

ОСЛАБЛЕНИЕ ГАММА-ИЗЛУЧЕНИЯ МНОГОСЛОЙНЫМИ ПОЛИМЕРНЫМИ ДИСПЕРСНО-НАПОЛНЕННЫМИ СТРУКТУРАМИ

А.Ю. Андрианов, В.А. Белоус***

**Днепропетровский национальный университет им. Олеся Гончара,
Днепропетровск, Украина*

E-mail: cder@mail.dnu.dp.ua, факс +38(056)374-98-42, тел. +38(056)374-98-01;

***Институт физики твердого тела, радиационного материаловедения и технологий
ННЦ ХФТИ, Харьков, Украина*

E-mail: nsc@kipt.kharkov.ua, факс +38(057)335-16-88, тел. +38(057)335-35-30

Приведены результаты ослабления гамма-излучения многослойными структурами, состоящими из полимерной матрицы и высокодисперсного наполнителя. Данные структуры, представленные в виде совокупности слоев с градиентным изменением эффективного атомного номера, проявляют анизотропию свойств, связанных с ослаблением потока гамма-излучения низких энергий в нормальном направлении по отношению к плоскости слоев. Реализация структур в конструкционных материалах позволяет получить контейнеры для изоляции радиоактивных отходов и отработанного ядерного топлива, характеризующиеся пониженным весом по сравнению со сталебетонными контейнерами.

АКТУАЛЬНОСТЬ

Согласно данным Министерства топлива и энергетики Украины в 2008 г. вклад атомных электростанций в выработку электроэнергии Украины составил 46,9% в 2008 г. и 48% в 2009 г., что свидетельствует о постепенном развитии отечественной атомной энергетики. Основным фактором, сдерживающим темпы развития данной отрасли, является проблема утилизации радиоактивных отходов (РАО) и отработанного ядерного топлива (ОЯТ). Обращение с РАО и ОЯТ подразумевает широкий комплекс мероприятий, связанных с их сбором, переработкой, кондиционированием, хранением или захоронением в зависимости от выбранной стратегии. Каждый из указанных этапов требует изоляции радиоактивных веществ от окружающей среды, что достигается использованием защитных контейнеров. Современные конструкционные материалы (сталь, бетон), используемые для изготовления контейнеров, не могут гарантировать всего комплекса свойств, необходимых для обеспечения высокой степени изоляции ОЯТ и РАО на протяжении значительного периода времени. Поэтому ведется поиск новых материалов, обладающих высокой коррозионной стойкостью, механической прочностью, герметичностью, а также повышенными удельными по массе радиационно-защитными свойствами.

В направлении, связанном с получением новых радиационно-защитных композитов, в рамках проекта Научно-технологического центра в Украине сотрудниками ННЦ «Харьковский физико-технический институт» проводились исследования процессов прохождения гамма-излучения сквозь многослойные полиметаллические структуры. В результате этих исследований было установлено, что интенсивность прохождения гамма-излучения зависит от порядка расположения металлических слоев с разным атомным номером в области низких энергий. Так, при расположении совокупности металлических слоев в порядке возрастания атомного номера от источника к детектору интенсивность

гамма-излучения, фиксируемая на детекторе, имеет меньшее значение, чем при расположении слоев в обратном порядке (уменьшение атомного номера от источника к детектору). Данные эффекты были связаны с повышением альбедо гамма-излучения от границы раздела металлов со значительно отличающимся атомным номером.

ЦЕЛЬ

Используя в качестве наполнителей полимерных матриц порошки тяжелых металлов, можно получать материалы с различным эффективным атомным номером в достаточно широком интервале. Путем комбинирования разнонаполненных полимерных слоев образуются радиационно-защитные структуры, схожие с исследованными ранее многослойными полиметаллическими. Данная публикация посвящена рассмотрению процессов прохождения гамма-излучения сквозь многослойные полимерные дисперсно-наполненные структуры, которые, по сути, являются слоистыми полимерными композитами (СПК). Основной целью научно-практических работ, связанных с этими исследованиями, является создание радиационно-защитных структур, обладающих повышенным массовым коэффициентом ослабления по сравнению с материалами, используемыми в конструкциях контейнеров для изоляции РАО и ОЯТ. Основные задачи исследования следующие: определение зависимости ослабления гамма-излучения от количества полимерных разнонаполненных слоев в СПК при условии обеспечения тождественности химического состава исследуемых образцов СПК; определение качества наполнения слоев в СПК, обеспечивающих наибольшее ослабление гамма-излучения; выявление диапазона гамма-излучения, в котором порядок расположения слоев в СПК влияет на степень прохождения гамма-излучения.

