

ОЦЕНКА РАДИАЦИОННО-ЗАЩИТНЫХ СВОЙСТВ К γ -ИЗЛУЧЕНИЮ КОМПОЗИЦИОННОГО МАТЕРИАЛА

В.И. Павленко¹, Н.И. Черкашина¹, А.В. Носков², Р.Н. Ястребинский¹, И.В. Соколенко¹
¹Белгородский государственный технологический университет им. В.Г. Шухова,

Белгород, Россия;

²Белгородский государственный национальный исследовательский университет,
Белгород, Россия

E-mail: natalipv13@mail.ru

Представлены данные по оценке радиационно-защитных свойств композиционных материалов по отношению к γ -излучению. В качестве связующего для синтеза радиационно-защитных композитов в работе использовали свинецборосиликатную матрицу, а в качестве наполнителя – нанотрубчатый хризотил, в структуру которого был внедрен вольфрамат свинца $PbWO_4$. Показано, что все композиты разработанных составов имеют хорошие физико-механические характеристики такие, как предел прочности при сжатии, термостабильность, и поэтому могут использоваться в качестве конструкционных материалов. На основании теоретического расчета построены графики линейного коэффициента ослабления γ -квантов в зависимости от излучаемой энергии для всех исследуемых составов. Установлены высокие радиационно-защитные характеристики композитов на основании теоретических и экспериментальных данных по сравнению с традиционно используемыми материалами в атомной промышленности – железом, бетоном и т. д.

ВВЕДЕНИЕ

В настоящее время в мире работает более 450 ядерных реакторов. Вместе с тем, бурное развитие атомной промышленности и атомной энергетики, расширение сферы применения источников радиоактивности обусловили появление радиационной опасности и риска возникновения аварий с выбросом радиоактивных веществ и загрязнением окружающей среды. Для предотвращения выбросов радиоактивных веществ и защиты персонала атомных станций широко используют радиационно-защитные материалы. Кроме традиционных радиационно-защитных материалов в последнее время большое применение нашли композиционные материалы, некоторые из которых превосходят традиционно используемые для радиационной защиты материалы [1–3].

Поэтому представляются актуальными исследования формирования комплекса свойств, направленные на разработку конкретных составов радиационно-защитных композиционных материалов и их технологий. В данной работе рассмотрена возможность синтеза радиационно-защитного композита на основе нанотрубчатого хризотила и вольфрамата свинца, внедренных в свинецборосиликатную матрицу. Также представлены данные по линейным коэффициентам ослабления γ -квантов в композитах различного состава, полученные расчетным и экспериментальными путями.

МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТА

В качестве связующего для синтеза радиационно-защитных композитов использовали свинецборосиликатную матрицу. Оптимальный состав матрицы включает в себя: 78,5% – оксида свинца (II); 13,2% – оксида бора; 4,2% – оксида кремния; 3,1% – оксида цинка; 0,4% оксида свинца (IV); 0,6% – оксида церия.

В качестве наполнителя в работе использовали нанотрубчатый хризотил, в структуру которого был внедрен вольфрамат свинца $PbWO_4$, полученный по способу [4].

Для изготовления композита вначале смешивали все исходные компоненты. Стекломатрицу перед смешиванием измельчали путем мокрого помола в шаровой мельнице до достижения удельной поверхности не менее $2 \cdot 10^4$ cm^2/g . Для достижения хорошей гомогенизации порошков компонентов в смеси и получения композита в их смесь добавляли изобутанол.

Готовый композит получали путем горячего прессования в пресс-форме при давлении 80 МПа. Температура нагрева составляла не более 450 °С.

Для определения интервалов оптимального содержания компонентов исследованию подвергались различные составы композита.

Для оценки радиационно-защитных свойств разработанных композиционных материалов изучали коэффициент ослабления материалов по отношению к γ -излучению. Линейный коэффициент ослабления – основной параметр, по которому оценивают защитные характеристики материалов.

