

# 液氢平面低温冷冻靶的红外吸收谱

毕 鹏<sup>1)2)</sup> 刘元琼<sup>2)</sup> 唐永建<sup>2)</sup> 杨向东<sup>1)</sup> 雷海乐<sup>2)†</sup>

1) (四川大学原子与分子物理研究所, 成都 610065)

2) (中国工程物理研究院激光聚变研究中心, 绵阳 621900)

(2009 年 11 月 15 日收到; 2010 年 3 月 1 日收到修改稿)

利用自主研制的平面低温冷冻靶系统和低温红外光谱测量系统, 测量低温条件下液态氢的红外吸收谱, 得出基频  $Q_1(0)$  吸收峰位在  $4237.3 \text{ cm}^{-1}$  处, 随着温度从 19.75 K 降到 16.75 K, 吸收峰位几乎没有发生移动, 而吸收增强. 基于量子力学的非简谐近似, 研究了氢分子的振动频率, 得出  $\text{H}_2$  的红外吸收频率与实验结果值一致.

**关键词:** 惯性约束核聚变, 冷冻靶, 氢, 红外光谱

**PACC:** 0130Q, 0720M, 0765G

## 1. 引 言

氢能作为一种洁净的可再生能源而备受关注<sup>[1-5]</sup>. 作为氢能的一种实现方式, 惯性约束聚变 (ICF) 研究已经获得了高度的重视. 在 ICF 实验中, 需要研究氢及其同位素 (如  $\text{H}_2$ ,  $\text{D}_2$ ,  $\text{DT}$  等) 在低温条件下与强冲击波的相互作用, 来获取相关状态方程的实验数据<sup>[6]</sup>, 以及研究低温液体或固体的瑞利-泰勒流体力学不稳定性. 该实验研究需要首先制备出相应分子/原子的平面低温冷冻靶. 鉴于实验的需要, 我们已经自主设计研制了平面低温冷冻靶系统, 在该系统上初步进行了氢、氘的冷冻实验并做了低温测试和控制技术的研究<sup>[7,8]</sup>. 在氢、氘冷冻靶制备中, 由于液体向固体转化过程中的重力作用, 冷冻靶受到不均匀的体加热, 冷冻靶支撑结构影响靶周围的等温环境, 靶丸自身内表面的粗糙度、缺陷, 以及燃料液化/固化相分离、液体结晶时生成的缺陷, 致使冷冻靶的制备面临一大难题, 即如何在球壳内表面形成一定厚度、分布均匀的氢同位素固体冰层. 红外加热均化则是突破这一难题的技术手段之一. 为了确定加热均化冷冻靶最有效的红外光波长, 需要测定低温条件下氢及其同位素的红外吸收光谱. 尽管早在上个世纪中后期, 国外已经开展了低温条件下氢及其同位素红外吸收谱的实验测量<sup>[9-13]</sup>和理论研究工作<sup>[14,15]</sup>, 可是国内才刚

刚起步<sup>[16,17]</sup>. 由于该研究的重要性, 本文特拟在平面低温冷冻靶系统的平台上, 在低温条件下对氢进行红外吸收光谱的测量.

## 2. 实 验

实验装置主要由平面低温冷冻靶系统和低温红外光谱测量系统组成. 平面低温冷冻靶系统包括: G-M 制冷机、真空泵、温度传感器、测温控温仪、靶架、靶盒, 如图 1(a) 所示. 低温红外光谱测量系统包括: 红外光源、斩波器、滤波片轮、单色仪、准直聚焦光路、探测器、锁相放大器、信号处理及数据采集系统, 如图 1(b) 所示.

