|  |
| --- |
| 中国核学会团体标准 |
| 核用碳化硅陶瓷材料的载能离子辐照  评价方法  （征求意见稿） |
| 编制说明 |
| 标准起草工作组  2025年6月 |

核用碳化硅陶瓷材料的载能离子辐照评价方法

1. 工作简况
2. 任务来源

本标准制修订任务由中国核学会文件《关于下达中国核学会2024年度第一批团体标准制（修）订计划的通知》（中核学发〔2024〕65号）下达，计划编号为HTB2024001，标准计划名称为《核用碳化硅陶瓷材料的载能离子辐照评价方法》，由中国科学院近代物理研究所牵头起草。

1. 起草单位情况

本标准的主要起草单位为：中国科学院近代物理研究所、中国核动力研究设计院、中国科学院上海应用物理研究所、武汉大学、四川大学、兰州大学和西安交通大学。

1. 起草工作组组成及任务分工

|  |  |  |  |
| --- | --- | --- | --- |
| **序号** | **主要参加单位** | **工作组成员** | **具体工作** |
| 1 | 中国科学院近代物理研究所 | 朱亚滨、王志光、申铁龙、崔明焕、牛丽娟 | 标准的主持编写与管理 |
| 2 | 中国核动力研究设计院 | 王栋、吕俊男 | 资料调研、辐照技术研究 |
| 3 | 中国科学院上海应用物理研究所 | 黄鹤飞 | 辐照装置内容编撰 |
| 4 | 武汉大学 | 郭立平 | 辐照技术研究、内容编撰 |
| 5 | 四川大学 | 胡逊祥 | 辐照技术研究、内容编撰 |
| 6 | 兰州大学 | 张利民 | 辐照技术研究、内容编撰 |
| 7 | 西安交通大学 | 臧航 | 辐照技术研究、内容编撰 |

1. 主要工作过程

本标准的起草过程主要分为前期准备、征求意见稿编制、送审稿编制、报批稿编制阶段。

4.1 前期准备

2023年12月04日，中国科学院近代物理研究所作为牵头单位向中国核学会提交了标准立项建议书和标准草案。2023年12月26日，中国核学会在北京组织召开了立项技术把关会。来自生态环境部核与辐射安全中心、国防科工局核技术支持中心、中国辐射防护学会、中国计量科学研究院、核工业标准化研究所、中国核电工程有限公司等单位的专家和代表参会。与会专家经质询和讨论，同意本项目立项。2024年4月，正式下达计划。

4.2 征求意见稿编制

2025年2月，编制组编制形成讨论稿。3月10日，编制组与核工业标准化研究所代表在线上召开讨论会，针对标准大纲和具体要素的编写提出了修改意见。编制组根据会议意见对标准讨论稿进行了修改和完善，在此基础上形成征求意见稿，于2025年6月将征求意见材料提交至核工业标准化研究所。

1. 标准编制原则和确定标准主要内容的依据
2. 标准编制原则

本标准编制严格遵照国家法律法规，并与现行相关标准协调一致，标准编写格式符合GB/T 1.1—2020《标准化工作导则 第1 部分：标准化文件的结构和起草规则》的要求，要素编排符合GB/T 20001《标准编写规则》系列标准的要求。

1. 确定标准主要内容的依据

利用载能离子注入/辐照模拟核反应堆内部辐射环境，快速在候选碳化硅陶瓷材料中形成较高的辐照损伤水平和较高的掺杂浓度，且离子辐照样品活性较低，短时间内即可进行分析表征等操作，从而快速评估候选材料在整个服役年限内的辐照损伤行为。

然而，现有核材料辐照评价研究存在数据离散性大、可对比性差等的问题，难以实现核材料的快速辐照评价筛选。这主要是由于离子辐照评价研究存在辐照装置多样、实验程序复杂的特点，且行业内尚未就样品处理、辐照参数控制、性能表征等重要实验步骤形成统一规范，从而限制了离子辐照在核材料评价方面的适用性。为此，本标准对碳化硅等陶瓷材料的离子辐照试验程序和要求进行了规范，涵盖了试样处理、试验装置、试验步骤、试样结果及分析等环节，能够有效降低由于样品处理及操作差异带来的实验偏差。参考此标准，可对碳化硅等陶瓷材料的抗辐照性能进行评价，确保评价结果的可靠性和可对比性。

1. 标准主要内容的确定

* **自离子种类对辐照损伤效应的影响**

对应条款：6.1.1.1 “对于模拟碳化硅辐照损伤效应的研究，原则上应采用试样本身存在的元素（如Si、C等）作为入射离子以避免入射离子掺杂对试样成分、微观结构及性能的影响。此外，为了避免C在SiC中较高的迁移性可能引起的元素偏析，推荐采用迁移性较低的Si作为优选入射离子。”

