

乏燃料贮运用铝基碳化硼复合材料的屏蔽性能计算

戴龙泽[†] 刘希琴 刘子利 丁丁

(南京航空航天大学材料科学与技术学院, 南京 210016)

(2013年5月24日收到; 2013年8月6日收到修改稿)

采用蒙特卡罗方法, 利用 MCNP 程序计算了在中子能量为 0.5—20 MeV, ^{235}U 核热中子裂变源条件下, 厚度为 3—9 cm、碳化硼含量 5%—15% 的铝基碳化硼复合材料在空气、水、200—1400 ppm ($1 \text{ ppm} = 10^{-6}$) 硼酸溶液介质中的中子透射系数. 结果表明: $\text{B}_4\text{C}/\text{Al}$ 复合材料的透射系数随碳化硼含量和材料厚度的增加而减少, 随中子能量的升高而增大, 而硼酸浓度的改变对中子透射系数影响不大. $\text{B}_4\text{C}/\text{Al}$ 复合材料在水中比硼酸中更能发挥其屏蔽效果, 在空气中屏蔽特性显现出“反转”现象, 中子能量高于 5 MeV 时透射系数几乎没有变化. 在裂变源条件下的 $\text{B}_4\text{C}/\text{Al}$ 复合材料中子透射系数均比稳定源 20 MeV 低. 介质的中子屏蔽效果是硼酸溶液 > 水 > 空气, 水介质的中子透射系数与介质厚度呈指数下降关系, 裂变源和稳定源条件下分别近似为 $e^{-0.71x}$ 和 $e^{-0.669x}$, x 为厚度 (cm).

关键词: 蒙特卡罗, 乏燃料设备, 中子吸收材料, $\text{B}_4\text{C}/\text{Al}$

PACS: 24.10.Lx, 07.88.+y, 81.05.Mh

DOI: 10.7498/aps.62.222401

1 引言

核电事业的快速发展, 导致反应堆乏燃料越来越多, 乏燃料具有极强的 α , β , γ 射线, 有一定的中子发射率, 还伴有热量产生. 因此处理乏燃料用的材料不仅要求具有高热中子吸收能力, 还需要高强度、耐高温腐蚀、耐辐照、热膨胀系数低等特点. 目前国外使用的乏燃料贮运设备和格架材料主要含硼钢^[1]、硼铝合金^[2]、 $\text{B}_4\text{C}/\text{Al}$ 复合材料^[3]、含镉-钆中子吸收材料^[4]、有机聚合物^[5]等. 含硼钢和硼铝合金硼含量低且随着含量增高而强度下降, 镉-钆材料易产生中子毒物, 有机聚合物难耐高温, 在辐照条件下易老化, 因此国内外普遍选用 $\text{B}_4\text{C}/\text{Al}$ 复合材料. 美国 AAR 公司、METAMIC 公司等利用粉末冶金法生产出了 Boral, Metamic 等 $\text{B}_4\text{C}/\text{Al}$ 材料产品并在乏燃料贮存水池投入使用^[6]. 国内对 $\text{B}_4\text{C}/\text{Al}$ 材料的研究主要集中在制备工艺、金属相界面、润湿性^[7-9]等方面, 在中子吸收方面的研究^[10,11], 中国核动力研究院、中国工程物理研究院等已经就材料的制备工艺、力学性能研究、受腐蚀影响、中子吸收性能等方面取得初步成果.

本文采用蒙特卡罗方法, 利用 MCNP 计算机模拟程序计算了 $\text{B}_4\text{C}/\text{Al}$ 复合材料在水、空气、硼酸溶液介质中, 中子能量、碳化硼含量、材料厚度与中子透射系数的关系.

