



氘氚冰籽晶的形核行为

张伟光 张凯奋 夏立东 黄鑫 周晓松 彭述明 施立群

Crystal nucleation behavior of deuterium tritium ice

Zhang Wei-Guang Zhang Kai-Fen Xia Li-Dong Huang Xin Zhou Xiao-Song Peng Shu-Ming Shi Li-Qun

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 71, 025203 (2022) DOI: 10.7498/aps.71.20211018

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.71.20211018>

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

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

基于蒙特卡罗-离散纵标方法的氘氚激光等离子体聚变反应率数值模拟

Numerical simulation of deuterium-tritium fusion reaction rate in laser plasma based on Monte Carlo-discrete ordinate method

物理学报. 2019, 68(21): 215201 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190440>

Al-Ti-B细化工业纯铝凝固组织演变过程数值模拟

Numerical simulations of solidification microstructure evolution process for commercial-purity aluminum alloys inoculated by Al-Ti-B refiner

物理学报. 2021, 70(8): 086402 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20201431>

冰的氢键振动研究

Investigation of hydrogen bond vibrations of ice

物理学报. 2021, 70(14): 146301 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210013>

非晶Ag晶化过程中不同类型晶核结构的识别与跟踪

Identification and tracking of different types of crystalline nuclei during isothermal crystallization of amorphous Ag

物理学报. 2019, 68(7): 076401 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20182188>

定向凝固单晶冰的取向确定与选晶

Orientation determination and manipulation of single ice crystal via unidirectional solidification

物理学报. 2018, 67(19): 196401 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180700>

二维冰相I的电子和光学性质

Electronic and optical properties of two-dimensional ice I

物理学报. 2021, 70(13): 133101 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210708>

氘氚冰籽晶的形核行为

张伟光¹⁾²⁾ 张凯奋²⁾ 夏立东²⁾ 黄鑫²⁾周晓松²⁾ 彭述明^{2)†} 施立群^{1)‡}

1) (复旦大学, 核物理与离子束应用教育部重点实验室, 上海 200433)

2) (中国工程物理研究院核物理与化学研究所, 绵阳 621900)

(2021 年 5 月 30 日收到; 2021 年 8 月 28 日收到修改稿)

为了实现激光约束核聚变 (ICF) 的自持聚变目标, 对靶壳内氘氚冰的质量提出了极其苛刻的要求, 冰层内表面和靶壳的同心度要求大于 99.9%, 冰层内表面均方根粗糙度 (RMS) 优于 $1\ \mu\text{m}$. 高质量的冷冻氘氚靶建立在靶壳内高质量氘氚冰层的前提之上. 单晶是冰层的最好形态, 在靶壳内获得氘氚冰籽晶是基础条件. 本文通过采用逐渐降低升温速率的台阶控温方法, 开展了充气微管内保留籽晶的研究, 揭示了充气微管内保留籽晶的形核机理, 实验结果表明, 利用充气管口可保留稳定、单一的籽晶, 在相同的过冷度下, 当氘氚籽晶 c 轴方向与充气管轴向平行时, 生长速度较 c 轴垂直于充气管轴向时的速度慢约 1—2 个量级, 为获得高质量的籽晶从而形成高质量的氘氚冰提供了参考和支撑.

关键词: 氘氚冰, 形核, 聚变, 靶**PACS:** 52.57.Bc, 81.10.Fq, 52.57.-z**DOI:** 10.7498/aps.71.20211018

1 引言

氘是实现聚变能源的核心燃料, 基于可控核聚变的电站的能源被公认为是未来世界能源问题的重要解决途径之一, 由于聚变的极端高温、高压等条件, 对科学、技术与工程都带来了极大的挑战. 在氢同位素可以发生聚变反应的各种组合中, 由于氘氚聚变反应截面最大, 在现有驱动器的能力条件下, 是最可行的方式. 对于惯性约束聚变 (inertial confinement fusion, ICF) 来说, 由于冷冻氘氚靶的可等熵压缩和对激光能量要求最低, 因此, 冷冻氘氚靶是其首选靶型. 冷冻氘氚靶是利用低温技术将氘、氚燃料定量注入靶壳内, 并在靶壳内表面形成厚度均匀、表面粗糙度低的氘氚冰层. 对于冷冻氘氚靶的研究, 国内外已开展了数十年的研究, 美

