

玻璃微球内氘结晶行为研究

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

Crystallization behaviors of deuterium in glass microsphere

Yin Jian Chen Shao-Hua Wen Cheng-Wei Xia Li-Dong Li Hai-Rong Huang Xin Yu Ming-Ming
Liang Jian-Hua Peng Shu-Ming

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 64, 015202 (2015) DOI: 10.7498/aps.64.015202

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.015202>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2015/V64/I1>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

基于焦斑空间频率全域优化的偏振匀滑设计

[Polarization smoothing design for improving the whole spatial frequency at focal spot](#)

物理学报.2014, 63(21): 215202 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.215202>

基于神光Ⅱ原型装置的激光加载条件下准等熵压缩实验研究进展

[Experimental progress of quasi-isentropic compression under drive condition of Shen Guang-II prototype laser facility](#)

物理学报.2014, 63(18): 185202 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.185202>

小收缩比内爆实验初步研究

[Experimental studies of low-convergence-ratio implosions](#)

物理学报.2014, 63(12): 125211 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.125211>

针对神光Ⅱ升级装置的直接驱动快点火集成实验靶的初步设计

[Preliminary target design for integrated direct-drive fast ignition experiments on Shenguang-II upgrade facility](#)

物理学报.2014, 63(12): 125205 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.125205>

基于互补型偏振控制板的多光束叠加特性研究

[Study on multi-beam superposition using complementary polarization control plates](#)

物理学报.2014, 63(9): 095204 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.095204>

玻璃微球内氘结晶行为研究*

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†

(中国工程物理研究院核物理与化学研究所, 绵阳 621900)

(2014年5月18日收到; 2014年8月19日收到修改稿)

为研制出满足惯性约束聚变(ICF)实验的氘氚(DT)冷冻靶, 需要控制DT结晶生长过程, 实现DT单晶生长, 由此减少影响冰层均匀化及聚变实验的晶体缺陷. 本文运用晶体生长形态动力学理论建立了密排六方晶体(hcp)单晶生长模型, 实验中通过对靶室进行 ± 3 mK精确控温, 采用可见光背光成像技术在线表征了低温下玻璃微球内氘(D₂)的结晶生长过程, 结果表明: 在20—100 Pa低温氦气导热环境下, 通过缓慢降温可显著降低氘晶体生长过程中形成的缺陷; 当降温速率达到2 mK/min时, 观测到了氘燃料的两种单晶生长过程, 实验具有可重复性; 建立的hcp单晶生长理论模型与实验结果符合, 并与美国利弗莫尔国家实验室(LLNL)的DT单晶生长过程进行了对比, 提出了冷冻靶内D₂/DT燃料的单晶生长方法.

关键词: 惯性约束聚变, 背光成像, 降温速率, 单晶生长**PACS:** 52.57.-Z, 07.20.Mc, 81.10.-h, 68.35.Md**DOI:** 10.7498/aps.64.015202

1 引言

为满足日益增长的能源需求, 同时减少碳排放及核废料污染, 聚变能被认为是最有希望的替代能源. 随着惯性约束聚变(ICF)研究的进一步发展, 为获得高增益的聚变能量, 设计并制备出满足聚变实验要求的氘氚(DT)冷冻靶成为了美、中、法各国研究的焦点. 目前ICF实验使用的靶球直径为1—2 mm, 壁厚为40—100 μm , 靶球内部含有60—200 μm 厚的DT冰, 为减小聚变过程中的流体力学不稳定性, 要求DT冰均匀分布在靶球的内表面, 冰层内表面粗糙度(RMS)优于1 μm ^[1-6], 因此, DT冰的均匀化技术成为了冷冻靶制备的关键技术. 要获得满足聚变实验要求的DT冷冻靶, 需要对DT冰层的结晶过程进行控制, 实现DT燃料单晶生长, 由此减少冰层在生长过程中形成的晶界缺陷, 影响冰层的均匀化及聚变实验. 由于低温靶球处于三层热屏蔽罩内, 常用的表征手段均难以

