

ПРОЦЕССЫ РЕКОМБИНАЦИИ В АТОМАРНЫХ КЛАСТЕРАХ ПРИ ОБЛУЧЕНИИ СВЕРХСИЛЬНЫМ ФЕМТОСЕКУНДНЫМ ЛАЗЕРНЫМ ИМПУЛЬСОМ

В. П. Крайнов, А. В. Софронов*

*Московский физико-технический институт
141700, Долгопрудный, Московская обл., Россия*

Поступила в редакцию 15 марта 2006 г.

Обсуждаются различные механизмы рекомбинации электронов с многозарядными атомарными ионами в атомарных кластерах, облучаемых сверхсильными фемтосекундными лазерными импульсами. Показано, что все рекомбинационные механизмы требуют времени, существенно превышающего длительность лазерного импульса, а потому они могут развиваться только в однородной достаточно разреженной кластерной плазме после окончания импульса. Найдено, что все автоионизационные состояния многозарядных ионов в плотной кластерной плазме разрушаются электрическим полем Хольцмарка.

PACS: 36.40.-c, 32.80.Rm

1. ВВЕДЕНИЕ

При воздействии на кластер релятивистских фемтосекундных импульсов с интенсивностью порядка 10^{18} Вт/см² и выше атомы в аргоновых, ксенонных и криптоновых кластерах ионизируются до зарядов высокой кратности Z [1]. Все процессы последовательной ионизации происходят на переднем фронте лазерного импульса, причем кластер не успевает расширяться: время удвоения радиуса кластера слабо зависит от его размеров и равно (в атомных единицах) [2]

$$t = 0.8 \sqrt{\frac{M_a}{ZN_a}}.$$

Здесь M_a — масса атома, N_a — концентрация атомов в кластере. Указанное время составляет около 200–300 фс, если имеет место интенсивная внешняя ионизация, т. е. большое количество электронов вылетает из кластера. Но это происходит только в кластерах с числом атомов порядка 1000 и менее. В кластерах с большим числом атомов основная часть свободных электронов остается внутри кластера, так что время удвоения радиуса кластера существенно увеличивается по сравнению с приведенной оценкой. Практически такой кластер не расши-

ряется на переднем фронте сверхсильного лазерного фемтосекундного импульса.

Лазерное поле сильно экранировано внутри кластера. Поэтому многократная ионизация атомарных ионов осуществляется не внешним лазерным полем, а ударами горячих электронов либо статическим кулоновским полем частично ионизованного кластера. При этом следует отметить, что область вблизи центра кластера представляет собой нейтральную плазму, куда устремляются оставшиеся электроны ионизованного кластера, притягиваемые силой положительного заряда. Эта область и экранирует внешнее лазерное поле. Положительный заряд заполняет поверхностную область кластера.

Что касается нагрева электронов, то здесь имеет несколько механизмов. Первый — это вынужденное обратное тормозное поглощение, при котором электроны, рассеиваясь на атомарных ионах, поглощают фотоны лазерного поля. В сверхсильных лазерных полях этот эффект достаточно слаб как за счет экранировки лазерного поля, так и за счет убывания сечения рассеяния с ростом энергии электрона. Электрон может также поглощать фотоны лазерного поля, рассеиваясь на квазистатическом электрическом поле ионизованного кластера. Этот механизм существен в кластерах [3], когда электрон вылетает в область докритической кластерной плазмы,

*E-mail: krainov@online.ru

где нет экранировки внешнего лазерного поля, а кулоновское поле ионизованного кластера еще достаточно велико. Близок к нему по подходу и вакуумный механизм нагрева Брюнеля [4, 5], при котором электрон вылетает из кластера с малой энергией и возвращается обратно в кластер с большой колебательной энергией во внешнем лазерном поле через полпериода.

