

مقایسه عملکرد میکرو و نانوکامپوزیت بر پایه پلی اتیلن سنگین حاوی میکرو و نانوصفحات نیتريد بور با هدف حفاظ سازی نوترون

زهرا رفیعی سرمزده^(۱)، سید جواد احمدی*^(۳)، سید حسن جعفری^(۲)، سید مرتضی زاهدی دیزجی^(۱)، یاسر کاسه ساز^(۴)

۱ سازمان انرژی اتمی ایران، پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای، پژوهشکده پلاسما و گداخت هسته‌ای؛

۲ دانشگاه تهران، دانشکده مهندسی شیمی؛

۳ سازمان انرژی اتمی ایران، پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای، پژوهشکده چرخه سوخت هسته‌ای؛

۴ سازمان انرژی اتمی ایران، پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای، پژوهشکده رآکتور.

چکیده:

در این تحقیق حفاظ کامپوزیتی حاوی جاذب نوترون با استفاده از میکرو و نانوصفحات نیتريد بور بر پایه پلی اتیلن سنگین ساخته شد که علاوه بر سبک بودن و فراوری آسان، به دلیل در دسترس بودن پلی اتیلن سنگین به صورت تجاری دارای صرفه اقتصادی نیز می باشد. عملکرد حفاظتی این حفاظها در برابر نوترون با استفاده از ستون حرارتی راکتور تهران مورد بررسی قرار گرفت و با پلی اتیلن سنگین خالص مقایسه شد. افزودن ۰/۵٪ وزنی از جاذب نیتريد بور به بستر پلی اتیلن، عملکرد میکروکامپوزیت را در مقایسه با پلی اتیلن سنگین خالص ۲۵٪ افزایش می دهد. این در حالی که عملکرد حفاظ سازی نانوکامپوزیت افزایش ۴۳٪ را نشان می دهد. نتایج بدست آمده در این تحقیق می تواند مقدمه‌ای برای تولید حفاظهای نوترونی سبک، ارزان و کارآمد باشد که امید است در آینده‌ای نزدیک مورد استفاده قرار گیرد.

کلمات کلیدی: Neutron shielding, Boron nitride, High density polyethylene, Nano-composite

مقدمه:

تولید انرژی هسته‌ای در مقایسه با سایر سیستم‌های مبتنی بر سوخت فسیلی هزینه اندکی را به دنبال دارد، با این حال امواج تابشی نشت شده از نیروگاه‌های هسته‌ای، تلفات و خسارات زیست محیطی زیادی را به دنبال دارد [۱]. از این رو اخیراً محققان بسیاری در زمینه انرژی هسته‌ای، بر موضوع امنیت و حفظ محیط زیست متمرکز شده‌اند [۲]. تاکنون حفاظهای بر پایه بتن حاوی سیمان و سیمان سنگین، با و بدون سرب، مورد

استفاده قرار گرفته‌اند. این نوع حفاظ‌ها به عنوان سپر نوترونی عمل کرده و از طریق کند کردن نوترون و بلاک کردن مسیر آن‌ها از نفوذ نوترون جلوگیری می‌کنند. با این حال وزن زیاد این حفاظ‌ها و حجم زیاد اشغال شده، جابجایی و مشکلات همراه با ساخت، کاربرد این حفاظ‌ها را محدود می‌سازد. علاوه بر این مشکلاتی زیادی در هنگام تخریب این حفاظ‌ها به وجود می‌آید [۲، ۳]. برای غلبه بر این مشکلات تا کنون چندین حفاظ کامپوزیت پلیمری حاوی ترکیبات بور پیشنهاد شده است. این نوع حفاظ‌ها نه تنها از عملکرد حفاظ سازی خوبی در برابر نوترون برخوردار هستند هم‌چنین علاوه بر سهولت در ساخت و بهره‌برداری، به هنگام برچیدن و یا ادغام چند حفاظ نیز کاربری آسانی دارند. در این میان کامپوزیت‌های ساخته شده از ترکیبات پلی اتیلن دارای محتوای هیدروژن بالا بوده و به عنوان بستر پلیمری از طریق پراش، نوترون‌ها را کند می‌سازند. در همین حال گزارشاتی مبنی بر اینکه ترکیباتی هم‌چون کاربید بور و نیتريد بور به علت سطح مقطع بالای جذب نوترون حرارتی، جاذب‌های مناسبی برای جذب نوترون شناخته می‌شوند، وجود دارد [۲]. گرالک و همکارانش از کامپوزیت پلی اتیلن سنگین به همراه کاربید بور استفاده کردند و توانستند به خواص مکانیکی بهتر و عملکرد حفاظتی بالاتری نسبت به پلیمر خالص دست یابند [۴].

