

超声喷流氩氢混合团簇特性研究*

郭尔夫 韩纪锋 李永青 杨朝文 周荣†

(四川大学物理科学与技术学院, 辐射物理及技术教育部重点实验室, 成都 610064)

(2013年12月16日收到; 2014年1月9日收到修改稿)

利用瑞利散射方法研究了超声喷流 Ar-CH₄ 混合团簇和超声喷流 Ar-H₂ 混合团簇的特性. 通过测量不同混合比例和不同背压下所形成混合团簇的散射信号发现, 当用 Ar 气和 CH₄ 的混合气体进行超声喷流时很容易形成 Ar-CH₄ 混合团簇, 当 Ar 气含量为 50% 时混合团簇尺度最大且大于相同气压下纯 Ar 团簇尺度和纯 CH₄ 团簇尺度. 实验发现, 与纯 H₂ 团簇只能在低温条件下获得不同, 常温下即可形成 Ar-H₂ 混合团簇, 实现了常温下含氢团簇的获取, 从而有效降低了制备成本. 在 H₂ 含量大于 40% 时混合团簇开始形成并在 60% 时达到最大尺度. 含氢 (氘) 混合团簇在氢 (氘) 团簇的基础上引入了更重的异核 Ar 元素, 在激光氘团簇聚变实验中它将进一步加速氘离子从而获得更高的能量, 并具有更高的中子产额和聚变效率.

关键词: 混合团簇, 团簇尺度, 瑞利散射

PACS: 36.40.-c, 52.40.Mj, 52.50.Jm, 47.40.Ki

DOI: 10.7498/aps.63.103601

1 引言

团簇是由几个乃至上千个原子、分子或离子通过物理或化学结合力组成的相对稳定的微观或亚微观聚集体, 其物理性质和化学性质随所含的原子数目而变化. 随着人们对团簇性质研究的进一步展开, 发现其在越来越多的领域中都有着重要的应用. 激光核聚变是利用强激光照射氘团簇使之发生核聚变反应. 为了提高激光聚变的中子产额和效率, 2001年 Last 和 Jortner^[1] 结合团簇尺度方程和分子动力学模拟提出了高能氘核产生的一种新机理, 用含氘异核团簇 (如 D₂O) 代替纯氘团簇进行激光团簇聚变, 能使氘离子得到更高的能量. 这是因为 O⁸⁺ 具有更高的电荷, 导致在强激光场下含氘异核团簇发生库仑爆炸更剧烈, 对氘离子的加速效果更显著, 同时存在氘离子超越氧离子的现象从而进一步提高了氘离子的能量. 2002 年, Grillon 等^[2] 基于 Last 的异核团簇理论, 用氘代甲烷喷流团簇进行实验, 并用汤姆森质谱仪测量离子的速度分布, 氘核能量高达 120 keV. 在这样的条件下, 核聚变将

不仅发生于热等离子体核心, 而且通过碰撞过程存在于低温的外部区域. 2005 年, Hohenberger 等^[3] 用分子动力学方法对 CH₄ 团簇进行模拟, 结果验证了在简单库仑模型下有重离子和轻离子的异核团簇受到飞秒激光照射时, 库仑排斥作用会导致轻离子能量增加. 如果轻离子能量超越重离子能量并且具有更强排斥性, 则加速效果得到提升.

因此, 在一定程度上提高氘团簇尺度并同时引入更重的原子可以有效地提高团簇爆炸后的氘离子能量, 从而有利于氘核发生聚变反应. 但含氘异核团簇种类太少, 生产成本高. 为了获得高能量的氘离子, 我们尝试利用含氘混合团簇取代单核氘原子团簇与飞秒强激光发生相互作用. 氘氩混合团簇中由于重原子 Ar 的引入 (强激光作用下 Ar¹⁸⁺ 具有高电荷量及强排斥性) 使得轻离子将获得更大程度的加速. 因此混合团簇对激光聚变意义重大, 对其性质研究也成为近年来的研究热点之一. 由于氘、氢在形成团簇方面性质类似, 故在实验上可用氢气代替氘气进行研究.

本文利用瑞利散射方法研究了超声喷流 Ar-

* 教育部博士点新教师基金 (批准号: 20110181120002) 和国家自然科学基金 (批准号: 11275133) 资助的课题.

