

ИССЛЕДОВАНИЕ СВОЙСТВ ВТОРИЧНОГО ПОЛИЭТИЛЕНА ВЫСОКОЙ ПЛОТНОСТИ В МАТЕРИАЛАХ ЗАЩИТЫ ОТ ИОНИЗИРУЮЩЕГО ИЗЛУЧЕНИЯ

Балачков М.М., Мельникова А.С., Смыковская В.О., Юрченко М.Д.

НИ ТПУ,
634050, г. Томск, проспект Ленина, д. 30



В настоящее время радиационные технологии используются во многих областях промышленности, науки и техники. Использование радиационных технологий связано с дозовыми нагрузками на персонал, в связи с чем существует необходимость развития материальной базы защитных материалов и переход к новым, более эффективным и перспективным. В работе предложено для защитных целей использовать пластик из вторичного сырья, получаемый путем термической переработки исходного сырья. Плотность полученных образцов составила от $0,887 \pm 0,007$ до $0,909 \pm 0,007$ г/см³. В экспериментах по исследованию ослабления гамма-излучения образцами определены линейные и массовые коэффициенты ослабления гамма-излучения переработанного пластика. Для энергий 59, 122, 344, 1409 кэВ значения массовых коэффициентов ослабления гамма-квантов составили $0,1703 \pm 0,0011$, $0,180 \pm 0,024$, $0,121 \pm 0,016$, $0,03 \pm 0,05$ см²/г соответственно. Установлено, что для энергий гамма-излучения 122, 344 и 1409 кэВ массовые коэффициенты ослабления совпадают со справочными значениями в рамках погрешности. Для энергии 59 кэВ установлено статистически значимое расхождение величины коэффициента ослабления с табличными данными и продолжено пересмотреть схему проведения эксперимента.

Ключевые слова: ядерная энергетика, радиационные технологии, радиационная защита, переработка пластика, защитный материал, коэффициент ослабления гамма-квантов.

Для цитирования: Балачков М.М., Мельникова А.С., Смыковская В.О., Юрченко М.Д. Исследование свойств вторичного полиэтилена высокой плотности в материалах защиты от ионизирующего излучения. // Известия вузов. Ядерная энергетика. – 2024. – № 3. – С. 59–67. DOI: <https://doi.org/10.26583/npe.2024.3.05>

ВВЕДЕНИЕ

Для замедления нейтронов традиционно используют несколько групп материалов: водородосодержащие материалы – вода, парафин, пластмассы; углеродосодержащие – углерод карбид бора; материалы со средним атомным номером – бетоны, минералы; тяжелые материалы с большим микроскопическим сечением неупругого рассеяния нейтронов вольфрам, свинец [1]. Вследствие близости масс нейтрона и протона (ядра водорода), водородосодержащие материалы имеют самые большие значения замедляющей способности [2, с. 130]. У полиэтилена есть ряд преимуществ перед водой: твердое состояние позволяет создавать протяженные экраны без использования емкостей; большая, чем у воды, концентрация атомов водорода; больший температурный диапазон использования от -60 до 100°C в зависимости от марки пластика [3, с. 32–34].

В работе предложено для защитных целей использовать пластик из вторичного сырья (крышки, упаковки бытовой химии и тому подобное). Так как такие пластики химически инертны и легко размягчаются и плавятся, их можно переработать в лабораторных условиях без применения специализированной техники.

Вследствие особенностей ядерных реакций, лежащих в основе излучения нейтронов источниками, а также широкого спектра вызываемых нейтронами эффектов, использованию нейтронных источников всегда сопутствует излучение гамма-квантов, поэтому важно знать защитные свойства пластика от гамма-излучения. Пластик достаточно широко изучен с этой точки зрения, так, в работе [4] приводится таблица массовых коэффициентов ослабления гамма-квантов и массовых коэффициентов поглощения энергии фотонов в зависимости от их энергии.