در این تحقیق کامپوزیت بر پایه پلی اتیلن سنگین حاوی میکرو و نانوصفحات نیتريد بور (۰/۵٪ وزنی) از طریق روش اختلاط مذاب ساخته شد و عملکرد این دو کامپوزیت در برابر نوترون در راکتور تحقیقاتی تهران به روش فعالسازی پولک طلا مورد بررسی قرار گرفت و نتایج با عملکرد پلی اتیلن سنگین مقایسه شد. به منظور طراحی یک حفاظ نوترونی کامپوزیتی بر پایه پلی اتیلن سنگین، اساس کار بر حضور صفحات نیتريد بور توده و نانوصفحات آن به عنوان جاذب نوترونی قرار گرفته است. ترکیبات بور نسبت به دیگر جاذب‌های نوترونی ارزان‌تر است که هم در بازه نوترون‌های حرارتی و هم فوق حرارتی از سطح مقطع جذب بالایی برخوردار است [۵]. از طرف دیگر یکی از مزیت‌های استفاده از ترکیبات بور در مقایسه با کادمیوم، ایجاد گام‌های ثانویه با انرژی بسیار پایین‌تر است. هم‌چنین بسیار مبرهن است، در صورتی که به جای ترکیبات بور طبیعی از ایزوتوپ بور-۱۰ به عنوان جاذب نوترونی استفاده شود، مسلماً قدرت حفاظ-سازی حفاظ طراحی شده افزایش خواهد یافت.

مواد:

پلی اتیلن سنگین مورد استفاده تولید پتروشیمی جم و با گرید HM 5010 T2N, EX3 است که با کد ساده EX3 شناخته می‌شود. میکروصفحات نیتريد بور از شرکت آلدریچ خریداری و نانوصفحات نیتريد بور به روش سنتز ترکیبی [۶] سنتز شد.

تجهیزات:

جهت تهیه کامپوزیت‌ها از روش اختلاط مذاب استفاده شده است. نمونه‌ها در مخلوط کن داخلی Brabender ساخت کشور آلمان تهیه شدند. برای ساخت نمونه‌های مورد نیاز آزمون خواص نوترونی، از دستگاه پرس Laboratory Platen Press مدل P200P ساخت شرکت Dr. Collin کشور آلمان استفاده شد. تصاویر ریخت شناسی نانوصفحات از میکروسکوپ الکترونی روبشی نشر میدانی (Hitachi S- FESEM) (4160) ساخت ژاپن ثبت شد. تصاویر و پروفایل ارتفاع نانوصفحات سنتزی با استفاده از دستگاه Park Scientific Instrument (PSI) در مد تماسی ضبط شد.

روش کار:

برای سنتز نانوصفحات نیتريد بور از روش ترکیبی به شرح زیر استفاده شد. در این روش مقدار مشخصی از میکروصفحات تا دمای 1400°C به مدت 30 min گرم شده و بعد از آن به سرعت با یک محلول آبی سرد حاوی $1/5\%$ وزنی آمونیوم هیدروژن کربنات تا دمای اتاق سرد می‌شود. برای جداسازی بیشتر، نیتريد بور باقی مانده از مرحله قبل را با غلظت معین در مخلوطی از حلال‌های آب: اتانول با درصد حجمی $55:45$ پراکنده ساخته و در یک حمام التراسونیک با قدرت پایین تحت امواج التراسونیک به مدت هشت ساعت قرار می‌گیرد. سپس محلول با سرعت 3000 rpm به مدت 20 min سانتریفیوژ شده تا ذرات بزرگ بر اساس وزن خود جداسازی شوند. دو سوم بالای محلول که حاوی نانوذرات است، با پیپت جمع آوری شده و به منظور به دست آوردن نانوصفحات، از غشای نیترات یا استات سلولز با اندازه حفره $0.22\text{ }\mu\text{m}$ برای صاف کردن استفاده می‌شود و در نهایت در دمای 100 درجه به مدت 24 ساعت خشک می‌شود.

