

硼砂对中子屏蔽性能的蒙特卡罗模拟

左应红, 谢红刚, 朱金辉

(西北核技术研究所, 西安 710024)

摘要: 为系统研究硼砂的中子屏蔽性能,建立了硼砂屏蔽中子的物理模型,采用蒙特卡罗方法,计算得到了硼砂厚度、含结晶水数目、密度及中子能量对中子透射因数的影响规律。结果表明,与同等厚度的聚乙烯相比:对慢中子、中能中子及1 MeV以下快中子的屏蔽性能,硼砂明显更优;对1 MeV以上中子的屏蔽性能,硼砂与聚乙烯相差不大。对能量为千电子伏和兆电子伏的中子,硼砂中含有的结晶水数量越多,对中子的屏蔽效果越好。硼砂的中子透射因数随压实密度增大呈指数规律下降。硼砂屏蔽后的裂变中子能谱更硬。

关键词: 硼砂; 中子屏蔽; 蒙特卡罗模拟; 透射因数

中图分类号: O571.33 **文献标志码:** A **DOI:** 10.12061/j.issn.2095-6223.2017.020701

Monte Carlo Simulation of Neutron Shielding Performances of Borax

ZUO Ying-hong, XIE Hong-gang, ZHU Jin-hui

(Northwest Institute of Nuclear Technology, Xi'an 710024, China)

Abstract: To investigate the neutron shielding performance of borax systematically, this paper presents the physical model of neutron shielding by borax. The influences of thickness, amount of crystal water, density of material, and neutron energy on neutron shielding performance of borax are simulated by using Monte Carlo method. The simulation results show that, at a certain thickness, for slow neutron, intermediate energy neutron, and fast neutron with energy less than 1 MeV, the transmission factor of borax is smaller than that of polyethylene, while for neutron with energy higher than 1 MeV, the transmission factor of borax is close to that of polyethylene. At a certain thickness, for neutron energy of keV or MeV, the higher the amount of crystal water in borax is, the better the neutron shielding performance is. The neutron transmission factor of borax descends exponentially with the increase of compacted density, and the fission neutron spectrum shielded by borax is harder than the spectrum shielded by polyethylene.

Keywords: borax; neutron shielding; Monte Carlo simulation; transmission factor

辐射屏蔽与防护是核技术领域的一个重要课题。屏蔽中子时,通常先使能量较高的快中子与物质发生弹性或非弹性散射,减速慢化为中能中子和慢中子,再用中子吸收截面大的物质吸收被减速慢化后的中

子^[1-4]。减速慢化过程可用富氢或低原子序数材料,吸收过程则可用含锂或硼的材料。常用的中子屏蔽材料有聚乙烯(PE)^[5]、含硼聚乙烯^[6-7]及氢化锂(LiH)^[8]等;还有一些正在研究的复合材料,如铝基碳

收稿日期: 2016-11-08; 修回日期: 2017-03-13

作者简介: 左应红(1987-),男,云南曲靖人,助理研究员,博士,主要从事电离辐射防护技术研究。

E-mail: zuoyinghong@nint.ac.cn

化硼 (B_4C/Al)^[9-10]、硼氢化锆 ($Zr(BH_4)_4$)^[11] 及含硼金属^[12]等。这些材料中含有氢或硼,对 neutron 有良好的屏蔽效果。但聚乙烯的熔点低,耐热性差,受热易分解产生非冷凝的有机气体,不适合在温度较高的环境中使用;复合材料和氢化锂的价格昂贵,不利于大量使用。

硼砂(又称十水硼砂)是一种相对廉价的含硼物质,既含有对 neutron 吸收截面大的 B 元素,又含有对 neutron 有慢化作用的 H 元素,且熔点和沸点均高于聚乙烯,因而可作为对非冷凝气体有限制的环境中大量使用的 neutron 屏蔽材料。本文采用蒙特卡罗方法,模拟研究中子能量、硼砂厚度、结晶水数目、密度等对 neutron 透射因数的影响,为工程实践中应用硼砂作 neutron 屏蔽材料提供理论参考。

1 模型及方法

建立的物理模型,如图 1 所示。利用 MCNP 程序开展模拟计算时,设单束 neutron 垂直圆饼状的屏蔽体入射,源距屏蔽体 10 cm,屏蔽体厚度为 d ,半径 R 为厚度的 2 倍。计算模型处于真空中,以排除空气对模拟结果的影响。

