

低温下氘氚结晶的分凝效应

黄鑫 张伟光 彭述明 温成伟[†]

中国工程物理研究院核物理与化学研究所, 绵阳 621900

摘要

惯性约束聚变 (ICF) 实现点火需要在低温条件下在靶丸中制备高质量的氘氚燃料 (D_2 -DT- T_2) 冰层. 宏观工程主要关心冰层的均匀性、粗糙度、缺陷等指标, 大部分 ICF 理论设计与模拟也一般假定冰层是均质的, 即冰层中各燃料的分布是均匀的. 然而, 有证据表明, 由于热力学性质差异, 在冰层生长过程中, 同位素分离效应会使得最终形成的冰层中存在着一定的分凝. 本文以 nH_2 - nD_2 体系为研究对象, 基于拉曼光谱分析方法, 研究了冰层生长中的不同组分的分凝情况, 结果显示, 在 nH_2 - nD_2 体系中分凝程度大约为 $\sim 1.85\%/mm$, 符合理论预期.

关键词: 冷冻靶, 分凝, 拉曼光谱, 晶体生长

PACS: 52.57.Bc, 78.30.-j, 52.57.-z

[†] 通信作者. E-mail: 5235853@qq.com

第一作者. E-mail: xin2008hust@163.com

1 引言

惯性约束聚变点火需要在微球内制备均匀的氘氚冰层^[1-10]. 其制备过程可以简述如下^[11]: 25%-50%-25%的 D_2 -DT- T_2 燃料通过微管 (直径数微米) 注入到直径约 1mm 的靶丸中. 在确保燃料量达到冰层厚度要求后, 进行快速降温以在靶丸内形成多晶, 随后进行回温使得大部分晶体熔化, 仅包括小块晶体; 然后通过精确和缓慢的温度控制在微球内形成单一的籽晶, 最后通过极其缓慢的降温完成晶体生长. 由于燃料的多组分特点及其热力学性质差异, 在降温过程中不同组分的结晶不是同步的, 这种分凝会使得在冰层中部分区域氘富集而在剩余的区域氘富集. 理论模拟表明, 靶丸中氘氚冰层的分凝到达一定程度时, 会对内爆物理性能产生影响^[12].

分凝的程度取决于热扩散速度与不同相扩散速度的对比. 当降温较快时, 热从液相传递的速度比分子扩散速度快, 此时不会发生分相; 反之则会发生一定程度的分相. 在氘氚冰的制备过程中, 由于降温及其缓慢, 整个晶体生长过程通常

需要过冷 70mK 左右（DT 燃料三相区为 19.73 K-19.67 K^[3]），持续数小时到十多个小时，显然这是个准平衡态热力学过程，热传递速度比分子扩散慢，分凝不能被忽略。

关于氢同位素结晶时分凝的研究十分有限。在国际上，美国罗彻斯特大学激光能量学实验室（LLE）D. R. Harding 组^[12]采用红外吸收谱测量 H₂/HD/D₂(1:2:1)燃料在冷冻过程中的分凝情况，他们使用位移台控制光源线性扫描样品池，使用红外光谱仪研究波长为 3.16 μm 红外光在样品池不同位点的透过率，根据透过率研究晶体在结晶过程的分凝效应，研究结果证实了分凝效应的存在，该研究得到的分凝程度为 2.6%/mm。但是，红外吸收系数与组分之间的关系一般不是严格线性的，存在着高阶项。此外，该实验中仅能获得氢同位素一个固定波长的吸收，无法获得氢光谱吸收特性，这也会为定量分析造成一定的误差。

基于此，本文拟以 H₂-D₂ 体系为研究对象，通过自研低温装置，结合特定设计的温度梯度分凝靶室，获得了较高质量的氢氘晶体，利用拉曼光谱研究氢氘分凝效应。首先给出理想热力学平衡状态下 H₂-D₂ 的结晶分凝效应理论分析，随后对实验条件和装置进行介绍，并给出结果和分析，最后是全文总结和展望。

2 理论分析

假定在降温过程中任一温度，气液固各相都处于热力学平衡。根据 Raoult 定律，在给定温度下，总的饱和蒸气压等于各组分分压之和，对于液相：

$$P_I = \sum_{i=1} l_i P_i^s \quad (1)$$

其中 i 代表各氢同位素（i=1 为 H₂，i=2 为 D₂，依次类推）； l_i 为液体中各组分摩尔百分比； P_i^s 为各组分液体饱和气压。对于固相：

$$P_I = \sum_{i=1} s_i Q_i^s \quad (2)$$

其中 s_i 为固体中各组分摩尔百分比； Q_i^s 为第 i 种组分固体的饱和气压。式 (1)(2) 中未包含气相摩尔百分比 g_i 。在三相共存并处于热力学平衡的状态下，气相-液相-固相通过下式建立联系：

$$g_i P_I = l_i P_i^s = s_i Q_i^s \quad (3)$$

由于气相-液相-固相饱和蒸气压不等，因此 $g_i \neq l_i \neq s_i$ ，这就代表在气液固

相界发生了分相. 对于充分混合的多组分氢同位素液体, 其初始凝结温度大约为:

$$T \cong \sum_i x_i T_i \quad (4)$$

其中 T 为该体系初始结晶温度, T_i 为第 i 种组分的饱和三相点温度. 以 nH_2 - nD_2 (室温下 $oH_2:pH_2=3:1$, $oD_2:pD_2=2:1$) 二元体系为例进行分析. 对于初始为 50%-50% 的 nH_2 - nD_2 液体, nH_2 和 nD_2 的三相点温度分别为 13.8 K 和 18.7 K, 其初始结晶温度预估为 16.25 K.

