

文章编号: 1007-4627(2017)03-0636-05

连续碳纤维增强碳化硅的辐照效应

李洋¹, 赵强^{1,†}, 张峥¹, 欧阳晓平^{1,2}

(1. 华北电力大学核科学与工程学院, 非能动核能技术北京市重点实验室, 北京 102206;
2. 西北核技术研究所, 西安 710024)

摘要: 连续碳纤维增强碳化硅材料除了具有碳化硅材料固有的低中子活化性能, 低衰变热性能和低氚渗透性能等优点以外, 还具有密度低、线性膨胀系数小、高比强度、高比模量、耐高温、抗氧化、抗蠕变、抗热震、耐化学腐蚀、耐盐雾、优良的电磁波吸收特性等一系列优异性能, 是各类核工程重要的潜在候选材料。在核聚变工程应用领域, 连续碳纤维增强碳化硅材料作为第一壁材料不可避免地会受到各种辐射粒子的影响。研究清楚这些辐射粒子对它的辐照效应对其在核工程领域的安全使用至关重要。采用蒙特卡罗方法与分子动力学方法进行模拟计算, 研究了氦、氘、氚和氦四种粒子对连续碳纤维增强碳化硅的辐照效应。SRIM 和 LAMMPS 计算结果表明: 当入射原子能量为 100 eV, 连续碳纤维增强碳化硅中碳的浓度在 80%~85% 时, 氦、氘、氚和氦原子的溅射率存在最小值; 入射粒子的种类对溅射率的影响显著, 氦原子的溅射率大于氘原子和氚原子, 而氘原子和氚原子的溅射率相差不大但均显著大于氦原子; 溅射率随入射能量的增加先迅速增加后逐渐减小, 氦、氘、氚和氦原子入射能量分别在 200, 400, 600 和 800 eV 时存在溅射率最大值; 当氦原子入射能量为 100 eV 时, 溅射率随入射角度的增加而逐渐减少。这些结果对连续碳纤维增强碳化硅材料在核工程上的应用具有一定的参考意义。

关键词: 连续碳纤维增强碳化硅; 氢的同位素; 氦原子; 溅射率

中图分类号: TL62⁺7; O4-39

文献标志码: A

DOI: 10.11804/NuclPhysRev.34.03.636

1 引言

碳化硅陶瓷材料因具有的高强度、高硬度、耐磨损、耐高温、低中子活化性能、低衰变热性能、低氚渗透性能等优点而被广泛应用于高温和苛刻环境中。但是, 陶瓷材料不具有塑性变形能力, 表现为脆性, 影响了其在结构材料方向上的应用。碳纤维具有高比强度、高比模量和高温热力学性能等优点, 并且碳纤维增强碳化硅材料在断裂过程中表现为非脆性。连续碳纤维增强碳化硅材料除了具有碳化硅材料和碳纤维固有的特性以外还具有密度低、线性膨胀系数小、抗氧化、抗蠕变、抗热震、耐化学腐蚀、耐盐雾、优良的电磁波吸收特性等一系列优异性能^[1-3]。因此可以作为结构材料广泛应用于航空航天、深海、核电、兵器、电子、石油等领域。

在核工程领域中, 连续碳纤维增强碳化硅材料可作为聚变反应堆的第一壁结构材料和偏滤器材料, 因此是核工程中重要的候选材料^[4-6]。在聚变装置中, 连续碳纤维增强的碳化硅材料不可避免地受到各种离子的辐

照, 研究清楚聚变等离子体对它的辐照效应对聚变装置的安全性十分重要。

早期, 聚变堆中的面向等离子体材料大多使用的是高纯石墨, 然而石墨的高溅射率导致面向等离子体材料使用寿命短及污染等离子体等一系列问题促使大批工作者对石墨进行改进^[7-9]。高性能的连续碳纤维增强碳化硅可以在高功率高温下安全运行, 并且使用寿命远远大于石墨, 因此备受各国研究者的青睐。近些年来, 人们对碳化硅辐照效应的研究层出不穷, 在辐照后碳化硅的力学性能改变等方面有了比较深入的了解^[10-13], 但是对辐照后碳化硅的溅射率的研究并不十分充足。1978年 BOHDANSKY 等^[14]用实验方法测量了碳化硅受到入射能量为 100 eV 到 8 keV 的氘、氚和氦原子轰击时的溅射率。SONE 等^[15]运用实验的方法对氦轰击碳纤维增强碳化硅的溅射率进行了研究, 研究结果表明当温度在 600 °C 以下时, 温度对溅射率的影响可以忽略。本文通过蒙特卡罗方法与分子动力学方法模拟计算了当氦、氘、氚和氦原子入射时, 连续碳纤维增强的碳化硅中碳的浓度、入射原子的种类以及入射能量

