



УДК 691:[628.518:539.16]

Е.В. Королев – доктор технических наук, профессор**А.Н. Гришина** – аспирант**Пензенский государственный университет архитектуры и строительства (ПГУАС)**

ОСНОВНЫЕ ПРИНЦИПЫ СОЗДАНИЯ РАДИАЦИОННО-ЗАЩИТНЫХ МАТЕРИАЛОВ. ОПРЕДЕЛЕНИЕ ЭФФЕКТИВНОГО ХИМИЧЕСКОГО СОСТАВА

АННОТАЦИЯ

В статье представлены результаты выбора эффективных элементов для защиты от ионизирующего излучения, предложены составы радиационно-защитных материалов для ослабления различных видов излучения. Установлены зависимости эффективности ослабления излучения жидкостекольным композитом от характеристик вяжущего и его содержания в системе. Сформулированы основные принципы создания радиационно-защитных композитов.

КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА: Ионизирующее излучение, защитные характеристики, эффективность, химические элементы, состав материала.

E.V. Korolev – doctor of technical sciences, professor**A.N. Grishina** – post-graduate student**Penza State University of Architecture and Construction (PSUAC)**

BASIC PRINCIPLES OF RADIATION PROTECTIVE MATERIALS CREATION. DETERMINATION OF THE EFFICIENT CHEMICAL COMPOSITION

ABSTRACT

The results of selection of the efficient elements for protection from radiation are presented; compositions of radiation protective materials for different types of radiation weakening are offered. The dependencies of radiation weakening efficiency in case of liquid glass composites upon the binding material characteristics and its presence in the system are determined. The basis principles of creation of radiation protective composites are formulated.

KEYWORDS: Ionizing radiation, protective characteristics, efficiency, chemical elements, material composition.

Введение

Широкое использование на практике источников ионизирующего излучения и приоритетное значение атомной промышленности и энергетики требуют уделять особое внимание вопросам обеспечения экологической безопасности на всех этапах атомного цикла. Важным элементом системы экологической безопасности является защитный материал, который в зависимости от предназначения должен обеспечивать функционирование объекта и (или) надёжное захоронение образующихся радиоактивных отходов.

Специфика взаимодействия ионизирующего излучения с веществом накладывает определённые ограничения на возможности материаловедов в синтезе защитных материалов. Очевидно, что структура радиационно-защитного материала должна быть плотной, обеспечивающей эффективное поглощение излучения. При этом такие материалы, вследствие значительных структурных преобразований, не будут обладать высокой стойкостью. Кристаллическая структура радиационно-стойкого материала должна быть рыхлой, обеспечивая

относительную «прозрачность» материала к излучению. Отсюда очевидно, что эффективность защитного материала определяется видом излучения, предназначением и химическим составом композита.

Выбор химических элементов. Практика эксплуатации особо тяжёлых и гидратных бетонов показывает, что эффективность таких материалов определяется сочетанием лёгких, средних и тяжёлых элементов [1]. При выборе таких элементов необходимо учитывать как их защитные характеристики, так и доступность (объём добычи). Одним из возможных обобщённых критериев выбора химических элементов для радиационно-защитных материалов является функционал:

$$k_{ef} = \frac{(V_d)_i}{(V_d)_3} \left[\alpha_1 \frac{(\mu_\gamma)_i}{(\mu_\gamma)_3} + \alpha_2 \frac{(\Sigma_6)_i}{(\Sigma_6)_3} + \alpha_3 \frac{(\Sigma_T)_i}{(\Sigma_T)_3} \right], \quad (1)$$

где μ_γ – коэффициент ослабления гамма-излучения; Σ_6

– коэффициент выведения быстрых нейтронов; Σ_T –



Таблица 1

Значения k_{ef} для некоторых элементов

Значения k_{ef}			
1-0,1	0,1-0,01	0,01-0,001	0,001-0,0001
H	C, Na, Cl, Mn, Fe	N, O, Al, S, K, Ca, Pb	B, F, Cu, Cr, Zn, Ba, Si

коэффициент выведения тепловых нейтронов; V_d – объём добычи элемента; α_i – коэффициенты весоности; индексы «i» и «э», соответственно, относятся к выбираемому и эталонному элементам.