В процессе термической переработки пластика меняются пространственные формы полимерных цепей, а при большом числе межмолекулярных связей возможны заметные изменения энергии связи электронов в атомах. Наряду с этим поглощается кислород, что ведет к образованию винильных и вилиденовых групп, а в процессе повторных переработок происходит снижение молекулярной массы полиэтилена (уменьшение числа мономеров) [5, с. 16]. Вышеперечисленные процессы могут приводить к изменению энергии связи электронов, а значит и к изменению защитных свойств пластика от гамма-излучения. Известно, что энергия связи электронов в атоме влияет на когерентное рассеяние – увеличивает число фотонов, рассеявшихся на малые углы, что уменьшает возможную толщину пролета гамма-кванта в экране, а значит, и защитные свойства материала.

Современная проблематика использования пластика в качестве защитных материалов сосредоточена на добавлении в него тяжелых элементов и получении полимерных композитов. Так в работе [6, с. 2059–2060] представлен обзор таких исследований. В рассматриваемых работах предложено использовать матрицы из пластмасс, наполненные оксидом висмута (Bi_2O_3), вольфрамом (W), сульфидом молибдена (MoS_2), карбидом бора (B_4C), оксидом вольфрама (WO_3), оксидом свинца (PbO), цинком (Zn), оксидом цинка (ZnO), оксидом кадмия (CdO).

В [7] был получен новый нанокompозит на основе переработанного полиэтилена высокой плотности (HDPE) фосфорно-вольфрамовой кислотой ($\text{H}_3\text{O}_{40}\text{PW}_{12}\cdot\text{H}_2\text{O}$) и наночастиц оксида меди (CuO). Проведены эксперименты по исследованию ослабления излучения от Ba^{133} , Cs^{137} и Co^{60} , детектор – NaI (3×3 inch). В результате определены массовые коэффициенты ослабления, значения которых согласуются с теоретическими в рамках погрешности.

В [8] проводились исследования по изучению возможности использования нанокompозита, состоящего из оксида железа (Fe_3O_4) с HDPE в качестве поглотителя рентгеновского излучения. С этой целью изготовлено четыре различных композиции, содержащих 100% (необработанный полиэтилен высокой плотности), 99 и 1%, 98 и 2%, 96 и 4%, 92 и 8% пластика и наночастиц Fe_3O_4 соответственно. Затем определялись массовые коэффициенты ослабления. Результаты показали, что с увеличением концентрации оксида железа массовый коэффициент ослабления значительно возрастает. Эта тенденция хорошо видна при энергиях менее 100 кэВ.

МАТЕРИАЛЫ И МЕТОДЫ

В качестве исследуемого материала выступал пластик марки HDPE, морфологически представленный пластиковыми крышками от различных емкостей с маркировкой 2. Крышки фрагментировались на более мелкие части для ускорения их последующего нагрева и размягчения. Навеска полученного таким образом вторсырья помещалась в стеклянной лодочке в электропечь сопротивления камерную лабораторную СНОЛ-6/11-В, разогретую до 200°C, выдерживалась в течение порядка получаса в зависимости от массы помещаемого сырья. Температура выбиралась исходя из оптимального времени плавления (размягчения) пластика, времени его дальнейшего остывания.

Размягченный пластик подвергался прессованию в цилиндрические таблетки. Для прессования использовались стальные пресс-формы круглого сечения разборные диаметром 20 мм. Давление создавалось с помощью пресса лабораторного гидравлического ПЛГ-12. Создаваемое на образцы давление – порядка 190 МПа. Время выдержки образца под давлением – 5 мин. Полученные образцы представлены на рис. 1.



Рис. 1. Полученные полиэтиленовые таблетки

Следующим этапом экспериментов являлось определение защитных свойств от гамма-излучения вторичного полиэтилена. Для этого использовались набор источников гамма-излучения типа ОСГИ и спектрометр гамма-квантов фирмы Canberra с NaI(Tl) детектором 802-2x2, диаметр кристалла – 51 мм, высота – 51 мм, масса – 0,71 кг [9].

