低温高背压氘团簇源特性研究*

王 磊¹^(B) 吴玉迟²^(B) 王红斌³ 刘红杰³ 葛芳芳³^(A) 陈家斌³
郑志坚³ 谷渝秋³ 史叔廷¹ 罗小兵¹^(F) 杨朝文²
1) 四川大学原子核科学技术研究所,成都 610064)
2) 四川大学物理科学与技术学院,成都 610064)
3) 中国工程物理研究院激光聚变研究中心,绵阳 621900)
4) 同济大学材料科学与工程学院,上海 200092)
(2007年3月3日收到 2007年5月8日收到修改稿)

为了产生大尺度氘团簇用于与强激光相互作用研究,研制了低温高背压团簇源.利用瑞利散射法对团簇尺度 与气体背压相关性和团簇的形成演变过程进行了研究.得到团簇尺度 N_e 随背压的指数变化关系为 $N_e \propto P_0^{2.89}$,当 气体温度为 80 K,背压 P_0 为 48 × 10⁵ Pa 时,氘团簇尺度 $N_e \approx 2630$,并得到了团簇尺度随时间变化的特性曲线.这些 结果对分析激光与团簇相互作用过程,优化激光打团簇靶时间有重要意义.

关键词: 氘团簇, 团簇源, 瑞利散射, 激光与团簇相互作用 PACC: 3640, 5250J, 5240M

1.引 言

团簇研究已经有几十年的历史,由于团簇为分 子动力学和低温凝聚效应研究提供了强有力的技术 手段,一直以来都是人们非常感兴趣的课题,近年 来 随着啁啾脉冲放大技术的发展 脉冲激光的峰值 功率已经达到 10¹⁵ W/cm² 以上^[12].当作用物质由单 体分子变为团簇时,强激光与物质相互作用会产生 一系列奇特的现象,如有很高的激光吸收效率、产生 的等离子体具有高得多的温度且包含更多高电荷态 及更高能量的离子等 这引起了人们的极大兴趣.实 验上已观察到能量达 10^3 eV 的电子、能量达 10^6 eV 的离子以及能量在 10^3 eV 量级的 X 射线辐射^[13,4], 并在强激光辐照氘团簇实验中测量到了一定产额中 子[4],对这些现象进行深入研究,有可能开发出具有 重要应用价值的无碎屑高能量转换效率软 X 射线 源、内壳层粒子数反转机制 x 射线激光及台式高效 中子源等。

强激光与团簇相互作用过程非常复杂,取决于 激光参数、团簇源的特性以及激光束在团簇介质中 的传输和聚焦状况等因素 团簇尺度、密度等因素对 分析激光与团簇相互作用过程有重要意义,用于相 互作用实验的团簇源一般采用超声绝热膨胀法制 备,形成团簇的尺度由气体初速度、压力、喷嘴的几 何形状以及气体原子间结合力等因素决定,是一个 复杂的流体动力学问题,至今还没有一种严格的理 论可以精确地定量描述团簇的形成机理,目前常用 Hagena 的经验公式^[56]来描述团簇尺度,但由于团簇 形成过程的极端复杂性 相似设计的阀门只要有一 些细微差别,其产生的团簇都可能存在巨大差异. Hagena 等^[56]的经验理论在定性分析团簇的形成过 程时有很好的指导作用,但在对特定团簇源进行定 量计算时却不够详尽准确,更准确可靠的方法是对 所用团簇源进行细致的实验研究 从而了解其特性. 本工作对用于与强激光相互作用实验的低温高背压 团簇源特性进行了研究,采用瑞利散射法测量氘团 簇尺度 得到了团簇尺度与背压的关系 测定了团簇 尺度随时间变化的特性曲线 ,分析了影响团簇尺度 的相关因素,这些结果对分析激光与团簇相互作用 过程 优化激光打团簇靶时间具有重要意义 同时也 加深了对团簇形成机制的认识.

^{*}国家自然科学基金重点项目(批准号:10535030)资助的课题.

