

**НЕЛИНЕЙНО-ОПТИЧЕСКИЕ ЯВЛЕНИЯ****Эволюция рэлеевского рассеяния на смешанных Ar/Kr-кластерах в процессе их насыщения атомами криптона****И.А.Жвания, М.С.Джиджоев, А.В.Балакин, Н.А.Кузечкин, А.П.Шкуринов, В.М.Гордиенко**

*Исследована эволюция сигнала рэлеевского рассеяния на смешанных Ar/Kr-кластерах при варьировании парциальной концентрации Kr в исходной газовой смеси. Установлено, что при добавлении в аргон малой фракции криптона амплитуда сигнала рэлеевского рассеяния растет аномально быстро, что связано с резким увеличением размеров кластеров при их насыщении атомами криптона. При парциальной концентрации криптона в исходной смеси более 25% амплитуда сигнала рассеяния стабилизируется из-за насыщения процесса конденсации при кластерообразовании.*

**Ключевые слова:** рэлеевское рассеяние, смешанные кластеры, Ar, Kr, наноплазма, рентгеновское излучение.

**1. Введение**

Смешанные нанокластеры, состоящие из различных атомов или молекул, в последнее время привлекают все большее внимание исследователей [1]. Физические и химические свойства кластеров существенно зависят от их структуры и размера. Смешанные кластеры, по сравнению с гомогенными, являются более перспективными и интересными объектами с точки зрения управления их параметрами, т.к. появляется дополнительная возможность варьирования их состава, концентрации и сегрегации компонентов. Этим объясняется широкий спектр экспериментальных исследований их структуры [2, 3], которые поддерживаются моделированием процесса создания смешанных кластеров различного состава и размера (см., [4, 5]). Отметим некоторые фундаментальные задачи, связанные с возбуждением смешанных кластеров электромагнитным излучением. Это межатомная электронная релаксация [6], фрагментация под действием ИК и УФ лазерного излучения [7], генерация наноплазмы высокоинтенсивными лазерными пучками и др. Кроме того, такие структуры интересны и с прикладной точки зрения, например для генерации рентгеновского излучения и нейтронов [8], а также для исследований по атмосферной химии [9].

Для получения смешанных кластеров традиционно используют методику, основанную на сверхзвуковом расширении газа через сопло в вакуум. Формирование таких кластеров обладает рядом особенностей, которые изуче-

ны в существенно меньшем объеме, чем особенности образования однородных кластеров благородных газов. Общая тенденция образования смешанных кластеров заключается в том, что при подходящих условиях сначала образуются наночастицы из более тяжелого элемента с большей энергией связи, которые становятся центрами кластеризации для более легкого газа. В результате в смешанных кластерах в той или иной степени происходит сегрегация, т.е. разделение компонентов [10]. Кроме того, смешанные кластеры образуются в некотором узком диапазоне концентраций используемых смесей [11, 12].

К экспериментальным методам, которые применяются для определения наличия смешанных кластеров, их состава и структуры, относятся такие сложные методы, как фотоэлектронная рентгеновская спектроскопия [3, 10], а также электронная дифрактометрия [12, 13]. Как правило, диагностика смешанных кластеров осуществляется при условии использования охлажденной смеси газов, находящейся под давлением до 5 атм. В то же время для задач, связанных со взаимодействием интенсивного фемтосекундного лазерного излучения с кластерами, достижение высокой эффективности процесса энерговысвобождения сопряжено с необходимостью создания крупных кластеров, состоящих из  $10^6$  частиц и более. Это в свою очередь вынуждает использовать газовые смеси, находящиеся под высоким давлением (свыше 20 атм) [14]. При этом поиск простых методов диагностики крупных смешанных кластеров и определение условий их формирования является актуальной проблемой.