Так как площадь детектора значительно больше площади образцов, то применялся свинцовый коллиматор толщиной 30 мм с отверстием диаметром 19,5 мм в центре.

Для оценки ослабления гамма-квантов различных энергий образцами использовались ОСГИ на основе Am^{241} (59 кэВ) и Eu^{152} (122, 344, 1409 кэВ). Источники размещались на одинаковом расстоянии от детектора (12 см) в нише в свинцовом защитном корпусе детектора. Проведено 7 измерений по 15 минут живого времени для каждого источника. Толщина защиты варьировалась путем размещения от 0 до 6 образцов между источником и детектором. Для Am^{241} измерялся пик полного поглощения на 59 кэВ, для Eu^{152} – 122, 344, 1409 кэВ.

Площадь пика полного поглощения и определялись автоматически в программе Genie-2000. Доверительный интервал площади пика полного поглощения определялся для доверительной вероятности 0,95.

Обработка полученных данных осуществлялась в предположении выполнения экспоненциального закона ослабления пучка гамма-квантов:

$$I = I_0 \cdot \exp(-\mu_x \cdot x); I = I_0 \cdot \exp(-\mu_m \cdot d), \quad (1)$$

где I – интенсивность пучка после прохождения защиты; I_0 – начальная интенсивность пучка; μ_x – линейный коэффициент поглощения, см^{-1} ; x – толщина защитного слоя, см ; d – массовая толщина поглотителя, г/см^2 ; μ_m – массовый коэффициент поглощения, $\text{см}^2/\text{г}$.

Массовая толщина каждой таблетки находилась по соотношению:

$$d = x \cdot \rho. \quad (2)$$

Плотность образцов находилась косвенно по соотношению:

$$\rho = \frac{M}{V} = \frac{4 \cdot M}{\pi \cdot h \cdot D^2}, \quad (3)$$

где ρ – плотность образца, г/см^3 ; M – масса образца, г ; V – объем образца, см^3 ; h – высота образца, см ; D – диаметр образца, см .

Масса измерялась при помощи лабораторных весов Shimadzu BX 320H, размеры образцов – при помощи электронного штангенциркуля Kraftool 34460-150.

Обработка измерений производилась в предположении, что все измеряемые величины соответствуют нормальному распределению. Тогда возможно использование следующих соотношений для обработки прямых измерений:

$$\bar{x} = \frac{1}{n} \cdot \sum_{i=1}^n x_i; S_{\bar{x}} = \sqrt{\frac{1}{n(n-1)} \cdot \sum_{i=1}^n (\bar{x} - x_i)^2}; \varepsilon = t_{n,p} \cdot S_{\bar{x}}; \Delta_{\bar{x}} = \sqrt{\varepsilon^2 + \Theta^2}, \quad (4)$$

где \bar{x} – оценка измеряемой величины x ; n – число результатов измерений; x_i – результат i -го измерения величины x ; $S_{\bar{x}}$ – среднеквадратическое отклонение \bar{x} ; ε – доверительные границы случайной погрешности \bar{x} ; $t_{n,p}$ – коэффициент Стьюдента, зависящий от n и доверительной вероятности p ; $\Delta_{\bar{x}}$ – границы погрешности \bar{x} ; Θ – доверительные границы неисключенной систематической погрешности средства измерений, в работе принималась паспортная погрешность приборов.

Для оценки погрешности косвенных измерений использовалась следующая методика:

$$\bar{y} = f(\bar{x}^1, \bar{x}^2, \dots, \bar{x}^j); \Delta_y = \sqrt{\sum_{j=1}^k \left(\frac{dy}{dx^j} \cdot \Delta_{\bar{x}^j} \right)^2}, \quad (5)$$

где \bar{y} – оценка косвенно измеряемой величины y ; \bar{x}^j – оценка прямо измеряемой величины x^j ; Δ_y – границы погрешности \bar{y} ; $\Delta_{\bar{x}^j}$ – границы погрешности \bar{x}^j .

