

## МОДЕЛЬНО-РАСЧЕТНОЕ ПРОГНОЗИРОВАНИЕ РАЗВИТИЯ РАДИАЦИОННО-ИНДУЦИРОВАННЫХ НАПРЯЖЕНИЙ В ЗАЩИТНОЙ СТЕКЛОКЕРАМИЧЕСКОЙ ФОРМЕ

*Ж.С. Ажажа, С.В. Габелков, И.М. Неклюдов, С.Ю. Саенко, Р.В. Тарасов,  
Г.А. Холомеев, Э.П. Шевякова, Б.А. Шиляев*  
*Институт физики твердого тела, материаловедения и технологий ННЦ ХФТИ,  
г. Харьков, Украина*

Предложена модель и алгоритм расчета напряжений, вызванных радиационно-обусловленными размерными изменениями компонентов композита с дисперсными частицами, равномерно распределенными в двухкомпонентной матрице. В качестве примера проведена расчетная оценка развития напряжений в стеклокерамической защитной форме, содержащей ОТВС РБМК в течение 100 лет хранения после 10 лет выдержки в водном бассейне.

Одним из перспективных способов изоляции отработавшего ядерного топлива (ОЯТ) представляется капсулирование его методом горячего изостатического прессования (ГИП) в защитные стеклокерамические формы химического состава, подобного природным алюмосиликатам. Применимость этого метода во многом зависит не только от возможности создания прочного и монолитного изделия, но и от стойкости его к внешним и внутренним воздействиям в процессе длительного хранения [1,2]. В частности, одной из определяющих характеристик является радиационная стойкость материала защитной формы под действием облучения со стороны ОЯТ.

Стеклокерамика в качестве материала защитной формы выгодно отличается от других материалов возможностью варьирования физическими и эксплуатационными характеристиками путем выбора исходных материалов, количественного соотношения компонентов, а также технологических параметров при создании плотного стеклокерамического материала.

В настоящей работе рассматривается напряженное состояние материала защитной формы, вызванное радиационным воздействием со стороны ОЯТ. С этой целью предложена модель поведения стеклокерамики под облучением и составлен алгоритм расчета радиационно-индуцированных напряжений.

При всем многообразии исходных порошковых материалов (гранит, каолиновая и бентонитовая глина и т.д.) и параметров получения плотных стеклокерамических композиций на их основе конечный материал защитной формы представляет собой гетерогенный композит, содержащий стеклоподобную и кристаллическую фазы.

Структуру материала, полученного из порошков

природных компонентов в результате действия высокого давления и высокой температуры, можно характеризовать тремя основными элементами:

- первый структурный элемент – стеклофаза (полевошпатовое и кремнеземистое стекло) – составляет до 50 масс. %;
- второй структурный элемент – кристаллическая фаза, состоящая из муллита состава  $3\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 2\text{SiO}_2$ , обладающего высокой прочностью, малым значением КТР, хорошей тепло- и радиационной стойкостью, в виде удлиненных зерен размером  $<1$  мкм – составляет до 40 масс. %;
- третий структурный элемент – кристаллическая фаза, состоящая из нерастворившихся в стеклофазе зерен  $\alpha$ -кварца, размер которых может достигать  $\sim 35$  мкм, и зерен других минералов размером менее 30 мкм – составляет до 10 масс. %.

Сложность моделирования поведения такой многокомпонентной системы под облучением обусловлена тем, что ее элементы по-разному ведут себя при радиационном воздействии. Многими исследователями показано, что стекло в большинстве случаев (кроме свинцового) испытывает под облучением усадку, а кристаллический материал – набухание [3,4]. Различие в воздействии облучения касается не только разных фаз композиции, но и разных ее структурных элементов. Показано, например, что композит с более крупными кристаллическими включениями испытывает под облучением большие размерные изменения, чем с мелкими [4].

Напряженное состояние стеклокерамического материала под облучением вызывается радиационными размерными изменениями его компонентов, вследствие чего по границам “стеклофаза–зерно”

возникают напряжения – растягивающие в стеклофазе и сжимающие в кристаллическом включении.

Ранее авторами была предложена модель расчета напряженного состояния двухкомпонентного композита, состоящего из сферических зерен кристалла одного вида и размера, равномерно распределенных в однородной стеклоподобной матрице. Оценивался уровень напряжений в зависимости от объемного содержания кристаллической фазы и поглощенной дозы  $\gamma$ -облучения [5].

