

文章编号: 1001-4322(2012)12-3006-05

基于蒙特卡罗方法的中子屏蔽材料设计^{*}

陈飞达, 汤晓斌, 王 鹏, 陈 达

(南京航空航天大学 材料科学与技术学院, 南京 211106)

摘 要: 基于蒙特卡罗粒子输运程序 MCNP, 设计了一种强度高、密度低、具有优异中子屏蔽性能的新型玻璃纤维/B₄C/环氧树脂复合材料, 模拟计算了镅-铍(Am-Be)中子源产生中子对该材料的透射率; 研究了该材料的中子屏蔽性能与传统屏蔽材料的差异以及不同 B₄C 质量分数对该材料的屏蔽性能影响; 根据模拟结果分析了该材料对不同能区中子(慢中子、中能中子、快中子)具有的不同屏蔽性能。研究发现: B₄C 质量分数为 10% 的该种新型玻璃纤维/B₄C/环氧树脂复合材料的中子屏蔽性能, 尤其是慢中子屏蔽性能较传统的含硼聚乙烯和 Al-B₄C 合金材料更为优异; 但随着 B₄C 质量分数的增大, 屏蔽性能提升不明显。结果验证了蒙特卡罗方法用于中子屏蔽材料优化设计的可行性。

关键词: 蒙特卡罗方法; 中子屏蔽材料; MCNP 程序; 透射率

中图分类号: X34; X946 **文献标志码:** A **doi:**10.3788/HPLPB20122412.3006

随着我国核能产业的急速发展以及核技术应用领域的逐步扩大, 核安全问题引起了普通民众和学术界的广泛关心。为保障核能产业的安全发展, 掌握自主设计、制备各种核辐射屏蔽材料, 尤其是中子屏蔽材料的能力至关重要。传统的中子屏蔽材料包括含硼混凝土、铅硼聚乙烯、含硼不锈钢、Al-B₄C 合金等^[1-4], 但都有其各自的不足, 难以满足不同领域的辐射防护要求, 主要表现为材料屏蔽性能与其他性能难以兼顾。铅硼聚乙烯等高分子基复合材料虽然具有良好的辐射屏蔽效果, 但力学性能差, 无法作为工程材料使用; 含硼不锈钢强度高、耐腐蚀性优良, 但硼在不锈钢中溶解度低, 制备高硼含量的硼钢非常困难, 因此其中子屏蔽性能有限; Al-B₄C 合金具有良好的热中子吸收性能, 同时又可以充当工程结构材料, 但存在制备工艺复杂、制造成本较高的缺点^[5-6]。利用蒙特卡罗方法对中子屏蔽材料组分进行优化设计, 能够避免屏蔽材料设计实验的盲目性, 且计算与实验值符合良好。本文利用蒙特卡罗粒子输运程序 MCNP, 设计了一种强度高、密度低、具有优异中子屏蔽性能的新型玻璃纤维/B₄C/环氧树脂复合材料, 通过对材料中子透射率的模拟计算, 对比了该材料与传统屏蔽材料的中子屏蔽性能, 讨论了该材料中子屏蔽性能随质量分数的变化规律。

1 材料与方 法

1.1 屏蔽性能计算方法

本文基于 MCNP1.5.1 版本进行模拟, 整个计算工作在 IBM 高性能并行计算平台上完成, 服务器操作系统为 Red Hat Enterprise Linux。

在中子源与探测器之间放置样品会显著改变中子辐射场^[7-8], 为了使数据具有可对比性, 模拟计算工作采用透射率表征材料的中子屏蔽性能。设放置样品前, 在只有中子源和探测器的原始中子辐射场中, 探测器的中子通量计数为 I_0 , 放置样品后的探测器中子通量计数为 I , 则定义透射率

$$T = (I/I_0) \times 100\% \quad (1)$$

材料的中子透射率越小, 其中子屏蔽性能越好。中子通量计数通过 MCNP 程序中 F4 卡与 Fm 卡配合得到。He-3 中子计数管通过(n, p)反应将中子转化为质子, 再收集质子从而实现中子计数。为尽量真实模拟 He-3 计数管计数结果, 使用 F4 卡记录进入 He-3 计数管中的中子通量, 通过 Fm 卡将 F4 卡计数结果与 103 反应道(即(n, p)反应)截面相乘, 从而获得 He-3 计数管中子通量计数。

