

铝基碳化硼材料中子屏蔽性能的蒙特卡罗模拟

戴春娟[†] 刘希琴 刘子利 刘伯路

(南京航空航天大学材料科学与技术学院, 南京 210016)

(2012年12月12日收到; 2013年3月19日收到修改稿)

采用蒙特卡罗方法, 运用 MCNP4C 程序研究了碳化硼含量 20%—40%、中子能量 200 eV—15 keV、材料厚度 0.3—2 cm 对 B_4C/Al 复合材料中子屏蔽性能的影响. 结果表明: 碳化硼含量与中子透射系数呈一次线性下降关系; 同含量的碳化硼, B_4C/Al 材料的中子屏蔽效果要大大优于聚乙烯碳化硼材料; 在等厚度条件下, 模拟试样 B20 等的中子屏蔽效果要优于水、铜、混凝土等常规屏蔽材料; 材料厚度与中子透射系数呈指数下降关系, 且单位厚度的增加对中子透射系数改变很大; 含硼量对热中子透射系数影响很大; 在热中子能区, 中子每单位能量的变化对中子透射系数改变较大; 在慢中子能区, 中子每单位能量的变化对中子透射系数改变很小.

关键词: 中子透射系数, 蒙特卡罗, 铝基复合材料, 碳化硼

PACS: 28.41.Qb, 24.10.Lx, 81.05.Mh

DOI: 10.7498/aps.62.152801

1 引言

随着核电和太空领域技术和应用的快速发展, 在制备材料上对中子等射线的屏蔽材料的性能要求越来越高. 对于中子的屏蔽, 含锂元素的氟化锂、溴化锂、氢氧化锂和含硼元素的氧化硼、硼酸和碳化硼等是优良的慢中子吸收物质. 碳化硼的中子屏蔽性能好^[1], 但较差的韧性使其难以作为独立的中子屏蔽材料使用. 以碳化硼作为增强体制备的铝基复合材料 (B_4C/Al) 不仅具有质量轻、比强度高、热膨胀系数低、良好的热稳定性和导热、导电性能的优点^[2], 而且还具有良好的中子屏蔽性能^[3], 已经以板的形式在乏燃料水池或燃料运输容器等核工业领域获得应用. 国内外对 B_4C/Al 复合材料在制备技术、材料结构力学性能等方面做了大量的工作^[4,5], 其中粉末冶金法制备质量分数 31% B_4C 的高密度 B_4C/Al 材料 (在美国称为 Metamic) 已经被美国核管会批准为乏燃料湿法贮存设备, 并被推荐用于美国阿肯色州核电厂 1 区和 2 区的乏燃料格架^[6], 并作为中子吸收材料在 AP1000 核电厂乏燃料水池的设计中采用. 对于硼钢、聚乙烯碳化硼等中子吸收材料的中子屏蔽性能研究已有一定的

进展, 而关于 B_4C/Al 复合材料则未见有报道.

本文采用蒙特卡罗方法, 运用 MCNP4C 程序模拟计算 B_4C/Al 材料的中子透射系数^[7], 研究中子能量、碳化硼含量 (质量分数)、材料厚度与中子透射系数的关系. 中子能量选用 200 eV—15 keV, 是因为硼 10 元素对热中子和慢中子有良好的吸收效果; 讨论中子每单位能量的变化对材料中子透射系数的影响, 从而在微观上反映硼 10 元素在中子由热中子到慢中子的过渡中反应截面的变化, 为更好的选择和利用中子屏蔽材料提供选项和理论参考依据, 为更深入的研究 B_4C/Al 材料的中子屏蔽性能打下基础.

2 蒙特卡罗计算方法

2.1 MCNP 模拟程序

MCNP 程序是蒙特卡罗模拟程序的一种, 方法是跟踪大量粒子输运行踪并进行统计, 记录粒子运动过程中的信息, 并给出相关物理参数, 从而计算中子、光子或中子-光子耦合输运问题^[8], 可运用于屏蔽材料的性能计算^[9]等.