使用, 如扫描电镜(SEM)、透射电镜(TEM)、X射线衍射仪(XRD)等, 目前主要采用可见光成像与X射线相衬成像对冰层进行表征, 相比X射线相衬成像可见光成像具有成像速度快、无电离辐射、结构简单等优点^[7], 更加适合于研究晶体生长过程. LLNL长期从事ICF聚变实验用DT冷冻靶的研制, 研究表明^[4,8], 要实现靶球内DT燃料的单晶生长, 首先需要在靶球内获得籽晶, 然后在三相点附近进行缓慢降温, 降温速率达到1 mK/min, 甚至更低, 其报道了DT晶体的一种单晶生长行为. 国内目前还没有相关的研究报道, 本工作结合晶体生长形态动力学理论, 建立了氘晶体的两种单晶生长模型, 在自主研制的低温装置上开展了玻璃微球内氘燃料的结晶行为研究, 通过单色光背光成像技术在线表征了氘晶体的液化、结晶、生长过程, 并利用理论模型对D₂的结晶行为进行了分析, 通过与国外最新研究成果进行对比, 提出冷冻靶内D₂/DT燃料单晶生长方法, 拓宽了超低温下晶体生长研究领域, 为DT冷冻靶的研制提供了技术支持.

* 国家重大专项资助的课题.

† 通信作者. E-mail: pengshuming@hotmail.com

2 研究方法

实验使用装置的原理图如图1所示, 主要包括低温制冷单元、靶室控温单元、参数表征单元. 柱腔靶室内装配有一枚内含高压高纯氘气(99.8%)的玻璃微球, 靶球直径为243 μm , 壁厚2.6 μm , 内表面粗糙度优于10 nm, 球内 D_2 压力为13.8 MPa, 玻璃靶球采用直径为15 μm 碳纤维丝支撑于靶室中心, 靶室内导热He气压力为20—100 Pa(18 K), 背光成像单元由波长为620 nm 红光LED、长焦距显微镜镜头、CCD 和图像采集卡组成, LED发出的光经准直后穿过光学窗口进入靶室, 采用透射和反射方式在CCD上成像, 最后由图像采集卡采集并显示在电脑上进行分析处理.

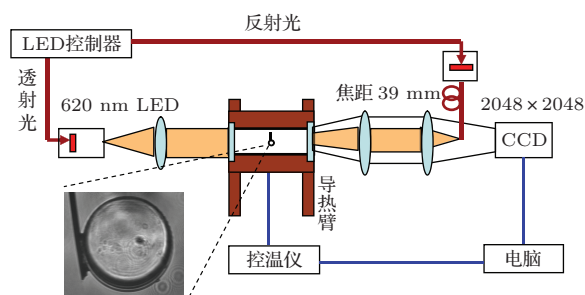


图1 (网刊彩色) 低温与表征装置原理图

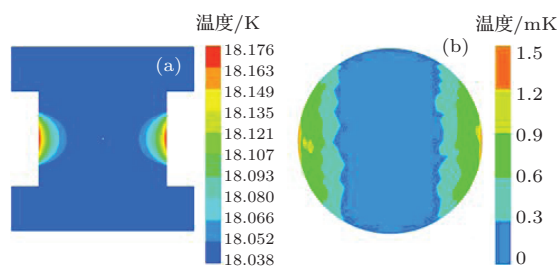


图2 (网刊彩色) 柱腔靶室及靶球温度分布模拟 (a) 靶室温度分布; (b) 靶球外表面温度分布

靶室最低温度13 K, 温度稳定性 ± 3 mK, 冷冻靶图像分辨率为1 μm . 实验中, 当温度降至30 K, 靶室内的高压氘气逐渐开始液化, 22 K左右液化完成, 靶球内液面不再发生变化, 由于重力及液氘表面张力作用, 靶球底部沉积了较多的液氘, 顶部最少, 成弯月形状, 此时启动缓慢降温程序, 同时采用表征装置记录靶球内液氘的变化过程.

实验过程中, 由于无法直接测量靶室内部温度, 采用了数值模拟的方法对靶室温度与靶球表面温度分布进行了计算, 如图2所示. 为了在柱腔靶室内获得均匀的温度场环境, 对靶室导热臂进行了

传热设计, 使得导热臂与靶室接触位置的温度一致, 靶室上温度分布的不均匀性主要受观测窗与外界环境的热辐射影响, 观测窗与靶室的温差约为0.14 K, 从而在靶球上产生了1.5 mK的温度不均匀性.

3 实验结果

实验中, 在 D_2 三相点(18.71 K)附近, 通过控制靶室降温速率实现对靶球内 D_2 燃料冷冻, 控温速率分别为500 mK/min, 50 mK/min, 10 mK/min, 2 mK/min, 获得的靶球内冰层图像如图3所示.

