

文章编号: 1001-4322(2003)12-1205-04

空心微球气体总量抽样测量误差分析*

张占文, 王朝阳, 李 波, 杜守德, 魏 胜, 黄 勇,
高党忠, 袁玉萍, 林 波, 初巧妹, 陈素芬

(中国工程物理研究院 激光聚变研究中心, 四川 绵阳 621900)

摘 要: 间接驱动内爆靶丸由外层 CH 涂层, 内层玻璃球壳和内部充入的气体组成。当玻璃球外涂 CH 后, 球内的气体只能抽检而没有无损测量方法。在大量实验和数据基础上, 研究了液滴法制备空心玻璃微球气体渗透系数的差异和分布, 利用数理统计方法对实验数据进行了分析和处理, 计算了空心玻璃微球对氘气渗透系数的误差, 微球预充气挑选方案产生的误差及分布。最后根据现在的抽样测量方案计算了误判的概率。

关键词: 激光惯性约束聚变; 空心玻璃微球; 气体渗透系数

中图分类号: TL639.11

文献标识码: A

在激光惯性约束聚变直接驱动内爆实验中, 靶丸可以由空心玻璃微球 (hollow glass microsphere, 简称 HGM) 与内部的燃料气体或少量诊断气体组成^[1~3]。由于薄壁玻璃球是透明的, 可以利用干涉法或露点法对球内的气体总量进行无损测量, 测量精度较高, 而且可以在打靶前现场测量, 微球个体间差异可以通过实际测量反映出来, 球内气体参数可信度高^[4,5], 靶丸本身性能对实验的影响是可知的。在间接驱动实验中, 靶丸种类很多, 通常在空心玻璃微球表面涂敷一层有机材料作为辐射烧蚀层, 靶丸结构见示意图 1。靶丸的最外层是 CH 涂层, 内层是玻璃球, 靶丸内部充入的气体有 D₂, DT 混合气体, D₂/Ne 等混合气体。当玻璃球外涂 CH 后, 因 CH 层较厚, 无损测量方法已不适用, 对球内气体的测量只能采用破坏法; 另外, 当球内充混合气体时, 混合气体的总压及气体之间的比例测量也只能采用破坏法。而破坏法测量不能标识每个物理实验靶丸的实际参数, 为了解决该问题, 采用统计抽样标识的方法, 并运用误差分析理论, 给出实际用靶的气体参数测量误差。

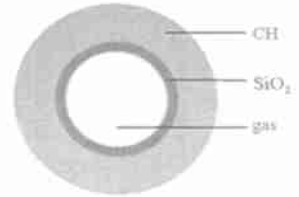


Fig. 1 Schematic of the implosion target for indirect drive

图 1 内爆靶结构示意图

1 实验内容及方法

1.1 玻璃微球制备及几何参数测量

空心玻璃微球是在多区高温液滴炉上制备的, 玻璃溶液的主要组分为水玻璃、四硼酸钠、氢氧化钾、氢氧化锂和尿素等混合物^[1,3]。调节小孔板孔直径、溶液进料压力、射流强制振荡频率、溶液浓度和抽气速率等实验条件, 制备直径 200 μ m, 壁厚 2 μ m 的玻璃微球。收集的产品依次在专用清洗液、乙醇、丙酮和蒸馏水中清洗。微球直径由体视显微镜 TM-50 测量, 壁厚由 Leitz 干涉仪测量, 根据条纹数计算壁厚。选择一圆心度和同心度都非常好的玻璃微球, 反复测量其直径和干涉条纹, 记录测量结果, 计算和分析直径和干涉条纹的测量误差。

1.2 微球充气及气体渗透性能研究

利用 15MPa 高压充气系统采用渗透法对样品充气^[4,5]。待充气的玻璃微球在专用样品管中一一编号, 装入充气室。抽真空排除杂质气体, 往充气室内充入 1.5MPa 氘气, 加热充气室, 当充气室温度达到 400 时保持恒温。8h 后停止加热, 充气室自然降温, 当温度降到室温时, 取出样品, 采用干涉条纹法跟踪测量球内气压。

2 实验结果及分析

2.1 空心玻璃微球保气性能研究

充气后的空心玻璃微球在常温常压下保存时, 微球内气压随时间的变化关系为^[6,7]

