

文章编号: 1007-4627(2019)04-0462-09

## B<sub>4</sub>C-Al 材料中子吸收性能检测技术研究

苏晓斌, 侯龙, 王琦, 杨毅, 刘世龙

(中国原子能科学研究院核数据重点实验室, 北京 102413)

**摘要:** 核电厂反应堆乏燃料水池的安全性是核电厂十分重要的安全性问题。其中, 中子吸收材料的性能关系到乏燃料水池的安全性。在乏燃料水池中放入同种中子吸收材料的挂片, 通过定期检查挂片的性能可以对乏燃料水池中子吸收材料的可靠性进行评估。我们开展的 B<sub>4</sub>C-Al 合金挂片检测设备的研制工作, 有望在评估核电厂反应堆乏燃料水池的安全性方面发挥重要作用。该套检测设备首先通过采用面密度已知的标准板制定标准曲线, 再以此为标准, 根据中子透射率检测挂片的面密度, 从而反映出乏燃料水池贮存格架材料的中子吸收能力, 为反应堆乏燃料水池的安全性检测提供了技术手段。该设备是国内首台硼铝合金挂片检测设备, 该设备的研制为以后开展国产含硼中子吸收材料的无损检测研究奠定了实验基础。

**关键词:** B<sub>4</sub>C-Al 合金; <sup>10</sup>B 面密度; 无损检测

**中图分类号:** TL816.3      **文献标志码:** A      **DOI:** 10.11804/NuclPhysRev.36.04.462

### 1 引言

#### 1.1 研究背景

核燃料在核反应堆内使用达到计划的卸料比燃耗后, 自反应堆内卸出的核燃料称为“乏燃料”。核燃料在反应堆内发生各种核反应后, 产物大多具有极强的  $\alpha$ 、 $\beta$  和  $\gamma$  放射性, 并伴随有大量的中子产生。因此, 乏燃料卸出后必须存放一段时间, 以使短半衰期的放射性核素绝大部分衰变掉, 使其冷却<sup>[1]</sup>。乏燃料的贮存方法分为干法和湿法, 干法贮存是将乏燃料贮存在由中子吸收材料制作的容器罐中, 湿法贮存是将乏燃料贮存在配有中子吸收材料格架的水池中。目前绝大部分乏燃料储存方式采用湿法贮存<sup>[2]</sup>。

为了保证乏燃料水池的临界安全性, 中子吸收能力强的材料一般被用作乏燃料贮存格架。因为硼在自然界含量丰富, <sup>10</sup>B 的热中子吸收截面可达 3837 b。B<sub>4</sub>C 材料因其优良的中子吸收性能受到广泛关注<sup>[3]</sup>。B<sub>4</sub>C-Al 是很好的新型材料, 可广泛用于核辐射屏蔽领域。目前该材料常用于乏燃料湿法贮存的格架, 既降低了水池建造成本, 又可以提高了贮存密度, 确保维持乏燃料贮存水池的次临界状态。

#### 1.2 含硼中子吸收材料的检测方法

B<sub>4</sub>C-Al 中硼含量的多少直接影响着中子吸收率, 这关系着乏燃料密集贮存时的临界安全问题, 所以检验 B<sub>4</sub>C-Al 的硼含量是否达标是保证乏燃料密集贮存安

全的关键步骤。为了监测乏燃料水池中乏燃料贮存格架的临界安全性, 将与格架同种中子吸收材料的 B<sub>4</sub>C-Al 复合材料制成挂片依次挂在乏燃料水池的特定位置。通过定期检查挂片的中子吸收性, 可以实现对乏燃料贮存格架临界安全的监测。这种方法简便、安全、可行性高, 将在评估核电厂反应堆乏燃料水池的安全性方面发挥重要作用。

对硼含量检测的方法主要有化学分析法、光谱分析法和热中子照相法<sup>[3]</sup>。化学分析法和光谱分析法都属于有损检测, 热中子照相技术根据热中子通过含硼材料时其注量的衰减来检测含硼材料中硼含量的多少, 属于无损检测, 但受中子源、实时性以及使用成本等因素的制约, 不适用于工业上含硼材料的检测。目前国内还没有对 B<sub>4</sub>C-Al 材料进行无损检测的装置, 国外已经对含硼中子吸收材料硼含量检测开展了多方面的研究, 目前国际上主要采用两种方法进行含硼材料的无损检测: 中子透射法<sup>[4]</sup>和中子反射法<sup>[5]</sup>。

中子反射法既可以应用于对比较厚的中子吸收材料的检测, 也可用于比较薄的中子吸收材料的检测。对于厚中子吸收材料的装置中, 比较典型的是美国萨凡纳河国家实验室研制的对 5 cm, 厚的含硼混凝土中硼含量以及硼分布均匀性的检测装置, 该装置利用 Am-Li 作为中子源, 两根 He-3 管作为中子探测器。源于聚乙炔圆柱体中心, 圆柱体包有 2 mm 镉层。聚乙烯将快中子慢化到热中子, 然后被 2 mm 镉层吸收, 以避免直接

收稿日期: 2019-03-28;      修改日期: 2019-06-05

作者简介: 苏晓斌(1980-), 女(满), 辽宁辽阳人, 副研究员, 博士, 从事核数据测量研究; E-mail: sxiaobin@ciae.ac.cn。

来自中子源的中子对He-3管产生影响。圆柱体底部开有圆孔,作为探测窗。快中子从探测窗射出,经过含硼混凝土反射后进入该装置,然后用He-3管对反射回来的中子进行探测计数。当对装置进行刻度以后,根据一定时间内计数的多少就可以得出硼含量以及分布的均匀性。