[†] 通讯联系人. E-mail :luo811@mail.sc.cninfo.net

2. 团簇源系统

当超高压气体经超声喷嘴进入真空室时,由于 绝热膨胀,气体原子的平均动能转化为定向动能,使 气体温度急剧下降,从而使室温下相互作用微弱的 原子或分子冷却并凝聚成核形成团簇.这就是超声 绝热膨胀法的原理.Hagena 和 Ober^[6]对原子团簇的 产生过程进行了系统研究,发现气体喷流中团簇开 始形成以及团簇尺度变化可用一个经验参数来描述,习惯上称为 Hagena 参数,由下式给出:

$$\Gamma^* = k \frac{(d/\tan \alpha)^{0.85}}{T_0^{2.29}} P_0.$$
 (1)

这里 d 为喷嘴喉直径(单位为 mm); α 为喷流膨胀 半角,对于声速喷嘴 $\alpha = 45^{\circ}$,对于超声速喷嘴 $\alpha < 45^{\circ}$,对于锥型(conic)喷嘴 α 为喷嘴的半角; P_0 为气 体背压(单位为 10^2 Pa); T_0 为初始气体温度(单位为 K);k 为与键形成有关的常数 表 1 列出了一些气体 的 k 值^[6—9].

表1 不同气体的 k 值

气体	H_2	D_2	N_2	O ₂	CO_2	Ne	Ar	Kr	Xe
k	184	181	528	1400	3660	185	1650	2890	5500

通常 Γ 的临界值 $\Gamma^* > 100$ 不同 k 值的气体此 临界值略有不同 ,k 值较大的气体此临界值也相应 大一些)时 ,气体喷流的大部分聚集成团簇 . 假设单 体原子 100% 结合成团簇 ,团簇尺度 $N_c = \Gamma$ 的比例 关系为 $N_c \propto \Gamma^{*2.0-2.5}$,则团簇密度 $n_c = n_0/N_c$,其中 n_0 为单体原子密度 . 根据 Farges 等¹⁰³的实验结果 , Dobosz 等¹¹³拟合得出 ,当 50 < $N_c < 10^4$ 时 ,

$$N_{a} \approx 2.5 \times 10^{-4} \Gamma^{*1.95}$$
. (2)

一般情况下,原子序数 Z 大的气体(如氩气、氪 气、氙气)的参数 k 比较大,相对容易形成团簇;原 子序数 Z 小的气体(如氘气、氢气等)参数 k 比较 小,需要降低喷流的初始温度 T₀ 或者升高气体背 压 P₀ 才能形成团簇.由(1)(2)式可知,氘在常温 下难以形成大尺度团簇,必须采用低温系统制备大 尺度氘团簇.低温系统相对常温系统更为复杂:不仅 多了低温冷却部分,而且低温环境(-170℃左右) 对设备耐高压能力和机械性能要求更高.本实验设 计的低温高背压团簇制备系统主要有进气装置、冷 却装置、阀门、喷嘴和位置调整装置五部分组成.其 中最关键的是冷却装置、阀门和喷嘴,它们直接关系 到是否能正常产生团簇,冷却装置结构简单,冷却包 是一个中间被掏空的圆柱体,内部中空,由两根管子 与外部相连 冷却物质(本实验中采用液氮)由下端 的管子进入,从上端的管子溢出.系统温度控制非常 关键 本实验中采用热电阻温度计监测储气室温度 , 并参照气压计读数 :当外部未冷却气体进入储气室 时 温度下降,气压随之下降,根据 PV/T 为常数,当 气压计读数稳定时,说明气体已经达到液氮沸点温 度、冷却包中间被掏空的部分用来放置阀门、本实验 采用的阀门是中国科学院上海光学精密机械研究所 研制的电磁阀门,其横截面如图1所示,锥形 conic) 喷嘴在储气室的最前端,与阀门的接触面采用低温 下密封性能良好的铟密封,喷嘴进气端(即喷嘴喉) 直径为 0.5 mm 出气端直径为 2.7 mm 总长 21 mm 喷 嘴锥角为 3°. 冷却装置和电磁阀门等一起置于直径为 40 cm、高为 42 cm 的圆柱形真空靶室中。