假定降温速率相比液体中各组分的扩散要慢得多, 液相中各组分是均匀的. 此外, 气液固各相中每一种组分总质量是守恒的, 以 D_2 守恒为例, 忽略掉气体对总组分的贡献 (这在靶室这种低温封闭体系中是成立的), 在某个温度 T_0 , 液体的摩尔百分比为 X_0 , 所对应的液相和固相中 D_2 组分分别为 l_{2-0} , s_{2-0} ; 缓慢降温至 T_1 时, 液体的摩尔百分比为 X_1 , 所对应的液固相中 D_2 组分分别为 l_{2-1} 和 s_{2-1} , 则有:

$$X_0 l_{2-0} + (1 - X_0) s_{2-0} = X_1 l_{2-1} + (X_1 - X_0) (s_{2-0} + s_{2-1}) / 2 \quad (5)$$

上式中从 T_0 降温至 T_1 固相中组分的摩尔百分比取的是平均值. 以初始结晶温度 16.25 K、液相摩尔百分比为 1 开始计算, 此时 P_1^s 和 P_2^s 分别为 23960 Pa 和 4740 Pa, 由式 (2) 得到总饱和蒸汽压为 14350 Pa. 由式 (3) 可以得到气相中 D_2 含量为 0.165, 气相中更富集 H_2 ; 初始结晶的固相中 D_2 含量为 0.595, 固相中更富集 D_2 . 以此为初始条件通过式(1)(2)(3)(5)迭代计算, 可以得到热力学平衡态下气相-液相-固相中各组分、固相氘累积量 (已结晶固相中氘组分摩尔百分比含量) 和液相氘剩余量 (剩余未结晶的液相中氘组分摩尔百分比含量) 随温度的变化 (表 1).

表 1 nH_2 - nD_2 体系凝固时各组分的变化

温 度 /(K)	气相各组分含 量/(mol%)		液相各组分 含量/(mol%)		固相各组分 含量/(mol%)		固相氘 累积量 (mol%)	液相氘 剩 余 量 /(mol%)
	H_2	D_2	H_2	D_2	H_2	D_2		
16.25	0.835	0.165	0.500	0.500	0.405	0.595	0	1
16.00	0.852	0.148	0.546	0.454	0.446	0.554	0.219	0.618
15.75	0.877	0.123	0.599	0.401	0.511	0.489	0.361	0.346
15.50	0.900	0.100	0.649	0.351	0.550	0.450	0.431	0.198
15.25	0.922	0.078	0.699	0.301	0.600	0.400	0.463	0.122

15.00	0.938	0.062	0.754	0.246	0.657	0.343	0.484	0.066
14.75	0.956	0.044	0.802	0.198	0.718	0.282	0.491	0.04

从表 1 中可以看出，对于 $n\text{H}_2\text{-}n\text{D}_2$ 体系，在理想情况下，降温速率恒定，在晶体生长初始阶段，固相中氘含量更高，液相中氢含量更高，固相中氘累积量很快（晶体生长速率快）；随着温度降低，固相中 D_2 含量更变低，液相中 H_2 含量更高， D_2 累积变慢；在生长的最后阶段，大部分 D_2 已在固相中累积， D_2 累积增加很慢（晶体生长速率慢），剩余液相中 H_2 的浓度很高。在实际的晶体生长中，由于 H_2 不能在液相中无限累积，以液相氘剩余量 4%代表晶体生长完成，可以看到最初生长的晶体 D_2 组分相对含量（59.5%）和最后生长的晶体（28.2%）相差超过一倍。上述计算是假定降温过程处于热力学平衡（无限缓慢降温），且晶体为理想单晶，是分凝程度的理论上限；实际结晶生长过程由于降温非理想性、多晶的平均效应会造成实际分凝程度低于理论计算。

3 实验装置

本文开展氢氘低温分凝研究的低温装置（图 1）采用 GM 制冷机（Sumitomo RDK-415D）作为冷源，并通过导冷链传递至样品侧基座。分凝靶室组件则安装固定在基座上，实现靶室的降温、控温等操作。靶室组件采用偏心安装便于拉曼光谱仪检测。拉曼光谱仪通过水平的一对窗口对靶室内的样品进行测试。

分凝靶室组件由导冷座、靶室、上下导冷杆组成，如图 2 所示。靶室上下导冷杆夹持，上下导冷杆各安装有一个加热器和温度传感器（Lakeshore, CX-1050-SD-HT-4L）用于靶室上下的温度检测和控制，通过温控仪（Lakeshore 336）实现靶室上下的独立控温。靶室为圆形截面，样品空间为 $\Phi 6\text{mm} \times 4\text{mm}$ ，两侧由直径为 10mm 的蓝宝石窗片通过低温胶进行密封，低温漏率优于 $1 \times 10^{-8} \text{ Pa} \cdot \text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ ，外部 $\text{H}_2\text{-D}_2$ 气体通过安装在靶室上的 1/32 英寸不锈钢管（7-8 点位置）注入。目前靶室的安装对充气管并没有进行预冷，而是直接连接至常温管路，这会造成靶室额外的漏热并改变温度场分布。对靶室的有限元温度场模拟显示，当靶室上下建立温度梯度时，靶室中的温度最低点位于 4-6 点方向；靶室中的温度梯度方向并不是严格沿着垂直方向，存在一定偏移（图 2c 中虚线箭头）。