Базами данных могут служить геологические сведения и физические свойства элементов, например [2, 3]. Для расчёта по функционалу (1) эталонными элементами выбраны: плутоний (при энергии гамма-излучения 0,5 МэВ – $\mu_\gamma = 82,2 \text{ см}^{-1}$; при энергии 1,0 МэВ – $\mu_\gamma = 32,4 \text{ см}^{-1}$; при энергии 2,0 МэВ – $\mu_\gamma = 19,6 \text{ см}^{-1}$), гадолиний ($\Sigma_T = 49000 \text{ барн}$) и водород ($\Sigma_0 = 0,344 \text{ см}^{-1}$).

Анализ расчётных данных показывает, что значения критерия эффективности имеют существенный разброс: большинство элементов имеют значение $k_{ef} < 0,0001$. Только 20 элементов обладают достаточно высокими значениями k_{ef} (табл.1).

Также следует отметить, что распределение элементов по атомной массе соответствует основным положениям космохимии [4] (наибольшее количество химических элементов относятся к лёгким и средним элементам).

Анализ справочных данных (рис. 2) показывает, что радиационно-защитные свойства химических элементов для каждого вида излучения (кроме тепловых нейтронов) изменяются в зависимости от заряда ядра атома: с его увеличением эффективность защиты от гамма-излучения возрастает, а коэффициент выведения быстрых нейтронов уменьшается.

Это вызывает естественные сложности при определении химического состава защитного композита: при использовании критерия

$$k' = \frac{1}{3} \cdot \left[\frac{(m_g)_i}{(m_g)_s} + \frac{(\Sigma_0)_i}{(\Sigma_0)_s} + \frac{(\Sigma_T)_i}{(\Sigma_T)_s} \right]$$

элементами, эффективными для защиты от ионизирующего излучения, являются: водород, свинец, кремний, а при использовании критерия вида:

$$k'' = \sqrt[3]{\frac{(m_g)_i}{(m_g)_s} \cdot \frac{(\Sigma_0)_i}{(\Sigma_0)_s} \cdot \frac{(\Sigma_T)_i}{(\Sigma_T)_s}}$$

эффективные элементы – кремний, хлор, марганец.

Очевидно, что на основе указанных элементов синтезировать защитный композит с высокими показателями эксплуатационных свойств затруднительно.

