

W 增强 Al/Gd₂O₃ 双屏蔽复合材料的制备与性能研究

马杰, 张鹏*, 樊文浩, 廉旭鹏, 戎婕
(太原理工大学物理学院, 山西太原 030024)

摘要:为了屏蔽中子与 γ 射线的危害,在 Al/Gd₂O₃ 材料中加入 W 并采用放电等离子体烧结 (SPS) 制成 Al/W/Gd₂O₃ 复合材料。利用扫描电镜和 XRD 分析了复合材料的形貌和物相结构;利用蒙特卡罗统计试验方法和粒子传输软件 MCNP5 对 Al/W/Gd₂O₃ 复合材料屏蔽中子和 γ 射线的性能进行模拟计算。结果表明,与原铝基复合材料相比,Al/W/Gd₂O₃ 复合材料的力学性能优异,抗拉强度提高;拉伸断口形貌表明,复合材料断裂模式为穿晶断裂。

关键词: Al/W/Gd₂O₃ 屏蔽复合材料; MCNP5; 放电等离子体烧结; 中子与 γ 射线屏蔽

中图分类号: TB333

文献标志码: A

文章编号: 0253-4320(2024)03-0136-04

DOI: 10.16606/j.cnki.issn0253-4320.2024.03.025

Preparation of W reinforced Al/Gd₂O₃ double shielding composite and study on its property

MA Jie, ZHANG Peng*, FAN Wen-hao, LIAN Xu-peng, RONG Jie
(College of Physics, Taiyuan University of Technology, Taiyuan 030024, China)

Abstract: In order to shield the harm of neutron and gamma rays, Al/W/Gd₂O₃ composite is made by adding W into Al/Gd₂O₃ material. The performance of Al/W/Gd₂O₃ composite in shielding neutron and gamma rays is simulated and calculated by using Monte Carlo statistical test method and MCNP5 particle transmission software. Al/W/Gd₂O₃ composites are prepared by discharge plasma sintering (SPS), and their morphology and phase structure are analyzed by means of SEM and XRD. It is indicated that the tensile strength of Al/W/Gd₂O₃ composites is higher than that of Al matrix composites. The tensile fracture morphology shows that the fracture mode of the composites belongs to trans granular fracture.

Key words: Al/W/Gd₂O₃ shielding composite; MCNP5; discharge plasma sintering; neutron and gamma ray shielding

核电工业每年都会卸载出数以万吨的乏燃料^[1-2],乏燃料具有较强的放射性,放射出的中子和 γ 射线对人体和环境的危害最为严重。因此从核反应堆中移除的辐照核燃料必须进行妥善处理,尤其在储存和运输过程中必须加装辐射屏蔽材料来进行防护^[3-5]。

Al/Gd₂O₃ 是一种具有广阔应用前景的新型中子屏蔽材料,钆(Gd)因其对 2 种同位素钷 155 和钷 157 的高热中子吸收截面而被广泛应用^[6-8]。据报道,氧化钆(Gd₂O₃)已被应用于多种功能材料中^[9-10]。张鹏等^[11]开发并制备了一种质量分数为 10%的 Gd₂O₃/6061Al 中子吸收材料,其热中子屏蔽率可达到 99%以上,抗拉强度和伸长率可分别达到 240 MPa 和 16%。但乏燃料放射出的 γ 射线仍没有得到妥善处理。所以需要加入一种可以吸收 γ 射线

的元素。钨(W)是一种常用的 γ 射线屏蔽材料,常用作复合材料的增强相^[12-13]。将 W 加入 Al/Gd₂O₃ 材料中制成 Al/W/Gd₂O₃ 复合材料,从而达到中子与 γ 射线共同屏蔽的目的。

笔者通过放电等离子体烧结 (SPS) 的方法实现 Al/W/Gd₂O₃ 复合材料的制备,通过近似物理过程,MCNP5 程序方法可以通过蒙特卡罗方法模拟中子和 γ 射线在屏蔽材料中的长期衰减^[14-16]。并观察材料的显微组织结构、界面连接。对拉伸断口形貌及界面产物进行了分析。

1 实验部分

1.1 MCNP 模拟过程

蒙特卡罗粒子输运程序 (MCNP) 是 20 世纪 40 年代由洛斯阿拉莫斯国家实验室开发,MCNP 是

收稿日期:2023-06-15;修回日期:2024-01-07

基金项目:山西省科技厅基础研究面上项目(20210302123138)