其中, 平面低温冷冻靶系统采用多层真空屏蔽方式, 温度梯度通过控制 G-M 制冷机上下两个冷头来实现, 待充气/冷冻的样品盒置于两冷头之间. 平靶架材料为高导无氧铜, 呈圆柱形, 并且用石英光学玻璃将两个端面进行密封; 圆柱体壁上有一小孔, 该小孔内嵌一直径约 0.2 mm 的微铜管进入靶盒. 在制备靶的过程中, 充气 and 冷冻同时进行, 气体通过充气管道由气源进入靶盒, 同时用一质量控制器 (MFC) 来控制, 最小流量可达  $2 \text{ mL/min}$ . 在低温红外光谱测试系统中, 红外光源为 SiC 棒, 探测器为 HgCdTe, 探测波长 ( $\lambda$ ) 范围为  $2-6 \mu\text{m}$ .

实验中, 首先对冷冻室和靶盒抽真空, 真空度至  $10^{-4} \text{ Pa}$ . 然后将温度降至 19.75 K (标准状态下,

† 通讯联系人. E-mail: hailelei@caep.ac.cn

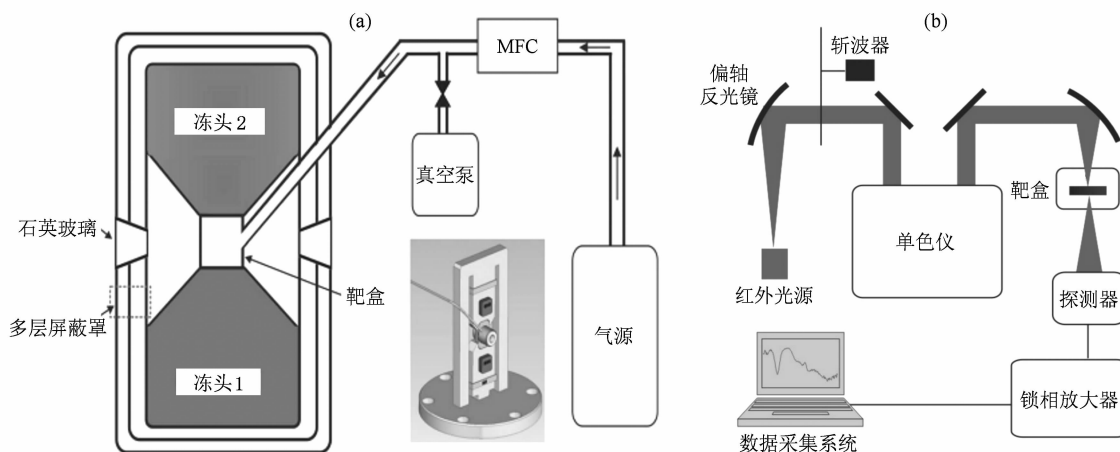


图1 实验装置示意图 (a)平面低温冷冻靶系统;(b)低温红外光谱测量系统

氢的三相点温度为  $13.957\text{ K}^{[18]}$ , 靶盒上下温差为  $0$ . 利用低温红外光谱测量系统测得未充气时透过靶盒的红外光强度, 如图 2(a). 开启流量控制计, 以  $2\text{ mL/min}$  的进气速率向靶盒充入氢气, 直到靶盒内完全充满液氢. 而后, 测量透过充满液氢时靶盒的红外光强度, 如图 2(b). 同时, 利用 Mach-Zehnder 干涉方法在线原位监测了靶盒内为真空时和充满液氢时的干涉图像(见图 2(a)和(b)插图), 确保了红外光谱测量的准确, 具体方法见文献[7,8].

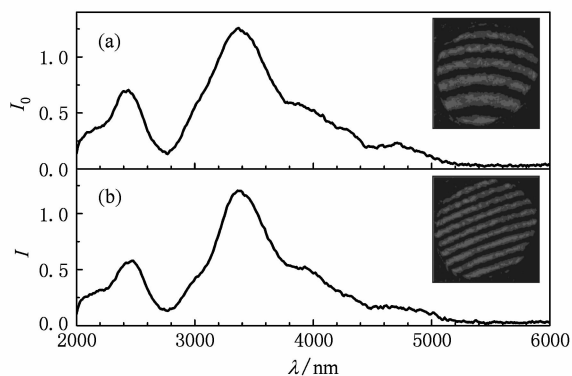


图2 充气前后所测得的红外光强度 (a)靶盒内为真空时测得的红外光强度(插图为对应状态下的干涉图像);(b)19.75 K 温度下靶盒内充满液氢时测得的红外光强度(插图为该温度下充满液氢时的干涉图像)