[†] 通讯作者. E-mail: daishihan1314@163.com

2.2 模型建立

采用蒙特卡罗方法, 利用 MCNP4C 程序, 对入射中子的能量、位置以及方向进行抽样, 模拟一定能量的中子束入射靶材料的物理过程. 具体方法是对入射中子实施跟踪, 在中子与原子核碰撞的每个物理过程中, 分配一个或几个随机参数, 使其持续碰撞下去或被吸收 (停止跟踪, 继续下一次模拟), 当持续碰撞下去的中子能量小于 1×10^{-11} MeV, 或者从透射面穿出去时, 程序会停止跟踪, 然后下一个中子模拟开始, 直到所有模拟中子数结束, 在此过程中记录所有穿过透射面的中子数. 中子透射系数计算如下:

$$F1 = \frac{1}{N} \int_A \int_{\mu} \int_t \int_E J(\mathbf{r}, E, t, \mu) dE dt d\mu dA, \quad (1)$$

$$F11 = \frac{R1}{N} \int_A \int_{\mu} \int_t \int_E J(\mathbf{r}, E, t, \mu) dE dt d\mu dA, \quad (2)$$

$$F21 = \frac{R2}{N} \int_A \int_{\mu} \int_t \int_E J(\mathbf{r}, E, t, \mu) dE dt d\mu dA, \quad (3)$$

其中, $F1$ 为每个透射粒子所引起的透射面的粒子透过概率, 即透射系数. $F11$ 为 $F1$ 与剂量转换因子的乘积; $F21$ 为 $F1$ 与剂量当量转换因子的乘积; $R1$ 为剂量转换因子; $R2$ 为剂量当量转换因子^[10]. $R1$ 和 $R2$ 是中子能量的函数, N 为入射粒子总量.

值得注意的是, 此处模拟的是点源在发射一个中子的状态下, 有多少份额的中子通过入射面, 最后有多少份额的中子穿过透射面, 中子透射系数的计算方法如上. 本文结果与讨论中采用的都是透射系数.

图 1 表示此次模拟计算的示意图, 采用各向同性的点源, 与点源正对的面称为入射面, 与入射面相对的面称为透射面, 点源与材料入射面距离为 130 cm, 材料为长方体板材, 点源与材料外的介质为空气.

2.3 传统计算公式

中子在屏蔽层中的减弱规律可近似用指数函数来描述, 即中子通量 ϕ 为

$$\phi = \frac{N}{4\pi R^2} e^{-\Sigma_t x}, \quad (\text{n/cm}^2 \cdot \text{s}), \quad (4)$$

式中, x = 屏蔽层厚度 (cm), Σ_t = 分出截面 (cm^{-1}), N = 中子源强度 (n/s), R = 源到测量点距离 (cm).

以 I/I_0 表示中子透射系数, I_0 是在无屏蔽材料时测得的中子注量,

$$I_0 = \frac{N}{4\pi R^2}, \quad (5)$$

I 是通过屏蔽材料后测得中子注量,

$$I = \frac{N}{4\pi R^2} e^{-\Sigma_t x}. \quad (6)$$

3 实验过程和讨论

3.1 碳化硼的含量与中子透射系数的关系

采用点源能量 200 eV, 材料几何尺寸为 $4 \text{ cm} \times 2 \text{ cm} \times 6 \text{ cm}$, 入射面尺寸为 $4 \text{ cm} \times 6 \text{ cm}$, 材料厚度为 2 cm, 粒子注量为通过材料后的注量.

设计碳化硼含量分别为 20%, 25%, 30%, 35%, 40% 的五种组分, 将其标号为 B20, B25, B30, B35, B40, 进行模拟后, 所得结果如图 2(b) 所示, 碳化硼含量与透射系数成线性下降关系, 说明 $\text{B}_4\text{C}/\text{Al}$ 材料对 200 eV 中子的屏蔽效果与碳化硼的含量有很大关系, 这种线性关系可用方程 $y = -1.23x + 0.751$ 近似表示, x 表示碳化硼含量, y 表示透射系数. 从直线斜率的大小来看, 碳化硼含量的增加对透射系数下降影响较大, 表明碳化硼对 200 eV 的中子有较强的吸收能力.