1.2 样品材料密度与元素成分

研究包括两部分: 模拟计算 B₄C 质量分数为 10% 的玻璃纤维/B₄C/环氧树脂复合材料、硼元素质量分数为

^{*} 收稿日期: 2012-04-20; 修订日期: 2012-08-16
基金项目: 中央高校基本科研业务费专项资金项目(kfjj20110110, kfjj120121)
作者简介: 陈飞达(1987-), 男, 硕士, 从事辐射屏蔽材料研究; chenda@nuaa.edu.cn。

8%的含硼聚乙烯、 B_4C 质量分数为 30%的 $Al-B_4C$ 合金以及纯碳化硼陶瓷材料的中子透射率; 模拟计算随着 B_4C 的质量分数改变(0%, 10%, 15%, 20%, 25%), 玻璃纤维/ B_4C /环氧树脂复合材料中子屏蔽性能的变化。玻璃纤维/ B_4C /环氧树脂复合材料的元素成分根据原材料厂家提供的信息(玻璃纤维^[9]、 B_4C 粉末、环氧树脂)计算得出。忽略材料孔隙率, 估算得到材料密度。含硼聚乙烯成分根据湖南海鑫新材料公司开发的硼元素质量分数为 8%的含硼聚乙烯确定^[10]。 $Al-B_4C$ 合金成分则根据目前可获得的最大 B_4C 质量分数确定^[5]。具体材料密度与元素成分如表 1 所示。

表 1 各测试样品的材料元素组成及密度

Table 1 Shielding material element contents and density in MCNP simulation

material	atomic proportion										density /($g \cdot cm^{-3}$)
	H	C	O	^{10}B	^{11}B	Si	Al	Mg	Ce	Fe	
boron carbide	—	10	—	8	32	—	—	—	—	—	2.500 0
boracic polythene (boron mass content 8%)	4314	1674	966	65	257	—	—	—	—	—	1.120 0
$Al-B_4C$ alloy	—	9	—	7	29	—	55	—	—	—	2.653 0
GF/ B_4C /epoxy composite (B_4C mass content 0%)	3734	3537	897	9	34	930	470	400	6	19	1.630 0
GF/ B_4C /epoxy composite (B_4C mass content 10%)	4256	6862	1884	2300	9190	3673	856	1580	24	75	1.753 8
GF/ B_4C /epoxy composite (B_4C mass content 15%)	7448	15 546	4376	6886	27 522	9693	4898	4169	62	198	1.823 1
GF/ B_4C /epoxy composite (B_4C mass content 20%)	1596	4342	1246	2293	9166	3010	1521	1295	19	61	1.898 1
GF/ B_4C /epoxy composite (B_4C mass content 25%)	1064	3838	1118	2292	9161	2877	1454	1238	18	58	1.979 5

1.3 几何构造

为了能与实验结果相对比, 模拟计算的几何构造完全根据中子实验室条件确定。使用的中子源为镅-铍($Am-Be$)中子源, 活度 1.11×10^{10} Bq, 放置于边长 85 cm 的石蜡箱中, 前端置有 3 cm 铅挡板。源箱面向探测器一端有一深 13 cm、半径 5.5 cm 的开口。He-3 计数管半径 1.25 cm, 长 56 cm, 置于距源 26 cm 处, 正对源箱开口放置。计数管外层依次包裹有聚乙烯慢化层、碳化硼屏蔽层。测试样品置于源与计数管之间, 紧贴计数管, 如图 1 所示。图 2 是在 MCNP 中实现的几何建模侧视图。

