

惯性约束聚变靶材料碳气凝胶的制备方法

郭艳芝, 沈军, 陈绍国, 周斌, 王珏

(同济大学波耳固体物理研究所, 上海 200092)

摘要:用溶胶-凝胶法制备出了高 RC 比(间苯二酚与催化剂的摩尔比)的 RF 有机气凝胶,通过溶剂替换,成功地实现了常压条件下的干燥工艺。经高温碳化处理,将 RF 有机气凝胶转化为碳气凝胶,改变 RC 比和聚合单体的质量百分数,可控制气凝胶的粒径及孔径、密度及比表面积。用扫描电镜(SEM)、BET 等方法对其颗粒大小、密度、比表面积及孔径分布等微结构进行了分析测试。制备出的碳气凝胶能满足惯性约束聚变靶材要求。

关键词:有机气凝胶;碳气凝胶;靶材料;常压干燥

中图分类号: O648.15 **文献标识码:** A **文章编号:** 1000-6931(2002)04/05-0324-03

Preparation Method of Carbon Aerogels as the Target Materials of Laser Inertial Confinement Fusion

GUO Yan-zhi, SHEN Jun, CHEN Shao-guo, ZHOU Bin, WANG Jue
(Pohl Institute of Solid State Physics, Tongji University, Shanghai 200092, China)

Abstract: Resorcinol-formaldehyde (RF) aerogels with high RC ratio (molar ratio of resorcinol to catalyst) are prepared by using sol-gel process. They can be dried at ambient conditions by solvent substitution. Carbon aerogels are formed by pyrolyzing the RF aerogels, and the grain and pore size, density and specific surface area of aerogels can be controlled by adjusting the RC ratio and the concentration of resorcinol. The micro-structure of the porous carbon aerogels is measured by SEM and BET.

Key words: RF aerogel; carbon aerogel; target material; ambient drying process

结构和密度可调的有机气凝胶及其碳化产物碳气凝胶在惯性约束聚变(ICF)中可用于低温靶吸附 DT 燃料、作为多层靶的填充材料和激光等离子体相互作用等方面。目前,国际上已将有机气凝胶作为靶材料应用于强激光领域^[1,2],这是因为有机气凝胶主要由碳、氢或碳、氢、氧等低原子序数元素组成,而且,其可加

工性能比无机气凝胶好。但有机气凝胶低温下易碎裂,而将有机气凝胶制成碳气凝胶后不仅保持原有的纳米多孔网络结构,且低温下的机械性能不变,因而可望成为一种新型靶材料。

一般采用间苯二酚和甲醛为原料,经溶胶-凝胶过程及超临界干燥工艺得到 RF 有机气凝胶,RF 气凝胶在惰性气氛下高温碳化得到保

收稿日期:2001-08-25;修回日期:2001-10-19

基金项目:德国大众汽车基金资助项目(110103);国家“863”惯性约束聚变青年科学基金资助项目(2001-12)

作者简介:郭艳芝(1976—),女,山东淄博人,在读硕士研究生,材料物理与化学专业

持其网络结构的碳气凝胶。采用超临界干燥工艺制备有机气凝胶的成本较高,且有一定的危险性。目前,各国研究者都在探索用常压干燥代替超临界干燥,优化其制备工艺^[3,4]。本工作选择合适的 RC 比(间苯二酚与催化剂的摩尔比),通过溶剂替换,研究在常压下制备 RF 有机气凝胶,并经进一步碳化得到碳气凝胶的方法,并用扫描电镜(SEM)、比表面积及孔径分布测试等方法对其微结构进行研究。

1 实验

1.1 有机气凝胶制备

将间苯二酚和甲醛以 1:2 的摩尔比混合,加入二次去离子水作为溶剂并调节其质量分数,用 Na_2CO_3 作催化剂,充分搅拌,使溶液混合均匀,将混合液移至密闭容器内,室温下放置一天后移放入恒温箱,于 $(85 \pm 3)^\circ\text{C}$ 下,经几天反应,生成红色的 RF 气凝胶。将气凝胶切成柱状,在适宜的有机溶剂中浸泡几小时,更换几次有机溶剂,以将气凝胶中的水分替换完全。将浸泡过的气凝胶在空气中干燥几天即得到具有连续网络结构的 RF 气凝胶。干燥时间长短随环境气流和温度而异。