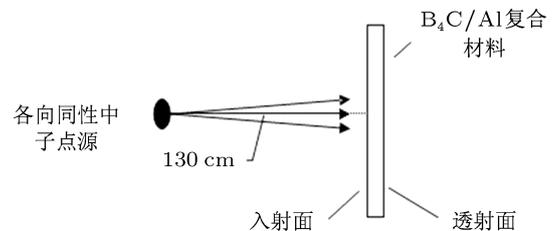


图 1 模拟计算模型

文献 [11] 介绍聚乙烯碳化硼中碳化硼含量与中子透射系数的关系 (如图 2(a)), 碳化硼含量在 40% 时, 透射系数为 0.5, 与 B20 的透射系数相等. 显然 B20, B25 等模拟试样的屏蔽性能要优于同含量碳化硼的聚乙烯屏蔽材料. 因此, 中子透射系数不仅与碳化硼含量有关, 而且与材料性质 (比如密度、组成成分)、中子源强等有关. 对于同厚度的铝基碳化硼材料和聚乙烯碳化硼材料, 在碳化硼含量一致的前提下, 前者的密度是后者的两倍以上, 而且金属复合材料的内部组织分布均匀, 金属相界面饱和, 孔隙较少, 发生中子侧漏的机会较少; 当一定

粒子注量的中子穿过单位面积的入射面时, 铝基碳化硼材料的组成原子质量数总体比中子和比聚乙烯碳化硼都大, 与中子进行弹性碰撞后, 中子在铝基碳化硼材料中一次碰撞损失的能量更多, 于是就能在更短的距离内慢化并被吸收; 单位厚度的铝基碳化硼材料和聚乙烯碳化硼材料, 前者因密度大于后者而所含的碳化硼要多, 因此吸收热中子的能力更强; 钋-铍中子源发射的中子能量为 1—11 MeV, 属于快中子范畴, 对于快中子的屏蔽, 需要质量数很大的物质先通过非弹性散射将其慢化到 1 MeV 以下, 然后利用含氢物质通过弹性散射将其慢化, 而聚乙烯碳化硼中显然不存在质量数很大的物质, 若改用铝基碳化硼, 则效果会得到改善.

文献 [12] 模拟计算了不同材料的中子透射系数, 其中, 2 cm 厚的聚乙烯、水、混凝土、铜、铁和铅, 面对 100 eV 的中子照射时, 透射系数分别为 0.5, 0.6, 0.7, 0.6, 0.5, 0.7, 而同条件下 B20 的透射系数为 0.42(模拟得到), 小于聚乙烯、水、混凝土等的透射系数, 因此 B20, B30, B35, B40 对 100 eV 中子的屏蔽性能要优于聚乙烯、水、混凝土等. 从屏蔽的物理过程看, 100 eV 的中子属于热中子范畴, 而铝基碳化硼中硼 10 元素对热中子的吸收截面很大, 为 3837 b, 吸收一个中子后生成⁴He 和⁷Li, 直接完成中子的屏蔽过程, 屏蔽中子所需厚度较小; 其他材料如水、聚乙烯等则通过与中子的多次弹性碰撞来使中子慢化, 最终停止, 达到吸收的效果, 屏蔽中子所需厚度较大. 因此对于厚度为 2 cm 的中子屏蔽材料, 在屏蔽热中子时, 含硼材料铝基碳化硼比不含硼常规材料水、聚乙烯、混凝土等的屏蔽效果好.

由透射系数 $=e^{-\Sigma_t x}$ 可得到 B20, B25 等的宏观分出截面, 如表 1 所示, 表 1 能够更直观的表现出碳化硼含量对中子屏蔽效果的影响.