Само понятие электронной температуры T_e в случае сверхсильного фемтосекундного лазерного импульса может отсутствовать. Действительно, характерное время между столкновениями электронов друг с другом равно (все величины берутся в атомных единицах)

$$\tau_{ee} = \frac{3T_e^{3/2}}{4\sqrt{2\pi} N_e \Lambda}.$$

Здесь определен кулоновский логарифм

$$\Lambda = \ln \left\{ 1.55 \cdot 10^{10} \frac{T_e^{3/2}}{\sqrt{N_e}} \right\},$$

причем, в отличие от предыдущей формулы, электронная температура T_e берется в эВ, а электронная концентрация N_e — в см^{-3} . Типичное значение кулоновского логарифма в указанных условиях составляет 5. Тогда при температуре электронов, равной 100 эВ, и значении $N_e = 2 \cdot 10^{23} \text{ см}^{-3}$ ($Z = 10$) получим, что среднее время между столкновениями составляет около 4 фс. В этих условиях можно говорить об установлении максвелловского распределения электронов в кластере даже на переднем фронте лазерного импульса. Но при температуре электронов, равной 1 кэВ, это время увеличивается до 100 фс, так что нельзя говорить о максвелловском распределении электронов на переднем фронте фемтосекундного лазерного импульса, и само понятие электронной температуры теряет смысл.

Средняя энергия кулоновского отталкивания электронов при указанной выше их концентрации составляет $U = e^2 N_e^{1/3} = 8$ эВ, так что нагретую электронную плазму заведомо можно считать идеальной.

Все указанные процессы имеют место на переднем фронте фемтосекундного лазерного импульса, когда кластер еще не успевает расшириться и плотность кластерной плазмы из электронов и многозарядных ионов остается твердотельной. При этом атомарные ионы остаются холодными. После прохождения максимума лазерного импульса кластер начинает существенно расширяться, и в момент, когда частота лазерного излучения становится равной

частоте Ми, происходит кратковременный резонансный нагрев электронной компоненты [6]. Расширение кластера происходит как из-за гидродинамического давления электронного газа внутри кластера, так и из-за кулоновского расширения ионизованного кластера. Внешняя ионизация кластера, при которой часть электронов вылетает из кластера, вычисляется в модели Бете. Динамика ионизации, рекомбинации и расширения существенно зависит от размеров кластера и от интенсивности и длительности фемтосекундного лазерного импульса.

В данной работе анализируется роль различных механизмов рекомбинации при облучении больших атомарных кластеров полем сверхсильного фемтосекундного лазерного импульса.

2. СТОЛКНОВИТЕЛЬНАЯ РЕКОМБИНАЦИЯ В КЛАСТЕРЕ

Столкновительная рекомбинация в сверхплотной кластерной плазме, при которой электрон, рассеиваясь на другом электроме внутри кластера, рекомбинирует с атомарным ионом, рассматривается сначала в начальной стадии нагрева свободных электронов кластера после ионизации. Коэффициент классической тройной рекомбинации равен [7]

$$\alpha = 5.4 \cdot 10^{-27} T_e^{-9/2}.$$

Значение коэффициента тройной рекомбинации дается в этой формуле в $\text{см}^6/\text{с}$, а электронная температура T_e — в эВ. При однократной ионизации кластера на переднем фронте лазерного импульса имеет место образование электронов и однократно заряженных ионов, а нейтральные атомы внутри кластера исчезают. При этом концентрация электронов и ионов имеет порядок величины $N_i = 2 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-3}$ (для кластеров из атомов инертных газов: Ag, Kr, Xe). Следовательно, характерное время столкновительной рекомбинации электрон–ион–электрон равно

$$\tau_e = \frac{1}{\alpha N_i^2} = 450 T_e^{9/2} \text{ фс}.$$

Даже при начальной температуре электронов, равной 2 эВ, получим, что время столкновительной рекомбинации превышает 10 пс, т. е. существенно больше времени действия лазерного импульса и времени характерного расширения кластера (менее 1 пс). Таким образом, можно сделать вывод, что тройная рекомбинация не влияет на начальную динамику взаимодействия фемтосекундных лазеров с атомарными кластерами, несмотря на твердотельную плотность вещества.