Линейный коэффициент ослабления γ -излучения рассчитывали методом математического моделирования, а также экспериментальным путем с использованием гамма-установки УПД-2. Использовали два источника: ^{137}Cs ($E_\gamma = 661$ кэВ) и ^{60}Co ($E_\gamma = 1172$ кэВ).

Теоретически полученные коэффициенты ослабления γ -излучения рассчитывались с использованием данных по плотности и химическому составу композита; энергию γ -излучения принимали от 0,25 до 1,4 МэВ.

ОСНОВНЫЕ ФИЗИКО-МЕХАНИЧЕСКИЕ ХАРАКТЕРИСТИКИ КОМПОЗИТА

Основные физико-механические характеристики полученных композитов приведены в табл. 1.

Таблица 1

Основные физико-механические характеристики разработанных композитов различного состава

Параметры	Содержание хризотила в композите, мас. %		
	10	15	20
	Содержание вольфрамата свинца в композите, мас. %		
	40	35	–
Плотность, г/см ³	6,3	5,9	5,3
Предел прочности при сжатии, МПа	280	410	455
Микротвердость HV, МПа	355	360	365
Пористость, %	0,4	0,6	1
Водопоглощение, %	0	0	0
Термостабильность, °С	400	410	380
Термостойкость, °С, более	370	370	370

Анализ данных табл. 1 показал, что увеличение содержания вольфрамата свинца приводит к увеличению плотности готового композита. Наилучшими конструкционными характеристиками обладает композит без содержания вольфрамата свинца, так как предел прочности при сжатии у данного состава максимален. При введении вольфрамата свинца в композит в количестве 40 мас. % предел прочности при сжатии значительно снижается, практически, в 1,5 раза.

Микротвердость композитов также снижается при увеличении содержания вольфрамата свинца. Однако снижение не превышает 2...3%, что находится в пределах погрешности измерительного прибора и является несущественным изменением. Значение микротвердости поверхностных слоев достаточно велико для композитов различного состава, что говорит о высокой износостойкости поверхности трения всех композитов.

Пористость всех композитов мала и не превышает 1%. Водопоглощение у всех составов композитов равно нулю. Это говорит о том, что разработанный материал достаточно плотный, а все поры либо очень мелкие, либо закрытые. Малое водопоглощение положительно скажется на других свойствах композита, таких как морозостойкость и теплопроводность.

Термостабильность композитов всех составов колеблется около 400 °С и определяется температурой начала размягчения используемой свинецборосиликатной матрицы. При увеличении содержания наполнителей термостабильность незначительно (7...8%) возрастает.

РАСЧЕТ ЛИНЕЙНОГО КОЭФФИЦИЕНТА ОСЛАБЛЕНИЯ γ -ИЗЛУЧЕНИЯ В КОМПОЗИТЕ

Для расчета линейного коэффициента ослабления γ -излучения представим композиционный материал как смесь атомов известного химического состава, выраженных в процентном соотношении. В табл. 2 приведен элементный атомарный химический состав разработанных композитов различного содержания.

Таблица 2

Элементный химический состав разработанных композитов различного содержания

Содержание элементов, %	Содержание хризотила в композите, мас. %		
	10	15	20
	Содержание вольфрамата свинца в композите, мас. %		
	40	35	–
O	18,73	20,14	22,63
Pb	56,06	54,42	61,09
W	17,35	15,93	2,36
B	2,07	2,07	3,32
Si	2,32	2,99	4,26
Mg	1,67	2,51	3,35
Zn	1,25	1,25	1,99
H	0,1	0,15	0,2

Известно, что к основным видам взаимодействия γ -лучей с веществом относятся: фотоэффект, эффект Комптона и образование электронно-позитронных пар.

При энергии, меньше энергии, являющейся порогом рождения пар ($2m_e c^2 \approx 1,022$ МэВ), эффект образования электронно-позитронных пар равен нулю. А при энергии $1,022$ МэВ $< E_\gamma < 1,4$ МэВ он минимален, поэтому им можно пренебречь.

