20$  fs 的时间间隔内,一方面由于质子在  $x$  轴方向上距离团簇中心的平均距离要小于  $z$  轴方向距离团簇中心的平均距离,使得质子所受库仑斥力的  $x, y$  分量的大小要大于  $z$  分量的大小.另一方面,由于团簇内部残留的电子数很少,电子逃逸引起的关联效应减弱.受上述两方面因素的影响,我们看到质子能量的各向异性程度有所下降.而在  $t_s > 20$  fs 时,由于电子已几乎被完全剥离,电子逃逸关联效应消失.但由图5和图6,我们发现在  $t_s = 20$  fs 到  $t_s = 90$  fs 时间间隔内质子能量的  $z$  分量以及各向异性程度出现了明显的振荡,这是由于在该时间段内,激光强度很强,能够引发质子沿激光场极化方向出现明显的振荡.

我们分析了激光脉冲结束后,空间两相互垂直

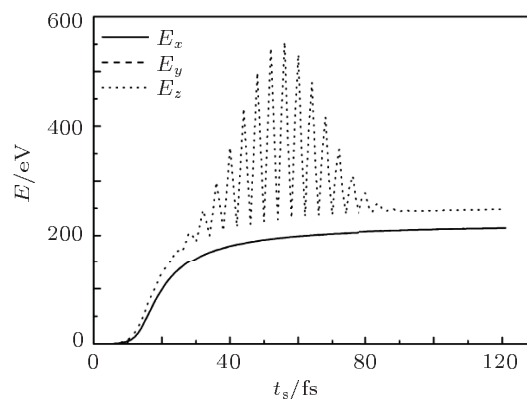


图5 质子各能量分量随时间的变化

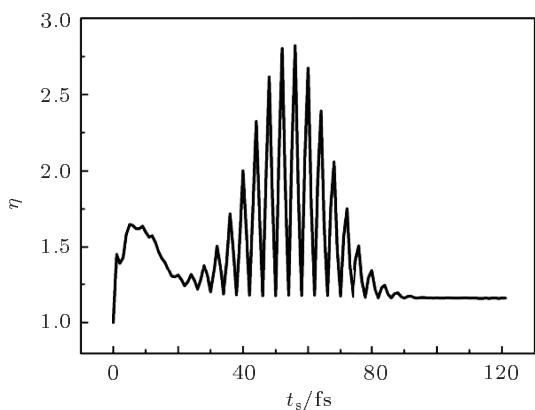


图6 质子能量各向异性程度随时间的变化

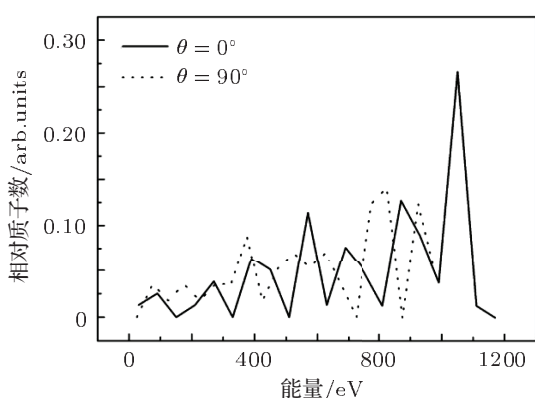


图7 激光脉冲结束后, 质子能量分布 (其中实线和虚线分别表示激光场激光方向上以及垂直于激光场极化方向上质子能量分布情况)

的立体角内质子的能量分布. 如图7所示, 其中 $0^\circ$  (实线) 与 $90^\circ$  (虚线) 分别表示以激光场极化方向以及垂直于激光场极化方向为轴线, 大小为 $30^\circ$ 的立体角内质子的能量的分布. 由图我们可以清晰地看到, 在激光场极化方向上, 有更多的质子集中分布在高能区, 该方向上质子的平均能量为 $760.55 \text{ eV}$ , 而在垂直于激光场极化方向的方向上, 质子的平均能量为 $611.38 \text{ eV}$ . 以 $\gamma = [E_{\text{av}}(0^\circ) - E_{\text{av}}(90^\circ)]/E_{\text{av}}$

( $0^\circ$ ) 表示质子能量的空间各向异性程度, 在本文的模拟中 $\gamma = 19.6\%$ , 而在文献[28]中 $\gamma \approx 40\%$ . 如图8所示, 我们分析了各观测方向上质子的平均能量, 发现我们的模拟结果与文献[28]在定性上相符合.