3. 团簇特性测量实验系统

测量团簇尺度有电子衍射、电子碰撞、轻原子散 射、光散射以及质谱分析等方法.对于大尺度团簇, 要精确测量其尺度是非常困难的.瑞利散射法是光 散射法,其优点是实验易行,对于团簇是非破坏性 的,所以我们选用该方法测量团簇尺度.利用这种方 法,Bell 等^[7]测量了尺度在 150—4000 的氩团簇,他 们认为用瑞利散射法可测量的团簇尺度范围为^[7] $N_e = 150-2.4 \times 10^6$.假设观察到来自团簇喷流的光 散射信号强度超过本底水平时,团簇尺度为^[4,9] N_e ≈ 100 ;同时假设团簇密度与气体背压的关系已知,则可根据散射信号强度与背压的比例关系估计团簇 尺度. 3.1. 瑞利散射法测定团簇尺度原理

一般团簇的尺度小于可见光的波长,与探测光 相互作用发生的散射光属于瑞利散射范围内.假设 波长为λ的激光入射团簇束发生瑞利散射,其散射 光强度 *S*表示为

$$S = \beta I(\lambda) n_c \sigma V , \qquad (3)$$

式中的 $I(\lambda)$ 是入射光的强度 V 为散射体积 β 为测量效率 β 与探测系统的位置、光电倍增管的灵敏 度等因素有关 . 实验中涉及的大尺度团簇 N_e 在 10^3 量级 ,最小不低于 10^2 . 团簇几何结构研究的相关结 果表明 ,大团簇为多层二十面体或立方结构(cubic structre). 在团簇尺度很大的情况下 ,这两种结构与 球形的差别可以忽略 . 另外 ,瑞利散射要求散射体尺 度小于光波波长 ,实验中探针光波长为 532 nm ,团簇 的线度一般不大于 10 nm ,远远小于探针光波长 ,所 以我们可以假设团簇呈球体状 ,并不影响测量结果 . 团簇半径 R 正比于 $N_e^{1/3}$,散射截面 σ 和团簇半径 R的关系式可以表示为

$$\sigma = \frac{128\pi^5 R^6}{3\lambda^4} \left(\frac{i^2 - 1}{i^2 + 2}\right)$$
$$\propto \frac{128\pi^5 N_c^2}{3\lambda^4} \left(\frac{i^2 - 1}{i^2 + 2}\right) , \qquad (4)$$

式中 λ 为散射光波长, *i*为团簇介质的折射率.因此

$$S \propto \frac{N_{\rm c}^2}{\lambda^4} n_{\rm c} \,.$$

由于

$$n_{\rm c} = n_0/N_{\rm c}$$

进而可得

$$S \propto n_0 N_0$$

形成团簇前单体密度 n_0 与背压 P_0 成正比 : $n_0 \propto P_0$ 故

$$S \propto N_c P_0. \tag{5}$$

这里 *S* 为测得的散射信号强度.通过测量不同背压 下的散射信号强度 *S* ,选择合适背压下的散射信号 定标 ,可得团簇尺度的相对值 ,即

$$\frac{N_{\rm cl}}{N_{\rm c2}} \propto \frac{P_{\rm 01}}{P_{\rm 02}} \frac{S_1}{S_2}.$$
 (6)

理论上,由 Hagena 参数知 $N_c \propto P_0^{2-2.5}$,因此散射信 号强度与背压关系为

$$S \propto P_0^{3-3.5}$$
. (7)

3.2. 实验装置

瑞利散射法测量团簇尺度实验布局如图 2 所

示.该系统主要分为三个部分:光路调整部分,测量 部分,杂散光消除部分.探针光从激光器射出,经凸 透镜聚焦于喷嘴下方 2—3 mm 处的 0 点.探针光平 行于准直管入射进靶室,并且通过相对的光子陷阱. 探针光通过 0 ,A ,B 三点 ,A ,B 分别为准直管和光 子陷阱入口端截面圆心.准直管的前端放置一滤波 带通片,起减小杂散光的作用.采用 GDB-60 型光电 倍增管在与入射探针光垂直(与入射探针光呈 90°夹 角)方向收集散射光信号,光电倍增管的输出信号用 示波器来记录.



图 2 瑞利散射法实验布局

为了协调激光器和电磁阀门的工作时间,采用 了如图 3 所示的脉冲信号同步控制系统.该系统先 后发出两路脉冲信号,一路驱动电磁阀门开关喷射 气体;另一路直接触发激光器.改变激光器与阀门触 发信号的时间间隔,即相对延迟时间 △t,可获得团 簇整个形成演变过程的图景.