国虽然尚未实现自持核聚变, 但已具备了冷冻氘氚靶的制备能力, 建立了基于精密控温的氘氚冰籽晶形核、可控生长和氘氚冰均匀化技术, 为了实现美国国家点火设施 (national ignition facility, NIF) 的聚变实验要求, 其 5.0 版冷冻氘氚靶的技术指标为: 靶壳材质选用辉光放电等离子体碳氢 (glow discharge plasma, GDP) 或高密度碳 (high density carbon, HDC); 靶壳内氘氚比为 50:50, 冰层厚度在 70—100 μm 之间, 冰层内表面和靶壳的同心度要求大于 99.9%; 冰层内表面粗糙度 (RMS) 优于 $1\ \mu\text{m}$, 打靶时刻靶壳内中心气体密度需要为 0.3 mg/mL (低于三相点温度 1.3—1.5 K)^[1–8]. 通过开展过冷度、降温速率等对靶壳内氘氚熔体中籽晶形成的影响规律研究, 获得氘氚冰籽晶形核机制, 掌握籽晶形核方法, 为高质量氘氚冰的可控生长和 β 均化效应研究提供基础条件.

† 通信作者. E-mail: pengshuming@caep.cn

‡ 通信作者. E-mail: lqshi@fudan.edu.cn

2 实验方法及条件

该实验在涉氚操作低温装置上开展, 微管充气工作原理如图 1 所示. 背光成像装置 (如图 2 所示) 用于对氢同位素液体的注入、形核等过程的实时观察和检测.

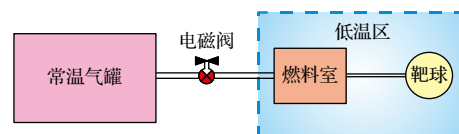


图 1 微管充气工作原理示意图, 蓝色区域表示低温区
Fig. 1. Schematic of micro-tube fill principle. Blue area indicates the cryogenic zone.

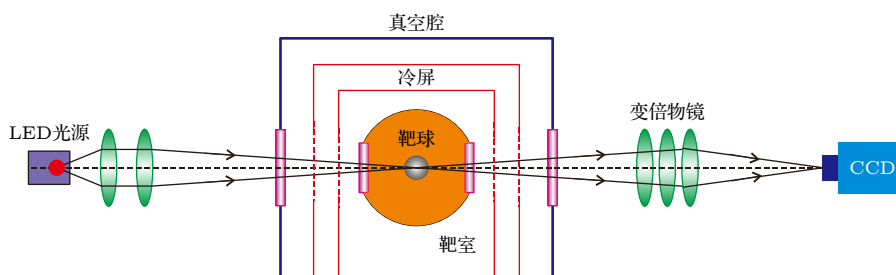


图 2 背光成像装置示意图
Fig. 2. Schematic of backlit imaging device.

实验使用的靶壳直径约 800 μm , 靶壳壁厚约 50 μm , 充气微管内径约 30 μm , 基于“燃料室和充气靶室分别独立控温, 利用温度控制实现燃料可控注入”的方式^[3-5,9], 实现氢同位素可控注入至靶壳中^[3-5,10-12], 并保持一定的液体量. 其中的包容球腔为无氧铜材质, 内径为 10 mm, 如图 3 所示.

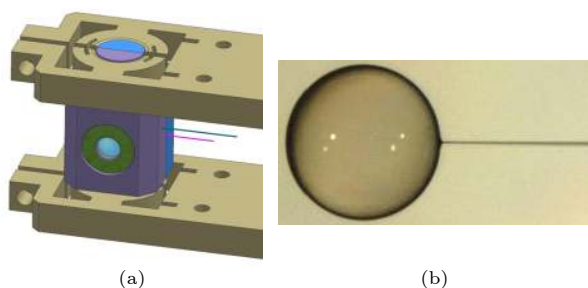


图 3 靶壳装配示意图 (a) 实验样品装配总图, 红色细管表示靶球充气管, 绿色细管表示靶室充 He 管; (b) 带充气管的 GDP 微球实物照片

Fig. 3. Diagrammatic drawing of target assembly: (a) General assembly drawing of experimental sample. The red tube is the fill tube of D-T, and the green is the fill tube of He. (b) Picture of GDP target with fill tube.

