

## 高压氘氚靶球的制备与拉曼光谱研究

温成伟<sup>1</sup>, 沈春雷<sup>1</sup>, 余铭铭<sup>1</sup>, 夏立东<sup>1</sup>, 王凯<sup>2</sup>, 李海容<sup>1\*</sup>

1. 中国工程物理研究院核物理与化学研究所, 四川 绵阳 621900

2. 中国工程物理研究院激光聚变研究中心, 四川 绵阳 621900

**摘要** 氢同位素的定量分析与监测在能源与环境领域都有着重要的意义。激光拉曼光谱由于其可以无损分析氢同位素分子, 已经成为一种重要的方法, 在国际热核聚变实验反应堆(ITER)和美国萨凡纳河工厂得到了广泛应用。利用高压充气装置得到了惯性约束聚变(ICF)高压靶丸, 并对靶丸内气体进行原位拉曼光谱测量, 通过对高压下氘氚混合气体的拉曼光谱进行分析得到了靶丸内气体的成分比例, 验证了靶丸充气工艺参数。实验表明, 在 CCD 的积分时间延长到 1 min 时, 氘(DD), 氘氚(DT)和氚(TT)的测量精度可以达到 1%, 同时对不同时刻靶丸内气体组分的拉曼光谱进行测量, 实验结果表明在氘氚渗透和氚衰变两者共同作用下, 靶丸内总气体压力随时间不断下降, 但是气体组成基本不发生变化。

**关键词** 惯性约束聚变; 高压气体靶; 拉曼光谱

**中图分类号:** O657.3 **文献标识码:** A **DOI:** 10.3964/j.issn.1000-0593(2018)01-0073-04

### 引言

氢同位素的定量分析与监测在能源与环境领域都有着重要的意义<sup>[1-3]</sup>。激光拉曼光谱(laser Raman spectroscopy)由于其可以无损分析氢同位素分子, 已经成为一种重要的方法。在国际热核聚变实验反应堆(international thermonuclear experimental reactor, ITER)工程中, 作为一种强有力的工具, 激光拉曼光谱已经取得了很好的研究成果和应用前景, 可以用于氢同位素的定性和定量分析<sup>[2]</sup>。

在激光惯性约束聚变(ICF)研究中, 如何简便快速获得高压靶丸内气体的组成及压力目前仍然是研究的重点。对于气体组成, 可以利用质谱, 色谱或者拉曼光谱进行分析, 而拉曼光谱法是其中唯一一种能够实现无损, 在线, 零排放的分析手段。对于气体总压力的测定, 传统上采用气泡法和干涉条纹移动法。前者需要在液体中将靶球压碎, 通过测定气泡大小间接计算压力, 无法做到无损检测, 而后者在实际操作中也可能存在难于用于大直径, 多层涂膜靶丸等问题, 而且两种方法耗时均较长, 无法做到实时在线分析。对于含氚操作, 分析时间加长无疑会增加对人员和环境的辐射伤害。激光拉曼光谱由于其无损, 快速的特点, 已经逐渐成为氢同位素分析的重要手段之一。其中氢同位素的成分比例可由精确

测量其转动(S支)或者振动(Q支)峰的强度获得, 由于转动峰强度和正仲氢平衡相关, 且受背景影响较大, 氢同位素拉曼振动峰被更多用于组分分析; 而气体总压力理论上可以通过散射强度获得。高党忠等以及本实验室都曾尝试过通过建立拉曼散射强度和压力的关系来进行测量靶丸的总压力<sup>[4-5]</sup>。但是由于该法需要已知压力和直径的微球作为标定, 且易受仪器参数影响, 现实中难以实现, 必须探索其他的压力标定方法。基于此, 采用拉曼光谱对氘氚高压靶丸内的气体成分进行了分析, 与采用质谱仪的测量的比对结果表明: 拉曼光谱法具有很高的测量精度。同时对氢同位素气体的拉曼谱峰位置和力的关系进行了初步研究, 得到了靶丸内组分随时间的变化规律。

### 1 实验部分

高压氘氚靶丸在高压渗透充气装置上通过渗透充气实验得到, 其原理图见图 1。其中靶丸是直径为 250  $\mu\text{m}$ , 壁厚 3  $\mu\text{m}$  的玻璃微球。高压渗透充气装置根据功能可以分为高压部分、低压部分、真空获取子系统、二级防护容器、手套箱、应急处理子系统、自动控制子系统等。充气实验中配气的氘氚原子比由氢同位素质谱得到。制备好的氘氚靶丸总压力通过条纹移动法由 Leica DM6000 型干涉显微镜获得。纯氘