对于比较薄(<2 cm)的中子吸收材料的检测,比较成熟的装置为法国原子能机构研制的JEN-3,它是一个手持式的检测设备,并且已经在工业上广泛应用于对板状、条状的硼钢检测中。装置主要由<sup>252</sup>Cf中子源和<sup>3</sup>He探测器组成。探测器外包有2 mm的镉层用于吸收直接来自中子源的热中子。检测时,硼钢板放置在10 cm厚的聚乙烯慢化体上,然后将JEN-3放置在硼钢板上进行检测。由<sup>252</sup>Cf产生的快中子穿过硼钢板后在聚乙烯慢化体散射慢化,反射回来的中子绝大多数为热中子。由于硼钢板中含有<sup>10</sup>B元素,所以热中子穿过硼钢板时会被大量吸收,中子探测器的中子计数与无硼钢板时相比会大量减小。硼含量(<sup>10</sup>B面密度)越大,对热中子吸收能力就越强,一定时间内的中子计数就会越少。对装置进行定标以后,根据有无硼钢时中子探测器的中子计数率的变化,就可以计算出硼钢的硼含量以及硼在硼钢中的分布情况。

中子透射法的探测原理与热中子照相原理类似,是根据热中子穿过含硼中子吸收材料后注量的衰减来测量硼含量的。中国原子能科学研究院核数据重点实验室研制出了我国第一台六角形硼钢管检测设备。该设备的中子探测系统采用的是中子透射法测量六个面的硼含量信息, $\gamma$ 测厚系统通过测量穿过各个面的 $\gamma$ 射线强度的衰减测量各点厚度。中子测量系统由中子源、慢化体和六套BF<sub>3</sub>中子探测器组成。检测时,由中子源<sup>252</sup>Cf放出的快中子经慢化体慢化,然后穿过硼钢管时被大量吸收,六套中子探测器测量由六个面透射出的中子计数,与无硼钢管时探测器计数相比,可以直接得到硼钢管的中子吸收率,通过对中子吸收率的比较可以得到各个面的硼含量分布。不同于化学分析和光谱分析方法的无损检测,该设备对硼钢管中硼含量的检测属于无损检测;与中子照相技术相比,该检测设备可以实时地对硼钢管全方位进行中子吸收率检测,可以实现对六个面的硼含量的同步检测。

为了解决核电厂乏燃料密集贮存将面临的临界安全问题,我们研发了B<sub>4</sub>C-Al材料中子吸收性能检测设备,该检测设备既可以检测乏燃料贮存水池格架材料中子吸收性能是否达到设计指标,又可以定期监测与格架同种中子吸收材料的监督样片的中子吸收性能,实现对

乏燃料水池中子吸收材料的可靠性评估。该套检测设备既适用于燃料贮存格架用碳化硼颗粒增强铝基复合材料(B<sub>4</sub>C-Al),也适用于对硼钢材料的检测。本论文研究的内容处于检测设备设计初级阶段的实验验证。

## 2 中子透射法测硼含量原理

含硼中子吸收材料的性能主要体现为热中子吸收能力,<sup>10</sup>B面密度是表征中子吸收材料热中子吸收能力的一个参数,该套设备能有效的对挂片材料的<sup>10</sup>B面密度进行精确测量。<sup>10</sup>B对热中子具有很大的吸收截面,当热中子透射过含硼样品时强度会有很大衰减。可以通过测量含硼材料的热中子透射率来计算出<sup>10</sup>B面密度,从而判断挂片材料是否符合要求。

探测器在没有样品时计数为 $N_0$ ,有样品时计数为 $N$ :

$$N = N_0 e^{-\sigma_a N_t d} \quad (1)$$

$\sigma_a$ 为含硼材料的热中子总吸收截面; $N_t$ 为样品单位体积内所有原子数之和; $d$ 为样品厚度。

$$\sigma_a N_t = \sigma_a(^{10}\text{B}) N_t(^{10}\text{B}) + \sigma_a(\text{other}) N_t(\text{other}) \quad (2)$$

根据式(1)~(2)可以推出以下公式:

$$N = N_0 e^{-\sigma_a(^{10}\text{B}) N_t(^{10}\text{B}) d - \sigma_a(\text{other}) N_t(\text{other}) d} \quad (3)$$

中子对样品的透射率 $T$ 为

$$T = \frac{N}{N_0} \quad (4)$$

<sup>10</sup>B质量密度可以表示为

$$\rho(^{10}\text{B}) = \frac{N_t(^{10}\text{B})}{N_A} M(^{10}\text{B}) \quad (5)$$

式中: $M(^{10}\text{B})$ 是原子质量; $N_A$ 是阿伏伽德罗常数;最终推导出中子透射率 $T$ 与面密度的关系式如下:

$$T = e^{-\left[ \frac{\sigma_a(^{10}\text{B}) N_A \rho(^{10}\text{B}) d}{M(^{10}\text{B})} + \sigma_a(\text{other}) N_t(\text{other}) d \right]}$$

式中: $\rho(^{10}\text{B})d$ 即为<sup>10</sup>B面密度; $\sigma_a(^{10}\text{B})$ , $\sigma_a(\text{other})$ , $N_t(\text{other})$ 都可近似认为是常数,若设<sup>10</sup>B面密度为 $x$ ,那么中子透射率 $T$ 与<sup>10</sup>B面密度 $x$ 可近似为 $e$ 指数关系。

## 3 初步实验测量方案

考虑到测厚时需要的中子注量比较大,半衰期要合适,放出的中子能量不能太高,要容易慢化到热中子能区,我们选用<sup>252</sup>Cf中子源作为使用的中子源。散射截