1.2 碳气凝胶制备

在惰性气体保护下,将干燥后的 RF 气凝胶升温到 1050°C ,维持 4 h,使气凝胶均匀碳化为黑色碳气凝胶。碳化过程中,为防止材料受热不均而开裂,应缓慢加热,控制升温速度。

1.3 结构测试

将气凝胶切割成规则形状,测量其体积和质量,计算密度。用 BET 自动吸附仪测量 RF 气凝胶和碳气凝胶的比表面积;用孔径分布测试仪测量其孔径分布;用 SEM 观测碳气凝胶的网络结构,放大倍数为 10 000 倍。

2 结果与讨论

2.1 碳气凝胶的微观结构

用 SEM 测试了 RC 比为 500、质量分数为 30% (图 1a) 和 RC 比为 1 500、质量分数为 30% (图 1b) 碳气凝胶的表面形貌。通过改变 RC 比和质量分数,控制碳气凝胶的颗粒大小处于纳米至微米量级^[5]。从图 1 可以看出:随着 RC 比升高,碳气凝胶的骨架颗粒和孔

洞明显增大。RC 比为 500、质量分数为 30% 的碳气凝胶的网络结构较为致密,颗粒大小约为几纳米;RC 比为 1 500、质量分数为 30% 碳气凝胶的网络结构较为疏松,颗粒和孔洞明显增大,颗粒大小约为 $1 \sim 2 \mu\text{m}$,孔洞大小约为 $10 \sim 20 \mu\text{m}$ 。

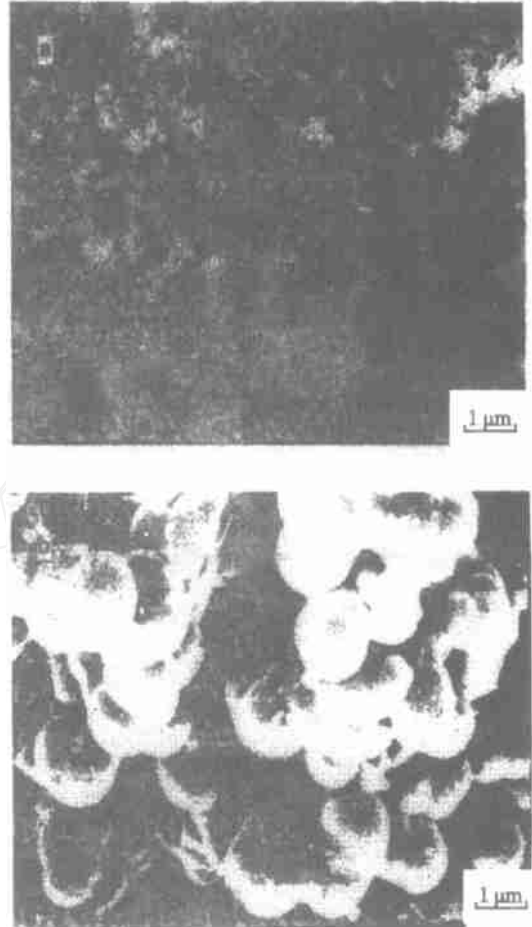


图 1 RC 比为 500(a) 和 1 500(b)、30% 碳气凝胶的 SEM 照片

Fig. 1 Microphotograph of carbon aerogel with RC ratio = 500(a) and 1 500(b) as well as mass fraction 30% by SEM

2.2 密度和比表面积

不同 RC 比和质量分数的 RF 有机气凝胶和碳气凝胶的密度及比表面积测试结果列于表 1。从表 1 可以看出:常压下制备的 RF 气凝胶具有较低密度,且其密度可通过 RC 比和质量分数来调节;与超临界干燥工艺制备的碳气凝胶相比,常压干燥法制备的碳气凝胶可达到与之同样高的比表面积;对于比表面积相同

的碳气凝胶,常压干燥工艺制备的样品密度较大。

RF 气凝胶经碳化处理后比表面积明显增

大,这主要是因 RF 气凝胶在碳化过程中产生了有机物的挥发,有机小分子挥发后留下了大量空位,增加了许多微孔所致。

表 1 RF 气凝胶和碳气凝胶样品的密度和比表面积

Table 1 Density and specific surface area of RF and carbon aerogels with various RC ratio and mass fraction