图1给出了通过拉曼光谱测定的3 MeV碳离子、硅离子和中子辐照6H-SiC的总无序度。结果表明3 MeV C⁺和Si⁺离子辐照能准确模拟中子辐照产生的晶体无序度[1]。

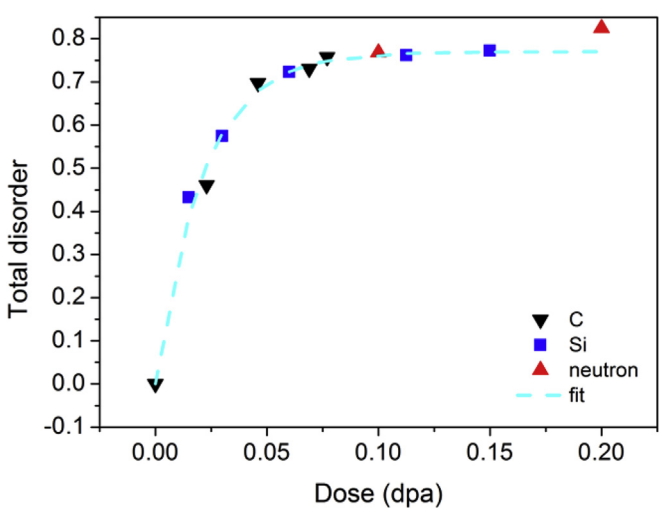


图1 通过拉曼光谱测定的3 MeV碳离子、硅离子和中子辐照6H-SiC的总无序度[1]

但是，有研究表明C在SiC中具有较高的迁移性，进而可能引起晶界处的元素偏析。图2(a)和(b)给出了碳化硅中辐照诱导偏析机制。300℃辐照温度下，C间隙原子迅速扩散至晶界，并因高的扩散能势垒而滞留；600℃辐照温度下，热激活增强C弗伦克尔缺陷对复合，晶界C富集程度降低。图2(c)给出了C和Si间隙原子到达和离开晶界的速率比较。与Si间隙原子相比，C间隙原子达到晶界的速率大了一个数量级以上。同时C间隙原子离开晶界的速率也非常低。图2(d)给出了晶界处C和Si含量的实验测量和模拟计算结果。在3.5 MeV C离子辐照CVD 3C-SiC中[2]：实验上通过STEM和EELS观察发现，非辐照样品晶界处存在固有的碳耗尽，约为45.8 at.%；辐照剂量达1.5×1017 ions/cm2后，辐照温度为300°C时晶界附近的碳浓度从原始状态的45.8 at.%升至48.9 at.%，而在600°C时偏析减弱（47.2 at.%）。速率理论计算结果与实验结果相比，规律是一致的。晶界处的C元素偏析很可能导致其它宏观性能（如力学性能）的显著变化，因此，推荐采用迁移性较低的Si作为优选入射离子模拟研究碳化硅中的辐照损伤效应。

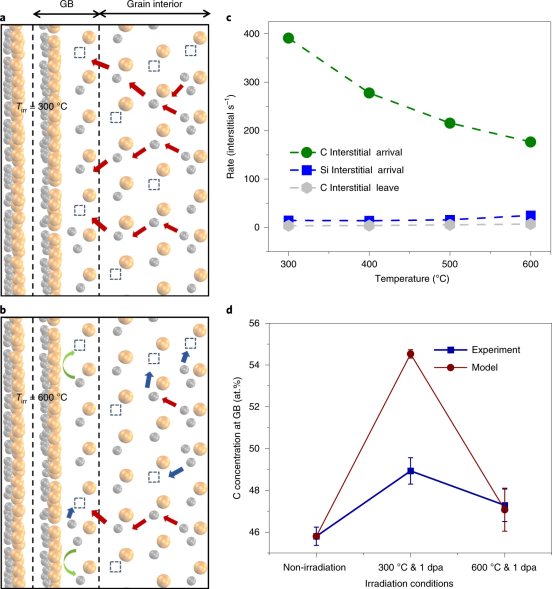


图2 a、b示意图分别为300°C（a）和600°C（b）辐照下的缺陷动力学过程，其中虚线框表示晶界位置；橙色圆圈代表Si原子，灰色圆圈代表C原子；虚线正方形表示C空位；C间隙原子以哑铃构型显示；红色箭头表示C间隙原子向晶界的扩散；蓝色箭头表示弗兰克尔对的复合反应；绿色箭头表示C间隙原子沿晶界的扩散。图2c为速率理论模型计算的间隙原子到达和离开晶界的速率。图2d不同辐照条件下晶界处的C浓度[2]。