屏蔽材料的 neutron 透射因数用 τ 表示,它等于穿出屏蔽体后端面的 neutron 数目 N_1 与无屏蔽体存在时屏蔽体后端面位置处的 neutron 数 N_0 之比,即

$$\tau = N_1 / N_0 \quad (1)$$

考虑到对 neutron 与屏蔽体相互作用产生的次级 γ 射线的屏蔽较为容易,因此,本文不讨论次级 γ 的屏蔽问题。

硼砂中含有一定比例的 ^{10}B 和 ^{11}B ,其中, ^{10}B 对慢中子的吸收效果明显优于 ^{11}B 。

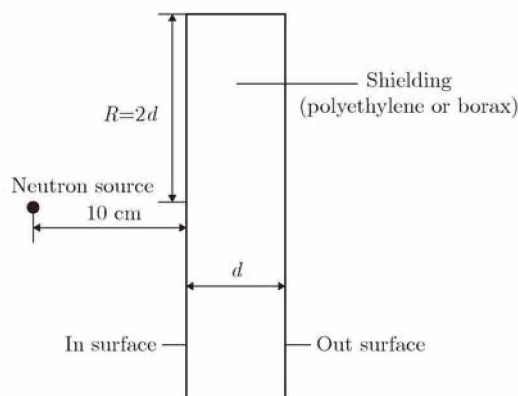


图 1 物理模型示意图

Fig. 1 Schematic of physical model

在模拟中,按天然硼的同位素丰度比设置硼砂中 ^{10}B 和 ^{11}B 的比例^[13],即硼砂中 ^{10}B 和 ^{11}B 的原子个数比为 1 : 4。屏蔽材料中其他元素组成则按丰度最大的同位素计算,即聚乙烯中的 1H 和 ^{12}C 的原子个数比为 2 : 1,硼砂中的 ^{16}O 和 ^{23}Na 的原子个数比为 17 : 2。聚乙烯、硼砂和无水硼砂的主要物性参数如表 1 所列。

不同能量 neutron 与屏蔽体中核素的相互作用截面不尽相同^[14],根据裂变 neutron 的能量分布,选取慢 neutron ($0 \sim 1$ keV)、中能 neutron (1 keV ~ 0.5 MeV)、快 neutron ($0.5 \sim 10$ MeV) 和特快 neutron (>10 MeV) 4 个能量范围内的典型能量 neutron 进行蒙特卡罗模拟计算。

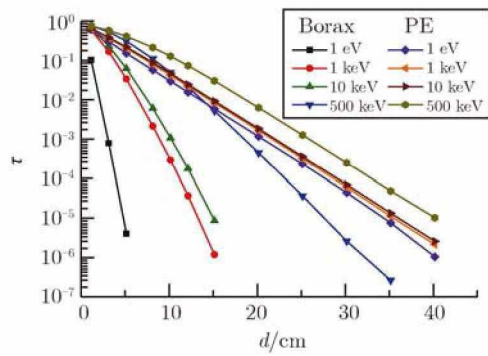
2 结果与讨论

2.1 硼砂对不同能量中子的透射因数

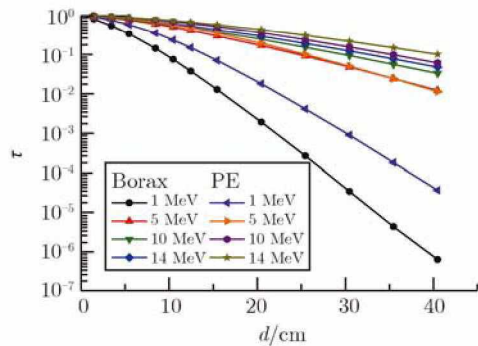
计算得到聚乙烯和硼砂对不同能量 neutron 的透射因数随厚度的变化关系,如图 2 所示。

表 1 聚乙烯、硼砂和无水硼砂的物性参数
Tab. 1 Physical property parameters of polyethylene and borax

Shielding material	Molecular formula	Density/ ($g \cdot cm^{-3}$)	Melting point/ $^{\circ}C$	Boiling point/ $^{\circ}C$	Number density of hydrogen atom/ cm^{-3}
Polyethylene	$[-C_2H_4-]_n$	0.93	130	300	8.30×10^{22}
Borax	$Na_2B_4O_7 \cdot 10H_2O$	1.73	740	1 575	2.21×10^{21}
Sodium tetraborate	$Na_2B_4O_7$	2.70	740	1 575	0



