

充气温度对 PS-PVA-CH 塑料微球性能的影响*

张占文, 李 波, 王朝阳, 陈素芬, 冯建鸿, 刘元琼, 高党忠,
师 涛, 林 波, 初巧妹, 魏 胜, 黄 勇

(中国工程物理研究院 激光聚变研究中心,四川 绵阳 621900)

摘 要: 主要研究了 PS-PVA-CH 空心塑料微球充气时,充气平衡温度对微球强度、球形度和表面形貌的影响。对 PS、PVA 和 CH 材料的热重分析结果表明,PS 和 PVA 具有较高的分解温度,而 PS-PVA 双层球和 PS-PVA-CH 塑料微球升温后的耐外压实验表明,温度升高后双层球耐外压强度降低很快,不能满足充 Ar 气需要;而 3 层球在 100~120 °C 仍有很高强度,在该温度下,可以实现充 Ar 气。微球表面形貌分析结果显示,高温充气后,3 层球表面粗糙度升高。

关键词: PS-PVA-CH 微球; 惯性约束聚变; 充气; 充气平衡温度

中图分类号: TL639.11 **文献标识码:** A

惯性约束聚变(ICF)研究的核心内容是利用激光对称压缩装有燃料气体的靶丸,使其发生热核反应达到高温高密度状态。根据物理实验需求制备符合要求的靶丸是靶制备工艺与研究的重点之一。早期实验用靶丸是利用液滴炉制备的空心玻璃微球^[1,2],玻璃微球具有高强度、低气体渗透率、易掺杂、优良的球形度和表面粗糙度等优点,但由于材料组分中含有高原子序数(高 Z)的元素,在内爆压缩过程中产生超热电子,在实验中产生很多负面影响,因此,以 CH 等低 Z 元素为基础的聚合物靶丸愈来愈受到重视并很快得以发展。现在最常用的聚合物靶丸具有多层结构,如图 1 所示,内部是支撑层 PS(聚苯乙烯),中间是阻气层 PVA(聚乙烯醇),外部是烧蚀层 CH(碳氢)。为了测量靶球内燃料的压缩密度和压缩变形,靶球内除了充入 D₂ 及 DT 燃料气体外,还需要充诊断气体如 Ar、Ne 等^[3,4]。微球充气条件(如充气平衡温度和充气外压等)对微球性能和充气结果影响较大。本文主要研究充气温度对微球性质的影响。

1 实验内容和实验装置

1.1 微球制备与几何参数测量

PS 单层球和 PS-PVA 双层球都是利用乳液微封装法结合密度匹配技术制备的,而 CH 层则采用低压等离子体气相沉积法制备^[5]。微球壁厚采用 X 射线照相法测量。塑料微球直径 $\phi 200 \sim 400 \mu\text{m}$,PS 层厚 5~10 μm ,PVA 层厚 3~7 μm ,CH 层厚度 3~7 μm 。

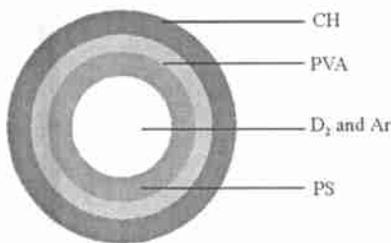


Fig. 1 Schematic of the PS-PVA-CH microspheres

图 1 PS-PVA-CH 塑料微球结构

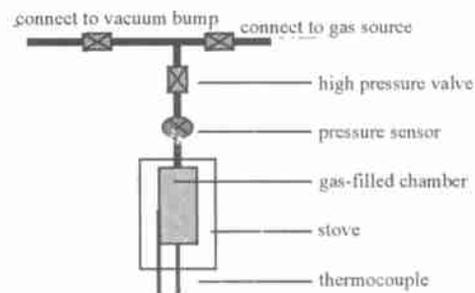


Fig. 2 Schematic of gas-filling unit for the plastics microspheres

图 2 塑料球充气装置结构

1.2 充气装置

塑料微球充气装置的主要功能是在高温条件下对微球进行充气,如图 2 所示。该装置主要由抽真空系统、高压气源、控制部分、充气室和气路组成。控制部分的主要功能是进行温度的设定和控制,记录实验过程中充

