

常温下氙气以及氢氙混合气体形成的团簇的特性研究

赵家瑞 李毅飞 马景龙 王进光 黄开 韩玉晶 马勇 闫文超 李大章 袁大伟 李玉同 张杰 陈黎明

Characterizations of clusters generated by pure xenon and hydrogen xenon gas mixture at room temperature

Zhao Jia-Rui Li Yi-Fei Ma Jing-Long Wang Jin-Guang Huang Kai Han Yu-Jing Ma Yong Yan Wen-Chao Li Da-Zhang Yuan Da-Wei Li Yu-Tong Zhang Jie Chen Li-Ming

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 64, 042101 (2015) DOI: 10.7498/aps.64.042101

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.042101>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2015/V64/I4>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

静态真空对超声喷流气体团簇制备的实验研究

[Influence of static vacuum on the preparation of cluster of supersonic gas jet](#)

物理学报.2014, 63(20): 203601 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.203601>

超声喷流氙氢混合团簇特性研究

[Study of argon/hydrogen mixed cluster in supersonic gas jet](#)

物理学报.2014, 63(10): 103601 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.103601>

瑞利散射法研究超声喷流二氧化碳团簇尺度轴向分布

[The axial distribution of carbon dioxide cluster in supersonic gas jet by Rayleigh scattering](#)

物理学报.2011, 60(5): 053602 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.60.053602>

常温下氘气以及氢氘混合气体形成的团簇的特性研究*

赵家瑞¹⁾ 李毅飞¹⁾ 马景龙¹⁾ 王进光¹⁾ 黄开¹⁾ 韩玉晶¹⁾ 马勇¹⁾
 闫文超¹⁾ 李大章³⁾ 袁大伟¹⁾ 李玉同¹⁾ 张杰²⁾ 陈黎明^{1)†}

1)(中国科学院物理研究所, 北京凝聚态物理国家实验室, 光物理重点实验室, 北京 100190)

2)(上海交通大学, 激光等离子体教育部重点实验室, 上海 200240)

3)(中国科学院高能物理研究所, 北京 100049)

(2014年6月24日收到; 2014年8月27日收到修改稿)

利用瑞利散射法可以对团簇的尺寸以及团簇形成的演变过程进行研究, 这种方法非常简单易行且对团簇是非破坏性的. 通过对纯氘气以及氢氘混合气体形成的团簇的瑞利散射进行测量, 研究并分析了瑞利散射强度随时间、初始背压以及气体混合比例的变化, 由此估算了在不同情况下形成团簇的平均尺寸. 通过获得的氢氘混合气体瑞利散射强度与背压的关系 $I = (1.5 \times 10^{-5})P^{6.47}$, 发现了混合气体中氢气对氘团簇形成的促进作用, 并从热力学和分子间作用力的角度进行了理论分析, 得到了氢氘混合气体不易于液化这一新现象, 为实现高背压下更大尺寸团簇的产生提供了可能. 所获得的结果为今后基于氘团簇的 X 射线产生实验, 以及基于氢氘混合气体的中子产生实验研究提供了良好的实验依据.

关键词: 氘团簇, 瑞利散射, 混合气体

PACS: 21.60.Gx, 36.40.Vz, 52.38.Bv

DOI: 10.7498/aps.64.042101

1 引言

团簇是由几个乃至上千个原子、分子或者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, 具有特殊的性质^[1]. 超短脉冲激光与团簇相互作用一直都是人们非常感兴趣的课题. 团簇在宏观上表现为气体密度, 在微观上表现为固体密度, 这一特性使其与超短超强激光相互作用时产生许多新的现象和结果. 近年来, 激光与团簇相互作用过程的能量吸收、高能电子^[2,3]以及 X 射线^[4]的产生等方向引起人们的关注, 利用大尺寸氘团簇进行氘-氘核聚变反应产生单能中子^[5,6], 为实现台式化激光诱发小型核聚变中子源提供了新的可能. 因此, 团簇的特性研究对激光与团簇相互作

用物理过程的理解以及实验预期的评估极其重要. 早在 1972 年, Hagen 和 Obert^[7]就对影响团簇形成的背压、温度、喷嘴尺寸等参数进行了研究, 并给出了经验公式来对团簇的尺寸进行评估; Smith 等^[8]随后对预降温的氢气以及氘气形成的团簇进行了研究, 进一步验证并推广了 Hagen 和 Obert 提出的经验公式; 近十年来, 国内对团簇领域的研究也有很大的进展, 尤其在团簇的形成以及诊断方面成果颇丰^[9-12].

团簇因其高的激光吸收效率以及电离后获得高的静电势能等特性, 为实验产生中子提供了一种非常好的选择. Ditmire 等^[13]通过超短脉冲激光与氘团簇靶作用, 获得了 10^4 产额的单能中子; 最近, Bang 等^[14]通过拍瓦激光与氘团簇靶作用, 使中子产额有了很大的提升, 达到 10^7 . Last 和 Jortner^[15]

* 国家重点基础研究发展计划 (批准号: 2013CBA01501, 2013CBA01504)、国家自然科学基金 (批准号: 11175192) 和国家重大科学仪器设备开发专项 (批准号: 2012YQ120047) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: lmchen@iphy.ac.cn

提出, 杂核团簇经库仑爆炸更容易发生核聚变反应, 因为杂核团簇电离获得的静电势能更大, 使库仑爆炸产生的离子能量更高, 核聚变反应截面更大, 进而提高中子的产额. Lu等^[16]通过与Ditmire实验类似参数的激光和氘代甲烷团簇相互作用, 使获得的中子产额提高了一个量级. 掺氘的氘气、掺氘的氘代甲烷都可以形成理想的杂核团簇^[17], 但是目前世界上对这方面的研究非常少, 对于这类气体形成的团簇性质的了解也不是很深刻.