† 通讯作者. E-mail: zhourong@scu.edu.cn

CH₄ 混合团簇和超声喷流 Ar-H₂ 混合团簇的特性, 分析了背压以及混合比例对混合团簇性状的影响. 这些结果对深入了解混合团簇性质以及提高激光聚变的中子产额和效率有重要的指导意义.

2 实验方法

采用超声喷流方法产生团簇, 并利用瑞利散射方法诊断团簇尺度, 实验装置图如图 1 所示. 使用 Parker 公司生产的 S99 系列电磁阀及驱动器产生超声喷流, 电磁阀开启时间连续可调, 实验中固定喷气时间为 20 ms. 电磁阀打开后, 高压气体从喷嘴高速喷出并进入真空靶室中, 在膨胀过程中喷流急剧降温并形成团簇, 本次实验选用喉口直径为 0.3 mm 的圆柱形喷嘴. 真空靶室下方通过一台抽速为 1500 L/min 的分子泵对靶室抽真空, 靶室静真空为 2×10^{-4} Pa. 通过专用的准连续脉冲激光器提供瑞利散射诊断光源, 激光波长 $\lambda = 532$ nm, 单个激光脉冲宽度不大于 20 ns, 脉冲频率从 1—10 kHz 可调, 实验中选定激光频率为 5 kHz, 每隔 0.2 ms 左右给出一次瑞利散射信号. 团簇喷流与从垂直喷气方向进入的准直激光束发生瑞利散射, 在真空室中央喷嘴正上方的光电倍增管 (PMT) 收集 90° 散射角处的光信号并将其转变为电信号, 经后端电子学线路输入到示波器及计算机中进行处理. 同时光敏探头采集入射窗处的反射光, 用于监测激光器的工作状态. PMT 前方放置了干涉滤光片以便测量 532 nm 的散射光, 同时还可以有效地减少因杂散光进入光阴极而产生本底干扰.

采用将混合气体直接进行超声喷流的方法产生混合团簇, 为保证混气的均匀性, 我们优化设计了混气系统, 其结构如图 2 所示. 通过一个专设的混气罐系统完成混气, 混气罐经气管 I、气管 II 以及减压阀与储气钢瓶相连, 经气管 III 与喷嘴相连. 在气管 III 靠近混气罐出口处分别设置隔离阀、泄压阀和压力表. 为了保证气体混合均匀, 要求混气过程主要在混气罐中完成, 设计中保证混气罐体积占整个混气系统体积的 98%, 因此连接气管必须足够短. 混气过程应有足够长的时间 (大于 15 min) 以保证气体混合均匀, 然后打开泄压阀放掉气管 III 中可能混合不太均匀的气体, 之后打开隔离阀将混合气体送至喷嘴出口处. 为减少喷嘴附近气管中残留气体的影响, 在打开隔离阀前要在喷嘴处对气管

抽真空, 实验中通过打开喷嘴电磁阀的方法进行抽真空.

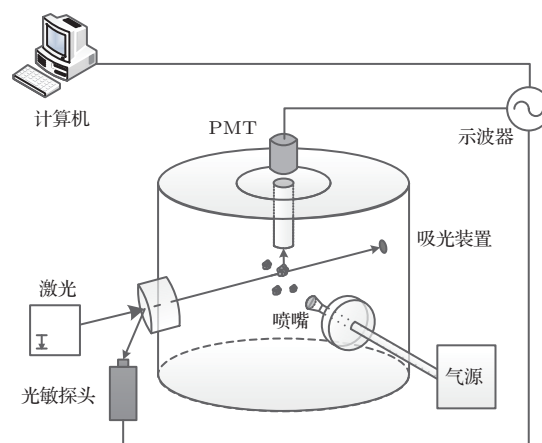


图1 瑞利散射诊断系统结构示意图

对气体进行混合时, 先根据目标气体压强和混合比例计算含量较少者的压强, 打开相应钢瓶的减压阀将气体通入混气罐中, 达到所需压强后关闭该减压阀. 然后通入另一种气体到所需压强, 静置一段时间待混合均匀后, 混合气体的压强会有所降低, 平均降幅约为 3%—5%. 再打开泄压阀放掉气管 III 中可能残存的混合不均气体, 由于此部分体积约占系统体积的 1%, 实验中选择泄放比例为 2% 以保证可靠. 最后打开隔离阀将混合气体通入喷嘴附近, 待系统气压稳定后开始测量.

