

УДК 621.039.53

## АНАЛИЗ ИССЛЕДОВАНИЯ ПОГЛОЩАЮЩИХ СВОЙСТВ МНОГОСЛОЙНЫХ КОМПОЗИТНЫХ МАТЕРИАЛОВ НА ОСНОВЕ ABS-ПЛАСТИКА С НИТРИДОМ БОРА

© 2024 г. Н. А. Коваленко<sup>а, \*</sup>, В. В. Тарнавич<sup>а</sup>, Ю. О. Четвериков<sup>а</sup>

<sup>а</sup> НИЦ “Курчатовский институт” ПИЯФ, мкр. Орлова Роща, д. 1, Гатчина,  
Ленинградская обл., 188300 Россия

\*e-mail: kovalenko\_na@npi.nrcki.ru

Поступила в редакцию 02.11.2023 г.

После доработки 02.11.2023 г.

Принята к публикации 14.11.2023 г.

Выполнено моделирование поглощающей способности различных пластиков, в том числе с разным содержанием нитрида бора для ABS-пластика. Моделирование проводилось с помощью программного комплекса PHITS. В работе выполнено сравнение результатов моделирования поглощающей способности пластика с экспериментальными данными. Рассмотрен вариант практического применения ABS-пластика в качестве нейтронпоглощающих шторок диафрагмы.

*Ключевые слова:* защитные материалы, 3D-печать, численное моделирование

DOI: 10.31857/S0015323024020155, EDN: YOEFJG

### ВВЕДЕНИЕ

Важнейшим фактором, определяющим развитие прикладной физики, являются новые материалы. Здесь мы можем говорить как о разработке новых веществ, так и о технологии создания оригинальных материалов с принципиально новыми характеристиками. Одно из направлений в этой области – разработка технологии создания композитных материалов для защиты от нейтронного излучения [1]. Как известно, нейтроны обладают высокой проникающей способностью и при длительном воздействии на живой организм приводят к тяжелым биологическим последствиям. Для защиты от нейтронов принято использовать различные комбинации легких ядер и ядер с высоким поглощением тепловых нейтронов [2]. Поэтому эффективное использование веществ с указанными параметрами является весьма актуальной задачей.

Формирование единого подхода к построению эффективной радиационной защиты от нейтронного и фотонного излучений сопровождается рядом сложностей. Связаны они, главным образом, с различными спектрами источника, для которых данная защита проектируется. Для водородосодержащих сред наиболее проникающая группа нейтронов – нейтроны с энергией выше 1 МэВ (быстрая компонента). При этом на расстоянии 2–3-х длин релаксации от источника устанавливается равновесный спектр нейтронов, сла-

бо изменяющийся с увеличением толщины. Для теплового спектра нейтронов установление равновесного спектра происходит после 1–2 столкновений, что может характеризоваться длиной свободного пробега нейтронов. При добавлении бора, который имеет высокое сечение поглощения тепловых нейтронов, происходит поглощение в приповерхностном слое – вероятность испытать 2-е столкновение крайне низкая. Таким образом, одним из главных критериев формирования радиационной защиты является эффективная толщина рассматриваемого материала. Реальные защиты от смешанного излучения носят, как правило, гетерогенный характер. В данной работе мы остановимся именно на нейтронной компоненте ионизирующего излучения.

Основными составляющими вклада в полную мощность дозы являются мощность дозы от нейтронного излучения и мощность дозы от вторичного гамма-излучения. Высокие плотности потоков нейтронов в радиационной защите создают высокую плотность вторичного гамма-излучения, основными компонентами которого являются гамма-кванты, генерируемые в результате радиационного захвата и неупругого рассеяния нейтронов на ядрах материалов радиационной защиты. Энергетическое распределение вторичного гамма-излучения в средах определяется характером распространения нейтронов и энергетическим спектром вторичных фотонов. Таким

образом, возможность “управления” пространственно-энергетическим распределением нейтронов может позволить снизить вклад в полную мощность дозы от вторичного гамма-излучения.