برای ساخت نمونه‌ها ابتدا پلی‌اتیلن به مخلوط کن افزوده شده و بعد از گذشت 90 s و ثابت شدن گشتاور، تقویت کننده نیتريد بور به سیستم افزوده شد و به سیستم $8/5\text{ min}$ دیگر زمان داده شد تا اختلاط به طور کامل صورت پذیرد. پس از خروج از مخلوط کن و تکه کردن، به نمونه‌ها فرصت داده شد تا سرد شدند. برای بررسی خواص نوترونی از روش فعال‌سازی پولک طلا استفاده شد که دقیق‌ترین و رایج‌ترین تکنیک در تعیین اندازه‌گیری شار نوترونی محسوب می‌شود. پس از آماده‌سازی پولک‌ها به منظور تعیین میزان حفاظ‌سازی نمونه‌های ساخته شده، ابتدا جرم هر پولک اندازه‌گیری و سپس پشت هر نمونه کامپوزیتی در معرض پرتو، پولکی تعبیه شد. دیسک‌هایی کامپوزیتی به قطر $2/5\text{ cm}$ و با ضخامت 7 mm از میکرو/نانوکامپوزیت‌های حاوی نیتريد بور و پلی‌اتیلن سنگین با استفاده از دستگاه پرس تهیه شد. به منظور حذف حداکثری اثر انباشت، حذف نوترون‌های بازگشتی و جلوگیری از رسیدن این نوترون‌ها به پولک‌های

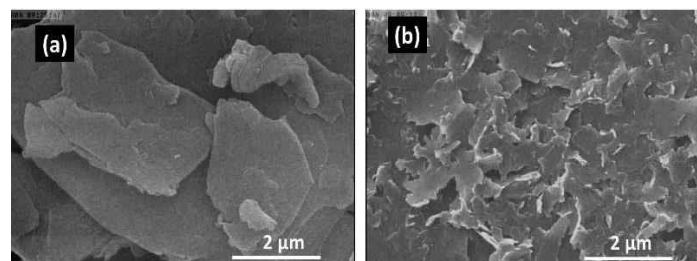
طلا بدون عبور از نمونه، از یک موازی ساز کادمیوم استفاده و نمونه‌ها در آن قرار داده شد. در مرحله اصلی کار، پس از به صفر رساندن قدرت راکتور، نمونه‌ها در کانال مرکزی اولین لایه ستون گرافیتی و در دهانه ورودی ستون حرارتی به مدت ۹۰ دقیقه و قدرت ۳ MW در دمای محیط پرتو دهی شدند. پولک‌ها پس از پرتو دهی و سرد شدن با استفاده از آشکارساز نیمه رسانای ژرمانیوم با خلوص بالا توسط نرم‌افزار OMNIGAM مورد شمارش قرار گرفتند و اکتیویته بر حسب بکرل گزارش شد. در نهایت اکتیویته نسبی که نسبت اکتیویته هر پولک نسبت به پولک طلای مرجع است، محاسبه شد. شکل ۱ نمایی از فرایند آنالیز نوترونی در ستون حرارتی را نشان می‌دهد.



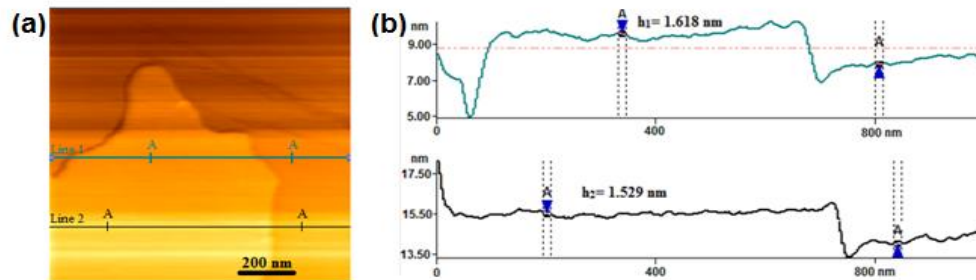
شکل (۱): نمایی از فرایند آزمون نوترونی در ستون حرارتی راکتور تهران