2 蒙特卡罗 (M-C) 计算模型

2.1 模拟计算

蒙特卡罗方法是一种利用随机数进行统计试验, 以求得的统计特征值 (如均值、概率等) 作为待解问题数值解的方法, 已在屏蔽材料的性能计算等领域获得了应用^[12-15]. 考虑 $\text{B}_4\text{C}/\text{Al}$ 复合材料作为乏燃料贮运、反应堆外屏蔽、乏燃料格架及中子防护装置时的使用环境, 本文选用水、空气、硼酸溶液作为介质. 考虑反应堆内的硼酸溶液浓度范围及中子能量范围, 模拟计算中所取的硼酸溶液浓度在 1400 ppm ($1 \text{ ppm} = 10^{-6}$) 以下, 中子能量在 20 MeV 以下; 考虑工作环境对 $\text{B}_4\text{C}/\text{Al}$ 复合材料的力学性能要求, 所用复合材料应具有较高的机械性能^[16], 模拟计算时复合材料中碳化硼含量为 5%, 10%, 15%.

[†] 通讯作者. E-mail: daishihan1314@126.com

图 1 是利用 MCNP 程序对中子透射系数进行计算时的物理模型, 中子源采用点源能量可设定的各向同性虚拟点源, 中子源与模拟试样 (B_4C/Al 复合材料) 的距离为 30 cm. 模拟试样与中子源正对的那个面定义为入射面, 其尺寸为 4 cm×6 cm, 入射面正对的面为透射面. 模拟试样与中子源同处于一个空间均匀介质中. 模拟试样为铝基碳化硼材料, 处于理想状态下, 即材料成分分布均匀、无孔隙、无压缩、无膨胀, 形状为长方体. 模拟粒子数为 1×10^8 , 误差在 1% 以内.

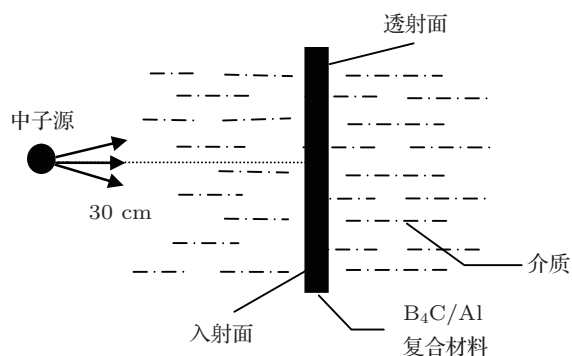


图 1 模拟计算的物理模型示意图

2.2 模拟试样

B_4C 和 Al 密度分别为 2.52 g/cm^3 和 2.7 g/cm^3 . 表 1 列出了本实验模拟试样 B_4C/Al 复合材料的成分和密度.

表 1 模拟试样成分和密度

试样编号	I	II	III
材料成分	5% B_4C 95%Al	10% B_4C 90%Al	15% B_4C 85%Al
密度/ $\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$	2.691	2.682	2.673

2.3 模拟实验方案

1) 设定点源中子能量为 20 MeV, 在水和 1400 ppm 硼酸溶液中, 对 B_4C 含量分别为 5%, 10%, 15% 的 3 cm 厚 B_4C/Al 复合材料试样进行照射, 模拟计算试样的入射与透射面中子通量、中子透射系数.

2) 设定试样中 B_4C 含量为 15%, 试样厚度为 3 cm, 模拟计算点源中子能量为 0.5, 1, 1.5, 2, 5, 10, 15 MeV 时试样在水、空气、1400 ppm 硼酸溶液中的入射与透射面中子通量、中子透射系数.

3) 设定试样中 B_4C 含量为 15%, 试样厚度为 3 cm, 点源中子能量为 20 MeV, 模拟计算硼酸浓度为 200, 400, 600, 800, 1000, 1200, 1400 ppm 时试样的入射与透射面中子通量、中子透射系数.

4) 设定 B_4C 含量为 15%, 在水、1400 ppm 硼酸溶液中, 计算反应堆中 ^{235}U 裂变源和稳定源 20 MeV 条件下, 厚度为 3, 5, 7, 9 cm 时试样的入射与透射面中子通量、中子透射系数.