Для расчета коэффициента ослабления потока γ -квантов используем известные формулы, описывающие процессы сечения фотоэффекта и эффекта Комптона в однородном материале [5].

Выражения, описывающие сечения процесса фотоэффекта на атоме, имеют следующий вид:

$$\sigma_{\text{фот}} = 4\pi r_e^2 \alpha^4 Z^5 G_f(E), \quad (1)$$

$$G_f(E) = \frac{(2 + \varepsilon)^{3/2}}{\varepsilon^{7/2}} \left(\frac{4}{3} + (1 + \varepsilon) \frac{\varepsilon - 1}{\varepsilon + 2} \times \left(1 - \frac{1}{2(\varepsilon + 1)\sqrt{\varepsilon(2 + \varepsilon)}} \ln \left(\frac{1 + \varepsilon + \sqrt{\varepsilon(2 + \varepsilon)}}{1 + \varepsilon - \sqrt{\varepsilon(2 + \varepsilon)}} \right) \right) \right), \quad (2)$$

где $\varepsilon = E/m_e \cdot c^2$, E – энергия γ -квантов; $m_e \cdot c^2 = 0,511$ МэВ – энергия покоя электрона; $r_e = e^2/m_e \cdot c^2 = 2,8 \cdot 10^{-13}$ см – классический радиус электрона; $\alpha = 1/137$ – постоянная тонкой структуры. Так как исследуемый композиционный

материал состоит из атомов нескольких элементов (O, Pb, W, B, Si, Zn, H), то в этом случае, используя (2), записываем коэффициент ослабления потока γ -квантов за счет фотоэффекта:

$$\mu_f = 4\pi r_e^2 \alpha^4 N_a \left(\rho_O \frac{Z_O^5}{A_O} + \rho_{Pb} \frac{Z_{Pb}^5}{A_{Pb}} + \rho_W \frac{Z_W^5}{A_W} + \rho_B \frac{Z_B^5}{A_B} + \rho_{Si} \frac{Z_{Si}^5}{A_{Si}} + \rho_{Zn} \frac{Z_{Zn}^5}{A_{Zn}} + \rho_H \frac{Z_H^5}{A_H} \right) G_{for}(E), \quad (3)$$

где ρ_i – плотность соответствующего элемента; Z_i – порядковый номер соответствующего элемента; A_i – атомная масса соответствующего элемента; N_A – число Авогадро, равное $6,02 \cdot 10^{23}$.

Выражение, описывающее сечения процесса комптоновского рассеяния γ -кванта на электроны, имеет следующий вид:

$$\sigma_K = 2\pi r_e^2 \left[\frac{1+\varepsilon}{\varepsilon^2} \left(\frac{2(1+\varepsilon)}{1+2\varepsilon} - \frac{\ln(1+2\varepsilon)}{\varepsilon} \right) + \frac{\ln(1+2\varepsilon)}{2\varepsilon} - \frac{1+3\varepsilon}{(1+2\varepsilon)^2} \right]. \quad (4)$$

Запишем коэффициент ослабления потока γ -квантов вследствие эффекта Комптона, проходящих через исследуемый композитный материал, с учетом, что он состоит из атомов нескольких элементов:

$$\mu_K = N_a \left(\rho_O \frac{Z_O}{A_O} + \rho_{Pb} \frac{Z_{Pb}}{A_{Pb}} + \rho_W \frac{Z_W}{A_W} + \rho_B \frac{Z_B}{A_B} + \rho_{Si} \frac{Z_{Si}}{A_{Si}} + \rho_{Zn} \frac{Z_{Zn}}{A_{Zn}} + \rho_H \frac{Z_H}{A_H} \right) \sigma_K. \quad (5)$$

Суммарный коэффициент ослабления γ -квантов в композите состоит из суммы коэффициентов ослабления от каждого процесса:

$$\mu = \mu_f + \mu_K. \quad (6)$$

На рис. 1–3 показаны данные линейного коэффициента ослабления потока γ -квантов в композитах различного состава, полученные теоретическим расчетом. График зависимости линейного коэффициента ослабления потока γ -квантов от энергии имеет гиперболический характер, а его значения значительно снижаются при увеличении энергии γ -квантов.