收稿日期: 2016-11-20; 修改日期: 2017-05-13

基金项目: 中央高校基本科研业务费专项资金资助项目 (2017MS079); 国家自然科学基金资助项目 (11275071, 11305061)

作者简介: 李洋(1993-), 女, 山东烟台人, 硕士研究生, 从事核能科学与工程研究; E-mail: li_yang@ncepu.edu.cn

† 通信作者: 赵强, E-mail: qzhao@ncepu.edu.cn.

对溅射率的影响。

2 计算方法和参数

我们分别采用蒙特卡罗方法和分子动力学方法对连续碳纤维增强碳化硅的辐照效应进行研究。以石墨层为基础在分子水平上设计碳纤维表面结构, 基体选用的是 β -碳化硅。在实际中, 碳纤维增强碳化硅中的碳纤维是埋嵌在碳化硅晶体之中, 而在模拟时, 我们的模型做了一定程度的简化。碳纤维增强碳化硅模型建立一般采用将碳纤维平行放置在基体材料中, 此次建模我们采用层状结构, 共建立7层, 在每一层相应地放置碳纤维或者碳化硅, 通过更改碳纤维的层数从而改变碳纤维增强碳化硅中碳的浓度。由于在实际中, 碳纤维的取向是不规则的, 所以我们设置不同的入射角度来模拟替代碳纤维的取向研究, 从而尽可能地接近实际情形。

SRIM是一种已经被广泛应用于模拟离子束与固体相互作用的蒙特卡罗程序^[16], 通过模拟跟踪入射粒子的运动、粒子位置、能量损失以及次级粒子的各种参数, 得到所需要的物理量。碳化硅中碳的掺杂浓度(质量分数)分别为50%, 60%, 70%, 80%, 90%和100%。碳的溅射阈能为20 eV, 硅的溅射阈能为35 eV。入射粒子为氕原子、氘原子、氚原子和氦原子, 入射能量为100 eV~1 keV。

在分子动力学方法的计算中, 我们采用的计算软件是LAMMPS^[17]和ATK-VNL^[18]通过数值积分的方法求解原子运动的经典力学牛顿方程。同SRIM一样建立模型, 所建模型共7层, 共约6000个原子。入射原子为氕原子和氦原子, 入射能量为100 eV。C—Si之间的势函数选用 Tersoff/ZBL 势函数, He—He、Si—He和C—He之间选用 Lennard-Jones 势函数, H/D/T—Si—C 选用 ReaxFF 势函数^[19-22]。

3 计算结果

3.1 连续碳纤维增强碳化硅中碳的浓度对其辐照效应的影响

为研究碳纤维增强碳化硅中碳的浓度对溅射率的影响, 碳化硅中碳的浓度(质量分数)设置为50%, 60%, 70%, 80%, 90%以及100%。分别用氕(H)、氘(D)、氚(T)和氦(He)原子轰击不同碳浓度的碳化硅材料。我们定义溅射率=被溅射出来靶原子的总数/入射原子数, 即每个入射粒子溅射出来的原子数。图1是100 eV氕原子轰击连续碳纤维增强的碳化硅所产生的溅射率随碳浓度的变化。从图中可以看出, 我们LAMMPS计算的结果与 SONE 等^[15]实验结果符合得很好, 而SRIM

计算的结果除了碳化硅中碳的浓度达到100%这一点之外, 其他点也符合得很好。SRIM模拟并不涉及结构的变化, 当碳原子全部替换硅原子后, 只是键能发生改变。由于C—C键的键能高于C—Si键的键能, 因此靶原子离开表面所要克服的能量比实验结果要大, 所以在100%的碳浓度时模拟结果与实验值稍有不同。