ПРЕДМЕТ ИССЛЕДОВАНИЯ И МЕТОДИКА

Предметом исследования являлись многослойные образцы, включающие эпоксидную смолу (по ТУ У 23981176.015-2008) и наполнитель, состоящий из смеси высокодисперсного порошка вольфрама и мела. Сред-

нее содержание наполнителя в каждом образце составляло 32% при среднем содержании вольфрама в наполнителе 45%. Таким образом, по химическому составу все образцы идентичны, но имеют разное распределение тяжелого вольфрама в объеме материала (табл. 1).

Таблица 1

Характеристика образцов слоистого полимерного композита

Номер образца	Кол-во слоев	Содержание наполнителя в слое	Содержание вольфрама в наполнителе	Содержание вольфрама в слое
G5	5	Изменялось линейно от 16% для первого слоя до 48% для последнего	45%	Изменялось линейно от 7,2% для первого слоя до 21,6% для последнего
G10	10	Изменялось линейно от 14% для первого слоя до 50% для последнего	45%	Изменялось линейно от 6,3% для первого слоя до 22,5% для последнего
G32	10	32%	Изменялось линейно от 0% для первого слоя до 90% для последнего	Изменялось линейно от 0% для первого слоя до 28,8% для последнего

Сущность метода исследования заключается в сравнении кратностей ослабления гамма-излучения в широком интервале энергий одним образцом, но установленным разными сторонами по отношению к источнику излучения. Измерения проводились в геометрии неколлимированного пучка гамма-излучения в диапазоне от 25 до 660 кэВ, который программно разделялся на 27 энергетических диапазонов шириной 25 кэВ. Для измерений использовался гамма-спектрометр СЭГ-50П с полупроводниковым германий-литиевым детектором ДГДК-60В. В качестве источника гамма-излучения использован фрагмент черной керамики лавообразных топливосодержащих материалов (ЛТСМ), возникших в результате аварии на 4-м блоке Чернобыльской АЭС.

Эффективность ослабления гамма-излучения при расположении образца одной из сторон к источнику определялась следующим выражением:

$$\alpha = \frac{k_L}{k_H},$$

где k_L - кратность ослабления гамма-излучения образцом при его расположении к источнику «легким» слоем, т.е. слоем, содержащим наименьшее количество вольфрама; k_H - кратность ослабления гамма-излучения образцом при его расположении к источнику «тяжелым» слоем, т.е. слоем, содержащим наибольшее количество вольфрама.

Для однослойных образцов значение параметра α равно 1 в пределах погрешности измерения кратности ослабления. Для многослойных образцов параметр α отличается от 1 за пределами погрешности измерения. Следует отметить, что погрешность измерения кратности ослабления одного и того же образца, но на разных энергиях гамма-излучения будет различаться. Поэтому в качестве критерия, определяющего предел погрешности измерения, был использован параметр $\bar{\alpha}$, рассчи-

тываемый как средняя величина всех значений α_i , определенных для i -го диапазона энергий шириной 25 кэВ. Если для i -го диапазона выполняется неравенство $\alpha_i > \bar{\alpha}$, то следует считать, что в этом диапазоне энергий увеличивается эффективность ослабления гамма-излучения при расположении образца одной из двух его сторон к источнику. Если выполняется неравенство $\alpha_i \leq \bar{\alpha}$, то кратность ослабления при расположении образца любой стороной к источнику будет одинаковой (или совпадать в пределах погрешности измерения).

РЕЗУЛЬТАТЫ ИССЛЕДОВАНИЯ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

В результате анализа экспериментальных данных измерения кратности ослабления было установлено, что параметр α отличается от 1 только на низких энергиях гамма-излучения и только для образцов, состоящих из 10 слоев. Так же как и для многослойных полиметаллических структур, наибольшая кратность ослабления наблюдается при расположении образцов «легкими» слоями к источнику гамма-излучения. Среднее значение параметра $\bar{\alpha}$ составило 1,062 для образца G10 и 1,092 – для G32. Исходя из значений $\bar{\alpha}$ для указанных образцов были определены границы спектра гамма-излучения, на котором порядок расположения разнонаполненных слоев в СПК влияет на степень прохождения гамма-излучения. Для образца G10 данный эффект наблюдается при энергиях до 275 кэВ, для образца G32 – до 300 кэВ (рис. 1).