* 收稿日期: 2003-04-15; 修订日期: 2003-07-15

基金项目: 国家 863 计划项目资助课题; 国家自然科学基金资助课题 (19989501)

作者简介: 张占文 (1973-), 男, 助研, 硕士, 主要从事激光聚变靶的研究与制备; 四川绵阳市 919 信箱 987 分箱。

$$p_t = p_0 \exp[(-3RTK/r)t] \quad (1)$$

式中: t 为微球保气时间; p_t 为经过时间 t 后球内 D_2 的压力; p_0 为微球内充气后 $t=0$ 时 D_2 的压力; K 为玻璃微球对 D_2 的气体渗透系数; δ 为壁厚; R 为气体常数; T 为热力学温度; r 为微球的内径。根据式(1)可推算出玻璃微球的渗透系数为

$$K = (\delta / 3RTt) \ln(p_0 / p_t) \quad (2)$$

干涉条纹法测量微球内气压,其计算公式为

$$p = (\lambda n / 4K_iMD) RT \quad (3)$$

式中: p 为微球内气压; λ 为波长; K_i 为比例系数; M 为气体摩尔质量; D 为微球直径, $D=2r$; n 为干涉条纹的变化数,如果 n_0 表示充气前的条纹数; n_t 表示充气后 t 时的条纹数,则 $n_0 = n - n_t$, $n_t = n_t - n$ 。将式(3)代入式(2)得

$$K = (D / 6Rt) \ln(n_0 / n_t) \quad (4)$$

直径 $200\mu\text{m}$,壁厚 $2\mu\text{m}$ 的空心玻璃微球气体渗透系数如图 2 所示。从图上可知,空心玻璃微球对 D_2 的渗透系数主要集中在 $5.0 \times 10^{-22} \text{mol} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{Pa}^{-1}$,有 5% 左右的渗透系数明显高于其它微球,这些微球可能存在缺陷或微裂纹。

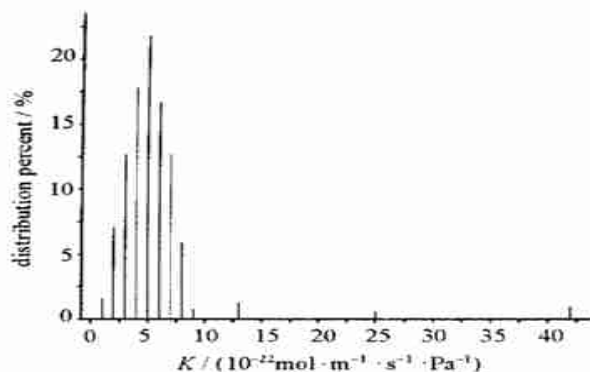


Fig. 2 Distribution of HGM permeability coefficient used in targets

图 2 靶用玻璃微球渗透系数分布

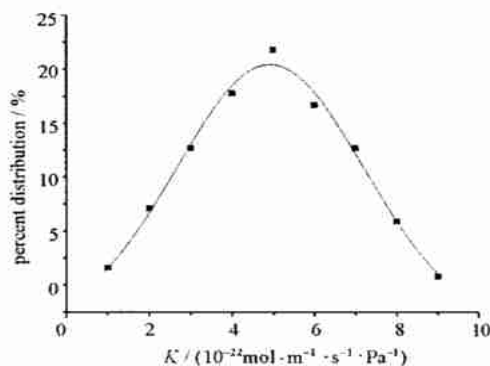


Fig. 3 Analysis on the statistical distribution of HGM permeability coefficient used in targets

图 3 靶用玻璃微球渗透系数统计分析结果

2.2 空心玻璃微球的预挑选

从前面分析可知,微球的气体渗透系数并不完全一致,甚至有部分微球存在漏气,这些微球在充气后才能与其它微球分离。同时由于气体渗透系数差异,将会导致渗透系数偏低的微球充气后球内压力低;渗透系数大的微球在充气后球内气体泄漏快,对于充混合气体或涂层的微球,无法进行一一测量,也无法进行跟踪测量,所以对于靶用微球必须进行预先充气和挑选。