* **体积肿胀分析方法**

对应条款：8.1.1 （a）“可利用原子力显微镜（AFM）或轮廓仪扫描试样辐照区域和未辐照区域的边界，获得辐照区域相较于未辐照区的垂直高度增量。应进行不少于3次的测试得到试样辐照区平均高度增量（*ΔH*），其与入射离子在试样中的射程（*R*）之比即为辐照诱发的体积肿胀，如下式所示： ”

图3给出了650°C下He离子辐照CVD-SiC中肿胀行为的AFM研究结果[3]。在辐照SiC样品表面上进行AFM测试发现：在辐照和未辐照区域之间的界面（白色虚线）附近观察到一个明确的台阶，高（ΔH）约为23 nm。入射离子在试样中的射程（R）为1500 nm。因此，体积肿胀率≈1.53%。应当注意根据AFM结果计算出的膨胀值是沿离子辐照方向的整个辐照损伤层中的总体整合肿胀。

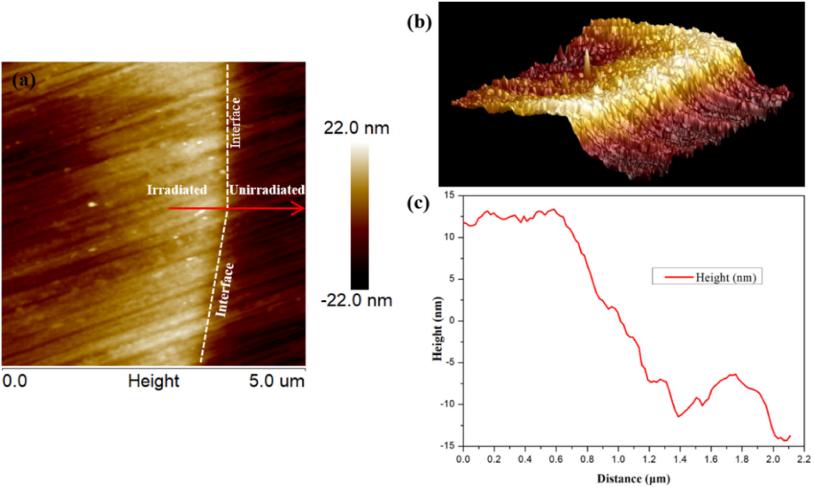


图3 650°C辐照CVD-SiC的肿胀行为：(a) AFM图像；(b) 3D-AFM图像；(c)台阶高度轮廓[3]

* **X射线掠入射角的选择依据**

对应条款：8.1.2（b）“可利用X射线衍射（XRD）对宏观区域的试样晶格肿胀情况进行分析。为了确保X射线的主要分析区域位于辐照损伤层内，通常应采用掠入射模式进行测试。应根据辐照损伤层深度和X射线穿透深度选择合适的入射角，如损伤层深度≤1 μm时，建议X射线入射角选择1-2°。可以选择若干个入射角度进行测试，以获得试样不同深度下的结构信息。”

X射线穿透物质时，能量逐渐被物质吸收或散射，导致射线强度衰减。强度衰减到初始强度的1/e时所穿过的样品厚度，被定义为X射线在物质中的穿透深度。X射线入射角度的选择应根据入射X射线在材料中的穿透深度和待分析的辐照损伤层的深度匹配程度来确定。

在入射角大于临界角（发生X射线全反射现象的最小入射角）时，穿透深度随着入射角增大而增加。当X射线的波长为1.5408 Å时，在碳化硅中的临界角为0.37°。对于掠入射X射线衍射，材料中X入射线的穿透深度（）根据式1计算获得[4]：

其中表示掠入射的入射角。表示物质的线吸收系数，是衡量材料对X射线衰减能力的重要参数，其值由材料性质和X射线特性决定，而不受材料内部位置或X射线传播方向的影响。对于化合物，线吸收系数根据式(2)计算获得：

其中表示物质的密度，表示第i种元素的质量吸收系数（可通过NIST获得，对于波长1.5408 Å的X射线（能量为8.047 keV），Si元素的质量吸收系数为64.68 cm2/g，C元素的质量吸收系数为4.576 cm2/g），表示第i种原子成分的重量占比（在碳化硅中，Si的重量占比为~0.7，C的重量占比为~0.3，所以碳化硅的线吸收系数为1.5×10-5 /nm）。根据公式(1)计算得到不同入射角的Cu kα射线在SiC中的穿透深度如图4所示。