(a) Slow neutron and intermediate energy neutron



(b) Fast neutron

图2 硼砂与聚乙烯的中子透射因数随厚度的变化

Fig. 2 Neutron transmission factor of borax and Polyethylene vs. thickness

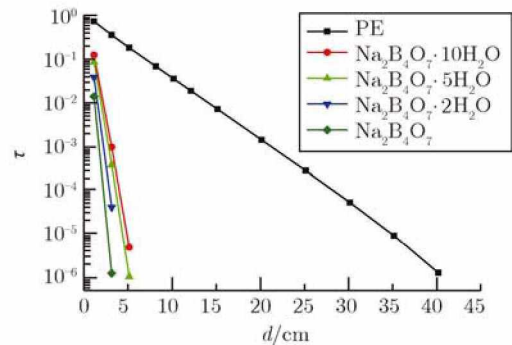
由图2可见,硼砂和聚乙烯的中子透射因数均随其厚度的增加近似呈现指数规律下降,即屏蔽材料越厚,对中子的屏蔽效果越好。对于慢中子、中能中子以及1 MeV以下的快中子,同等屏蔽厚度,硼砂的中子透射因数明显小于聚乙烯的中子透射因数。比如,当厚度大于20 cm,且中子能量小于1 MeV时,同等厚度的硼砂和聚乙烯相比,硼砂的中子透射因数不足聚乙烯的中子透射因数的1/10;对于10 MeV中子,同等厚度的硼砂和聚乙烯,硼砂的中子透射因数比聚乙烯的中子透射因数略小。由此可见,在慢中子、中能中子及能量较低的快中子区,硼砂的中子屏蔽性能明显优于聚乙烯;但在快中子区,硼砂的中子屏蔽性能与聚乙烯相差不大。

2.2 结晶水数量对屏蔽性能的影响

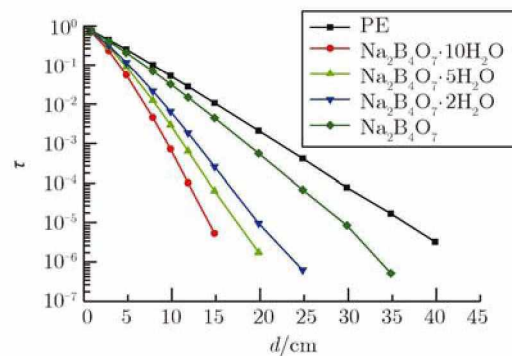
硼砂分子中含有结晶水,水中的 ^1H 元素对中子具有较好的慢化效果。将硼砂作为屏蔽材料使用时,由于环境的干湿条件不同,硼砂可能会部分或全部失去结晶水,因此,还需分析结晶水数量对中子屏蔽性能的影响。硼砂被加热至60℃时,失去8个结

晶水,得到二水硼砂($\text{Na}_2\text{B}_4\text{O}_7 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$),密度为 $2.2 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$;加热至320~400℃时,失去全部结晶水,得到无水硼砂($\text{Na}_2\text{B}_4\text{O}_7$),密度为 $2.7 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$;硼砂的另一种存在形态为五水硼砂($\text{Na}_2\text{B}_4\text{O}_7 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$),密度为 $1.82 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$ [15-17]。

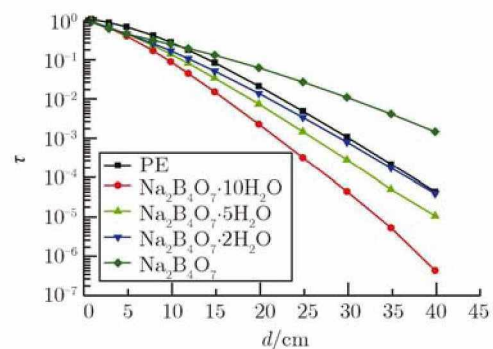
计算得到十水硼砂、五水硼砂、二水硼砂及无水硼砂对1 eV、5 keV、1 MeV和10 MeV中子的透射因数,如图3所示。由图3(a)可见,对1 eV的慢中子,同等厚度条件下,材料中含结晶水越少,屏蔽效果越好,因为结晶水含量越少,则 ^{10}B 的相对含量越高,所以吸收慢中子的效果越好。但对于能量为千电子伏和兆电子伏的中子,同等厚度条件下,材料中含结晶水越多,屏蔽效果越好,这是因为水中 ^1H 对中子的慢化作用提升了材料的屏蔽性能。