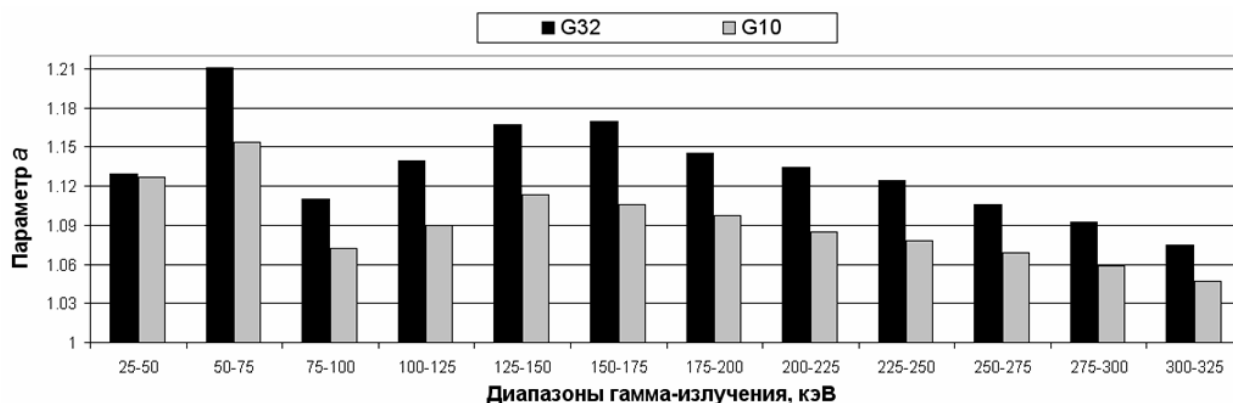


Рис. 1. Значения параметра α на разных энергиях гамма-излучения

Наибольшая разница в величинах кратности ослабления, составляющая не менее 10% в пределах энергий гамма-излучения до 300 кэВ, характерна для образца G32, в котором послойное содержание вольфрама увеличивалось от источника к детектору с наибольшим шагом, равным 3,2%. Для образца G10 эта величина составляет не менее 6%.

Согласно приведенной диаграмме параметр α имеет экстремум для образца G10 в диапазоне

125...150 кэВ, для образца G32 – 150...175 кэВ. Скачок в диапазоне 50...75 кэВ связан с наличием у вольфрама К-линии поглощения на энергии 69,5 кэВ, что подтверждается таким же скачком на полученных спектрах гамма-излучения (рис. 2). В данном диапазоне различия в кратностях ослабления для образцов G32 и G10 достигают соответственно 21 и 15%.

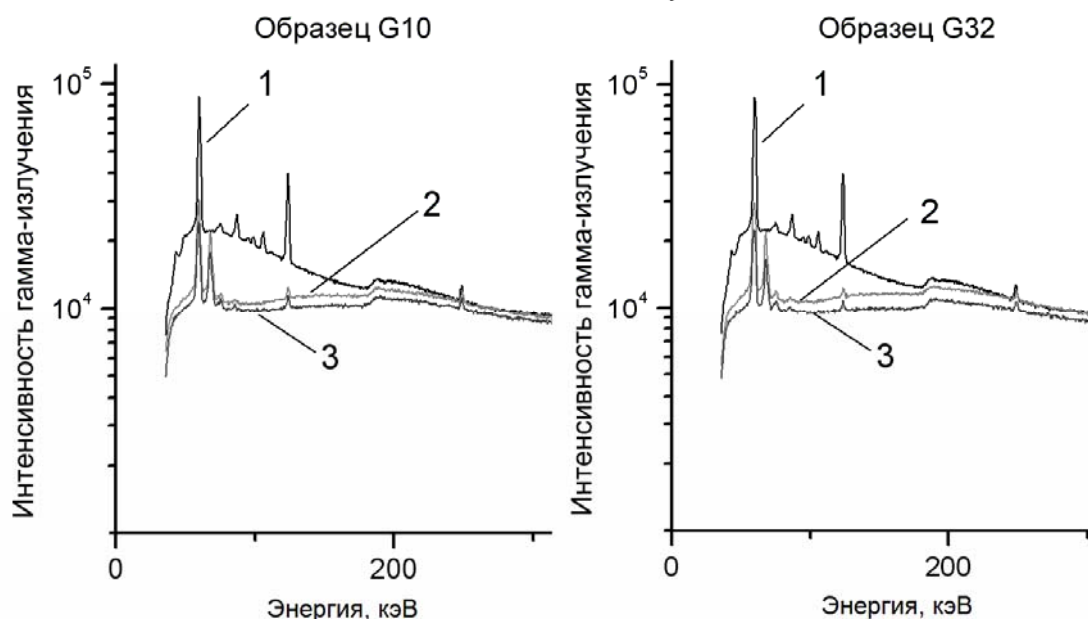


Рис. 2. Спектры интенсивности гамма-излучения, фиксируемые детектором при исследовании образцов слоистого полимерного композита: 1 – без образца (спектр от источника ЛТСМ); 2 – образец расположен к источнику «тяжелой» стороной; 3 – образец расположен к источнику «легкой» стороной