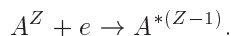
Время столкновительной рекомбинации при многократной ионизации атомов кластера уменьшается в Z раз:

$$\tau_c = \frac{450}{Z} T_e^{9/2} \text{ фс.}$$

Электронная температура в кластере при воздействии на кластер фемтосекундных импульсов интенсивностью порядка 10^{18} Вт/см² обычно превышает 100 эВ, так что указанное время столкновительной рекомбинации превышает 500 пс. Поэтому столкновительный механизм рекомбинации оказывается неэффективным как при однократной, так и при многократной внутренней ионизации атомов в большом атомарном кластере. Внешняя ионизация уменьшает число электронов в кластере и, соответственно, еще сильнее уменьшает роль рекомбинационных процессов. Как уже отмечалось во Введении, внешняя ионизация является значительной в кластерах с числом электронов менее 10^3 .

3. ДИЭЛЕКТРОННАЯ РЕКОМБИНАЦИЯ В КЛАСТЕРЕ

При диэлектронной рекомбинации на первом этапе электрон захватывается атомарным ионом с образованием возбужденного состояния нового атомарного иона с меньшей на единицу кратностью ионизации:



При этом столкновении возбуждается также один из электронов в ионе $A^{(Z-1)}$. Например, если электрон сталкивается с шестикратно заряженным ионом ксенона $\text{Xe}^{6+}(5s^2)$, то может образоваться пятикратно заряженный ион ксенона в дважды возбужденном состоянии $\text{Xe}^{5+}(5s^2 5p n'p)$ (конечно, возможны и многочисленные другие промежуточные состояния). Здесь $n' = 6, 7, \dots$ — главное квантовое число ридберговского состояния. Уровни энергии основных и возбужденных состояний многократно заряженных ионов ксенона приведены в работе [8]. При таком столкновении электрон иона Xe^{6+} возбуждается из состояния $5s$ в состояние $5p$ (переходы без изменения главного квантового числа вносят основной вклад в скорость диэлектронной рекомбинации из-за больших матричных элементов перехода [9]), а падающий электрон попадает в ридберговское состояние $n'p$ этого иона. Энергии полученных промежуточных состояний лежат выше потенциала ионизации атомарного иона Xe^{5+} (66.7 эВ), так что они являются автоионизационными. Далее возможны два

конкурирующих канала распада этого промежуточного состояния: 1) автоионизационный распад дважды возбужденного состояния с переходом одного электрона из состояния $5p$ в состояние $5s$ и выбрасыванием ридберговского электрона обратно в непрерывный спектр; в результате образуется основное состояние исходного иона $\text{Xe}^{6+}(5s^2)$; 2) радиационный канал, при котором захваченный электрон остается в атоме, а остов возвращается в основное состояние с испусканием спонтанного фотона и образованием конечного состояния $\text{Xe}^{5+}(5s^2 n'p)$. Этот последний канал и является диэлектронной рекомбинацией.

Возможен также канал прямого радиационного распада в основное состояние иона $\text{Xe}^{5+}(5s^2 5p)$, при котором налетающий электрон непосредственно попадает в состояние $5p$ с испусканием фотона, но он является маловероятным из-за малости константы спонтанного распада вследствие большого изменения главного квантового числа при свободно-связанном переходе. В случае диэлектронной рекомбинации эта малость отсутствует, так как налетающий электрон попадает в ридберговское состояние.

Коэффициент диэлектронной рекомбинации (см³/с) в предположении максвелловского распределения электронов записывается в виде [10]

$$\alpha_d = \frac{g_a}{2g_0} \left(\frac{2\pi\hbar^2}{mT_e} \right)^{3/2} \frac{w_a w_r}{w_a + w_r} \times \exp \left(-\frac{\hbar\omega}{T_e} + \frac{Z^2}{2n'^2 T_e} \right). \quad (1)$$

Здесь g_0 — статистический вес атомарного иона в начальном состоянии, g_a — статистический вес автоионизационного состояния (дважды возбужденного состояния выше порога ионизации), T_e — электронная температура, w_r — вероятность радиационного распада внутри ионного остова в единицу времени, w_a — вероятность распада автоионизационного состояния в единицу времени, Z — заряд ионного остова, ω — частота испускаемого фотона.