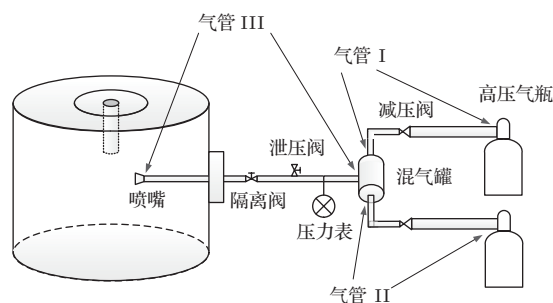


图2 混气系统结构示意图

3 实验结果及分析

瑞利散射诊断系统所得信号^[4]如图 3 所示, 为减小激光器不稳定造成的影响, 我们根据光敏探头采集的反射信号将瑞利散射信号修正到同一激光强度条件下, 扣除本底噪声的影响后取其平均值作为该次瑞利散射信号的幅度, 取其方差作为散射信号的误差.

实验测得纯 Ar 团簇和纯 CH₄ 团簇的瑞利散射

信号随背压的变化, 结果如图4所示. 对所得结果按 $y = ax^b$ 进行乘幂拟合, 纯 Ar 团簇和纯 CH₄ 团簇的指数 b 误差分别为 0.11 和 0.47. 拟合后, 得到两者的瑞利散射信号 S_{Ar} , S_{CH_4} 与背压 P 的关系分别为 $S_{\text{Ar}} \propto P^{3.22}$, $S_{\text{CH}_4} \propto P^{7.73}$. 根据 Hagen 经验公式, 团簇瑞利散射信号 $S \propto P^e$, e 为团簇指数, $e = 3\text{—}3.5$. 实验测得 Ar 团簇指数为 3.22, 在经验公式给出的 3—3.5 范围内, 并同之前测量结果一致 [5,6]. 对于 CH₄ 团簇, 团簇指数 (7.73) 明显大于 Ar 团簇指数 [7], 且从图4可以看出在高背压区散射信号变化更为迅速. 这是由于 CH₄ 易液化, 高压下 CH₄ 气在喷流中形成了少量液滴, 散射信号与散射体半径的六次方成正比, 从而使团簇指数增大. 付鹏涛等 [8] 在对二氧化碳团簇研究中有类似描述.

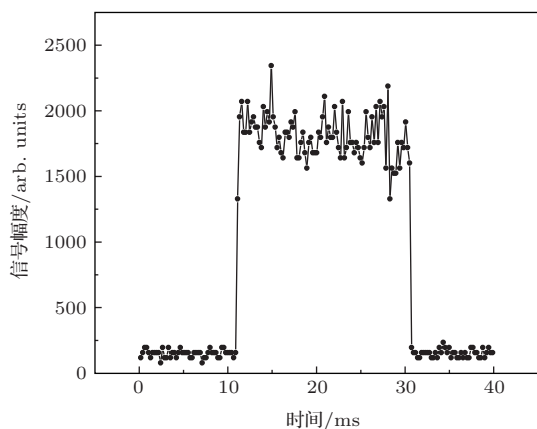
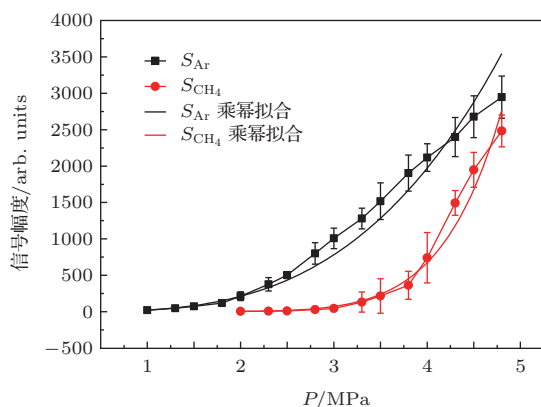


图3 瑞利散射信号图

图4 纯 Ar 团簇和纯 CH₄ 团簇的瑞利散射信号强度随背压 P 的变化

根据瑞利散射理论, 在 90° 方向上, 散射截面 σ 与散射体半径 R 间满足 $\sigma \propto R^6$. 假设形成团簇前气体中的原子数密度为 n_0 , 团簇尺度为 Γ^* , 团簇中包含的原子数为 N_c , 原子之间成团概率为 η , 则气