Анализ этих рисунков показал, что до энергии $\sim 0,7$ МэВ больший вклад в линейный коэффициент ослабления потока γ -квантов вносит фотоэффект, а при энергии больше $\sim 0,7$ МэВ – более значителен эффект Комптона, а фотоэффект постепенно снижается и стремится к нулю.

На рис. 4 для большей наглядности показаны графики линейного коэффициента ослабления γ -квантов в зависимости от излучаемой энергии для всех трех исследуемых составов.

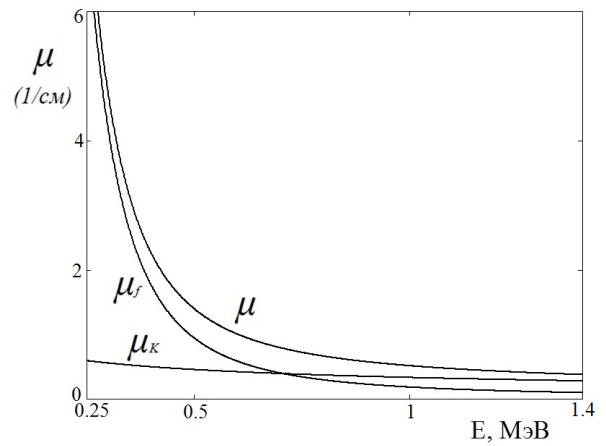


Рис. 1. Линейный коэффициент ослабления γ -квантов (μ) в композите, содержащем 10% хризотила и 40% вольфрамата свинца; вклад за счет μ_f (фотоэффекта) и μ_K (эффекта Комптона)

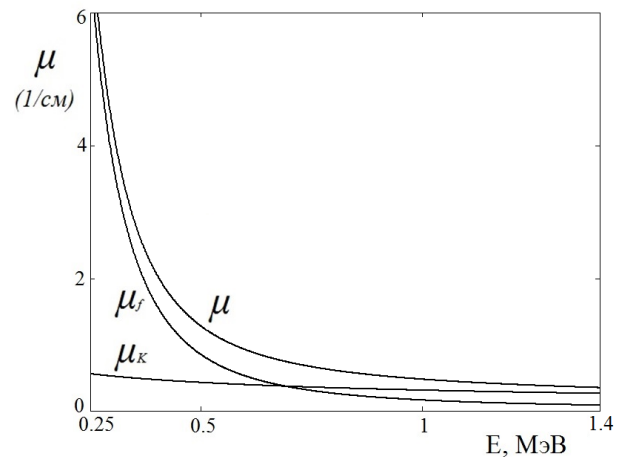


Рис. 2. Линейный коэффициент ослабления γ -квантов (μ) в композите, содержащем 15% хризотила и 35% вольфрамата свинца; вклад за счет μ_f (фотоэффекта) и μ_K (эффекта Комптона)

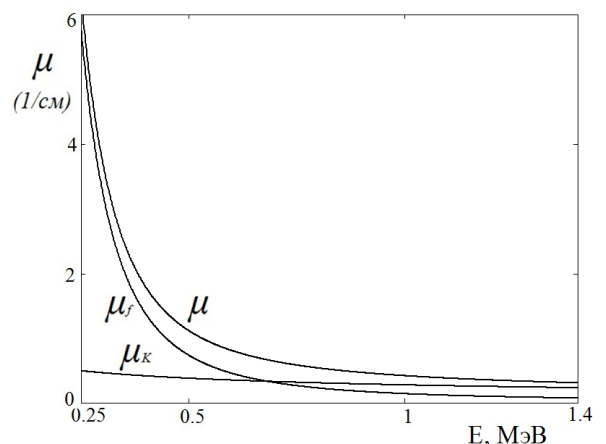


Рис. 3. Линейный коэффициент ослабления γ -квантов (μ) в композите, содержащем 20% хризотила и не содержащем вольфрамата свинца; вклад за счет μ_f (фотоэффекта) и μ_K (эффекта Комптона)