В работе [11] формула (1) использована для качественных оценок времени эмиссии фотона на примере аргонового кластера, состоящего из ионов с кратностью $Z = 8$ и электронов, нагретых до температуры 1 кэВ. Время эмиссии оказалось порядка 100 пс. Обратимся к более точным оценкам.

Оценим вероятность радиационного распада w_r в водородоподобном приближении. Прежде всего выразим ее через силу осциллятора $f(nl \rightarrow n(l-1))$ соответствующего перехода без изменения главного квантового числа:

$$w_r = \frac{2\omega^2}{c^3} f(nl \rightarrow n(l-1)).$$

Сила осциллятора может быть связана с дипольным радиальным матричным элементом перехода:

$$f(nl \rightarrow n(l-1)) = \frac{2l\omega}{3(2l+1)} \left(R_{nl}^{n(l-1)} \right)^2.$$

В водородоподобном приближении радиальный матричный элемент перехода равен [12]

$$R_{nl}^{n(l-1)} = -\frac{3}{2Z} n \sqrt{n^2 - l^2}.$$

Следовательно,

$$f(nl \rightarrow n(l-1)) = \frac{3l\omega n^2(n^2 - l^2)}{2(2l+1)Z^2}. \quad (2)$$

Для вероятности дипольного спонтанного перехода окончательно находим

$$w_r = \frac{3l\omega^3 n^2(n^2 - l^2)}{(2l+1)Z^2 c^3}. \quad (3)$$

Теперь обратимся к квазиклассической оценке вероятности автоионизационного распада, следуя работам [9, 13]:

$$w_a = \frac{2Z^2 f(nl \rightarrow n(l-1))}{\sqrt{3}\omega n'^3} g\left(\frac{Z}{\sqrt{8\omega}}\right). \quad (4)$$

Здесь определен классический фактор Гаунта

$$g(x) = \frac{\pi\sqrt{3}}{4} ix H_{ix}^{(1)}(ix) H_{ix}^{(1)'}(ix),$$

$H_s^{(1)}(x)$ — функции Ганкеля первого рода. При этом энергия налетающего электрона была положена равной ω ввиду малости энергий ридберговских состояний [13]. В рассматриваемых условиях многократной ионизации $Z \gg 1$ аргумент фактора Гаунта обычно велик и значение фактора близко к единице. Подставляя (2) в (4), окончательно находим простое выражение для вероятности автоионизационного распада в единицу времени (в атомных единицах):

$$w_a = \frac{\sqrt{3} n^2 l (n^2 - l^2)}{(2l+1) n'^3}. \quad (5)$$

Видно, что вероятность автоионизационного распада не зависит от Z и ω и быстро убывает с номером n' ридберговского состояния. Поэтому в численных расчетах достаточно ограничиться наименьшим значением n' . Как правило, $w_a > w_r$ из-за коэффициента c^3 в знаменателе выражения (3), значительно

превышающего коэффициент n'^3 в знаменателе выражения (5).

Весьма важный факт состоит в том, что следует контролировать, чтобы это ридберговское состояние не переходило в непрерывный спектр из-за наличия поля Хольцмарка [7] соседних многозарядных ионов в плотной кластерной плазме. Согласно работе [13] максимальное главное квантовое число дискретного ридберговского уровня определяется соотношением

$$n_{max} = (5.23 \cdot 10^{14} Z^2 / N_i^{2/3})^{1/4}.$$

Здесь концентрацию N_i атомарных ионов в кластере следует подставлять в см^{-3} . В частности, для рассматриваемого выше примера ксенонового кластера с $Z = 6$ и $N_i = 2 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-3}$ находим $n_{max} = 2.2$. Это означает, что электрическое поле атомарных ионов в кластере уничтожает практически все ридберговские состояния, и поэтому автоионизационные состояния фактически отсутствуют. Даже при степени ионизации $Z = 26$ максимальное главное квантовое число возрастает всего лишь до значения, равного 4.5. Общее заключение состоит в том, что диэлектронной рекомбинации в кластерах до момента их существенного расширения нет и о ней можно говорить лишь в разреженной однородной плазме, в которую кластеры превращаются после окончания лазерного импульса.