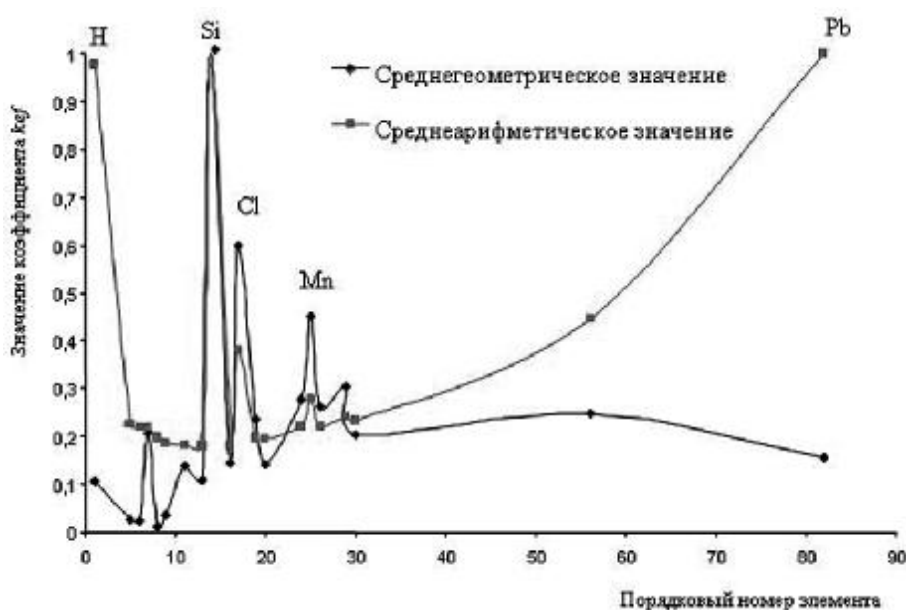


Рис. 1

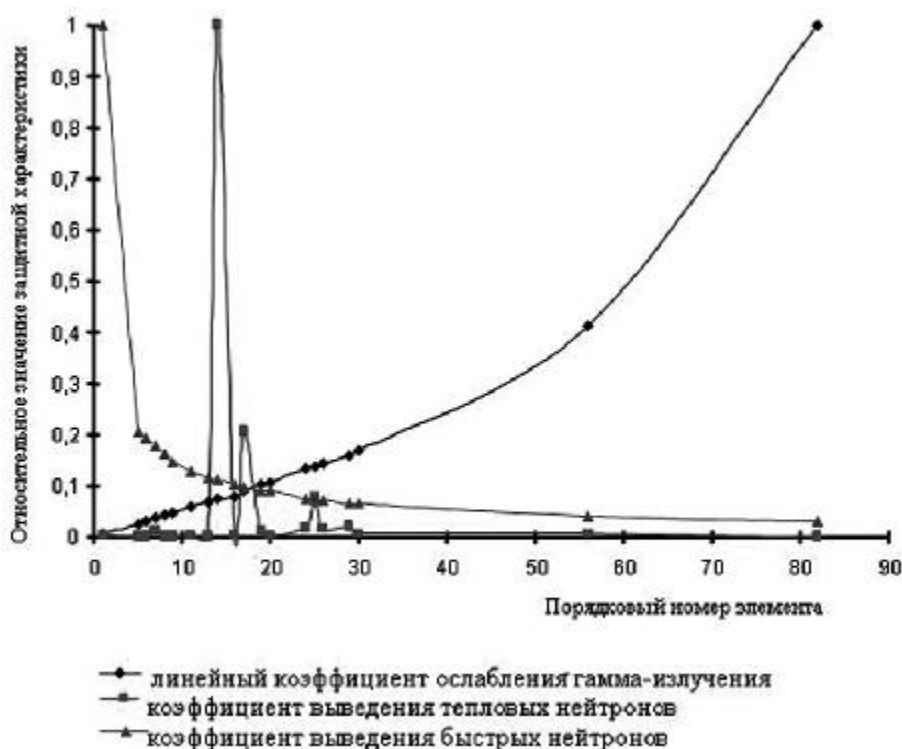


Рис. 2

Определение химического состава композита.

Учитывая аддитивное влияние каждого элемента на величину защитных характеристик логично предположить*, что идеальный защитный материал должен содержать водород, кремний и свинец в равных количествах. Установление рецептурных ограничений на содержание отдельных указанных химических элементов приводит к пропорциональному увеличению содержания оставшихся эффективных элементов. Отсюда очевидно, что остальные химические элементы (кроме водорода, кремния и свинца) в композите будут содержаться в микроколичествах, выполняя при этом функции легирующих элементов, модификаторов и т.д.

Важным свойством, определяющим эффективность материала, является однородность состава, обеспечивающаяся равномерным распределением компонентов в объеме композита. Рациональным способом однородного распределения элементов, содержащихся в микроколичествах, является их размещение на высокоразвитой границе раздела фаз. Указанное предполагает целесообразность увеличения дисперсности специальных наполнителей и (или) предварительную обработку их поверхности, и синтез наноструктур.

*Отсюда также становится очевидным правомерность использования результатов определения эффективных элементов как среднеарифметического значения вкладов отдельных защитных характеристик.