收稿日期: 2016-06-05, 修订日期: 2016-12-11

基金项目: 国防科技重点实验室基金项目, 国家重大专项资助

作者简介: 温成伟, 1982 年生, 中国工程物理研究院核物理与化学研究所硕士研究生 e-mail: wenchw05@hotmail.com

\* 通讯联系人 e-mail: lee208@caep.cn

(DD)和纯氙(TT)低压气体样品管为石英玻璃管,长度 100 mm,内径 3 mm,外径 4 mm,一头与金属接头相焊接。在 Horiba 公司的 LabRAM HR800 激光拉曼光谱仪上进行了气体样品的拉曼光谱测试。激光波长 514 nm,激光器出口功率 100 mW,光栅采用  $600 \text{ g} \cdot \text{mm}^{-1}$ ,物镜采用 10 倍 Olympus 物镜。

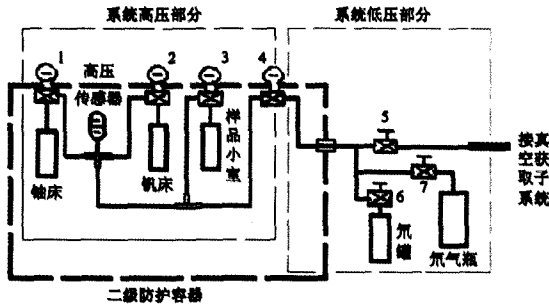


图 1 高压渗透充气装置原理图

Fig. 1 Layout of the experimental system

## 2 结果及讨论

### 2.1 高压氙氙靶丸的制备与表征

高压氙氙靶丸的制备在高压渗透充气装置上进行。系统所有部件均按照氙辐射防护要求设计,以降低放射性物质操作时的危险性。氙氙混合气体中氙氙的原子比通过氢同位素质谱仪测量为 58 : 42。氙氙混合气体经轴床吸附,然后从配气系统转移到高压渗透充气装置上,在开始充气前又被重新转移到钚床,高压渗透充气时钚床温度为  $350 \text{ }^{\circ}\text{C}$ ,气体压力为 36 MPa,充气时间共 27 h。高压渗透充气完成后,通过降温将氙氙气体回收,同时取出高压充气后的靶丸,进行后

续处理和表征。

高压充气后靶丸的总压力在拉曼实验前通过条纹移动法测得为 12.4 和 11.6 MPa, 4.1 MPa, 分别标记为 1 号和 2 号靶丸, 3 号靶丸。其中 3 号靶球经取出后于常温保存一段时间,压力有所下降。

### 2.2 拉曼光谱研究

#### 2.2.1 靶丸内气体成分分析

对制备的高压氙氙靶丸进行了显微拉曼测试。其中 1 号靶丸的光谱如图 2 所示。拉曼谱峰的标识可以参照文献理论计算以及实验结果<sup>[6-7]</sup>。氙氙混合气体的振转跃迁峰(Q 支)出现在  $2400 \sim 3000 \text{ cm}^{-1}$ 。实验得到氙氙(DD)的 Q 峰位于  $2995.2 \text{ cm}^{-1}$ , 氙氙(DT)位于  $2744.3 \text{ cm}^{-1}$ , 氙(TT)位于  $2467.2 \text{ cm}^{-1}$ [图 2(b)]。在  $200 \sim 800 \text{ cm}^{-1}$  范围内,可以看到纯转动光谱( $S_0$  支)[图 2(b)]。DD 的  $S_0$  支最强峰位于  $417.0 \text{ cm}^{-1}$ , DT 出现在  $251.3 \text{ cm}^{-1}$ , TT 则位于  $201.7 \text{ cm}^{-1}$ 。从拉曼光谱上还可以看出氙氙混合气体中存在少量的氢,在  $593.3 \text{ cm}^{-1}$  可以看到 HH 的纯转动峰。尽管氢的拉曼峰强度远远低于其他主要成分,但是对于 ICF 靶丸,由于氢的存在会影响聚变效率,降低反应的中子产额,因此必须严格控制靶丸内气体中氢的含量。从靶丸内气体的原位拉曼测量结果可以看出,拉曼光谱可以有效、快速的检测靶丸内氢含量。2 号靶丸得到的谱峰位置和 1 号靶丸基本一致。实验结果和文献值比较<sup>[6]</sup>,测试得到的谱峰位置稍微偏高,原因在于实验使用了  $600 \text{ gr} \cdot \text{mm}^{-1}$  光栅。使用  $600 \text{ gr} \cdot \text{mm}^{-1}$  光栅可以得到更大的光谱范围(可以覆盖 6 种氢同位素分子的 Q 峰)以及更好的信噪比,之前的实验也证明采用  $600 \text{ gr} \cdot \text{mm}^{-1}$  的光栅时谱峰位置比使用  $1800 \text{ gr} \cdot \text{mm}^{-1}$  光栅会向高频移动<sup>[4]</sup>。