本文对纯氘气以及氢氘混合气体形成的团簇的瑞利散射进行了研究, 对团簇的形成过程进行了讨论, 研究了瑞利散射与气体初始背压及混合比例之间的关系, 着重分析了氢气对混合气体团簇形成的促进作用.

2 理论模型

高压气体在真空靶室内绝热膨胀可以形成团簇. 这个过程的原型是: 喷嘴快门打开的瞬间, 高压气体的内能瞬间转化成定向动能, 使其内能下降, 分子热运动的动能减少, 并且在气体分子膨胀的过程中, 分子间距增大导致分子间的势能增大, 使分子热运动的动能进一步减少, 气体温度急剧下降, 形成过饱和气体, 这些气体冷凝成核而形成由范德瓦耳斯力结合的团簇. 这种方法生成的团簇的尺寸与气体的初始背压、温度以及喷嘴的几何构型有关. Hagena与Obert^[7]通过研究, 给出经验参数来描述高压气体的初始状态对团簇形成尺寸的影响, 即Hagena参数 Γ^* ,

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

式中, d 为喷嘴的喉部直径(单位为mm), α 为喷嘴的半张角, T_0 为高压气体的初始温度(单位为K), P_0 为高压气体的初始背压(单位为mbar, $1 \text{ bar} = 10^5 \text{ Pa}$), k 为与气体种类有关的冷凝参数. 表1列出了不同种类气体的 k 值^[18]. 可以看出, 原子序数较大的气体具有较高的 k 值, 它们更容易形成团簇.

表1 不同气体的 k 参数

	H ₂	D ₂	N ₂	O ₂	CO ₂	CH ₄	He	Ne	Ar	Kr	Xe
k	184	181	528	1400	3660	2360	3.85	185	1650	2890	5500

不同的 Γ^* 值对于团簇的产生和尺寸有着不同的影响^[19], 团簇平均尺寸 $N \propto \Gamma^{*2.0-2.5}$, 根据Hagena的研究给出

$$N = 33(\Gamma^*/1000)^{2.35} \quad (\Gamma^* > 1000). \quad (2)$$

因此, 如果高压气体的初始背压、温度以及喷嘴的半张角等参数已知, 则可以从理论上估算喷气以后形成团簇的平均尺寸. 但是, 由于团簇产生装置的个体特殊性以及不同种类团簇形成的独特性, 理论估算的方法很难准确地给出实验中产生的团簇的尺寸, 所以通过实验的方法测量团簇尺寸非常必要. 瑞利散射方法不会对团簇本身产生破坏, 很适合对大尺寸团簇进行测量.

我们知道, 瑞利散射的强度正比于团簇的数量与团簇的平均尺寸的平方的乘积^[9], 即 $I_R \propto n_c N^2$. 根据 $n_c = N_{\text{tot}}/N$, 得出 $I_R \propto N_{\text{tot}} N$. 再根据状态方程 $PV = N_{\text{tot}} RT$, 得出

$$I_R \propto PN, \quad (3)$$

式中, n_c 为产生的团簇的数量, N_{tot} 为参与形成团簇的原子数. 因此, 瑞利散射的强度正比于气体背压与所形成团簇的平均尺寸的乘积. 在实验测量中改变气体背压, 通过(3)式就可以得出团簇尺寸的相对值,

$$\frac{N_1}{N_2} = \frac{P_2 I_1}{P_1 I_2}. \quad (4)$$

根据Ditmire的假设, 当测得的瑞利散射光强度超过本底时, 团簇的平均尺寸 $N = 100$ ^[5], 结合(4)式即可得到不同背压下的团簇平均尺寸.

根据Hagen公式((2)式)可知, $N \propto P^\beta$, 因此由(3)式可得出

$$I_R \propto P^{\beta+1}. \quad (5)$$

因此, 在气体初始温度、喷嘴参数一定的条件下, 瑞利散射的强度与背压的指数次方成正比.

3 瑞利散射实验

3.1 实验装置

瑞利散射方法测量团簇尺寸的实验布局如图1所示. 该系统主要由光信号控制系统、电信号控制系统以及喷气系统三部分组成. 其中光信号控制系统包括激光波长和输出功率分别为532 nm和5 mW的半导体激光器、激光的聚焦透镜和收集透镜以及大阵列超快光电二极管(直径10 mm)等; 电信号控制系统包括DG535数字信号发生器、数字示波器以及电磁阀控制器等; 喷气系统包括超快电磁阀、锥形喷嘴(喉径为1 mm, 出气端直径为2 mm, 喉部到出气端的距离为9 mm)等. DG535数字信

号发生器的作用是向示波器输出零时刻. 散射光在 90° 方向被收集测量.