3 计算结果与讨论

图 2 为中子点源能量为 20 MeV, B_4C/Al 复合材料在水和 1400 ppm 硼酸溶液两种介质中, 中子透射系数随 B_4C 含量的变化曲线. 可以看出, B_4C/Al 复合材料材料的透射系数随碳化硼含量的增加而减少, 在相同的碳化硼含量条件下 B_4C/Al 复合材料材料的透射系数在水中比在硼酸溶液中小 0.05 左右. 无 B_4C/Al 屏蔽材料时, 在水和 1400 ppm 硼酸溶液中计算得到的介质面中子通量分别为 1.58×10^{-3} 和 1.33×10^{-3} , 说明 1400 ppm 硼酸溶液的中子屏蔽效果要比水好; 加入 B_4C/Al 复合材料屏蔽体后, 通过屏蔽体的面中子通量在 1400 ppm 硼酸溶液环境下小. 这主要是因为硼酸溶液中硼 10 对热中子吸收截面大, 中子在介质中慢化后变成热中子被硼 10 吸收, 使通过屏蔽体的面中子通量减少. 然而, B_4C/Al 复合材料在水环境中更能发挥其屏蔽性能, 透射系数比硼酸溶液环境下小 (图 2). 从面中子通量看, 在水和硼酸溶液中, 通过 15% B_4C/Al 复合材料入射面的中子通量分别为 2.073×10^{-3} 和 1.74×10^{-3} , 通过透射面的中子通量分别为 9.92×10^{-4} 和 9.51×10^{-4} , 硼酸溶液中材料入射面与透射面中子通量显然小于水介质中, 但被材料吸收的中子份额却是水介质中多, 所以水环境中材料的中子透射系数低. 其原因在于水中含大量的氢, 是最佳的快中子慢化剂, 中子经水介质慢化后, 到达材料入射面的中子能量降低, 且能量范围集中, 设其能域范围为 X , 通量为 Y . 硼酸溶液中, 在水溶液中硼酸根离子对中子的慢化效果不如氢, 因此, 中子在硼酸溶液中经慢化到达入射面后, 其能域范围大于 X , 中子通量因一部分被介质中硼 10 吸收而小于 Y . 根据中子能量越高, 材料屏蔽效果越差 [17], 能域范围大于 X 的中子被材料吸收的份额就小于能域范围为 X 的中子, 因此 B_4C/Al 材

料在中子能域范围为 X 的水中的屏蔽效果更好; 透射系数随碳化硼含量的增加而减少; 无论水还是硼酸溶液, 材料的中子透射系数在 0.45—0.55 之间.

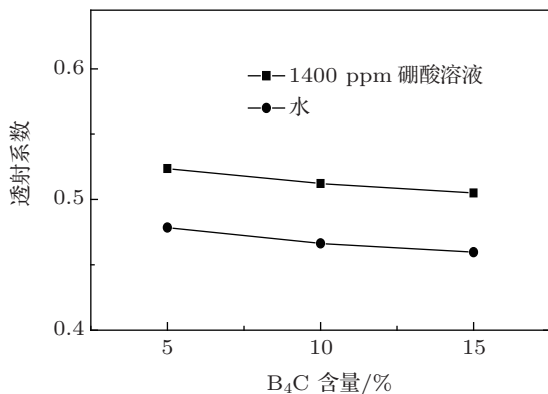


图2 B₄C/Al 复合材料在水和硼酸介质中的中子透射系数随 B₄C 含量的变化

图 3 为 B₄C/Al 复合材料在空气、水和 1400 ppm 硼酸溶液中透射系数随中子能量的变化曲线. 从图 3 可以看出, 中子透射系数基本上随中子能量的升高而增大, 介质的屏蔽效果是硼酸溶液 > 水 > 空气. 复合材料在水介质中的中子透射系数最低, 且中子透射系数均小于 0.35, 说明在该条件下其屏蔽效果最佳, 这与图 2 所得结果一致. 当中子能量在 2 MeV 以下时, 中子透射系数甚至在 0.1 以下, 显示出极佳的屏蔽效果; 1 MeV 以下中子几乎被完全屏蔽. 当中子能量从 2 MeV 增大到 5 MeV 时, 中子透射系数迅速增大. 进一步增加中子能量, 中子透射系数以缓慢的速度增大. 在硼酸溶液介质中试样的透射系数均比在水介质中大, 与中子能量的变化规律和水为介质时相似, 其值在于 0.04—0.4 之间. 在空气介质中试样的透射系数在某能量区间出现“反转”现象, 即能量高的中子对应的透射系数

反而小, 这和文献 [18, 19] 提到的情况一致. 材料的透射系数均在 0.6 以上, 且当中子能量大于 5 MeV 时, 材料透射系数基本保持不变, 均在 0.75 左右.