* 收稿日期:2003-10-13; 修订日期:2004-02-17

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);等离子体物理国家级重点实验室基金资助课题
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。

气室温度、压力与时间的关系曲线,进行充气室温度压力上限报警和处理等。充气室最大工作压力 10MPa,温度为室温到 650,升温速率为 3~15 /min,升温过程中温度最大偏差小于 30,最大超调温度小于 10,升温过程结束到恒温过程的温度波动时间小于 20min,恒温时温度漂移小于 0.5。

1.3 充气过程

测量待充气微球的直径和壁厚(包括每一层的厚度),对壁厚均匀性较差的微球予以剔除。微球编号后放入充气室,设定充气温度、升温速率和平衡时间。实验结束后取出微球测量球内的气体。

1.4 气体比例与总量测量

常用的微球内径约为 $\phi 200\mu\text{m}$, 体积为 $4.2 \times 10^{-12}\text{m}^3$ 。在标准情况下,如果球内有 1.0MPa 气体,则球内气体总量为 $1.9 \times 10^{-9}\text{mol}$ 。对于如此小量的气体比例和总量测量,常规的方法误差较大,四极质谱法是采用破坏法压碎微球后利用质谱原理测量球内气体的一种方法,即使混合气体比例小于 0.1%,也可以精确测量。

2 实验原理

充气时,对于半径为 r ,壁厚为 δ 的空心微球,球内气压 p 与充气平衡时间 t 的关系为

$$p(t) = p_0 - p_0 \exp(-K_T t) \quad (1)$$

式中: p_0 为充气时的外压; δ 为几何参数, $\delta = 2RT/r$,其中 R 为气体常数, T 为充气时的平衡温度; K_T 为温度为 T 时的气体渗透系数。当微球从充气室取出后, $p_0 = 0$,球内气体将向外扩散,微球保气半寿命(球内气压降到一半时需要的时间) $t_{1/2} = \ln 2 / K_T$ 。除微球参数 δ 外,充气所需时间 t 和保气半寿命 $t_{1/2}$ 主要决定于该温度下气体的渗透系数,根据 Arrhenius 公式有

$$K_T = K_0 \exp\left(-\frac{E}{k_B T}\right) \quad (2)$$

式中: E 为渗透能; K_0 为不随温度变化的常数; k_B 为 Boltzmann 常数。由(2)式可知,渗透系数随温度的升高而增大。因此,高温充气时,微球内外气压很快达到平衡;而当温度降低时渗透系数减小,充入微球内的气体不容易泄漏出来,这就是微球充气的理论根据。

3 实验结果及讨论

3.1 热重分析

在 Ar 气氛下,升温速率为 2 /min,PS,PVA 和 CH 材料的热重分析结果如图 3 所示。从图 3 分析,PS 材料的起始分解温度在 250~300,而 PVA 材料在 80~150 有 3%~5%的失重峰,此失重峰的主要形成原因是 PVA 潮解,在材料表面吸附了部分水分(物理吸附和化学吸附都有)。PVA 材料的起始分解温度为 200~250。CH 材料在 130~300 间有少量失重,材料的主要分解温度区间为 300~500。从热重分析结果看,3 层球的充气温度不宜超过 130。

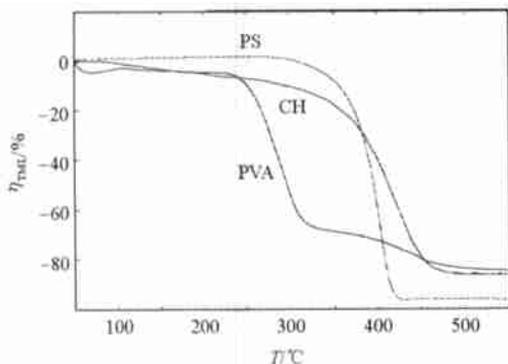


Fig. 3 Image of thermal gravity for material of PS, PVA and CH

图 3 PS,PVA 和 CH 的热重分析



Fig. 4 Picture of PS-PVA microsphere after gas filling

图 4 PS-PVA 双层球实验结果

3.2 塑料球壳强度分析

除了考虑 3 层球壳材料受热分解外,球壳的强度也至关重要。球壳在充气时的强度可通过实验确定。挑选直径 $\phi(200 \pm 20)\mu\text{m}$,PS 壁厚和 PVA 壁厚符合要求的双层球,进行充 Ar 实验,因 PS 和 PVA 材料的玻璃化转变温度在 80~100,所以平衡温度最高选择在 70,平衡时间 12h,外压 0.15MPa。实验结果表明,虽然 PS 与