面大而吸收截面小的轻元素常被选作中子慢化剂，因为一般中子与轻元素只通过发生弹性散射损失能量，从而达到慢化目的，我们选用聚乙烯作为中子慢化体。

$^{252}\text{Cf}$  中子源、聚乙烯慢化体与中子探测器共同构成测量系统，如图 1 所示。将  $^{252}\text{Cf}$  放射源置于圆柱形聚乙烯慢化体内部，经过 MCNP 蒙特卡罗模拟，慢化体厚 6~8 cm 时慢化效果最好，选择的圆柱形慢化体厚 6 cm，在慢化体前端放置 8 cm 厚的聚乙烯板用以慢化中子，尽可能使射入到样品中的都是热中子。为了精确计算出样品的热中子透射率，在慢化体和待测样品之

间放置限束铝板，使用  $^3\text{He}$  管测量中子计数，为了降低散射中子本底的影响，在  $^3\text{He}$  管外放置屏蔽铝板。通过测量自制标准样品对慢化后中子的透射率，根据透射率与  $^{10}\text{B}$  面密度的关系做出关系曲线。再测量用户提供的未知含量样品对中子的透射率；最后通过内插，确定各样品的  $^{10}\text{B}$  面密度。

图 1 为测量系统剖面图，图 1 中从左至右依次为  $^{252}\text{Cf}$  中子源，聚乙烯慢化体、限束铝板、自制的标准样品、 $^3\text{He}$  管、屏蔽铝板。

### 3.1 标准样品制备

首先，采用 T6061 合金铝、纯铝粉末及  $\text{B}_4\text{C}$  粉末按不同比例制备一系列标准样品。标准样品边框采用 T6061 铝合金板材，加工成 5 mm 厚，20 cm 见方，中间挖出直径 15 cm 的圆孔，在圆孔周边铣出宽 5 mm，深 1 mm 的台阶，并在两面的台阶上均匀打孔并攻丝，安装上直径 16 cm，厚度 1 mm 的圆形 T6061 牌号铝合金盖板，构成样品盒。然后用纯铝粉末及  $\text{B}_4\text{C}$  粉末，按不同比例制备样品粉末。 $\text{B}_4\text{C}$  采用 F800 的粉末，总硼质量分数为 78.99%。 $\text{B}_4\text{C}$  的质量分数分别为 20.0%，23.0%，26.0%，29.0%，32.0%。将混合粉末分别充分搅拌均匀（在车床上连续转动约 4 h），然后充填进样品盒中，压实并安装好密封塞。记录下每个标样所充填的粉末总质量，见表 1。图 2 和图 3 显示了用户样品和自制标准样品的实物照片。

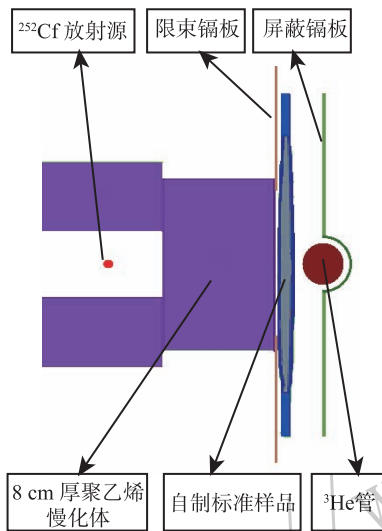


图 1 (在线彩图) 中子穿透率测量示意图

表 1 标准样品所充填粉末质量、等效厚度及  $^{10}\text{B}$  面密度数据表

标准样品编号	质量/g	碳化硼质量分数	质量密度/(g/cm <sup>3</sup> )	等效厚度/cm	总硼质量分数	$^{10}\text{B}$ 质量分数	$^{10}\text{B}$ 面密度/(g/cm <sup>2</sup> )
1#	115.27	20.0%	1.6206	0.4030	0.7899	18.412%	0.018997
2#	113.47	23.0%	1.4845	0.4310	0.7899	18.412%	0.021402
3#	110.14	26.0%	1.4245	0.4356	0.7899	18.412%	0.023464
4#	109.78	29.0%	1.4038	0.4400	0.7899	18.412%	0.026051
5#	110.98	32.0%	1.4354	0.4356	0.7899	18.412%	0.029099



图 2 (在线彩图) 用户样品照片

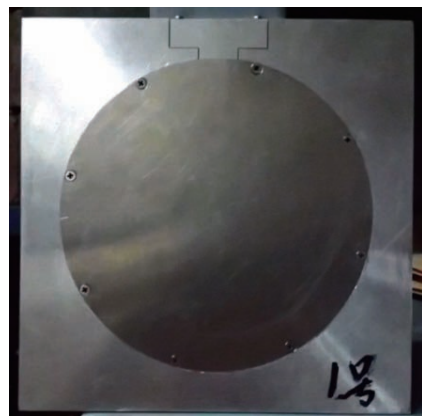


图 3 (在线彩图) 自制标准样品照片

自制标准样品和用户样品之间存在成分差异, 用户样品为 T6061 合金铝粉末中掺加 B<sub>4</sub>C 粉末制成, 自制标准样品是用纯铝粉和 B<sub>4</sub>C 制成。纯铝粉和 T6061 合金铝对中子吸收的差异有必要进行研究。为此用 MCNP 软件进行模拟, 将各自的穿透率进行比较,

结果见表 2。从模拟结果可见, 标准样品采用纯铝粉时中子透射率比采用 T6061 合金铝时的中子透射率高 0.025% 到 0.044%, 远远小于统计不确定度, 因此, 标准样品采用 T6061 合金铝对我们制作中子透射率与 <sup>10</sup>B 面密度关系曲线的影响可忽略不计。