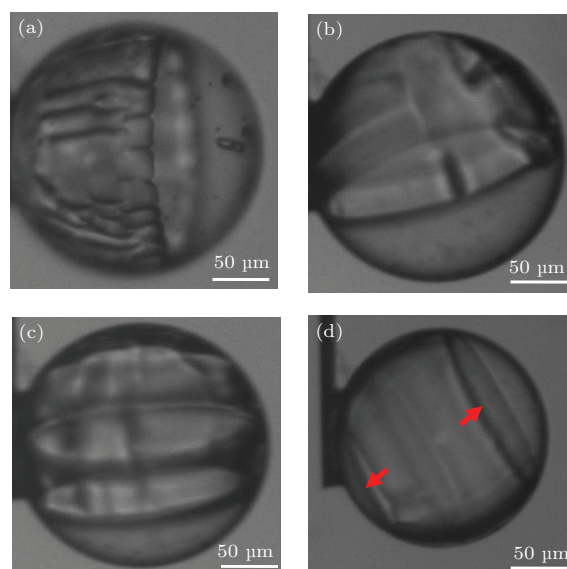


图3 不同降温速率下氘气在靶球内固化后的反射光图像 (a) 500 mK/min; (b) 50 mK/min; (c) 10 mK/min; (d) 2 mK/min

图3(a)显示在快速降温条件下, 氘晶体不仅出现了大量晶界缺陷及晶体裂纹, 同时还具有向初始结晶点汇聚的行为; 由图3(b), (c)可知, 通过减小降温速率, 形成的氘晶体的缺陷逐渐减少; 当降温速率为2 mK/min时, 氘晶体在靶球内表面进行了较均匀的分布, 仅在两侧形成了两条规则的环状晶带, 如图3(d)中箭头所示. 因此, 在该控温条件下, 详细记录了氘燃料的结晶生长过程.

实验发现当靶室温度达到18.0 K附近时, 低温靶球内氘燃料开始结晶(靶室与靶球之间存在一定的温度梯度), 故将靶室降温区设定为18.2—17.8 K, 降温速率为2 mK/min, 采用背光成像摄录模式, 在线记录了靶球内氘燃料从液态到固态的结晶过程, 如图4所示.