4. 测量结果及讨论

实验过程中持续加注液氮,使团簇源系统温度 维持在 80 K 左右.探针光为一束二倍频 Nd:YAG 激 光(波长为 532 nm),输出能量约为 10 mJ,脉冲宽度 约为 10 ns.探针光经透镜聚焦在离喷嘴中心下方 2—3 mm处(实验的测量点).真空靶室真空度约为 5 × 10^{-3} Pa,阀门驱动脉冲宽度 t = 1.234 ms.

4.1. 本底测量

本底是在气阀不喷气的情况下测量,光电倍增管或激光器的工作电压不同,本底也不同.当光电倍 增管和激光器的工作电压分别为1600和740V时, 由示波器测得本底读数约为450mV,多次测量结果 显示信号波动范围保持在400—500mV区间内.当 光电倍增管和激光器的工作电压分别为1400和 680V时,测得本底约为110mV,多次测量结果显示 信号波动范围保持在80—120mV区间内.

4.2. 团簇尺度随背景压强的变化关系

调节光电倍增管和激光器的工作电压分别为 1600 和 740 V,固定探测激光脉冲与电磁阀门开阀 触发信号之间的时间间隔,即相对延迟时间 $\Delta t =$ 10 ms 将气体背压由 50 × 10⁵ Pa 依次降低,测量瑞 利散射信号强度,得到散射信号强度 S 随背压 P_0 (12.8 × 10⁵—48.0 × 10⁵ Pa 的变化关系如图 4 所示.



图 4 散射信号强度随背压的变化关系

在不同的气体背压下, 氘团簇的尺度存在明显 差异.当背压 $P_0 = 13.7 \times 10^5$ Pa 时, 团簇的瑞利散射 信号强度开始超过本底, 达 660 mV, 表明氘团簇已 经形成. 拟合 $S 与 P_0$ 的关系, 得到氘团簇的散射信 号强度随背压 $P_0 \cong S \propto P_0^{3.89}$ 增强(理论值为 $S \propto P_0^{3.0-3.5}$), 如图 4 中平滑曲线所示. 当背压增大到 48 ×10⁵ Pa 时, 散射信号强度上升到 19.8 V. 本实验定 标采用 Ditmire 的假设^[12], 即假定散射信号强度超过 本底时团簇平均尺度为 $N_c = 100.$ 假设 $P_0 = 13.7 \times 10^5$ Pa 时 $N_c = 100.$ 依照(6)式计算并对实验数据进 行拟合,进一步推导团簇尺度与背压的关系为 $N_e \propto P_0^{2.8}$ (理论值 $N_e \propto P_0^{2.0-2.5}$),如图 5 所示.这基本符 合 Hagena 的经验公式 $N_e \propto \Gamma^{*2.0-2.5}$.由(6)式可得, 当气体温度约为 80 K,背压 $P_0 = 48 \times 10^5$ Pa 时,氘团 簇尺度 $N_e \approx 2630$.在我们将要进行的强激光与氘团 簇相互作用实验中,产生聚变中子是一大实验目标, 为使团簇库仑爆炸后产生的大多数氘核具有足以发 生氘-氘聚变核反应的动能,团簇的半径应达到 10 nm^[13-16],对应 $N_e \approx 10^4$.据本实验所得结果推算, 当气体温度为 80 K 时,背压必须升高到 75 × 10⁵ Pa 才能得到 10⁴ 量级的氘团簇;结合(2)式可得,在背 压为 50 × 10⁵ Pa 时,温度必须降低到 50 K 才能产生 10⁴ 量级的氘团簇.



图 5 团簇尺度随背压的变化关系

瑞利散射光强度为实验中直接测量到,与团簇 尺度直接相关,根据(6)式,由瑞利散射光强可得团 簇尺度.团簇尺度误差由定标信号 S_1 (对应 N_{c1} = 100)和实测信号 S_2 (对应 N_{c2})的误差合成.散射光 强的误差主要来源于探针光光强误差.