表 2 标样采用纯铝或 T6061 制作, 对中子穿透率的影响模拟结果

	T6061		Al		Al/T6061
1#	8.073 9%	±0.14%	8.077 5%	±0.14%	1.000 440
2#	7.329 4%	±0.14%	7.332 3%	±0.14%	1.000 383
3#	6.847 4%	±0.14%	6.849 5%	±0.14%	1.000 308
4#	6.436 5%	±0.15%	6.438 1%	±0.15%	1.000 251
5#	6.096 5%	±0.15%	6.098 1%	±0.15%	1.000 253

充填完粉末制成标样后, 发现由于 1 mm 的铝合金盖板强度有限, 中央部分呈现凸起, 整个盖板表面类似于球面。为此将每个标准样品的几何尺寸进行精确测量, 对每个样品进行了模拟计算, 并在同样条件下对一系列厚薄均匀但是厚度不同的样品也进行了模拟计算, 通过内插方法, 将标样的等效厚度得到, 并计算出等效的 <sup>10</sup>B 面密度, 同时根据样品总量及样品圆面积简单计算出 <sup>10</sup>B 的面密度, 将两种 <sup>10</sup>B 面密度结果列于表 3。从表 3 中两者比值可以看出, 二者的差异基本上在 1% 以内。由于制样时对混合比、样品量、样品尺寸都进行了精确测量, 而总硼含量经过了计量单位的标定, 天然硼丰度也是标准数据, 因此计算得到的 <sup>10</sup>B 面密度也是准确可靠的, 其不确定度可认为在 1% 以内。

表 3 <sup>10</sup>B 面密度 MCNP 模拟结果以及简单计算结果比较

标准样品编号	<sup>10</sup> B 面密度 (g/cm <sup>2</sup> )		两者比值
	模拟等效面密度	计算面密度	
1#	0.018 997	0.018 973	1.001 24
2#	0.021 402	0.021 479	0.996 44
3#	0.023 464	0.023 568	0.995 58
4#	0.026 051	0.026 201	0.994 28
5#	0.029 099	0.029 228	0.995 61

### 3.2 标准样品测量

<sup>3</sup>He 管分别测得的有无样品时计数的比值即为穿透率, 为降低样品盒内粉末分布不均匀引入的误差, 每个标准样品旋转 90° 测量了两次, 以两次测量结果的平均值作为该样品的测量结果。图 4 中的曲线为用自制标准样品测量得到的中子透射率与 <sup>10</sup>B 面密度之间函数关系的拟合曲线, 图中的黑色方块为实验测得的 5 个样品的数据点。

若将这 5 个数据点做拟合曲线拟合优度比较差, 将 2 号样品数据点剔除后再做拟合曲线拟合优度能达到 1, 图 5 中拟合曲线为去除 2 号数据点后做的拟合曲线。

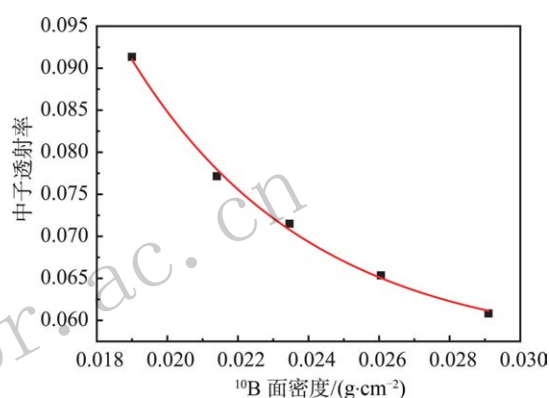


图 4 (在线彩图) 用标准样品测量得到的中子透射率与 <sup>10</sup>B 面密度之间的关系

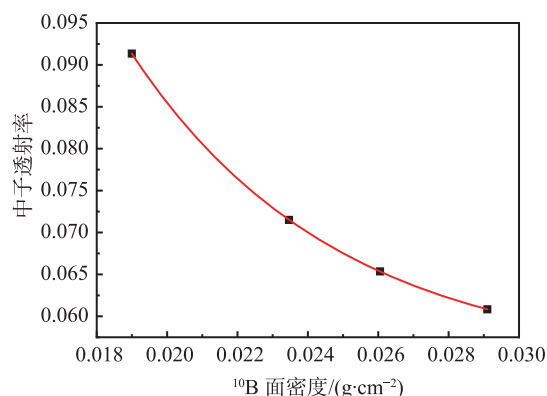


图 5 (在线彩图) 去掉 2 号样品数据点后中子透射率与 <sup>10</sup>B 面密度之间的关系

数据拟合采用 Origin8, 拟合结果如下式:

$$T = 0.96433 \exp(-x/0.00583) + 0.05429,$$

式中  $T$  为中子透射率;  $x$  为 <sup>10</sup>B 面密度, 单位为 g/cm<sup>2</sup>。

### 3.3 用户样品测量

用户提供了三种碳化硼含量 (质量分数分别为 21%, 26%, 31%) 的 8 块样品, 长 300 mm, 宽 200 mm, 厚



度为 2.1~2.4 mm，密度约为 2.6 g/cm<sup>3</sup>。实际上乏燃料水池格架材料 B<sub>4</sub>C 的质量分数一般在 25% 左右，样板的 <sup>10</sup>B 面密度范围完全覆盖了所检测的水池格架材料 <sup>10</sup>B 面密度变化范围。

在与自制标准样品同样条件下进行用户样品的测量。由于自制标准样品使用 1 mm 厚的 T6061 合金铝固定在含硼铝粉两侧，在测用户样品时，也在样品两侧各放置了 1 mm 厚的 T6061 合金铝板。测量得到穿透率数据后，利用标样数据拟合曲线进行内插得到该样品的 <sup>10</sup>B 面密度。最终各样品中子穿透率及两种方法获得

