



بررسی آسیب تابشی آلومینیوم‌های غلاف سوخت با استفاده از طیف‌نگاری طول عمر نابودی پوزیترون

رقیه جعفری^۱، محمدمامین امیرخانی‌دهکردی^۲، عفت یاحقی^{۱*}، بهروز رک‌رک^۲، محسن اسدی‌اسدآباد^۲

۱. گروه فیزیک، دانشکده علوم پایه، دانشگاه بین‌المللی امام خمینی (ره)، صندوق پستی: ۳۴۱۴۸-۹۶۸۱۸، قزوین - ایران
۲. پژوهشکده راکتور و ایمنی هسته‌ای، پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای، سازمان انرژی اتمی ایران، صندوق پستی: ۱۴۱۵۵-۱۳۳۹، تهران - ایران

*Email: yahaghi@sci.ikiu.ac.ir

مقاله پژوهشی

تاریخ دریافت مقاله: ۱۴۰۲/۰۹/۱۳ تاریخ بازنگری مقاله: ۱۴۰۲/۱۲/۱۱ تاریخ پذیرش مقاله: ۱۴۰۲/۱۲/۱۲

چکیده

شناسایی اثرات تابش نوترون بر آلومینیوم‌هایی که در ساخت غلاف‌های سوخت راکتورها به کار می‌روند از اهمیت بسیار زیادی برخوردار است. با توجه به مشکلات موجود در تابش‌دهی با نوترون در برخی از مواقع از روش تابش‌دهی با یون‌ها (معمولاً پروتون) برای این بررسی استفاده می‌شود. تغییرات در حفره‌ها در تابش پروتون‌های پرانرژی در حد میکرومتر است. در این تحقیق از طیف‌نگاری طول عمر نابودی پوزیترون که قابلیت برای بررسی ابعاد حفره‌ها را در حد پیکومتر و نانومتر است استفاده شده تا تغییرات آلومینیوم‌های Al-۶۰۶۱ و Al-۳۰۳ بر اثر تابش پروتون‌های ۲.۲ MeV در مقادیر مختلف تابش بررسی شود. نتایج نشان می‌دهد که مقدار زمان τ_{ave} برای هر دو نمونه آلومینیوم بررسی شده ابتدا کاهش پیدا کرده و سپس افزایش یافته است که نشان‌دهنده کوچک‌تر شدن حفره‌ها در مراحل اولیه تابش و در نتیجه کم‌شدن عیوب تهی‌جا و بزرگ شدن آن‌ها در ادامه تابش که بیانگر زیاد شدن عیوب بین‌نشین است می‌باشد. این نتایج توسط آزمون XRD نیز تأیید شده است. در این آزمون نیز مشاهده می‌شود اندازه کریستال در آلومینیوم‌های تابش‌دیده در ابتدا شروع به افزایش و سپس شروع به کاهش کرده است.

کلیدواژه‌ها: آسیب، آلومینیوم‌های غلاف سوخت، تابش پروتون، طیف‌نگاری طول عمر نابودی پوزیترون

Investigation the fuel clad radiation damage by positron annihilation lifetime spectroscopy

R. Jafari¹, M.A. Amirkhani Dehkordi², E. Yahaghi^{*1}, B. Rokrok², M. Asadi Asad Abad²

1. Department of Physics, Faculty of Basic Sciences, Imam Khomeini International University, P.O.Box: 34148-96818, Qazvin - Iran
2. Reactor and Nuclear Safety Research School, Nuclear Science and Technology Research Institute, AEOI, P.O.Box: 14155-1339, Tehran - Iran

Research Article

Received: 04.12.2023, Revised: 01.03.2024, Accepted: 02.03.2024

Abstract

Identification of changes in the aluminum structure due to neutron radiation is crucial in the reactor fuel clad. In some cases, the ion irradiation method, usually using a proton beam, is implemented for this investigation. The changes in the holes of aluminum range from picometers due to the radiation of energetic protons. In this study, positron annihilation lifetime spectroscopy was utilized to examine the changes in holes in Al-6061 and Al-303 caused by the radiation of 2.2 MeV protons at varying levels of radiation. This method can assess the dimensions of holes ranging from picometers to nanometers. For both aluminum samples studied, the results indicate that the average τ_{ave} value initially decreased and then increased. This suggests that the holes became smaller, reducing vacancy defects in the early stages of irradiation. Subsequently, the holes enlarged as irradiation continued, indicating an increase in interstitial defects. These findings were further supported by XRD testing, which revealed that the crystal size of the irradiated aluminum initially increased and then decreased as irradiation progressed.

Keywords: Radiation damage, Fuel clad aluminum, Positron radiation, Positron annihilation lifetime spectroscopy



۱. مقدمه

آلیاژهای مختلف آلومینیم در بخش‌های مختلف صنعت هسته‌ای مورد استفاده قرار می‌گیرند. به دلیل سطح مقطع کم جذب نوترون از آلومینیم به عنوان غلاف سوخت رآکتورهای تحقیقاتی استفاده می‌شود. اگر کیفیت آب رآکتور کمتر از حد مطلوب باشد آن‌گاه آلیاژهای آلومینیم دچار خوردگی شده و تابش‌های هسته‌ای نیز در آن‌ها آسیب به وجود می‌آورند [۱]. خوردگی مواد در رآکتورهای تحقیقاتی می‌تواند در اثر تابش یون‌ساز ایجاد شود. تابش یون‌ساز می‌تواند با مواد از طریق مکانیسم‌های مستقیم و غیرمستقیم برهم‌کنش کند. برهم‌کنش مستقیم تابش یون‌ساز با مواد می‌تواند منجر به تهی‌جاها، اتم‌های بینابینی و محصولات استحاله شود درحالی‌که اثرات غیرمستقیم ناشی از واکنش‌های شیمیایی بین سطح ماده و گونه‌های اولیه رادبولیتیک (O_2^- , e^- , $OH^\bullet$, $H^\bullet$, H_2O_2 , O_2) ممکن است ویژگی‌های الکتروشیمیایی محلول را تغییر دهد و در نهایت منجر به خوردگی مواد شود [۲].

آلومینیم ۶۰۶۱ و ۳۰۳ دو آلیاژ کاربردی هستند که در ساخت غلاف‌های سوخت رآکتورهای تحقیقاتی مورد استفاده قرار می‌گیرند. از اوایل دهه ۱۹۹۰ که تخریب پوشش سوخت، به علت خوردگی و آسیب ناشی از مواد پرتوزا در بسیاری از رآکتورها مشاهده شد، بررسی این غلاف‌های آلومینیمی بر اثر خوردگی در استخرهای آب سبک در دست مطالعات بیشتری قرار گرفت [۱].