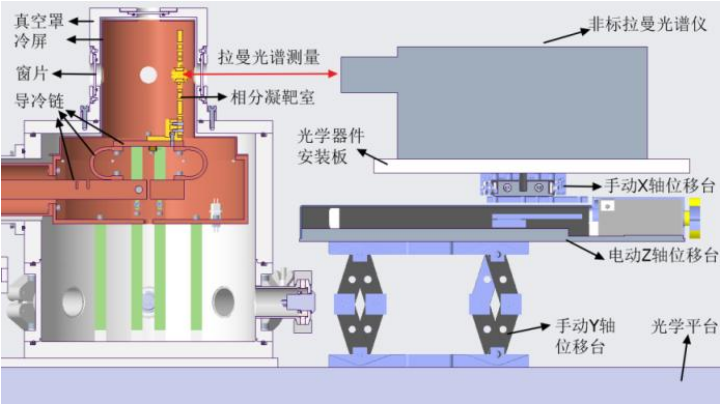


图1 氢气结晶分凝实验装置

Fig.1. Experimental Setup for Low-Temperature Crystallization Fractionation of Hydrogen Isotopes.

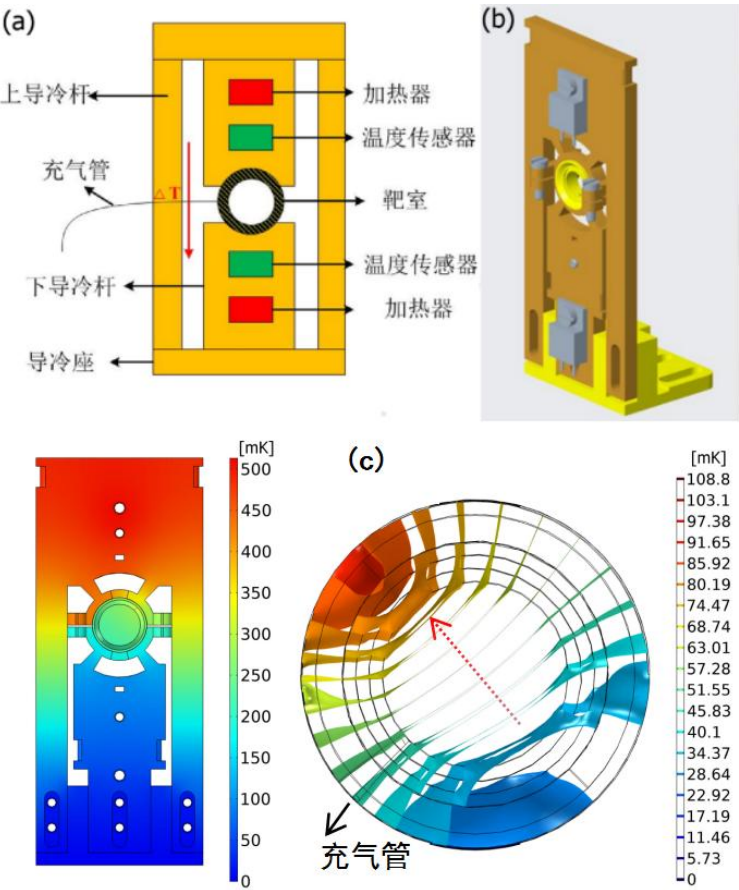


图2 分凝靶室组件 (a)示意图 (b)设计图 (c) 温度场分布

Fig.2. Target Chamber Assembly (a) Schematic Diagram (b) Design Drawing (c) Temperature Field Distribution.

低温拉曼光谱测量采用自搭建的小型拉曼光谱仪。拉曼光谱仪整体安装于

三维移动平台上, 其中大行程 Z 轴位移台为电动, 用于前后移动, 重复定位精度达到 $1\text{ }\mu\text{m}$; X 轴和 Y 轴为手动, 用于对氢同位素低温样品的不同区域进行扫描. 激光器 (Flamenco, Cobolt) 发出的光(660 nm)通过单模光纤引入拉曼探头, 经过透镜准直, 滤光片滤除激光杂线后, 通过物镜($f=40\text{ mm}$)聚焦在样品表面. 拉曼信号光由原物镜收集准直, 经过刀锋滤光片滤除激光线后, 由消色差物镜($f=100\text{ mm}$)聚焦进入多模光纤($50\text{ }\mu\text{m}$), 随后导入光谱仪(Isoplan160, Princeton Instruments)进行光谱分析. 拉曼光谱分辨率约为 8 cm^{-1} .

对于氢氘低温充气冻结结晶过程, 采用 Nikon 的显微成像系统进行观测, 主要由白光源、0.5x 倍物镜、光学变倍体 (SMZ1270, 0.63 倍到 8 倍)、CCD (DS-Ri2)等组成. 前置物镜和光学变倍体能够实现最大四倍的光学放大. DS-Ri2 包含有一个大小为 $36.0\text{ mm}\times 23.9\text{ mm}$ 的 CMOS 彩色成像传感器, 有效像素为 4906×3264 .