В работе [15] нами на примере газовой смеси фреон–аргон, находящейся под высоким давлением (около 25 атм), впервые было показано, что смешанные кластеры можно диагностировать по спектру рентгеновского излучения, которое генерируется при воздействии на кластеры фемтосекундного лазерного излучения субрелятивистской интенсивности. Яркие полосы в спектре рентгеновского излучения, связанные с характеристическими линиями обоих компонентов, входящих в состав смешанного кластера (хлор и аргон), являются индикаторами наличия смешанных кластеров. Недавно нами выполнены

**И.А.Жвания, М.С.Джиджоев, А.В.Балакин, А.П.Шкуринов, В.М.Гордиенко.** Московский государственный университет им. М.В.Ломоносова, физический факультет, и Международный учебно-научный лазерный центр МГУ им. М.В.Ломоносова, Россия, 119991 Москва, Воробьевы горы; e-mail: zhvania@mail.ru, djidjoevms@mail.ru

**Н.А.Кузечкин.** Институт проблем лазерных и информационных технологий РАН, Россия, Московская обл., 140700 Шатура, ул. Святоозерская, 1; e-mail: lents125@mail.ru

Поступила в редакцию 31 июля 2017 г.

исследования области существования смешанных Ag/Kr-кластеров [16]. Возникает вопрос о применимости простой диагностики существования смешанных кластеров на основе данных о рэлеевском рассеянии. Можно ожидать, что при использовании бинарных смесей, в состав которых входят компоненты с существенно разными сечениями рассеяния, увеличение рэлеевского отклика будет сигнализировать о появлении в кластере компонента с большим сечением рассеяния. К смесям, удовлетворяющим этому условию, а также перспективным для образования смешанных кластеров, относится смесь аргона с криптоном.

В настоящей работе исследуются особенности эволюции рэлеевского рассеяния смешанными Ag/Kr-кластерами, которые образуются при газодинамическом расширении смеси Ar–Kr, находящейся над соплом при комнатной температуре и давлении 25 атм, в условиях изменения парциальной концентрации криптона в исходной газовой смеси.

## 2. Экспериментальная установка и результаты эксперимента

В экспериментах формирование кластеров происходило при адиабатическом расширении газа (или бинарной смеси газов) через коническое сопло в вакуум. Диаметры критического и выходного сечений сопла составляли 0,75 и 4 мм соответственно, а полуугол при вершине был равен  $5^\circ$ . Более подробно параметры генератора кластерного пучка описаны в [17]. Регистрация сигнала рэлеевского рассеяния проводилась с помощью ФЭУ, установленного по нормали к направлению распространения зондирующего излучения линейно-поляризованного диодного лазера с длиной волны 445 нм и мощностью излучения около 10 мВт.

Интенсивность рэлеевского рассеяния  $I_R$  одиночным кластером квадратично зависит от поляризуемости рассеивающих центров  $\beta$  и числа атомов в кластере  $N$ :  $I_R = N^2 C \beta^2 I_0$ , где  $C$  – константа;  $I_0$  – интенсивность падающего излучения [18]. Квадратичность зависимости от  $N$  связана с тем, что размер кластера значительно меньше длины волны лазерного излучения, вследствие чего атомы или молекулы, образующие кластер, рассеивают излучение синфазно. Полная мощность рассеянного излучения оказывается в  $n$  раз больше, где  $n$  – число кластеров в единице объема, и определяется величиной  $nN^2$ . Отсюда следует известная кубическая зависимость рассеянного сигнала от давления газа. Поляризуемость атомов криптона примерно в 1.5 раза выше, чем атомов аргона, поэтому сечение рассеяния в случае криптона увеличивается примерно в 2.3 раза [19]. Для исследования особенностей сигнала рэлеевского рассеяния, которые могут быть обусловлены формированием смешанных кластеров, нами измерена зависимость амплитуды рэлеевского сигнала от концентрации криптона  $C_{Kr}$  в исходной бинарной смеси Ar–Kr и проведен сравнительный методический эксперимент по регистрации сигнала рассеяния на кластерах, образованных чистым криптоном (рис. 1). В отсутствие криптона ( $C_{Kr} = 0$ ) амплитуда рэлеевского сигнала на кластерах аргона мала, тогда как для чистого криптона ( $C_{Kr} = 100\%$ ) она возрастает примерно на порядок. Такое различие в амплитудах сигналов было получено в [14] и связано с различием в сечениях рассеяния и размерах кластеров аргона и криптона.