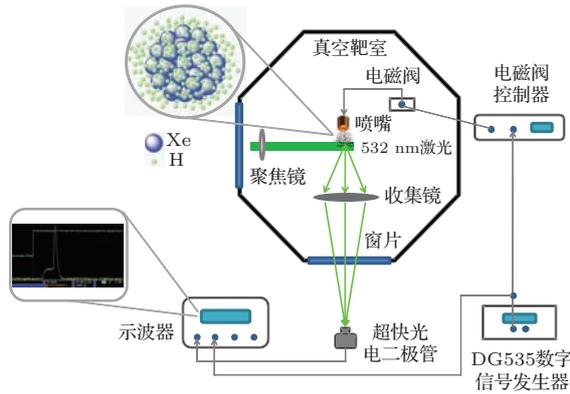


图1 采用瑞利散射法测量团簇尺寸的实验装置示意图

实验中所采用的气体为纯度在 99% 以上的高纯氙气, 以及氙气与氢气按不同比例混合得到的混合气体. 两种气体的混合比例(此后所指的混合比例为气体摩尔数之比)应该根据范德华公式来调节:

$$\left(p + a \frac{n^2}{V^2}\right)(V - nb) = nRT, \quad (6)$$

式中, V 为总体积, n 为摩尔数, a 为度量分子间引力的参数, b 为 1 摩尔分子本身包含的体积之和, R 为普适气体常数.

由于本文实验中一般使用低压(小于 5 MPa)气体, 并且对气体的混合比例没有特别精确的要求, 因此我们将范德华公式简化为经典理想气体状态方程来调节混合气体的比例:

$$pV = nRT. \quad (7)$$

实验中需要含 20% 氙气的 5 MPa 氢氙混合气体, 即氙气与氢气的摩尔数之比为 1 : 4. 首先应将 1 MPa 的氙气注入到混合气体装置中, 此时 $p_{Xe}V = n_{Xe}RT$, 然后将氢气的减压阀调节为 5 MPa, 由于气压平衡, 因此总的气体背压即为 5 MPa, $pV = n_{tot}RT$, 所以 $p_{Xe}/p = n_{Xe}/n_{tot} = 1 : 5$, 得出 $n_{Xe}/n_{H_2} = 1 : 4$, 于是我们得到含 20% 氙气的 5 MPa 氢氙混合气体.

3.2 实验结果与分析

3.2.1 纯氙气形成的团簇的瑞利散射结果及分析

我们首先进行的是纯氙气形成的团簇的瑞利散射实验. 氙气的初始背压为 5.5 MPa, 电磁阀控制器触发电平信号的时间宽度为 2 ms, 以保证喷嘴

正常打开. 首先测量超快光电二极管的杂散信号本底, 在喷嘴不喷气的情况下触发二极管, 经多次测量, 在示波器上读出的本底信号强度约为 0.023 V.

将电磁阀控制器的电源打开, 电磁阀的快门在零时刻被触发, 将背压从 5.5 MPa 依次降低, 在示波器上获得的瑞利散射信号随时间的变化如图 2 所示, 图 2(a)—(f) 对应的背压依次为 2.3, 3.5, 4, 4.3, 4.6, 5.2 MPa. 从图 2 可以看出, 瑞利散射信号是从约 5 ms 的位置开始高于本底, 即此时开始有团簇经过激光区域, 在经历了一个平台区后, 瑞利散射信号出现了一个尖峰, 散射强度达到了最大值. 从图 2(a) 至 (f), 随着气体初始背压的增加, 平台区的信号强度越来越高, 并且在 5.2 MPa 时与尖峰合并形成一个单峰.

我们分析这是由于气体密度的空间分布具有密度梯度造成的. 通过对喷嘴附近的气体密度进行测量发现, 在喷嘴与激光区域之间的气体密度呈线性降低, 并且随着气体初始背压的增加, 线性下降的幅度增大. 即在不同时刻有不同数量的气体分子经过激光区域, 则先经过激光区域的那部分气体由于密度小, 所以形成团簇的尺寸小, 并且不是所有的气体原子都会参与形成团簇. 根据 $I_R \propto N'N$, 其中 N' 为参与形成团簇的总原子数, N 为形成团簇的平均尺寸, N' 与 N 都较小, 因此不能形成强的瑞利散射而出现一个平台区, 如图 2(a), (b) 所示. 我们认为, 原子数密度存在阈值, 当原子数密度高于该值时, 所有的原子都可以参与形成团簇, 因此, 随着密度高的那部分气体扩散到激光区域, 所有的原子将参与形成大尺寸的团簇, N' 与 N 都较大, 瑞利散射强度急剧增加, 形成了具有尖峰结构的瑞利散射信号, 在达到最大值以后信号下降是由于电磁阀快门的关闭, 原子数密度急剧减小所致. 图 2(c), (d), (e) 中, 随着背压的增加, 气体密度梯度的斜率以及气体膨胀的定向初速度都随之增大, 使原子生成团簇的效率提高, 平台区的强度也随之增强. 随着背压的进一步增加, 气体的原子数密度可以在初始时刻就高于阈值, 因此所有的原子都可以参与形成团簇, 就出现了图 2(f) 所示的单峰结构.

从图 2 可以看出, 在 2.3—5.2 MPa 范围内, 瑞利散射信号大约都在 5 ms 位置开始产生. 这是因为激光距离喷嘴较近, 而我们使用的喷嘴为超声速喷嘴, 在气体喷出的瞬间产生的团簇就可达到激光区域, 因此团簇的速度对瑞利散射信号随时间变化的影响是可以忽略的. 瑞利散射随时间的变化主要受喷嘴维持打开状态的时间以及打开状态的影响.