4 实验结果及分析

4.1 低温样品获取

实验中所采用的燃料气为 1:1 标准 $\text{nH}_2\text{-nD}_2$ 气, 样品中实际上包含四种组分, 即 o-H_2 , p-H_2 , o-D_2 , p-D_2 . 燃料气通过充气管路注入靶室, 为了观测燃料注入的变化, 靶室设置温度 (19 K) 略微高于 D_2 三相点温度(18.7 K), 此时燃料以液相注入靶室, 靶室内液面高度逐渐升高. 由于充气管位置和液固密度差异, 液体并不能完全充满靶室, 靶室顶部始终存在气泡. 当液面高度不再变化时, 完成燃料注入过程. 此时靶室内即为 $\text{nH}_2\text{-nD}_2$ 液体样品. 相比 ICF 冷冻靶中的氘氘体系, 由于氢氘热力学性质差异较大, 对 $\text{nH}_2\text{-nD}_2$ 体系进行高质量晶体生长是很困难的. 与 ICF 冷冻靶氘氘冰层制备过程类似, 我们采取的晶体生长方法仍然是基于熔融晶体生长工艺的策略 (包含燃料注入、液体速冻、缓慢回温、籽晶制作、晶体生长等过程) [1]. 为了使晶体自下而上生长, 晶体生长时保持靶室上部温度恒定, 下部温度缓慢下降. 首先对液体样品进行速冻, 在靶室内获得雪花状多晶固体, 然后对靶室温度进行升温, 雪花状多晶逐步融化, 当温度接近初始结晶点温度时, 靶室内晶体几乎全部融化, 只剩下小块的残晶. 然后, 通过对靶室温度进行更精密的控制使残晶逐渐变小, 当残晶通过显微镜几乎不可见时认为得到的

就是籽晶。与微球内氘冰生长形成单一籽晶不同，由于无衰变热、靶室内表面缺陷、靶室梯度非理想等原因，无法获得明显的单一籽晶。在某些情况下即使出现疑似“单一籽晶”，在生长过程中也会出现多个生长前沿，最终生长为较大质量块的多晶。这种晶体相比速冻的“雪花状”多晶而言，具有更高的透光性。此外，在晶体生长的最后阶段，顶部气泡会对晶体生长产生扰动，严重时会造成晶体生长失控，无法完成高质量高透光晶体的生长。我们尝试了多次晶体生长，受限于靶室充气管漏热、顶部气泡扰动、晶体尺寸较大（相比微球）等原因，相当一部分晶体的质量较差，不满足拉曼光谱测试条件。

图 3 展示的是一次满足光谱测试条件典型的晶体生长过程，实验中样品的实际初始结晶温度为 16.13 K，熔点温度为 16.2 K，靶室内的过冷度约为 70 mK，完成生长温度为 14.75K，耗时 200min。在进行速冻后，靶室内形成的是不透光的雪花状晶体（图 3a），在缓慢回温形成多个籽晶和生长前沿（图 3b），初始生长的晶体分布在 4-6 点钟方向，与图 2 理论计算得到的靶室内温度最低点位置一致；图 3c-图 3f 为晶体生长过程，可以看到其晶体生长方向不是严格意义上垂直方向，而是存在一定偏移，并与理论计算得到的靶室内温度梯度方向基本一致；图 3g-图 3h 八点钟方向长出的杂乱晶体，为充气管带来的漏热所致；图 3i 为最终生长完成的晶体，具有较高的透光性。

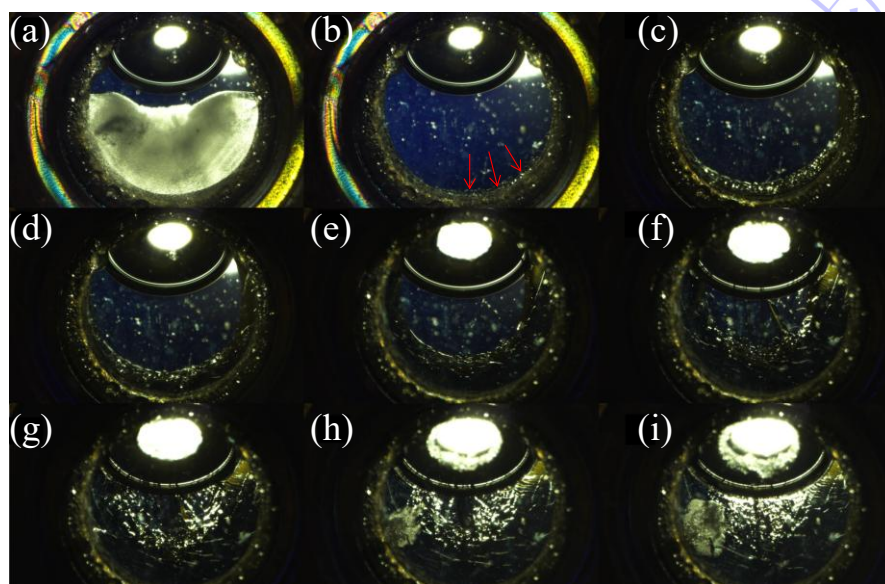


图 3 低温下氢氘典型结晶生长过程

Fig. 3. Typical Crystallization Growth Process of Hydrogen-Deuterium at Low Temperatures.