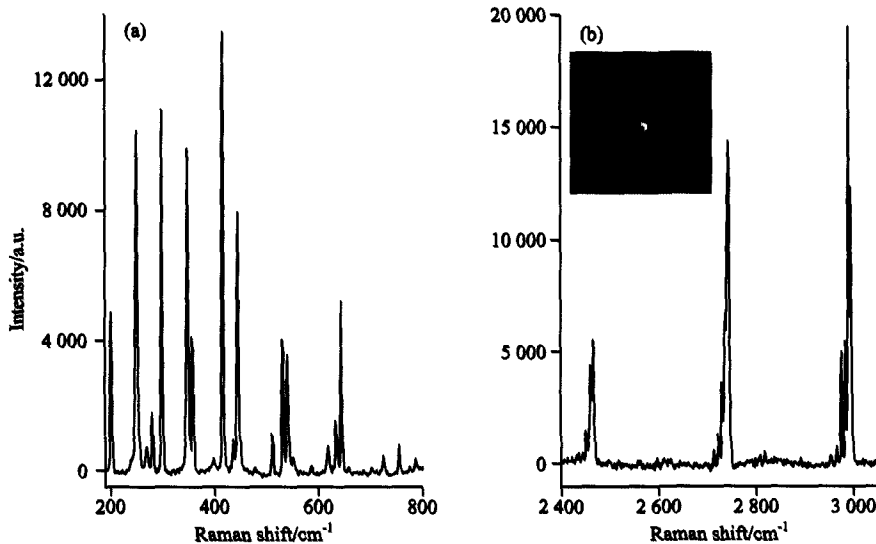


图 2 1 号靶丸的拉曼光谱

(a): 纯转动谱; (b): 振转光谱; 图中插入的是靶丸的照片

Fig. 2 Raman spectra of Target 1

(a): Pure rotational spectra; (b): Rota-vibrational spectra; Inset: Image of target under Raman analysis

在目前条件下,由于无法对小球内气体成分进行直接测量,只能通过配气成分估计球内气体成分(认为实验条件下

渗透达到平衡,靶丸内外成分相同),而拉曼光谱测量提供了一种估算球内气体的简便快捷的方法,同时可以用来验证

充气工艺参数,改进工艺流程。拉曼定量计算是基于氢同位素的峰高正比于气体分压的假设而进行的<sup>[8-9]</sup>。利用测得的Q支谱峰强度对氘氚相对比值进行了估计。两个靶丸内测得的氘氚原子比均为63:37,较之前用氢同位素质谱仪测得的配气中的氘氚比稍微偏高。根据以上实验数据,可以认为在充气实验条件下,靶丸内部气体组成与原料气体基本一致,气体渗透已经基本达到平衡,加长渗透时间靶丸内外气体组成最终可以达到完全一致,但是会增加加氘操作的风险。如果需要精确得到靶丸内的气体组成,可以在相同的实验条件下制作标准曲线,从而消除拉曼吸收截面和仪器响应因素的影响。

### 2.2.2 信噪比计算

对于氢同位素气体检测,要求拉曼光谱的灵敏度要大于1%,最好达到0.1%<sup>[10]</sup>。对于样品1和样品2号靶丸,分别计算了高压靶球实验条件下DD,DT和TT拉曼峰Q支的信噪比(SNR),其中噪声( $\sigma$ )计算采用2500~2600 cm<sup>-1</sup>数据的拟合值,计算结果见表1。从表1可以看到,对于DD和DT,其Q支拉曼信噪比均大于100,且1号靶球大于2号靶球,基本满足气体检测的信噪比要求。对于TT,两个样品的信噪比均小于60,由噪声背景带来的测量不确定度为~2%。要提高TT检测的其信噪比,有两种方法:提高激光功率和延长CCD的积分时间。对于以上样品1和2号靶丸,延长CCD的积分时间至60s即可使TT的Q支信噪比大于100,满足气体检测的要求。同时,后续将采用大功率激光器对系统进行升级,提高拉曼散射信号,以降低采集时间。拉曼光谱的信噪比测量结果表明,现有实验条件基本可以满足高压靶球中氢同位素的快速组成分析。