از آن زمان آژانس بین‌المللی انرژی اتمی، برای بهبود شرایط ذخیره‌سازی سوخت و رسیدگی به خوردگی و آسیب ناشی از مواد پرتوزا در رآکتور تحقیقاتی فعالیت‌های زیادی انجام داده است. بررسی آسیب ناشی از تابش و خوردگی غلاف‌های آلومینیمی رآکتورهای تحقیقاتی در حدود میکرو و حتی نانو با روش‌های مختلف انجام شده است [۱]. به علت تابش‌های هسته‌ای در داخل سوخت و آسیب‌های ناشی از تنش و خستگی در کاربردهای مختلف، بازرسی آن همواره اهمیت زیادی داشته است. در سال ۲۰۱۵ ویجایا و همکاران، جوشکاری اصطکاکی آلیاژ ۷۰۷۵ به ضخامت ۸ میلی‌متر انجام دادند. آن‌ها تغییرات ریزساختاری فلز پایه و ناحیه قطعه جوش‌های اغتشاشی اصطکاکی با استفاده از میکروسکوپ نوری، میکروسکوپ الکترونی روبشی و میکروسکوپ الکترونی عبوری را مورد بررسی قرار دادند. همچنین تست کشش و سختی فلز پایه جوش نیز انجام شد. آن‌ها مقاومت در برابر خوردگی حفره‌ای را از طریق

تست پلاریزاسیون دینامیکی تعیین کردند [۳]. در سال ۲۰۲۱ بوژو و همکاران، آلیاژ آلومینیم ۷۰۷۵ بازیافتی را برای بررسی فرایندهای ذوب، اکستروژن و عملیات حرارتی آن مورد مطالعه قرار دادند و ترکیب، ریزساختار، خواص مکانیکی و خواص خوردگی آلیاژهای آلومینیم ۷۰۷۵ بازیافت‌شده را توسط طیف‌سنج، میکروسکوپ متالوگرافی نوری، دستگاه تست کشش، میکروسکوپ الکترونی روبشی (SEM^1) و میکروسکوپ الکترونی عبوری (TEM^2) مشخص کردند. آن‌ها با نتایجی که به دست آوردند، نشان دادند که توزیع ترکیب شمش‌های آلیاژ آلومینیم بازیافتی ۷۰۷۵ یکنواخت‌تر و ریزساختار بهینه‌تر بوده است. استحکام کششی، استحکام تسلیم و ازدیاد طول صفحات آلیاژ آلومینیم بازیافتی ۷۰۷۵ بالاتر از استاندارد انجمن تست مواد آمریکا ($ASTM^3$) بود. صفحات بازیافتی آلیاژ آلومینیم ۷۰۷۵- $T6$ مقاومت خوردگی خوبی داشتند [۴]. در کلیه تحقیقات خواص مکانیکی و ترکیبات این آلومینیم به خاطر کاربردهای متعدد آن بررسی شده است. یک روش جدید که اندازه آسیب‌ها را در حد ۰/۱ تا ۱۰ نانومتر اندازه‌گیری می‌کند روش طیف‌سنجی با طول‌عمر نابودی پوزیترون است [۵-۶]. در این روش، طول‌عمر پوزیترون در جسم به وسیله از بین رفتن آن با واکنش پوزیترونیم اندازه‌گیری و به شکل یک طیف نشان داده می‌شود [۷-۹]. از طیف طول‌عمر نابودی پوزیترون می‌توان برای شناسایی مواد پلیمری بهره جست. طیف‌سنجی طول‌عمر نابودی پوزیترون PALS⁴ در بررسی حجم آزاد در مواد مختلف از جمله پلیمرها، اندازه‌گیری دمای انتقال شیشه‌ای - لاستیک پلیمرها و بررسی امتزاج‌پذیری آمیخته‌های پلیمری قابل استفاده است [۱۰-۱۱]. در این طیف‌سنجی پوزیترون تولید شده از چشمه، به داخل ماده نفوذ کرده و با الکترون‌های داخل ماده ترکیب شده و دو گامای ۰/۵۱۱ MeV می‌دهد. برخورد الکترون و پوزیترون به صورت برخورد مستقیم، پاراپوزیترونیم و اورتو پوزیترونیم است. هرچه ابعاد حفره‌ای که پوزیترون در داخل آن نفوذ می‌کند بزرگ‌تر باشد، طول‌عمر آن بیشتر می‌شود [۳-۶]. از روش عمرسنجی پوزیترون برای بررسی نانو ذرات در فریت‌ها و تیتانیم و آلیاژهای آهن نیز استفاده شده است [۱۲-۱۳].

الساید و همکاران [۱۴] اثرات حفره‌های تولید شده در آلومینیم خالص بر اثر برخورد هیدروژن را با روش PALS

1. Scanning Electron Microscope

2. Transmission Electron Microscopy

3. American Society for Testing and Materials

4. Positron Annihilation Lifetime Spectroscopy



$$T_{1,2} - T_1 = \frac{\frac{kT_1^2}{E_m^V} \ln \left(\frac{K_{o_2}}{K_{o_1}} \right)}{1 - \frac{kT_1}{E_m^V} \ln \left(\frac{K_{o_2}}{K_{o_1}} \right)}$$

$$T_{2,2} - T_1 = \frac{\frac{kT_1^2}{E_m^V + 2E_f^V} \ln \left(\frac{K_{o_2}}{K_{o_1}} \right)}{1 - \frac{kT_1}{E_m^V + 2E_f^V} \ln \left(\frac{K_{o_2}}{K_{o_1}} \right)}$$

$$T_I = \frac{T_{1,2} + T_{2,2}}{2} \quad (1)$$

در این رابطه‌ها T_1 دمای ناحیه تحت تابش نوترون برحسب کلون، k ثابت بولتزمن برحسب eV/K ، E_m^V انرژی مهاجرت تهی‌جاها eV ، K_{o_1} نرخ تولید عیوب در تابش نوترون برحسب dpa/s ، K_{o_2} نرخ تولید عیوب در تابش‌دهی با یون برحسب

dpa/s ، E_f^V انرژی تشکیل تهی‌جاها برحسب eV و T_I دمای تابش‌دهی با یون مربوطه می‌باشد. توضیحات تکمیلی درباره نحوه استخراج معادلات و همچنین انجام محاسبات در مرجع [۱۶] بیان شده است.

در این پژوهش برای محاسبات نرخ آسیب تابش نوترون و پروتون از کدهای MCNPX، SPECTER، SPECOMP و SRIM استفاده شده است. ناحیه‌ای از غلاف آلومینیم ۳۰۳ که در رآکتور تحقیقاتی اصفهان شبیه‌سازی شده است تحت تابش نوترون با شار $6.7 \times 10^{12} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{s}$ قرار دارد در حالی که ناحیه‌ای از غلاف آلومینیم ۶۰۶۱ در رآکتور تحقیقاتی تهران تحت تابش نوترون با شار $2.6 \times 10^{14} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{s}$ است. قابل ذکر است با توجه به این که نقطه‌ای با بیشترین شار دارای بیشترین نرخ آسیب تابش نوترون است و با توجه به محدودیت‌ها در روش معادل‌سازی تابش نوترون با یون‌ها، معادل‌سازی تنها برای نقطه‌ای از قلب با بیشترین شار نوترون انجام می‌شود. همچنین باید توجه داشت که شار و طیف شار نوترون متفاوت در این دو رآکتور سبب ایجاد نرخ ایجاد آسیب متفاوت در هر یک از آن‌ها می‌شود. در رآکتور MNSR اصفهان نرخ ایجاد آسیب برابر با