将一定量的 D-T (常温下 25%D₂-50%DT-25%T₂) 注入至靶壳中, 在靶壳中形成氘氚液体. 充气过程采用的燃料罐体积为 27 mL, D-T 混合气的初始压力 (300 K) 为 27.85 kPa, 取气的氘氚原子比为 46:54, 充气、冷冻、籽晶形核全过程中, 靶室的导热氦气压力为 175 Pa (20 K).

3 实验结果

3.1 D-T 体系三相区间

快速冷冻至 18 K, 靶壳内部所有液体都变成 D-T 冰, 随后以 0.5 mK/min 的速度进行缓慢升温, 直至靶壳内 D-T 冰全部液化, 获得初始熔化温度和初始结晶温度 (三相点温度). 在 19.554 K 时, 冰层表面已经开始出现液体. 在 19.643 K 时, 冰层几乎全部液化, 只在顶部位置保存固体微粒.

实验测得 D-T 冰的初始熔化温度为 19.554 K, 5 次测得的冰层完全熔化温度分别为 19.643, 19.645, 19.642, 19.636 和 19.657 K, 平均值为 19.645 K, 计算获得 D:T = 46:54 体系的三相区间温度为 (91 ± 7) mK ($k = 2$), 三相点温度较理论计算 (D:T = 1:1) 差约 145 mK.

3.2 重结晶保留籽晶

3.2.1 靶壳壁上保留籽晶

实验步骤如下: 1) 快速冷冻在靶壳内形成 D-T 冰, 再逐渐回温至接近三相点温度, 使得 D-T 冰大部分熔化; 2) 逐渐减小升温速率至 1 mK/min, 使 D-T 冰在降低 1 mK 时体积增加, 升高 1 mK 时体积减小; 3) 采用阶梯升温方式, 以每步 1 mK 逐渐升高靶壳温度, 以控制冰层熔化速度; 4) 冰层在靶壳内顶部位置保留, 当籽晶长度约为 10 μm 时开

始恒温; 5) 当籽晶可维持 10 min 不发生变化时, 认定为在靶壳内获得了籽晶, 否则重复整个过程. 靶壳内氘氚冰熔融保留籽晶的过程如图 4 所示.

实验中发现, 当靶壳内晶体的长度 (沿球面) 小于 100 μm 尺度时, 冰层会加速熔化, 在晶体长度小于 10 μm 时, 即使快速降温 50 mK, 也难以维持, 最终将导致固体全部液化.

3.2.2 充气管内保留籽晶

重复 3.2.2 节实验步骤, 在完成第 4 步后, 持续保持 1 mK 的温度振荡, 当靶壳内冰层刚好全部熔化时, 充气管内仍保留一部分氘氚冰 (图 5), 并且在温度增加 1 mK 时, 固液界面将沿充气管向远离靶壳方向移动, 降低 1 mK 时, 固液界面向靶壳方向移动, 氘氚冰籽晶得以在充气管内保留.

3.3 氘氚冰籽晶的扩展生长

图 6 为充气管内保留的籽晶在 19.405 K 下的

扩展生长过程, 根据固液界面的扩展情况结合充气管的尺寸, 计算的籽晶面扩展速度和体积增加速度如表 1 和图 7 所示.

从表 1 和图 7 可以看出, 在 19.405 K, 过冷度约为 68 mK 的条件下, 充气管内可以保留籽晶, 体系温度增加 1 mK, 籽晶会减小 (融化), 维持在 19.405 K 时, 籽晶在生长驱动力作用下则会长大. 籽晶的生长在充气管中会随着管道直径逐渐变小, 面扩展速度会逐渐增加, 而籽晶体积的增加速度随之会逐步降低, 最终趋于平稳.