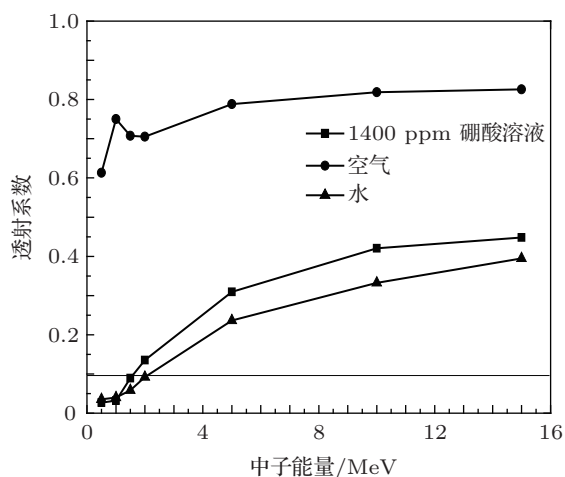


图3 B₄C/Al 复合材料在空气、水和 1400 ppm 硼酸溶液介质中透射系数随中子能量的变化

表 2 为不同能量的中子在经过 30 cm 厚的介质后通过等几何尺寸介质的透射面中子通量, 等几何尺寸介质指厚度为 3 cm, 透射面 4 cm×6 cm 的水、空气、1400 ppm 硼酸长方体. 从表 2 可以看出, 1400 ppm 硼酸溶液的屏蔽效果最好, 中子通量随中子能量的增加而增加, 增幅不断加大, 说明硼酸溶液的屏蔽效果不断下降. 当中子能量达到 15 MeV 以上时, 中子通量接近于水介质中. 空气介质中, 面中子通量与中子能量无关, 数值为 1.74×10^{-3} , 几乎没有屏蔽效果; 水介质中, 面中子通量与中子能量呈线性递增关系, 增幅不断加大, 且数值大于硼酸溶液介质中相应的面中子通量. 因此面对 0.5—15 MeV 能量中子照射, 介质屏蔽效果依然是硼酸溶液 > 水 > 空气.

表 2 等几何尺寸的介质面对不同能量中子照射时的透射面中子通量

中子能量/MeV	0.5	1.0	1.5	2	5	10	15
水	3.68×10^{-5}	5.12×10^{-5}	9.90×10^{-5}	1.67×10^{-4}	6.88×10^{-4}	1.10×10^{-3}	1.30×10^{-3}
空气	1.74×10^{-3}	1.74×10^{-3}	1.74×10^{-3}	1.74×10^{-3}	1.74×10^{-3}	1.74×10^{-3}	1.74×10^{-3}
1400 ppm 硼酸溶液	7.84×10^{-6}	1.39×10^{-5}	4.25×10^{-5}	8.59×10^{-5}	4.94×10^{-4}	8.34×10^{-4}	1.10×10^{-3}

图 4 为 B₄C/Al 复合材料在硼酸溶液中硼酸浓度对中子透射系数的影响曲线. 从图 4 中可以看出, 15 MeV 中子照射条件下 B₄C/Al 复合材料试样的透射系数均小于 20 MeV 中子照射条件下的

透射系数. 试样的透射系数随硼酸浓度的增加变化较小, 说明硼酸浓度的增加对 B₄C/Al 复合材料在该条件下试样的中子屏蔽效果影响不大; 透射系数只在硼酸浓度为 800 ppm 时略微下降, 因此,

从屏蔽效果看, 硼酸浓度最好选用 800 ppm. 文献 [20] 指出, 800 ppm 条件下的反应堆有效增殖系数在 1.15869—1.20253 之间, 在可接受范围内.