Как было указано ранее, использование гетерогенной, многослойной радиационной защиты является одним из действенных способов для снижения мощности дозы. Это напрямую связано с пространственно-энергетическим распределением нейтронов. Применение классического подхода с использованием чередующихся слоев с большой концентрацией ядер водорода и бора в направлении перпендикулярном распространению пучка имеет ряд ограничений. При прохождении 1-го слоя подобной защиты энергетическое и пространственное распределение может значительно измениться. Это означает, что первый слой теперь является источником со своим характеристиками и именно под него следует оптимизировать следующий слой (см. рис. 1).

Подобный подход актуален для каждого  $N$ -ого слоя. Но тогда возникает ситуация, при которой наблюдается квазиравновесный спектр. Для того чтобы этого избежать следует учитывать распространение нейтронного излучения во всех направлениях для каждого  $N$ -ого слоя. Реализовать это можно за счет переориентации слоев. Это позволит ограничить распространение излучения в одном направлении и ослабить в другом. Применение подобного подхода крайне сложно для больших ядерно-технических объектов, однако вполне осуществимо для решения локальных задач на отдельных участках распространения нейтронного излучения. Построение сложных многослойных адаптированных защит стало воз-

можно за счет использования технологии трехмерной печати композитов на основе пластика с добавлением бора.

Большинство предыдущих исследований было сосредоточено на применении различных типов заполнителей, например, карбида бора, нитрида бора, аморфного бора и т. п. [3, 4]. Результаты данных исследований показали, что однородно распределенные по объему борсодержащие вещества способны увеличить как эффективность ослабления нейтронного излучения, так и ухудшить механические характеристики используемых композитов [5]. На основании вышеупомянутых исследований полиэтилен высокой плотности (ПЭВП) и композиты ПЭВП/BN были изготовлены с помощью традиционных методов смешивания, и проведены испытания для определения коэффициента ослабления дозы. В целом, структурно оптимизированная конструкция позволяет эффективно улучшить защитные свойства композитов, в то время как композиты с обычной структурой не способны достичь высокой радиационной эффективности [6].

## МОДЕЛИРОВАНИЕ И ТРАНСМИССИЯ НЕЙТРОНОВ

При проведении расчетов была выполнена подготовка сечений рассеяния для различных материалов, используемых в дальнейшем расчете. Наилучшим поглотителем нейтронов в тепловой области является полиэтилен. Однако следует отметить, что ABS-пластик (акрилонитрил бутадиен стирол) имеет высокое сечение рассеяния в быстрой области ( $\sim 1$  МэВ). Разница в сечениях между полиэтиленом и ABS незначительная. Исходя из этого можно сделать вывод, что в зависимости от спектра нейтронов могут быть использованы оба материала.

При проектировании локальной радиационной защиты в составе оборудования, эксплуатируемого на площадках нейтронных исследовательских центров, наибольший интерес представляют именно тепловые нейтроны ( $E < 100$  мэВ). Связано это прежде всего с тем, что они являются первопричиной активации металлических конструкций, входящих в состав оборудования, и источником фона, усложняющим проведение измерений. Другая значимая составляющая — потери тепловых нейтронов при их транспортировке вдоль нейтроновода [7]. Наличие потерь связано с переходом одного типа нейтроновода в другой, наличием функциональных узлов установки вдоль оси пучка, присутствием технологических зазоров и несовершенством конструкции при монтаже. Все это приводит к значительным нейтронным потокам тепловых нейтронов, что