表1 DD,DT和TT的拉曼峰信噪比

Table 1 Signal-to-noise ratios deduced from the Q<sub>i</sub>-branches

Target	SNR		
	DD	DT	TT
1	189	155	59
2	185	137	52

### 2.2.3 压力对谱峰影响

为了研究拉曼谱峰位移与氢同位素气体的总压之间的关系采集了不同气体压力下的拉曼光谱数据。实验中得到了3号靶丸内氘氚混合气体的光谱,同时也采集了低压下氘

(~10 000 Pa,丰度大于99%)和氚(~8 000 Pa,丰度大于99%)的光谱。由于低压气体的光谱是在密封石英管里获得,S支光谱由于强烈的背景荧光而被湮灭,因此考虑其Q支光谱。对比实验结果表明,气体压力对氘的谱峰位置的影响基本可以忽略,和文献中的研究符合的较好<sup>[11]</sup>。对于氚,对比实验得到了同样的结果。通过氘和氚的实验结果可以推测出气体压力对于DT拉曼谱峰的位置影响也十分有限。上述实验结果表明在0~12 MPa压力范围内以及现有实验条件下,不能够使用拉曼谱峰位移去标定氢同位素气体的总压,需要研究新的分析手段以满足检测需求。

### 2.2.4 气体组分随时间变化

不同靶丸内氢同位素气体的总量和组分随时间的变化规律对于ICF物理实验具有重要意义。采用传统的常温保存方法,靶丸的保质期半寿命为5天左右。如果采用真空低温保存技术,靶丸的半寿命可以增加至100天以上。通过拉曼光谱原位测量技术研究了1号和2号靶丸在低温(液氮)保存时靶丸内混合气体比例组分随保存时间的变化规律。以刚制备靶丸的时刻为 $t_0$ ,在 $t_0$ 时刻, $t_0+15d$ 和 $t_0+30d$ 进行了原位的拉曼光谱测试,实验结果表明虽然随着保存时间增加,靶丸的总压力在不断下降,但是其内部的气体比例基本不受影响。对于氘氚气体靶,影响组分变化的原因主要有两种:一是气体通过壳层的渗透,其速度取决于气体的初始压力和扩散系数;另一种则是氚的衰变,其半衰期为12.3年。由扩散系数和质量的关系可以推知纯氘的扩散系数大于氘氚,后者又大于纯氚,且靶丸中纯氘的初始分压大于氘氚和纯氚,靶丸内气体通过壳层的渗透使得氘相对含量随时间增加,但是由于氚的衰变作用平衡了这个过程,导致了靶丸内氘氚相对含量并没有发生太大改变。

## 3 结论

利用拉曼光谱仪对制备的高压氘氚靶丸进行了研究,获得了高压下氘氚混合气体的原位拉曼光谱,计算了靶丸内气体组分以及每一种组分的信噪比。同时,对氢同位素分子拉曼光谱的谱峰与气体压力的关系进行了初步研究,通过比较不同压力下气体的拉曼光谱,发现气体压力对拉曼谱峰位置和形状的影响非常有限。最后,对不同时刻时靶丸内气体组分的拉曼光谱渐进行测量,实验结果表明在氘氚渗透和氚衰变两者共同作用下,靶丸内总气体压力随时间不断下降,但是气体组成基本不发生变化。

## References

- [1] LIU Yan-de, JIN Tan-tan(刘燕德,靳昙昙). Spectroscopy and Spectral Analysis(光谱学与光谱分析), 2015, 35(9): 2567
- [2] O'hira S, Hayashi T, Nakamura H, et al. Nuclear Fusion, 2000, 40: 519.
- [3] ZHANG Bing, DENG Zhi-yin, ZHENG Jing-kui(张冰,邓之银,郑靖奎). Spectroscopy and Spectral Analysis(光谱学与光谱分析), 2015, 35(6): 1577.
- [4] WANG Hong-zu, SHEN Chun-lei, LONG Xing-gui, et al(王洪祖,沈春雷,龙兴贵,等). Spectroscopy and Spectral Analysis(光谱学与光谱分析), 2013, 33(4): 991.
- [5] GAO Dang-zhong, JIA Peng, LIU Yuan-qiong(高党忠,贾鹏,刘元琼). High Power Laser and Particle Beams(强激光与离子束), 2009, 7.