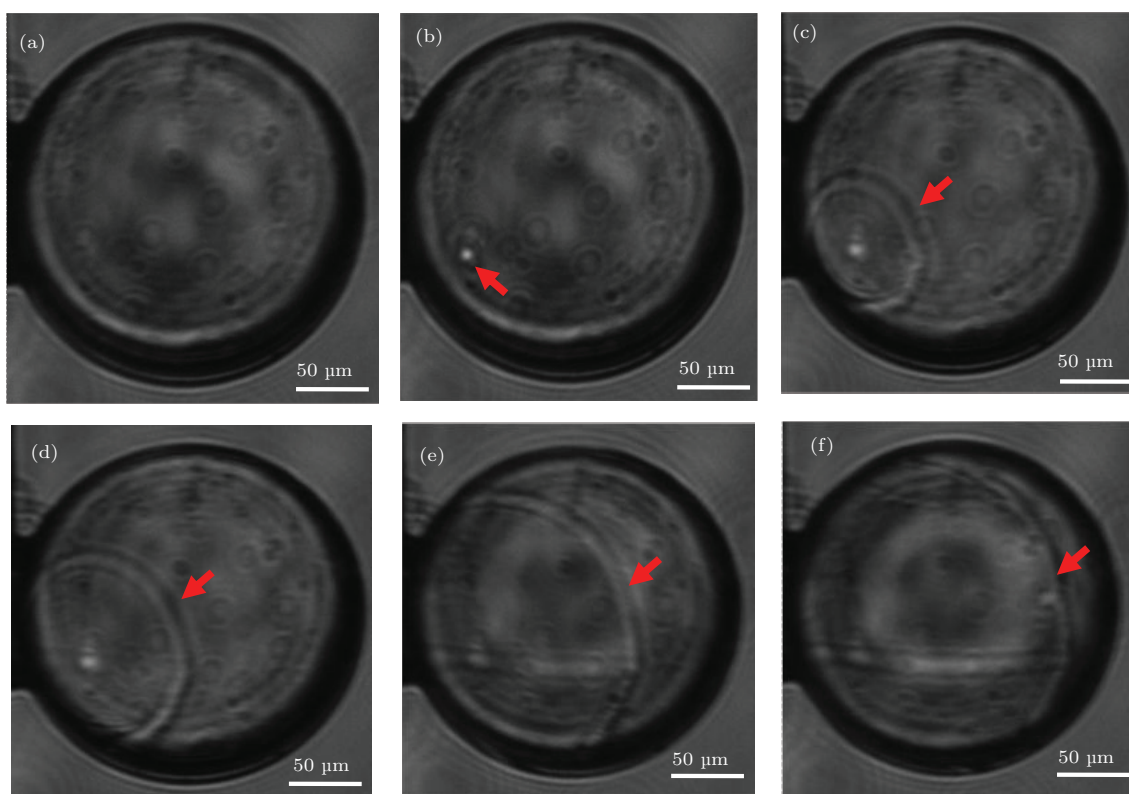


图4 氦燃料液滴环扩展结晶过程 (a) $t = 0$; (b) $t = 1$ s; (c) $t = 1.5$ s; (d) $t = 2.0$ s; (e) $t = 3.0$ s; (f) $t = 4.0$ s

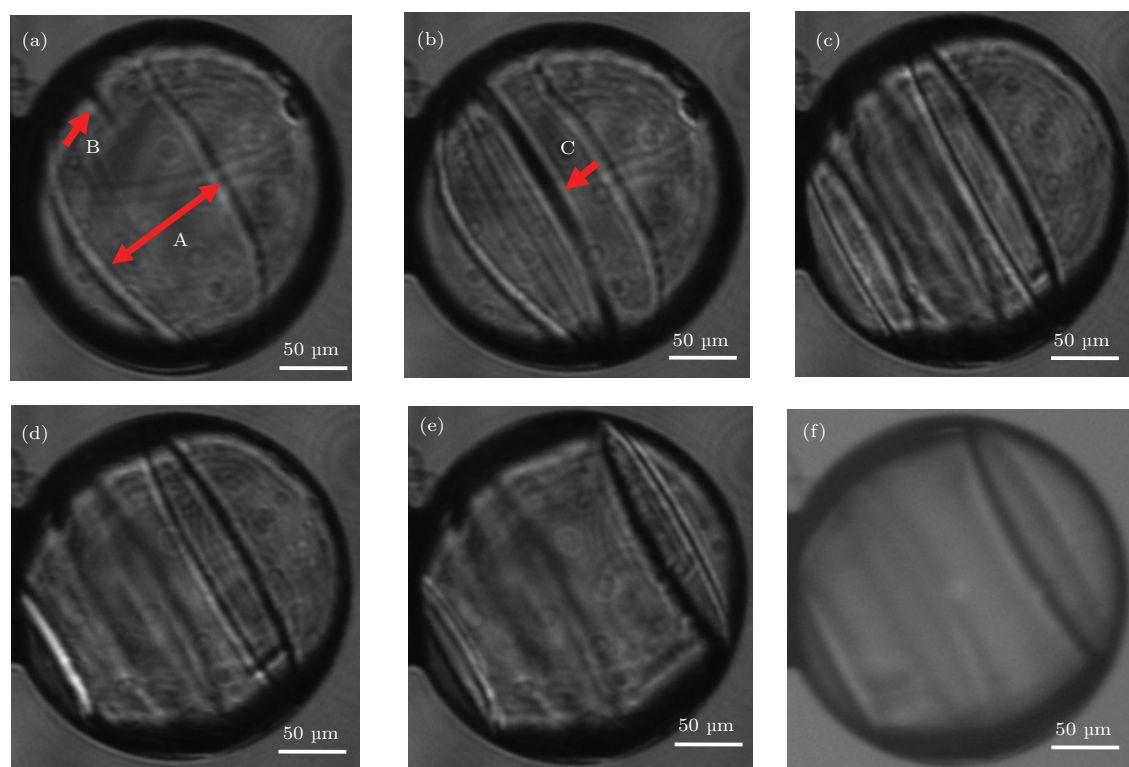


图5 氦燃料液滴环扩展与环形晶带扩展结晶过程 (a) $t = 3$ s; (b) $t = 3.5$ s; (c) $t = 4.0$ s; (d) $t = 4.5$ s; (e) $t = 5.0$ s; (f) $t = 6.0$ s

当靶室温度达到 18.038 K 时, 在低温靶球的左下方出现了一个直径约为 $5\ \mu\text{m}$ 的亮点, 如图 4(b) 所示, 随后以亮点为中心, 靶球内液氦燃料进行了

液滴环式的扩展结晶, 液滴环扩展至与亮点相对的极点处闭合, 亮点也逐渐变暗, 整个过程持续时间约 4 s, 以相同的条件先后重复了八次实验, 其中五

次亮点出现在了同一位置, 尺寸大小相当, 并以相同的方式进行扩展结晶, 其余三次亮点出现的位置不同, 但大小与扩展结晶方式相同. 由于靶球上温度不均匀性或靶球自身缺陷等原因, 在图 4(e), (f) 中出现了一条横向晶带, 但并没有对整个涟漪环扩展结晶过程带来影响.