نتایج:

نمونه‌های میکرو و نانوصفحات نیتريد بور با استفاده از ازمون میکروسکوپ الکترونی روبشی مورد بررسی قرار گرفتند. ابعاد میکروصفحات در محدوده ۱-۵ μm و ضخامت صفحات بالاتر از ۱۰۰ nm است. با این حال ابعاد جانبی نانوصفحات در طی فرایند سنتز ترکیبی کاهش یافته و به ۲/۵ μm -۸۰۰ nm می‌رسد. شکل (۲) تصویر میکروسکوپ الکترونی روبشی میکرو و نانوصفحات نیتريد بور و شکل (۳) تصویر میکروسکوپ نیروی اتمی را بر روی نانوصفحات نیتريد بور نشان می‌دهد.



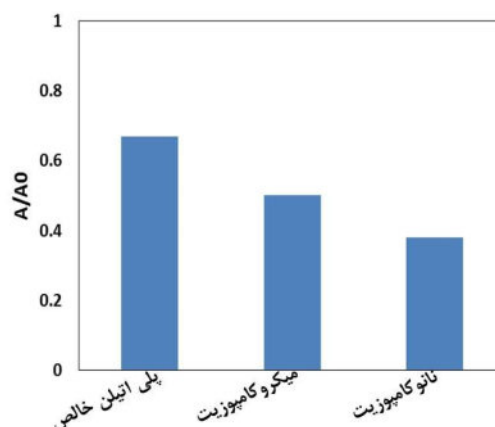
شکل (۲): تصویر میکروسکوپ الکترونی روبشی (a) پودر اولیه نیتريد بور (b) نانوصفحات بدست آمده (بزرگ‌نمایی $\times 15\text{ k}$)



شکل (۳): (a) تصویر توپوگرافی ($1 \mu\text{m} \times 1 \mu\text{m}$) میکروسکوپ نیروی اتمی، نشان دهنده یک نانوصفحه روی بستر میکا (b) پروفایل ارتفاع در راستای خطوط ۱ و ۲ نشان دهنده ضخامت‌های $1/5$ و $1/6$ nm. داده‌های آماری مربوط به توزیع ضخامت

پروفایل ارتفاع انجام شده بر روی این نانوصفحات ثابت می‌کند که ضخامت اکثر این نانوصفحات کمتر از 2 nm است. با رسیدن به این ضخامت مساحت سطح نانوصفحات نیتريد بور در مقایسه با میکروصفحات آن افزایش زیادی می‌یابد.

انجام آنالیز نوترونی با بهره‌گیری از ستون حرارتی راکتور تحقیقاتی تهران صورت گرفته است. نمونه‌های کامپوزیتی در یک مرحله مورد پرتو دهی قرار گرفتند که در آن از یک پولک طلا به عنوان شاهد و تعیین شار مطلق نوترونی استفاده شد و اکتیویته دیگر پولک‌ها نسبت به پولک شاهد در آن مرحله از پرتو دهی برازش شد. شکل (۴) و جدول (۱) نتایج این آنالیز را برای پلی اتیلن خالص، میکروکامپوزیت حاوی نیتريد بور و نانوکامپوزیت حاوی نانوصفحات نشان می‌دهد.



شکل (۴): تاثیر حضور میکرو و نانوصفحات نیتريد بور (0.5% وزنی) بر قدرت حفاظ سازی کامپوزیت‌های بر پایه پلی اتیلن سنگین.

جدول (۱): تاثیر حضور میکروصفحات نیتريد بور و نانوصفحات نیتريد بور (۰/۵٪ وزنی) بر قدرت حفاظ سازی کامپوزیت‌های بر پایه پلی اتیلن سنگین.