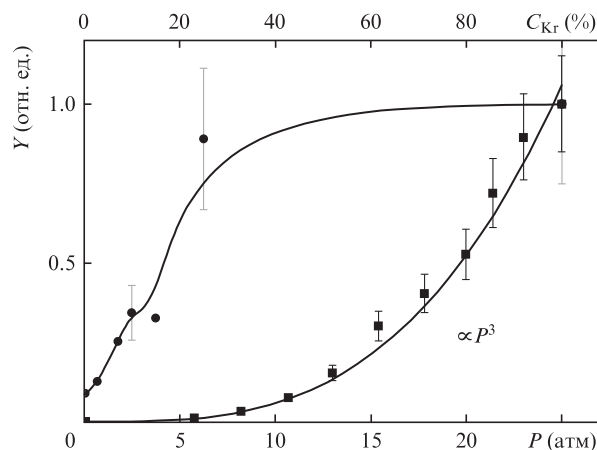


Рис. 1. Амплитуда  $Y$  сигнала рэлеевского рассеяния на кластерах, образованных при расширении чистого криптона (■) и бинарной смеси газов Ar–Kr (●), в зависимости от давления криптона  $P$  в чистом газе и концентрации криптона  $C_{Kr}$  в бинарной смеси.

Размер кластеров в двух предельных случаях (чистый аргон или криптон) при наших экспериментальных условиях легко оценить из известных эмпирических формул Хагены [20]. Условия для начала кластеризации в газовых струях, зависящие от давления газа, температуры и параметров сопла, определяются безразмерным параметром (параметром Хагены)  $\Gamma$ :

$$\Gamma = k \left( \frac{d}{\tan \alpha} \right)^{0.85} \frac{p_0}{T_0^{2.29}},$$

где  $k$  – эмпирическая константа, зависящая от используемого газа ( $k = 2890$  для Kr и  $1650$  для Ar);  $d$  – диаметр критического сечения сопла (в мкм);  $\alpha$  – угол полураскрыва сопла;  $p_0$  – давление в камере высокого давления (в  $10^{-3}$  атм);  $T_0$  – температура газа в камере высокого давления (в К). Число частиц  $q$  в крупных кластерах ( $\Gamma > 1000$ ) определяется параметром Хагены;  $q = 100(\Gamma/1000)^{1.8}$  [18]. Так, для наших экспериментальных условий кластер аргона состоит из  $1.3 \times 10^6$  атомов, а кластер криптона – из  $3.6 \times 10^6$  атомов. Вероятно, число атомов смешанных Ag/Kr-кластеров будет варьироваться между этими величинами.

Нами обнаружено, что для бинарной смеси в области малых фракций криптона ( $C_{Kr} < 25\%$ ) амплитуда рэлеевского сигнала с увеличением  $C_{Kr}$  резко возрастает. Причем при сходных давлениях чистого криптона такое поведение сигнала рассеяния не наблюдается (см. рис. 1). Рассеяние на кластерах криптона аппроксимируется кубической степенной функцией, что соответствует результатам ранее опубликованных работ (см., напр., [14]). Резкое увеличение сигнала при небольшом добавлении в смесь криптона свидетельствует об увеличении размера и числа кластеров из-за охлаждения их мономерами аргона при сопутствующем снижении концентрации аргона в составе кластеров вплоть до полного замещения его криптоном. Все это должно отражаться на амплитуде рэлеевского сигнала вследствие большего сечения рассеяния криптоном и большей доли их массовой концентрации [21].

Для того чтобы удостовериться в том, что при малых концентрациях криптона в смеси формируются смешанные бинарные кластеры, была реализована методика диагностики, предложенная нами в [15] и основанная на ре-

гистрации рентгеновского излучения из кластерной наноплазмы. Возбуждение К-перехода в атомах криптона и генерации рентгеновского излучения в области  $E \approx 12.7$  кэВ происходило при воздействии на газокластерную струю импульсами излучения титан-сапфирового лазера с энергией в импульсе до 50 мДж и пиковой интенсивностью в фокусе около  $5 \times 10^{17}$  Вт/см<sup>2</sup>. Наличие смешанных кластеров при малых концентрациях криптона в смеси подтверждается спектром рентгеновского излучения, полученным при воздействии на газокластерную струю, образованную бинарной Ag–Kr-смесью с  $C_{Kr} = 10\%$  (рис.2,а). В нем регистрируются две характеристические линии, соответствующие К-переходам в ионах аргона ( $E \approx 3.1$  кэВ) и криптона ( $E \approx 12.7$  кэВ), что ассоциируется с существованием смешанных кластеров, в состав которых входят оба этих компонента. Кроме того, рядом с линией аргона находится более высокоэнергетичный сателлит, который соответствует энергии около 4 кэВ. Появление подобного сателлита связывается в [22] с возбуждением экзотических ридберговских состояний в гелиеподобных ионах аргона, которым сопутствуют переходы  $n^1P_1 \rightarrow 1^1S_0$  при  $n > 5$ .