多次重复结晶实验过程发现, 在以亮点为中心的涟漪环式扩展结晶过程中或者扩展完成后, 靶球内的液氖燃料存在另一种结晶过程, 如图 5 所示.

图 5(a) 中, 在涟漪环扩展了 3 s(A 处) 但结晶过程还未完成时, B 处又出现了一个条结晶带, 结晶带先沿着两端生长, 形成了一个闭合的结晶环, 如图 5(b)C 处所示, 闭合的结晶环再分别向左右两极扩展结晶, 如图 5(c), (d), (e) 所示, 最终在左右两极形成了直径不同环形晶带, 如图 5(f) 所示. 整个结晶过程持续约 6 s, 结晶完成后, 靶球内部氖燃料随着温度的降低, 不再发生变化.

4 分析与讨论

由上述实验过程发现, 在 He 均匀导热环境下, 通过减小降温速率有助于显著改善氖冰的晶体质量, 减少缺陷形成; 并且缺陷也由不规则逐渐向均

匀、规则的类型转变; 当降温速率到达 2 mK/min 时, 液氖燃料在玻璃微球内主要存在两次结晶过程, 首先出现的是以亮点为中心的涟漪环扩展方式结晶, 随后出现了以闭合晶带环向两侧扩展方式结晶.

根据布拉维法则, 面网密度越大的晶面, 生长速率越慢; 居里-吴里夫原理认为, 晶面的生长速度与该晶面的表面能成正比^[9]. 通过对相关文献及资料的调研, 目前认为氖晶体在高于 4 K 时, 主要以密排六方晶体 (hcp) 结构存在^[10], 晶体的 (0001) 面属于密排面, 具有较大的面网密度, 同时具有比表面能小的特点. 周期键链 (PBC) 理论把晶体生长过程中可能出现的晶面分为三种类型, 一是 F 面: 平坦面, 二是 S 面: 阶梯面; 三是 K 面: 扭曲面. 可以根据质点在各面上键合能强弱 (结合键个数) 获得其在各面上的生长速率快慢: K 面 > S 面 > F 面^[9].

基于上述晶体生长理论, 可以推断, 在理想状态下, 氖晶体的棱柱面属于优先生长晶面; 并可能存在两种理想单晶生长模型, 模型一: hcp 晶体 c 轴与基底面法线方向同轴, 如图 6 所示; 模型二: hcp 晶体 c 轴与基底面法线方向垂直, 如图 7 所示, 图中箭头表示晶体的快速生长方向.