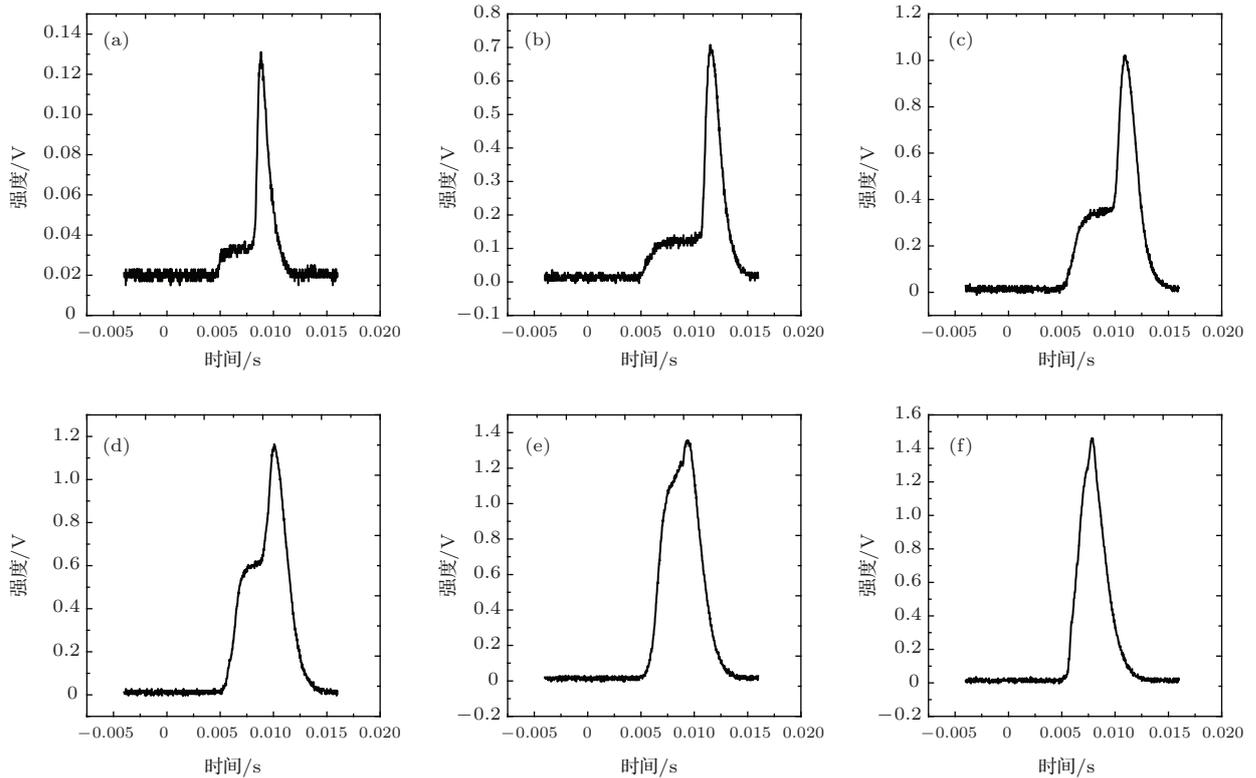


图2 氙团簇的瑞利散射信号随时间的变化 (a) 背压为 2.3 MPa; (b) 背压为 3.5 MPa; (c) 背压为 4 MPa; (d) 背压为 4.3 MPa; (e) 背压为 4.6 MPa; (f) 背压为 5.2 MPa

对不同背压下的瑞利散射峰值强度进行统计与拟合, 得到如图 3 所示的结果. 在不同的背压下, 瑞利散射强度有明显的不同, 即形成的团簇尺寸差异很大. 当背压约为 1 MPa 时, 散射信号强度刚刚超过本底, 即有团簇开始形成, 随着背压的增大, 散射信号强度呈指数增长, 当背压达到 5 MPa 后, 散射信号出现了下降的趋势, 因此我们对 5 MPa 之前的数据进行指数拟合, 得到 $I = 0.025P^{2.61}$ (理论值为 $I \propto P^{3.0-3.5}$), 根据 (4) 式以及 Ditmire 定标 (超过本底时团簇的平均尺寸 N 大于 100), 可以求出任意背压时获得的团簇的平均尺寸, 例如 5 MPa 时氙团簇的平均尺寸 N 约为 1400. 将喷嘴的几何参数、气体的初始背压和温度代入 (1) 和 (2) 式, 从理论上得到 5 MPa 氙气常温下形成氙团簇的平均尺寸为 1748, 与实验所得结果较为符合. 5 MPa 之后出现的瑞利散射强度下降, 我们认为可能是源于高密度的氙原子在膨胀过程中产生了液滴, 导致产生团簇的数量减少, 瑞利散射强度下降. 因为氙气是一种非常容易液化的气体, 它的临界温度为 290 K, 对应的临界压强为 5.8 MPa, 考虑到高压氙气 (高于 5 MPa) 在绝热膨胀的过程中会获得较低的温度, 部分高密度氙原子很容易液化产生液滴.

我们将瑞利散射信号达到峰值强度时的时间

简称为峰值时间 (peak time). 从图 3 可以看出, 峰值时间在背压为 0.6—3.5 MPa 区间逐渐上升, 从 6 ms 增长到 12 ms; 当背压大于 3.5 MPa 时, 峰值时间开始逐渐下降, 由 12 ms 逐次下降为 5.5 MPa 时的 6.4 ms. 研究发现, 气体原子的密度在喷嘴关闭的时刻达到最大值 [5], 即此时形成的团簇数量更多, 尺寸更大. 因此, 上升区间是由于气体初始背压增大, 导致电磁阀快门关闭困难 [9], 峰值时间被推迟; 下降区间是由于平台区与尖峰逐渐合并, 导致峰值时间提前.