### 3. 结果与分析

由郎伯定律:  $T = I/I_0 = \exp(-\alpha t)$ ,  $T$  为透过率,  $I_0$  为在真空条件下透过靶盒的红外光强度,  $I$  为透过充满液氢的靶盒的红外光强度;  $\alpha$  和  $t$  分别为吸

收系数和样品厚度<sup>[19]</sup>. 得出液氢在三个不同温度下的红外吸收谱线, 如图 3 所示.

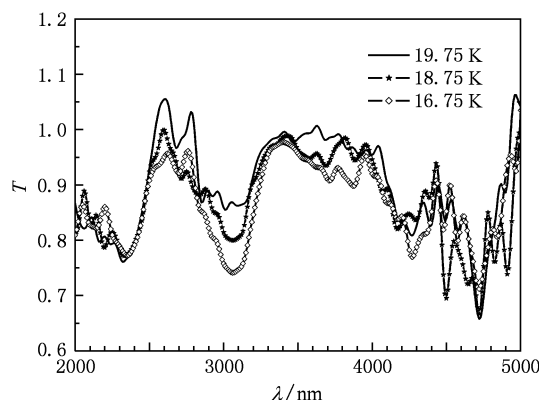


图3 液氢的红外吸收谱

从图 3 可以看出, 两个强吸收峰出现在 2360 和 3060 nm 处, 对应的波数分别为  $4237.3$  和  $3267.0\text{ cm}^{-1}$ . 而且, 随着温度从 19.75 K 降到 16.75 K, 吸收峰位几乎没有发生移动, 而吸收强度变大. 之所以吸收峰位没有变化, 是因为一方面温度变化不明显; 另一方面谱线的分辨率(20 nm)不高. 而吸收增强是由于随着温度的降低, 靶盒内的压强下降, 需补充氢气, 补充气体致使靶盒内的液氢的密度变大(19.92 K 时,  $\rho = 71.37\text{ kg/m}^3$ ; 16.41 K 时,  $\rho = 74.94\text{ kg/m}^3$ <sup>[18]</sup>), 进而吸收更明显.

红外光谱的选择定则为分子振动时其电偶极矩要发生变化<sup>[20]</sup>. 氢分子为二原子分子, 由于它的对称性, 电偶极矩在气态情况下没有变化而其不具备红外活性. 但是, 当处在固态或液态时, 一方面,

依然能够保持它在气态时所具有的振(转)动性质;另一方面,分子间的范德瓦尔斯力更加明显,将诱导电偶极矩发生变化而具有红外活性<sup>[21]</sup>. 故对于液氢,我们可以测量其红外吸收谱.

由于红外吸收谱主要是关于分(原)子的振动的谱线,那么可以通过计算氢分子的振动频率来确定其吸收峰的位置. 如果把氢分子的振动看作非简谐振动,那么其振动光谱项为<sup>[22]</sup>

$$G(v) = \omega_e \left( v + \frac{1}{2} \right) - \omega_e x_e \left( v + \frac{1}{2} \right)^2, \quad (1)$$

$$G(v+1) - G(v) = \omega_e - 2(v+1)\omega_e x_e, \quad (2)$$

又  $H_2$  光谱常数<sup>[23]</sup>  $\omega_e$  和  $\omega_e x_e$  分别为  $4401.213 \text{ cm}^{-1}$ ,  $121.336 \text{ cm}^{-1}$ .

氢分子振动频率  $G(v+1) - G(v)$  与振动量子数  $v$  的对应关系如表 1 所示.