PVA 可耐很高的温度,但材料的强度下降很快,在此温度和条件下,绝大部分微球都已变形,变形微球照片见图4。测量结果显示极少数未变形的微球内没有 Ar。从实验结果看,在该充气条件下,PVA 对 Ar 的气体渗透系数太小,根据(2)式,要增大气体渗透系数,可以提高充气温度。因此,如果不能提高材料的强度,PS-PVA 双层球无法充 Ar。

挑选内径 $\phi(200 \pm 20)\mu\text{m}$,PS 壁厚、PVA 壁厚和 CH 壁厚符合要求的 3 层塑料球,进行耐压强度测试。温度为 80 时,3 层球耐压强度为 4.0~5.0MPa;温度为 100 时,3 层球耐压强度为 1.0~2.0MPa;温度为 120 时,3 层球耐压强度为 0.15~0.40MPa。根据前面的热重分析结果,3 层球充气可选择在 110 。

利用充气系统,在平衡温度为 110 ,Ar 气外压为 0.15MPa,平衡时间 24h 的条件下充气,四极质谱测量结果显示,球内 Ar 气压力为 0.07~0.10MPa 的,而微球球形度并未改变,即保持球壳未变形条件下可以实现充气。

3.3 表面形貌的影响

挑选合格的 3 层球充气,利用 AFM 观测微球表面形貌的变化,实验结果示于图 5。图 5(a) 是充气前的观测结果,微球表面粗糙度约为 90nm,表面起伏较小,颗粒尺寸一般在 $1\mu\text{m}$ 以下,少数颗粒达 $5\mu\text{m}$,大颗粒较少;图 5(b) 是充气后的观测结果,表面起伏大,颗粒尺寸一般在 $3\sim 7\mu\text{m}$,个别颗粒尺寸超过 $10\mu\text{m}$,表面粗糙度约为 180nm。

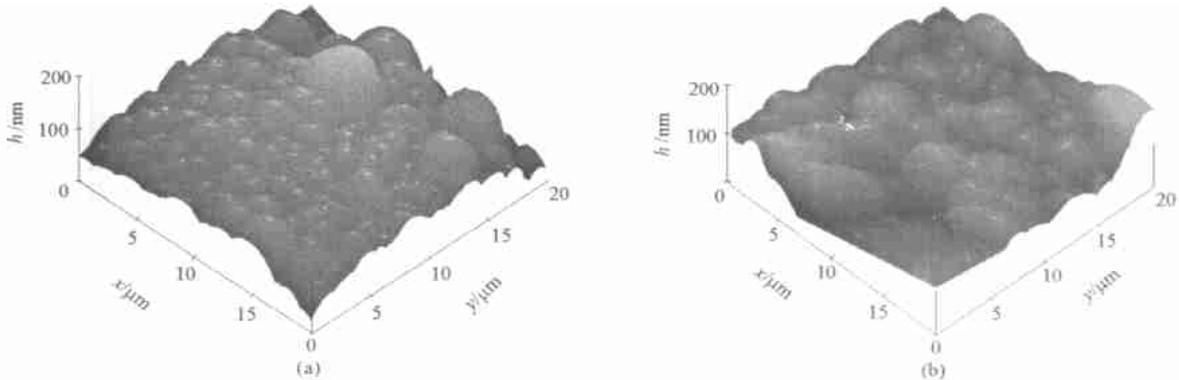


Fig. 5 AFM image of PS-PVA-CH microspheres

图 5 PS-PVA-CH 微球的 AFM 图像

4 结论

本文主要研究了对 PS-PVA-CH 塑料微球充气时,充气平衡温度对微球强度、球形度和表面形貌的影响。PS,PVA 和 CH 材料的热重分析结果表明,PS 和 PVA 具有较高的分解温度,但 PS-PVA 双层升温后的耐外压强度下降很快,在 70 附近外压 0.15MPa 条件下,大部分微球都发生变形。因 CH 层温度升高后具有一定强度,3 层球在 100~120 ,仍有很高强度,而在该温度下,Ar 气可以渗透到球壳内部,因此可以实现充 Ar 气,但 3 层球充气后表面粗糙度升高,具体原因有待进一步分析。利用以上实验结果,结合分步充气法,顺利实现了对 PS-PVA-CH 塑料微球充 D_2/Ar 混合气体。