利用(2)式计算得到团簇尺度最大值为 $N_e \approx$ 1130($T_0 = 80$ K, $P_0 = 48 \times 10^5$ Pa). 实验测量值与理 论计算值比较有一定差异,原因如下:首先,瑞利散 射法测量团簇尺度缺乏准确的定标手段,得到的团 簇相对尺度与定标方法有很大关系,而 Ditmire 等^[12] 的定标方法又有很大的随意性,他们给出的团簇尺 度测量值误差为±30%.再者,上述团簇尺度理论计 算公式是不同研究人员根据不同的实验数据拟合得 到的,公式千差万别,普适性不强.因此,实验测得的 团簇尺度 N_e 与由 Γ^* 计算所得的值会出现较大 差异.

4.3. 团簇形成演变过程

由于瑞利散射信号强度对应着团簇尺度,通过 测量散射信号强度随时间的变化,可以了解团簇的 形成和演化过程.通过调节探测激光脉冲与电磁阀 门开阀触发信号之间的相对延迟时间 \dt,可测量团 簇生成过程中不同时刻的散射信号强度.实验中,光 电倍增管和激光器的工作电压分别为 1400,680 V, 固定激光脉冲相对脉冲信号源的延迟时间,通过改 变电磁阀门对脉冲信号源的延迟时间来测量不同 时刻散射信号强度,进而得到团簇喷流的时间特性 曲线.



图 6 散射信号强度随相对延时的变化

图 6 显示的是当背压为 30×10^5 Pa 时团簇喷流 的时间特性曲线. $\Delta t = 0$ 时,信号发生器产生 t =1.234 ms 的触发脉冲. 当触发脉冲的下降沿启动阀 门后,氘气喷出并以超声速膨胀. 当相对延时 $\Delta t =$ 2 ms时,散射信号强度明显增大,表明阀门打开,氘 团簇开始形成. 此后散射信号强度基本稳定略有增 长,直到 $\Delta t = 38.5$ ms 时信号强度突然降低,表明团 簇尺度迅速减小,阀门关闭. 在 $\Delta t = 4$ —38 ms 期间, 散射信号强度基本保持在一个相对稳定的水平.

以上给出的团簇时间特性曲线中,有几点需要 加以说明.首先是散射信号的持续时间,虽然阀门的 驱动电流脉冲宽度只有 1.234 ms,但是散射信号持 续约 39 ms, 说明阀门的实际开启时间约为 39 ms. 这 是由于阀门的密封栓塞具有一定的惯性,当驱动电 流脉冲消失时 栓塞在其惯性作用下 继续原来的运 动方向 直到它在弹簧推动下重新把阀门关闭,因此 阀门的实际开启时间取决于诸多因素 如驱动电流 的大小、阀门栓塞的质量和活动范围以及弹簧的弹 性系数等 还需要考虑到低温下设备机械性能的变 化 动作趋慢,反应时间趋长,再者,图 6 中在 $\Delta t =$ 4-38 ms 期间散射信号强度变化与文献 12 报道的 结果有所不同,这是由于本实验中采用了大储气室, 冷却气体量大 远超过阀门开启一次的喷气量 同时 螺线管通电时间(1.234 ms)相对阀门开启时间(约 为 39 ms) 短得多,因此螺线管发热所引起的升温效 应影响减小 从而使后半段散射信号强度没有明显 减弱.另外 因为激光器工作电压的波动 加上系统 的涨落,导致在 $\Delta t = 4$ —38 ms 期间散射信号强度上 下浮动.事实上 超声绝热膨胀法团簇的形成演变与 阀门的设计密切相关 得到的结论更多是给定阀门 或者是给定喷流的特性.

5.结 论

本工作对用于强激光与团簇相互作用的氘团簇 尺度进行了诊断,采用瑞利散射法测量氘团簇尺度, 得到了团簇尺度与背压的关系,测定了团簇尺度随 时间变化的特性曲线.此结果对分析激光与团簇相 互作用过程,优化激光打团簇靶时间有重要意义.然 而,团簇尺度的精确测量是非常困难的,实验和相关 理论都需要进一步完善.在下阶段实验中,将进一步 提高系统真空度到 10⁻⁴ Pa,并对激光参数进行同步 监测,以期得到更好的实验结果.