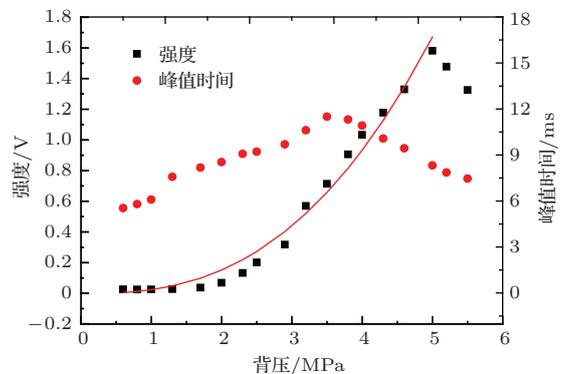


图3 (网刊彩色) 氙团簇的瑞利散射峰值强度及峰值时间随背压的变化 (黑色的正方形代表瑞利散射峰值强度, 红色的圆形代表峰值时间, 红色曲线为对瑞利散射峰值强度的指数拟合)

3.2.2 氫氙混合气体形成的团簇的瑞利散射结果及分析

用含有20%氫气的氫氙混合气体取代纯氫气,背压为5.5 MPa,在相同的条件下继续进行瑞利散射实验,测得瑞利散射信号随时间的变化如图4所示,图4(a)—(f)对应的背压依次为2.1, 3.3, 3.8, 3.9, 4.7, 5.4 MPa.从图4可以看出,在气体初始背压较低时,瑞利散射信号随时间的分布为单峰结构(图4(a));随着背压的增加,在峰值结构的下降沿出现了另一个峰(图4(b)),并随着背压的增加而越来越大(图4(c)—(e)),而前面的峰转化为图2中类似的平台结构(图4(f)).这是由于混合气体中氫原

子所占的比例较小,使氫原子密度较小,而低背压情况下的氫原子密度更小,导致只有少部分氫原子在绝热膨胀过程中能形成团簇,且形成的团簇尺寸较小,因此得到的瑞利散射信号强度较弱,在达到峰值强度后迅速下降,形成单峰结构;随着背压的增大,氫原子密度随之增大,在喷嘴关闭之前,少部分氫原子可以形成尺寸较大的团簇,而绝大多数的氫原子形成的团簇尺寸较小,导致在瑞利散射峰值结构的下降沿出现另一个峰;随着背压的进一步增大,氫原子密度越来越大,越来越多的氫原子参与形成大尺寸团簇,使后面的瑞利散射峰值越来越强.

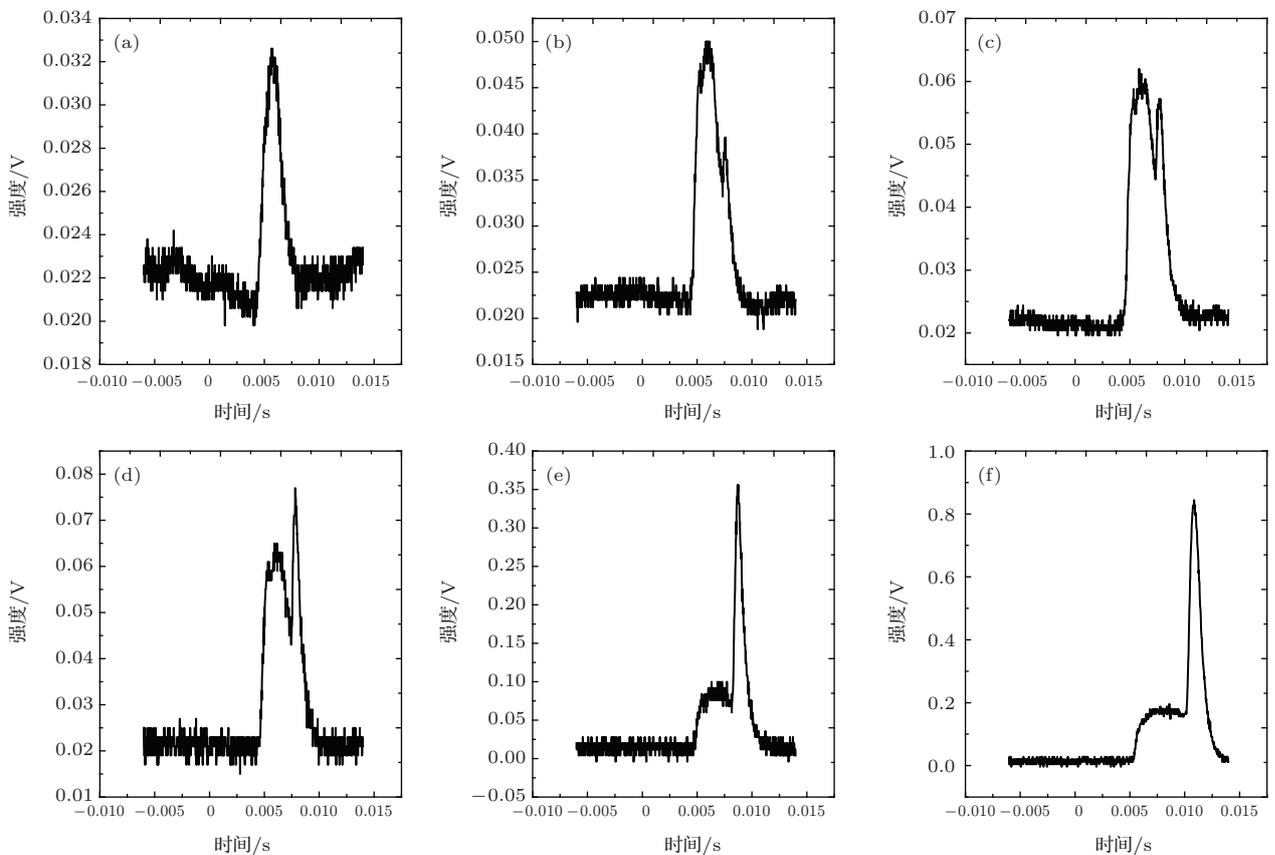


图4 氫氙混合气体形成的团簇的瑞利散射信号随时间的变化 (a) 背压为2.1 MPa; (b) 背压为3.3 MPa; (c) 背压为3.8 MPa; (d) 背压为3.9 MPa; (e) 背压为4.7 MPa; (f) 背压为5.4 MPa