表 1 氢分子振动频率  $G(v+1) - G(v)/\text{cm}^{-1}$

$v$	0	1	2	3	4	5
$G(v+1) - G(v)$	4158.5	3915.9	3673.2	3430.5	3187.9	2945.2

由此可见,我们测量所得到的两个吸收峰对应于振动基频  $Q_1(0)$  和振动能级由  $v=4 \rightarrow v=5$  的跃迁. 这两个吸收带宽分别为  $728.66 \text{ cm}^{-1}$  和  $682.01 \text{ cm}^{-1}$ , 但是鉴于探测器分辨率的能力,跃迁概率高于  $v=4 \rightarrow v=5$  的  $v=1 \rightarrow v=2$ ,  $v=2 \rightarrow v=3$  及  $v=3 \rightarrow v=4$  被合并在这两个吸收带之间. 用上面的方式得出的氢气分子振动频率,考虑的是两个原子之间的

相互作用,是一种较理想的情况;而在我们实验条件下,大量氢分子之间相互作用,同时还存在振动和转动的耦合,另外少量正氢分子的作用也会对谱线产生一定影响(氢分子分正氢和仲氢这两类,正氢自旋平行,仲氢自旋反平行,液态下仲氢的所占比例超过 99%<sup>[24]</sup>). 因而,分析的氢分子的振动频率与实验的结果有一定的误差. 计算得到的振动基频  $4158.5 \text{ cm}^{-1}$  和实验的结果  $4237.3 \text{ cm}^{-1}$  之间相差  $78.8 \text{ cm}^{-1}$ , 误差为 1.9%. 同时得出的结果与 Nucara 等人测量的  $4240 \text{ cm}^{-1}$  非常符合<sup>[25]</sup>.

## 4. 结 论

利用自主研制的平面低温冷冻靶系统和低温红外光谱测量系统,对液态氢的红外吸收谱进行了测量,得出 16.75—19.75 K 三个不同温度下的吸收谱线. 用非简谐近似的方法计算氢分子的振动频率和实验结果相一致. 实验发现:将温度降至三相点及其以下,氢由液态向固态转化形成的固态氢为多晶体结构,表面粗糙. 这样的固态氢对入射红外光有较强的漫反射,造成测得的红外光强度显著降低. 因此,该状态下测得的红外光强度降低不仅仅是由于氢的吸收. 故不能由此确定固体氢的红外光吸收谱. 为了测量固体氢的红外光吸收谱,需要先对固体氢进行均化处理,以获得表面光滑的单晶固体. 这将是我们下一步的工作.

[1] Chen Q F, Cai L C, Jing F Q, Chen D Q 1999 *Acta Phys. sin.* **48** 485 (in Chinese) [陈其峰、蔡灵仓、经福谦、陈栋泉 1999 物理学报 **48** 485]

[2] 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]

[3] Zhou J J, Chen Y G, Wu C L, Zheng X, Fang Y C, Gao T 2009 *Acta Phys. sin.* **58** 4853 (in Chinese) [周晶晶、陈云贵、吴朝玲、郑 欣、房玉超、高 涛 2009 物理学报 **58** 4853]

[4] Dai W, Tang Y J, Wang C Y, Sun W G 2009 *Acta Phys. sin.* **58** 7313 (in Chinese) [戴 伟、唐永建、王朝阳、孙卫国 2009 物理学报 **58** 7313]

[5] Zheng L, Wang C, Li S H, Liu B C, Ni G Q, Li R X, Xu Z Z 2006 *Chin. Phys.* **15** 0697

[6] Lindl J 1995 *Phys. Plasmas* **2** 3933

[7] Lei H L, Li J, Tang Y J, Shi H L, Liu Y Q 2009 *High Power Laser and Particle Beams* **21** 0053 (in Chinese) [雷海乐、黎 军、唐永建、师洪丽、刘元琼 2009 强激光与粒子束 **21** 0053]

[8] Lei H L, Li J, Tang Y J, Liu Y Q 2009 *Rev. Sci. Instrum* **80** 033103

[9] Okumura M, Chan M C, Oka T 1989 *Phys. Rev. Lett.* **62** 32

[10] Chan M C, Okumura M, Gabrys C M, Xu L W, Rehfsuss B D, Oka T 1991 *Phys. Rev. Lett.* **66** 2060