3.2 材料的厚度与中子透射系数的关系

采用点源能量 200 eV, 碳化硼含量为 30%, 材料入射面为 4 cm × 6 cm, 材料厚度分别为 0.3 cm, 0.5 cm, 1 cm, 1.5 cm, 2 cm, 经模拟后所得数据如下:

图 3 表示材料的厚度与中子透射系数的关系, 透射系数随着材料厚度的增加而逐渐下降, 并且下降的趋势逐渐减小, 符合指数下降规律, 这种规律可近似用公式 $y = e^{-0.45x}$ 表示, y 表示透射系数, x 表示材料厚度 (cm), 0.45 表示分出截面 (cm⁻¹). 指

数模型符合传统的计算公式, 即 $I/I_0 = e^{-\Sigma_t x}$. 由图 3 中可以看出, 2 cm 厚的材料中子透射系数为 0.38, 而铁、聚乙烯、聚乙烯 (B₄C) 在同厚度下的中子透射系数分别为 0.92, 0.8, 0.7^[11], 比模拟试样 B30 的透射系数大一倍以上, 明显屏蔽效果不如 B30. 材料厚度从 0.3 cm 增加到 1 cm, 透射系数下降了 28%, 可见材料厚度对中子透射系数影响很大.

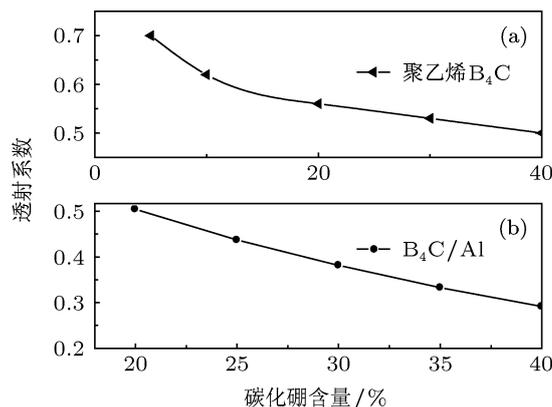


图 2 碳化硼含量与透射系数的关系

表 1 模拟试样的宏观分出截面

模拟试样编号	B20	B25	B30	B35	B40
宏观分出截面/cm ⁻¹	0.342	0.414	0.4816	0.550	0.669

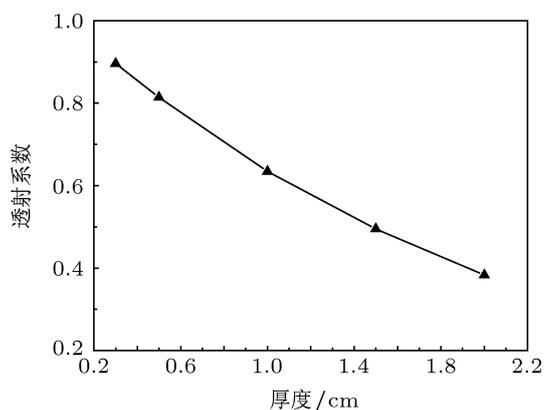


图 3 B₄C/Al 材料厚度与透射系数的关系

图 4^[13] 是用蒙特卡罗方法模拟计算不同浓度的含硼钢对 1 keV 中子的透射系数. 从图 4 可以看出, 含硼量越高, 同厚度条件下的含硼钢中子透射系数越小. 2 cm 厚度时, 各含硼钢的中子透射系数都在 0.75 以上, 透射系数与厚度成指数下降关系要使透射系数在 0.5 以下, 各含硼钢所需厚度至少在 5 cm 以上, 且数值相差较大, 比较之下, B20 在 2 cm

厚度时的中子透射系数为 0.5, 含硼量高于各含硼钢, 因此含硼量对中子透射系数有很大影响, 含硼量越高, 中子透射系数越小, 这主要是因为硼元素对慢热中子的吸收截面要远大于其他元素, 硼原子在组成材料中所占比重越大, 吸收的中子数就越多, 透过材料的中子数就越少, 故中子透射系数越小.