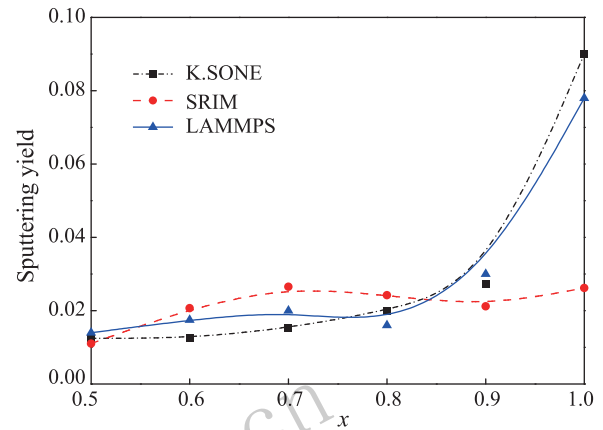


图1 (在线彩图) 100 eV 氕原子轰击连续碳纤维增强的碳化硅 $\text{Si}_{1-x}\text{C}_x$ 所产生的溅射率随碳浓度的变化

图2是100 eV氘、氚和氦原子轰击连续碳纤维增强的碳化硅所产生的溅射率随碳浓度的变化。综合分析图1和图2可得, 碳的浓度对溅射率有一定的影响, 但影响不是十分显著。图1中氕的SRIM模拟结果和LAMMPS模拟结果表明, 溅射率在碳的浓度处在接近80%~85%时是最低的。图2中氘和氚的SRIM模拟结果和LAMMPS模拟结果都表明, 溅射率在碳的浓度接近80%时达到最低。氦原子的溅射率SRIM模拟的最低值则是在碳的浓度为100%时, 而LAMMPS模拟的值在接近80%时, 这种结果的差异同样与SRIM模拟并不涉及结构的变化有关。

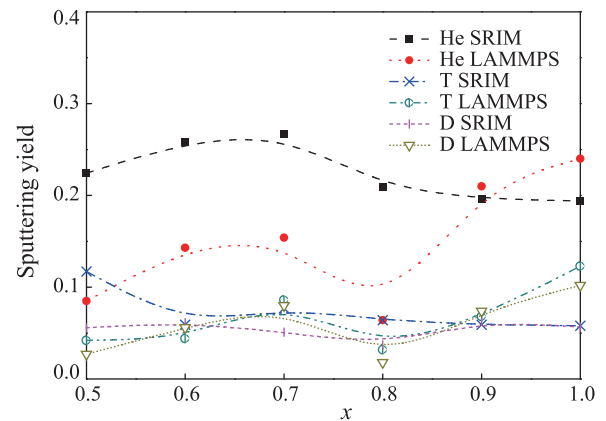


图2 (在线彩图) 100 eV 氘、氚和氦原子轰击连续碳纤维增强的碳化硅 $\text{Si}_{1-x}\text{C}_x$ 所产生的溅射率随碳浓度的变化

3.2 入射粒子种类对连续碳纤维增强碳化硅的辐照效应的影响

从图 1 和图 2 可以看出，入射原子种类对靶材料溅射率的影响是十分明显的。溅射率随着入射原子的原子质量的增加而增加。氦原子轰击连续碳纤维增强碳化硅的溅射率明显大于氩原子和氙原子，氩原子和氙原子轰击连续碳纤维增强碳化硅的溅射率相差不大，但明显大于氦原子。图 3 是在 ATK 中通过分子动力学的方法对氩原子和氦原子的均方位移比较的结果。从图中可以看出，氦原子的均方位移是不断增大的，而氩原子的均方位移是先增大后降低的，虽然氩原子入射后经过平衡阶段没有恢复到最初的值，但已经比最大值有所降低。结合两种方法的结果可得，入射原子的种类对溅射率的影响是十分明显的，氦原子对靶材料的辐照效应大于氩、氙原子。在相同的能量下，原子质量越轻的原子，原子的速度就越大，因此入射深度就越深。在入射原子将能量传输给靶材料表面原子的过程中，原子碰撞的次数增加，损失的能量就越大，传递到靶材料表面原子的能量就越小，因此溅射率就相对较小。