[11] Steinhoff R A, Winnewisser B P, Winnewisser M 1994 *Phys. Rev. Lett.* **73** 2833

[12] Mengel M, Winnewisser B P, Winnewisser M 1997 *Phys. Rev. B* **55** 10420

[13] Zhang Y, Byers T J, Chan M C, Momose T, Kerr K E, Weliky D P, Oka T 1998 *Phys. Rev. B* **58** 218

- [14] Kranendonk J V, Karl G 1968 *Rev. Mod. Phys.* **40** 531
- [15] Morishita K, Ioarashit J 1989 *Journal of the Physical Society of Japan* **58** 3406
- [16] Deng W P, Xu G, Wan L, Liu A W, Gao B, Du J H, Hu S M, Chen Y 2008 *Acta Phys. Chim. Sin.* **24** 1329
- [17] Wang Y, Dong S L 2005 *Chin. Phys.* **14** 1942
- [18] Chen G B, Bao R, Huang Y H 2006 *Cryogenic engineering technical data* (Beijing: Chemical Industry Press) p122—127 (in Chinese) [陈国邦、包 锐、黄永华 2006 低温工程技术数据(北京:化学工业出版社)第 122—127 页]
- [19] Miller R G J, Stace B C (Translated by Yu Q L) 1985 *Laboratory Methods in Infrared Spectroscopy* (Second Edition) (Beijing: Mechanical Industry Press) p67 (in Chinese) [米勒 R. G. J.、斯特斯 B. C. 著 于铨林 译 1985 红外光谱学的实验方法(第二版)(北京:机械工业出版社)第 67 页]
- [20] Stuart B 2004 *Infrared Spectroscopy: Fundamentals and Applications* (Chichester: John Wiley and Sons) p5
- [21] Kranendonk J V 1983 *Solid Hydrogen: Theory of the Properties of Solid  $H_2$ ,  $HD$  and  $D_2$*  (New York: Plenum Press)
- [22] Xu Y Z 1987 *Theory of Molecule Spectroscopy* (Beijing: Tsinghua University Press) p174 (in Chinese) [徐亦庄 1988 分子光谱理论(北京:清华大学出版社)第 174 页]
- [23] Huber K P, Herzberg G 1979 *Molecular Spectra and Molecular Structure; IV. Constants of Diatomic Molecules* (New York: Van Nostrand Reinhold) p250
- [24] Silvera I F 1980 *Rev. Mod. Phys.* **52** 393
- [25] Nucara A, Calvani P, Cunsolo S, Lupi S, Ruzicka B 1993 *Phys. Rev. B* **47** 2590

## Infrared absorption of liquid-hydrogen planar cryotargets

Bi Peng<sup>1)2)</sup> Liu Yuan-Qiong<sup>2)</sup> Tang Yong-Jian<sup>2)</sup> Yang Xiang-Dong<sup>1)</sup> Lei Hai-Le<sup>2)†</sup>

1) (Institute of Atomic and Molecular Physics, Sichuan University, Chengdu 610065, China)

2) (Research Centre of Laser Fusion, China Academy of Engineering Physics, Mianyang 621900, China)

(Received 15 November 2009; revised manuscript received 1 March 2010)

### Abstract

Using a home-made cryotarget system and infrared spectroscopy system, we measure the infrared absorption spectra of liquid hydrogen at low temperatures. It is found that the fundamental vibration frequency of hydrogen molecule is  $4237.3 \text{ cm}^{-1}$ . As liquid hydrogen cools from 19.75 K down to 16.75 K, the infrared absorption is enhanced. The vibration frequency of hydrogen molecules is calculated on the basis of non-harmonic approximation in order to explain the experimental ones.

**Keywords:** inertial confinement fusion, cryotarget, hydrogen, Infrared spectrum

**PACC:** 0130Q, 0720M, 0765G

† Corresponding author. E-mail: hailelei@caep.ac.cn