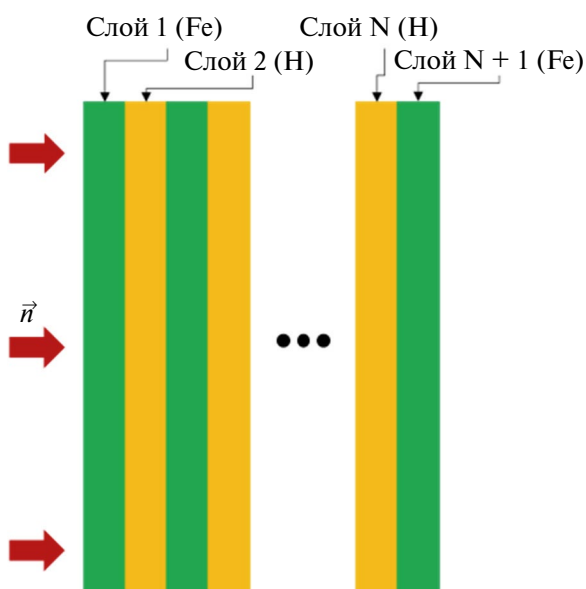


Рис. 1. Классический подход к построению многослойной радиационной защиты.

повышает фон и, как следствие, ухудшает условия экспериментальной работы. В данной статье основной упор сделан на изучение пропускной способности изделий из матрицы ABS-пластика с нитридом бора.

Были рассмотрены образцы для определения коэффициента пропускания (трансмиссии) ABS-пластика. В программном коде PHITS [8] проведены расчеты трансмиссии нейтронного излучения через образцы ABS и ABS с BN толщиной от 1 до 11 мм, с шагом 1 мм. Общая схема моделирования представлена на рис. 2. Массовое содержание нитрида бора составляло 30%. Модель представляла собой блок с площадью поперечного сечения  $10 \times 10$  мм и толщиной 11 мм, разделенный на слои по 1 мм. Размеры детектора составляли  $120 \times 120$  мм таким образом, чтобы он перекрывал широкий диапазон телесных углов рассеяния нейтронов.

В расчетах оценивали плотность потока нейтронов на каждой границе слоев. В качестве источника излучения заданы две нейтронные моноэнергетические линии:  $2.4 \text{ \AA}$  (75%) и  $1.2 \text{ \AA}$  (25%). Для учета взаимодействий нейтронов с веществом использованы данные библиотеки сечений JENDL-4. Трансмиссию рассчитывали как отношение нейтронного потока на выходной и входной ( $I/I_0$ ) границе. Результаты моделирования представлены на рис. 3.

Для верификации полученных расчетных значений поглощения использовали данные нейтронного эксперимента. Эксперимент проводили на монохроматическом нейтронном пучке (75%—длина волны  $2.4 \text{ \AA}$ ; 25%— $1.2 \text{ \AA}$ ) станции томографии ДРАКОН реактора ИР8 (НИЦ “Курчатовский институт”, Москва). Для исследований нейтрон-защитных свойств были изготовлены серии образцов: из ABS-пластика; из ABS-пластика с BN. Образцы представляют из себя пластины ( $40 \times 40$  мм) с толщинами от 1 до 5 мм. Из нескольких пластин составляли образцы

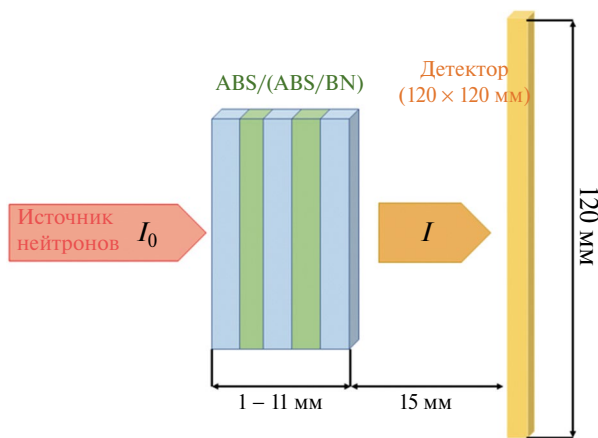


Рис. 2. Схема моделирования.