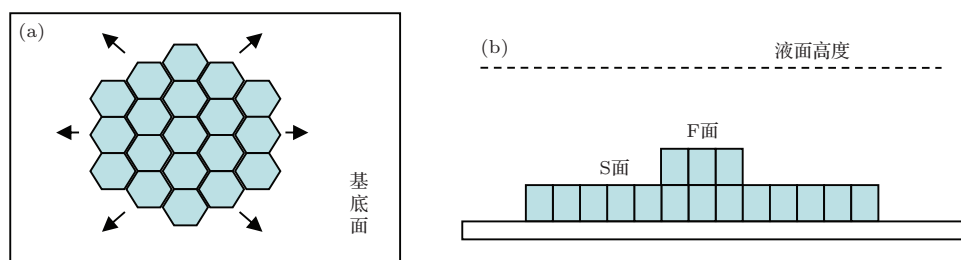


图 6 hcp 晶体 c 轴与理想结晶基底面法线方向同轴 (a) hcp 单晶生长俯视图; (b) hcp 单晶生长侧视图

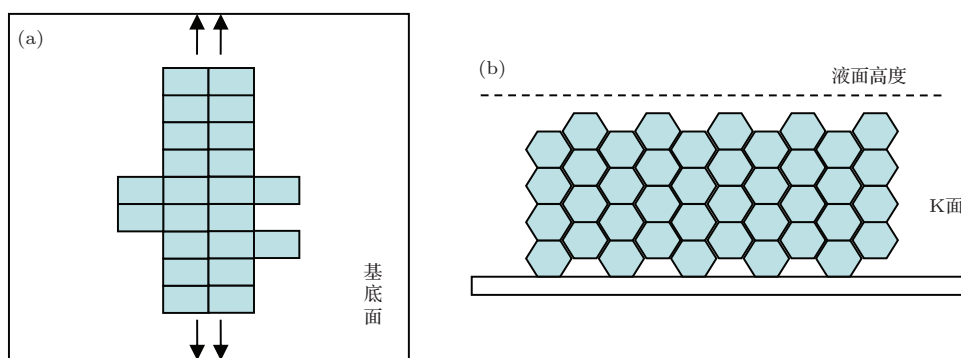


图 7 hcp 晶体 c 轴与理想基底面法线方向垂直 (a) hcp 单晶生长俯视图; (b) hcp 单晶生长侧视图

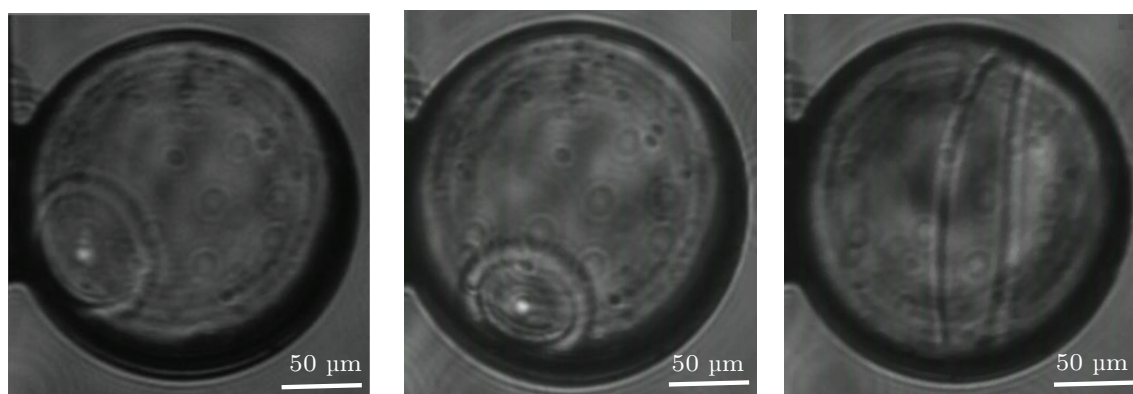


图8 氦燃料在玻璃靶球内不同位置涟漪环结晶过程

根据建立的hcp晶体单晶生长模型结合实验分析认为, 由于氦燃料从液态向固态的转变过程或是晶体生长过程, 燃料对可见光的折射率会发生了变化, 在图像中表现为相变界面处亮度的变化, 重复结晶过程, 亮点的位置也会发生变化, 主要受玻璃微球表面温度分布影响, 相变点都远离靶球观测窗正对面, 即图2(b)中计算的温度较高区域, 主要分布在靶球两侧温度较低区域, 如图8所示. 随后氦燃料以亮点为中心开始了涟漪环扩展方式结晶生长, 最后在与亮点相对的靶球极点处闭合, 其生长规律与模型一的环状扩展行为符合, 由此认为, 在18.038 K出现的直径5 μm 左右的亮点为氦燃料从液态向固态转变时形成的氦籽晶.

如果在该点处形成的氦籽晶 c 轴方向与球壳在该处的法线方向同轴, 籽晶形成后, 因为各棱柱面为等同晶面, 具有相同的晶面间距和界面能, 在均匀的温度场环境下, 具有相同的连续生长驱动力^[8], 宏观上表现为以环状方式向外扩展, 由此建立的氦燃料涟漪环生长模型如图9所示.