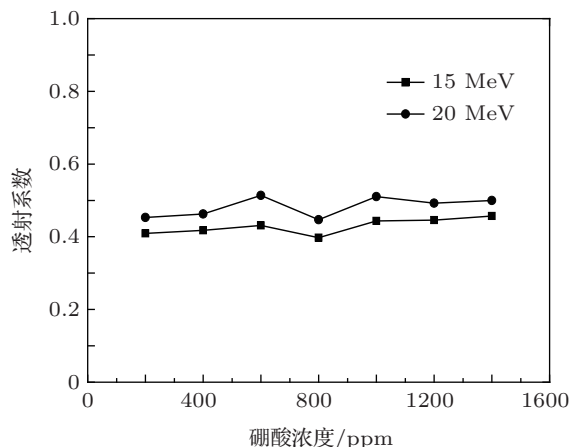


图 4 B₄C/Al 复合材料在硼酸溶液中硼酸浓度对 neutron 透射系数影响

图 5 为 B₄C/Al 复合材料在水和 1400 ppm 硼酸溶液两种介质中, 反应堆 ²³⁵U 核热中子裂变源和稳定源 20 MeV 条件下, B₄C/Al 复合材料厚度与中子透射系数的变化曲线. 随着 B₄C/Al 复合材料厚度的增加, 中子透射系数显著下降, 说明材料厚度对中子透射系数影响很大. 在相同的裂变源或稳定源条件下, 相同厚度的 B₄C/Al 复合材料的中子透射系数在水介质中均比在硼酸溶液介质中小, 与图 2 所得结果一致. 稳定源 20 MeV 条件下, 相同厚度的 B₄C/Al 复合材料的屏蔽效果随厚度的增加迅速增强, 中子透射系数在 0.23—0.52 之间. 裂变源条件下, 无论是水中还是在 1400 ppm 硼酸溶液介质中, B₄C/Al 复合材料中子透射系数比稳定源低, 均在 0.3 以下, 与图 3 所得结果一致. 当 B₄C/Al 复合材料厚度在 9 cm 时, 材料中子透射系数降到 0.1 左右, 而此时等厚度水和 1400 ppm 硼酸溶液的中子透射系数为 0.22623 和 0.2276 (表 3), 水和硼酸溶液介质的屏蔽效果远不如 B₄C/Al 复合材料. 无论在水还是 1400 ppm 硼酸溶液介质中, 增加介质厚度, 透过透射面的中子通量都会减少. 根据表 3, 通过拟合计算可以得出: 介质的中子透射系数与介质厚度呈指数下降关系, 分别近似为 $e^{-0.669x}$ 和 $e^{-0.71x}$, x 为厚度 (cm).

图 6^[21] 为反应堆内 ²³⁵U 核热中子裂变时裂变中子能谱. 由于裂变的中子能谱较宽, 且能量不确定, 此处模拟采用近似的方法, 在该图上取点 1—10 MeV, 从图中得出各能量中子占比, 采用裂变源

中子处理编程, 近似得到图 5 所示的结果, 在裂变源的中子能量优化等方面有待进一步探讨.

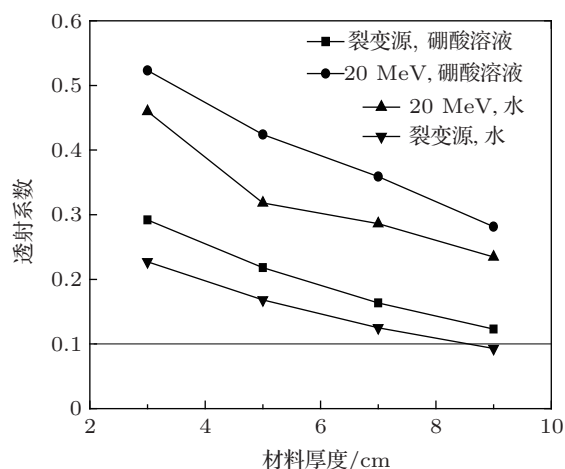


图 5 B₄C/Al 复合材料在水和硼酸介质中材料厚度与中子透射系数的变化

表 3 不同介质厚度的中子透射系数

	厚度/cm	裂变源 (水)	裂变源 (硼酸溶液)
透射系数	3	0.60712	0.5924
	5	0.43575	0.42804
	7	0.31007	0.30499
	9	0.22623	0.2276