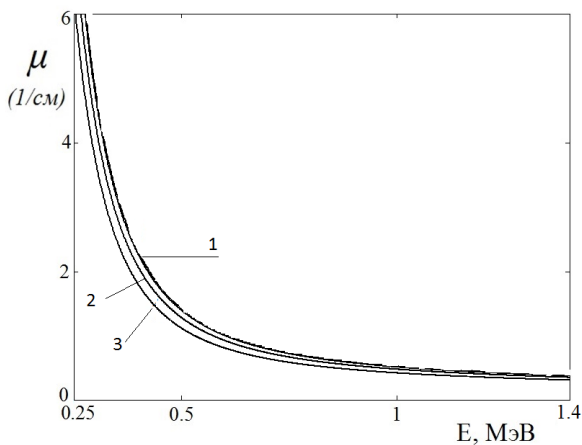


Рис. 4. Линейный коэффициент ослабления γ -квантов (μ) в композитах, содержащих:
 1 – 10% хризотила и 40% вольфрамата свинца;
 2 – 15% хризотила и 35% вольфрамата свинца;
 3 – 20% хризотила и не содержащих вольфрамата свинца

Анализ этого рисунка показал, что наименьшим линейным коэффициентом ослабления γ -квантов обладает композит, который не содержит вольфрама свинца (3), а наибольшим – композит, в котором содержание вольфрамата свинца максимально, (1). Однако кривые линейных коэффициентов ослабления γ -квантов располагаются довольно близко друг к другу, что говорит о практически одинаковых свойствах по отношению к γ -излучению. Особенно это заметно при энергии более 1 МэВ (см. кривые на рис. 4 практически сливаются в одну), тогда как при энергии менее 1 МэВ заметен просвет между кривыми.

ЛИНЕЙНЫЙ КОЭФФИЦИЕНТ ОСЛАБЛЕНИЯ γ -ИЗЛУЧЕНИЯ В КОМПОЗИТЕ, ПОЛУЧЕННЫЙ ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫМ ПУТЕМ

Анализ радиационно-защитных свойств разработанных композитов различного состава по отношению к γ -излучению выполнен на гамма-установке УПГД-2. Источник γ -излучения по ^{137}Cs с МЭД 2520 мкР/ч на расстоянии 1 м (погрешность 6% при доверительной вероятности 0,95). Источник гамма-излучения по ^{60}Co с МЭД 1620 мкР/ч на расстоянии 1 м (погрешность 6% при доверительной вероятности 0,95).

При выполнении измерений были использованы методики, разработанные в ФГУП НИКИЭТ им. Н.А. Доллежала, которые метрологически аттестованы в ГП ВНИИФТРИ Госстандарта РФ.

Измерения ослабления мощности дозы фотонного излучения радиационно-защитным композитом проведены в условиях геометрии широкого пучка γ -квантов. Для исключения вклада в показания детектора рассеянных γ -квантов экспериментальные образцы защищались специальным экраном из свинца толщиной не менее 5 см.

В табл. 3 приведены коэффициенты ослабления γ -излучения от точечных источников ^{137}Cs и ^{60}Co , экспериментально полученные и рассчитанные теоретическим путем по приведенным выше формулам и методикам.