样品编号	气凝胶种类	RC 比	质量百分数/ %	干燥方式	密度/(g cm ⁻³)	比表面积/(m ² g ⁻¹)
1	碳气凝胶	200	30	超临界干燥	0.443	606.1
2	RF 气凝胶	500	30	常压干燥	0.316	188.6
3	RF 气凝胶	1 500	40	常压干燥	0.515	159.2
4	碳气凝胶	1 000	40	常压干燥	0.579	503.4
5	碳气凝胶	1 500	40	常压干燥	0.576	606.1

2.3 孔径分布

图 2 所示为 RC 比 1 500、质量百分数 40 % 的 RF 气凝胶和碳气凝胶的孔径分布。从图可看出:RF 气凝胶的孔洞大小从几纳米到几十纳米,分布范围较宽。经碳化后,网络骨架收缩,碳气凝胶的孔洞率升高,孔洞集中分布在 7 nm 以内,孔径分布明显变窄,微孔数量增多。上述 RF 气凝胶的平均孔径约为 10.6 nm,碳气凝胶的孔径集中分布在 4 nm 附近,平均孔径为 5.4 nm,此外,还有许多小于 3 nm 的微孔。

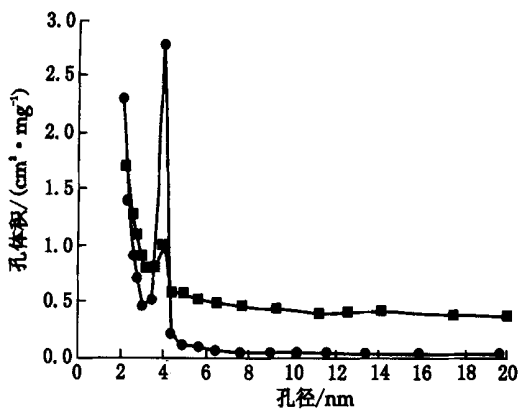


图 2 RC 比为 1 500 的 40 % RF 气凝胶和碳气凝胶的孔径分布

Fig. 2 Pore size distribution of RF and carbon aerogels with RC ratio = 1 500 and mass fraction of 40 %
— RF 气凝胶; — 碳气凝胶

3 结论

以间苯二酚和甲醛为原料,用 Na₂CO₃ 作

催化剂,通过溶剂替换,可在常压下制备出网络结构可调的 RF 气凝胶和碳气凝胶。所制备的碳气凝胶具有与超临界干燥法制备的碳气凝胶同样大的比表面积,其颗粒和孔洞大小可通过调节 RC 比和质量百分数来控制。用常压干燥法代替以往的超临界干燥工艺,简化了制备工艺,大大降低了碳气凝胶的制备成本。

参考文献:

- [1] Henke BL, Lee P, Tanaka TJ, et al. Lowenergy X-ray Interaction Coefficients: Photoabsorption, Scattering and Reflection, $E = 100 \sim 2\,000$ eV, $Z = 1 \sim 94$ [J]. At Data Nucl Data Tables, 1982, 27 (1): 1 ~ 5.
- [2] Letts SA, Buckley SR, Chen C, et al. Summary Abstract: Characterization of Low-density Foam Materials for Direct-drive Laser Inertial Confinement Fusion Targets [J]. J Vac Sci Technol A, 1988, 6: 1 896 ~ 1 897.
- [3] Saliger R, Bock V, Petricer R, et al. Carbon Aerogels From Dilute Catalysis of Resorcinol With Formaldehyde [J]. J Non-cryst Solids, 1997, 221: 144 ~ 148.
- [4] Saliger R, Fischer U, Herta C, et al. High Surface Area Carbon Aerogels for Supercapacitors [J]. J Non-cryst Solids, 1998, 225: 81 ~ 85.
- [5] Bock V, Emmerling A, Fricke J. Influence of Monomer and Catalyst Concentration on RF and Carbon Aerogel Structure [J]. J Non-cryst Solids, 1998, 225: 69 ~ 73.