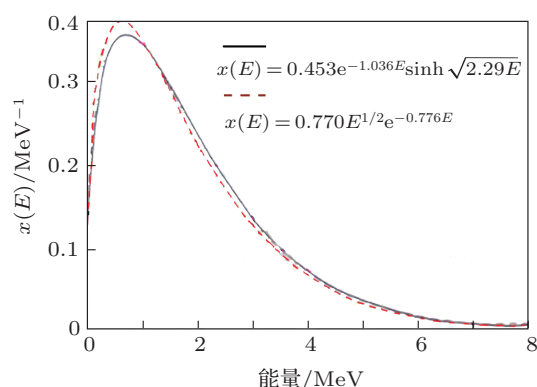


图 6 ²³⁵U 核热中子裂变时裂变中子能谱

4 结论

采用蒙特卡罗方法, 利用 MCNP 程序计算了在 中子能量为 0.5—20 MeV 条件下, 厚度为 3—9 cm、碳化硼含量 5%—15% 的铝基碳化硼复合材料在空气、水、200—1400 ppm 硼酸溶液介质中的中子透射系数. 得到以下结论:

1) 20 MeV 的中子照射下, B_4C/Al 复合材料的透射系数随碳化硼含量的增加而减少, 在相同的碳化硼含量条件下 B_4C/Al 复合材料的透射系数在水中比在硼酸溶液中小 0.05 左右;

2) B_4C/Al 复合材料的中子透射系数随中子能量的升高而增大, B_4C/Al 复合材料在水中更能发挥其屏蔽效果, 适合屏蔽 2 MeV 以下中子, 透射系数在 0.1 以下, 2—15 MeV 的中子, 透射系数在 0.1—0.35 之间; 在硼酸溶液中的屏蔽特性与水中相似, 透射系数在 0.04—0.4 之间; 材料在空气中屏蔽特性显现出“反转”现象, 中子能量高于 5 MeV 时透射系数几乎没有变化, 均在 0.75 左右; 介质的中

子屏蔽效果是硼酸溶液 > 水 > 空气;

3) 硼酸浓度的改变对中子透射系数影响不大, 硼酸浓度最好选用 800 ppm;

4) 反应堆裂变源和稳定源 20 MeV 条件下, 中子透射系数随着 B_4C/Al 复合材料厚度的增加而显著下降; 在相同的裂变源或稳定源条件下, 相同厚度的 B_4C/Al 复合材料的中子透射系数在水介质中均比在硼酸溶液介质中小; 在裂变源条件下的 B_4C/Al 复合材料中子透射系数均比稳定源低; 水和硼酸溶液介质的屏蔽效果远不如 B_4C/Al 复合材料, 介质的中子透射系数与介质厚度呈指数下降关系, 分别近似为 $e^{-0.669x}$ 和 $e^{-0.71x}$, x 为厚度 (cm).