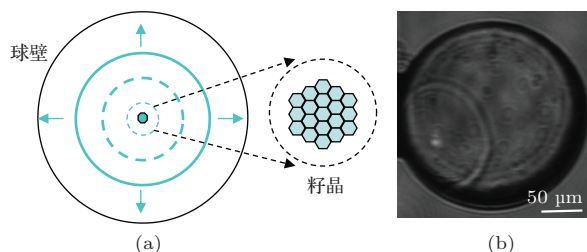
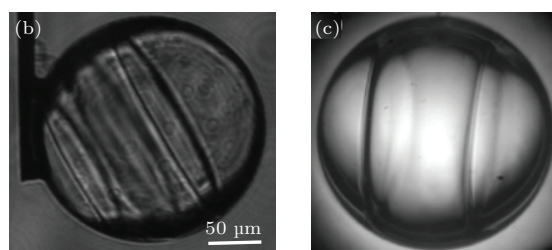
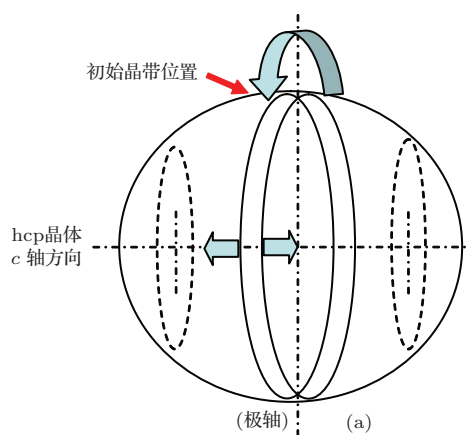


图9 涟漪环扩展模型及实验图像 (a) 涟漪环扩展结晶模型; (b) 氦冰涟漪纹扩展结晶

实验过程中同时发现了氦晶体以闭合晶带状扩展方式的结晶行为, 如图5所示, 结晶点首先进行了环状生长, 再逐渐向两侧扩展结晶, 这与建立的hcp晶体 c 轴与理想结晶基底面法线方向垂直的

晶体生长模型(模型二)符合, 如图10所示.

当氦燃料籽晶 c 轴方向与靶球极轴垂直时, 由于hcp晶体的棱柱方向快速生长, 首先会在靶球内形成一个闭合的结晶环, 随后液氦会在结晶环两侧扩展生长, 当内部液氦耗尽时, 扩展停止. 这一结晶过程与文献报道的DT燃料在GDP靶球内的单晶生长现象一致^[8], 但在其实验中并没有报道DT燃料以某一结晶点为中心的涟漪环扩展方式结晶生长行为.

图10 晶带环扩展结晶模型及实验图像 (a) 晶带环扩展结晶模型; (b) 玻璃微球内氦冰晶带环扩展结晶; (c) GDP靶球内DT冰晶带环扩展结晶^[6]

分析认为, 通过缓慢降温可以获得氦燃料籽晶, 由于热流影响, 在靠近靶球内壁的液氦会首先

到达结晶温度, 形成籽晶, 并吸附在靶球内壁生长. 理论上, 由于 hcp 籽晶的 c 轴与结晶基底面法线存在同轴(模型一)与垂直(模型二)两种类型, 即两种生长方式, 但在实验中发现, 单晶生长总是以模型一开始的, 即首先形成的 hcp 籽晶的 c 轴总是与靶球在该处的法线方向同轴. 根据晶体生长自由能最小原理, 在体积一定的条件下, 晶体将调整自己的形态使得其总界面自由能最低^[10], 同理, 在液氘内形成的籽晶只有当密排面(0001)吸附在靶球壳上, 可以获得最低的总界面自由能. 由此认为, 在靶球壳上不会单独出现模型二的单晶生长方式, 图 7 中出现的模型二的单晶生长过程, 是在模型一结晶的基础上发生的二次结晶行为. 如果能通过控制靶球内液氘按照模型二结晶生长, 那么 hcp 晶体面向球心的棱柱面会快速生长到液氘内层形成闭合的结晶环, 再分别向左右两侧扩展, 如此单晶生长将不会出现两次结晶过程, 从而进一步降低晶界缺陷的生成概率, 由此设计出的微管充 DT 结晶方法, 如图 11 所示.

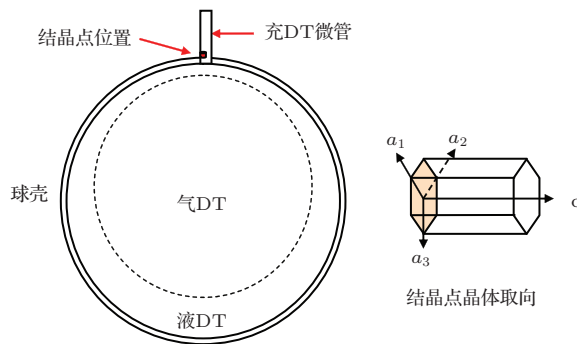


图 11 靶球内 DT 燃料单晶生长模型

通过精确控温, 让 DT 燃料首先在微管壁上结晶, 由上述分析可知, 形成的 hcp 籽晶 c 轴将与微管壁垂直, 与球壁在该处的法线方向也垂直, 籽晶将会朝 a 轴方向生长进入靶球内, 使得靶球内的 DT 燃料按照模型二的方式结晶生长, 最终获得理想的单晶 DT 冰.