Обработка результатов измерений проводилась для надежности 0,95. Для аппроксимации полученных зависимостей использовался Wolfram Mathematica 12.2.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Для исследования защитных свойств получаемого пластика от гамма-излучения было изготовлено 6 образцов, их характеристики приведены в табл. 1.

Таблица 1

Характеристики образцов, подготовленных для исследования ослабления гамма-излучения

	Толщина, см	Диаметр, см	Плотность, г/см ³	Массовая толщина, г/см ²
Образец 3	1,124 ± 0,009	2,0690 ± 0,0030	0,905 ± 0,008	1,0163 ± 0,0031
Образец 4	0,9742 ± 0,0037	2,071 ± 0,007	0,909 ± 0,007	0,886 ± 0,006
Образец 5	1,023 ± 0,006	2,071 ± 0,005	0,887 ± 0,007	0,907 ± 0,004
Образец 6	1,025 ± 0,005	2,069 ± 0,006	0,894 ± 0,007	0,917 ± 0,005
Образец 7	1,002 ± 0,007	2,0710 ± 0,0039	0,888 ± 0,007	0,8900 ± 0,0035
Образец 8	0,990 ± 0,008	2,072 ± 0,005	0,889 ± 0,009	0,880 ± 0,005

Аппроксимации полученных экспериментальных данных по ослаблению гамма-квантов различной толщиной защиты из пластика для определения линейных коэффициентов ослабления гамма-квантов для различных энергий представлены на рис. 2. Аналогичный вид имеет зависимость площади пика полного поглощения при переходе от линейной толщины к массовой толщине вследствие однородности плотности защиты по направлению движения гамма-квантов, о чем свидетельствует табл.1.

Из рисунка 2 видно, что энергии 59, 122 и 344 кэВ хорошо аппроксимируются экспоненциальной зависимостью (1). Измерения для энергии 1409 кэВ неудовлетворительны, что, возможно, связано с малой толщиной коллиматора (3 см свинца), а так же большой относительной погрешностью определения площади пика полного поглощения, и в боль-