玻璃微球成球过程比较复杂,影响气体渗透性能的因素很多,如壁厚均匀性,结晶度和杂质或缺陷的分布和数量等,根据数理统计分析的基本理论,当微球数量足够多时,各个微球的气体渗透系数接近为正态分布,将图 2 中可能存在缺陷的微球去除,然后以正态分布曲线对图 2 进行拟合,结果如图 3 所示,玻璃微球对 D_2 的气体渗透系数 K 遵从正态分布 $N(u_K, \sigma_K^2)$,其分布函数形式为

$$F(K) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma_K} \int_0^K \exp\left[-\frac{(x-u_K)^2}{2\sigma_K^2}\right] dx \quad (5)$$

式中:标准方差 $\sigma_K = 2.3 \times 10^{-22} \text{mol} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{Pa}^{-1}$,期望值 $u_K = 4.9 \times 10^{-22} \text{mol} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{Pa}^{-1}$ 。对于靶用玻璃微球一般要求,在相同条件下充气时球内气压误差要小,微球放置时在 20d 内气压变化量小于 5%,由此计算玻璃微球 D_2 对的气体渗透系数必须小于 $8.2 \times 10^{-22} \text{mol} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{Pa}^{-1}$ 。另外,根据 Arrhenius 公式 $K_T = K_0 \exp(-E_K/kT)$ (E_K 为渗透能, K_0 为不随温度变化的常数, k 为 Boltzman 常数),常温条件下渗透系数低的,高温时也相对较低,球内气压偏低,所以对于渗透系数较小的部分微球也不予考虑。

2.3 渗透系数误差来源

空心玻璃微球的气体渗透系数是非常重要的参数,它直接关系到靶丸内气体的有无或多少。因其无法直

接测量,只能通过计算得到。从式(4)可分析其误差来源,由 $\sigma = 0.295 n$ 知,引入误差的直接测量量为 D, n, n_0 和 n_t 。

由数理统计理论可知,对同一真值的测量结果呈正态分布,测量结果的平均值随着测量次数增加,逐渐逼近真值。对同一玻璃微球的直径测量结果示于图 4,方差 $\sigma_D = 2\mu\text{m}$,直径测量误差 σ_D 遵循正态分布 $N(0, 4)$ 。如果 n, n_0 和 n_t 比较接近,则它们的误差分布是相同的。图 5 是壁厚约 $2\mu\text{m}$ 的空心玻璃微球干涉条纹测量的误差分布 ($6 < n < 10$),利用正态分布拟合计算,方差 $\sigma_n = 0.2$,干涉条纹测量误差 $\sigma_n = \sigma_{n_0} = \sigma_{n_t} = \sigma_n$ 遵从正态分布 $N(0, 0.04)$ 。根据概率密度函数和分布函数性质可计算出 $\sigma_{n_0} = \sigma_{n_t} = \sigma_n$ 和 $\sigma_{n_0} = \sigma_{n_t} = \sigma_n$ 的误差分布相同, $\sigma_{n_0} = \sigma_{n_t} = \sigma_n$,遵从正态分布 $N(0, 0.08)$, $\sigma_n = 0.3$ 。