我们对不同背压下氫氙混合气体形成团簇的瑞利散射峰值强度进行统计与拟合,得到如图5所示的结果.随着背压的增加,瑞利散射峰值强度呈指数增长.背压低于3.8 MPa时,瑞利散射强度随背压增长缓慢;当背压高于3.8 MPa时,瑞利散射峰值强度急速增长.我们对数据进行指数拟合得到散射强度与背压的关系: $I = (1.5 \times 10^{-5})P^{6.47}$, 散射强度的增长指数(6.47)明显高于纯氫气时

的增长指数(2.61)以及Hagena公式给出的理论值(3.0—3.5),并且常数项(1.5×10^{-5})远小于纯氫气时的常数项(0.025).这是由于混合气体中只有氫气可以形成团簇,而氫气所占的比例又很小.我们对(5)式进行推广,得到如下混合气体形成团簇的瑞利散射强度与背压的关系:

$$I_R = a_0(xP)^{\beta+1}P^\gamma, \quad (8)$$

式中, a_0 为常数项, x 为混合气体中氫气所占的比

例, P^γ 为混合气体中氢气对团簇形成的影响. 对 (8) 式进行合并同类项可得

$$I_R = A_0 P^{\mu+1}, \quad (9)$$

式中, A_0 为 a_0 与 $x^{\beta+1}$ 的乘积, 因此 A_0 小于传统的常数项 a_0 , 而 $\mu + 1$ 为 $\beta + 1$ 与 γ 之和, 所以 P 的指数项较大. $\mu + 1$ 值的大小与混合比例以及气体的总背压都有关.

混合气体形成团簇的瑞利散射信号的峰值时间随背压的变化与纯氙气相比具有不同的特点, 如图 5 所示. 在背压增加到 3.8 MPa 之前, 峰值时间稳定在 6 ms 左右; 在背压增加到 3.8 MPa 时, 峰值时间开始迅速增加. 这一现象可以结合图 4 进行解释, 在 3.8 MPa 之前, 瑞利散射的最大峰值稳定在第一个峰处 (图 4 (a)–(c)), 因此峰值时间为 6 ms; 当背压高于 3.8 MPa 时, 第二个峰高于第一个峰并占据主导优势 (图 4 (d)–(f)), 峰值时间随之增加. 这些数据表明, 氢氙混合气体与纯氙气具有不同的团簇形成过程.

对比图 5 与图 3 可以看出, 混合气体的瑞利散射强度绝对值在 5 MPa 范围内低于纯氙气. 但是由于它的增长指数约为纯氙气时的 2.5 倍, 因此当

背压增大到某个值 P_0 时, 可以使两者的瑞利散射强度相等. 根据计算可得出 $P_0 = 6.8$ MPa, 这个值是本文实验无法达到的, 因为所使用的电磁阀的安全工作背压低于 6 MPa, 但是我们可以从理论上进行分析. 当背压达到 6.8 MPa 时, 混合气体中的氙原子密度与纯氙气相比较低, 即混合气体形成的团簇数量少, 但是它们可获得相同的瑞利散射强度, 说明混合气体形成了更大尺寸的团簇, 也就说明混合气体更有利于团簇的形成.

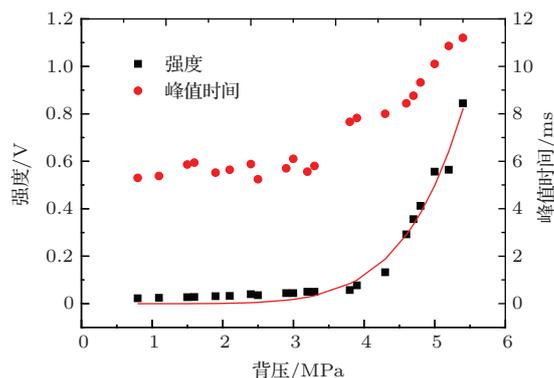


图 5 (网刊彩色) 氢氙混合气体形成的团簇的瑞利散射峰值强度及峰值时间随背压的变化 (黑色的正方形代表瑞利散射峰值强度, 红色的圆形代表峰值时间, 红色曲线为对瑞利散射峰值强度的指数拟合)