بررسی کرده‌اند و همیلتون و همکاران [۱۵] نیز اثرات جوشکاری در آلیاژهای آلومینیم را با این روش مطالعه کرده‌اند. در این پژوهش هدف استفاده از روش طیف‌سنجی براساس طول‌عمر نابودی پوزیترون است تا تغییرات حفرات ناشی از تابش پروتون بر آلیاژهای آلومینیم ۶۰۶۱ و ۳۰۳ که به ترتیب به عنوان غلاف سوخت در رآکتور تحقیقاتی تهران و رآکتور تحقیقاتی MNSR اصفهان استفاده می‌شود مشخص گردد. آزمایش با نمونه‌های تحت تابش نوترون نیاز به ۱ تا ۳ سال تابش در قلب رآکتورهای تست مواد دارد، همچنین نیاز به یک‌سال زمان خنک‌سازی نمونه دارد. از این‌رو، با توجه به زمان‌بر بودن و همچنین نیاز به تجهیزات و ابزارهای گران‌قیمت در تابش نوترون و از سوی دیگر عدم وجود امکانات لازم در داخل کشور برای آزمایش با نمونه‌های تحت تابش نوترون، در این پژوهش از روش معادل‌سازی آسیب تابش نوترون با یون‌ها (در این پژوهش از پروتون) که در مرجع [۱۶] بیان شده است استفاده می‌شود. بخشی از شبیه‌سازی‌های مورد نیاز برای معادل‌سازی تابش نوترون و پروتون در مرجع [۱۷] بیان شده است. تابش‌دهی با استفاده از شتاب‌دهنده واندوگراف ۳ MeV موجود در سازمان انرژی اتمی ایران انجام شده است.

۲. روش‌ها

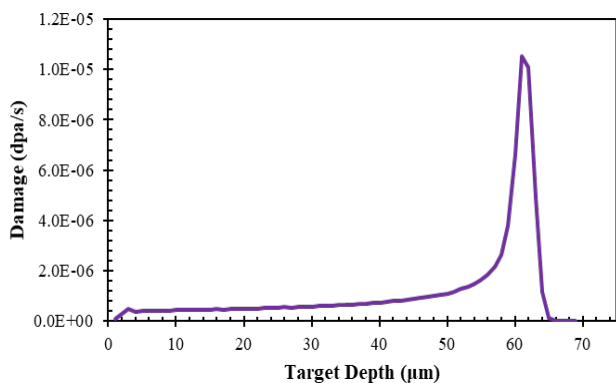
در این بخش توضیحاتی در خصوص نمونه‌های آلومینیم و آزمایش‌های انجام شده بر روی آن‌ها و همچنین روش معادل‌سازی تابش نوترون و پروتون داده شده است. با توجه به این که نتایج محاسبات نرخ آسیب تابش در مرجع [۱۷] بیان شده است در این قسمت تنها نتایج ذکر شده است و از ذکر جزئیات روش محاسبات اجتناب شده است.

۱۰.۲ محاسبات تابش‌دهی با پروتون

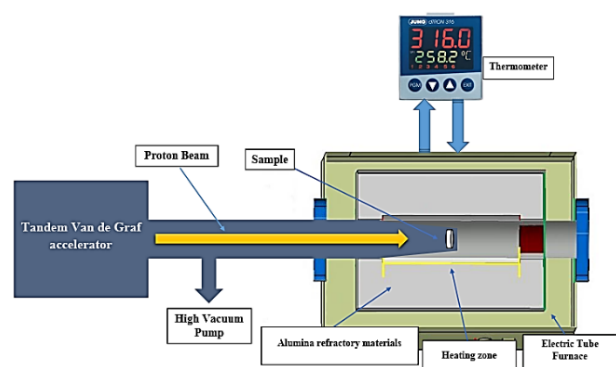
برای استفاده از روش معادل‌سازی تابش نوترون با یون‌ها در ابتدا ضروری است نرخ ایجاد آسیب تابش نوترون و یون در ماده موردنظر با استفاده از کدهای شبیه‌سازی مختلف همچون SPECTER، MCNP و ... محاسبه شود. همچنین ضروری است دمای ناحیه موردنظر در تابش‌دهی نوترون نیز محاسبه شود. با استفاده از اطلاعات به دست آمده و به کمک روابط زیر [۱۶] دمای معادل‌سازی با تابش یون استخراج می‌شود.



تابش‌دهی هر نمونه بیان شده است. همچنین مقدار زمان لازم برای تابش‌دهی با نوترون برای ایجاد آسیب مشابه به همراه جریان تابش پروتون و نوترون نیز در این جدول نشان داده شده است.



شکل ۱. پروفایل آسیب تابش پروتون با انرژی ۲٫۲ MeV و جریان ۱ μA و قطر بیم ۸ mm بر روی آلومینیم آلیاژ ۳۰۳.



شکل ۲. شماتیک سیستم تابش‌دهی پروتون.

۴٫۵×۱۰^{-۹} dpa/s در حالی که در رآکتور تحقیقاتی تهران برابر با ۳٫۲×۱۰^{-۷} dpa/s است. روش محاسبه نرخ ایجاد آسیب در مرجع [۱۷] بیان شده است.

تابش‌دهی در شتاب‌دهنده واندوگراف سازمان انرژی اتمی با پروتون با انرژی ۲٫۲ MeV و جریان ۱ μA با زمان‌های مختلف انجام شده است. به طور نمونه، پروفایل آسیب ناشی از تابش پروتون با این انرژی در آلومینیم آلیاژ ۳۰۳ که با استفاده از کد SRIM محاسبه شده است در شکل ۱ نشان داده شده است و شماتیک سیستم تابش‌دهی نیز در شکل ۲ نشان داده شده است. نرخ ایجاد آسیب پروتون در غلاف رآکتور MNSR برابر با ۵٫۴۶×۱۰^{-۷} dpa/s و در غلاف رآکتور تحقیقاتی تهران ۵٫۰۲×۱۰^{-۷} dpa/s بوده است. تفاوت ایجاد شده در دو ماده ناشی از ترکیبات آلیاژی متفاوت دو غلاف که در جدول ۱ و جدول ۲ ذکر شده است و در نتیجه سطح مقطع جابه‌جایی متفاوت دو آلیاژ می‌باشد. ماکزیمم دمای غلاف رآکتور MNSR اصفهان و رآکتور تحقیقاتی تهران با استفاده از مراجع [۱۸-۱۹] به ترتیب ۵۸ °C و ۹۴٫۲ °C می‌باشد. همچنین مقادیر انرژی مهاجرت تهی‌جاها و انرژی تشکیل تهی‌جاها با استفاده از مراجع [۲۰-۲۱] به ترتیب ۰٫۶۱ eV و ۰٫۶۶ eV در نظر گرفته شده است. با استفاده از روابط (۱) دمای معادل‌سازی برای رآکتور MNSR و رآکتور تهران به ترتیب ۱۱۸ °C و ۱۰۳ °C محاسبه می‌شود. برای ایجاد تغییرات دما در سیستم شتاب‌دهنده واندوگراف از یک کوره لوله‌ای الکتریکی استفاده شده است.