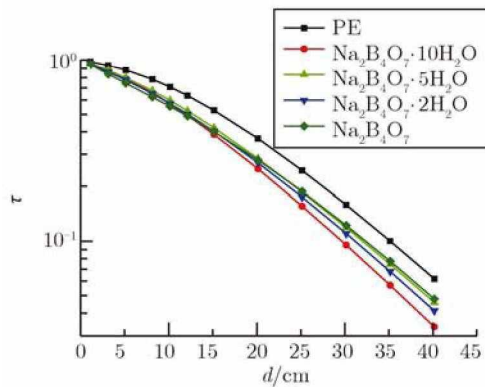
(a) 1 eV



(b) 5 keV



(c) 1 MeV



(d) 10 MeV

图 3 结晶水数量对 neutron 透射因数的影响

Fig. 3 Influence of number of crystal water in borax on neutron transmission factor

图 3 中的 4 种单能中子,除 1 MeV 中子外,同等厚度条件下,无水硼砂的中子透射因数均小于聚乙烯的中子透射因数,对此,可用表 2 给出的中子与不同核素相互作用的总截面和吸收截面数据进行分析。由表 2 可见^[14],¹⁰B 对 1 MeV 中子的吸收截面为 0,且 ¹H 的中子总截面比 ¹⁰B 和 ²³Na 的大,故无水硼砂对 1 MeV 中子的吸收效果不如聚乙烯,即无水硼砂对 1 MeV 中子透射因数高于聚乙烯;对 10 MeV 中子,虽 ¹⁰B 的吸收截面为 0,但 ²³Na 的中子吸收截面为 1.76×10^{-4} b,对中子有较强的吸收效果,且 ¹H 和 ¹²C 的中子总截面小于 ¹⁰B、¹⁶O 和 ²³Na 的中子总截面,故无水硼砂的 10 MeV 中子透射因数低于聚乙烯。

2.3 密度对 neutron 屏蔽性能的影响

硼砂为颗粒状晶体,上述计算采用了晶体状态硼砂的密度。为便于工程应用,有时需将硼砂压实制成砖块状态的硼砂砖,故还需研究压实后密度对屏蔽性能的影响。以硼砂和无水硼砂为例,当压实密度与晶体密度之比 ρ_r 为 0.5~1.0,厚度为 20 cm 时,计算其对 5 keV 和 1 MeV 中子的透射因数,如图 4 所示。

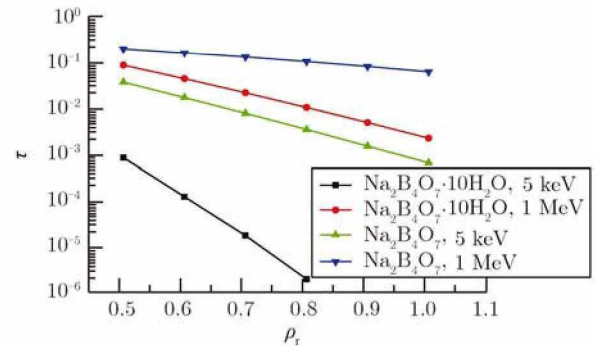


图 4 硼砂及无水硼砂压实后的 neutron 透射因数

Fig. 4 Neutron transmission factor of compacted borax and sodium tetraborate

由图 4 可见,无论是硼砂,还是无水硼砂,因硼砂砖的密度小于晶体状态硼砂的密度,所以硼砂砖的中子透射因数大于晶体状态硼砂的中子透射因数,且透射因数随压实密度的增大呈指数规律下降。

2.4 对裂变中子的屏蔽性能

计算得到的硼砂、无水硼砂、 $\rho_r = 0.6$ 的无水硼砂砖及聚乙烯对能量服从 Maxwell 分布的裂变中子(平均能量为 2.12 MeV)^[18]的透射因数随厚度的变化关系,如图 5 所示。由图 5 可见,对于裂变中子,同等厚度条件下,硼砂屏蔽效果最好,聚乙烯次之,无水硼砂砖最差。