4.2 nH_2/nD_2 低温样品拉曼信号

我们对 50%-50% nH_2 - nD_2 液体和固体样品进行拉曼光谱测试. 测试条件为: 激光波长 660 nm, 输出功率 100 mW, 光谱仪光栅刻线 600 g/mm. 对于液体样品, 测试点选择为靶室中心. 受限于靶室的尺寸和靶室顶部气泡影响, 固体拉曼测试位置选定为距离靶室下边缘约 1 mm (position 1), 2 mm(position 2), 3 mm(position 3)处, 见图 4(其中红点代表激光位置).

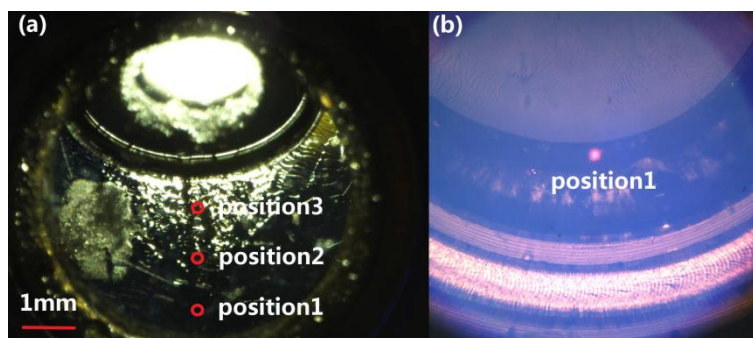


图 4 氢氘低温样品测试位置: (a) Nikon 显微镜拍摄; (b) 自搭建拉曼系统 CMOS 相机拍摄

Figure.4. Hydrogen-deuterium sample testing positions at low temperature: (a) Captured by Nikon microscope; (b) Captured by CMOS camera of self-built Raman system

典型的 H_2/D_2 燃料低温样品的拉曼光谱如图 5 所示 (左侧为液体光谱, 右侧为固体光谱). 由于受到核自旋效应的影响, D_2 和 H_2 的拉曼峰不像 HD 等异核双原子分子, 在低温下可以明显看到两个峰, 分属于最低和第一激发转动能级. 在我们仪器的分辨率(600 刻线光栅)下, 液体中 $oD_2(J=0)$ 峰位于 177.9 cm^{-1} , $pD_2(J=1)$ 位于 297.5 cm^{-1} , 相比于气体光谱, 液体光谱出现了明显的展宽^[13-14]. 固体中 oD_2 峰同样位于 177.9 cm^{-1} , pD_2 位于 297.5 cm^{-1} , 没有观察到相变过程峰位的移动. 可能原因有二, 首先文献报道中用的是 oD_2 或者 pH_2 , 而我们用的是 nD_2 和 nH_2 ; 其次, 我们的实验中光谱分辨率相较其他研究团队要差. 对于固体样品, 国外研究表明, 纯 oD_2 结晶后形成 HCP 相结构, 由于晶体场作用其拉曼峰会分裂成三个小峰^[15]. 在纯 oD_2 体系中添加 H_2 会导致拉曼峰分裂消失且谱线发生不对称展宽, pD_2 的加入也会有类似效果. 我们的实验中, oD_2 分子由于受到 pD_2 分子和 H_2 分子影响, 其拉曼峰呈现出轻微的不对称展宽峰型. 和液体拉曼数据比较, 固体拉曼数据的强度整体偏低, 这是由于固体中散射增强, 从而导

致拉曼信号强度降低. 从图中还可以直接得到 oD_2 峰和 pD_2 峰的峰强度, 进而计算得到 oD_2 和 pD_2 分子比例. 图中 oD_2 峰强度为 7160, pD_2 峰强度为 2140, 计算得到 oD_2 : pD_2 为 2.01:1, 和 nD_2 样品中实际比列 (2:1) 比较符合.