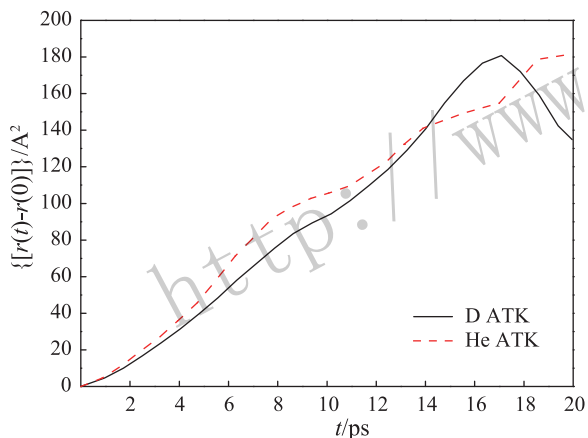


图 3 (在线彩图) 氩和氦原子轰击连续碳纤维增强碳化硅时，均方位移随时间的变化

3.3 入射能量对连续碳纤维增强碳化硅的溅射率影响

图 4 和 5 分别是使用 LAMMPS 模拟计算得到的氩、氙原子和氦原子的溅射率随入射能量的变化示意图。由于前面结论得出在碳浓度(质量分数)为 80%~85% 时，有溅射率的最低值，因此我们选取碳浓度为 80% 的碳化硅作为靶材料。从图 4 可知，溅射率随入射能量的变化先迅速增加，达到峰值后逐渐减小。当氩、氙、氦原子的能量分别在 200, 400 和 600 eV 时，溅射率达到最大值。同样的溅射趋势，氦原子的溅射率最大值发生在 800 eV 时。这是因为随着原子入射能量的增加，入

射深度不断增加，原子碰撞的次数增加，造成溅射原子的大量产生。当入射能量进一步增加，由于靶材料的厚度有限以及发生原子级联碰撞的深度增加造成入射的能量难以传递给表面原子，从而减少了表面原子发生溅射的几率，因此随着能量的进一步增加溅射率逐渐下降。

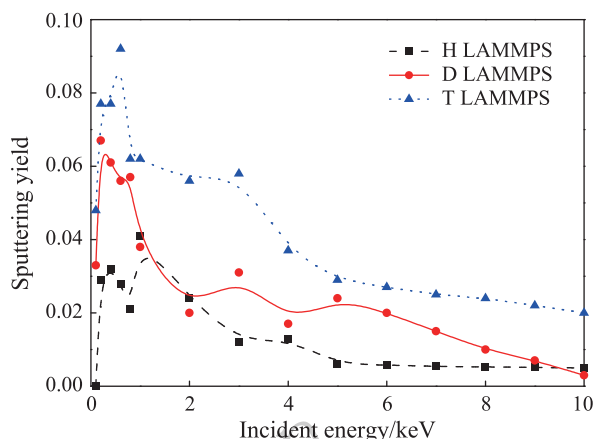


图 4 (在线彩图) 氩、氙和氦原子轰击连续碳纤维增强碳化硅(Si_{0.2}C_{0.8})时，溅射率随入射能量的变化

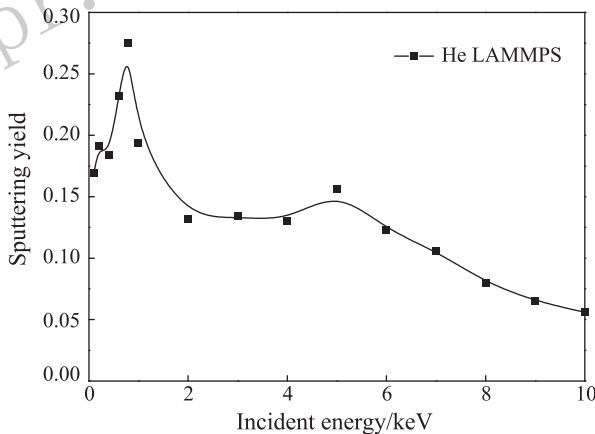


图 5 (在线彩图) 氦原子轰击连续碳纤维增强碳化硅(Si_{0.2}C_{0.8})时，溅射率随入射能量的变化

3.4 入射角度对连续碳纤维增强碳化硅的溅射率影响

图 6 是使用 LAMMPS 模拟计算得到的 100 eV 氦原子的溅射率随入射角度的变化，靶材料中碳的浓度为 80%。入射角定义为粒子入射时与 Z 方向的夹角。本文选取的入射角为 0°, 15°, 30°, 45°, 60° 和 75°。SRIM 模拟和 LAMMPS 模拟都表明垂直入射时的溅射率是最大值，随着入射角度的增加溅射率逐渐下降。当入射角度增加，入射原子 Z 方向的速度减小，而 X 和 Y 方向的速度增加。当入射原子轰击靶材料时，靶原子沿 X 和 Y 方向运动的数目增加，从 Z 方向溅射出去