图 6 是模拟得到的裂变中子经硼砂或聚乙烯屏蔽后的透射中子能谱。由图 6 可见,与原裂变中子谱相比,两种材料屏蔽后的裂变中子谱中,高能中子所占份额明显下降,表明高能中子已被屏蔽体减速慢化,且屏蔽体越厚,减速慢化效果越好。对比材料的透射中子能谱可看出,与聚乙烯相比,经硼砂屏蔽后的裂变中子谱中,能量小于 10 eV 的慢中子所占比例较小,表明硼砂吸收了大量的慢中子;透过硼砂屏蔽体的中子内还存有一定量的高能中子,说明经硼砂屏蔽后的裂变中子能谱较硬。

表 2 中子与不同核素相互作用的总截面和吸收截面

Tab. 2 Total cross section and absorb cross section for neutron interacting with different nuclides

Neutron energy/ MeV	Absorb cross section/b					Total cross section/b				
	¹ H	¹² C	¹⁰ B	¹⁶ O	²³ Na	¹ H	¹² C	¹⁰ B	¹⁶ O	²³ Na
1×10^{-5}	5.29×10^{-2}	5.41×10^{-4}	7.91×10^{-2}	3.02×10^{-6}	8.40×10^{-2}	20.8	4.74	613	3.85	3.28
5×10^{-3}	7.37×10^{-4}	9.94×10^{-6}	1.11×10^{-3}	4.27×10^{-7}	1.95×10^{-3}	19.8	4.72	10.5	3.84	9.75
1	3.44×10^{-5}	1.28×10^{-6}	0	3.02×10^{-8}	2.30×10^{-4}	4.26	2.58	2.63	8.15	3.17
10	3.26×10^{-5}	8.89×10^{-5}	0	9.56×10^{-9}	1.76×10^{-4}	0.94	1.17	1.47	1.31	1.63

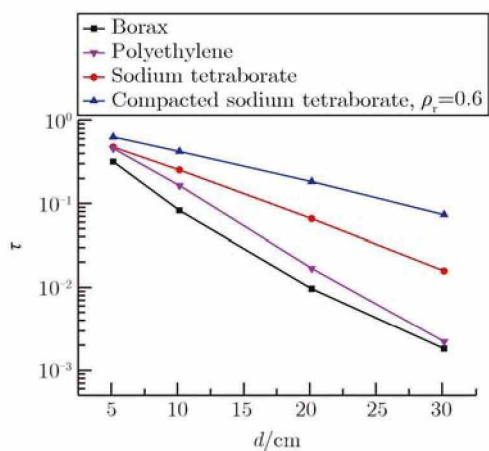
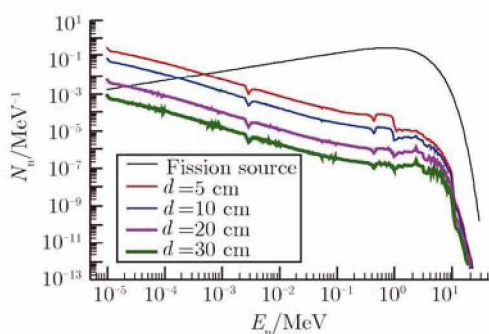
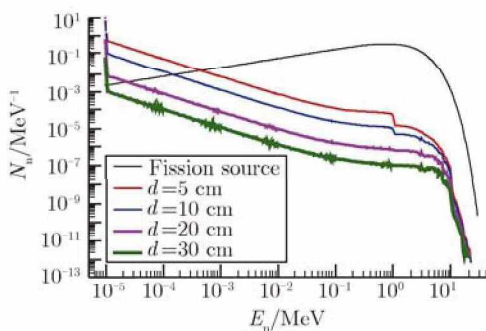


图5 硼砂和聚乙烯的裂变中子透射因数随厚度的变化

Fig. 5 Fission neutron transmission factor of borax and polyethylene vs. thickness



(a) Borax



(b) Polyethylene

图6 硼砂和聚乙烯的裂变中子透射能谱

Fig. 6 Transmission energy spectra of fission neutron by borax and polyethylene

2.5 硼砂与铁的组合屏蔽效果

在中子屏蔽实践中,通常先将中子减速慢化,再俘获吸收,因而,采用组合屏蔽结构更为合理,如采用聚乙烯与铁、铅组成的屏蔽体对中子进行屏蔽,铁、铅还能屏蔽中子产生的次级 γ 射线。为分析硼