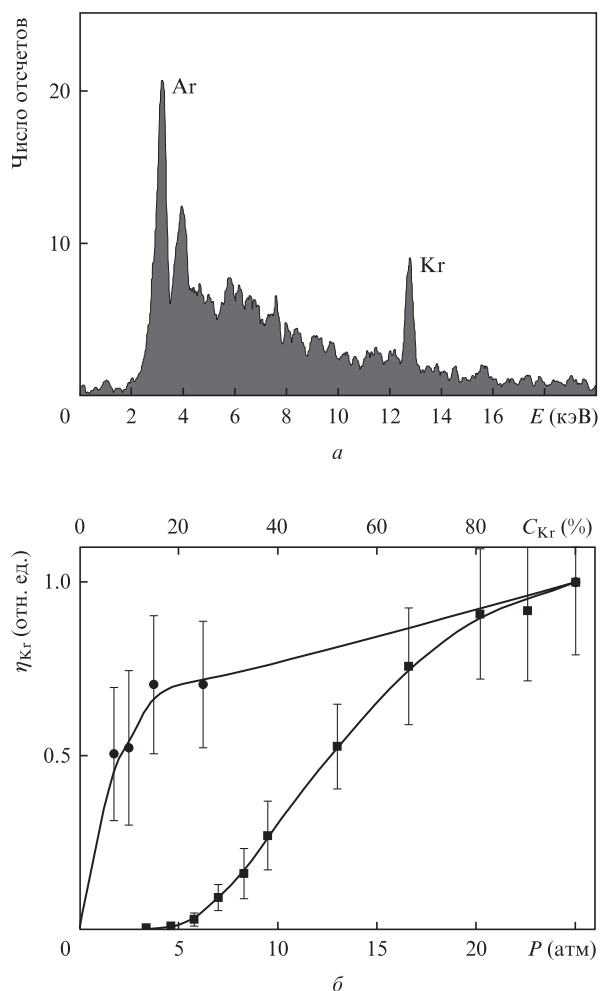


Рис.2. Спектр рентгеновского излучения из кластерной наноплазмы, образованной при лазерном воздействии на возникающую при расширении бинарной смеси Ag–Kr с концентрацией криптона 10% газокластерную струю (а), и эффективность генерации рентгеновской линии криптона из кластеров  $\eta_{Kr}$ , образованных при расширении чистого криптона (■) и бинарной смеси газов Ag–Kr (●), в зависимости от давления криптона  $P$  в чистом газе и концентрации криптона  $C_{Kr}$  в бинарной смеси (б).

В результате выполненных исследований установлено, что зависимость эффективности конверсии энергии лазерного излучения в рентгеновскую линию криптона (отношение энергии в линии к энергии лазерного импульса) от относительной концентрации криптона в смеси (рис.2,б) [16] ведет себя подобно сигналу рэлеевского рассеяния (см. рис.1). При этом выход рентгеновского излучения для гомогенных кластеров растет существенно медленнее. Такое поведение полученных зависимостей для рентгеновского излучения и рэлеевского рассеяния (оба процесса зависят от размера и концентрации кластеров) подтверждает феномен насыщения кластеров криптоном, регистрируемого по сигналу рэлеевского рассеяния.

### 3. Заключение

Установлено, что при добавлении в кластеризующийся газ аргон, находящийся при комнатной температуре и давлении 25 атм, малой фракции криптона сигнал рэлеевского рассеяния испытывает аномально быстрый рост, который связан с резким увеличением размеров кластеров при их сопутствующем насыщении атомами криптона. При парциальной концентрации криптона в исходной смеси более 25% сигнал рассеяния стабилизируется, что свидетельствует о насыщении процесса конденсации и стабилизации кластерообразования.

Обнаружено, что зависимость рэлеевского сигнала от концентрации криптона в смеси подобна зависимости эффективности генерации рентгеновской линии криптона, возбуждаемой при воздействии на газокластерную струю фемтосекундного лазерного излучения субрелятивистской интенсивности  $\sim 5 \times 10^{17}$  Вт/см<sup>2</sup>, поскольку оба этих процесса определяются размером и концентрацией кластеров. Этим подтверждается вывод о насыщении смешанного кластера криптоном.