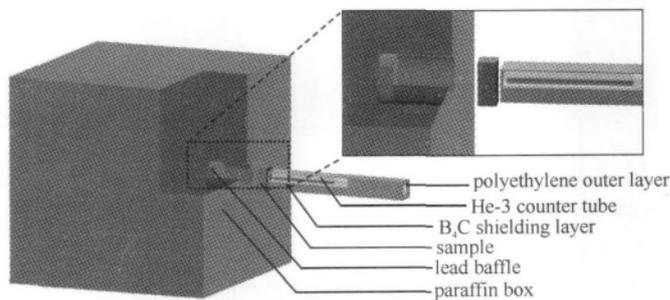


Fig. 1 Geometry of setup used in neutron shielding performance test and MCNP simulation

图 1 中子屏蔽性能测试条件几何示意

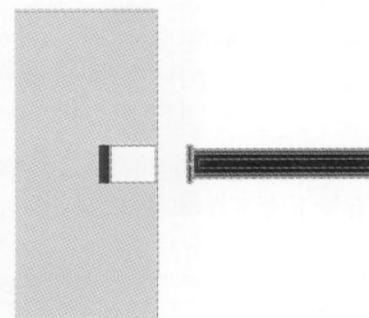


Fig. 2 MCNP model of setup used in neutron shielding performance test

图 2 中子屏蔽实验装置的 MCNP 几何建模

2 计算结果

玻璃纤维/ B_4C /环氧树脂复合材料与传统中子屏蔽材料碳化硼陶瓷、含硼聚乙烯、 $Al-B_4C$ 合金的中子屏蔽性能对比如图 3 所示。由图中可以看出, 这种新型玻璃纤维/ B_4C /环氧树脂复合材料的中子屏蔽性能与纯碳化硼陶瓷相比较弱, 但强于含硼聚乙烯与 $Al-B_4C$ 合金。1 cm 厚度的这种材料对中子的屏蔽率达到 64%, 5 cm 厚度时仅有 20% 中子能够透射。

玻璃纤维/B₄C/环氧树脂复合材料较薄(1~3 cm)时,中子透射率比含硼聚乙烯和 Al-B₄C 合金都低。随着厚度增大,中子透射率随厚度增大而降低的趋势较为平缓,从 3 cm 厚度开始,其中子透射率逐渐高于含硼聚乙烯,但中子透射率始终低于 Al-B₄C 合金。

图 4 显示了不同 B₄C 质量分数的玻璃纤维/B₄C/环氧树脂复合材料的中子透射率模拟计算结果。B₄C 质量分数为 10% 的该材料中子屏蔽性能相较 B₄C 质量分数为 0% 时得到显著提高,1 cm 厚度材料的中子透射率从 65% 降至 35%;但继续增大复合材料中 B₄C 质量分数,对其中子屏蔽性能提升效果并不明显,1 cm 厚度的 B₄C 质量分数为 10% 的玻璃纤维/B₄C/环氧树脂复合材料中子透射率为 34.69%,而 B₄C 质量分数为 25% 的玻璃纤维/B₄C/环氧树脂复合材料中子透射率则为 33.28%。另一方面,实验材料测试结果也展示了相同的趋势,材料中 B₄C 质量分数的增大可有效提升其中子屏蔽性能,但 B₄C 质量分数达到 10% 以后继续增大复合材料中 B₄C 质量分数,对其中子屏蔽性能提升有限。如图 5 所示,1 cm 厚度的 B₄C 质量分数为 10% 的玻璃纤维/B₄C/环氧树脂复合材料中子透射率为 65.37%,而 B₄C 质量分数为 25% 的玻璃纤维/B₄C/环氧树脂复合材料中子透射率则为 48.92%。