表 1 熔体中籽晶面扩展速度和体积增加速度
Table 1. Expansion rate of the seed plane and the volume increase rate.

| 项目 | 1 | 2 | 3 | 4 | 5 | 6 |
|---|------|------|------|------|------|------|
| 微管直径/ μm | 28.8 | 24 | 18.9 | 13.8 | 12.3 | 11.1 |
| 时间/s | 0 | 35 | 65 | 90 | 95 | 100 |
| 面扩展速度 $V_{\text{f}}/(\mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1})$ | — | 2.23 | 3.68 | 4.70 | 6.96 | 9.00 |
| 体积增加速度 $V_{\text{b}}/(\mu\text{m}^3\cdot\text{s}^{-1})$ | — | 4891 | 5342 | 3981 | 3726 | 3872 |

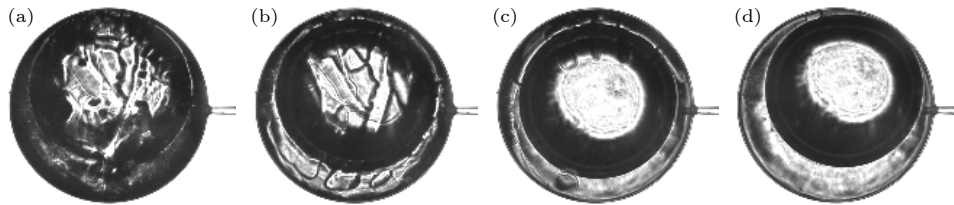


图 4 靶壳内氘氚冰熔融保留籽晶演化过程 (a) D-T 燃料层速冻至 18.5 K; (b) 缓慢升温至三相区, 19.621 K; (c) 阶梯缓慢升温至 19.640 K, 冰层几乎全部融化; (d) 继续降低升温速率, 在得到微小籽晶时恒温保持 19.642 K

Fig. 4. Formation of melted residual seed crystal in the target: (a) Target with D-T rapid-cooling to 18.5 K; (b) temperature risen slowly to the three-phase region, 19.621 K; (c) slowly rises in step to 19.640 K, almost all the ice has melted; (d) slow cooling untill the ice is small enough in the target and maintain the temperature at 19.642 K.

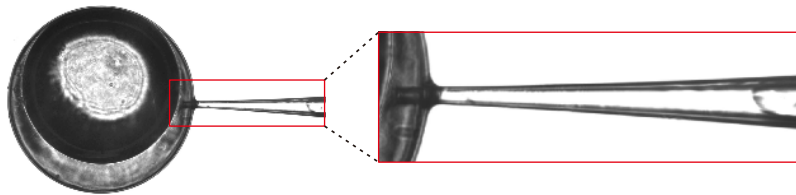


图 5 籽晶保留在充气管内, 靶球温度 19.405 K

Fig. 5. Formation of D-T ice melted residual seed crystal in the fill tube ($T = 19.405$ K).

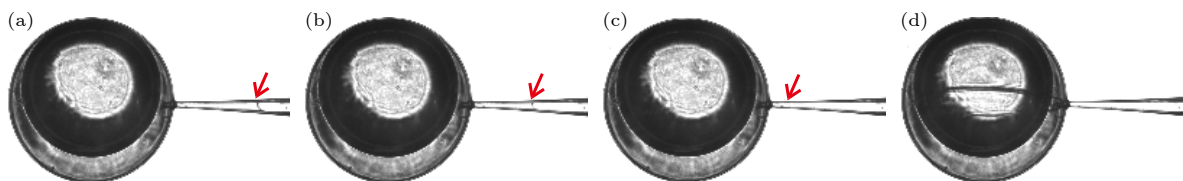


图 6 充气管保留籽晶的扩展生长过程 (19.405 K), 红色箭头所指为固-液界面

Fig. 6. Expansion of the seed grains in the tube (19.405 K), the red arrows show the solid-liquid interface.

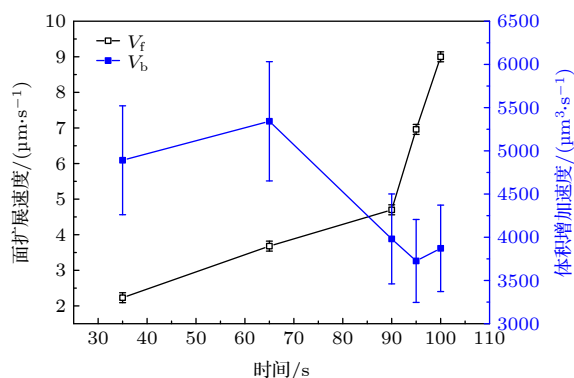


图 7 籽晶面扩展速度和体积增加速度

Fig. 7. Expansion rate of the seed plane and the volume increase rate.