砂与铁等重金属构成组合屏蔽体的效果,以文献[19]中给出的 Am-Be 中子源作为待屏蔽射线源,计算比较了3种组合屏蔽体的中子透射因数,如表3所列。

表3 组合屏蔽体的中子透射因数

Tab. 3 Transmission factor of combination shielding

Shielding materials	Transmission factor
10 cm Fe+20 cm Borax+10 cm Fe	1.13×10^{-2}
10 cm Fe+25 cm Borax+10 cm Fe	5.75×10^{-3}
10 cm Fe+20 cm PE+10 cm Fe	9.22×10^{-3}

计算中,射线源能谱的中子能量范围为0~11 MeV,平均能量为4.5 MeV,包括了热中子、慢中子及快中子。基准组合屏蔽体为10 cm Fe+20 cm PE+10 cm Fe,该组合屏蔽体的中子透射因数为 9.22×10^{-3} ,将其中的20 cm 聚乙烯替换为同等厚度硼砂后,透射因数有所增大,但将20 cm 聚乙烯替换为25 cm 硼砂后,组合屏蔽体的中子透射因数小于基准组合屏蔽体的中子透射因数。由此可见,将铁-聚乙烯组合屏蔽体中的聚乙烯替换为硼砂,且适当增加硼砂的厚度,也能达到与聚乙烯组合屏蔽体一样的屏蔽效果。

3 结论

硼砂对不同能量中子的屏蔽性能不同:硼砂中的 ^{10}B 对慢中子、中能中子及1 MeV以下能量的快中子具有较大的吸收截面,所以硼砂对这些能量中子的屏蔽性能明显优于聚乙烯;对能量较高的快中子,硼砂的屏蔽效果和聚乙烯相差不大。结晶水中的 ^1H 与中子的相互作用总截面较大,对中子起到慢化作用,有利于提高屏蔽性能,所以在同等厚度条件下,对能量为千电子伏和兆电子伏的中子,屏蔽材料中含结晶水数量越多,中子屏蔽性能越好。无水硼砂对1 eV慢中子的屏蔽效果好于十水硼砂。实际应用中,硼砂砖的密度小于晶体状态硼砂的密度,硼砂砖的中子透射因数随压实密度的增大呈指数规律下降,所以在工程实践中应尽量压实压紧硼砂,以获得较好的中子屏蔽效果。对平均能量为2.12 MeV的裂变中子,同等厚度条件下,硼砂的屏蔽效果最好,聚乙烯次之,无水硼砂砖最差。将铁-聚乙烯组合屏蔽体中的聚乙烯替换为适当加厚的硼砂,也能达到和聚乙烯-铁组合屏蔽体相当的屏蔽效果。