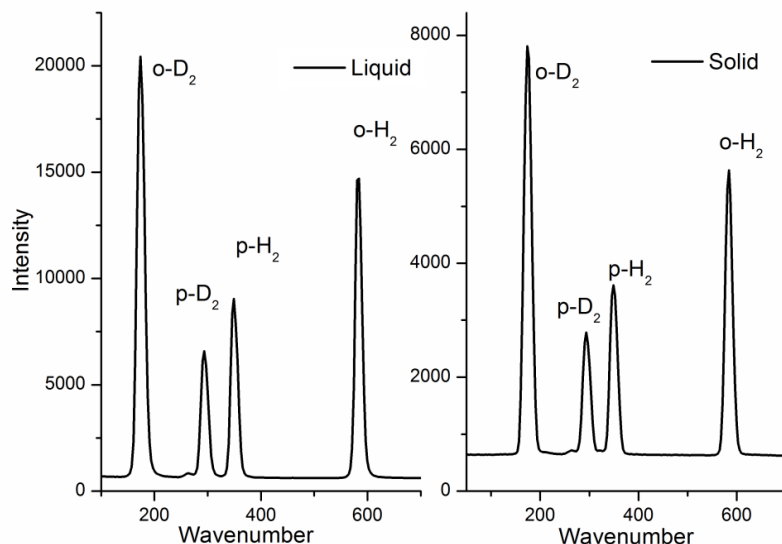


图5 典型 H_2/D_2 燃料低温拉曼光谱图

Figure.5. Typical Raman spectrum of H_2/D_2 fuel at low temperature

对于 H_2 分子, 液体中, pH_2 ($J=0$) 拉曼峰位于 353.3 cm^{-1} , oH_2 ($J=1$) 则位于 587.8 cm^{-1} . 固体样品中, pH_2 和 oH_2 峰位不变, 且液体和固体中两个拉曼峰相较气体均有展宽, 但是仍然保持对称峰型. 图中 oH_2 峰强度为 5001, pH_2 峰强度为 2972, 计算得到 oH_2 : pH_2 为 2.80:1, 略小于理论值 (3:1). 上面 oD_2 : pD_2 的计算结果验证了实验系统的可靠性, 所以 oH_2 : pH_2 的偏差只可能来自于低温下 oH_2 向 pH_2 的转化. 在 14.2 K-20 K 温度范围内, 无催化剂时, oH_2 - pH_2 转化时间常数约为 180 h-200 h^[16]. 本实验中混合气样品从燃料注入到测量大约经过 3.2 个小时, 采用中间值 190 h 经计算得到转化后的 oH_2 : pH_2 为 2.82:1.

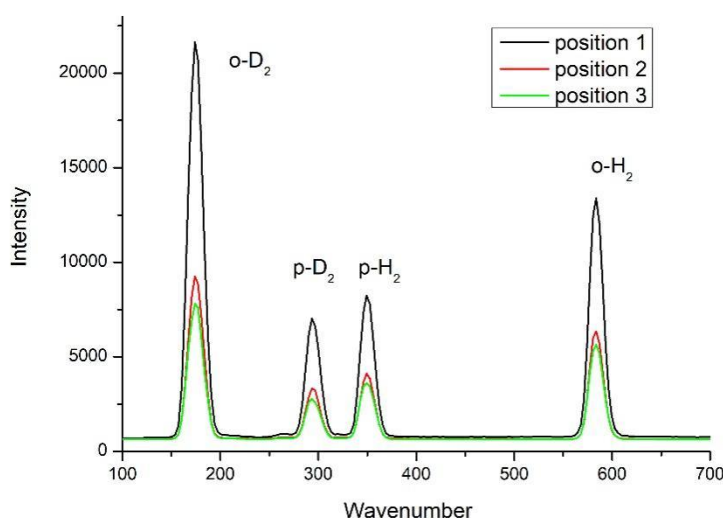


图6 不同位置拉曼光谱图

Figure.6. Raman spectra at different positions

4.3 H₂/D₂分凝与偏析规律

图 6 显示了在不同位置的固体拉曼光谱图，可以看到不同位置的拉曼散射强度有较大差别，但是谱峰形状和峰位基本上一致。强度差异主要是因为晶体质量和测试位置（光学系统距离固体表面位置）的微小差异引起的。仔细分析数据可以得到表 2，左边代表液体样品和固体样品的不同位置，计算得到的结果代表不同样品不同转动峰的强度比值。可以看到，不管是液体样品还是固体样品， oD_2/pD_2 和 pH_2/oH_2 值均变化不大，前者约为 3.33，后者约为 0.60。这说明 o/p 态分子之间并没有明显分相。 oD_2/pH_2 值从位置 1 的 2.796 到位置 3 的 2.409 逐渐降低，说明样品位置 1 的 oD_2 含量高于位置 2 的，且位置 2 中 oD_2 含量高于位置 3，即沿着重力方向从下至上 oD_2 含量逐渐降低，而 pH_2 含量逐渐增加，产生了分相。以上数据定性说明了在我们的实验参数设置下， H_2 和 D_2 之间出现了分相，导致 D_2 在靶室下部先结晶，而 H_2 由于三相点低于 D_2 ，所以在降温过程中后于 D_2 结晶，使得靶室内下部 D_2 含量高于上部。分析 pD_2/oH_2 的变化规律可以得到同样的结论。由于不知道固体中四种成分的相对散射截面，所以我们无法得到固体中准确的组分定量变化数据。考虑到液相到固相散射截面不会变化太大，用液相的校准数据（液相中 $\text{H}_2:\text{D}_2=1:1$ ）计算，可得晶体中位置 1, 2 和 3 的

D₂ 含量分别为 54.2%，52.0%和 50.5%，最大和最小相差 3.7%。这是国内首次获得氢同位素低温结晶的分凝实验数据，和美国的报道(~2.6%/mm)相比，我们的计算得到的数据(1.85%/mm)略低。这种差异来自于晶体质量和不同的测量方法，目前靶室无法完全达到准单晶生长条件，且不是严格按照重力方向进行生长。

表 2 不同位置拉曼峰强度比值

Table 2. Raman peak intensity ratios at different positions

	oD ₂ /pD ₂	pH ₂ /oH ₂	oD ₂ /pH ₂	oD ₂ /pD ₂
liquid	3.336	0.595	2.355	3.336
Position 1	3.332	0.592	2.796	3.332
Position 2	3.227	0.604	2.496	3.227
Position 3	3.345	0.594	2.409	3.345