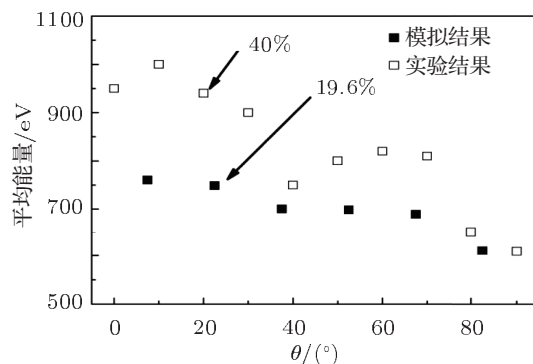


图8 激光脉冲结束后质子的平均能量与观测角的关系 (其中 $0^\circ$ 表示激光场极化方向, 图中黑色实心方块表示模拟结果, 而空心方块则表示文献[28]的结果)

## 4 结论

本文利用分子动力学模拟方法研究了飞秒激光场下氢原子团簇的动力学行为, 通过考察飞秒激光场中团簇的构象以及质子能量各分量随时间的变化情况, 我们发现团簇的膨胀呈现各向异性. 随后我们讨论了各向异性产生的原因, 认为电子逃逸引起的两关联效应是导致团簇各向异性膨胀的根源. 最后我们将模拟的结果与文献[28]的实验结果进行了比较, 发现我们的模拟结果在定性上与实验相符合.

感谢北京应用物理与计算数学研究所副研究员龙瑶在学习 LAMMPS 程序上给予的帮助.

[1] Ditmire T, Smith R A, Tisch J W G, Hutchinson M H R 1997 *Phys. Rev. Lett.* **78** 3121  
 [2] Ditmire T, Donnelly T, Rubenchik A M, Falcone R W, Perry M D 1996 *Phys. Rev. A* **53** 3379  
 [3] Chen L M, Zhang J, Liang T J, Li Y T, Wang L, Jang W M 2000 *Acta Phys. Sin.* **49** 529 (in Chinese) [陈黎明, 张杰, 梁天骄, 李玉同, 王龙, 江文勉 2000 物理学报 **49** 529]  
 [4] Xin G G, Ye D F, Zhao Q, Liu J 2011 *Acta Phys. Sin.* **60** 094204

(in Chinese) [辛国国, 叶地发, 赵清, 刘杰 2011 物理学报 **60** 094204]  
 [5] Taguchi T M, Antonsen Jr T 2004 *Phys. Rev. Lett.* **92** 205003  
 [6] Li H Y, Liu J S, Wang C, Ni G Q, Li R X, Xu Z Z 2006 *Phys. Rev. A* **74** 023201  
 [7] Ditmire T, Tisch J W G, Sprimpring E, Mason M B, Hay N, Smith R A, Marangos J, Hutchinson M H R 1997 *Nature* **386** 54  
 [8] Last I, Jorthner J 1999 *Phys. Rev. A* **60** 2215

