

## РАДИАЦИОННАЯ СТОЙКОСТЬ РАДИАЦИОННО-ЗАЩИТНЫХ ЖЕЛЕЗООКСИДНЫХ КОМПОЗИТОВ В $\gamma$ -ПОЛЯХ

*Р.Н. Ястребинский, В.И. Павленко, А.В. Карнаухов, А.В. Ястребинская  
Белгородский государственный технологический университет им. В.Г. Шухова,  
Белгород, Россия*

*E-mail: www.bstu.ru; тел/факс +7(4722)54-96-04*

Исследована радиационная стойкость железоксидного композита на основе природных высокожелезистых магнетитовых концентратов в мощных потоках  $\gamma$ -излучения (до 25 МГр). Изучены скорости распространения поперечных ультразвуковых упругих волн, модули Юнга и сдвига, механическая прочность разработанных композитов. Установлено преимущество разработанного радиационно-защитного композита по сравнению с традиционным реакторным бетоном.

Задачи исследований структурных изменений радиационно-защитных конструкционных материалов при радиационном воздействии определяются проблемами физики реальных кристаллов и радиационной физики твердых тел. Воздействие реакторного  $\gamma$ -излучения на поверхностные слои железоксидных композитов приводит к генерации большого количества дефектов, образованию метастабильных фаз и термоокислительной деструкции. Повышение радиационной стойкости композиционных материалов является основной задачей радиационного материаловедения. В связи с этим определяется необходимым выяснение специфики радиационных процессов, протекающих в железоксидных композиционных материалах при воздействии мощных потоков  $\gamma$ -излучения.

Железоксидный композит получен на основе природных высокожелезистых магнетитовых концентратов на цементном вяжущем марки М500 (с механоактивацией порошков в струйно-вихревой мельнице), кремнийорганического модификатора (этилсиликата) с использованием пластифицирующих добавок методом полусухого прессования с последующей термовлажностной обработкой [1-3]. Основные физико-механические характеристики железоксидного композита:

Плотность после сушки при 110 °С.....3300 кг/м<sup>3</sup>  
 Предел прочности при изгибе.....21 МПа  
 Предел прочности при сжатии.....67 МПа  
 Класс прочности на сжатие.....В60  
 Марка по водонепроницаемости.....W 12  
 Марка морозостойкости.....> 400  
 Деформация усадки.....0,07 мм/м  
 Водопоглощение.....8,5 мас. %  
 Класс радиационной безопасности.....1  
 Коэффициент термического расширения.....16,8·10<sup>6</sup> град<sup>-1</sup>  
 Коэффициент теплопроводности.....0,9 Вт/(м·К)  
 Термостойкость.....до 700 °С  
 Воздухопроницаемость.....1 см<sup>3</sup>/ (см<sup>2</sup>·с)

Химический состав железоксидного композита представлен в табл. 1.

Разработанный композит удовлетворяет современным требованиям Госатомнадзора (ГАН РФ), предъявляемым к защите реакторов типа РБМК. Образцы железоксидных композитов

прошли испытания на ОАО НИКИЭТ (г. Москва) и получили положительное заключение, что подтверждено соответствующими актами экспертизы.

Таблица 1  
Среднее массовое содержание окислов и элементов в образце железоксидного композита

Оксидный состав	SiO <sub>2</sub>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub>	CaO	MgO
Содержание, мас. %	6,4	1,2	79,4	13,0	0,31

Исследована радиационная стойкость разработанных прессованных железоксидных композитов – кубов с гранью 150 мм под воздействием больших доз гамма-излучения с высокой энергией. Согласно [4] высокая доза бетона, например, в 10 МГр соответствует дозе, которую может получить бетон при его контакте с высокоактивными РАО саркофага ЧАЭС в течение 300 лет.

Действию  $\gamma$ -излучению подвергали радиационно-защитные композиты (РЗК) в возрасте 28 сут твердения в нормальных условиях. Создаваемый мощный поток гамма-квантов на промышленной установке <sup>60</sup>Co (E = 1,25 МэВ) с мощностью дозы 0,02 МГр/ч позволяет получить требуемую дозу облучения за короткий срок (например, дозу 10 МГр за 20 сут, а 1 МГр за 2 сут). Это открывает возможность исследования структуры защитного композита без значительного влияния на него процессов гидратации. Сообщение защитному композиту такого значительного энергетического воздействия удаляет его от термодинамического равновесия, что создает условия возникновения в нем значительных флуктуационных процессов, направленных на создание нарушений регулярности структуры [5].