Таблица 3
 Линейный и массовый коэффициенты ослабления γ -квантов в исследуемых композитах

Состав 1: 10% хризотила и 40% вольфрамата свинца				
Энергия, кэВ	Расчетные значения		Экспериментальные значения	
	$\mu_{\text{полн}}/\rho$, $\text{см}^2/\text{г}$	$\mu_{\text{полн}}$, см^{-1}	$\mu_{\text{полн}}/\rho$, $\text{см}^2/\text{г}$	$\mu_{\text{полн}}$, см^{-1}
661	0,141	0,887	0,142	0,896
1172	0,083	0,523	0,085	0,536
Состав 2: 15% хризотила и 35% вольфрамата свинца				
Энергия, кэВ	Расчетные значения		Экспериментальные значения	
	$\mu_{\text{полн}}/\rho$, $\text{см}^2/\text{г}$	$\mu_{\text{полн}}$, см^{-1}	$\mu_{\text{полн}}/\rho$, $\text{см}^2/\text{г}$	$\mu_{\text{полн}}$, см^{-1}
661	0,144	0,852	0,146	0,862
1172	0,088	0,520	0,091	0,535
Состав 3: 20% хризотила и 0% вольфрамата свинца				
Энергия, кэВ	Расчетные значения		Экспериментальные значения	
	$\mu_{\text{полн}}/\rho$, $\text{см}^2/\text{г}$	$\mu_{\text{полн}}$, см^{-1}	$\mu_{\text{полн}}/\rho$, $\text{см}^2/\text{г}$	$\mu_{\text{полн}}$, см^{-1}
661	0,155	0,824	0,157	0,832
1172	0,097	0,519	0,099	0,525

При сравнении коэффициентов, полученных экспериментально и рассчитанных теоретически (см. табл. 3), можно сделать вывод, что экспериментальные значения чуть выше. Это объясняется тем, что теоретический расчет не учитывает взаимодействие компонентов, входящих в состав композита, а рассматривает его как смесь атомов разных элементов.

Несмотря на небольшое различие коэффициентов ослабления γ -квантов в исследуемых композитах по расчетным и экспериментальным данным (не более 2%), можно сделать вывод, что они близки между собой. Это говорит о правильности разработанной модели и возможности ее использования для расчета теоретических значений линейного коэффициента ослабления γ -квантов в различных композитах.

Полученные композиты обладают высокой стойкостью к γ -излучению, оцениваемой по линейному коэффициенту ослабления γ -квантов. Для сравнения μ для железа при энергии $E_{\gamma} = 0,661$ кэВ составляет $0,57 \text{ см}^{-1}$, а при $E_{\gamma} = 1,172$ кэВ – $0,408 \text{ см}^{-1}$, что приблизительно на 20...30% (в зависимости от состава) меньше, чем для разработанных композитов всех составов. Однако разработанные материалы значительно уступают материалу из чистого свинца: μ для свинца при энергии $E_{\gamma} = 0,661$ кэВ составляет $1,18 \text{ см}^{-1}$, а при $E_{\gamma} = 1,172$ кэВ – $0,655 \text{ см}^{-1}$, что меньше, чем для разработанных композитов.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Оценка основных физико-механических показателей разработанного композита различного состава показала, что наилучшими конструктивными характеристиками обладает композит без содержания вольфрамата свинца, так как предел прочности при сжатии у данного состава максимален. Изучение поверхностных характеристик материалов говорит о высокой износостойкости поверхности трения всех композитов.

Для расчета коэффициентов ослабления потока γ -квантов использовали известные формулы, описывающие процессы сечения фотоэффекта и эффекта Комптона в однородном материале; в связи с малой энергией γ -квантов эффектом образования электронно-позитронных пар пренебрегли.

Полученные композиты обладают высокой стойкостью к γ -излучению, оцениваемой по линейному коэффициенту ослабления γ -квантов.

Установлено, что наименьшим линейным коэффициентом ослабления γ -квантов обладает композит, который не содержит вольфрама свинца, а наибольшим – композит, в котором содержание вольфрамата свинца максимально.

При сравнении коэффициентов, полученных экспериментально и рассчитанных теоретически, можно сделать вывод, что они очень близки между собой, а это говорит о правильности разработанной теоретической модели.