روش شبیه‌سازی اثرات تابش نوترون با پروتون مطابق با روش بیان شده در مرجع [۱۶] انجام شده است و انتخاب زمان‌های تابش براساس شبیه‌سازی انجام شده که نتایج آن در مرجع [۲۲] است انتخاب گردیده است. در جدول ۳ زمان

جدول ۱. ترکیبات آلیاژ Al-۳۰۳ [۱۷]

عنصر	Si	C	P	Ni	Cr	Mo	Mn	S
درصد جرمی (%)	۱٫۰	۰٫۱۵	۰٫۲	۸-۱۰	۱۷-۱۹	۰٫۶	۰٫۲	۰٫۱۵

جدول ۲. ترکیبات Al-۶۰۶۱ [۲۳]

عنصر	Al	Si	Cr	Mg	Cu	Fe	Ti	Zn
درصد جرمی (%)	۹۵٫۸۵-۹۷٫۹۲	۰٫۴-۰٫۸	۰٫۳۵	۰٫۸-۱٫۲	۰٫۱۵-۰٫۴	۰٫۷	۰٫۱۵	۰٫۱۵

جدول ۳. زمان و جریان تابش‌دهی هر نمونه

نام نمونه	زمان تابش‌دهی پروتون (min)	زمان تابش نوترون (min)	جریان پروتون (p/cm ^۲)	جریان نوترون (n/cm ^۲)
Al-۶۰۶۱-۱	۱۷۷	۳۵۰	۱٫۳۲ × ۱۰ ^{۱۷}	۵٫۴۴ × ۱۰ ^{۱۸}
Al-۶۰۶۱-۲	۳۷۵	۷۴۱	۲٫۸ × ۱۰ ^{۱۷}	۱٫۱۵ × ۱۰ ^{۱۹}
Al-۶۰۶۱-۳	۷۴۷	۱۴۷۶	۵٫۵۷ × ۱۰ ^{۱۷}	۲٫۳ × ۱۰ ^{۱۹}
Al-۳۰۳-۱	۱۷۲	۲۰۹۰۳	۱٫۲۸ × ۱۰ ^{۱۷}	۸٫۴ × ۱۰ ^{۱۸}
Al-۳۰۳-۲	۶۹۰	۸۳۸۵۳	۵٫۱۵ × ۱۰ ^{۱۷}	۳٫۴ × ۱۰ ^{۱۹}



۲.۲ مشخصات آلومینیم‌ها

چهار نمونه از Al-۶۰۶۱ و سه نمونه Al-۳۰۳ با ابعاد $1.5\text{cm} \times 1.5\text{cm} \times 1\text{mm}$ و ضخامت ۱ mm برش داده شده و سطح تمامی آن‌ها با استفاده از سنباده‌های ۶۰۰، ۸۰۰ و ۳۰۰۰ پولیش زده شده است. در جدول ۱ و جدول ۲ ترکیبات آلیاژی و درصد جرمی این دو آلومینیم آورده شده‌اند [۲۳-۲۴].

۳. نتایج

نتایج بررسی آسیب تابش پروتون بر دو آلومینیم Al-۶۰۶۱ و Al-۳۰۳ در زمان‌های مختلف تابش، با استفاده از آزمون‌های مختلف تجربی انجام شد. نتایج هر آزمون در ادامه به تفصیل بیان شده است.

۱.۳ نتایج آزمون XRD

در این تحقیق از دستگاه PHILIPS-PW۱۸۰۰ با فلز مس به عنوان تولیدکننده اشعه X ($1.54056 \text{ \AA}$) که در جریان ۳۰ mA و ولتاژ ۴۰ kV کار می‌کند استفاده شده است. به منظور تحلیل داده‌های XRD از نرم‌افزار X-Pert استفاده گردیده است. در شکل ۳-الف و ب تغییرات شدت برحسب زاویه برای زوایای حدود ۳۸، ۴۵، ۶۵ و ۷۸ درجه که مربوط به صفحات ۱۱۱، ۲۰۰، ۲۲۰ و ۳۱۱ هستند رسم شده است. برای مشاهده بهتر تغییرات، منحنی‌های هر صفحه جداگانه و در اندازه بزرگ‌تر رسم شده است. در شکل دیده می‌شود که در این صفحات بر اثر تابش پروتون 2.2 MeV شدت تغییر کرده ولی طیف جابه‌جا نشده است، بنابراین پیوندها تغییر نکرده‌اند و آلومینیم‌های تابش دیده ساختار خود را حفظ کرده‌اند. همچنین تغییرات شدت در صفحات با تابش خطی نبوده و بعضی صفحات بیشتر و بعضی کمتر تغییرات داشته‌اند که ممکن است به عوامل مختلف از جمله به زاویه آن‌ها نسبت به پرتو تابشی پروتون بستگی داشته باشد. برای بررسی تغییرات طیف‌ها تغییرات اندازه کریستال‌ها بر اثر تابش در زمان‌های مختلف برای پروتون محاسبه شد. برای این منظور با استفاده از نرم‌افزار مقادیر اندازه، کریستال برای ۳ صفحه ۱۱۱، ۲۰۰ و ۲۲۰ که در زوایای ۳۸، ۴۵ و ۶۵ وجود داشتند با توجه به FWHM آن‌ها محاسبه شده و متوسط ۳ مقدار در جدول ۴ و ۵ آورده شده است. همان‌گونه که از نتایج آزمون XRD مشاهده می‌شود اندازه کریستال ماده در ابتدا شروع به افزایش و سپس شروع به کاهش می‌کند. این تغییرات با توجه به سیستم پرتودهی قابل توضیح می‌باشد. همان‌طور که در مراجع مختلف ذکر شده است افزایش دما موجب رشد اندازه کریستال می‌شود [۲۲-۲۴] ولی از طرفی دیگر تابش باعث کاهش اندازه کریستال خواهد شد [۲۵-۲۶]. کاهش در اندازه کریستال نشان از افزایش تعداد حفره‌ها و بین‌نشین‌ها در ماده است که این موضوع در مدل‌های محاسباتی نیز مشاهده شده است [۲۷].

۳.۲ طیف‌نگاری با روش عمرسنجی پوزیترون (PALS)

دستگاه عمرسنج پوزیترون استفاده شده ساخت شرکت نوین طیف پرتو گستر از ایران بوده و در آن از چشمه پوزیترون ^{22}Na با فعالیت $10 \mu\text{Ci}$ و آشکارسازهای سوسوزن پلاستیکی سرعت بالا استفاده می‌شود. این آشکارسازها برای اندازه‌گیری سیگنال‌های تند آند مناسب هستند. جزئیات مربوط به سیستم آشکارسازی و نحوه تنظیمات آن در مرجع [۸] ارائه شده است. این دستگاه دارای رزولوشن زمانی ۳۶۰ ns است. هنگام آزمایش دمای محیط حدود $18-22^\circ\text{C}$ تنظیم می‌شود.