根据尹剑^[13]推算的 DD 晶体 F 面的生长速度约为每秒数十微米, 充气管内保留的籽晶结构为 hcp 结构, 当固液界面为较光滑的凸界面 (球面) 时, 其 c 轴平行于充气管轴向, 生长取向为沿 (0001) 面扩展生长, 生长前沿扩展速度为 2—10 $\mu\text{m/s}$. 实验中观察到另一种形态, 即充气管中固液界面为平面, 固体前端表现为锥面 (如图 8 所示) (概率较低, 约为 10%), 其籽晶的 c 轴垂直于充气管轴向, 在该模式下充气管内籽晶扩展生长速度极快, 1 s 之内就进入靶壳, 晶体前沿面扩展速度为 300—400 $\mu\text{m/s}$.

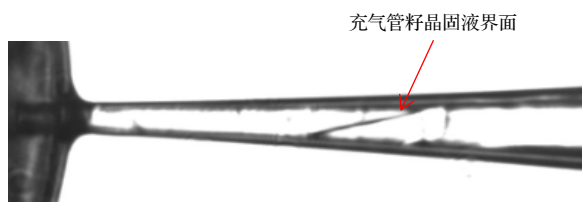
图 8 充气管内籽晶的其他形态 (c 轴平行充气管轴向)

Fig. 8. Expansion of seed retained in the tube (c axis is parallel to the axis of the tube).

4 讨论部分

根据 Souers^[14] 给出的团簇熔点温度与三相点温度的经验公式

$$T_c/\theta \approx 1 - \exp(-0.11 \cdot \ln N), \quad (1)$$

式中, T_c 为团簇的熔点温度, θ 为体系三相点温度, N 为团簇的原子或分子数.

根据体积估算, 100 μm 的 D-T 晶体体积约为 $1 \times 10^{-6} \text{ mL}$, 需要的过冷度约为 300 mK, 而维持更小尺寸的晶粒要求过冷度更高, 但此时又会造成整个熔体过冷度过大, 导致均匀形核, 形成大量的

小籽晶, 与保留单一、稳定的籽晶相冲突. 因此, 通过该方法获得高质量的籽晶 (直径为微米量级) 显得不可行.

根据非均匀形核理论, 为了获得质量较好的晶体或单晶, 就要求控制成核率, 防止不受控成核, 因此, 非均匀成核将是重要的环节. 针对 ICF 靶来说, 其 D-T 燃料被包覆在一球壳之内, 由于氢同位素与 GDP 材质之间的接触角约 180° , 即完全浸润, 因此, 靶壳内表面先天存在一个固液界面, 从微观角度来看, 其冻结结晶过程可采用平底衬上的晶体生长的模型来分析: 衬底 (靶壳壁) 上的表面凹陷 (靶壳制备过程中形成) 能有效地增加晶体与衬底间的界面面积 (胚团在表面凹陷内形成), 因而能有效地降低胚团的形成能, 甚至能使胚团 (在凹陷中的) 在过热或不饱和的条件下保持稳定^[15].

针对带充气微管的靶壳, 微管注入口可以看作是靶壳内表面上最大的凹陷, 采用柱孔模型 (如图 9 所示) 进行分析讨论, 柱腔中胚团的形成能为:

$$\Delta G = \frac{\pi r^2 h}{\Omega_s} \cdot \Delta g + 2\pi r \gamma_{sf} \times \left[r \left(1 - \sqrt{1 - m^2} \right) / m^2 - m(h + r/2) \right], \quad (2)$$

其中, m 为接触角的余弦值, γ_{sf} 固液界面能. 随着充气管距离靶壳内表面深度 h 的增加, ΔG 总是减小的, 胚团将自发增长, 等价于籽晶生长. 充气管口处引起的籽晶的形成能最低. 在籽晶曲率半径、熔体接触角相同的情况下, 充气管与靶壳形成的凹界面对籽晶形成将产生一定的催化效果, 成核效能更高, 能使 D-T 胚团 (充气管中) 在过热或不饱和的条件下保持稳定. 结合 D-T 体系的自加热效应, 充气管中的温度梯度相较靶壳中的更小, 因此, 要在充气管中保留一个晶粒是最可行的. 在体系降温