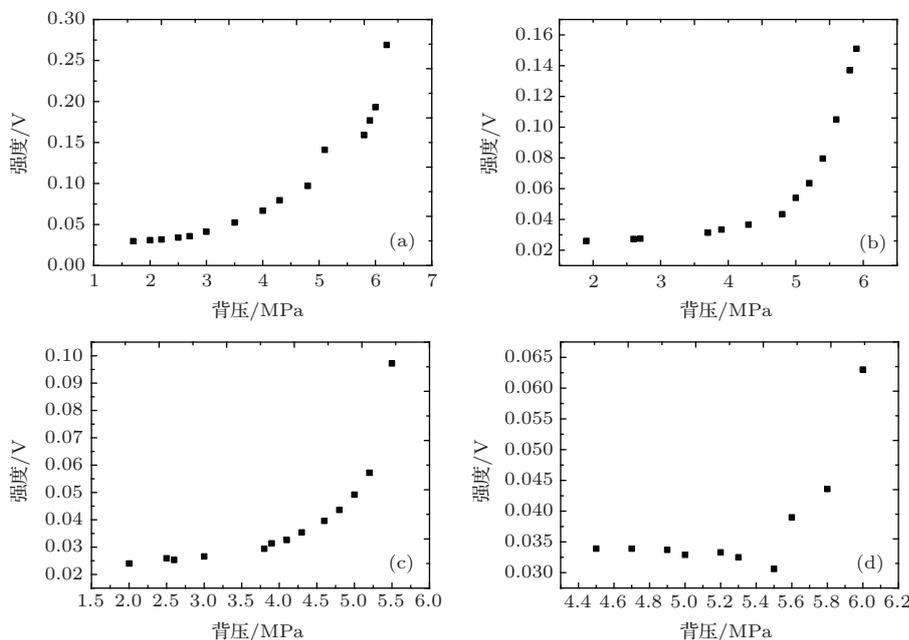


图 6 不同混合比例的氢氙混合气体形成的团簇的瑞利散射峰值强度随背压的变化 (a) 9.5%; (b) 5%; (c) 3.3%; (d) 1.7%

对于氢氙混合气体有利于氙原子形成团簇, 可以从两个方面进行分析. 首先从团簇形成的热力学角度来讨论. 气体绝热膨胀过程中, 内能转化为定向动能使内能降低, 膨胀导致分子间距增大, 分子

间势能增大, 使分子热运动的动能减少, 气体的温度降低形成过饱和气体, 但在分子凝结形成团簇的过程中, 分子间距被减小, 分子间作用力做正功又导致分子热运动的动能增加, 不易于形成团簇; 当

气体中加入氢气等常温下不容易形成团簇的缓冲气体时,分子凝结形成团簇过程中增加的热运动动能被周围环绕的冷氢原子碰撞而吸收,从而增加了大尺寸团簇形成的概率.然后从团簇中分子间作用力的角度来讨论.团簇中的分子是通过范德华力结合在一起的,而非极性分子间的范德华力以色散力为主导,色散力的定义是分子相互靠拢时,瞬时的偶极矩间产生的电性吸引力,瞬时偶极矩来自于电子云分布的瞬时不均匀性;氢气分子虽然是非极性分子,但由于氙原子核对外层电子的吸引力较弱,氙原子的外层电子云的分布易受到氢原子核的影响,增加了瞬时偶极矩的产生,即增大了氙原子间的色散力,从而增大了范德华力,使氙原子更有利于形成团簇.

图5中瑞利散射的强度随背压的增加一直增大,并没有出现图3中高于5 MPa时下降的情况,即当氙气中加入氢气以后,使氙气不易于发生液化.这是由于当两种气体互溶后,它们的沸点将发生改变,变为两种气体沸点的中间值,趋近于占比例较高的那部分气体的沸点.混合气体中氢气的含量远高于氙气,因此它的沸点接近氢气的沸点,使其难以液化.

改变混合气体中氙气的比例,继续进行瑞利散射的测量,得到的结果如图6所示.图6(a)—(d)中氙气所占的比例依次为9.5%, 5%, 3.3%, 1.7%.从图6可以看出,随着氙气比例的减少,瑞利散射的强度随之减小.这是由于混合气体中氙原子数的减少,直接影响到形成氙团簇的尺寸和数量.

因此,虽然氢氙混合气体中氢气的加入对氙团簇的形成有一定的促进作用,但最终参与团簇形成的还是氙原子本身,所以混合气体中氙气的混合比例同样非常重要.为了产生大尺寸的团簇,既需要高的初始背压,还需要合适的混合比例.

4 结 论

本文对纯氙气以及氢氙混合气体形成的团簇的瑞利散射进行了测量,具体分析了瑞利散射强度随时间的变化,研究了气体初始背压对瑞利散射强度的影响,对散射信号峰值时间与背压的关系进行了总结与分析,从理论与实验两方面估算了形成的氙团簇的平均尺寸,并研究了不同混合比例下瑞利散射强度与背压的关系.发现了混合气体中氢气对氙团簇形成的促进作用,并从热力学和分子间作用力的角度进行了理论分析;得到了氢氙混合气体不

易于液化这一新现象,为实现高背压下更大尺寸团簇的产生提供了可能.本文结果为今后的基于氙团簇的X射线产生实验,以及基于氙氙混合气体的中子产生实验研究提供了良好的实验依据,对峰值时间的规律性研究为实验中激光与团簇作用延时的调节提供了非常精确的参考数据.瑞利散射的测量只能从一个角度反映团簇的特性,在下一阶段的工作中,我们将提高入射激光的能量,从团簇对激光的能量吸收率的角度来进一步对混合气体形成的团簇的特性进行研究.