Полученные результаты связаны с альбедо гамма-излучения, что является следствием процессов одно- и многократного рассеяния гамма-квантов в СПК. Согласно [1] альбедо монотонно возрастает с увеличением толщины материала, однако большая часть обратно рассеянных гамма-квантов отражается в тонком поверхностном слое вещества. При достижении толщины материала, равном 1...2 длины свободного пробега в направлении движения первичных квантов, альбедо достигает насыщения. Величина альбедо для легких материалов имеет большую величину, чем для тяжелых, что обусловлено разным отношением сечений рассеяния к поглощению. В легких материалах первичные гамма-кванты проникают на большую глубину, однако,

отражаясь, испытывают меньше актов поглощения на обратном пути, чем это происходило бы в тяжелых материалах, характеризующихся высоким сечением поглощения. Для рассматриваемого материала с характерной толщиной и химическим составом увеличение альбедо приводит к снижению количества гамма-квантов, достигающих детектора. Таким образом, при расположении образцов к источнику «легкими» слоями альбедо гамма-излучения имеет большую величину, чем при расположении в обратном направлении, и соответственно кратность ослабления гамма-излучения в первом случае будет большей.

Для исследуемых образцов СПК плотностью $2,0 \text{ г/см}^3$ толщина составляет 1 см, а линейный коэффициент ослабления при энергии 60 кэВ – около 4 см^{-1} , и соответственно средняя длина свободного пробега гамма-квантов равна 0,25 см или 2...3 слоям материала. Состав этих слоев и обуславливает величину альbedo гамма-излучения. При увеличении энергии гамма-квантов длина свободного пробега возрастает, что приводит к выравниванию альbedo и соответственно кратности ослабления для любой стороны рассматриваемого образца.

Для исследуемых образцов можно оценить приблизительно величину энергии, при которой начинается монотонное снижение альbedo гамма-излучения. Очевидно, что эта энергия будет соответствовать такому линейному коэффициенту ослабления, при котором длина свободного пробега гамма-кванта будет приходиться на половину толщины исследуемого образца. На этой глубине слои материала будут характеризоваться

приблизительно такими же удельными ослабляющими свойствами, как и весь материал. Для образца G32, состоящего из 10 слоев общей толщиной 1 см, искомая длина свободного пробега будет составлять 0,5 см, а соответствующий линейный коэффициент ослабления равен 2 см^{-1} . Исходя из данных табл. 2, в которой приведены линейные коэффициенты ослабления образца G32, измеренные для моноэнергетических линий (60 кэВ от источника гамма-излучения ^{241}Am , 122 и 136 кэВ – от ^{57}Co , 186 и 241 кэВ – от ^{226}Ra), снижение величины альbedo начинается при энергиях около 140...150 кэВ. Выполненная сравнительная оценка хорошо коррелирует с экспериментальными данными, приведенными в диаграмме (см. рис. 1). Более точные значения можно получить, используя метод Монте-Карло и базу данных сечений гамма-излучения для элементов, входящих в состав СПК.

Таблица 2

Линейные коэффициенты ослабления в зависимости от энергии гамма-излучения для образца G32

Энергия гамма-излучения, кэВ	60	122	136	186	241
Линейный коэффициент ослабления, см^{-1}	3,79	2,82	2,16	1,09	0,65

ВЫВОДЫ И РЕКОМЕНДАЦИИ

Защитные структуры, состоящие из совокупности слоев с разным эффективным атомным номером, проявляют анизотропию свойств, связанных с ослаблением потока гамма-излучения низких энергий в нормальном направлении по отношению к плоскости слоев. Данное явление не следует считать неординарным, поскольку связано с различными сечениями рассеяния гамма-квантов в веществах с разным атомным номером. Для обеспечения наибольшей степени анизотропии свойств в сторону повышения степени ослабления гамма-излучения необходимо, чтобы эффективный атомный номер материала изменялся от как можно меньшего значения до наибольшего в направлении распространения потока гамма-излучения. Очевидно, что толщина материала должна иметь граничные размеры, соизмеримые со средними длинами свободного пробега гамма-квантов.