作者简介:马杰(1996-),男,硕士生,研究方向为核屏蔽复合材料,ma187352@163.com;张鹏(1977-),女,博士,副教授,研究方向为新型中子屏蔽材料的制备及辐照损伤行为,通讯联系人,zhangpengphysics@163.com。

用蒙特卡罗方法解决核粒子输运问题的常用程序,可以求解中子或耦合中子输运问题,并计算临界系统的特征值^[17-18]。热中子用自由气体模式和 $S(\alpha,\beta)$ 模式描述。该方法可用于屏蔽材料性能的计算。

利用 MCNP5 程序模拟中子和伽马射线的屏蔽性能。采用单表面源作为中子和 γ 射线发射源。根据热中子、伽马射线屏蔽要求,中子面源能量为 0.025 3 eV, γ 射线面源能量分别设置为 1.25 MeV (⁶⁰Co 辐射源) 和 0.661 MeV (¹³⁷Cs 辐射源)。用可视化程序描述了 MCNP 模拟过程,结果如图 1 所示,为圆柱形空间侧面、复合试样和热中子点源的二维图。整个模拟空间定义为理想真空条件,在模拟中不考虑环境因素。MCNP 模拟完成后,程序可以直接列出复合材料逃逸和捕获的热中子数,并计算热中子捕获比^[19-20]。

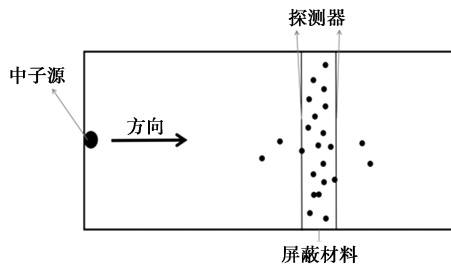
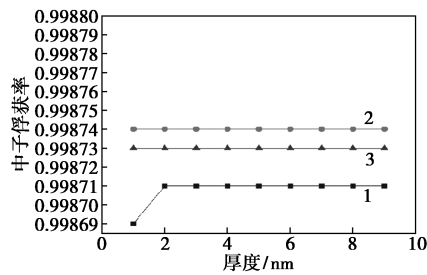
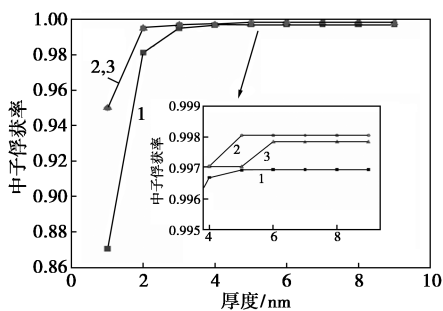


图 1 MCNP 模拟示意图

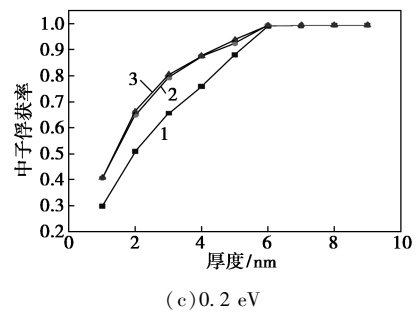
不同质量分数的 Al/W/Gd₂O₃ 在不同能量下随着厚度变化的中子吸收率如图 2 所示。从图 2(a)、图 2(b) 中可以看出,在不同能量下 30% Al/W/