参考文献

- [1] Wang G H 2003 *Clusters of Physics* (Shanghai: Science and Technology Press) p1 (in Chinese) [王广厚 2003 团簇物理学 (上海: 科学技术出版社) 第1页]
- [2] Yan W C, Chen L M, Li D Z, Zhang L, Nasr A M, Dunn J, Ma Y, Huang K, Su L N, Chen M, Sheng Z M, Zhang J 2014 *PNAS* **111** 5825
- [3] Zhang L, Chen L M, Wang W M, Yan W C, Yuan D W, Mao J Y, Wang Z H, Liu C, Shen Z W, Faenov A, Pikuz T, Li D Z, Li Y T, Dong Q L, Lu X, Ma J L, Wei Z Y, Sheng Z M, Zhang J 2012 *Appl. Phys. Lett.* **100** 014104
- [4] Chen L M, Yan W C, Li D Z, Hu Z D, Zhang L, Wang W M, Nasr A M, Mao J Y, Huang K, Ma Y, Zhao J R, Ma J L, Li Y T, Lu X, Sheng Z M, Wei Z Y, Gao J, Zhang J 2013 *Sci. Rep.* **3** 1912
- [5] Ditmire T, Zweiback J, Yanovsky V P, Cowan T E, Hays G, Wharton K B 2000 *Phys. Plasmas* **7** 1993
- [6] Bang W, Barbui M, Bonasera A, Quevedo H J, Dyer G, Bernstein A C, Hagel K, Schmidt K, Gaul E, Donovan M E, Consoli F, De Angelis R, Andreoli P, Barbarino M, Kimura S, Mazzocco M, Natowitz J B, Ditmire T 2013 *Phys. Rev. E* **88** 033108
- [7] Hagena O F, Obert W 1972 *J. Chem. Phys.* **56** 1793
- [8] Smith R A, Ditmire T, Tisch J W G 1998 *Rev. Sci. Instrum.* **69** 3798
- [9] Wang L, Wu Y C, Wang H B, Liu H J, Ge F F, Chen J B, Zheng Z J, Gu Y Q, Shi S T, Luo X B, Yang C W 2007 *Acta Phys. Sin.* **56** 6918 (in Chinese) [王磊, 吴玉迟, 王红斌, 刘红杰, 葛芳芳, 陈家斌, 郑志坚, 谷渝秋, 史叔廷, 罗小兵, 杨朝文 2007 物理学报 **56** 6918]
- [10] 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]
- [11] 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]
- [12] Liu H J, Gu Y Q, Zhou W M, Gao Y L, Shan L Q, Zhu B, Wu Y C, Jiao C Y, Li F, Cao L F, Zhang B H, Zheng Z J 2011 *Chin. Phys. B* **20** 065203

- [13] Ditmire T, Zweiback J, Yanovsky V P, Cowan T E, Hay G, Wharton K B 1999 *Nature* **398** 489
- [14] Bang W, Dyer G, Quevedo H J, Bernstein A C, Gaul E, Donovan M, Ditmire T 2013 *Phys. Rev. E* **87** 023106
- [15] Last I, Jortner J 2001 *Phys. Rev. Lett.* **87** 033401
- [16] Lu H Y, Liu J S, Wang C, Wang W T, Zhou Z L, Deng A H, Xia C Q, Xu Y, Leng Y X, Ni G Q, Li R X, Xu Z Z 2009 *Phys. Plasmas* **16** 083107
- [17] Kandadai N K 2012 *Ph. D. Dissertation* (USA: The University of Texas at Austin)
- [18] Wormer J, Guzielski V, Stapelfeldt J, Moller T 1989 *Chem. Phys. Lett.* **159** 321
- [19] Hagena O F 1987 *Z. Phys. D: Atoms, Molecules Clusters* **4** 291

Characterizations of clusters generated by pure xenon and hydrogen xenon gas mixture at room temperature*

Zhao Jia-Rui¹⁾ Li Yi-Fei¹⁾ Ma Jing-Long¹⁾ Wang Jin-Guang¹⁾ Huang Kai¹⁾
 Han Yu-Jing¹⁾ Ma Yong¹⁾ Yan Wen-Chao¹⁾ Li Da-Zhang³⁾ Yuan Da-Wei¹⁾
 Li Yu-Tong¹⁾ Zhang Jie²⁾ Chen Li-Ming¹⁾†

1) (*Laboratory of Optical Physics, Beijing National Laboratory for Condensed Matter Physics, Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China*)

2) (*Key Laboratory for Laser Plasmas of Ministry of Education, Shanghai Jiaotong University, Shanghai 200240, China*)

3) (*Institute of High Energy Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China*)

(Received 24 June 2014; revised manuscript received 27 August 2014)

Abstract

Rayleigh scattering method can be used to investigate the cluster size and the cluster formation process, and its advantages are that it is easy to perform and non-disruptive. In this paper, by measuring the Rayleigh scattering intensities of clusters generated respectively in pure xenon gas and hydrogen-xenon gas mixture, the relationships of Rayleigh scattering intensity to time, backing pressure, and mixture ratio are studied, and according to these relationships, the average sizes of clusters under different conditions are estimated. Through the scaling law of the Rayleigh scattering intensity obtained in hydrogen-xenon gas mixture with respect to upstream gas pressure, i.e., $I = (1.5 \times 10^{-5})P^{6.47}$, the hydrogen of mixed gas is found to be conducive to the generating of xenon clusters. The advantages of hydrogen-xenon gas mixture for generating clusters are analyzed theoretically from the perspective of thermodynamics and intermolecular forces, and a new phenomenon, i.e., the hydrogen xenon gas mixture is not easy to liquefy, is found. This finding provides a new way to generate larger size clusters. Our results are expected to provide guidelines for the future experimental researches of the X-ray generated by xenon clusters and of the neutron generated by the deuterium-xenon mixture gas.

Keywords: xenon clusters, Rayleigh scattering, gas mixture

PACS: 21.60.Gx, 36.40.Vz, 52.38.Bv

DOI: 10.7498/aps.64.042101

* Project supported by the National Basic Research Program of China (Grant Nos. 2013CBA01501, 2013CBA01504), the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 11175192), and the Special Funds of the Major Scientific Instruments Equipment Development of China (Grant No. 2012YQ120047).

† Corresponding author. E-mail: lmchen@iphy.ac.cn