的 <sup>10</sup>B 面密度见表 4。表中计算值为根据已给的参数直接计算获得的结果，拟合值为测得的中子透射率在自制标准曲线中内插获得的结果。

从表 4 可见，B<sub>4</sub>C 质量分数为 21% 和 26% 的 <sup>10</sup>B 面密度有明显区别，31% 的样品呈现数据分散，而且 <sup>10</sup>B 面密度最低的值与 26% 的样品相当。这是因为样品厚度原因，26% 的样品厚度达 2.46 mm，而样品 31%-2-1 只有 2.1 mm，造成总的 <sup>10</sup>B 面密度相当了。碳化硼质量分数为 21% 的两块样品与拟合值差异比较大，说明这两块样板标定的硼含量偏低。

表 4 <sup>10</sup>B 面密度计算值与测量值的比较

样品编号	密度/(g/cm <sup>3</sup> )	碳化硼质量分数	厚度/cm	总硼质量分数	<sup>10</sup> B 质量分数	<sup>10</sup> B 面密度(g/cm <sup>2</sup> )		拟合值/计算值
						计算值	拟合值	
21%-14-1	2.658	21%	0.215	77.66%	18.412%	0.017 16	0.018 93	1.103 147
21%-14-2	2.658	21%	0.214	77.66%	18.412%	0.017 08	0.019 32	1.131 148
26%-84-1	2.650	26%	0.240	78.99%	18.412%	0.024 05	0.022 70	0.943 867
26%-84-2	2.650	26%	0.246	78.99%	18.412%	0.024 65	0.022 72	0.921 704
31%-2-1	2.550	31%	0.210	78.10%	18.412%	0.023 87	0.022 63	0.948 052
31%-3-2	2.550	31%	0.214	77.92%	18.412%	0.024 27	0.023 13	0.953 028
31%-3-11	2.550	31%	0.227	77.92%	18.412%	0.025 74	0.024 07	0.935 120
31%-3-12	2.550	31%	0.226	77.92%	18.412%	0.025 63	0.023 88	0.931 721

总的来看，用测量中子穿透率的方法来测定 <sup>10</sup>B 面密度是可行的，通过合理设计标准样品 <sup>10</sup>B 面密度(涵盖用户样品)、选择合适中子源及慢化体以及合理的数据拟合函数，可以得到精度和准确度都较高的 <sup>10</sup>B 面密度-中子透射率函数关系曲线，从而为内插得到未知样品的 <sup>10</sup>B 面密度打下基础。

整套设备设计如图 6 所示，下半部分中间为 <sup>252</sup>Cf 中子源及聚乙烯慢化体部分，慢化体外包裹铍反射层，铍反射层外部是重晶石，最外部是铁。上半部分最外层是 2 mm 不锈钢，往里依次是 3 cm 厚的铅和 2 mm 厚镉，再往里是重晶石。中间部分留出空间放置探测器。

## 4 B<sub>4</sub>C-Al 合金材料中子吸收性能检测装置的设计

### 4.1 检测装置的设计

通过以上初步的实验测量工作，验证了可以通过测量中子透射率的方法检验样品的 <sup>10</sup>B 面密度信息，为我们设计 B<sub>4</sub>C-Al 合金材料中子吸收性能的检测设备奠定了基础。首先确定实验方案，然后开展慢化体设计工作，考虑到慢化体既要能充分起到慢化作用，又要使中子计数率不能太低，以便尽量减小统计误差，缩短测量时间。经过 MCNP 蒙特卡罗模拟计算，选用内径 1.5 cm，外径 8 cm，长 40 cm 的聚乙烯做慢化体。慢化体外包裹 5 cm 厚的铍反射层，用以提高中子源的利用率，减小中子散射损失，蒙特卡罗模拟计算结果显示，5 cm 厚的铍反射层可以使热中子计数率提高 76%。再在聚乙烯慢化体内部插入内径为 0.5 cm，外径为 2 cm 厚的钨环，经过计算，1.5 cm 厚的钨环可以屏蔽 87% 的 γ 射线。

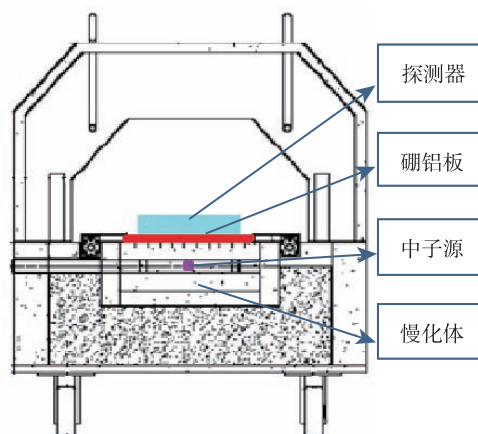


图 6 (在线彩图) 检测装置设计图

整个测量系统分为传动系统、测量系统和监测系统。传动系统由电动机控制，电动机带动两端丝杠旋转，用以推进或抽出样品。电动机的启动或停止，样品行进速度由单片机连接至工控机控制；测量系统由 <sup>3</sup>He 探测器、前置放大器、主放大器、多道以及工控机组成；监测系统由监视器及设备内置的摄像头组成，可

以实时监测样品在设备内部情况。图 7 为实验设备外观图。



图 7 (在线彩图) 检测装置

### 4.2 样品两次测量结果对比

采用新的设备对前期用户提供的8块样品进行再次测量，两次测量条件略有不同，主要是慢化设备不一样，慢化中子能谱有差异，穿透率结果也不一样，两套设备测量结果见图8所示。图8中<sup>10</sup>B面密度数值采用的是表4中的计算值，中子透射率为分别使用两套设备测量的结果。