Анализируя полученные данные физико-механических испытаний радиационно-защитных композитов, можно отметить, что небольшие дозы  $\gamma$ -облучения (до 2 МГр) незначительно влияют на деформационные свойства разработанных композитов.

Так экспериментальные исследования по изучению скорости распространения поперечных ультразвуковых упругих волн (рис. 1) [6], модуля

Юнга (деформация растяжения и сжатия) и модуля сдвига (деформация сдвига) в РЗК, подвергнутых  $\gamma$ -облучению с дозовой нагрузкой до 2 МГр, показали практическую неизменность данных характеристик (табл. 2).

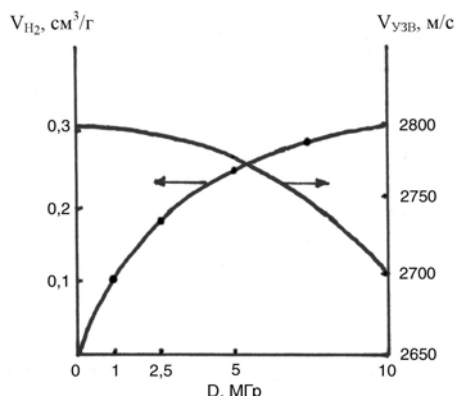


Рис. 1. Изменение скорости прохождения ультразвуковых упругих поперечных волн и количество выделенного водорода из РЗК после  $\gamma$ -облучения дозой D

Таблица 2  
Деформационные характеристики РЗК после  $\gamma$ -облучения (<sup>60</sup>Со)

Доза облучения D, МГр	Модуль Юнга E, ГПа	Модуль сдвига G, ГПа
-	38,1	15,3
1	38,1	15,1
2	38,7	15,4
5	36,3	14,3
10	34,8	14,0
-	27,4	12,9
1	27,3	12,7
2	26,3	12,4
5	24,2	11,9
10	22,1	10,5

В исследованных РЗК модули Юнга и сдвига монотонно изменяются (уменьшаются) с изменением поглощенной дозы (до 5 МГр), что свидетельствует об отсутствии полиморфных превращений в этих материалах.

Имеет место корреляция между полученными экспериментальными результатами по затуханию упругих ультразвуковых волн и газовыделением водорода из образцов, подвергнутых радиационному облучению дозой до 10 МГр (см. рис. 1).

При поглощенных дозовых нагрузках выше 2 МГр наблюдаются более заметные изменения упругих свойств облученных РЗК. Так при дозе 10 МГр упругие свойства композитов снижаются на 9...19%. Последнее обстоятельство может быть вызвано не только структурно-фазовыми изменениями минеральных фаз в композите, что наиболее характерно при пониженных поглощенных дозах гамма-облучения в РЗК, но и протеканием полиморфных превращений и аморфизацией силикатов и других кристаллов в материале и

наиболее интенсивным выделением водорода из-за радиолитического химически связанной воды.

Изменение упругих свойств в РЗК, подвергнутых мощным потокам гамма-облучения в высокоэнергетических полях (E = 1,25 МэВ), находит свое отражение и в изменении прочности композитов (табл. 3).

Таблица 3  
Прочность РЗК\* и стандартного бетона, подвергнутых  $\gamma$ -облучению

Тип материала	Прочность РЗК на сжатие, МПа					
	до облучения	после облучения D, МГр				
		1	2	5	10	20
РЗК	67	85	93	86	76	59
Стандартный бетон	40	33	25	12	визуальные макротрещины	

\*Испытаны образцы РЗК в 28-суточном возрасте твердения в нормальных воздушно-влажных условиях.

При поглощенных дозах облучения защитными композитами D = 1...2 МГр исследованный РЗК не только сохраняет свои прочностные характеристики, но и значительно их повышает. Так при дозовой нагрузке 1...2 МГр прочность РЗК на сжатие возрастает на 27...40%. Это может быть вызвано как образованием в системе ферритов кальция, так и радиационным упрочнением защитного композита. Подобные радиационные эффекты наблюдались в бетонах [7, 8].

Однако в «старых» образцах РЗК (возраст твердения 350 сут) эффект радиационного упрочнения образцов РЗК не проявлялся при  $\gamma$ -облучении таких образцов с дозой 1...2 МГр (прочность образцов на сжатие стабильна и не изменялась). Следовательно, можно предположить, что при активном протекании процессов твердения вяжущего (дальнейшей его гидратации) в «свежих» образцах РЗК происходит взаимодействие продуктов радиолитического разложения воды и гидроксильных ОН-групп с минеральными фазами вяжущего с образованием твердых растворов.