(a) 0.025 3 eV



(b) 0.1 eV



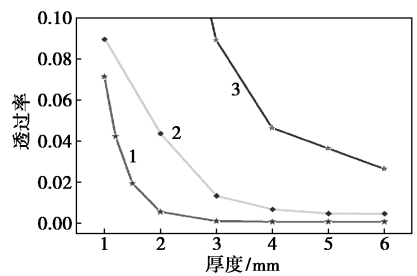
(c) 0.2 eV

1—20% Al/W/Gd₂O₃; 2—30% Al/W/Gd₂O₃;
3—40% Al/W/Gd₂O₃

图 2 不同 W 质量分数的 Al/W/Gd₂O₃ 在不同能量下随着厚度变化的中子吸收率

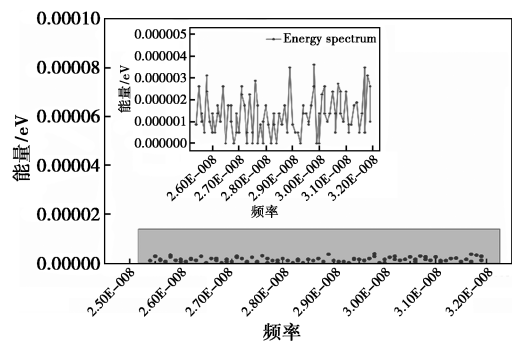
Gd₂O₃ 的中子吸收率高于其余 2 个质量分数 Al/W/Gd₂O₃,且中子俘获率均达到了 99% 以上。从图 2(c) 中可以看出,复合材料的中子吸收率随着厚度的增加而逐渐变化。当厚度达到 6 mm 时发生拐点,复合材料的中子吸收率趋于稳定。

Gd₂O₃ 质量分数设定为 5%,因为钨的热中子吸收截面是硼的 10 倍,而 30% B₄C/Al 是可用的核屏蔽材料。从图 3(a) 中可以看出,中子透过率随着材料厚度的增加而减小,优于 10% 和 20% 的 B₄C/Al 屏蔽材料。从图 3(b) 中可以看出,能量沉积光谱显示,在 3 mm 的厚度下,吸收效率达到 99%。从图 3(c) 和图 3(d) 中可以看出,⁶⁰Co 辐射源和 ¹³⁷Cs 辐射源下,线性吸收系数增加,半值层厚度减小。表示当

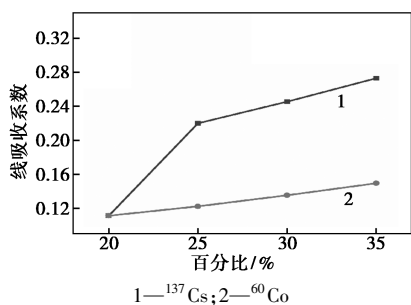


1—Al/W/Gd₂O₃; 2—20% B₄C/Al; 3—10% B₄C/Al

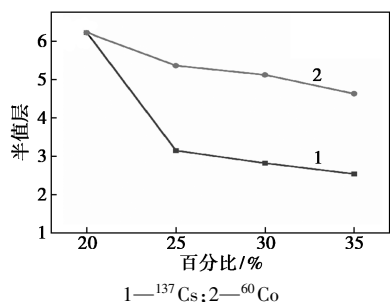
(a) 材料和一般对比材料的透射率



(b) MCNP5 探测表面上的能量沉积



(c) ⁶⁰Co 辐射源和 ¹³⁷Cs 辐射源下的线性吸收系数



(d) ⁶⁰Co 辐射源和 ¹³⁷Cs 辐射源下的半值层

图 3 伽马射线屏蔽性能模拟

混合钨质量分数为 30%、样品厚度达到 6 mm 时,半值层满足 γ 射线屏蔽的要求,满足中子屏蔽和 γ 射线屏蔽(γ 射线源和激发的二次 γ 射线)的有效性。

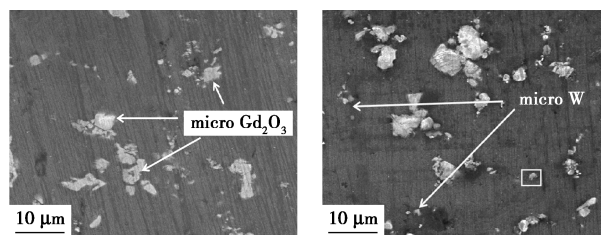
1.2 实验部分

以平均尺寸为 10 μm Gd_2O_3 颗粒、7 μm 的 W 粉末以及 13 μm 的 6061Al 作为原料,按 1.5:5:10 的质量比混合,然后放入高能球磨机中进行球磨达到均匀混合,转速为 100 r/min,时间为 2 h,球磨过后将混合物填充到内径为 30 mm 的石墨模具中,同时在混合物和石墨模具之间插入一个厚度为 0.2 mm 的石墨片,使其分离。然后将模具放入 SPS 系统,在真空、温度为 580 $^\circ\text{C}$ 、压力为 30 MPa 下进行 SPS 烧结处理,保温时间为 5 min。直到温度下降至 100 $^\circ\text{C}$ 取出模具。最后获得 Al/W/ Gd_2O_3 复合材料。通过扫描电子显微镜(SEM)观察其微观组织及成分分布;利用 X 射线衍射仪对界面反应层进行物相分析;通过拉伸试验分析 Al/W/ Gd_2O_3 复合材料的断口形貌。