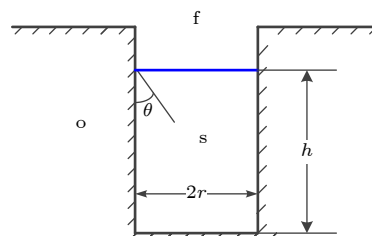


图 9 表面凹陷的柱孔模型. f, 亚稳流体相; s, 固体胚团; o, 平底衬; r , 柱孔半径; h , 固体高度; θ , 三相交界接触角

Fig. 9. Cylindrical hole model with a recessed surface. f, metastable fluid; s, solid cluster; o, object carrier; r , radius of hole; h , solid height; θ , angle of contact.

过程中,最有可能在充气管口形成单一籽晶,与美国 LLNL 实验室采用的籽晶形成方式基本一致.

针对 hcp 结构的晶体,在沉积或晶体形核过程中,其 c 轴倾向于平行于温度梯度方向.在 D-T 体系中由于氘的 β 衰变和自吸收的热效应,使得靶壳中的温度会略高于充气管和周边环境,形成了靶壳内在半径方向上的温度梯度;充气管远端与包容球腔直接接触,其接触传热与 He 气对流传热的导热率的差别,导致充气管内氘氦冰温度较靶壳内的低,形成了充气管轴向上的温度梯度,对于充气管横截面,其温度梯度为沿径向由外向内,充气管内温度高于充气管外壁温度,与理论模拟结果一致.充气管内的两种温度梯度存在一定竞争关系,因此,充气管内形成的氘氦籽晶的 c 轴平行于充气管轴向,沿温度梯度优先形成,与实验中获得的概率高度一致.

随着籽晶不断向靶壳内扩展,随着充气管靠近靶壳,其横截面的半径和壁厚随之减小并趋于平衡.当接近靶壳时,充气管内固液界面的温度梯度逐渐减小,即生长驱动力——过冷度也将逐渐减小,因此,晶体生长速度会降低并趋于稳定.

根据包容球腔内充气管的尺寸,估算 D-T 晶体体积在 10^{-5} — 10^{-6} cm^3 之间,维持该体积的温度约为 19.485—19.554 K,较理论三相点温度过冷约 200—240 mK.而我们体系的实际过冷度约为 160 mK,与理论推算也基本一致.

5 结 论

通过本文的研究,可以得到以下主要结论.

1) 实验获得 D-T 体系 ($D:T = 46:54$) 的三相区间温度为 (91 ± 7) mK ($k = 2$),三相点温度较理论计算 ($D:T = 1:1$) 差约 145 mK.

2) 充气管与靶壳之间的通道,符合“非均匀形核的柱孔模型”,充气管与靶壳形成的凹界面对籽晶形成将产生催化效果,增加成核效能,使 D-T 胚团(充气管中)在靶壳内氘氦液体过热或不饱和的条件下保持稳定,通过此形核机制,在充气管内可获得稳定、单一的氘氦冰籽晶.

3) 通过对氘氦籽晶在充气管内的扩展速度的分析,发现籽晶在充气管中存在 c 轴方向分别与充气管轴向平行和垂直的两种状态.通过生长扩展行为评估得出,在相同的过冷度下, D-T 籽晶 c 轴方向与充气管轴向平行时,其将沿 (0001) 面扩展生长,前沿扩展速度为 2—10 $\mu\text{m/s}$,较 c 轴方向与充气管轴向垂直状态,扩展生长速度低约 1—2 个量级.

籽晶形核的基础认识,将为冷冻氘氦靶内氘氦冰的可控生长提供基础认识和技术指导.