Одним из вяжущих веществ, содержащих эффективные элементы (например, водород и кремний) является традиционно применяемое в строительной индустрии [5, 6], а также для изготовления радиационно-защитных бетонов является жидкое стекло. Его химический состав определяет количества натрия, кремния, кислорода и водорода в композите. Учитывая указанное и используя формулы для расчёта защитных характеристик ослабления излучения

$$M_z = c_k \sum_{i=1}^{20} P_i \left(\frac{M}{c} \right)_i;$$

$$\Sigma_0 = \sum_{i=1}^{20} P_i (\Sigma_0)_i;$$

$$\Sigma_T = \sum_{i=1}^{20} P_i (\Sigma_T)_i,$$

(где P_i – содержание элемента; $\left(\frac{\mu}{\rho} \right)_i$ – массовый

коэффициент ослабления гамма-излучения химическим элементом; ρ_k – средняя плотность композита), вычислены составы жидкостеклянных композитов, имеющие максимальные значения обобщённого коэффициента эффективности ослабления



Таблица 2

Составы радиационно-защитных композитов на основе жидкого стекла и их защитные характеристики

Компоненты	Защитные характеристики, %												Средние эффективные	
	П	Q	U ₂₃₂	U ₂₃₅	U ₂₃₈	U ₂₃₅₊₂₃₈	U ₂₃₅₊₂₃₈₊₂₃₂	U ₂₃₅₊₂₃₈₊₂₃₂₊₂₃₅	U ₂₃₅₊₂₃₈₊₂₃₂₊₂₃₅₊₂₃₈	U ₂₃₅₊₂₃₈₊₂₃₂₊₂₃₅₊₂₃₈₊₂₃₅	U ₂₃₅₊₂₃₈₊₂₃₂₊₂₃₅₊₂₃₈₊₂₃₅₊₂₃₈	U ₂₃₅₊₂₃₈₊₂₃₂₊₂₃₅₊₂₃₈₊₂₃₅₊₂₃₈₊₂₃₅	$\frac{M_{Si}}{M_{Si+H_2O}}$	$\frac{M_{Si}}{M_{Si+H_2O}+M_{H_2O}}$
Компоненты														
Состав № 1 (содержание жидкого стекла $M_{H_2O} = 25\%$, $M_{Si} = 75\%$ $\rho(\text{г/см}^3) = 4,5$)	0,70	1,02	4,42	6,51	1,02	1,02	1,02	1,02	1,02	1,02	1,02	1,02	11,06	1,22
Состав № 2 (содержание жидкого стекла $M_{H_2O} = 25\%$, $M_{Si} = 75\%$ $\rho(\text{г/см}^3) = 4,5$)	1,35	1,35	4,41	6,25	1,35	1,35	1,35	1,35	1,35	1,35	1,35	1,35	10,45	1,28
Состав № 3 (содержание жидкого стекла $M_{H_2O} = 25\%$, $M_{Si} = 75\%$ $\rho(\text{г/см}^3) = 4,5$)	0,61	1,67	3,11	9,50	1,67	1,67	1,67	1,67	1,67	1,67	1,67	1,67	11,27	1,38

Примечания: * – при энергии гамма-квантов 1МэВ; цветом выделены эффективные элементы, а также максимальные значения защитной характеристики отдельного вида излучения; $m(\text{H}_2\text{O})$ – содержание воды в композите; M_{Si} – силикатный модуль жидкого стекла.



$$k_{ef} = \bar{\sigma}_1 \frac{[M(E_g)_i]}{[M(E_g)_{pb}]} + \bar{\sigma}_2 \frac{(\Sigma_6)_i}{(\Sigma_6)_H} + \bar{\sigma}_3 \frac{(\Sigma_7)_i}{(\Sigma_7)_{Si}} \rightarrow \max. \quad (2)$$

Анализ расчётных данных показывает, что значения k_{ef} зависят от количества жидкого стекла P_w (5...50%) и его силикатного модуля M_{Si} (1...15):

Для смешанного гамма-нейтронного (быстрые и тепловые нейтроны) излучения ($a_1 = a_2 = a_3 = 0,33$ по уравнению (2))

$$k_{ef} = \left(9 \cdot 10^{-7} M_{Si}^3 + 3 \cdot 10^{-5} M_{Si}^2 + 3 \cdot 10^{-4} M_{Si} - 2,4 \cdot 10^{-3} \right) \cdot P_w + 0,3364 - 1 \cdot 10^{-6} \cdot M_{Si}^4 + 3 \cdot 10^{-5} M_{Si}^3 - 2 \cdot 10^{-4} M_{Si}^2 + 6 \cdot 10^{-6} M_{Si};$$