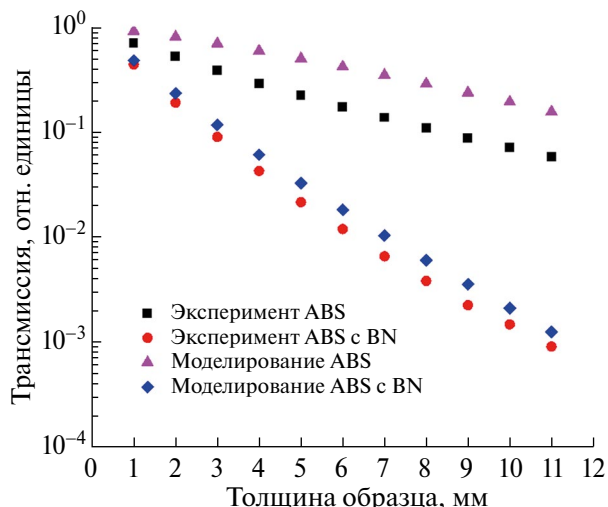


Рис. 3. Коэффициент пропускания для ABS и ABS + BN.

толщиной от 1 до 11 мм. Образцы располагались на расстоянии 360 мм от детектора. При таком расположении детектора из нейтронного потока, проходящего сквозь образец, вычитаются как поглощенные, так и рассеянные на малые углы нейтроны.

Отклонение в расчетных и экспериментальных результатах для ABS-пластика может быть связано, прежде всего, с различием в плотности отдельно взятых образцов. Основной вклад в поглощение вносит водород, поэтому даже незначительное расхождение в плотности приводит к искажению результатов. Для образцов с нитридом бора чувствительность трансмиссии к плотности образца снижается, что напрямую связано с экстремально высоким сечением поглощения бора в рассматриваемой энергетической области. Для расчета коэффициента пропускания образцов ABS-пластика с BN наблюдается хорошее совпадение с экспериментом.

Принципиальным является тот момент, что водород необходим для замедления нейтронов до тепловых энергий, а поглощение на водороде является сопутствующим эффектом. Основная доля поглощений должна происходить на боре. Следовательно, когда мы говорим о материале способном эффективно замедлять нейтроны и эффективно поглощать их, предлагается рассмотреть гетерогенную структуру из чередующихся слоев ABS/(ABS+BN) (многослойный образец).

Выполнено моделирование трансмиссии в многослойных структурах ABS/(ABS+BN) с четными количествами слоев, расположенных перпендикулярно пучку, и постоянной суммарной толщиной от 1 мм до 11 мм. Суммарная толщина слоев каждого из двух типов, а следовательно, и массовая доля нитрида бора оставались постоянными при изменении числа слоев. Были

также рассмотрены иные формы слоев, которые при данных параметрах пучка могут быть более эффективными, если они обеспечивают прохождение нейтронами большого расстояния в слое с нитридом бора, повышая вероятность столкновений с ядрами вещества (рис. 4). Результаты моделирования представлены на рис. 5.

Полученные результаты для образцов с различным количеством слоев сравнивали с трансмиссией однородного слоя с соответствующей массовой долей нитрида бора. Как видно из рис. 5, увеличение количества слоев не приводит к изменению трансмиссии в сравнении с однородным вариантом. Одна из возможных причин может заключаться в том, что при рассмотрении нейтронов из тепловой области вероятность поглощения при последовательном рассеянии изменяется незначительно, что нивелирует разделение на слои. К тому же, толщины слоев из ABS-пластика должны быть увеличены: длина свободного пробега для нейтрона с энергией 100 мэВ в ABS-пластике составляет пример-

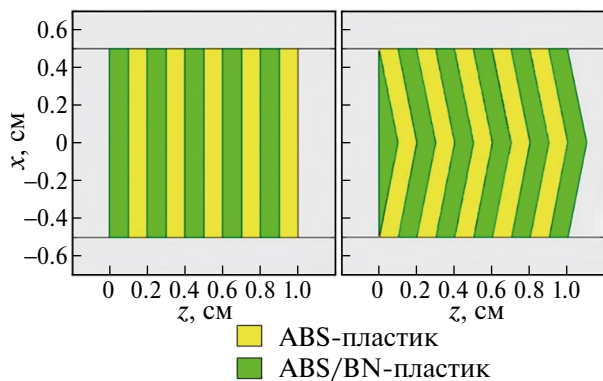


Рис. 4. Модель гетерогенной структуры многослойного образца ABS/(ABS+BN).