Наибольшую защитную эффективность многослойные материалы будут проявлять в рентгенозащитных изделиях, там, где энергия основных квантов до 300 кэВ. Многослойные материалы могут также эффективно применяться и для средств защиты, работающих в условиях гамма-фона повышенных энергий. На диаграмме (рис. 3) приведены удельные защитные свойства при средних энергиях гамма-излучения одного из вариантов, разработанных СПК в сравнении с используемыми на сегодняшний день материалами для средств изоляции РАО и ОЯТ.

Средние энергии выбраны не случайно: для большинства РАО основными источниками гамма-излучения являются ^{137}Cs и ^{60}Co , однако последний имеет в шесть раз меньший период полураспада. В спектре гамма-излучения ОЯТ реакторов ВВЭР также преобладают средние энергии в пределах 600...700 кэВ, на которые приходится до 75% общего выхода при выдержке топлива 3 года и до 85% при выдержке топлива

в течение 10 лет [2]. Используя разработанный материал как самостоятельно, так и вместе с другими конструкционными материалами, можно получить контейнеры приблизительно на 20...30% меньшего веса. Кроме того, сама многослойная структура, армированная стеклотканью, характеризуется высокими механическими свойствами и повышенной коррозионной и химической стойкостью.

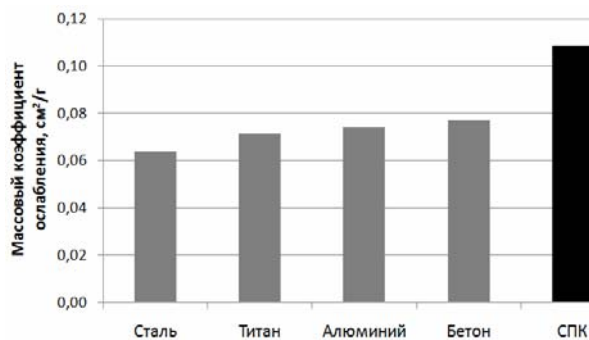


Рис. 3. Удельные по массе защитные свойства слоистого полимерного композита плотностью $3,2 \text{ г/см}^3$ в сравнении с различными конструкционными материалами при энергии гамма-излучения источника ^{137}Cs (662 кэВ)

ЛИТЕРАТУРА

1. Н.Г. Гусев, В.П. Машкович, А.П. Суворов. *Защита от ионизирующих излучений*. Том 1. *Физические основы защиты от излучений*. М.: «Атомиздат», 1980, 461 с.
2. *Радиационные характеристики облученного ядерного топлива*: Справочник. М.: «Энергоатомиздат», 1983, 382 с.

Статья поступила в редакцию 20.04.2010 г.

ОСЛАБЛЕННЯ ГАММА-ВИПРОМІНЮВАННЯ БАГАТОШАРОВИМИ ПОЛІМЕРНИМИ ДИСПЕРСНО-НАПОВНЕНИМИ СТРУКТУРАМИ

А.Ю. Андріанов, В.А. Білоус

Представлені результати ослаблення гамма-випромінювання багатошаровими структурами, що складаються з полімерної матриці та високодисперсного наповнювача. Ці структури, що представлені у вигляді сукупності шарів з градієнтною зміною ефективного атомного номера, проявляють анізотропію властивостей, які пов'язані з ослабленням потоку гамма-випромінювання низьких енергій в нормальному напрямку по відношенню до площини шарів. Реалізація структур в конструкційних матеріалах дозволяє одержувати контейнери для ізоляції радіоактивних відходів та відпрацьованого ядерного палива, які характеризуються зниженою вагою в порівнянні з сталобетонними контейнерами.

ATTENUATION OF GAMMA-RADIATION BY MULTILAYER POLYMER DISPERSIFIED STRUCTURES

A.Yu. Andrianov, V.A. Belous

The results of attenuation of gamma-radiation in multilayered structures containing polymer matrix and superdispersed powders are presented. These structures, which represented as combination of layers with gradient of effective atomic number, reveal anisotropy of attenuation of low-energy gamma-radiation in normal direction relative to plane of layers. Application of structures in engineering materials of containers for radioactive waste or spent fuel provide reduction of their weight comparatively of containers made from steel and concrete.