Предложенная методика диагностики смешанных кластеров по сигналу рэлеевского рассеяния может быть использована для обнаружения процесса кластеризации тяжелого компонента в различных бинарных кластерообразующих смесях атомарных/молекулярных газов.

Работа поддержана грантом РФФИ №16-32-60171 и частично – грантом РФФИ №17-02-01217 А.

1. Макаров Г.Н. *УФН*, **187**, 241 (2017).
2. Pokapanich W., Björneholm O., Öhrwall G., Tchapyguine M. *Radiat. Phys. Chem.*, **135**, 45 (2017).
3. Nagasaka M., Serdaroglu E., Flesch R., Rühl E., Kosugi N. *J. Chem. Phys.*, **137**, 214305 (2012).
4. Winkler M., Harnes J., Børve K.J. *J. Phys. Chem. A*, **117**, 13127 (2013).
5. Marques J.M.C., Pereira F.B. *J. Comput. Chem.*, **34**, 505 (2013).
6. Fasshauer E., Foerstel M., Mucke M., Arion T., Hergenahn U. *Chem. Phys.*, **482**, 226 (2017).
7. Apatin V.M., Likhman V.N., Makarov G.N., Ogurok N.D., Petin A.N., Ryabov E.A. *J. Exp. Theor. Phys.*, **120**, 191 (2015).
8. Heidenreich A., Jortner J., Last I. *Proc. Natl. Acad. Sci.*, **103**, 10589 (2006).
9. Xu J., Finlayson-Pitts B.J., Gerber R.B. *J. Phys. Chem. A*, **121** (12), 2377 (2017).
10. Tchapyguine M., Lundwall M., Gisselbrecht M., Öhrwall G., Feifel R., Sorensen S., Svensson S., Mårtensson N., Björneholm O. *Phys. Rev. A*, **69**, 31201 (2004).
11. Kim S.S., Stein G.D. *J. Appl. Phys.*, **51**, 6419 (1980).
12. Danylchenko O.G., Kovalenko S.I., Konotop O.P., Samovarov V.N. *Low Temp. Phys.*, **41**, 637 (2015).
13. Konotop O.P., Kovalenko S.I., Danylchenko O.G., Samovarov V.N. *J. Clust. Sci.*, **26**, 863 (2015).

14. Ditmire T., Donnelly T., Rubenchik A.M., Falcone R.W., Perry M.D. *Phys. Rev. A*, **53**, 3379 (1996).
15. Gordienko V.M., Dzhidzhoev M.S., Zhvaniya I.A., Trubnikov D.N., Fedorov D.O. *Laser Phys. Lett.*, **11**, 36003 (2014).
16. Zhvaniya I.A., Dzhidzhoev M.S., Gordienko V.M. *Laser Phys. Lett.*, **14**, 096001 (2017).
17. Гордиенко В.М., Джиджоев М.С., Жвания И.А., Петухов В.П., Платоненко В.Т., Трубников Д.Н., Хоменко А.С. *Письма в ЖЭТФ*, **91**, 329 (2010).
18. Dorchie F., Blasco F., Caillaud T., Stevefelt J., Stenz C., Boldarev A., Gasilov V. *Phys. Rev. A*, **68**, 23201 (2003).
19. Rice E., Lee J. NASA-CR-190252, NAS 1.26190252 25 (1989).
20. Hagena O.F. *Rev. Sci. Instrum.*, **63**, 2374 (1992).
21. Zhang L., Chen L.-M., Yuan D.-W., Yan W.-C., Wang Z.-H., Liu C., Shen Z.-W., Faenov A., Pikuz T., Skobelev I., Gasilov V., Boldarev A., Mao J.-Y., Li Y.-T., Dong Q.-L., Lu X., Ma J.-L., Wang W.-M., Sheng Z.-M., Zhang J. *Opt. Express*, **19**, 25812 (2011).
22. Colgan J., Abdallah J., Faenov A.Y., Pikuz T.A., Skobelev I.Y., Fukuda Y., Hayashi Y., Pirozhkov A., Kawase K., Shimomura T., Kiriya H., Kato Y., Bulanov S.V., Kando M. *High Energy Density Phys.*, **7**, 77 (2011).