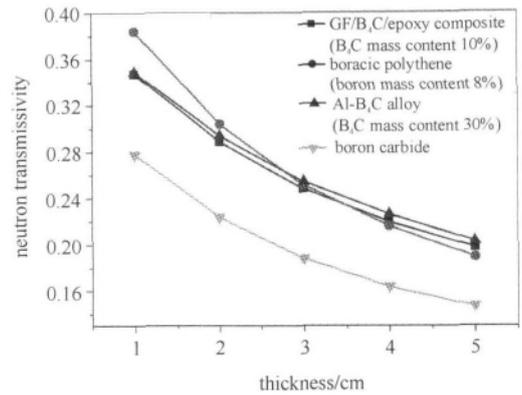


Fig. 3 Comparison of neutron transmissivity of glass fiber/B₄C/epoxy resin composite and three traditional shielding materials by MCNP simulation
图 3 玻璃纤维/B₄C/环氧树脂复合材料与 3 种传统中子屏蔽材料的中子透射率比较

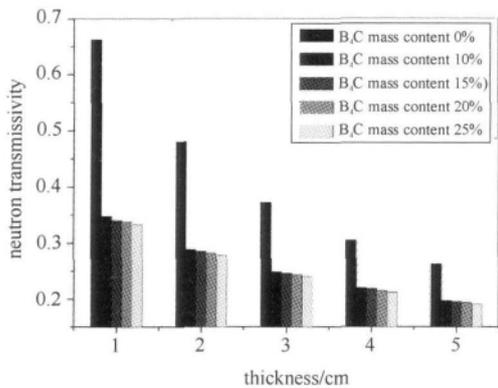


Fig. 4 Simulation result of neutron transmissivity for different B₄C contents in GF/B₄C/epoxy composite
图 4 不同 B₄C 质量分数玻纤/B₄C/环氧树脂复合材料的中子透射率模拟计算值

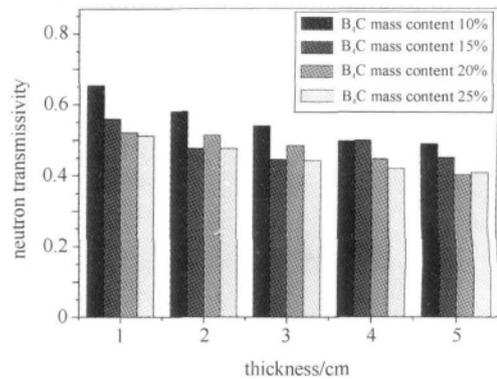


Fig. 5 Experiment result of neutron transmissivity for different B₄C contents in GF/B₄C/epoxy composite
图 5 不同 B₄C 质量分数玻纤/B₄C/环氧树脂复合材料的中子透射率实验测量值

必须指出的是,由于材料成形过程的工艺问题,制备出的样品存在空隙,造成实验测试样品的中子透射率与模拟结果相比偏高,如表 2 所示。后续可进一步改进材料成形工艺。

表 2 样品理论密度与实际密度

Table 2 Comparison between shielding material density in MCNP simulation and density of sample prepared by hot press method

material	theoretical density/(g · cm ⁻³)	actual density/(g · cm ⁻³)
GF/B ₄ C/epoxy composite (B ₄ C mass content 10%)	1.753 8	1.534
GF/B ₄ C/epoxy composite (B ₄ C mass content 15%)	1.823 1	1.553
GF/B ₄ C/epoxy composite (B ₄ C mass content 20%)	1.898 1	1.701
GF/B ₄ C/epoxy composite (B ₄ C mass content 25%)	1.979 5	1.856

3 分析与讨论

为了深入分析玻璃纤维/B₄C/环氧树脂复合材料的中子屏蔽性能,将从 Am-Be 中子源出射、并被 He-3 计数管记录到的中子,根据能量高低分成了慢中子、中能中子和快中子 3 个能区,分别模拟计算玻璃纤维/B₄C/环氧树脂复合材料以及 3 种传统中子屏蔽材料(含硼聚乙烯、Al-B₄C、碳化硼陶瓷)对于 3 种不同能区中子的屏蔽性能。其中慢中子是指能量在 1 eV 以下的中子,中能中子能量介于 1 eV 到 0.5 MeV 之间,快中子能量在