体中团簇数密度 $n_c = \eta n_0 / N_c$. 进一步, 假设团簇为球形, 则团簇体积正比于 N_c , 即 $R^3 \propto N_c$. 可得瑞利散射信号强度

$$S \propto \sigma n_c \propto R^6 n_c \propto N_c \eta n_0. \quad (1)$$

根据下列 Hagen 经验公式 [9,10] 可以得到团簇尺度 Γ^* 与 k 的关系:

$$\Gamma^* = k \frac{(d/\tan\alpha)^{0.85}}{T^{2.29}} P, \quad (2)$$

$$N_c = 33 \left(\frac{\Gamma^*}{1000} \right)^{2.35},$$

其中, P 和 T 分别是气体的背压和初始温度, 单位为 hPa 和 K; d 为喷嘴直径, 单位为 μm ; α 是喷嘴的半张角; k 是一个常数, 与气体种类有关. 由于 CH₄ 的值为 2360, Ar 的 k 值为 1650 [9], 相同条件下形成的 CH₄ 团簇平均尺度应大于 Ar 团簇平均尺度. 而实验中测得的相同背压和温度下 CH₄ 散射信号却比 Ar 散射信号小, 这说明 CH₄ 团簇成团概率小于 Ar 团簇成团概率. 在相同的背压和温度条件下, 形成的 CH₄ 团簇平均尺度较大, 但因成团概率较小而导致团簇数密度较小, 使 CH₄ 团簇以少量大尺度的形式存在. 相比之下, 所形成的 Ar 团簇尺度较小而数量较多. 结合 (1) 和 (2) 式可得, 在相同的温度和压强条件下, 散射信号 $S \propto \eta k^{2.35}$. 进一步计算相同条件下 Ar 成团概率 η_{Ar} 与 CH₄ 成团概率 η_{CH_4} 的比值随背压的变化, 结果如图5所示. 在背压为 2.5 MPa 时, $\eta_{\text{Ar}}/\eta_{\text{CH}_4}$ 达到最大值为 122, 并随背压的增高而趋于稳定值 $\eta_{\text{Ar}}/\eta_{\text{CH}_4} = 3$. 这表明背压较低时, 因成团概率相差很大, 团簇数密度对瑞利散射信号的影响超过了团簇尺度对瑞利散射信号的影响. 此时不能直接用瑞利散射信号幅度来表征团簇尺度, 应考虑成团概率的因素而做相应修正. 随着背压的增高, 两者的成团概率差距减小, 团簇数密度对瑞利散射信号的影响会逐渐降低.

实验还分别测量了不同背压下 Ar-CH₄ 和 Ar-H₂ 混合团簇瑞利散射信号分别随 CH₄ 和 H₂ 含量的变化, 结果如图6所示. 由图6(a)可以看出, 在 CH₄ 含量较低时, 瑞利散射信号强度随 CH₄ 含量呈现锯齿状变化, 并在 CH₄ 含量为 50% 处达到最大值, 此峰值大于相同条件下纯 Ar 团簇信号和纯 CH₄ 团簇信号. 当 CH₄ 含量高于 50% 时, 瑞利散射信号强度随 CH₄ 含量的增加而降低. 由图6(b)可以看出, 当 H₂ 含量较低时, 瑞利散射信号强度随 H₂ 含量的增加而降低. 当 H₂ 含量达到 50% 时, 散

射信号强度开始上升, 直至 H_2 含量为 60% 时出现一个峰值, 此峰值小于相同条件下纯 Ar 团簇信号.