参考文献

- [1] Hamza A V, Nikroo A, Alger E, Antipa N 2016 *Fusion Sci. Technol.* **69** 395
- [2] Biener J, Ho D D, Wild C 2009 *Nucl. Fusion* **49** 112001
- [3] Kucheyev S O, Hamza A V 2010 *J. Appl. Phys.* **108** 091101
- [4] Peng S M, Xia L D, Long X G, Chen S H, Zhang W G, Li H R 2009 *Atom. Energ. Sci. Technol.* **43** 756 (in Chinese) [彭述明, 夏立东, 龙兴贵, 陈绍华, 张伟光, 李海容 2009 原子能科学技术 **43** 756]
- [5] Peng S M, Zhang W G, Long X G, Xia L D, Chen S H, Yin J 2008 *Cryogenics* **166** 60 (in Chinese) [彭述明, 张伟光, 龙兴贵, 夏立东, 陈绍华, 尹剑 2008 低温工程 **166** 60]
- [6] Yu M M, Chen S H, Li H R, Wen C W, Xia L D, Yin J, Wang W W, Chen X H, Zhang X A, Zhou X S, Peng S M 2016 *Atom. Energ. Sci. Technol.* **50** 2289 (in Chinese) [余铭铭, 陈绍华, 李海容, 温成伟, 夏立东, 尹剑, 王伟伟, 陈晓华, 张晓安, 周晓松, 彭述明 2016 原子能科学技术 **50** 2289]
- [7] Landen O L, Benedetti R, Bleuel D 2012 *Plasma Phys. Control. Fusion* **54** 124026
- [8] Brisset D, Lamaison V, Paquignon G 2007 *Fusion Sci. Technol.* **52** 472
- [9] Wittman M D, Harding D R 2008 18th Target Fabrication Meeting Lake Tahoe, California, USA, May 11–15, 2008
- [10] Bennett G R, Herrmann M C, Edwards M J 2007 *Phys. Rev. Lett.* **99** 205003
- [11] Bernat T P, Huang H, Nikroo A 2005 USA LLNL, Contract No: UCRL-PROC-216248
- [12] Wang K, Lei H L, Lin W 2012 *GF Report*, CAEP, Contract No: GF-A0163380G (in Chinese) [王凯, 雷海乐, 林伟 2012 中国国防科学技术报告: 中国工程物理研究院激光聚变研究中心. Contract No: GF-A0163380G]
- [13] Yin J 2015 *M. D. Thesis* (Peking: Graduate School of China Academy of Engineering Physics) (in Chinese) [尹剑 2015 硕士学位论文 (北京: 中国工程物理研究院研究生部)]
- [14] Souers P C 1985 *Hydrogen Properties for Fusion Energy* (California: University of California Press) p89
- [15] Min N B 1982 *Physical Fundamentals of Crystal Growth* (Shanghai: Shanghai Science and Technology Press) p354 (in Chinese) [闵乃本 1982 晶体生长的物理基础 (上海: 上海科学技术出版社) 第354页]

Crystal nucleation behavior of deuterium tritium ice

Zhang Wei-Guang¹⁾²⁾ Zhang Kai-Fen²⁾ Xia Li-Dong²⁾ Huang Xin²⁾

Zhou Xiao-Song²⁾ Peng Shu-Ming^{2)†} Shi Li-Qun^{1)‡}

1) (*Key Laboratory of Nuclear Physics and Ion-beam Application (MOE), Fudan University, Shanghai 200433, China*)

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

(Received 30 May 2021; revised manuscript received 28 August 2021)

Abstract

In order to achieve the self-sustaining fusion goal of inertial confinement fusion (ICF), extremely strict requirements for the quality of deuterium-tritium(D-T) ice in the target shell have been put forward. The concentricity between the inner surface of the ice and the target shell is required to be greater than 99.9%, and the root mean square (RMS) roughness of the inner surface of the ice is better than 1 μm . The high-quality ICF target is based on the high-quality D-T ice in the target shell. Single crystal is the best form of D-T ice, and seed crystal in target shell is the basic condition. In this paper, the step temperature control method of gradually reducing the heating rate is used to study the retention of seed crystals in the fill tube, and the nucleation mechanism of retention of seed crystals in the fill tube is revealed. The experimental results show that the use of the fill tube defects can keep stable and single seed crystal, and under the same supercooling, when deuterium tritium seed crystal c -axis and the fill tube are axially parallel, the growth rate is about 1–2 orders of magnitude slower than that when the c -axis is perpendicular to the axial direction of the gas filled tube. The results provide a reference for obtaining high-quality seed crystals, and a basic support for developing the D-T target in China.

Keywords: D-T ice, nucleation, fusion, target

PACS: 52.57.Bc, 81.10.Fq, 52.57.-z

DOI: 10.7498/aps.71.20211018

† Corresponding author. E-mail: pengshuming@caep.cn

‡ Corresponding author. E-mail: lqshi@fudan.edu.cn