Для смешанное гамма-нейтронного (быстрые нейтроны) излучения ($a_1 = a_2 = 0,5$)

$$k_{ef} = -0,0042 \cdot P_w + 0,5088 - 4 \cdot 10^{-7} \cdot M_{Si}^4 + 10^{-5} M_{Si}^3 - 2 \cdot 10^{-4} M_{Si}^2 + 0,0009 M_{Si};$$

Для смешанного гамма-нейтронное (тепловые нейтроны) излучения ($a_1 = a_3 = 0,5$)

$$k_{ef} = \left(2 \cdot 10^{-6} M_{Si}^3 + 6 \cdot 10^{-5} M_{Si}^2 + 6 \cdot 10^{-4} M_{Si} - 4,7 \cdot 10^{-3} \right) \cdot P_w - 0,4513 - 4 \cdot 10^{-4} \cdot M_{Si}^4 + 1,18 \cdot 10^{-2} M_{Si}^3 - 13,48 \cdot 10^{-2} M_{Si}^2 + 0,6243 M_{Si};$$

Для нейтронного (быстрые и тепловые нейтроны) излучения ($a_2 = a_3 = 0,5$)

$$k_{ef} = \left(10^{-6} M_{Si}^3 + 4 \cdot 10^{-5} M_{Si}^2 + 4 \cdot 10^{-4} M_{Si} - 0,3 \cdot 10^{-3} \right) \cdot P_w + 0,1411 - 5 \cdot 10^{-8} \cdot M_{Si}^4 + 10^{-6} M_{Si}^3 + 2 \cdot 10^{-6} M_{Si}^2 + 0,0002 M_{Si};$$

Составы некоторых жидкостекляных композитов, а также защитные характеристики приведены в табл. 2.

Анализ табл. 2 показывает, что обеспечить высокую эффективность защиты от ионизирующего излучения можно формированием многослойной конструкции, в которой каждый слой имеет высокие защитные характеристики к определённому виду излучения. При этом изменение рецептуры слоя незначительно.

Анализ полученных данных позволяет сформулировать принципы создания радиационно-защитных материалов:

1) Химический и фазовый составы материала должны быть эффективными и определяться фактической материально-технической и ресурсной базой.

2) Фазовый состав должен обеспечивать получение композита с заданными показателями качества (совокупностью эксплуатационных свойств).

3) Распределение химических элементов по объёму радиационно-защитного материала (как в микро-, так и в макрообъёме) должно быть однородным.

4) Размещение химических элементов, содержащихся в микроколичествах, должно осуществляться на границах раздела фаз.

5) Формирование структуры материала с минимальными внутренними напряжениями должно осуществляться путём уменьшения размеров частиц дисперсной фазы.

6) Применение многокомпонентных дисперсных фаз нецелесообразно вследствие существенного снижения устойчивости технологического процесса изготовления материала (воспроизводимости технологии).

7) Эффективность радиационной защиты повышается при использовании многослойных композиционных материалов, в которых индивидуальные слои эффективно поглощают только определённый вид излучения. При этом изделие должно работать как монолитный материал.

Литература

1. Прошин А.П., Демьянова В.С., Калашников Д.В. Особо тяжелый высокопрочный бетон для защиты от радиации вторичных ресурсов. – Пенза: ПГУАС, 2004. – 140 с.
2. Немец О.Ф., Гофман Ю.В. Справочник по ядерной физике. – Киев: Наукова думка, 1975. – 414 с.
3. Дж. Эмсли. Элементы. – М.: Мир, 1993. – 156 с.
4. Ахметов Н.С. Неорганическая химия. – М.: Высшая школа, 1969. – 638 с.
5. Субботкин М.И., Курицына Ю.С. Кислотоупорные бетоны и растворы на основе жидкого стекла. – М.: Стройиздат, 1967. – 135 с.
6. Корнеев В.И., Данилов В.В. Производство и применение растворимого стекла. Жидкое стекло. – Л.: Стройиздат, Ленингр. отд-ние, 1991. – 176 с.