### 4.3 第一批样品测量结果

除了前期测量用的8块样品外，我们本次还测量了沈阳金属研究所提供的66块新样品。新样品为长32 cm，宽21 cm，厚2~3 mm，样品B<sub>4</sub>C的质量分数分别为21%，26%和31% 3种。按照新样品取样位置说

明书，B<sub>4</sub>C质量分数为21%和26%的样品分别由3个热压锭制成，每个锭头中尾部分各取1个带板，每个带板最终轧成成品板后，头中尾分别取1张作为测试板；31%的样品由2个热压锭制成，每个锭中部取2个带板，每个带板轧成成品板后，头中尾各取1张作为测试板。将每个成品板头，中，尾3张测试板的<sup>10</sup>B面密度分别用不同颜色标出，见图9。图9中样品编号前两位数字表示B<sub>4</sub>C的质量分数，每个编号代表一张带板，每张带板包括头、中、尾三张测试板。B<sub>4</sub>C的质量分数为21%和26%的测试板各27张，其中9张头部，9张中部，9张尾部；31%的测试板共12张，4张头部，4张中部，4张尾部。

图9反应了同一块带板的头、中、尾部分<sup>10</sup>B含量的不均匀性。图中横坐标表示样品编号，纵坐标表示样品的<sup>10</sup>B面密度。从总体来看，B<sub>4</sub>C质量分数为21%的板子均匀性最好，为26%的板子均匀性稍差，为31%

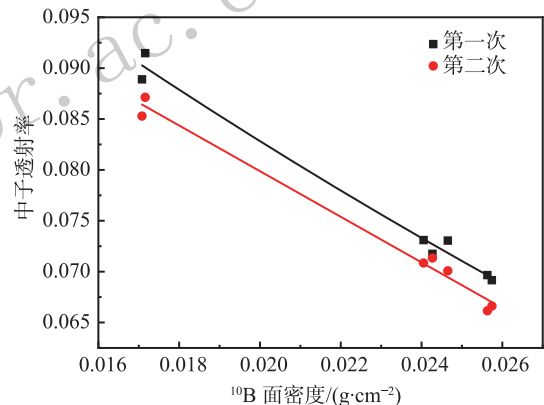


图 8 (在线彩图) 两套设备结果对比

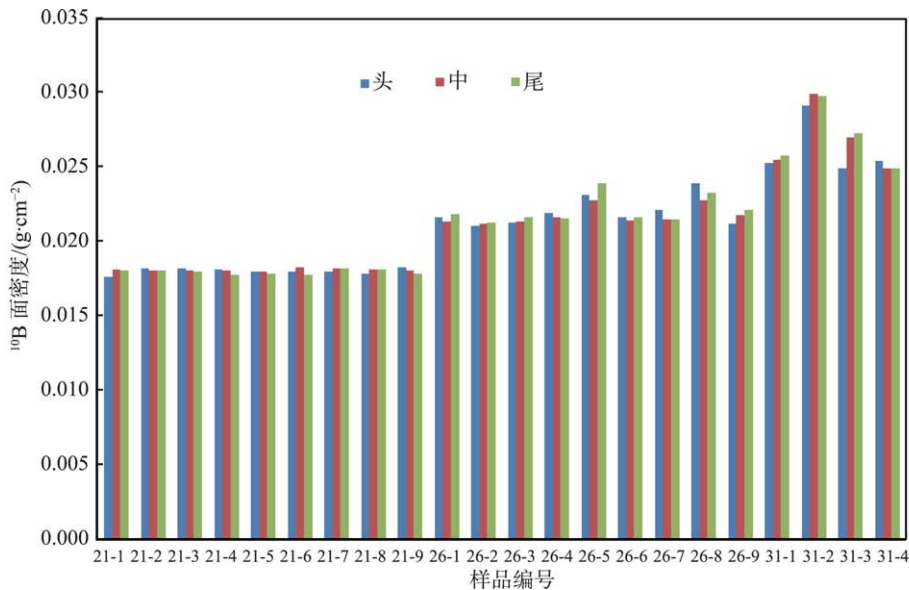


图 9 (在线彩图) 新样品计算得的<sup>10</sup>B面密度

的板子均匀性最差。

参考不同组分样品的密度、 $B_4C$  含量、厚度、总硼含量及  $^{10}B$  含量等数据, 计算出样品  $^{10}B$  面密度, 做出样品透射率与  $^{10}B$  面密度的关系曲线, 见图 10 所示。图 10 为前期使用的 8 块样品与 66 块新样品的总数据。图中曲线为所有点拟合曲线。

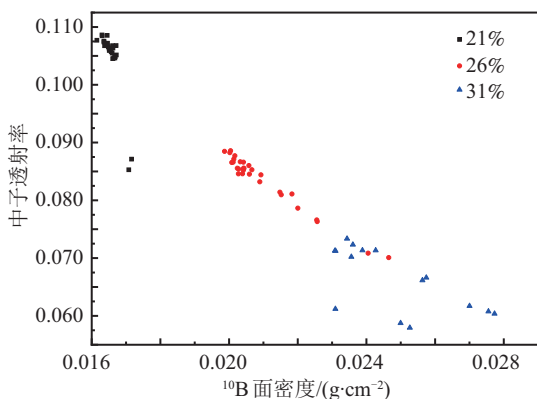


图 10 (在线彩图) 所有样品中子透射率与  $^{10}B$  面密度关系

从图 10 可以看出  $B_4C$  质量分数为 21% 的样品离散度较小, 而 26% 及 31% 的样品离散度较大, 这是因为样品厚度差异导致的, 第二批硼铝板 21% 样品厚度在 2.0235~2.0945 mm 之间, 26% 样品厚度变化范围为 1.98275~2.252 mm, 31% 样品厚度变化范围为 2.0365~2.44525 mm。