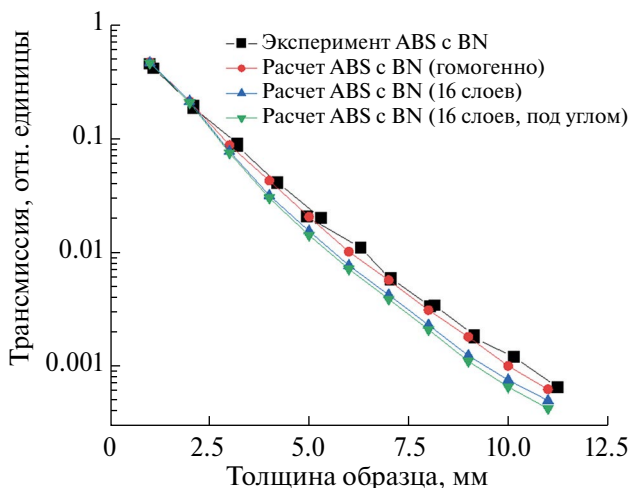


Рис. 5. Коэффициент пропускания для ABS и ABS + BN при использовании многослойных образцов.

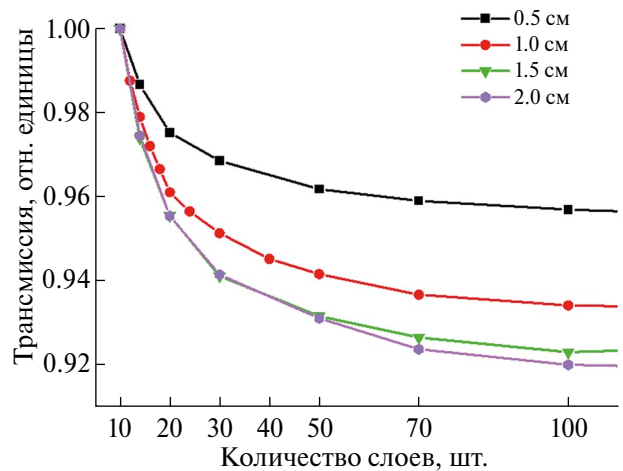


Рис. 6. Изменение трансмиссии для различных толщин образцов при разном количестве слоев ABS/(ABS+BN).

но 5 мм. Это минимальная толщина доступного слоя, при которой, вероятно, можно наблюдать эффект при построении многослойных структур. При использовании 3D-печати подобные толщины едва ли будут представлять интерес. Были рассмотрены варианты с тонкими слоями – до 100 мкм. Изменение трансмиссии для различных толщин образцов при разном количестве слоев представлено на рис. 6.

Для выбранных значений энергии максимальный выигрыш составляет 8% при использовании 100 слоев для 20 мм образца. Дальнейшее увеличение толщины и количества слоев не имеет смысла, так как трансмиссия изменяется крайне слабо.

## РЕЗУЛЬТАТЫ И ПРИМЕНЕНИЕ

Полученные результаты эксперимента и моделирования позволяют утверждать, что использование ABS-пластика с нитридом бора, полученного с помощью 3D-печати, может найти весьма широкое применение в области нейтронного приборостроения. Основное назначение ABS-пластик с нитридом бора может получить в качестве аналога борированной резины или керамического карбида бора. Следует отметить, что для подтверждения работоспособности рассматриваемых образцов, были исследованы их механические характеристики после облучения и накопления значимого флюенса по нейтронам и гамма-квантам. Результаты исследования представлены в работе [9].