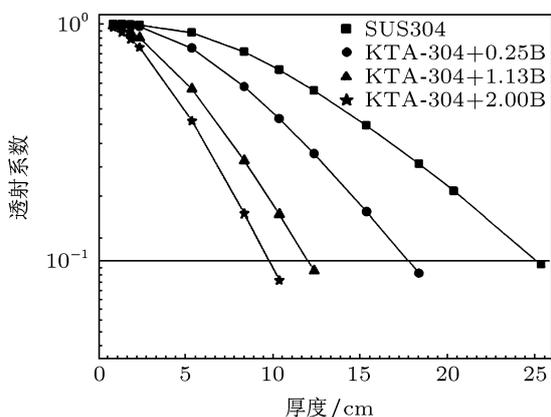


图4 不同浓度的含硼钢对 1 keV 热中子的衰减性能

3.3 中子能量与中子透射系数的关系

采用材料入射面为 4 cm × 6 cm, 厚度为 2 cm, 源强能量分别为 200 eV, 500 eV, 1 keV, 2 keV, 5 keV, 15 keV, 模拟后所得数据如下:

图 5 是表示中子能量与透射系数的函数图, 从图中可以看到, 随着中子能量的提高, 透射系数呈上升趋势, 在 200 eV—1 keV 区间, 透射系数随中子能量的增加上升较快, 呈线性关系, 可用方程近似表示为 $y = 0.0003x + 0.178$, 其中 y 表示透射系数, x 表示中子能量 (eV); 在 1—15 keV 区间, 透射系数随中子能量的增加上升缓慢, 呈线性关系, 可用方程近似表示为 $y = 0.0175x + 0.4074$, 其中 y 表示透射系数, x 表示中子能量 (keV). 从图中可以看出, 在热中子能区 (1 keV 以下), 中子每单位能量 (100 eV) 的变化对中子透射系数产生的影响在 0.01—0.03; 在慢中子能区 (1 keV—0.1 MeV), 中子每单位能量的变化对中子透射系数的影响在 0.005 以下. 这主要是因为天然硼中硼 10 对热中子的吸收截面非常

大, 为 3837 b, 是少数几种中子吸收截面大的元素. 随着中子能量升高, 硼 10 对热中子的吸收截面开始下降, 并且下降幅度很大. 当中子能量上升到慢中子区时, 硼 10 对中子的吸收截面值和其他原子几乎一致, 且随着中子能量的升高, 截面值缓慢下降. 这与文献 [14] 得出的结论相似.

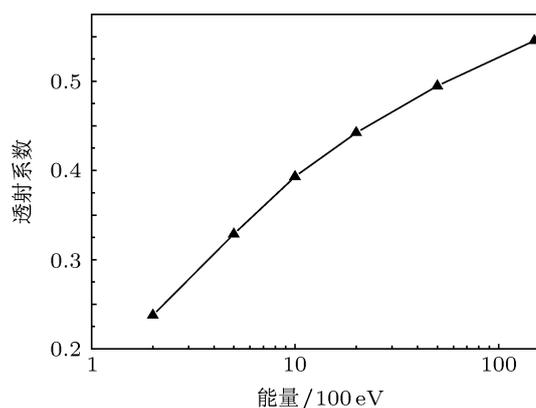


图5 中子能量与透射系数的关系

4 结论

1. 在能量为 200 eV 的中子照射下, B_4C/Al 材料的中子透射系数与碳化硼含量呈一次线性下降关系; 同含量的碳化硼, B_4C/Al 材料的中子屏蔽效果要大大优于聚乙烯碳化硼材料; 在等厚度受热中子照射条件下, 模拟试样 B20 等的中子屏蔽效果要优于水、铜、混凝土等常规屏蔽材料, 这对于选择中子屏蔽材料有很大参考依据.

2. 材料厚度与中子透射系数呈指数下降关系, 验证了传统的理论计算公式, 从曲线关系可得出, 单位厚度的增加对中子透射系数改变很大, 达到 28% 以上, 因此增加材料厚度是减小中子透射系数的一种途径.

3. 在热中子能区, 中子每单位能量的变化对中子透射系数改变在 0.01—0.03; 在慢中子能区, 中子每单位能量的变化对中子透射系数改变在 0.005 以下. 这可以为测出的中子透射系数估算出中子能量提供参考依据.