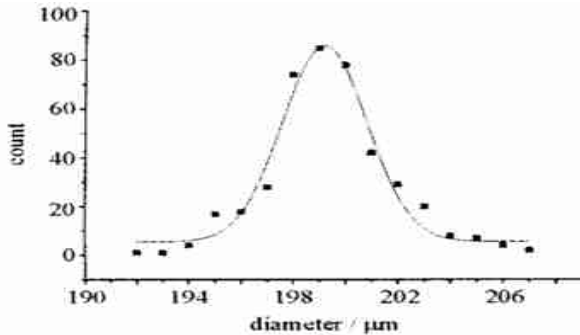


Fig. 4 Statistical distribution of measurement error for diameter
图 4 直径测量误差统计

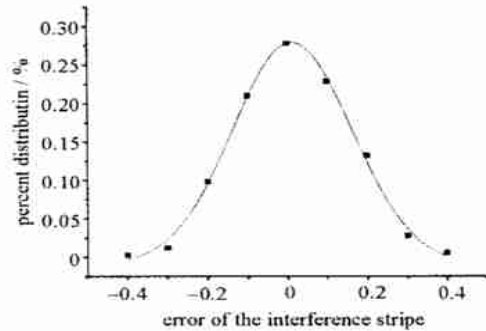


Fig. 5 Statistical distribution of measurement error for interference stripe

2.4 球内气压测量误差分析

渗透系数不是实际应用的靶参数,但它直接关系到空心玻璃微球的充气过程和保气过程。在实际充气实验中,一般采用两倍的平衡时间,以保证微球内外压平衡,通过延长充气时间可以消除渗透系数不同带来的误差。因此,渗透系数带来最大的影响主要体现在保气过程中,最终将反映在经过一段时间后微球内的剩余气体。根据式(3)可计算出利用干涉条纹法计算 $\sigma = 2\mu\text{m}, D = 200\mu\text{m}$ 的微球内 D_2 的气压测量误差 $\sigma_p \sim N(0, 6.5)$ (当 $p < 3\text{MPa}$), $\sigma_p = 2.5$ 。

2.5 挑选方案评估

根据标准正态分布性质,在 $[-1, +1]$ 区间,概率分布为 68.3%;在 $[-2, +2]$ 区间,概率分布为 95.4%。对于误差的计算置信区间均采用 $[-2, +2]$ 。采用预充气对玻璃微球进行挑选,球内气压的标准方差为 0.25MPa,因此,当 $p = 2.5\text{MPa}$ 时的测量误差为 20%。微球直径测量的标准方差为 $2\mu\text{m}$,当 $D = 200\mu\text{m}$ 时测量误差为 2%。微球壁厚标准方差为 $0.06\mu\text{m}$,当 $\sigma = 2\mu\text{m}$ 时测量误差为 3%。现估算渗透系数误差,以 σ_p 表示误差运算,则根据式(4)有 $(K) = [(D/6RTt)\ln(n_0/n_t)] = [(D/6RTt)\ln n_0 - (D/6RTt)\ln n_t]$, $(K) = 2[(D/6RTt)\ln n_0] - 2[(D/6RTt)\ln n_t] = 50\%$ 。即渗透系数的误差为 50%,这一误差虽然很大,但它主要用来指导微球的挑选工作,在实际挑选中一般取

$K_{\min} = 1 \times 10^{-22} \text{mol} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{Pa}^{-1}$ 。前面计算过,为了确保球内气压 5% 的误差, $K_{\max} + (K) = 8.2 \times 10^{-22} \text{mol} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{Pa}^{-1}$,因此, $K_{\max} = 5.4 \times 10^{-22} \text{mol} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{Pa}^{-1}$,此时的挑选合格率根据式(5)分布函数计算只有 55%。球内气压允许误差与微球挑选合格率关系见图 6。如图所示,合格率随误差放大增长得很快。如果误差选择为 7%,则挑选合格率可达到 80% 以上。

2.6 抽样方案确定

通过微球的预充气挑选可保证微球气体渗透性能的一致性,但如图 6 所示,考虑合格率及实际工作量,误

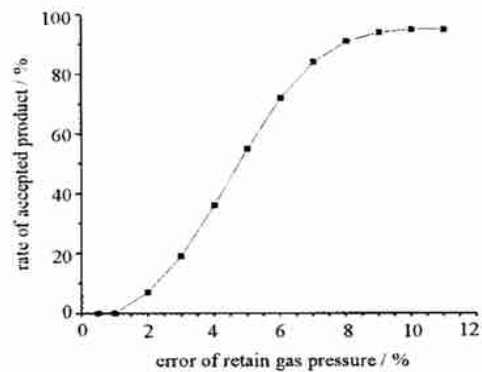


Fig. 6 Rate of accepted product vs error of retained gas pressure

图 6 微球气体总量误差与样品挑选合格率的关系

差不可能控制得很小。利用四极质谱抽样测量,如果抽到的是合格的微球,则测量结果具有代表性;如果抽到的是不合格的微球,则测量结果将与实际情况差别很大,这种误判的几率与抽检的样本数量有关。以挑球误差为 5% 计算,现测量方法为测量 3 个,取 2 个相对平行的数据为计算依据,那么误判的可能性小于 1%。