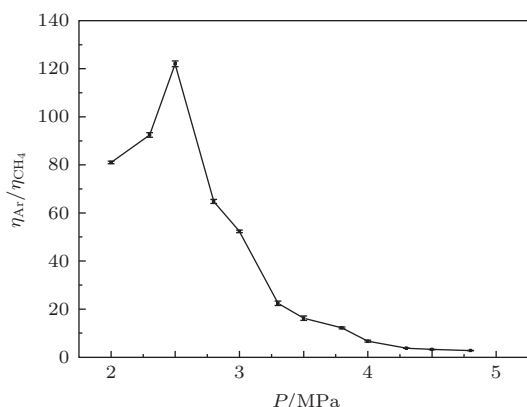


图5 Ar 成团概率与 CH_4 成团概率之比随背压的变化

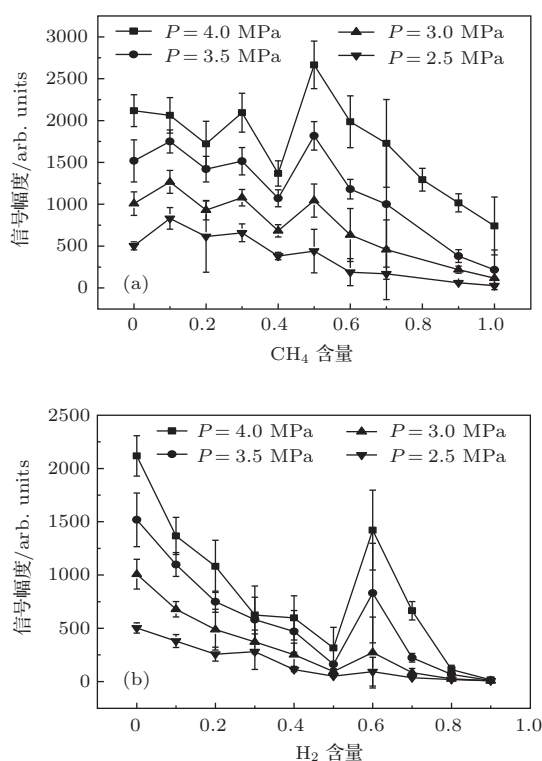


图6 Ar- CH_4 和 Ar- H_2 混合团簇瑞利散射信号分别随 CH_4 和 H_2 含量的变化 (a) Ar- CH_4 混合团簇; (b) Ar- H_2 混合团簇

在高背压区, 图6中的信号幅度变化得更加明显, 与低背压区不同混合比气体的成团概率相比, 此时不同混合比气体的成团概率相差较小, 导致团簇密度对信号幅度的影响较小, 图6中信号幅度变化主要由团簇尺度变化引起. 而低背压区由于不同混合比气体的成团概率相差较大, 使得团簇密度对信号幅度的影响变大, 此时图6中信号变化幅度减小是受团簇尺度和团簇密度的综合影响.

图7给出了在 4 MPa 高背压条件下得到的 Ar-

CH_4 和 Ar- H_2 两种混合团簇的散射信号曲线和相同背压下合成信号曲线, 其中曲线 *a* 为瑞利散射信号曲线, 曲线 *b* 为按压强合成曲线 (根据混合比分别计算两种气体的压强, 将相应分压下单种气体的散射信号幅度相加得到), 曲线 *c* 为按信号合成曲线 (直接将 4 MPa 背压条件下, Ar, CH_4 和 H_2 的散射信号幅度按照混合比缩小后相加得到). 若没有形成混合团簇并且混合均匀, 则两种气体各自成团, 但由于两种气体均匀混合在一起导致单种气体的气压降低, 此散射信号应该基本符合按压强合成曲线. 若混合气体没有形成混合团簇并且混合很不均匀, 则两种气体各自成团, 每种气体的平均团簇尺度与 4 MPa 背压下单一气体的团簇尺度相同, 因此散射信号应该基本符合按信号合成曲线.