参考文献

- [1] 黄兴, 贺国珠, 程晶晶, 等. (n, γ) 反应实验研究中的中子屏蔽设计[J]. 原子核物理评论, 2015, 32(2): 208 - 211. (HUANG Xing, HE Guo-zhu, CHENG Pin-jing, et al. Neutron shielding design for experiment research of (n, γ) reaction[J]. Nuclear Physics Review, 2015, 32(2): 208 - 211.)
- [2] 柴浩, 汤晓斌, 陈飞达, 等. 新型柔性中子屏蔽复合材料研制及性能研究[J]. 原子能科学技术, 2014, 48(增刊): 839 - 844. (CHAI Hao, TANG Xiao-bin, CHEN Fei-da, et al. Preparation and performance of new type flexible neutron shielding composite [J]. Atomic Energy Science and Technology, 48(Suppl.): 839 - 844.)
- [3] OSMAN A M, EL-SARRAF M A, ABDEL-MONEM A M, et al. Studying the shielding properties of lead glass composites using neutrons and gamma rays[J]. Annals of Nuclear Energy, 2015, 78: 146 - 151.
- [4] SINGH V P, BADIGER N M. Gamma ray and neutron shielding properties of some alloy materials[J]. Annals of Nuclear Energy, 2014, 64(9): 301 - 310.
- [5] 李文茜, 李红, 谢锋, 等. 高温堆乏燃料贮罐中子屏蔽性能计算[J]. 强激光与粒子束, 2013, 25(1): 227 - 232. (LI Wen-qian, LI Hong, XIE Feng, et al. Neutron shielding effects of spent fuel tank of high temperature reactor [J]. High Power Laser and Particle Beams, 2013, 25(1): 227 - 232.)
- [6] 刘艳辉, 智业, 左继成, 等. 硼酸盐晶须增强聚乙烯复合材料及其热中子屏蔽性能研究[J]. 原子能科学技术, 2015, 49(2): 349 - 353. (LIU Yan-hui, ZHI Ye, ZUO Ji-cheng, et al. Research on enhance of polyethylene composite and its thermal neutron shielding performance by borate whisker[J]. Atomic Energy Science and Technology, 2015, 49(2): 349 - 353.)
- [7] 陈飞达, 汤晓斌, 王鹏, 等. 基于蒙特卡罗方法的中子屏蔽材料设计[J]. 强激光与粒子束, 2012, 24(12): 3 006 - 3 010. (CHEN Fei-da, TANG Xiao-bin, WANG Peng, et al. Neutron shielding material design based on Monte Carlo simulation[J]. High Power Laser and Particle Beams, 24(12): 3 006 - 3 010.)
- [8] 张宏俊, 任忠国, 熊忠华, 等. LiH 中子屏蔽性能蒙特卡罗模拟[C]//中国核学会学术年会, 北京, 2013. (ZHANG Hong-jun, REN Zhong-guo, XIONG Zhong-hua, et al. The simulation of neutron shield performance of LiH[C] // Annual Conference of China Nuclear Society, Beijing, 2013.)
- [9] 戴春娟, 刘希琴, 刘子利, 等. 铝基碳化硼材料中子屏蔽性能的蒙特卡罗模拟[J]. 物理学报, 2013, 62(15): 152801. (DAI Chun-juan, LIU Xi-qin, LIU Zi-li, et al. The Monte Carlo simulation of neutron shielding performance of boron carbide reinforced with aluminum composites[J]. Acta Phys Sin, 2013, 62(15): 152801.)
- [10] 戴龙泽, 刘希琴, 刘子利, 等. 乏燃料贮运用铝基碳化硼复合材料的屏蔽性能计算[J]. 物理学报, 2013, 62(22): 222401. (DAI Long-ze, LIU Xi-qin, LIU Zi-li, et al. Shielding property calculation of B₄C/Al composites for spent fuel transportation and storage[J]. Acta Physica Sinica, 2013, 62(22): 222401.)
- [11] HAYASHI T, TOBITA K, NAKAMORI Y, et al. Advanced neutron shielding material using zirconium borohydride and zirconium hydride[J]. Journal of Nuclear Materials, 2009, 386: 119 - 121.
- [12] SEROOMBE T B. Sintering of free formed maraging steel with boron additions[J]. Materials Science and Engineering A, 2003, 363(1): 242 - 252.
- [13] 杨福家. 原子物理学[M]. 4 版. 北京: 高等教育出版社, 2008. (YANG Fu-jia. Atomic Physics[M]. 4th ed. Beijing: Higher Education Press, 2008.)
- [14] 田东风, 孙伟力. 中子核反应激发函数[M]. 北京: 国防工业出版社, 2006. (TIAN Dong-feng, SUN Wei-li. Excitation Functions in Neutron-Induced Reactions[M]. Beijing: National Defense Industry Press, 2006.)
- [15] CAS: 1303-96-4 | 硼砂 [OL]. <http://www.ichemistry.cn/chemistry/1303-96-4.htm>.
- [16] CAS: 1330-43-4 | 四硼酸钠 (无水) [OL]. <http://www.ichemistry.cn/chemistry/1330-43-4.htm>.
- [17] CAS: 12179-04-3 | 四硼酸钠 (五水) [OL]. <http://www.ichemistry.cn/chemistry/12179-04-3.htm>.
- [18] CHEN Y J, JIA M, TAO X, et al. Calculation of prompt fission neutron spectra for $^{235}\text{U}(n, f)$ [J]. Chinese Physics C, 2012, 36(4): 322 - 328.
- [19] KLUGE H, WEISE K. The neutron energy spectrum of an $^{241}\text{Am-Be}$ (α, n) source and resulting mean fluence to dose equivalent conversion factors [J]. Radiat Prot Dosimetry, 1982, 2(2): 85 - 93.