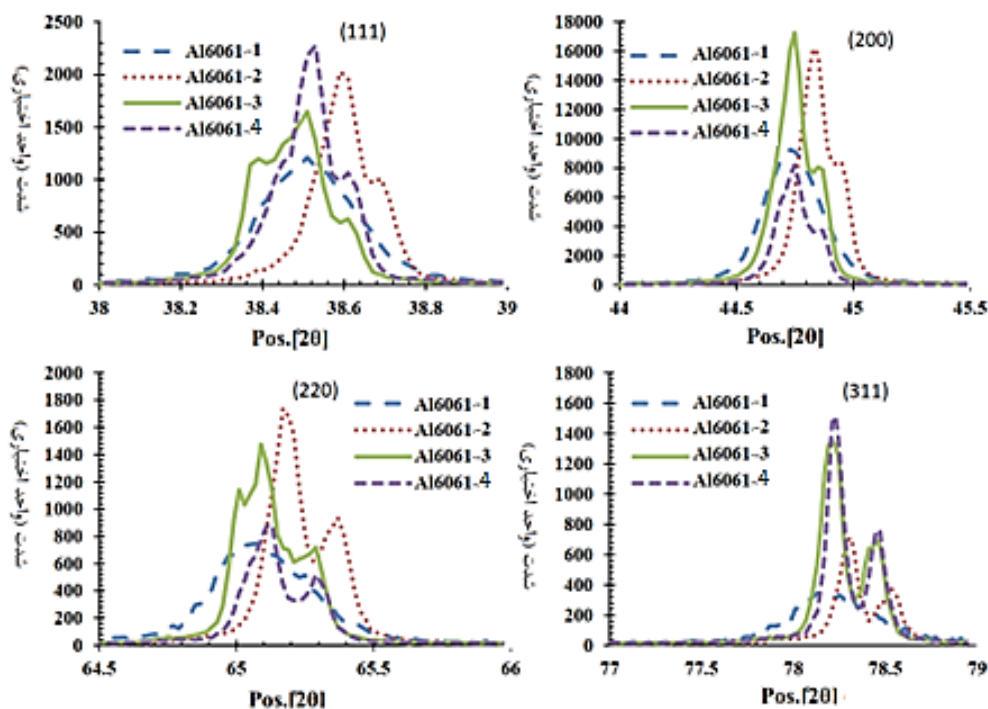
خروجی دستگاه یک طیف گوسی شکل است که از روی آن مقادیر خروجی که مقادیر شدت و زمان نابودی τ برای هر بخش محاسبه می‌شود. آزمون PALS حاصل واکنش یک پوزیترون با یک الکترون در داخل حفرات ماده است که در ۳ حالت اتفاق می‌افتد. حالت اول نابودی پوزیترون به طور آزاد است که در این حالت پوزیترون و الکترون مستقیماً ترکیب شده و دو گاما آزاد می‌کنند و طول عمر این واکنش ۲/۵-۰/۰ ns است. حالت دوم نابودی پاراپوزیترونیم است، در این حالت پوزیترون و الکترون دارای اسپین مخالف هم هستند که طول عمر آن حدود ۱۲۵ ns است. حالت سوم نابودی ارتوپوزیترونیم است در این حالت پوزیترون و الکترون دارای اسپین هم‌جهت‌اند و طول عمر آن حدود ۱۴۲ ns است [۱۰]. این زمان‌ها با τ_1 ، τ_2 و τ_3 نشان داده می‌شوند و طیف به دست آمده با این رابطه بیان می‌شود [۱۱]:

$$y(t) = \sum_{i=1}^{k+1} \frac{I_i}{\tau_i} \exp\left(-\frac{t}{\tau_i}\right) \quad (2)$$

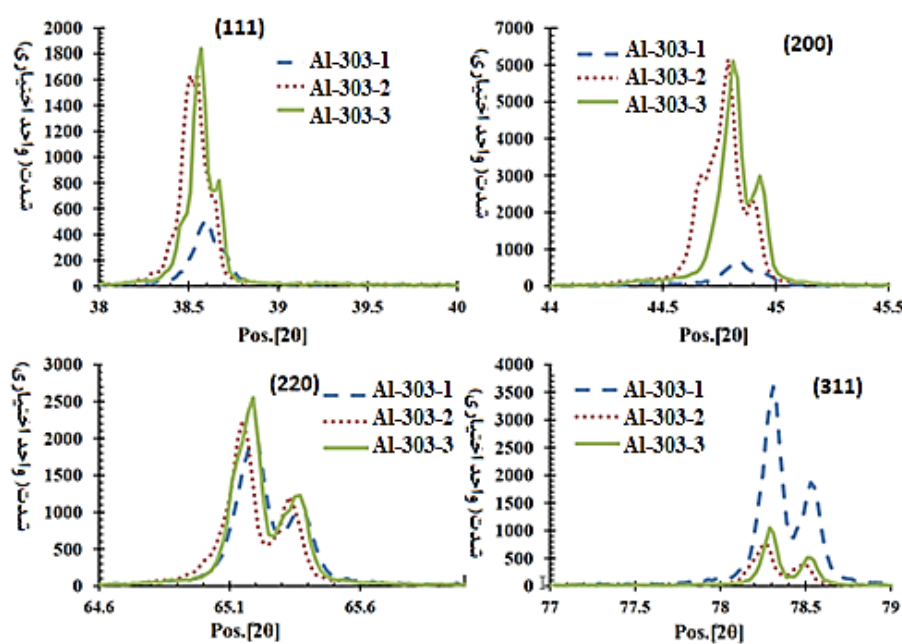
که در آن، τ_i زمان‌های مربوط نابودی پوزیترون به ۳ صورت مختلف توضیح داده شده در ماده است که برحسب نانو ثانیه و I_i شدت یا تعداد پوزیترون‌های از بین رفته در داخل ماده برای هریک از مؤلفه‌ها است. در فلزات به دلیل چگالی بالای الکترون، طیف طول عمر پوزیترون دو مؤلفه‌ای است [۱۲-۱۴].



(الف)



(ب)



شکل ۳. طیف XRD برای Al-۶۰۶۱ و Al-۳۰۳ در زمان‌های مختلف تابش.

جدول ۵. تغییرات اندازه کریستال بر اثر تابش پروتون به Al-۳۰۳ در زمان‌های مختلف

سایز کریستال (Å)	زمان تابش (min)
۱۶۴٫۳۳	۰
۲۱۱٫۰۰	۱۷۲
۱۸۹٫۳۳	۶۹۰

جدول ۴. تغییرات اندازه کریستال بر اثر تابش پروتون به Al-۶۰۶۱ در زمان‌های مختلف

سایز کریستال (Å)	زمان تابش (min)
۸۶٫۶۶	۰
۱۶۴٫۳۳	۱۷۷
۲۴۹٫۶۶	۳۷۵
۱۷۰٫۰۰	۷۴۷



می‌شود. علت این امر غلظت زیاد الکترون در فلزات است و پدیده ارتوپوزیترونیم رخ نمی‌دهد و تعداد یا شدت I_3 برای بخش سوم زیر ۱٪ است که در حد نویز می‌باشد. برای مثال در نمونه ۴-۶۰۶۱-Al کنه زمان تابش‌دهی پوزیترون در آن ۶۹۰ دقیقه بوده است، مقادیر τ_3 و I_3 به ترتیب 3.336 ± 0.075 ns و 0.192 ± 0.0778 ٪ به‌دست آمده که طبق مرجع [۲۹] مربوط به پوزیترون‌های از بین رفته در کاپتون دربرگیرنده چشمه و فضای خالی بین نمونه و چشمه است و مقدار کمی دارد که به عنوان نویز در نظر گرفته می‌شود و مؤلفه آلومینیم نیست.