После облучения РЗК дозой 5 МГр начинается медленный спад прочности композитов (на 5...7%), в том числе и при растяжении, что свидетельствует о начале охрупчивания структуры РЗК.

Повышение дозового  $\gamma$ -облучения РЗК до 10 МГр приводит к снижению прочности на сжатие на 11%. При визуальном осмотре образцов РЗК после  $\gamma$ -облучения с дозовой нагрузкой 10 МГр, а также при микроскопическом анализе ( $\times 500$ ) не обнаружено следов механического разрушения материалов.

Механического разрушения РЗК не происходит даже при очень значительной поглощенной дозе  $\gamma$ -облучения (20 МГр), несмотря на снижение прочности РЗК на сжатие на 17...22% (остаточная прочность на сжатие РЗК остается высокой – до 59 МПа). Обнаружено, что при поглощенной дозе  $\gamma$ -облучения 25 МГр в РЗК развивается дефектная структура в массиве образцов в виде канальных микротрещин размером от 5 до 50 мкм (рис. 2).

Развитие микротрещин в РЗК, по-видимому, происходит через капиллярные поры в композите после газовойделения.

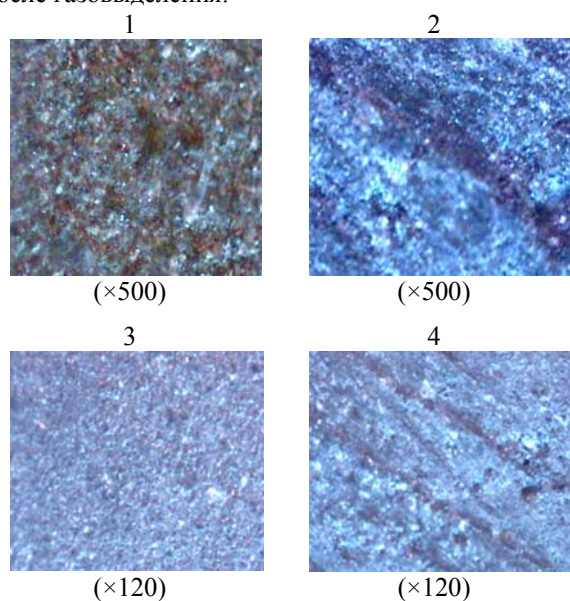


Рис. 2. Микрофотографии поверхности РЗК, подвергнутого  $\gamma$ -облучению с дозой 20 МГр ( $^{60}\text{Co}$ ):  
1 и 3 – до облучения; 2 и 4 – после облучения

В целом, при радиационном  $\gamma$ -облучении защитных композитов с высокой поглощенной дозой (20 МГр) механическая прочность композитов снижается всего на 2...12 % по сравнению с необлученными образцами РЗК.

Деформации могут развиваться до опасного неустойчивого состояния, вплоть до разрушения защитного материала. Эксперименты показали, что введение базальтового волокна (1 мас.%) в РЗК способствует предотвращению развития микротрещин в материале.

По энергетическому критерию Гриффитса рост трещин в материале может иметь место в том случае, если система может выделить энергию, необходимую для образования новой или развития уже существующей трещины, включая в том числе и капиллярные поры. В связи с этим для разработанного РЗК с высоким ресурсом долговечности требуется обеспечить возможность равномерного рассеивания энергии от локальных напряжений за счет металлических включений с высоким коэффициентом теплопроводности.

Стандартный бетон для радиационной защиты ЯЭУ [9, 10] в мощных потоках  $\gamma$ -квантов (20...25 МГр) не выдержал жестких радиационных испытаний (см. табл. 3).

Таким образом, радиационное воздействие приводит к перестройке дефектов в дислокационной атмосфере радиационно-защитных композитов и к появлению не только новых дислокаций, но и к изменению их природы. Ионизирующее  $\gamma$ -излучение стимулирует выход водорода из кристаллов с последующей диффузией его вдоль образующихся и развивающихся при облучении дислокационных дефектов и выходом его из композиционного материала.

## ВЫВОДЫ

1. Проведенные исследования показали преимущество разработанного РЗК по сравнению с традиционным реакторным бетоном.