- [ 6 ] Veirs D Kirk, Rosenblatt Gerd M. *Journal of Molecular Spectroscopy*, 1987, 121: 401.
- [ 7 ] Sturm M, Schlosser M, Lewis R J, et al. *Laser Spectroscopy*, 2010, 20: 493.
- [ 8 ] O'hira S, Nakamura H, Konishi S, et al. *Fusion Science and Technology*, 1992, 21: 465.
- [ 9 ] Godot A, Coindet G, Hubinois J C. *Fusion Science and Technology*, 2011, 60: 998.
- [10] Lewis R J, Telle H H, Bornschein B, et al. *Laser Phys. Lett.*, 2008, 5: 522.
- [11] Looi E C, Stryland J C, Welsh H L. *Can. J. Phys.*, 1978, 56: 1102.

## Preparation and Raman Investigation of High Pressure ICF Targets

WEN Cheng-wei<sup>1</sup>, SHEN Chun-lei<sup>1</sup>, YU Ming-ming<sup>1</sup>, XIA Li-dong<sup>1</sup>, WANG Kai<sup>2</sup>, LI Hai-rong<sup>1\*</sup>

1. Institute of Nuclear Physics and Chemistry, China Academy of Engineering Physics, Mianyang 621900, China
2. Research Center of Laser Fusion, Chinese Academy of Engineering Physics, Mianyang 621900, China

**Abstract** The quantitative analysis and monitoring of hydrogen isotopes, including hydrogen ( $H_2$ ), hydrogen deuterium (HD), hydrogen tritium (HT), deuterium ( $D_2$ ), deuterium tritium (DT) and tritium ( $T_2$ ), are of great significance in the field of energy and environment. Due to its non-destructive and non-contact analytical characteristics, laser raman spectroscopy (LRS) has become an important analyzing method for hydrogen isotopes quantification and in-line monitoring. In the international thermonuclear experimental reactor (ITER) and savannah river factory (SRF) laser raman spectroscopy has been extensively used for qualitative and quantitative analytical purposes. Promising results are also obtained in raman system at the Karlsruhe Tritium Neutrino Experiment (KATRIN), which is targeted to measure the neutrino mass by means of high precision electron spectroscopy of the  $\beta$ -decay of tritium. In this paper, high pressure gas targets for inertial confinement fusion (ICF) experiments were prepared and studied by Raman spectroscopy. The composition of high pressure deuterium-tritium mixtures were obtained by analyzing the rota-vibrational spectra of above molecules as a first approximation. The obtaining results were compared with mass spectroscopy measurements and the technological parameters for target fabrication were verified. The experiments showed that a precision of 1% can be obtained for deuterium ( $D_2$ ), deuterium tritium (DT) and tritium ( $T_2$ ) when integration time increased to 1 minute using a commercial instrument (LabRAM HR800, Jobin Yvon), though modification was still needed to achieve a even higher precision. The pressure shifts for deuterium ( $D_2$ ), deuterium tritium (DT) and tritium ( $T_2$ ) were tentatively investigated and compared with previous studies. At the same time, the composition evolution of high pressure deuterium tritium gas mixture was also monitored during 6 months' storage time. The experimental results showed that due to the interplay of gas permeation and tritium decay effects, the gas composition did not change though the total gas pressure within the target decreased continuously with time.

**Keywords** ICF; High pressure gas targets; Raman spectroscopy

(Received Jun. 5, 2016; accepted Dec. 11, 2016)

\* Corresponding author



论文写作，论文降重，  
论文格式排版，论文发表，  
专业硕博团队，十年论文服务经验



SCI期刊发表，论文润色，  
英文翻译，提供全流程发表支持  
全程美籍资深编辑顾问贴心服务

免费论文查重：<http://free.paperyy.com>

3亿免费文献下载：<http://www.ixueshu.com>

超值论文自动降重：[http://www.paperyy.com/reduce\\_repetition](http://www.paperyy.com/reduce_repetition)

PPT免费模版下载：<http://ppt.ixueshu.com>

---