در شکل ۴، داده‌های اصلی نقاط رنگ قرمز هستند که بر روی آن‌ها مجموع دو منحنی نمایی مطابق با رابطه (۲) برازش شده است که در روی شکل دو منحنی با خط طوسی پیوسته-دایره و فیروزه‌ای-ستاره‌دار هستند. منحنی برازش شده نهایی در روی شکل با خط پیوسته آبی‌رنگ نشان داده شده است. در جدول ۶ مقادیر پارامترهای به‌دست آمده برای هر بخش و ضریب برازش منحنی‌های نمایی که در شکل ۴ با رنگ‌های آبی و قهوه‌ای نشان داده شده است. با توجه به جدول دیده می‌شود که I_2 مقدار کمی دارد و این نشان دهنده این است که سهم τ_2 که نشان دهنده ابعاد حفره‌های بیشتر از تهی‌جا است مقدار خیلی کمی است طوری که می‌تواند ناشی از فاصله هوایی مایلر (پوشش نگه‌دارنده چشمه) و سایر ناخالصی‌ها باشد. I_1 سهم نابودی پوزیترون در یک تک تهی‌جا و برای تمام آزمایشات بیشتر از ۹۸٪ است. در این حالت از رابطه:

$$\tau_{ave} = \frac{I_1\tau_1 + I_2\tau_2}{I_1 + I_2} \quad (3)$$

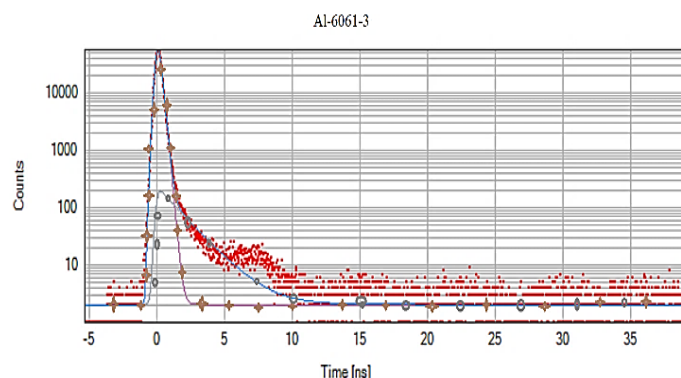
τ_{ave} محاسبه شده با مقادیر مرجع مقایسه شد. در این مرجع [۲۶] برای آلومینیم با خلوص ۹۹/۹٪ و آنیل شده در دمای 500°C مقدار τ_{ave} حدود ۱۶۰ ps داده شده است. برای نمونه‌های ۱-۶۰۶۱-Al و ۱-۳۰۳-Al که آلومینیم‌های بدون تابش هستند، این مقادیر حدود ۱۵۹ ps و ۱۷۰ ps بوده‌اند. با توجه به جدول‌های ۳ و ۱ دیده می‌شود که ناخالصی‌های این دو آلومینیم با هم فرق دارند و درصد جرمی ۱-۶۰۶۱-Al طبق جدول ۱ حدود ۹۷/۹۲٪ است که طبق جدول ۶ برای آزمون PALS، حدود ۹۸٪ به‌دست آمده‌اند. در [۲۸] مقادیر τ_{ave} برای آلومینیم با خلوص ۹۹/۹٪، ۰/۱۶۰ ns ذکر شده که با مقادیر به‌دست آمده در جدول ۶ همخوانی دارد. همچنین در [۲۷] τ_1 و τ_2 به ترتیب ۰/۱ ns و 1.0 ± 0.2 ns ذکر شده که حدود اعداد جدول ۶ که از نرم‌افزار LT۱۰ به‌دست آمده را تأیید می‌کنند.

در سیستم تابش‌دهی استفاده شده در این پژوهش دو عامل افزایش دما ناشی از برخورد پرتو پروتون به ماده و عامل جابه‌جایی اتم‌ها به یکدیگر در رقابت می‌باشند. در نمونه‌های با زمان تابش‌دهی کمتر مشاهده می‌شود که عامل افزایش دما بر عامل جابه‌جایی اتم‌ها غلبه کرده و در نتیجه کریستال‌های ماده شروع به رشد می‌کند با افزایش زمان تابش‌دهی در نمونه و افزایش تعداد حفره‌ها و اتم‌های بین‌نشین در محل تابش، مشاهده می‌شود که عامل جابه‌جایی اتم‌ها بر عامل افزایش دما غلبه کرده و اندازه کریستال ماده شروع به کاهش می‌کند.

۲.۳ نتایج آزمون PALS

در این آزمون صفحات آلومینیم در دو طرف چشمه ^{22}Na قرار داده شده و مجموعه بین دو آشکارساز دستگاه PALS قرار گرفت. این آشکارسازها سوسوزن پلاستیکی هستند که سرعت بالایی دارند. جزئیات مربوط به سیستم آشکارسازی و نحوه راه‌اندازی آن در مرجع [۱۲] ارائه شده است. با نفوذ پوزیترون ساطع شده از چشمه به داخل آلومینیم و ترکیب آن‌ها با الکترون‌ها، دو پرتو گامای 0.511 MeV ساطع می‌شود. این دو پرتو گاما توسط آشکارسازهای پلاستیکی آشکار شده و طیف خروجی به‌دست می‌آید. در شکل ۴ نمونه‌ای از طیف جمع‌آوری شده از این دستگاه نشان داده شده است. این طیف برای نمونه ۲-۶۰۶۱-Al است که با انرژی 2 MeV و جریان $1 \mu\text{A}$ ، پروتون به مدت ۱۷۷ دقیقه تابش دیده است. بیشینه شمارش طیف ۱۱۰۰ و کل شمارش‌ها حدود 130000 بوده و برای جمع‌آوری داده‌های هر طیف به‌طور تقریب ۲۷ ساعت زمان صرف شده است. قسمت پایین طیف خطای آزمایش را در کانال‌های مختلف زمانی نشان می‌دهد که کمتر از ۸٪ است. برای تجزیه و تحلیل طیف‌های به‌دست آمده از روش χ از نرم‌افزار LT۱۰ استفاده شده است [۷، ۱۱]. در طیف‌نگاری تابش نابودی پوزیترون با روش داپلر که برای بررسی محیط شیمیایی اطراف حفره‌ها استفاده می‌شود، احتمال برهم‌کنش پوزیترون با الکترون‌های لایه‌های داخلی از مرتبه 10^{-4} است و بنابراین تعداد شمارش‌ها باید از مرتبه 10^7 باشد [۱۱]. در آزمون طیف‌سنجی به روش عمرسنجی پوزیترون انتخاب تعداد شمارش در مقدار خطای آزمایش مؤثر است. به‌طور معمول تعداد شمارش بالای 10^6 توصیه می‌شود [۲۸]، ولی برای دستیابی به خطای کمتر مقدار 10^7 نیز در مراجع استفاده شده است. برای تجزیه و تحلیل آلومینیم مدل نمایی دو بخشی استفاده شده و مقادیر τ_2 ها و شدت در هر بخش به‌دست آمده است. در مراجع [۲۹-۳۰] ذکر شده برای فلزات از مدل یک شامل τ_1 و یا دو بخشی که شامل τ_1 و τ_2 است و یا τ_{ave} استفاده





شکل ۴. طیف به‌دست آمده از دستگاه PALS، داده‌های تجربی (نقاط قرمز رنگ)، منحنی‌های برازش شده (خط آبی پیوسته) دو تابع نمایی برازش شده مطابق رابطه (۲) (خط طوسی پیوسته-دایره و فیروزه‌ای-ستاره‌دار).