- [9] McPherson A, Luk T S, Thompson B D, Borisov A B, Shiryayev B, Chen X, Boyer K, Rhodes C K 1994 *Phys. Rev. Lett.* **72** 1810
- [10] McPerson A, Thompson B D, Bofisov A B, Boyer K, Rhodes K 2001 *Nature* **370** 631
- [11] Krause J L, Schafer K J, Kulander K C 1992 *Phys. Rev. Lett.* **68** 3535
- [12] Velotta R, Hay N, Mason M B, Castillejo M, Marangos J P 2001 *Phys. Rev. Lett.* **87** 183901
- [13] Ditmire T, Gtisch J W, Yanovsky V P, Cowan T E, Hays G, Wharton K B 1999 *Nature* **398** 489
- [14] Last I, Jorthner J 2002 *J. Phys. Chem. A* **6** 10877
- [15] Mendham K J, Hay N, Mason M B, Tisch J W G, Marangos J P 2001 *Phys. Rev. A* **64** 055201
- [16] Dammasch M, Dörr M, Eichmann U, Lenz E, Sandner W 2001 *Phys. Rev. A* **64** 061402
- [17] Li H Y, Liu J S 2010 *Acta Phys. Sin.* **59** 7850 (in Chinese) [李红玉, 刘建胜 2010 物理学报 **59** 7850]
- [18] Lebeault M A, Viallon J, Chevalerey J, Ellert C, Normand D, Schmidt M, Sublemontier O, Guet C, Huber B 2002 *Eur. Phys. J. D* **20** 233
- [19] Vozzi C, Nisoli M, Caumes J P, Sansone G, Stagira S, De-Silvestri S, Vecchiocattivi M, Bassi D, Pascolini M, Poletto L, Villoresi P, Tondello G 2005 *Appl. Phys. Lett.* **86** 111121
- [20] Issac R C, Vieux G, Ersfeld B, Brunetti E, Jamison S P, Gallacher J, Clark D, Jaroszynski D A 2004 *Phys. Plasmas* **11** 3491
- [21] Rozet J P, Cornille M, Dobosz S, Dubau J, Gauthier J C, Jacquemot S, Lamour E, Lezius M, Normand D, Schmidt M, Vernhet D 2001 *Phys. Scr.* **T92** 113
- [22] Kumarappan V, Krishnamurthy M 2001 *Phys. Rev. Lett.* **87** 085005
- [23] Kumarappan V, Krishnamurthy M, Mathur D 2002 *Phys. Rev. A* **66** 033203
- [24] Krishnamurthy M, Mathur D, Kumarappan V 2004 *Phys. Rev. A* **69** 033202
- [25] Hirokane M, Shimizu S, Hashida M, Okada S, Okihara S, Sato F, Iida T, Sakabe S 2004 *Phys. Rev. A* **69** 063201
- [26] Fennel T, Bertsch G F, Meiwes-Broer K H 2004 *Eur. Phys. J. D* **29** 367
- [27] Jungreuthmayer C, Geissler M, Zanghellini J, Brabec T 2004 *Phys. Rev. Lett.* **92** 133401
- [28] Symes D R, Hohenberger M, Henig A, Ditmire T 2007 *Phys. Rev. Lett.* **98** 123401
- [29] Breizman B N, Arefiev A V, Fomyts'kyi M V 2005 *Phys. Plasmas* **12** 056706
- [30] Sakabe S, Shimizu S, Hashida M, Sato F, Tsuyukushi T, Nishihara K, Okihara S, Kagawa T 2004 *Phys. Rev. A* **69** 023203-1
- [31] Milchberg H M, McNaught S J, Parra E 2001 *Phys. Rev. E* **64** 056402
- [32] Augst S, Meyerhofer D D, Strickland D, Chint S L 1991 *J. Opt. Soc. Am. B* **8** 858

# Anisotropic explosions of hydrogen clusters in intense femtosecond laser field\*

Zhang Chun-Yan<sup>1)2)</sup> Zhao Qing<sup>1)</sup> Fu Li-Bin<sup>2)</sup> Liu Jie<sup>2)†</sup>

1) (*Department of Physics School of Science, Beijing Institute of Technology, Beijing 100081, China*)

2) (*Institute of Applied Physics and Computational Mathematics, Beijing 100088, China*)

(Received 11 October 2011; revised manuscript received 30 November 2011)

## Abstract

In this paper, a simulation discussing the cause inducing the anisotropy of hydrogen cluster expansion is implemented by using LAMMPS tool for the molecule dynamics simulations. Through analyzing the behavior of electrons contained in the cluster and the variations of distance between outermost protons of all directions and cluster center with time, we clearly find that the expansion of hydrogen cluster is anisotropic, which is due mainly to the anisotropies of the quiver and escaping of electrons. Then we study the evolutions of proton energy component and anisotropic degree, and find that the anisotropic degree first increases with laser electric field increasing, then decreases gradually to a stable value greater than one. Additionally, we analyze the relationship between observation angle and average proton energy from hydrogen cluster irradiated by ultrashort laser pulse, and find that our simulation results accord with the experimental results qualitatively.

**Keywords:** intense femtosecond laser field, hydrogen clusters, molecule dynamics simulations

**PACS:** 36.40.-c, 52.50.Jm

---

\* Project supported by the National Basic Research Program of China (Grant Nos. 2007CB921500, 2011CB921500).

† E-mail: liu\_jie@iapcm.ac.cn