图 10 中有 5 个点数据与其他点数据相比明显差异较大, 图 10 中左面两个游离点为本次用  $^3He$  管测量的前期  $B_4C$  质量分数为 21% 的两块样品, 编号为 21-14-1, 21-14-2; 右面 3 个点为  $B_4C$  质量分数为 31% 的新样品, 编号为 31-3-1, 31-3-2, 31-3-3。样品将这 5 个点去掉进行拟合, 拟合曲线见图 11。

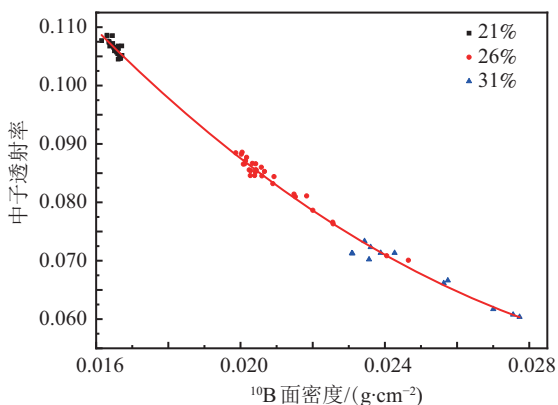


图 11 (在线彩图) 所去掉特殊点后的中子透射率与  $^{10}B$  面密度关系拟合曲线

拟合公式如下式:

$$T = 4.64865 \exp(-x/0.08607) - 10.32905 \times \exp(-x/0.25097) + 5.94063,$$

$$R^2 = 0.99572.$$

拟合优度能达到 0.99572。前期样品中  $B_4C$  质量分数为 21% 的样品两次实验数据都偏离拟合曲线, 若将穿透率数据根据拟合曲线内插其面密度值要大于计算值。从图 10 可见, 第二次测量结果依然偏小(相对于标准样品拟合曲线来说), 推断应该是厂家给的计算  $^{10}B$  面密度需要的  $B_4C$  含量、密度等参数不准确所致。第二批编号为 31-3-1, 31-3-2, 31-3-3 的 3 块样品测得的面密度偏小(相对于标准样品拟合曲线来说), 这三块测试板分别来源于同一块带板的头, 中, 尾部分, 可能是这块带板整体  $B_4C$  含量比厂家给的数据偏高。本文的检测设备处于研发阶段, 主要目的是验证实验方法, 测量时厂家没有提供特制的标准样品, 所以会有偏离点出现。实际上检测之前需要采用厂家提供的面密度已知的特制标准样品做标准曲线, 然后再以此为标准检测待测样品的  $^{10}B$  面密度。

#### 4.4 不确定度分析

表 5 为  $B_4C-Al$  样品根据拟合曲线内插得出的  $^{10}B$  面密度与计算值的比较。表中“穿透率”为  $^3He$  探测器测量的有样品和无样品情况下的中子计数率之比; “统计误差”为探测器计数统计误差; “拟合值”为根据拟合曲线和测量的中子透射率拟合出来的  $^{10}B$  面密度; “计算值”为按照样品生产厂家给的各项参数计算出来的  $^{10}B$  面密度; “残差相对值”为计算值与拟合值之差与拟合值的比值。

表 5 给出了部分代表性样品的真实面密度与拟合值之间的差异, 可以看到除了 31-4-1, 31-4-2, 31-4-3 3 块样品以外, 其他样品与拟合曲线都吻合得很好, 总不确定度在 2% 以内。若考虑这 3 块样品, 最大的残差相对值为 3.53%。另外, 还存在仪器误差、制样与标称之间的误差、质量填充系数等误差, 采用自制样品  $^{10}B$  面密度的制样总误差在 1% 以内, 采用成品样板时候制样误差会缩小到 0.19% 以内, 仪器测量误差在 0.05% 以内, 加上统计误差与拟合误差, 总误差在 3.54% 以内。因此此批样板为厂家提供的普通待测板, 各项参数精度有限, 为了给出精度更高的拟合曲线, 需要用户提供碳化硼含量和总硼含量、厚度、 $^{10}B$  丰度都更精确的标准样板。

灵敏度方面, 从图 11 上看, 由于曲线斜率变化的因素, 假设穿透率测量方面普遍存在 1% 的不确定度, 在  $^{10}B$  面密度较低的区域 (0.016  $g/cm^2$  左右), 测定的