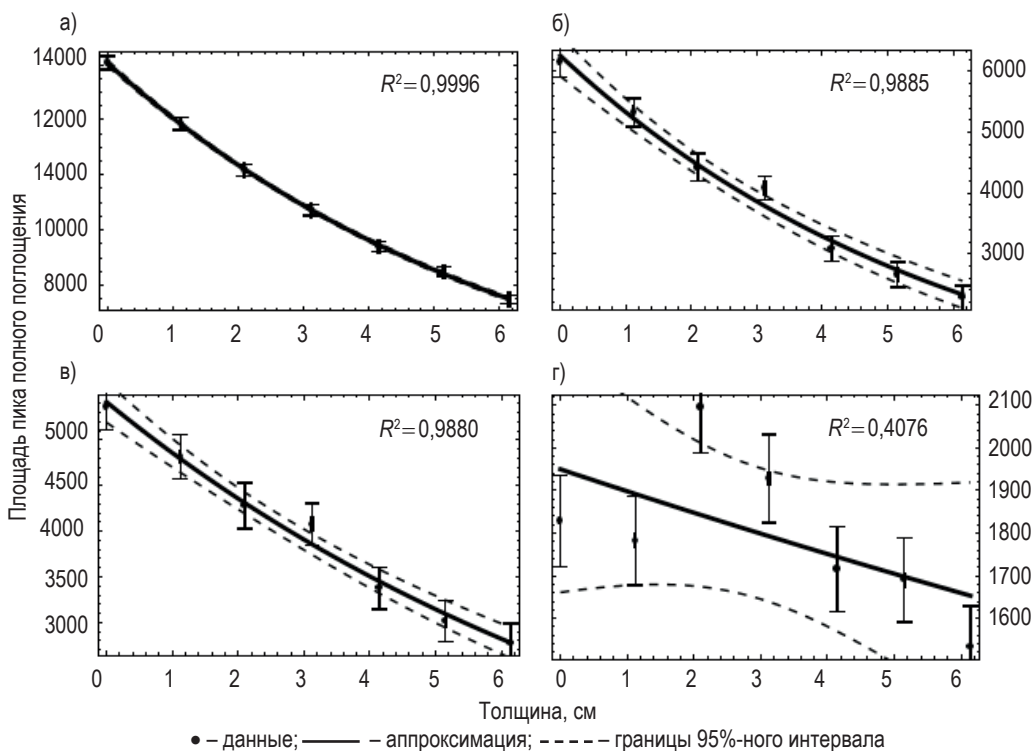


Рис. 2. Зависимость площади пика полного поглощения от толщины вторичного пластика для энергии гамма-квантов: а) – 59 кэВ; б) – 122 кэВ; в) – 344 кэВ; г) – 1409 кэВ

шей степени связано с малой поглощающей способностью исследуемого материала, меньшей эффективностью регистрации гамма-квантов высокой энергии детектором, чем гамма-квантов более низкой энергии, малой экспозицией.

По результатам аппроксимации получены линейные и массовые коэффициенты ослабления гамма-квантов вторичным пластиком, приведенные в табл. 2. Справочные значения получены с помощью линейной интерполяции.

Таблица 2

Экспериментальные и табличные коэффициенты ослабления гамма-квантов

Энергия гамма-квантов	Линейный коэффициент ослабления, см ⁻¹	Массовый коэффициент ослабления, см ² /г	Справочный массовый коэффициент ослабления, см ² /г [4]
59 кэВ	0,1527 ± 0,0028	0,1703 ± 0,0011	0,1981
122 кэВ	0,161 ± 0,021	0,180 ± 0,024	0,164
344 кэВ	0,109 ± 0,014	0,121 ± 0,016	0,116
1409 кэВ	0,03 ± 0,04	0,03 ± 0,05	0,06

Для 59 кэВ массовый коэффициент ослабления получился меньше табличного, возможно, это связано с дизайном эксперимента, использованием в обработке предположения о плоскопараллельном пучке гамма-квантов.

Для 122 и 344 кэВ коэффициенты получились несколько больше табличных (на 0,016 и 0,005 см²/г соответственно), что нивелируется погрешностью, с учетом которой значения коэффициентов сходятся с табличным. Также возможны ошибки, связанные с описанными выше причинами.

Для энергии гамма-квантов 1409 кэВ погрешность превышает измеренное значение коэффициента ослабления, поэтому сделать вывод в данном случае не представляется возможным. Схему эксперимента для определения коэффициентов поглощения для гамма-квантов высоких энергий необходимо пересмотреть при дальнейших исследованиях.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В ходе экспериментов по определению защитных свойств переработанного пластика от гамма-излучения с энергиями 59, 122, 344, 1409 кэВ получены значения массовых коэффициентов ослабления гамма-квантов 0,1703 ± 0,0011, 0,180 ± 0,024, 0,121 ± 0,016, 0,03 ± 0,05 см²/г соответственно. Для энергии 59 кэВ установлено статистически значимое расхождение со справочными данными при доверительной вероятности 0,95. Относительное расхождение составило 14%. Для остальных значений не установлено статистически значимого расхождения, однако для гамма-квантов высоких энергий, таких как 1409 кэВ, следует пересмотреть схему эксперимента, так как расхождение со справочными данными массового коэффициента ослабления составило 50%.

Однако в рамках установленных значений коэффициентов ослабления, можно говорить о перспективности применения переработанного пластика из вторсырья в качестве основы защитных композитных материалов. В дальнейшем планируется в процессе переработки пластика внедрять в композицию добавки, положительно влияющие на защитные свойства от гамма-квантов, также планируется проведение сравнительных экспериментов по определению защитных свойств лабораторного и вторичного пластика от нейтронного излучения.