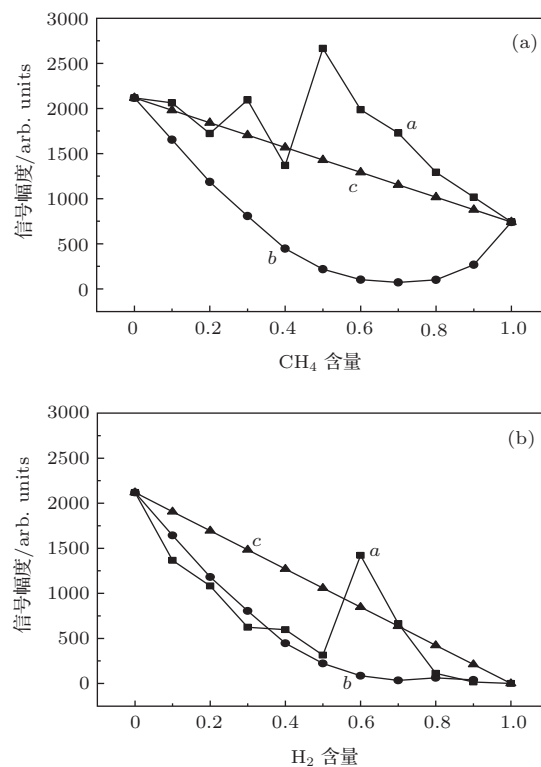


图7 4 MPa 背压下 Ar- CH_4 混合气体散射信号、Ar- H_2 混合气体散射信号与合成信号的对比 (a) Ar- CH_4 混合气体; (b) Ar- H_2 混合气体

从图7可以看出, 混合团簇的瑞利散射曲线与两条合成曲线都具有较大的区别, 说明本文的混气方法可实现气体的均匀混合, 而且形成了 Ar- CH_4 混合团簇以及 Ar- H_2 混合团簇. 由于采用相同的混气方法产生了各种不同比例的混合气体, 因此图7(a)中 CH_4 含量较低时气体是混合均匀的. 此混合团簇信号与曲线 *c* 较为接近, 是由统计涨落引起, 而且由于 CH_4 含量很少而 Ar 含量很多, 形成的

混合团簇也以 Ar 为主, 其散射信号幅度会稍小于纯 Ar 气体的散射信号幅度, 从而导致与曲线 *c* 更为接近, 这并不是混合不均匀所致.

由图 7(a) 可以看出, 在 CH₄ 含量为 50% 的 Ar-CH₄ 混合气体瑞利散射信号强度出现了大于相同条件下两种纯气体散射信号的峰值. 这表明喷流中确实形成了 Ar-CH₄ 混合团簇, 且混合团簇尺度在 CH₄ 含量为 50% 时达到最大, 要大于相同条件下纯 Ar 团簇和纯 CH₄ 团簇的尺度. 进一步考察 CH₄ 含量较高区间, Ar-CH₄ 散射信号曲线与曲线 *b* 和曲线 *c* 不相符. 这表明在 Ar 含量较低时, 混合团簇已经开始形成. 实验结果表明, Ar-CH₄ 混合团簇不仅在 H₂ 团簇基础上同时引入了 C 原子和 Ar 原子, 而且具有更大的团簇尺度. 根据 Last 和 Jortner^[1] 的研究可知, 增大 H₂ 团簇尺度以及采用异核分子团簇可以增加激光聚变过程中 H⁺ 的能量. 因此, 利用 Ar-CH₄ 混合团簇进行激光团簇聚变可以较大地提高激光聚变效率和中子产额.

由图 7(b) 可以看出, 当 H₂ 含量低于 40% 时, Ar-H₂ 散射信号曲线与曲线 *b* 非常接近. 这表明此时气体混合均匀但没有形成混合团簇. 当 H₂ 含量达到 40% 后, Ar-H₂ 散射信号幅度开始超越按压强合成的信号幅度, 表明混合团簇开始形成. 当 H₂ 含量为 60% 时, 混合团簇尺度最大, 但小于纯 Ar 团簇尺度. 最后当 H₂ 含量为 100% (纯 H₂) 时, 在常温下无法形成团簇. 实验结果表明, 可通过向纯 H₂ 中掺杂少量 Ar 的方式在常温下获取含 H₂ 团簇. 在此之前纯 H₂ 团簇只能在液氮温度下形成, 获取条件较高. Ar-H₂ 混合团簇具有更便捷的获取途径, 可以代替纯 H₂ 应用于激光聚变领域.

4 结 论

本文利用瑞利散射方法研究了超声喷流 Ar-CH₄ 混合团簇以及超声喷流 Ar-H₂ 混合团簇的特

性. 通过分析瑞利散射信号幅度随气体混合比例的变化发现, 在 Ar 含量很低时, Ar-CH₄ 混合团簇就开始形成, 当 Ar 含量为 50% 时团簇尺度达到最大, 且大于纯 Ar 团簇尺度和纯 CH₄ 团簇尺度. 这是一种提升团簇尺度的有效方法. Ar-H₂ 混合团簇从 H₂ 含量为 40% 时开始形成, H₂ 含量为 60% 时团簇尺度达到最大, 但小于纯 Ar 团簇尺度. 通过向 H₂ 中掺杂 Ar 的方法, 使得常温下无法形成团簇的 H₂ 参与成团, 从而获得常温下含氢团簇. 此结果对于激光聚变研究具有重要意义. 下一阶段将进一步深入研究氖氩混合团簇特性以及氖氩混合团簇激光聚变等.