0.5~10.0 MeV 之间。

图 6 显示了 4 种材料分别对慢中子、中能中子和快中子的屏蔽性能。由图可见,对于 3 个能区的不同中子,碳化硼陶瓷的中子屏蔽性能都是最好的,而其余 3 种材料的中子屏蔽性能则随中子能量不同而变化。图 6 (a)是 4 种材料对慢中子的屏蔽性能对比。玻璃纤维/B₄C/环氧树脂复合材料的慢中子透射率始终低于 Al-B₄C 合金,从图中趋势可以预见,进一步增大样品厚度,玻璃纤维/B₄C/环氧树脂复合材料的慢中子屏蔽性能都将优于 Al-B₄C 合金。而与含硼聚乙烯相比,1~5 cm 厚度玻璃纤维/B₄C/环氧树脂复合材料屏蔽性能占优,但其透射率随厚度增大而下降的趋势较为平缓,更大厚度时其慢中子屏蔽性能不及含硼聚乙烯。

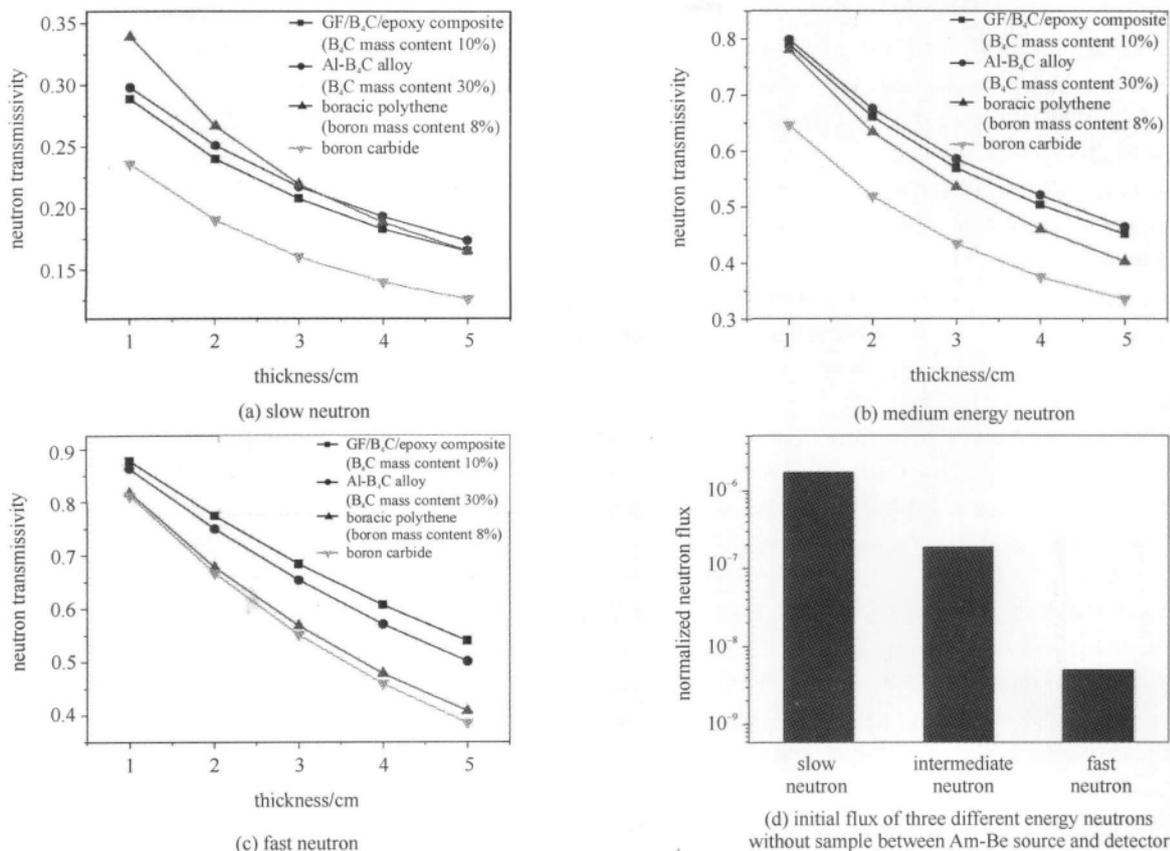


Fig. 6 Comparison of neutron shielding performance of glass fiber/B₄C/epoxy resin composite and three traditional shielding materials for different energy neutrons by MCNP simulation