Литература

1. Kaçal M. R. et al. Evaluation of gamma-ray and neutron attenuation properties of some polymers // Nuclear Engineering and Technology. – 2019. – V. 51. – №. 3. – P. 818–824. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.net.2018.11.011>
2. Бартоломей Г.Г. и др. Основы теории и методы расчета ядерных энергетических реакторов : учебное пособие. – 3-е изд, перераб. и доп. – Екатеринбург: Юланд, 2016. – 512 с. ISBN 5-283-03804-2.
3. ГОСТ 16338-85 Полиэтилен низкого давления. Технические условия: Межгосударственный стандарт: дата введения: 01.01.1987.
4. Hubbell J.H., Seltzer S.M. X-Ray mass attenuation coefficients: NIST standard reference database 126 // National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, Maryland, USA. – 2004. DOI: <https://dx.doi.org/10.18434/T4D01F>
5. Клинков А.С. и др. Утилизация и вторичная переработка тары и упаковки из полимерных материалов: учебное пособие. – Тамбов: Изд-во Тамб. гос. техн. ун-та, 2010. – 100 с. ISBN 978-5-8265-0903-6.
6. More C.V. et al. Polymeric composite materials for radiation shielding: A review. // Environmental chemistry letters. – 2021. – V. 19. – P. 2057–2090. DOI: <https://doi.org/10.1007/s10311-021-01189-9>
7. Mahmoud M. E. et al. Fabrication and characterization of phosphotungstic acid-Copper oxide nanoparticles-Plastic waste nanocomposites for enhanced radiation-shielding. // Journal of Alloys and Compounds. – 2019. – V. 803. – P. 768–777. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.jallcom.2019.06.290>
8. Keshavarzi M., Malekie S., Hosseini M.A. An overview of the radiation-protective properties of nanocomposites containing Iron Oxide and High Density Polyethylene in the presence of X-and Gamma-rays. / 14th International Seminar on Polymer Science and Technology. – Tarbiat Modares University Tehran, Iran, 2020.
9. Вебсайт ООО «Канберра-Паккард Трейдинг Корпорейшн», 2006. – URL: http://www.canberra.ru/html/products/Gamma_Low/detectors/NAI.htm (дата обращения 15.05.2022).

Дата поступления в редакцию 23.04.2024

Авторы

Балачков Максим Михайлович, ассистент,

E-mail: mmb2@tpu.ru

Мельникова Анастасия Сергеевна, студент,

E-mail: asm97@tpu.ru

Смыковская Вероника Олеговна, студент,

E-mail: vos14@tpu.ru

Юрченко Максим Дмитриевич, аспирант,

E-mail: mdy2@tpu.ru

UDC 621.039-78

Investigation of High Density Polyethylene Properties in Ionizing Radiation Shielding Materials**Balachkov M.M., Melnikova A.S., Smykovskaya V.O., Yurchenko M.D.***Tomsk National Research Polytechnic University,
30 Prospekt Lenina, 634050 Tomsk, Russia***Abstract**

Nowadays, radiation technologies are used in many areas of industry and science. The use of radiation technologies is associated with dose loads on personnel, and there is a need therefore for developing and switching to new, more effective and promising protective materials. One of the most promising materials is polyethylene. On the one hand, this material is widely known in the industry and has been studied quite well; on the other hand, there are many studies showing the prospects of developing protective materials based on polyethylene. This paper proposes to use plastic from recycled materials for protective purposes.