参考文献

- [1] Last I, Jortner J 2001 *Phys. Rev. Lett.* **87** 033401
- [2] Grillon G, Balcou P, Chambaret J P, Hulin D, Martino J, Moustazis S, Notebaert L, Pittman M, Pussieux T, Rousse A, Rousseau J P, Sebban S, Sublemontier O, Schmidt M 2002 *Phys. Rev. Lett.* **89** 065005
- [3] Hohenberger M, Symes D R, Madison K W, Sumeruk A, Dyer G, Edens A, Grigsby W, Hays G, Teichmann M, Ditmire T 2005 *Phys. Rev. Lett.* **95** 195003
- [4] Han J F, Yang C W, Miao J W, Fu P T, Luo X B, Shi M G 2010 *J. Appl. Phys.* **108** 064327
- [5] Liu M, Lu J F, Han J F, Li J, Luo X B, Miao J W, Shi M G, Yang C W 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 6951 (in Chinese) [刘猛, 陆建峰, 韩纪峰, 李佳, 罗小兵, 缪竞威, 师勉恭, 杨朝文 2009 物理学报 **58** 6951]
- [6] Han J F, Yang C W, Miao J W, Lu J F, Liu M, Luo X B, Shi M G 2010 *Eur. Phys. J. D* **56** 347
- [7] Han J F, Yang C W, Miao J W, Lu J F, Liu M, Luo X B, Shi M G 2010 *Chin. Phys. Lett.* **27** 043601
- [8] Fu P T, Han J F, Mou Y H, Han D, Yang C W 2011 *Acta Phys. Sin.* **60** 053602 (in Chinese) [付鹏涛, 韩纪峰, 牟艳红, 韩丹, 杨朝文 2011 物理学报 **60** 053602]
- [9] Hagena O F, Obert W 1972 *J. Chem. Phys.* **26** 994
- [10] Hagena O F 1992 *Rev. Sci. Instrum.* **63** 2374

Study of argon/hydrogen mixed cluster in supersonic gas jet^{*}

Guo Er-Fu Han Ji-Feng Li Yong-Qing Yang Chao-Wen Zhou Rong[†]

(Key Laboratory of Radiation Physics and Technology of Ministry of Education, College of Physical Science and Technology,
Sichuan University, Chengdu 610064, China)

(Received 16 December 2013; revised manuscript received 9 January 2014)

Abstract

The average mixed cluster sizes in different mixing proportions of Ar-CH₄ mixed cluster and Ar-H₂ mixed cluster in supersonic gas jet are studied by Rayleigh scattering method. It is found that Ar-CH₄ mixed cluster could form easily when the mixed Ar and CH₄ gas are used in gas jet, and the maximum cluster size is achieved when the content of Ar is 50%. The maximum cluster size of Ar-CH₄ mixed cluster is larger than that of either Ar cluster or CH₄ cluster. Being different from pure hydrogen cluster which only forms at liquid nitrogen temperature, Ar-H₂ mixed cluster can form at room temperature. So this is the first time we have obtained hydrogen cluster at room temperature. Ar-H₂ mixed cluster starts to form at H₂ content value higher than 40% and it reaches maximum size when the content of H₂ is 60%. Hydrogen (deuterium) mixed clusters introduce heavier Ar element on the basis of hydrogen (deuterium) clusters. It will further accelerate the deuterium ions to higher energy in deuterium cluster laser fusion experiments, so we can obtain higher neutron yield and fusion efficiency.

Keywords: mixed clusters, cluster size, Rayleigh scattering

PACS: 36.40.-c, 52.40.Mj, 52.50.Jm, 47.40.Ki

DOI: 10.7498/aps.63.103601

^{*} Project supported by the Scientific Research Foundation for the Youth Scholars of the Doctoral Program of Ministry of Education, China (Grant No. 20110181120002) and the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 11275133).

[†] Corresponding author. E-mail: zhourong@scu.edu.cn