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] Campbell J H, Gens J Z, Peco 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.
- [3] 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)
- [4] 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): 296—298. (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): 296—298)
- [5] Alan K B, John Z G, Eben M L. Fabrication of polyvinyl alcohol coated polystyrene shells[J]. *J Vac Sci Technol.*, 1987, A5(6): 3417—3421.

Effects of the gas-filling temperature on the PS-PVA-CH hollow plastic microsphere properties

ZHANG Zhan-wen, LI Bo, WANG Chao-yan, CHEN Si-fen, FENG Jian-hong, LIU Yuan-qiong,
GAO Dang-zhong, SHI Tao, Lin Bo, CHU Qiao-mei, WEI Sheng, HUANG Yong
(Research Center of Laser Fusion, CAEP, P. O. Box 919-987, Mianyang 621900, China)

Abstract: The basic target used in many inertial confinement fusion(ICF) experiments is a hollow microsphere of glass or plastic. Generally, the hollow plastic microsphere is composed of three layers: polystyrene(PS), polyvinyl alcohol(PVA) and carbon hydrogen(CH). This paper focuses on the filling gas temperature effects on the PS-PVA-CH hollow plastic microsphere properties such as the shell strength and the surface quality. Experiments show that although the material of PS and PVA has high decomposed temperature the strength decreases rapidly as the temperature increases. The PS-PVA shell strength is not enough for Ar-filling. After coating the CH ablator the microsphere can be filled with Ar at 110 .

Key words: PS-PVA-CH microsphere; Inertial confinement fusion(ICF); Gas-filling; Gas-filling temperature

* * * * *

第九届全国高功率粒子束学术交流会议

(2004 年第 2 轮通知)

第九届全国高功率粒子束学术交流会议将于 2004 年 8 月 2 日~8 月 6 日上午在吉林省延吉市举行, 现将会议相关事宜通知如下。

- 一、会议时间: 2004 年 8 月 2 日~8 月 6 日
- 二、会议地点: 吉林省延吉市邮电酒店。
- 三、报到时间及地点: 2004 年 8 月 1 日在吉林省延吉市邮电酒店报到。
- 四、会务费: 每位参加会议的代表需交纳会议注册费¥950 元和每人每天交纳住宿费¥120 元。
- 五、接站: 2004 年 8 月 1 日 8:00~21:00 会务组在火车站与飞机场均安排人员接站。其它时间到会的代表请自行到邮电酒店报到, 由火车站乘出租车到邮电酒店需约 10 分钟, 车费 5 元; 联系人: 张玉英(13649260430)。
- 六、会议日程大致安排:

8 月 2 日上午: 开幕式和大会报告	下午: 分会报告
8 月 3 日上午: 分会报告	下午: 分组讨论
8 月 4 日~5 日: 参观学习	
8 月 6 日: 大会闭幕	
- 七、几点说明:
 - (1) 参加会议的代表报到时, 请将正式论文的电子版交会务组。
 - (2) 提交论文的与会代表均安排会议报告。报告时间为 15 分钟(包括提问时间 3 分钟)。要求报告人做多媒体报告。
 - (3) 请与代表务必于 7 月 15 日前将会议回执单寄到会议筹备组, 无回执单将无法办理订购返程车票及安排食宿等。
- 八、会务组联系方式:
 - (1) 通信地址: 西安市 69 信箱 10 分箱(710024), 办公室会务组收。
 - (2) 联系人(电话): 蒯斌(029-83365242, 13991817677) 韩娟娟(029-83365245, 13519112742)
张玉英(029-83365180) 李楠(029-83365047)
 - (3) 传真: 029-83366333 E-mail 地址: Csun@nint.ac.cn

西北核技术研究所

2004 年 6 月 18 日