5 结论与展望

对 1:1 nH₂/nD₂ 体系通过液相生长在相分凝靶室中实现较高质量晶体是可能的。但目前得到的晶体质量仍然和单晶有较大的差距，特别是在透光性方面。对 1:1 nH₂/nD₂ 低温拉曼光谱测试表明，H₂/D₂ 混合物在结晶过程中存在分凝行为，计算数据表明在现有混合物中分相并不严重(1.85%/mm)，符合理论分析预期。我们的测量值略低于美国 LLE 实验室利用红外吸收测量方法报道的实验结果(2.6%/mm)。

受限于目前实验技术和条件，生长于靶室内的固体为单晶多晶混合体，要得到比较透光，质量更好的准单晶体还需要对原料气选择、靶室结构、控温工艺进行优化。在拉曼光谱测试方面，目前所使用的共聚焦型拉曼测试技术只能测试靠近靶室窗片表面附近的样品，因此测试结果只能反映样品局部（数百 μm³）的成分信息，而实际的样品厚度为 4 mm，从比较严谨的角度来说，测试结果并不能完全反映氢同位素组分的空间分布。

本文得到的结论仅适用于目前 1:1 nH₂/nD₂ 体系中多晶混合的情况，并不能完全反映最终靶丸中近单晶分布情况下的分相趋势。目前基于 1:1 nH₂/nD₂ 体系得出的结论并不能完全外推至氘氚冷冻靶中的氘氚准单晶体系。

后续将以氘氚体系（25%D₂-50%DT-25%T₂）为研究对象，优化靶室设计、晶体制备工艺，实现靶室中更理想的一维温度梯度分布，以获取准单晶，同时采用大靶面激发(~1 mm)或透射型拉曼光谱技术，其采集到的光谱信息反映了组

分构成在厚度方向的积分和平均效应,通过对低温样品进行全面扫描获得氘氚冰样品截面完整的组分分布.

参考文献

- [1] Kucheyev S O , Hamza A V 2010 *J.App.Phys.*, **108** 091101
- [2] Zhang W G, Zhang K F, Xia L D, Huang X, Zhou X S, Peng S M, Shi L Q 2023 *Fusion.Eng.Des.*, **172** 112831
- [3] Zhang W G, Zhang K F, Xia L D, Huang X, Zhou X S, Peng S M, Shi L Q 2022 *Acta Phys. Sin.*, **71** 025203 (in Chinese) [张伟光, 张凯奋, 夏立东, 黄鑫, 周晓松, 彭述明, 施立群 2022 物理学报, **71** 025203]
- [4] Zhang K F, Xia L D, Huang X, Li H R, Mao Y W, Zhou X S, Zhang W G 2023 *Fusion.Eng.Des.*, **191**, 113483
- [5] Zhang L, Du K 2013 *High Power Laser and Particle Beams* **25** 3091[张林 杜凯 2013 强激光与离子束 **25** 3091]
- [6] Tao C Y, Wu K W, Dai F, He Z B, Yang H, Lin W, Wang K, Zhang H 2022 *Nucl. Fusion*, **62** 076029
- [7] Yang H, Gao S S, Jiang B B, Xie J, Liang J X, Qi X B, Wang K, Tao C Y, Dai F, Lin W, Zhang J 2021 *Matter Radiat. Extrem.* **6** 055901
- [8] Chernov A A, Kozioziemski B J, Koch J A, Atherton L J, Johnaon M A, Hamza A V, Kucheyev S O, Lugten J B, Mapoles E A, Moody J D, Salmonson J D, Sater J D 2009 *Appl. Phys. Lett.* **94** 064105
- [9] Yin J, Chen S H, Wen C W, Xia L D, Li H R, Huang X, Yu M M, Liang J H, Peng S M 2015 *Acta. Phys. Sin.* **64** 015202 (in Chinese) [尹剑, 陈绍华, 温成伟, 夏立东, 李海容, 黄鑫, 余铭铭, 梁建华, 彭述明 2015 物理学报 **64** 015202]
- [10] Wang K, Lin W, Liu Y Q, Xie D, Li J, Ma K Q, Tang Y J, Lei H L 2012 *Acta. Phys. Sin.* **61** 195204 (in Chinese) [王凯, 林伟, 刘元琼, 谢端, 黎军, 马坤全, 唐永建, 雷海乐 2012 物理学报 **61** 195204]
- [11] Kozioziemski B J, Maples E R, Sater J D, Chernov A A, Moody J D, Lugten J B, Johnson M A 2011 *Fusion Sci. Technol.* **55** 14
- [12] McKenty P W, Wittman M D, Harding D R 2006 *J.App.Phys.* **100** 073302
- [13] Fernández J M, Kühnel M, Tejeda G, Kalinin A, Grisenti R E, Montero S 2012 *AIP Conference Proceedings* **1501** 1296.

- [14] Kozioziemski B J, Collins G W 2003 *Phys. Rev. B* **67** 174101.
- [15] Collins G W, Unites W G, Mapoles E R, Bernat T P 1996 *Phys. Rev. B* **53** 102
- [16] Souers P C 1986 *Hydrogen Properties for Fusion Energy* (California : University of California Press) p314

Study on isotopologue fractionation effect of hydrogen-deuterium fuel during solidification at cryogenic temperature

Huang Xin, Zhang Weiguang, Peng Shuming, Wen Chengwei[†]

Institute of Nuclear Physics and Chemistry, China Academy of Engineering Physics, Mianyang 621900,

China

Abstract

Achieving ignition in inertial confinement fusion (ICF) requires the preparation of high-quality deuterium-tritium (D_2 -DT- T_2) ice layers in targets under cryogenic conditions. The target production processes primarily focus on metrics such as ice layer uniformity, roughness and defects. Most ICF theoretical designs and simulations generally assume the ice layer is homogeneous, meaning the distribution of fuels within the ice layer is uniform. The differences in the thermodynamic properties of hydrogen isotopes can cause isotope fractionation during the crystallization process, leading to uneven ice density, which increases the hydrodynamic stability during implosion compression and, in severe cases, can reduce implosion performance. This article theoretically and

experimentally studies the fractionation effect during the crystallization of the 1:1 H₂-D₂ system at low temperatures.