جدول ۶. مقادیر شدت و τ_{ave} محاسبه شده برای نمونه‌های مختلف توسط نرم‌افزار LT۱۰

نام نمونه	I_1	τ_1 (ns)	I_2	τ_2 (ns)	τ_{ave} (ns)	χ
Al-۶۰۶۱-۱	۹۸٫۲۸	$۰٫۱۵۹ \pm ۰٫۰۰۵$	$۱٫۷۱۱ \pm ۰٫۰۹۳$	$۱٫۴۶۱ \pm ۰٫۰۲۱$	$۰٫۱۸۰$	۳٫۰۱
Al-۶۰۶۱-۲	۹۸٫۵۲	$۰٫۱۴۴ \pm ۰٫۰۰۲۶$	$۱٫۴۸۰ \pm ۰٫۰۶۰۲$	$۱٫۵۵۸ \pm ۰٫۰۲۸$	$۰٫۱۶۵$	۱٫۵۱
Al-۶۰۶۱-۳	۹۸٫۰۲	$۰٫۱۶۹ \pm ۰٫۰۰۰۶$	$۱٫۹۷۹ \pm ۰٫۰۸۰۱$	$۱٫۶۳۰ \pm ۰٫۰۲۴۰$	$۰٫۱۹۸$	۲٫۰۲
Al-۶۰۶۱-۴	۹۸٫۲۸	$۰٫۱۷۲ \pm ۰٫۰۰۰۴$	$۱٫۷۱۲ \pm ۰٫۰۸۹۰$	$۱٫۷۰۲ \pm ۰٫۰۸۹۰$	$۰٫۱۹۶$	۲٫۴۲
Al-۳۰۳-۱	۹۸٫۴۶	$۰٫۱۷۰ \pm ۰٫۰۰۲۳$	$۱٫۵۳۳ \pm ۰٫۱۱۰۱$	$۱٫۴۷۶ \pm ۰٫۰۲۲۵$	$۰٫۱۹۰$	۲٫۰۹
Al-۳۰۳-۲	۹۸٫۹۰	$۰٫۱۵۰ \pm ۰٫۰۳۷۱$	$۱٫۹۵۰ \pm ۰٫۰۶۲۰$	$۲٫۷۱۰ \pm ۰٫۰۳۴۰$	$۰٫۱۷۷$	۱٫۹۱
Al-۳۰۳-۳	۹۸٫۳۰	$۰٫۱۵۹ \pm ۰٫۰۰۰۷$	$۱٫۶۹۰ \pm ۰٫۰۷۳۱$	$۱٫۴۷۷ \pm ۰٫۰۱۸۰$	$۰٫۱۸۱$	۲٫۹۴

۴. نتیجه‌گیری

در این تحقیق تغییرات آلومینیم‌های Al-۶۰۶۱ و Al-۳۰۳ بر اثر تابش پروتون ۲٫۲ MeV با PALS بررسی شده است. این آلومینیم‌ها در ساخت غلاف‌های سوخت رآکتورهای تحقیقاتی به‌کار می‌روند و بررسی اثر تابش نوترون بر آن‌ها اهمیت دارد. در اینجا با توجه به زمان‌بر بودن آزمایشات نوترونی از روش تابش‌دهی با استفاده از یون‌ها که در مراجع مختلف بیان شده است استفاده شده است. طبق جدول ۶ نتایج آزمون PALS نشان می‌دهد که مقدار زمان τ_{ave} برای هر دو نمونه آلومینیم بررسی شده ابتدا کاهش پیدا کرده و سپس افزایش یافته و تقریباً ثابت می‌شود. به‌طوری‌که در تابش پروتون به نمونه آلومینیم Al-۶۰۶۱ با زمان‌های ۳۷۵ و ۷۴۷ دقیقه تغییر محسوسی در اندازه زمان τ_{ave} دیده نمی‌شود.

این نتایج نشان می‌دهد حجم حفره‌ها در زمان‌های اولیه تابش به علت باز ترکیب ناشی از گرمای ایجاد شده کاهش یافته و در ادامه تابش با غلبه تابش بر گرما و زیاد شدن تهی‌جاها و عیوب بین‌نشینی افزایش پیدا کرده‌اند. همچنین نتایج آزمون XRD و محاسبات اندازه کریستالی در جدول‌های ۴ و ۵ نیز نشان می‌دهد که اندازه کریستال در آلومینیم‌های تابش دیده در ابتدا شروع به افزایش و سپس شروع به کاهش کرده که نتایج به‌دست آمده از آزمون PALS را تأیید می‌کند.

همچنین با توجه به جدول دیده می‌شود که τ_{ave} برای هر دو آلومینیم Al-۶۰۶۱ و Al-۳۰۳ ابتدا کاهش یافته و بعد افزایش می‌یابد. این روند با توجه به تغییرات ایجاد شده در اندازه کریستال که در آزمون XRD مشاهده شده است توجیه‌پذیر است.

در اثر برخورد تابش پروتون با اتم‌های ماده و جابه‌جایی اتم‌ها، تهی‌جا در ساختار ماده تشکیل می‌شوند از طرف دیگر به دلیل گرمای ایجاد شده در اثر برخورد و گرم شدن ماده، بازگشت اتم‌ها به جایگاه شبکه انجام می‌شود. در زمان‌های تابش کمتر با وجود تولید تهی‌جاها در ماده عامل بازگشت اتم‌ها به جایگاه‌های شبکه ناشی از گرمای ایجاد شده غالب خواهد بود و در نتیجه τ_{ave} کاهش می‌یابد اما در حالتی که زمان تابش بیشتر می‌شود در اثر برخورد پروتون‌ها تهی‌جاها در بیشتری در ساختار ماده تشکیل شده و اتم‌های جابه‌جا شده از جایگاه شبکه تبدیل به عیوب بین‌نشینی خواهند شد که منجر به افزایش τ_{ave} می‌شود. با توجه به جدول نیز دیده می‌شود که برای هر دو نمونه زمان τ_{ave} ابتدا کاهش پیدا کرده و سپس افزایش یافته است که مربوط به بیشتر شدن عیوب بین‌نشینی می‌باشد.