In the course of the experiments carried out to obtain samples of recycled plastic processed by fragmentation and further heating to 200°C for about half an hour. Preprocessed plastic was exposed to pressure using a hydraulic laboratory press. The density of the obtained samples varied in a range of 0.887 ± 0.007 to 0.909 ± 0.007 g/cm³. It was found in the experiments to study the attenuation of gamma radiation using samples that the values of the mass attenuation coefficients of gamma quanta were 0.1703 ± 0.0011 , 0.180 ± 0.024 , 0.121 ± 0.016 , 0.03 ± 0.05 cm²/g, respectively, for energies of 59, 122, 344, and 1409 keV. For gamma radiation with energies of 122, 344 and 1409 keV, the mass attenuation coefficients coincide with the reference values within the error. For the energy of 59 keV, the difference between the values of the attenuation coefficients and the tabulated data was determined and the experimental design was continued to be revised.

Keywords: nuclear power, radiation technologies, radiation protection, plastic recycling, shielding material, gamma ray attenuation coefficient.

For citation: Balachkov M.M., Melnikova A.S., Smykovskaya V.O., Yurchenko M.D. Investigation of High Density Polyethylene Properties in Ionizing Radiation Shielding Materials. *Izvestiya vuzov. Yadernaya energetika*. 2024, no. 3, pp. 59–67; DOI: <https://doi.org/10.26583/npe.2024.3.05> (in Russian).

References

1. Kaçal M.R., Akman F., Sayyed M.I. Evaluation of gamma-ray and neutron attenuation properties of some polymers. *Nuclear Engineering and Technology*. 2019, v. 51. no. 3, pp. 818–824. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.net.2018.11.011>
2. Bartolomey G.G., Bat G.A., Baibakov V.D., Altukhov M.S. *Fundamentals of the Theory and Methods of Calculation of Nuclear Power Reactors: A Textbook*. 3rd ed., revised and enlarged. Ekaterinburg. Yuland Publ., 2016, 512 p. ISBN 5-283-03804-2 (in Russian).
3. GOST 16338-85 Low-Pressure Polyethylene. Specifications: Interstate Standard. Effective date: 01.01.1987 (in Russian).
4. Hubbell J.H., Seltzer S.M. *X-Ray Mass Attenuation Coefficients: NIST Standard Reference Database 126*. National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, Maryland, USA, 2004. DOI: <https://dx.doi.org/10.18434/T4D01F>

5. Klinkov A.S., Belyayev P.S., Skuratov V.K., Sokolov M.V., Odnolko V.G. *Disposal and Recycling of Containers and Packages of Polymer Materials: A Textbook*. Tambov. Tambov State Tech. University Publ., 2010, 100 p. ISBN 978-5-8265-0903-6 (in Russian).
6. More C.V., Alsayed Z., Badawi M.S., Thabet A.A., Pawar P.P. Polymeric composite materials for radiation shielding: A review. *Environmental Chemistry Letters*. 2021, v. 19. pp. 2057–2090. DOI: <https://doi.org/10.1007/s10311-021-01189-9>
7. Mahmoud M.E. El-Sharkawy R.M., Allam E.A. Elsaman R. El-Taher A. Fabrication and characterization of phosphotungstic acid-copper oxide nanoparticles-plastic waste nanocomposites for enhanced radiation-shielding. *Journal of Alloys and Compounds*. 2019, v. 803, pp. 768–777. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.jallcom.2019.06.290>
8. Keshavarzi M., Malekie S., Hosseini M.A. An Overview of the Radiation-protective Properties of Nanocomposites Containing Iron Oxide and High Density Polyethylene in the Presence of X-and Gamma-rays. *14th International Seminar on Polymer Science and Technology*. Tarbiat Modares University Tehran, Iran, 2020.
9. Website of Canberra-Packard Trading Corporation LLC, 2006. URL: http://www.canberra.ru/html/products/Gamma_Low/detectors/NAI.htm (accessed date May 05, 2022) (in Russian).

Authors

Maksim M. Balachkov, Assistant,
E-mail: mmb2@tpu.ru
Anastasiya S. Melnikova, Student,
E-mail: asm@tpu.ru
Veronika O. Smykovskaya, Student,
E-mail: vos14@tpu.ru
Maksim D. Yurchenko, Postgraduate Student,
E-mail: mdy2@tpu.ru