2 结果与讨论

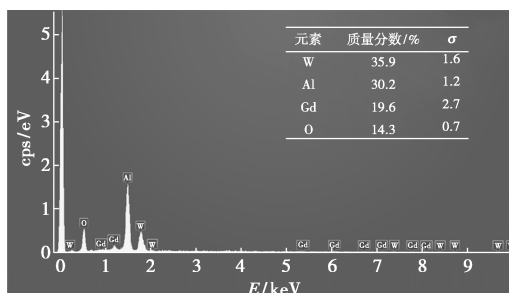
通过扫描电镜(SEM)分析经 SPS 烧结制备的 Al/W/ Gd_2O_3 复合材料形貌,结果如图 4 所示。从图 4(a)、图 4(b)中可以看出,微米级的 Gd_2O_3 颗粒和 W 颗粒都均匀地分布在铝基体中。从图 4(c)中

可以看出,质量比表明 Gd 和 W 的原子率接近理论计算值 1:2。



(a) SEM 图像中微米 Gd_2O_3 的分布

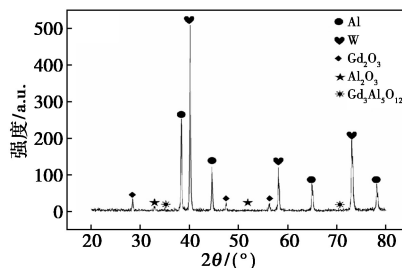
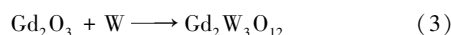
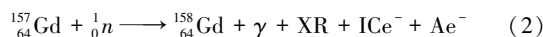
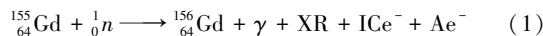
(b) SEM 图像中微米 W 的分布



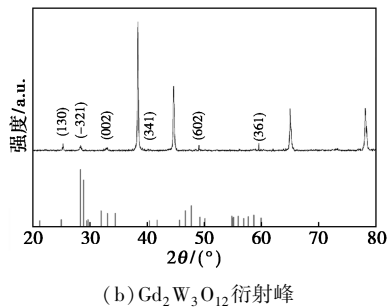
(c) 原子质量比

图 4 Gd_2O_3 和 W 在 Al 基体中的分布情况

$\text{Gd}_2\text{O}_3/\text{W}/\text{Al}$ 的 XRD 谱图如图 5 所示。从图 5(a)中可以看出,存在 Al、W、 Gd_2O_3 、 Al_2O_3 以及 $\text{Gd}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ 相的衍射峰,XU 等^[21]证明了 $\text{Gd}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ 的存在可以使界面结合更加牢固。 $\text{Gd}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ 是一种体心立方(BCC)含 Gd 金属氧化物相,其弹性模量和纳米压痕硬度分别达到了 312 GPa 和 20 GPa,作为新的增强体具有很高的粘接强度,可以提高材料的力学性能。从图 5(b)中可以看出,在 XRD 谱图中发现了 $\text{Gd}_2\text{W}_3\text{O}_{12}$ 化合物,这是因为 $\text{Gd}_2\text{O}_3/\text{W}$ 微核壳颗粒在烧结温度为 1 000 K 左右时会生成 $\text{Gd}_2\text{W}_3\text{O}_{12}$ 界面反应产物,如反应式(3)所示,不仅提高了微核壳颗粒连接的稳定性,也使材料具备一定的负热膨胀性能,使材料在热胀冷缩的环境下能够保证材料内部的稳定性^[22]。



(a) 存在 $\text{Gd}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ 衍射峰

图5 Al/W/Gd₂O₃ 的 XRD 图谱

6061Al、Gd₂O₃/Al 屏蔽复合材料、Al/W/Gd₂O₃ 复合材料复合材料的拉伸应力-应变曲线以及断口形貌图如图6所示。从图6(a)中可以看出,Al 基体具有明显的屈服行为,其屈服强度为 70 MPa,极限抗拉强度为 130 MPa,最大延伸率为 18%。相比于 Al 基体,Gd₂O₃/Al 中子屏蔽复合材料、Al/W/Gd₂O₃ 复合材料都没有明显的屈服点,其极限抗拉强度分别为 165、210 MPa。经测试,其屈服强度都高于 Al 基体,但其延伸率有所下降,分别为 8%、9%。从图6(b)中可以看出,复合材料的断口断裂主要是由增