مراجع

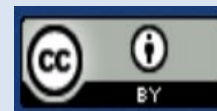
1. Tsay K.V, Rofman O.V, Kudryashov V.V, Yarovchuk A.V, Maksimkin O.P. Influence of neutron irradiation and ageing on behavior of SAV-1 reactor alloy. *Nuclear Engineering and Technology*. <https://doi.org/10.1016/j.net.2021.04.025>.
2. Kanjana K, Ampornrat P, Channuie J. Gamma-radiation-induced corrosion of aluminum alloy: Low dose effect. *In Journal of Physics. Conference Series. IOP Publishing*. 2017;860(1):012041.
3. Kumar P.V, Reddy G.M, Rao K.S. Microstructure, mechanical and corrosion behavior of high strength AA7075 aluminium alloy friction stir welds–Effect of post weld heat treatment. *Defence Technology*. 2015;11(4):362-369.
4. <https://asm.matweb.com/search/SpecificMaterial.asp?bassnum=ma7075t6>.
5. Alloy 7075, Understanding Cold Finished Aluminum Alloys. *Alcoa Global Cold Finished Products*.
6. Al-Jaafari M. Mechanical Properties of 7075 Aluminum Alloy Matrix/ Al_2O_3 Particles Reinforced Composites. *Engineering and Technology Journal*. 2017;35:239-245.
7. Zhou B, Liu B, Zhang S, Lin R, Jiang Y, Lan X. Microstructure evolution of recycled 7075 aluminum alloy and its mechanical and corrosion properties. *Journal of Alloys and Compounds*. 2021;879:160407.
8. Geoffrey Matthew Geise, Positron Annihilation Lifetime Spectroscopy (PALS). *In book: Encyclopedia of Membranes*. DOI:10.1007/978-3-642-40872-4_1150-2.
9. Bosnar S, Vrankić M, Bosnar D, Ren N, Šarić A. Positron annihilation lifetime spectroscopy (PALS) study of the as prepared and calcined MFI zeolites. *Author links open overlay. J. Phys. D: Appl. Phys*. 2009;42:243001 (21pp).
10. Esmizade E, Razavi Nouri M, Kalati Vahid A. Positron Annihilation Life-time Spectroscopy (PALS) I. Introduction and Applications in Polymer Science. *Polymer*. 2012;4-12: 10.22063/BASPARESH.2012.930 [In Persian].
11. Jean Y.C, Mallon P.E, Shrader D.M. Principles and Applications of Positron and Positronium Chemistry. *World Scientific Publishing Co. Pte. Ltd.*, ISBN 981-238-144-9. 2003.
12. Asgarian S.M, Kargar Z. Positron annihilation lifetime spectroscopy in nickel ferrite and iron oxide nanopowders. *Iranian Journal of Physics Research*. 2019;19(2).
13. Zaleski R, Zaleski K, Gorgol M, Wiercie M. Positron annihilation study of aluminum, titanium, and iron alloys surface after shot peening. *Appl. Phys. A*. 2015;120:551–559. DOI: 10.1007/s00339-015-9214-0.
14. Elsayed M, Staab T.E.M, Źek J.C, Krause-Rehberg R. Monovacancy-hydrogen interaction in pure aluminum: Experimental and ab-initio theoretical positron annihilation study. *Acta Materialia*. 2023;248:118770. <https://doi.org/10.1016/j.actamat.2023.118770>.
15. Hamiltona C, Dymekb S, Dryzekc E, Kopyściańskib M, Pietrasd A, Węglowskad A, Wróbel M. Application of positron lifetime annihilation spectroscopy for characterization of friction stir welded dissimilar aluminum alloys. *Materials Characterization*. 2017;132:431–436. <http://dx.doi.org/10.1016/j.matchar.2017.09.017>.
16. Was G.S. Fundamentals of Radiation Materials Science Metals and Alloys. 2007 Springer.
17. Amirkhani M.A, Khoshahval F. Evaluation of the radiation damage effect on mechanical properties in Tehran research reactor (TRR) clad. *Nuclear Engineering and Technology*. 2020;52(12):2975-2981.
18. Analyses Supporting Conversion of Research Reactors from High Enriched Uranium Fuel to Low Enriched Uranium Fuel. 2018.
19. Institute N. Final safety analyses report for Tehran research reactor. *ed: Atomic Energy Organization of Iran Tehran*. 2009.
20. Triftshäuser W. Positron trapping in solid and liquid metals. *Physical Review B*. 1975;12(11):4634.
21. Berger A, Ockers S, Chason M, Siegel R. A study of vacancy-iron interactions in quenched aluminum. *Journal of Nuclear Materials*. 1978;69(1-2):734-737.
22. Amirkhani M.A, Asadi M, Adeli R, Bagherzadeh M, Kakoie O. Experimental investigation and simulation of radiation damage to the fuel clad of Tehran and Isfahan research reactors. *PRI-R3-99-002*. 2023 [In Persian].
23. <https://www.steel-grades.com/metals/85/191860-AL303.html>.
24. Specification for Aluminum and Aluminum-Alloy Sheet and Plate (metric) (Report). *B07 Committee*. Doi:10.1520/b0209m-14.
25. Davis J.R. Aluminum and aluminum alloys. *ASM international*. 1993.
26. Silva M.S, Barbosa C, Acselrad O, Pereira L.C. Effect of chemical composition variation on microstructure and mechanical properties of a 6060 aluminum alloy. *Journal of Materials Engineering and Performance*. 2004;13:129-134.
27. Murty K.L, Charit I. An introduction to nuclear materials: fundamentals and applications. *John Wiley & Sons*. 2013.



28. Biswas R.K, Ghosh J, Nannarone S, Koshmak K, Nambissan P.M.G, Ahmed M, Mukherjee Sh, Datta A, Kuttanellore M. Insight into the spontaneous breakdown of 'Toughened glass': From nano- to macroscale. *Materialia*. 2020;12:100776. <https://doi.org/10.1016/j.mtla.2020.100776>.
29. Brusa R.S, Deng W, Karwasz G.P, Zecca A. Doppler-broadening measurements of positronannihilation with high-momentum electrons in pure elements. *Nuclear Instruments and Methods, Physics Research B*. 2002;194:519–531.
30. Weisberg H, Berko S. Positron lifetime in metal. *Physics Review*. 1967;154(2):249-257.

COPYRIGHTS

©2021 The author(s). This is an open access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution (CC BY 4.0), which permits unrestricted use, distribution, and reproduction in any medium, as long as the original authors and source are cited. No permission is required from the authors or the publishers.

**استناد به این مقاله**

جعفری، رقیه، امیرخانی‌دهکردی، محمدامین، یاحقی، عفت، رک‌رک، بهروز، اسدی‌اسدآباد، محسن. (۱۴۰۴)، بررسی آسیب تابشی آلومینیم‌های غلاف سوخت با استفاده از طیف‌نگاری طول‌عمر نابودی پوزیترون. *مجله علوم، مهندسی و فناوری هسته‌ای*، ۱۱۲ (۲)، ۴۹-۵۸. DOI: <https://doi.org/10.24200/nst.2024.1637>. Url: https://jonsat.nstri.ir/article_1637.html