- [1] Tsubota M, Oikawa M 2005 *Bull. Iron Steel Inst. Japan* **10** 25
- [2] Moldoban P, Popesus G 2004 *J. Metals* **56** 59
- [3] Mohantya R M, Balasubramaniana K, Seshadri S K 2008 *Mater. Sci. Eng.* **498** 42
- [4] Du Pont J N, Robino C V, Mizia R E 2003 *J. Mater. Eng. Perform* **2** 206
- [5] Lindquist K, Kine D E, Lambert R 1994 *J. Nucl. Mater.* **217** 2223
- [6] Kenneth D 2009 *Nuclear Engineering Handbook* (New York: CBC Press) p152
- [7] Ding H D, Qian Y C, Fu S L, Sun M Y, Zhen X H 2006 *J. Acad. Arm. Force Eng.* **20** 88 (in Chinese) [丁华东, 钱耀川, 傅苏黎, 孙明友, 郑晓辉 2006 装甲兵工程学院学报 **20** 88]
- [8] Peng K W, Wu W Y, Xu J Y, Tu G F 2008 *Rare Metal Cem. Carb.* **36** 16 (in Chinese) [彭可武, 吴文远, 徐璟玉, 涂贻峰 2008 稀有金属与硬质合金 **36** 16]
- [9] Lü P, Ru H Q, Yue X L, Yu Y 2009 *Rare Metal Mater. Eng.* **38** 536 (in Chinese) [吕鹏, 茹红强, 岳新亮, 喻艳 2009 稀有金属材料与工程 **38** 536]
- [10] Zhang P, Li Y L, Wang W X, Gao Z P, Wang B D 2013 *J. Nucl. Mater.* **437** 350
- [11] Shi J M 2011 *M. S. Dissertation* (Mianyang: China Academy of Engineering physic) (in Chinese) [石建敏 2011 硕士学位论文 (绵阳: 中国工程物理研究院)]
- [12] Yin W, Liang J Q 2003 *Chin. Phys. B* **12** 599
- [13] Song Y S, Ye Y L, Ge Y C, Lü L H, Qu L S, Jiang D X, Hua H, Zhen T, Li Z H, Li X Q, Lou J L, Lu F, Fan F Y, Cao Z X, Li Q T, Xiao J 2009 *Chin. Phys. C* **33** 860
- [14] Moosakhani A, Nasrabadi M N, Timuri B 2011 *Nucl. Eng. Des.* **241** 1459
- [15] Marshall R, Richard A, Arthur H, John R 2007 *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. B* **261** 90
- [16] 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]
- [17] Kalaiselvan K, Murugan N, Parameswaran S 2011 *Mater. Des.* **32** 4004
- [18] Dai C J, Liu X Q, Liu Z L 2013 *Nucl. Tech.* **36** 17 (in Chinese) [戴春娟, 刘希琴, 刘子利 2013 核技术 **36** 17]
- [19] 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]
- [20] Zhao M Y, Yang B, Liu Y B, Zeng L 2011 *Energy Res. Manage.* **4** 23 (in Chinese) [赵梦云, 杨波, 刘义保, 曾磊 2011 能源研究与管理 **4** 23]
- [21] Mao X Y, Wang M, Zeng D C 2007 *Atom. Energy Sci. Tech.* **41** 404 (in Chinese) [毛孝勇, 王敏, 曾德承 2007 原子能科学技术 **41** 404]

Shielding property calculation of B₄C/Al composites for spent fuel transportation and storage

Dai Long-Ze[†] Liu Xi-Qin Liu Zi-Li Ding Ding

(*Institute of Material Science and Technology, Nanjing University of Aeronautics and Astronautics, Nanjing 210016, China*)

(Received 24 May 2013; revised manuscript received 6 August 2013)

Abstract

MCNP program is used to calculate the neutron transmission coefficient of 3–9 cm-thick neutron absorber material B₄C/Al composite with 5%–15% B₄C content in air, water, 200–1400 ppm (1 ppm=10⁻⁶) H₃BO₃ solution, irradiated by 0.5–20 MeV neutrons and ²³⁵U thermal neutron fission source. The results show that the transmission coefficient of B₄C/Al composite decreases with the increase of the content of B₄C and the thickness of material, but increases with the increase of neutron energy, and has little influence from the variation in H₃BO₃ solution concentration. A better shielding effect of B₄C/Al composite is displayed in water than in H₃BO₃ solution, and a “reversal” phenomenon of the shielding effect occurs in air. The neutron transmission coefficient is almost unchanged with neutron energy when neutron energy is higher than the 5–15 MeV. The neutron transmission coefficient of B₄C/Al composite irradiated under a fission source is lower than under a steady 20 MeV neutron source. Ranking the shielding performances of media, the sequence is H₃BO₃ solution > water > air, and the exponential decay relationships between neutron transmission coefficient and thickness of medium can be expressed as e^{-0.71x} and e^{-0.669x}, where x is thickness of medium in cm.

Keywords: Monte-Carlo, spent fuel apparatus, neutron absorber material, B₄C/Al

PACS: 24.10.Lx, 07.88.+y, 81.05.Mh

DOI: 10.7498/aps.62.222401

[†] Corresponding author. E-mail: daishihan1314@126.com