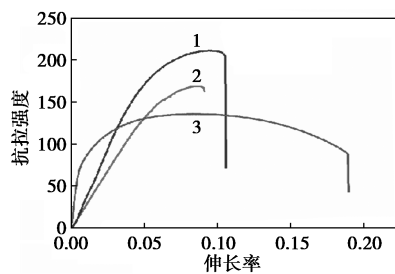
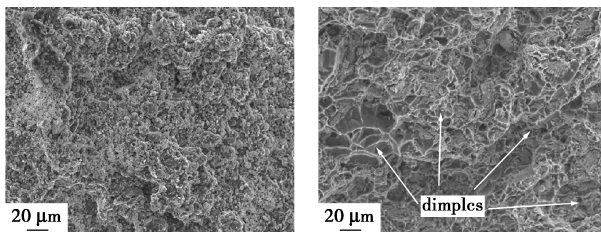


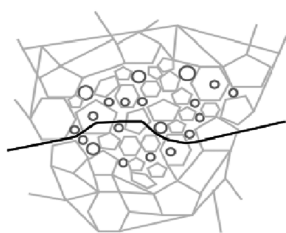
图6(a)不同材料的室温拉伸应力-应变曲线

(b) Al/W/Gd₂O₃ 复合材料

断口面

(c) Al/W/Gd₂O₃ 复合材料

断口处韧窝形貌



(d) 穿晶断裂示意图

图6 Al/W/Gd₂O₃ 复合材料断口图

强相颗粒与基体之间的应力导致的裂纹沿晶界扩展引起的。而晶界处增强相颗粒阻止了裂纹扩展,断裂模式呈现为穿晶断裂。

3 结论

通过 MCNP5 程序进行中子和 γ 射线屏蔽模拟,计算了材料的屏蔽性能。采用放电等离子体烧结方法 (SPS) 制备了 Al/W/Gd₂O₃ 复合材料,增强了界面的润湿性,并且可以同时吸收入射的中子辐射和 γ 射线。加入钨 (W) 之后的 Al/W/Gd₂O₃ 复合材料的力学性能优异,抗拉强度提高,塑性降低。断口形貌主要表现为增强相颗粒与基体界面处的裂纹扩展,断口呈晶间断裂形态。

参考文献

- [1] 曹钧.压水堆乏燃料干式贮存潜在事故的前瞻性分析[J].安全与环境学报,2018,18(3):907-914.
- [2] 姜昊.中国核电企业核废料安全管理及处置方案评价研究[D].保定:华北电力大学,2018.
- [3] Roh S, Kim D. The relationship between public acceptance of nuclear power generation and spent nuclear fuel reuse; Implications for promotion of spent nuclear fuel reuse and public engagement [J]. Nuclear Engineering and Technology, 2022, 54(6): 2062-2066.
- [4] Recharad R P, Voegelé M D. Evolution of repository and waste package designs for Yucca Mountain disposal system for spent nuclear fuel and high-level radioactive waste [J]. Reliability Engineering & System Safety, 2014, 122: 53-73.
- [5] Elbaradei M M, El Baradei M, Burkart W. Handbook of radioactivity analysis [M]. Academic Press, 2003.
- [6] 许海龙. BNCT 中 14 MeV 中子慢化体的研究 [D]. 长春: 长春工业大学, 2022.
- [7] Sajith T A, Praveen K M, Thomas S, et al. Effect of HAF carbon black on curing, mechanical, thermal and neutron shielding properties of natural rubber-Low-density polyethylene composites [J]. Progress in Nuclear Energy, 2021, 141: 103940.
- [8] 蔡吴鹏, 郑健, 孙勇, 等. 耐高温射线屏蔽材料的制备及性能 [J]. 金属功能材料, 2022, 29(1): 40-44.
- [9] Jia C, Zhang P, Xu W, et al. Neutron shielding and mechanical properties of short carbon fiber reinforced aluminium 6061-boron carbide hybrid composite [J]. Ceramics International, 2021, 47(7): 10193-10196.
- [10] Alyokhina S. Thermal analysis of certain accident conditions of dry spent nuclear fuel storage [J]. Nuclear Engineering and Technology, 2018, 50(5): 717-723.
- [11] Zhang P, Li J, Wang W, et al. The design, microstructure and mechanical properties of a novel Gd₂O₃/6061Al neutron shielding composite [J]. Vacuum, 2019, 162: 92-100.

(下转第 144 页)