نمونه	محتوای جاذب (%wt.)	اکتیویته نسبی
پلی اتیلن سنگین خالص	-	۰/۶۷
میکرو کامپوزیت پلی اتیلن سنگین/میکروصفحات نیتريد بور	۰/۵	۰/۵
نانو کامپوزیت پلی اتیلن سنگین/نانوصفحات نیتريد بور	۰/۵	۰/۳۸

نتایج آنالیز، اکتیویته نسبی ۰/۶۷ را برای پلی اتیلن سنگین نشان می‌دهد. همان‌گونه که انتظار می‌رفت در حضور نیتريد بور به عنوان جاذب، اکتیویته نسبی کامپوزیت کاهش می‌یابد. نتایج نشان می‌دهد که عملکرد حفاظ سازی میکرو کامپوزیت در مقایسه با پلی اتیلن سنگین خالص ۲۵٪ بهبود می‌یابد. این در حالی است که حضور نانوصفحات نیتريد بور عملکرد حفاظ سازی نانو کامپوزیت را در مقایسه با پلی اتیلن خالص ۴۳٪ افزایش می‌دهد. علت این امر را می‌توان به تعداد بالای نانوصفحات در مقایسه با میکروصفحات در درصد وزنی مشابه و پراکنش بهتر نانوصفحات به علت ابعاد و ضخامت کمتر نسبت داد. به دلیل مساحت سطح بالای نانوصفحات، امکان جذب نوترون‌های حرارتی بالاست و لذا اکتیویته کاهش بیشتری می‌یابد. با افزایش ضخامت صفحات نیتريد بور و رسیدن به مقیاس میکرو، سطح برهم‌کنش ذرات با نوترون کمتر شده و کاهش میزان اکتیویته با شیب کمتری صورت می‌گیرد. در توضیح رفتار فوق می‌توان این‌گونه استنباط کرد که هر چند سطح مقطع میکروسکوپی یک جذب نوترون توسط جاذب نوترون، یک ویژگی ذاتی هسته‌ای به شمار می‌آید که تابع شرایط شیمیایی و یا فیزیکی نیست، اما نهایتاً آن‌چه که رفتار یک قطعه را تعیین خواهد کرد، سطح مقطع ماکروسکوپی آن ماده است.

نتیجه گیری:

کامپوزیت‌های حاوی نیتريد بور و نانوصفحات آن از طریق روش اختلاط مذاب سنتز شدند. عملکرد میکرو و نانو کامپوزیت حاوی ۰/۵٪ وزنی جاذب نیتريد بور با پلی اتیلن خالص مقایسه شدند. نتایج نشان داد که هرچه مساحت سطح جاذب در معرض پرتو نوترونی بیشتر باشد، جذب نوترون بیشتری صورت گرفته و

خواص حفاظ سازی کامپوزیت افزایش می یابد. در صورتی که بتوان سطح مقطع جاذب های نوترونی را با کاهش ابعاد آنها به مقیاس نانو، افزایش داد، می توان عملکرد حفاظ های نوترونی را در آینده ارتقا بخشید.

مراجع:

- [۱] M. M. Abu-Khader, "Recent advances in nuclear power: A review," *Progress in Nuclear Energy*, vol. 51, pp. 225-235, 2009.
- [۲] Y. Huang, W. Zhang, L. Liang, J. Xu, and Z. Chen, "A "Sandwich" type of neutron shielding composite filled with boron carbide reinforced by carbon fiber," *Chemical Engineering Journal*, vol. 220, pp. 143-150, 2013.
- [۳] O. İçelli, K. S. Mann, Z. Yalçın, S. Orak, and V. Karakaya, "Investigation of shielding properties of some boron compounds," *Annals of Nuclear Energy*, vol. 55, pp.341-350, 2013.
- [۴] C. Harrison, E. Burgett, N. Hertel, and E. Grulke, "Polyethylene/Boron Composites for Radiation Shielding Applications," *American Institute of Physics*, vol. 969, pp. 484-491, 2008.
- [۵] D. I. Garber and R. R. Kinsey, *Neutron Cross Section, Volume II, Curves* vol. 2: Brookhaven National Laboratory, 1976.
- [۶] Z. Rafiei-Sarmazdeh, S. Jafari, S. Ahmadi, and S. Zahedi-Dizaji, "Large-scale exfoliation of hexagonal boron nitride with combined fast quenching and liquid exfoliation strategies," *Journal of Materials Science*, vol. 51, pp. 3162-3169, 2016.