- [1] Ditmire T , Tisch J W G , Springate E , Masion M B , Hay N , Smith R A , Hutchinson M H R 1997 Nature 386 54
- [2] Shao Y L , Ditmire T , Tisch J W G , Springate E , Marangos J P 1996 Phys. Rev. Lett. 77 3343
- [3] McPherson A , Thompson B D , Borisov A B , Boyer K , Rhodes C K 1994 Nature 370 631
- [4] Ditmire T, Zweiback J, Yat V P, Cowan T E, Hay G, Wharton K B 1999 Nature **398**
- [5] Hagena O F 1992 Rev. Sci. Instrum. 63 2374
- [6] Hagena O F, Obert W 1972 J. Chem. Phys. 56 1793
- [7] Bell A J, Mestdagh J M 1983 J. Phys. D: Appl. Phys. 26 994
- [8] Wormer J, Guzielski V, Stapefeldt J, Moller T 1989 Chem. Phys. Lett. 159 321
- [9] Armo J, Bevan J W 1995 Jet Spectroscopy and Molecular Dynamic (London : Blackie)
- [10] Farges J , Ferady M F D , Raoult B , Torchet G 1986 J. Chem.

Phys. 84 3491

- [11] Dobosz S , Lezius M , Schmidt M , Meynadier P , Perdrix M 1997 Phys. Rev. A 56 2526
- [12] Smith R A, Ditmire T, Tisch J W 1998 Rev. Sci. Instrum. 69 3798
- [13] An W K, Qiu X J, Zhu Z Y 2004 Acta Phys. Sin. 53 2250 (in Chinese) [安伟科、邱锡钧、朱志远 2004 物理学报 53 2250]
- [14] Zheng L , Wang C , Li S H , Liu B C , Ni G Q , Li R X , Xu Z Z 2006 Chin . Phys. 15 697
- [15] Xia Y , Liu J S , Ni G Q , Xu Z Z 2004 Chin . Phys . 13 196
- [16] Li S H, Wang C, Liu J S, Wang X X, Li R X, Ni G Q, Xu Z Z 2005 Acta Phys. Sin. 54 636 [李邵辉、王 成、刘建胜、王向 欣、李儒新、倪国权、徐至展 2005 物理学报 54 636]

Characterization of a cryogenically cooled high-pressure gas jet *

Wang Lei^{1,B,)} Wu Yu-Chi^{2,B,)} Wang Hong-Bin^{3,)} Liu Hong-Jie^{3,)} Ge Fang-Fang^{3,H,)} Chen Jia-Bin^{3,)}

Zheng Zhi-Jian³) Gu Yu-Qiu³) Shi Shu-Ting¹) Luo Xiao-Bing¹)[†] Yang Chao-Wen²)

1) Institute of Nuclear Science and Technology ,Sichuan University ,Chengdu 610064 ,China)

2 X College of Physical Science and Technology , Sichuan University , Chengdu 610064 , China)

3 X Research Center of Laser Fusion , China Academy of Engineering Physics , Mianyang 621900 , China)

4 🕽 College of Material Science and Engineering ,Tongji University ,Shanghai 200092 ,China)

(Received 3 March 2007; revised manuscript received 8 May 2007)

Abstract

We have developed and carried out a detailed characterization of a cryogenically cooled (80 K) high-pressure (50×10^5 Pa) solenoid driven pulsed valve that has been used to produce dense jets of deuterium atomic clusters for interaction studies with high intensity laser. Rayleigh scattering was employed to investigate the scaling law between cluster size and upstream gas pressure , which was shown to be of the form $N_c \propto P_0^{2.89}$. Cluster size gets to its peak $N_c \approx 2630$ at 80 K $A8 \times 10^5$ Pa. We also studied the cluster formation process , portrayed a characteristic curve which revealed cluster size temporal evolution. Our results are important for analyzing the cluster interaction with intense laser , and are expected to provide guidelines to choose proper fire time.

Keywords : deuterium clusters , cluster resource , Rayleigh scattering , clusters interaction with intense laser PACC : 3640 , 5250J , 5240M

^{*} Project supported by the Key Program of the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 10535030).

[†] Corresponding author. E-mail:luo811@mail.sc.cninfo.net