2. Воздействие  $\gamma$ -потоков  $^{60}\text{Co}$  на РЗК с поглощенной дозой до 2 МГр вызывает радиационное упрочнение и повышение механической прочности композитов типа РЗК при 28-суточном возрасте твердения на 22...35 % и практически не оказывает влияние на прочностные характеристики в более отдаленные сроки твердения (350 сут) композитов. При поглощенной дозе  $\gamma$ -облучения 20 МГр механическая прочность композитов снижается незначительно (на 2...12 %) по сравнению с необлученными образцами РЗК.

3. Реакторный бетон, используемый для защиты ядерных энергетических установок в мощных потоках  $\gamma$ -квантов, не выдержал жестких радиационных испытаний.

Исследования выполнены при поддержке Минобрнауки РФ, соглашение 14.В37.21.0298.

## БИБЛИОГРАФИЧЕСКИЙ СПИСОК

1. В.И. Павленко, Р.Н. Ястребинский, И.С. Епифановский. Радиационно-защитный бетон для биологической защиты ядерных реакторов // *Перспективные материалы*. 2006, №3, с. 22-24.
2. В.И. Павленко, Р.Н. Ястребинский, Д.В. Воронков. Радиационно-защитный тяжелый бетон на основе железорудного минерального сырья // *Изв. вузов. Строительство*. 2007, №4, с. 40-42.
3. В.И. Павленко, Р.Н. Ястребинский. Тяжелый бетон для защиты от ионизирующих излучений // *Строительные материалы*. 2007, №8, с. 2-4.
4. В.Д. Дубровский. *Радиационная стойкость строительных материалов*. М.: «Атомиздат», 1997, 107 с.
5. А.А. Гроза, В.И. Варшина. Структурно-фазовые превращения при термообработке облученного кремния и влияние их на электрофизические свойства и радиационную стойкость // *Радиационное материаловедение (Труды Междунар. конф. по радиац. материаловед., Алушта, 22-25 мая 1990 г.)*. 1990, т. 4, с. 127-133.
6. В.Л. Ульянов. Упругие свойства облученных керамических диэлектриков при гидростатическом сжатии // *Радиационное материаловедение (Труды Междунар. конф. по радиац. материаловед., Алушта, 22-25 мая 1990 г.)*. 1990, т.4, с. 66-67.
7. П.Г. Комохов. Физика прочности и механика разрушения радиационно-активного бетона-консерванта // *Современные проблемы строительного материаловедения*. Воронеж, 1999, с. 204-206.
8. Л.А. Шейнич, Д.В. Анапко. Специальные радиационно-защитные композиции // *Современные проблемы строительного материаловедения*. Воронеж, 1999, с. 602-604.
9. В.Ф. Козлов. *Справочник по радиационной безопасности*. М.: «Атомиздат», 1977, с. 20-45.
10. Д.Л. Бродер. *Бетон в защите ядерных установок*. М.: «Атомиздат», 1993, с. 21-57.

Статья поступила в редакцию 21.09.2012 г.

## **РАДІАЦІЙНА СТІЙКІСТЬ РАДІАЦІЙНО-ЗАХИСНИХ ЗАЛІЗОКСИДНИХ КОМПОЗИТІВ У $\gamma$ -ПОЛЯХ**

*Р.Н. Ястребінський, В.І. Павленко, А.В. Карнаухов, А.В. Ястребінська*

Досліджено радіаційну стійкість залізооксидного композиту на основі природних високозалізистих магнетитових концентратів у потужних потоках  $\gamma$ -випромінювання (до 25 МГр). Вивчені швидкості поширення поперечних ультразвукових пружних хвиль, модулі Юнга і зрушення, механічна міцність розроблених композитів. Встановлено перевагу розробленого радіаційно-захисного композиту в порівнянні з традиційним реакторним бетоном.

## **RADIATION RESISTANCE RADIATION-DEFENSIVE THE FERROUS AGGREGATES IN THE GAMMA FIELDS**

*R.N. Yastrebinsky, V.I. Pavlenko, A.V. Karnauhov, A.V. Yastrebinskya*

Radiation resistance of ferrous aggregates on the basis of natural of magnetite concentrates KMA in powerful torrents  $\gamma$ -radiances (to 25 MGy is in-process probed. Rates of propagation of cross-section ultrasonic pressure waves, Young's moduluses and alteration, a mechanical strength of designed aggregates are learnt. Advantage developed RPK in comparison with traditional reactor beton is established.