Работа выполнена в рамках проектной части государственного задания Минобрнауки в сфере научной деятельности №11.2034.2014/К.

БИБЛИОГРАФИЧЕСКИЙ СПИСОК

1. Р.Н. Ястребинский, В.И. Павленко, А.В. Ястребинская. Радиационно-стойкий конструкционный композиционный материал для защиты атомных реакторов АЭС и хранилищ среднеактивных РАО // *Вопросы атомной науки и техники. Серия «Физика радиационных повреждений и радиационное материаловедение»*. 2015, №2(96), с. 73-76.
2. Ю.М. Бондаренко. Композиционный материал на основе алюминиевой матрицы и высокодисперсных оксидов тяжелых металлов – эффективный материал для формирования радиационно-защитных инженерных барьеров // *Вестник Белгородского государственного технологического университета им. В.Г. Шухова*. 2014, №1, с. 30-34.
3. В.Н. Воеводин. Конструкционные материалы ядерной энергетики – вызов 21 века // *Вопросы атомной науки и техники. Серия «Физика радиационных повреждений и радиационное материаловедение»*. 2007, №2(90), с. 10-22.
4. И.В. Соколенко. Получение нанокристаллических неорганических соединений на примере $PbWO_4$ // *Вестник Белгородского государственного технологического университета им. В.Г. Шухова*. 2014, №4, с. 138-142.
5. К.Н. Мухин. *Экспериментальная ядерная физика: Учебник для вузов. Т. I. Физика атомного ядра*. М.: «Энергоатомиздат», 1983, 616 с.
6. А.П. Черняев. *Взаимодействие ионизирующего излучения с веществом*. М.: «Физматлит», 2004, 152 с.

Статья поступила в редакцию 08.02.2016 г.

ОЦІНКА РАДІАЦІЙНО-ЗАХИСНИХ ВЛАСТИВОСТЕЙ КОМПОЗИЦІЙНОГО МАТЕРІАЛУ

В.І. Павленко, Н.І. Черкашина, А.В. Носков, Р.Н. Ястребінський, І.В. Соколенко

Представлені дані з оцінки радіаційно-захисних властивостей композиційних матеріалів по відношенню до γ -випромінювання. В якості сполучника для синтезу радіаційно-захисних композитів використовували свинецьборосилікатну матрицю, в якості наповнювача – нанотрубчатий хризотил, до структури якого був впроваджений вольфрама свинцю $PbWO_4$. Показано, що всі композити розроблених складів мають гарні фізико-механічні характеристики, такі як межа міцності при стисненні, термостабільність, і можуть використовуватися як конструкційні матеріали. На підставі теоретичного розрахунку побудовані графіки лінійного коефіцієнта ослаблення γ -квантів в залежності від енергії для всіх трьох досліджених складів. Встановлена висока радіаційна стійкість композитів на підставі теоретичних і експериментальних даних у порівнянні з традиційно використовуваними матеріалами в атомній промисловості – залізом, бетоном та ін.

EVALUATION OF RADIATION-SHIELDING PROPERTIES OF THE COMPOSITE MATERIAL

V.I. Pavlenko, N.I. Cherkashina, A.V. Noskov, R.N. Yastrebinski, I.V. Sokolenko

The paper presents the evaluation of radiation-shielding properties of composite materials with respect to γ -radiation. As a binder for the synthesis of radiation-shielding composites we used leadboronsilicate glass matrix. As filler we used nanotubularchrysotile filled with lead tungstate $PbWO_4$. It is shown that all the developed composites have good physical-mechanical characteristics, such as compressive strength, thermal stability and can be used as structural materials. On the basis of theoretical calculation we described the graphs of the γ -quanta linear attenuation coefficient depending on the emitted energy for all investigated composites. We founded high radiation-shielding properties of all the composites on the basis of theoretical and experimental data compared to materials conventionally used in the nuclear industry – iron, concrete, etc.