3 结 论

根据大量的实验和数据,研究了靶用玻璃微球个体间气体渗透性能的差异及解决方案。利用数理统计方法对气体渗透系数进行了分析,并估算了误差分布,在此基础上确定了微球挑选允许的误差与挑选合格率的关系,同时计算了现抽样测量方案产生的误差。研究表明,渗透系数的测量误差约 50% 左右,这一误差只有通过严格挑选来控制;如果制靶允许的误差为 5%,则挑选合格率为 55%,现在的抽样测量方案误判率小于 1%。

参考文献:

- [1] 邱龙会,傅依备,汪小琳. 液滴法制备高尺度比玻璃微球壳的研究[J]. 强激光与粒子束, 1999, **11**(4): 465—469. (Qiu L H, Fu Y B, Wang X L. Fabrication of hollow glass microspheres with high aspect ratios by liquid droplet method. *High Power Laser and Particle Beams*, 1999, **11**(4): 465—469)
- [2] 姚书久,彭述明,李立匣,等. 低强度空心玻璃微球充气工艺研究[J]. 强激光与粒子束, 2000, **12**(1): 72—74. (Yao S J, Peng S M, Li L X, et al. The technology of D-T gas pressurized into thin-walled hollow microspheres with low strength. *High Power Laser and Particle Beams*, 2000, **12**(1): 72—74)
- [3] 魏胜,李秀琴,汪小琳,等. 薄壁玻璃微球制备工艺[J]. 原子能科学技术, 1999, **33**(4): 326—327. (Wei S, Li X Q, Wang X L, et al. The fabrication of micro glass balloon with thin wall. *Atomic Energy Science and Technology*, 1999, **33**(4): 326—327)
- [4] 邱龙会,魏芸,傅依备. 薄壁玻璃微球壳的热扩散充气[J]. 强激光与粒子束, 1999, **11**(3): 317—319. (Qiu L H, Wei Y, Fu Y B. Gas diffusion fill through hollow glass microspheres with high aspect ratios. *High Power Laser and Particle beams*, 1999, **11**(3): 317—319)
- [5] 马宏伟,余斌,唐永建,等. 激光聚变空心玻璃微球靶丸充气工艺[J]. 强激光与粒子束, 1998, **10**(4): 578—580. (Ma H W, Yu B, Tang Y J, et al. Technology of hollow glass microsphere filled with Ne for Laser fusion. *High Power Laser and Particle Beams*, 1998, **10**(4): 578—580)
- [6] Campbell J H, Grens J Z, Poco J F. Preparation and properties of hollow glass microspheres for use in laser fusion experiments[R]. UCRL-53516. Livermore, California: University of California Press, 1983.
- [7] Honig A, Alexander N, Fan Q. Absence of molecular deuterium dissociation during room-temperature permeation into polystyrene inertially confined fusion target shells[J]. *J Vac Sci Technol A*, 1991, **9**(6): 3149—3152.

Data analysis of the gas amount in hollow glass microsphere used for indirect-drive targets

ZHANG Zharr-wen, WANG Chao-yang, LI Bo, DU Shou-de, WEI Sheng, HUANG Yong,
GAO Dang-zhong, YUAN Yur-ping, LIN Bo, CHU Qiao-mei, CHEN Sur-fen

(Laser Fusion Research Center of China Academy of Engineering Physics, P. O. Box 919-987, Mianyang 621900, China)

Abstract: Indirect-drive targets is a capsule encased in a cylindrical Au hohlraum with two laser entrance at opposite ends. The capsule is composed of gas fuel, glass shell and CH ablator. There is no way to measure the amount of gas fuel in the capsule after coating the CH layer. This paper focuses on the difference between the hollow glass microsphere general properties and the individual. Preliminary experiments have been performed to determine the statistical distribution of the hollow glass microsphere diameter, wall thickness and permeability based on the experiment data. The permeability differs although the diameter and wall thickness are the same. In order to measure the inner gas amount the permeability should keep homogenous or similar by taking any sample for measurement. A method is established to select hollow glass microsphere by gas-filling which has already been used in target fabrication in 2002.

Key words: Inertial confinement fusion; Capsule; Hollow glass microsphere; Gas permeability