表5 根据拟合曲线函数计算出<sup>10</sup>B面密度

挂片标号	中子透射率	统计误差	拟合值/(g/cm <sup>2</sup> )	计算值/(g/cm <sup>2</sup> )	残差相对值
21-1-1	0.1077	0.17%	0.016306	0.016150	-0.95%
21-2-1	0.1046	0.17%	0.016820	0.016675	-0.86%
21-3-1	0.1046	0.17%	0.016820	0.016641	-1.06%
21-4-1	0.1068	0.17%	0.016453	0.016607	0.93%
21-5-1	0.1065	0.17%	0.016503	0.016483	-0.12%
21-6-1	0.1072	0.17%	0.016388	0.016459	0.44%
21-7-1	0.1071	0.17%	0.016404	0.016443	0.24%
21-8-1	0.1075	0.17%	0.016338	0.016356	0.11%
21-9-1	0.1052	0.17%	0.016719	0.016717	-0.01%
26-1-1	0.0855	0.19%	0.020430	0.020434	0.02%
26-2-1	0.0885	0.19%	0.019801	0.019868	0.34%
26-3-1	0.0865	0.19%	0.020217	0.020079	-0.68%
26-4-1	0.0853	0.19%	0.020473	0.020665	0.94%
26-5-1	0.0811	0.20%	0.021410	0.021832	1.97%
26-6-1	0.0846	0.19%	0.020625	0.020392	-1.13%
26-7-1	0.0832	0.19%	0.020933	0.020895	-0.18%
26-8-1	0.0763	0.20%	0.022572	0.022566	-0.03%
26-9-1	0.0886	0.19%	0.019780	0.020044	1.33%
31-1-1	0.0734	0.21%	0.023334	0.023436	0.44%
31-2-1	0.0617	0.22%	0.027149	0.027003	-0.54%
31-4-1	0.0702	0.21%	0.024239	0.023561	-2.80%
31-4-2	0.0713	0.21%	0.023919	0.023085	-3.49%
31-4-3	0.0712	0.21%	0.023948	0.023102	-3.53%

<sup>10</sup>B面密度不确定度在1%左右;而在<sup>10</sup>B面密度较高的区域(0.027 g/cm<sup>2</sup>左右),测定的<sup>10</sup>B面密度不确定度接近0.77%。

## 5 结论

本文从B<sub>4</sub>C-Al材料检测设备的测量方法验证着手,利用<sup>10</sup>B对热中子反应截面高的特点,首先对自制的标准样品进行了测量和分析,验证了采用测量中子透射率的方法来检验<sup>10</sup>B面密度的可行性。总体来看,用测量中子透射率的方法来测定<sup>10</sup>B面密度是可行的,通过合理设计标准样品<sup>10</sup>B面密度(涵盖用户样品)、选择合适中子源及慢化体、以及合理的数据拟合函数,可以得到精度和准确度都较高的<sup>10</sup>B面密度-中子穿透率函数关系曲线,从而为内插得到未知样品的<sup>10</sup>B面密度打下好的基础。

目前,该检测设备处于初级研发阶段,从实验结果来看,此种检测方法可行性高,检测结果可信,具有很好的实用价值与应用前景。为了提高检测精度,即对样板上小范围的<sup>10</sup>B面密度进行精确检测,在后续工作中我们考虑采用锂玻璃闪烁体探测器代替<sup>3</sup>He管,<sup>3</sup>He管

尺寸通常为直径几厘米,长度15 cm以上,面积太大不能测量样品小面积区域,达不到精确测量小范围<sup>10</sup>B面密度的目的。使用较薄较小的闪烁体探测器,可以采用多个探测器组成的探测阵列进行测量,实现样品全面积检测。此项工作目前处于研究论证阶段,在后续工作中,我们会对方法和装置逐步完善,争取成为精度、准度“双高”的商业化检测设备。

## 参考文献:

- [1] LI Gang, JIAN Min, WANG Meiling, *et al.* Materials Review, 2011, **25**(7): 110. (in Chinese)  
(李刚, 简敏, 王美玲, 等. 材料报导, 2011, **25**(7): 110.)
- [2] XIAN Yajiang, PANG Xiaoxuan, WANG Wei, *et al.* Materials Review, 2015, **29**(2): 45. (in Chinese)  
(鲜亚疆, 庞晓轩, 王伟, 等. 材料报导, 2015, **29**(2): 45.)
- [3] LIU Minglang, HAN Zengyao, LANG Jing, *et al.* Materials Review, 2011, **25**(12): 31. (in Chinese)  
(刘明朗, 韩增尧, 郎静, 等. 材料报导, 2011, **25**(12): 31.)
- [4] BASTURK M, ARZTMANNB J, JERLICH W, *et al.* Journal of Nuclear Materials, 2005(341): 189.
- [5] DEWBERRY R A, GIBBS K M, COUTURE A H. SRNL-STI-2010-00100, 2012.



## Study on Neutron Absorption Testing Technology of B<sub>4</sub>C-Al Material

SU Xiaobin<sup>1)</sup>, HOU Long, WANG Qi, YANG Yi, LIU Shilong

(*Science and Technology on Nuclear Data Laboratory, China Institute of Atomic Energy, Beijing 102413, China*)

**Abstract:** The safety of spent fuel pools in nuclear power plants is a very important safety issue for nuclear power plants, and the performance of neutron absorbing materials is related to the safety of spent fuel pools. The hanging piece of the same kind of neutron absorbing material is placed in the spent fuel pool, and the reliability of the neutron absorbing material in the spent fuel pool can be evaluated by periodically checking the performance of the hanging piece. The development of our B<sub>4</sub>C-Al alloy coupon testing equipment is expected to play an important role in assessing the safety of spent fuel pools in nuclear power plants. The test equipment firstly establishes a standard curve by using the standard samples with known surface density of <sup>10</sup>B, and then the surface density of the sample would be calculated according to the neutron transmittance, thereby reflecting the neutron absorption capacity of the spent fuel pool storage material, and providing a technical means for the safety inspection of reactor spent fuel pools. The equipment is the first boron aluminum alloy coupon testing equipment in China. The development of this equipment lays the experimental foundation for the future non-destructive inspection of domestic boron-containing neutron absorption materials.

**Key words:** B<sub>4</sub>C-Al; surface density of <sup>10</sup>B; non-destructive inspection

<http://www.npr.ac.cn>

**Received date:** 28 Mar. 2019; **Revised date:** 5 Jun. 2019

1) E-mail: [sxiaobin@ciae.ac.cn](mailto:sxiaobin@ciae.ac.cn).