5 结 论

利用可见光背光在线表征技术在自主研制的低温平台上研究了降温速率对玻璃微球内氘燃料

结晶质量的影响以及低温下氘燃料的结晶生长行为; 采用了晶体生长形态动力学理论进行了氘燃料结晶行为分析. 结果表明, 在 20—100 Pa He 均匀导热环境下, 通过缓慢降温有助于显著改善氘冰的结晶质量, 减少缺陷形成; 当降温速率达到 2 mK/min 时, 观测到了氘燃料的两种单晶生长行为, 即涟漪环扩展结晶与闭合晶带两侧展宽结晶, 与预测的 hcp 晶体可能存在的两种单晶生长模型符合, 由此可推断靶球内 D_2 或者 DT 燃料的晶向; 同时提出了微管充 DT 冷冻靶内 DT 燃料的单晶生长方法, 为国内 DT 冷冻靶制备中, 获得单晶 DT 冰提供了技术支持. 玻璃微球靶内氘的结晶行为不能完全反映 GDP 靶内 DT 燃料的结晶行为, 还需要继续开展相关实验研究, 同时进一步增强靶室温度分布均匀性, 提高控温精度, 从而降低结晶速率, 将有助于获得高质量的燃料冰层.

参考文献

- [1] Schultzu K R, Kaae J L 1999 *Fusion Engineering and Design*. **68** 441
- [2] Jia G, Xiong J, Dong J Q, Xie Z Y, Wu J 2012 *Chin. Phys. B* **21** 095202
- [3] Harding D R, Meyerhofer D D 2006 *Appl. Phys. Lett.* **13** 056316
- [4] Koziolowski B J, Kucheyev S O 2009 *Journal of Applied Physics*. **105** 093512
- [5] Harding D R, Wittman M D, Edgell D H 2012 *Fusion Science and Technology*. **28** 95
- [6] Chernov A A, Koziolowski B J 2009 *Appl. Phys. Lett.* **94** 064105
- [7] 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]
- [8] Jie W Q 2010 *Principle and Technology of Crystal Growth* (Beijing: Science Press) pp97–102 (in Chinese) [介万奇 2010 晶体生长原理及技术 (北京: 科学出版社) 第 78—102 页]
- [9] Wang P, Li G C 2013 *Crystallography Teaching Material* (Beijing: National Defense Industry Press) pp18–20 (in Chinese) [王萍, 李国昌 2013 结晶学教程 (北京: 国防工业出版社) 第 18—20 页]
- [10] Souers P C 1986 *Hydrogen Properties for Fusion Energy* (University of California, Berkeley) p74 (in USA)

Crystallization behaviors of deuterium in glass microsphere^{*}

Yin Jian Chen Shao-Hua Wen Cheng-Wei Xia Li-Dong Li Hai-Rong Huang Xin
Yu Ming-Ming Liang Jian-Hua Peng Shu-Ming[†]

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

(Received 18 May 2014; revised manuscript received 19 August 2014)

Abstract

To develop deuterium-tritium (DT) cryogenic targets that meet the inertial confinement fusion (ICF) experiment requirements, the DT crystal seeding growth process needs to be controlled to obtain single crystalline DT-ice, thus reducing the crystal defects formed during crystal growth and improving ice-layering. In this paper, the close-packed hexagonal (hcp) single crystal growth mode has been established through kinetic theory of crystal growth morphology. Experimentally, the target chamber temperature is controlled to within ± 3 mK and the deuterium (D_2) crystal growth process can be observed by backlit shadowgraphy. Results show that slow cooling can reduce the crystal defects significantly at the 20—100 Pa conducting helium pressure. When the cooling rate reaches 2 mK/min, two single crystal growth modes are observed with good reproducibility. Experimental results conform with the proposed hcp single crystal growth model. Compared with the results from Lawrence Livermore National Laboratory (LLNL), the methods of D_2 /DT single crystal growth in the cryogenic target are proposed.

Keywords: inertial confinement fusion(ICF), backlit shadowgraphy, cooling rate, single crystal growth

PACS: 52.57.-Z, 07.20.Mc, 81.10.-h, 68.35.Md

DOI: 10.7498/aps.64.015202

* Project supported by the National Special Program of China.

† Corresponding author. E-mail: pengshuming@hotmail.com