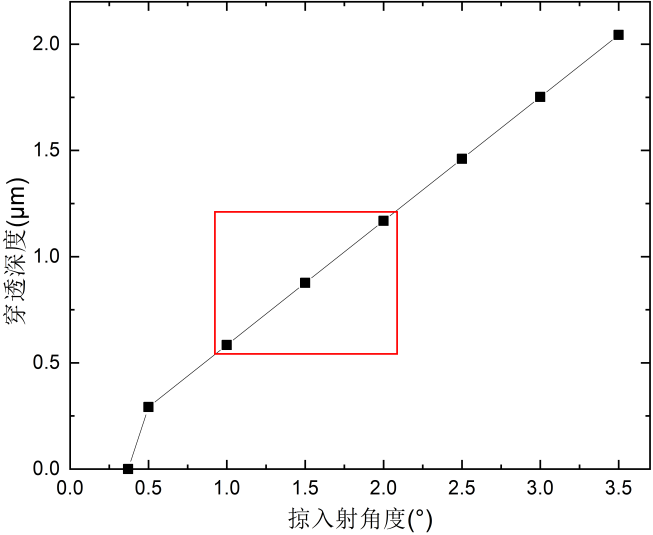


图4 不同入射角度X射线作用于碳化硅时的穿透深度计算结果

从图4可以看出，入射角分别为1°和2°时，X射线在碳化硅中的穿透深度分别为0.58 μm和1.17 μm。因此，损伤层深度约为1 μm时，建议X射线入射角选择1-2°。考虑到离子辐照损伤在材料中的不均匀性，可以选择若干个入射角度进行测试，以获得试样不同深度下的结构信息。

1. 标准水平分析

国内尚无核用陶瓷的离子辐照评价相关标准，本标准达国内先进水平。

1. 与有关的现行法律、法规和强制性国家标准的关系

本标准参考现行法律、法规和标准内容，与现行法律、法规和强制性国家标准协调一致。

1. 重大分歧意见的处理经过和依据

本标准编制过程中未涉及重大分歧意见。

1. 涉及专利的有关说明

无

1. 贯彻标准的要求和措施建议

标准发布后，中国科学院近代物理研究所将配合中国核学会组织行业召开标准宣贯会，开展培训活动，促进该标准更好的贯彻实施。

1. 废止现有有关标准的建议

无

1. 预期效果

本标准可用于指导核用碳化硅陶瓷的离子辐照评价，有助于提高评价数据的可靠性和可对比性，促进国内核用陶瓷材料的研发进程。

1. 参考资料清单

本标准开发过程中借鉴了如下标准：

|  |  |
| --- | --- |
| GB/T 16534 | 精细陶瓷室温硬度试验方法 |
| GB/T 4340.1 | 金属材料 维氏硬度试验 第1部分：试验方法 |
| GB/T 4340.2 | 金属材料 维氏硬度试验 第2部分 硬度计的检验与校准 |
| GB/T 22458 | 仪器化纳米压入试验方法通则 |
| GB/T 25898 | 仪器化纳米压入试验方法 薄膜的压入硬度和弹性模量 |
| ASTM E521 | Standard Practice for Neuron Radiation Damage Simulation by Charged-Particle Irradiation |
| ASTM E821 | Standard Practice for Measurement of Mechanical Properties During Charged-Particle Irradiation |
| ASTM E942 | Standard Guide for Simulation of Helium Effects in Irradiated Metals |
| ASTM E384 | Standard Test Method for Knoop and Vickers Hardness of Materials |
| ASTM E2546 | Standard Practice for Instrumented Indentation Testing |

本标准主要内容确定依据参考的文献资料：

1. CHEN X, ZHOU W, FENG Q, et al. Irradiation effects in 6H–SiC induced by neutron and heavy ions: Raman spectroscopy and high-resolution XRD analysis [J]. Journal of Nuclear Materials, 2016, 478: 215-21.
2. WANG X, ZHANG H, BABA T, et al. Radiation-induced segregation in a ceramic [J]. Nature Materials, 2020, 19(9): 992-8.
3. LIU M, YAN Y, ZHU Z, et al. Microstructural evolution, swelling and hardening of CVD-SiC induced by He ions irradiation at 650 °C [J]. Ceramics International, 2023, 49(2): 1880-7.
4. ZOLOTOYABKO E, POKROY B, COHEN-HYAMS T, et al. Depth-resolved strain measurements in thin films by energy-variable X-ray diffraction [J], Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 246 (2006) 244-248.
5. 其他应予说明的事项

无