В качестве демонстрации возможности применения ABS-пластика с нитридом бора была выбрана нейтронная диафрагма, используемая повсеместно для всех установок нейтронного

рассеяния. Основное назначение диафрагмы – формирование нейтронного пучка с заданными фазовыми характеристиками. Один из примеров такого устройства представлен на рис. 7.

Главным элементом диафрагмы являются шторки, которые изготавливаются из нейтрон-поглощающего материала. В качестве такого материала чаще всего используется борированный полиэтилен толщиной 20 мм с массовой долей аморфного бора 5–10% (далее ПБ10) в комбинации с кадмием толщиной 1 мм. При высоких нейтронных потоках подобный вариант сопряжен с рядом трудностей, связанных с вторичным излучением, генерируемым кадмием при поглощении нейтрона. Другим отличным вариантом является применение керамики в виде карбида бора с массовой плотностью около 2.4 г/см<sup>3</sup>. Толщина такой пластины составляет примерно 1–2 мм. Однако стоимость данного изделия значительно выше, чем у кадмия или борированного полиэтилена. Таким образом в качестве требований к шторкам можно отнести: 1) требуемую трансмиссию нейтронного потока; 2) пониженную генерацию фона нейтронов и гамма-квантов.

Была подготовлена расчетная модель и выполнено моделирование для 3-х вариантов поглощающих шторок: ПБ10 с плотностью 1.05 г/см<sup>3</sup> и толщиной 20 мм; керамический карбид бора толщиной 1 мм; ABS-пластик с нитридом бора с плотностью 1.15 г/см<sup>3</sup> и толщиной 2 мм. Общий вид расчетной модели представлен на рис. 8.

В качестве источника нейтронов принимался плоскопараллельный моноэнергетический пучок нейтронов с длиной волны 1 Å и поперечным размером 6×6 см<sup>2</sup>. Сечения нейтронного пучка, обрезанного шторками диафрагмы, составляло 3×3 см<sup>2</sup>.

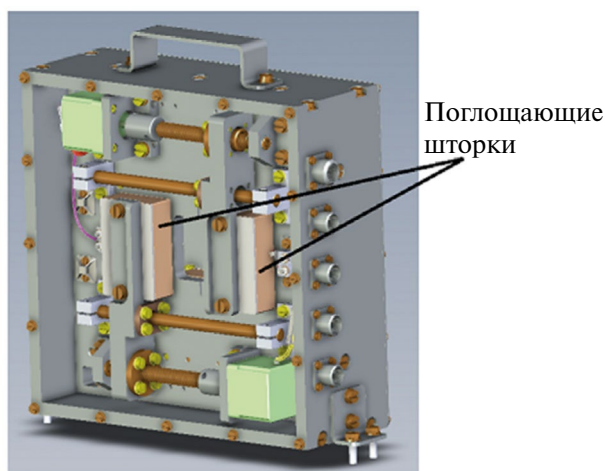


Рис. 7. Диафрагма для формирования нейтронного пучка.

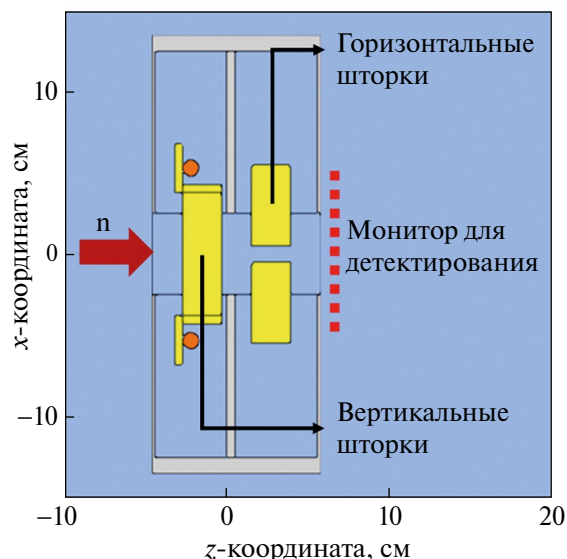


Рис. 8. Сечение XZ ( $Y=0$ ) расчетной модели диафрагмы со шторками из ПБ10.