图 6 4 种中子屏蔽材料对不同能量中子的屏蔽性能比较

对于中能中子,中子屏蔽性能由高到低依次是碳化硼陶瓷、含硼聚乙烯、玻璃纤维/B₄C/环氧树脂复合材料和 Al-B₄C 合金,如图 6(b)所示。当中子能量大于 0.5 MeV 后,玻璃纤维/B₄C/环氧树脂复合材料与中子反应性减弱,中子透射率高于其他 3 种屏蔽材料,如图 6(c)。由于模拟采用 Am-Be 中子源,源外包裹一层石蜡箱,故源与探测器间不放样品时,进入 He-3 计数管的中子也多为慢中子,其次是中能中子,仅有少量快中子,如图 6(d)。因此,材料较薄时,对于 Am-Be 中子源产生中子的屏蔽性能主要取决于材料的慢中子屏蔽性能;材料厚度增大到 3 cm 后,慢中子被屏蔽 70%,而中能中子仅被屏蔽 40%,此时材料的总体中子屏蔽性能由慢中子屏蔽性能与中能中子屏蔽性能共同决定,这导致了含硼聚乙烯的总体中子透射率从 3 cm 厚度开始,逐渐低于玻璃纤维/B₄C/环氧树脂复合材料。

综上所述发现,玻璃纤维/B₄C/环氧树脂复合材料对于慢中子吸收效果明显优于含硼聚乙烯和 Al-B₄C 合金,仅次于碳化硼陶瓷,且对中能中子也有较好吸收效果。此外,玻璃纤维/B₄C/环氧树脂复合材料对快中子慢化作用低下,在吸收慢中子同时不会显著造成快中子慢化。因此,这种新型玻璃纤维/B₄C/环氧树脂复合材料非常适合用于制作乏燃料贮存容器内的格架^[10],不仅具有优异的热中子吸收性能,同时对快中子慢化作用不明显,不会额外引入热中子,从而大大降低了乏燃料贮存过程中重新达到临界的概率。

4 结 论

本文利用蒙特卡罗粒子输运程序 MCNP, 结合实验数据, 研究了一种新型玻璃纤维/ B_4C /环氧树脂复合材料中子屏蔽性能与传统屏蔽材料的差异以及不同 B_4C 质量分数对该材料的屏蔽性能影响。研究发现, B_4C 质量分数为 10% 的该种新型玻璃纤维/ B_4C /环氧树脂复合材料的中子屏蔽性能, 尤其是慢中子屏蔽性能较传统的含硼聚乙烯和 Al- B_4C 合金更为优异; 随着 B_4C 质量分数的增大, 该复合材料屏蔽性能提升不明显。综合考虑该材料的中子屏蔽性能、承受载荷以及耐高温特性, 其在乏燃料贮存格架用途上具有较大应用潜力^[11]。

参考文献:

- [1] Courtney H, Eric B, Nolan H, et al. Polyethylene/boron composites for radiation shielding applications[J]. *Space Technology and Applications International Forum*, 2008, **969**(1): 484-491.
- [2] Courtney H, Sean W, Craig B, et al. Polyethylene/boron nitride composites for space radiation shielding[J]. *Journal of Applied Polymer Science*, 2008, **109**(4): 2529-2538.
- [3] 吕继新, 陈建廷. 高效能屏蔽材料铅硼聚乙烯[J]. 核动力工程, 1994, **15**(4): 370-374. (Lü Jixin, Chen Jianing. High effective shielding material lead-boron polyethylene. *Nuclear Power Engineering*, 1994, **15**(4): 370-374)
- [4] 魏强林, 杨波, 王毅, 等. 含硼钢对慢中子衰减性能的蒙特卡罗模拟[J]. 核技术, 2010, **33**(5): 367-369. (Wei Qianglin, Yang Bo, Wang Yi, et al. M-C simulation of slow neutron attenuation in boron-containing stainless steel. *Nuclear Techniques*, 2010, **33**(5): 367-369)
- [5] 李刚, 简敏, 王美玲, 等. 反应堆乏燃料贮存中子吸收材料的研究进展[J]. 材料导报, 2011, **25**(13): 110-113. (Li Gang, Jian Min, Wang Meiling, et al. Research progress in neutron absorbers materials for reactor spent fuel storage and transportation applications. *Materials Review*, 2011, **25**(13): 110-113)
- [6] 王希军, 马南钢, 丁华东. 铝在 B_4C 陶瓷上的润湿性[J]. 机械工程材料, 2008, **32**(5): 15-19. (Wang Xijun, Ma Nangang, Ding Huadong, et al. Wettability of Al on B_4C substrate. *Materials for Mechanical Engineering*, 2008, **32**(5): 15-19)
- [7] 李哲夫, 薛向欣. 含硼矿物及环氧树脂复合材料的中子屏蔽性能[J]. 原子能科学技术, 2011, **45**(2): 223-229. (Li Zhefu, Xue Xiangxin. Neutron shielding properties of boron-containing ore and epoxy composites. *Atomic Energy Science and Technology*, 2011, **45**(2): 223-229)
- [8] El-Sayed Abdo A, El-Sarraf M A, Gaber F A. Utilization of ilmenite/epoxy composite for neutrons and gamma rays attenuation[J]. *Annals of Nuclear Energy*, 2003, **30**(2): 175-187.
- [9] 陈汉仪, 施玉棠, 祖群, 等. 高强度玻璃纤维成分: 中国, CN 1113893A[P]. 1995-12-27. (Chen Hanyi, Shi Yutang, Zu Qun, et al. High strength glass fiber composition: China, CN 1113893A. 1995-12-27)
- [10] 林志凯, 刘要明, 肖伯文, 等. 防中子 8% 含硼聚乙烯板与生产工艺: 中国, CN 102127255 A[P]. 2011-07-20. (Lin Zhikai, Liu Yaoming, Xiao Bowen, et al. 8% boron polyphene neutron shielding board and its production process: China, CN 102127255 A. 2011-07-20)
- [11] 姜圣阶. 动力堆核燃料后处理厂设计[M]. 北京: 中国原子能出版社, 1996. (Jiang Shengjie. Design of nuclear power plant fuel reprocessing. Beijing: Atomic Energy Press, 1996)

Neutron shielding material design based on Monte Carlo simulation

Chen Feida, Tang Xiaobin, Wang Peng, Chen Da

(College of Material Science and Technology, Nanjing University
of Aeronautics and Astronautics, Nanjing 211106, China)

Abstract: Based on the Monte Carlo particle transport program MCNP, a novel glass fiber/ B_4C /epoxy resin composite for neutron shielding with high strength and low density was developed. Its neutron transmissivity was calculated under the Am-Be neutron source condition to study the difference of neutron shielding performance between the glass fiber/ B_4C /epoxy resin composite and traditional shielding materials. Furthermore, effects of B_4C mass fraction of the composite on the shielding performance for neutrons with different energy (slow neutron, intermediate neutron, fast neutron) were analyzed. The results show the composites with 10% B_4C mass contents have more advantages on the neutron shielding performance, especially the slow neutron shielding performance in comparison with polyethylene/boron containing composites and Al- B_4C alloy. With the further increasing of the B_4C contents, no remarkable increase is observed. Monte Carlo method is demonstrated feasible in optimization design of neutron shielding materials and the results provide a theoretical basis for design and preparation of a new neutron shielding composite.

Key words: Monte Carlo method; neutron shielding material; MCNP code; transmissivity