的数目减少, 所以随着入射角度的增加, 溅射率逐渐降低。

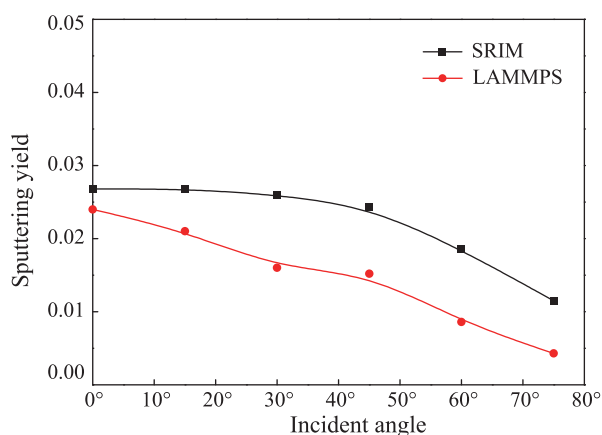


图6 100 eV 氦原子轰击连续碳纤维增强碳化硅 ($\text{Si}_{0.2}\text{C}_{0.8}$) 时, 溅射率随入射角度的变化

4 结论

通过分别使用蒙特卡罗方法和分子动力学方法进行模拟计算, 得出如下结论: (1) 碳的浓度对溅射率有一定影响, 当入射原子能量为 100 eV, 连续碳纤维增强碳化硅中碳的浓度 (质量分数) 在 80%~85% 左右时, 氦、氘、氚和氦原子的溅射率存在最小值; (2) 入射原子的种类对溅射率的具有显著影响, 氦原子对靶材料的溅射率大于氘、氚原子, 而氘、氚原子又显著大于氦原子; (3) 溅射率随入射能量先增加后降低, 氦、氘、氚和氦原子分别在 200, 400, 600 和 800 eV 时达到溅射率最大值; (4) 当氦原子入射能量为 100 eV 时, 溅射率随入射角度的增加而降低。这些结果对连续碳纤维增强碳化硅材料在核工程上的应用具有一定的参考意义。

参考文献:

[1] SUN Weizhong, ZHAO Chengli, LIU Huaming, *et al.* Nuclear Fusion and Plasma Physics, 2011, **31**(1): 85. (in Chinese) (孙伟中, 赵成利, 刘华敏, 等. 核聚变与等离子体物理, 2011, **31**(1): 85.)

[2] MA Xiaoqiang, YUAN Daqing, XIA Haiou, *et al.* Atomic Energy Science and Technology, 2016, **50**(2): 219. (in Chi-

nese)

(马小强, 袁大庆, 夏海鸿, 等. 原子能科学技术, 2016, **50**(2): 219.)