Для определения углового распределения нейтронов после прохождения диафрагмы на расстоянии 5 мм от поверхности корпуса диафрагмы размещался монитор нейтронного потока с размерами 6×6 см<sup>2</sup>. Результаты моделирования представлены на рис. 9.

Пример распределения нейтронного потока для варианта шторок из ПБ10 представлен на рис. 10.

Характер распределения нейтронов для углов от 0° до 7.5° имеет идентичный вид для всех рассматриваемых шторок. Аналогичная ситуация наблюдается для углов более 50°. При этом на участке от 7.5° до 50° интегральный поток нейтронов более чем в 5 раз выше в случае использования ПБ10 в качестве материала поглощающих шторок. Для керамического карбида бора и ABS-пластика

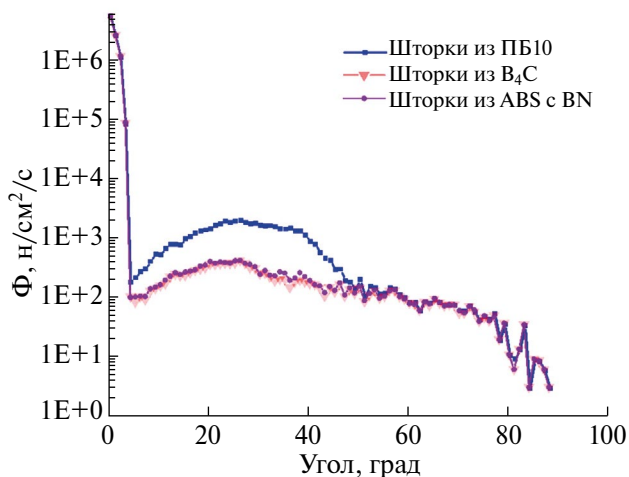


Рис. 9. Угловое распределение нейтронов для шторок из различного материала.

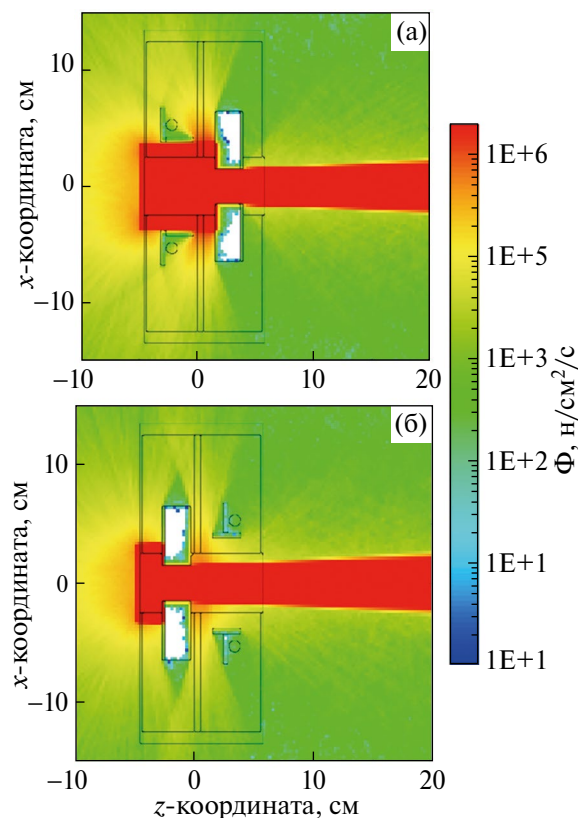


Рис. 10. Распределение нейтронов: а) в плоскости  $XZ$  ( $Y=0$ ) расчетной модели; б) в плоскости  $YZ$  ( $X=0$ ) расчетной модели для шторок из ПБ10.

с нитридом бора результаты абсолютно аналогичны. Различие данных материалов с ПБ10 можно связать исключительно с геометрическим фактором — для достижения требуемой трансмиссии необходима большая толщина борированного полиэтилена.

### ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В данной работе была рассмотрена задача по ослаблению нейтронного излучения за счет использования гомогенных и многослойных композитных структур на основе ABS-пластика с нитридом бора. Было показано, что применение многослойных структур с различной ориентацией слоев позволяет повысить эффективность защитной композиции, при этом при увеличении количества слоев трансмиссия нейтронного потока уменьшается всего на 8%, что незначительно.

Была продемонстрирована возможность практического применения ABS-пластика с нитридом бора в качестве нейтроннопоглощающих шторок

для диафрагм. Подобные шторки могут рассматриваться, как альтернатива использованию керамического карбида бора, борированной резины или полиэтилена ПБ10.

Для более эффективного использования следует в дальнейшем рассмотреть возможность повышения концентрации нитрида бора свыше 30%. Это позволит изменить компоновку слоев и расширит применимость композитного материала для защиты от нейтронов с более жестким спектром.

Работа выполнена при поддержке гранта Российского Научного Фонда №№ 22–29–01186.

Авторы данной работы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Zhang X., Yang M., Zhang X., Wu H., Guo S., Wang Y. Enhancing the neutron shielding ability of polyethylene composites with an alternating multi-layered structure // *Comp. Sci. Techn.* 2017. V. 150. P. 16–23.
2. Гусев Н.Г., Климанов В.А., Машкович В.П., Суворов А.П. Защита от ионизирующих излучений. М.: Энергоатомиздат, 1989. Т. 1. 510 с.
3. Li X., Wu J., Tang C., He Z., Yuan P., Sun Y., Lau W.-m., Zhang K., Mei J., Huang Y. High temperature resistant polyimide/boron carbide composites for neutron radiation shielding // *Composites Part B: Engineering*. 2019. V. 159. P. 355–361.
4. Cataldo F., Prata M. Neutron radiation shielding with PUR composites loaded with B4C or graphite // *Fullerenes, Nanotubes and Carbon Nanostructures*. 2019. V. 27. № 7. P. 531–537.
5. Zhang Xuan, Zhang Xianlong, Guo Shaoyun. Simple approach to developing high-efficiency neutron shielding composites // *Polymer Eng. Sci.* 2019. V. 59. № s2. P. E348–E355.
6. Shang Y., Yang G., Su F., Feng Y., Ji Y., Liu D., Yin R., Liu C., Shen C. Multilayer polyethylene/hexagonal boron nitride composites showing high neutron shielding efficiency and thermal conductivity // *Comp. Commun.* 2020. V. 19. P. 147–154.
7. Прохоров А.М. Физическая энциклопедия. В 5-ти томах. Рипол Классик, 1988.
8. <https://phits.jaea.go.jp>. Агентство Атомной энергии Японии
9. Chetverikov Y.O., Bykov A.A., Krotov A.V., Mistonov A.A., Murashev M.M., Smirnov I.V., & Tarnavich V.V. Boron-containing plastic composites as neutron shielding material for additive manufacturing processes // *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*. 2023. V. 1055. P. 168406.

## INVESTIGATION OF THE ABSORPTION PROPERTIES OF MULTILAYER COMPOSITES BASED ON ABS-PLASTIC WITH BORON NITRIDE

**N. A. Kovalenko<sup>1,\*</sup>, V. V. Tarnavich<sup>1</sup>, Y. O. Chetverikov<sup>1</sup>**

<sup>1</sup>*NRC “Kurchatov Institute” – PNPI, Gatchina, Leningradskaya Oblast, 188300 Russia*

<sup>\*</sup>*e-mail: kovalenko\_na@pnpi.nrcki.ru*

Modeling of absorption capabilities of different plastics, including those with different content of boron nitride for ABS-plastic was performed. Modeling was carried out using the PHITS software package. The paper compares the results of modeling the absorption capacity of plastic with experimental data. The case of practical application of ABS-plastic as neutron-absorbing shutters of a diaphragm is considered.

*Keywords:* shielding materials, 3D printing, numerical modeling