- [1] Cao Z W, Zhang J H 2006 *liaon. Chem. Ind.* **35** 399 (in Chinese) [曹仲文, 张继红 2006 辽宁化工 **35** 399]
- [2] Song Y G, Zheng J, Tan M F 2006 *J. Nanj. Norm. Univ.* **6** 53 (in Chinese) [宋永刚, 郑晶, 谭梅风 2006 南京师范大学学报 **6** 53]
- [3] Li G, Jian M, Wang M L, Wang G C, Liu X Z 2011 *Mat. Rev. A* **25** 7 (in Chinese) [李刚, 简敏, 王美玲, 王贯春, 刘晓珍 2011 材料导报 A **25** 7]
- [4] Alizadeh M 2010 *Mater. Sci. Eng. A* **52** 578
- [5] Tuncer N, Tasdelen B, Arslan G 2011 *Ceram. Int'l.* **37** 2861
- [6] Kenneth D 2009 *Nuclear engineering handbook* (New York: CBC Press) p152
- [7] Xu X H, Chen J 1995 *Rad. Prot.* **15** 9 (in Chinese) [徐小桦, 陈晶 1995 辐射防护 **15** 9]
- [8] Zhang F Q, Yang J L, Li Z H, Ying C T, Liu G J 2007 *Acta Phys. Sin.* **56** 3577 (in Chinese) [章法强, 杨建伦, 李正宏, 应纯同, 刘广均 2007 物理学报 **56** 3577]
- [9] Xue N, Zhao B 2007 *Rad. Prot.* **27** 65 (in Chinese) [薛娜, 赵博 2007 辐射防护 **27** 65]
- [10] Li D P, Pan Z Q 1987 *Rad. Prot. Man.* (Book 1) (Beijing: Atomic Energy Press) p320 (in Chinese) [李德平, 潘自强 1987 辐射防护手册 (第一册)(北京: 原子能出版社) 第 320 页]
- [11] Hu J D, Hu H R, Ding D H 1980 *nucl. Tech.* **3** 44 (in Chinese) [胡建达, 胡厚仁, 丁大宏 1980 核技术 **3** 44]
- [12] Zeng X M, Zhou P, Qin P Z, Bao M, Guo G S, Xu Z Y 2011 *nucl. Tech.* **34** 188 (in Chinese) [曾心苗, 周鹏, 秦培中, 鲍矛, 郭广水, 许自炎 2011 核技术 **34** 188]
- [13] Wei Q L, Wang Y, Yang B, Yang T, Liu Y B 2010 *nucl. Tech.* **33** 367 (in Chinese) [魏强林, 王毅, 杨波, 杨婷, 刘义保 2010 核技术 **33** 367]
- [14] Li Z F, Xue X X 2011 *J. Northeastern Univ. (Natural Science)* **32** 1716 [李哲夫, 薛向欣 2011 东北大学学报 (自然科学版) **32** 1716]

The Monte Carlo simulation of neutron shielding performance of boron carbide reinforced with aluminum composites

Dai Chun-Juan[†] Liu Xi-Qin Liu Zi-Li Liu Bo-Lu

(College of Materials Science and Technology, Nanjing University of Aeronautics and Astronautics, Nanjing 210016, China)

(Received 12 December 2012; revised manuscript received 19 March 2013)

Abstract

Three groups of neutron shielding experiments were set up to study the shielding performance of B_4C/Al composite, using the Monte-Carlo method. We have made the following changes: the content of boron carbide 20%—40%, neutron energy 200 eV—15 keV, material thickness 0.3—2 cm, so that we can draw the conclusions: the content of boron carbide and neutron transmission coefficient show a linear relation, with a big drop; under the same neutron energy, the neutron-shielding qualities of simulated specimens are for better than polyethylene boron carbide at the same content of B_4C and water, copper, and concrete at the same thickness; an exponential decline relationship is exhibited by material thickness and neutron transmission coefficient, which change greatly with the increase in unit material thickness; the content of boron affects the thermal neutron transmission coefficient seriously. In the thermal neutron energy region, the change of per unit neutron energy(100 eV) has a big influence on neutron transmission coefficient. In the slow neutron energy region, the influence is small.

Keywords: neutron transmission coefficient, Monte-Carlo method, aluminum matrix composite material, boron carbide

PACS: 28.41.Qb, 24.10.Lx, 81.05.Mh

DOI: 10.7498/aps.62.152801

[†] Corresponding author. E-mail: daishihan1314@163.com