- [3] HUA Guomin, LI Dongyang. RSC Advances, 2015, **5**(125): 103686.
- [4] ZHANG Xiaofeng, LIU Weiliang, GUO Shuangquan, *et al.* Science and Technology Innovation Herald, 2010, **19**(3): 118. (in Chinese) (张小锋, 刘维良, 郭双全, 等. 科技创新导报, 2010, **19**(3): 118.)
- [5] ZHOU Zhangjian, ZHONG Zhihong, SHEN Weiping, *et al.* Materials Review, 2005, **19**(12): 5. (in Chinese) (周张健, 钟志宏, 沈卫平, 等. 材料导报, 2005, **19**(12): 5.)
- [6] JONES R H, GIANCARLI L, HASEGAWA A, *et al.* Journal of Nuclear Materials, 2002, **307**(3): 1057.
- [7] HOPF C, JACOB W. Journal of Nuclear Materials, 2005, **342**(1): 141.
- [8] ITO A, NAKAMURA H. Thin Solid Films, 2007, **516**(19): 6553.
- [9] MARIAN J, ZEPEDA-RUIZ L A, COUTO N, *et al.* Journal of Applied Physics, 2007, **101**(4): 044506.
- [10] KOYANAGI T, OZAWA K, HINOKI T, *et al.* Journal of Nuclear Materials, 2014, **448**(1-3): 478.
- [11] SALONEN E, NORLUND K, KEINONEN J, *et al.* Applied Surface Science, 2001, **184**(1): 387.
- [12] HONIG R E. Ionization Phenomena in Gases[M]. Amsterdam: North Holland Publishing Company, 1962: 106.
- [13] SHIH C, KATOH Y, SNEAD L L, *et al.* Journal of Nuclear Materials, 2013, **439**(1-3): 192.
- [14] ROTH J, BOHDANSKY J, POSCHENRIEDER W, *et al.* Journal of Nuclear Materials, 1976, **63**: 222.
- [15] SONE K, SAIDOH M, NAKAMURA K, *et al.* Journal of Nuclear Materials, 1981, **98**(3): 270.
- [16] STOLLER R E, TOLOCZKO M B, Was G S, *et al.* Nucl Instr Meth B, 2013, **310**: 75.
- [17] Large-scale Atomic/Molecular Massively Parallel Simulator, LAMMPS, available at: <http://lammps.sandia.gov>.
- [18] Atomistix Toolkit-Virtual NanoLab, ATK-VNL, available at: <http://quantumwise.com>.
- [19] BOHDANSKY J, BAY H L, OTTENBERGER W. Journal of Nuclear Materials, 1978, **76**: 163.
- [20] TERSOFF J. Physical Review B, 1988, **37**(12): 6991.
- [21] JIN E, DU S, LI M, *et al.* Journal of Nuclear Materials, 2016, **479**: 504.
- [22] CHENOWETH K, CHEUNG S, VAN DUIN A C, *et al.* Journal of American Chemical Society, 2005, **127**(19): 7192.

Radiation Effect of Continuous Carbon Fiber Reinforced Silicon Carbide

LI Yang¹, ZHAO Qiang^{1,†}, ZHANG Zheng¹, OUYANG Xiaoping^{1,2}

(1. Beijing Key Laboratory of Passive Safety Technology for Nuclear Energy, School of Nuclear Science and Engineering, North China Electric Power University, Beijing 102206, China;

2. Northwest Institute of Nuclear Technology, Xi'an 710024, China)

Abstract: Continuous carbon fiber reinforced silicon carbide material has the low neutron activation, low decay heat performance and tritium permeability, which are inherent performance of silicon carbide materials. It also has other advantages such as low density, small linear expansion coefficient, specific strength and specific modulus, high temperature resistance, oxidation resistance, creep resistance, thermal shock, resistance to chemical corrosion, salt fog resistance, excellent electromagnetic wave absorption properties, *etc.* It is an important potential candidate material in various field of nuclear engineering. In the field of nuclear fusion engineering applications, continuous carbon fiber reinforced silicon carbide as the first wall material will inevitably be bombarded by a variety of radiation particles. The radiation effect is critical to its safe use in nuclear engineering. The Monte Carlo method and the molecular dynamics method were used to study the radiation effect of protium, deuterium, tritium and helium on continuous carbon fiber reinforced silicon carbide. The SRIM and LAMMPS simulation results show that when the incident energy is 100 eV and the concentration of carbon in the continuous carbon fiber reinforced silicon carbide is about 80% ~ 85%, the sputtering yield of protium, deuterium, tritium and helium atoms have the minimum values. The kind of incident particle has a significant effect on the sputtering yield. The sputtering yield of helium atoms is larger than that of tritium atoms and deuterium atoms. There is not much difference between the sputtering yield of deuterium atoms and tritium atoms, and both the sputtering yield of deuterium atoms and tritium atoms are larger than that of protium atoms. The sputtering yield initially increases rapidly with the increase of the incident energy and then decreases gradually. The incident energy of the protium, deuterium, tritium and helium atoms has the maximum value of the sputtering yield at 200, 400, 600 and 800 eV, respectively. When the incident energy of helium atoms is 100 eV, the sputtering yield decreases while the increase of the incident angle. These results can provide a certain reference for the application of continuous carbon fiber reinforced silicon carbide materials in nuclear engineering.

Key words: continuous carbon fiber reinforced silicon carbide; isotopes of hydrogen; helium; sputtering yield

Received date: 20 Nov. 2016; **Revised date:** 13 May 2017

Foundation item: Fundamental Research Funds for Central Universities(2017MS079); National Natural Science Foundation of China(11275071, 11305061)

Corresponding author: ZHAO Qiang, E-mail: qzhao@ncepu.edu.cn.