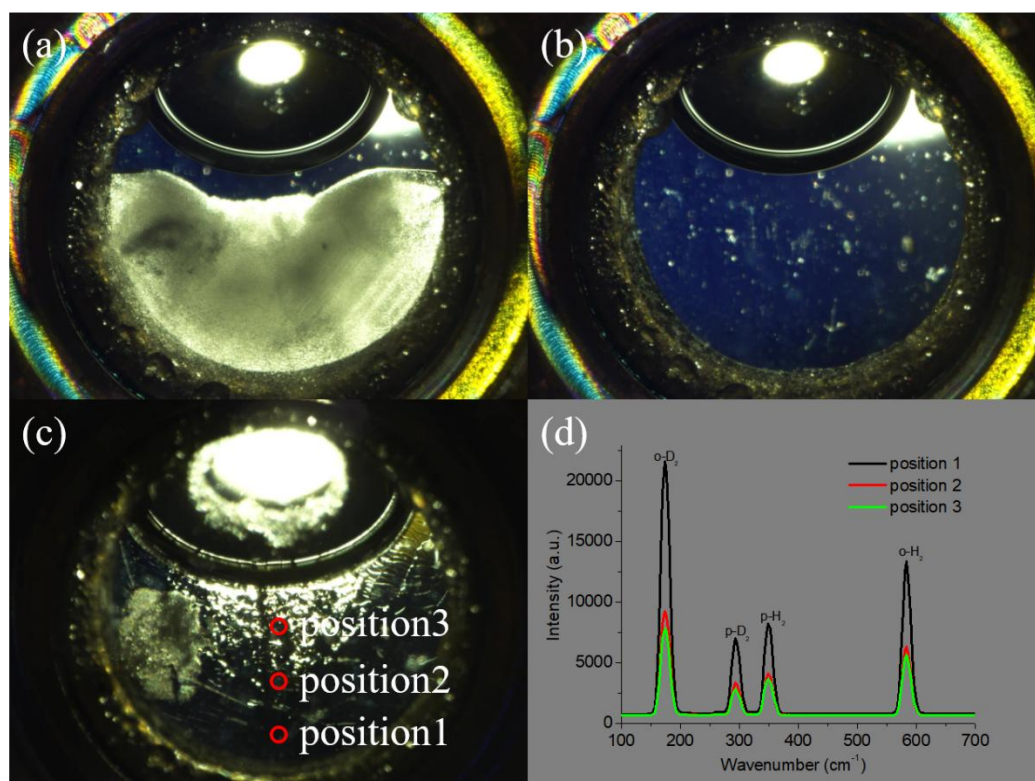
Based on Raoult's law, the changes in the composition of gas, liquid, and solid phases under infinitely slow cooling and quasi-thermodynamic equilibrium conditions were analyzed. Theoretical calculations provide the upper limit of fractionation under ideal conditions, with the initial and final deuterium content in the solid phase differing by more than double. In actual crystallization growth, due to non-ideal crystallization, the actual degree of fractionation is lower than the theoretical calculations.

By using a self-developed low-temperature device combined with a specially designed target chamber, high-quality hydrogen-deuterium crystals are obtained based on the melt growth method. First, opaque snowflake-like crystals are formed through rapid freezing (Fig 1-a), then the temperature is gradually raised until almost all crystals in the target chamber have melted, leaving only a few residual crystals. Fine control of residual crystals produces seed crystals (Fig 1-b), and a highly transparent crystal was obtained by slowly growing from seed crystals (Fig 1-c).

Low-temperature Raman spectroscopy tests reveal that H₂/D₂ mixtures exhibit fractionation behavior during crystallization(Fig 1-d). In the vertical direction, from bottom to top, the D₂ component content gradually decreases, indicating phase separation between H₂ and D₂ during cooling process. The isotopic fractionation leads to D₂

crystallizing first in the lower part of the target chamber, while H_2 , with a triple point lower than D_2 , crystallizes later during cooling process, resulting in higher D_2 content in the lower section of the target chamber.

However, experimental data show that phase separation in the existing mixture is not severe (approximately 1.85%/mm), aligning with theoretical expectations. The results also indicate that there was no phase separation between o- $\text{H}_2(\text{D}_2)$ and p- $\text{H}_2(\text{D}_2)$. Compared to previous reports, our results are slightly lower than the experimental results (2.6%/mm) reported by the U.S. LLE Laboratory using infrared absorption measurement methods.



Keywords: cryogenic target, fractionation, Raman spectroscopy,

crystal growth

† Corresponding author.E-mail:5235853@qq.com

The first author.E-mail:xin2008hust@163.com

录用稿件，非最终出版稿