4. ПРЯМАЯ ФОТОРЕКОМБИНАЦИЯ

При прямой радиационной рекомбинации электрон непосредственно переходит в основное состояние многозарядного иона с испусканием спонтанного фотона. Коэффициент фоторекомбинации можно оценить с помощью формулы Крамерса [14] (пренебрегая логарифмическим коэффициентом и считая, что температура электронов T_e порядка потенциала ионизации E_i рассматриваемого атомарного иона в кластере):

$$\alpha_r = \frac{16\sqrt{2}\pi}{3\sqrt{3}c^3} E_i \left(\frac{2E_i}{T_e} \right)^{3/2}.$$

Здесь использованы атомные единицы. Для рассмотренного выше примера ксенонового кластера с шестизарядными атомарными ионами ксенона ($E_i = 70$ эВ) и электронной температурой $T_e = 100$ эВ получим $\alpha_r = 10^{-5}$ ат. ед. Характерное время прямой фоторекомбинации равно $\tau_r = 1/N\alpha_r = 700$ пс. Итак, это время весьма велико по сравнению с длительностью фемтосекундного лазерного импульса.

В заключение можно сделать вывод о том, что все возможные процессы рекомбинации в плотной кластерной плазме, образующейся при облучении атомарных кластеров фемтосекундными лазерными импульсами, происходят через значительное время после окончания лазерного импульса. При этом имеет место интенсивная генерация рентгеновского излучения, рассмотренная в работе [15]. Как и в случае взаимодействия сверхсильного фемтосекундного импульса с твердотельными мишенями [16], рекомбинация многозарядных ионов обусловлена процессом перезарядки на нейтральных атомах остаточного инертного газа.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (гранты №№ 04-02-16499, 05-02-16383).

ЛИТЕРАТУРА

1. V. P. Krainov and M. B. Smirnov, *Phys. Rep.* **370**, 237 (2002).
2. J. Zweiback, R. A. Smith, T. E. Cowan et al., *Phys. Rev. Lett.* **84**, 2634 (2000).
3. Ch. Jungreuthmayer, M. Geissler, J. Zanghellini, and Th. Brabec, *Phys. Rev. Lett.* **92**, 133401 (2004).
4. F. Brunel, *Phys. Rev. Lett.* **59**, 52 (1987).
5. A. V. Getz and V. P. Krainov, *ЖЭТФ* **128**, 95 (2005).
6. T. Ditmire, T. Donnelly, A. M. Rubenchik et al., *Phys. Rev. A* **53**, 3379 (1996).
7. Л. А. Вайнштейн, И. И. Соболевман, Е. А. Юков, *Возбуждение атомов и уширение спектральных линий*, Наука, Москва (1979).
8. E. B. Saloman, *J. Phys. Chem. Ref. Data* **33**, 765 (2004).
9. Л. А. Буреева, В. С. Лисица, *Возмущенный атом*, ИздАТ, Москва (1997).
10. L. M. Biberman, V. S. Vorobjov, and I. T. Jakubov, *Kinetics of Low Temperature Non-Equilibrium Plasma*, Plenum, New York (1987).
11. M. B. Smirnov and W. Becker, *Phys. Rev. A* **69**, 013201 (2004).
12. В. Б. Берестецкий, Е. М. Лифшиц, Л. П. Питаевский, *Квантовая электродинамика*, Наука, Москва (1989).
13. L. A. Bureeva, T. Kato, V. S. Lisitsa, and C. Namba, *Phys. Rev. A* **65**, 032702 (2002).
14. В. П. Крайнов, Б. М. Смирнов, *Излучательные процессы в атомной физике*, Высшая школа, Москва (1983).
15. W. Brunner and H.-H. Ritze, *Appl. Phys. B* **67**, 47 (1998).
16. V. M. Gordienko, I. M. Lachko, A. A. Rusanov et al., *Appl. Phys. B* **80**, 733 (2005).