Однако эта модель не отражает реальную структуру стеклокерамики: как уже говорилось, значительная доля кристаллической фазы представляет собой мелкие игольчатые зерна муллита, поведение которых под облучением неадекватно поведению крупных условно сферических зерен  $\alpha$ -кварца, и, следовательно, модель двухкомпонентной системы далека от реального композита. В связи с этим представляется целесообразным при математическом моделировании поведения стеклокерамики под облучением принять, что каждое условно сферическое кристаллическое включение окружено макроскопически однородной изотропной двухкомпонентной матрицей, состоящей из стеклоподобного материала с вкраплениями зерен муллита (рис.1). В модели все “крупные” кристаллические включения представлены одинаковыми, равномерно распределенными сферическими зернами  $\alpha$ -кварца как наиболее крупными и, следовательно, наиболее “распухающими” элементами кристаллической фазы стеклокерамики.

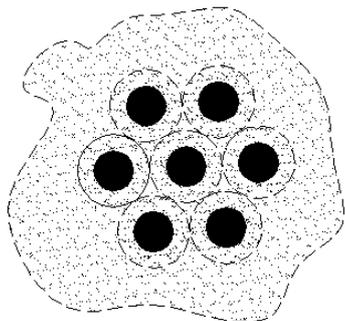


Рис. 1. Модель стеклокерамического материала с трехэлементной структурой

Предлагаемая модель расчета позволяет оценить при определенных допущениях напряжения в стеклокерамическом материале защитной формы, вызываемые переменной во времени поглощенной дозой облучения. Для реализации расчетной модели предложен также способ оценки эффективных упругих характеристик двухкомпонентной матрицы.

Основные положения модели:

- Матрица представляет собой макроскопически однородный изотропный материал с расчетными эффективными упругими характеристиками.

- Кристаллические зерна имеют сферическую форму.
- Кристаллические зерна распределены равномерно в бесконечной матрице.
- Композиция рассматривается как совокупность идентичных шарообразных ячеек, содержащих кристаллическое ядро, окруженное сферическим слоем матрицы.
- Ячейки касаются друг друга; пространство, не занятое ячейками, заполнено материалом матрицы.
- Каждая ячейка находится в силовом равновесии с соседними ячейками.

Рассматривается напряженное состояние ячейки, вызванное деформацией вследствие распухания кристаллического ядра и усадки матрицы. Оцениваются максимальные – на границе с кристаллическим ядром – растягивающие напряжения в матрице, которые растут по мере увеличения деформации, т.е. с ростом поглощенной дозы облучения.

Для расчета динамики развития напряжений в матрице уравнения равновесия в сферических координатах с началом в центре ячейки, дополненные граничными условиями на внутренней и наружной поверхностях шарового слоя, разрешаются относительно напряжений на границе ядро - матрица. Граничные условия: на внутренней поверхности – равенство нормальных напряжений в ядре и шаровом слое; на наружной – отсутствие радиального смещения.

Алгоритм расчета напряженного состояния композита предполагает:

1. Расчет величины натяга (суммарного относительного изменения диаметра ядра и внутреннего диаметра шарового слоя) в произвольной ячейке защитной формы в зависимости от времени облучения. С этой целью расчетным путем определяется зависимость поглощенной дозы от времени облучения  $\Omega(t)$  в данной точке защитной формы. Результаты предварительного расчета кинетики накопления дозы  $\gamma$ -облучения в ближайшей к ОТВС РБМК точке защитной формы в течение 100 лет хранения приведены на рис.2 (кривая 1).

2

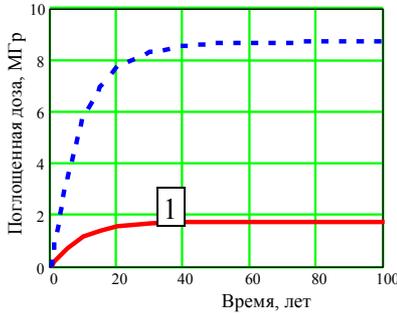


Рис.2. Зависимость поглощенной дозы от времени хранения; 1 – одиночная капсула; 2 – капсула в хранилище

Далее рассчитывается соответствующее значение величины натяга в каждый момент времени по зависимостям изменения плотности под облучением компонентов композита (в настоящей работе такие данные получены из анализа литературных источников [4,6-8]):

$$\Delta D/D = f\{\Omega(t)\}, \quad (1)$$

где  $D$  – диаметр включения.

2. Расчет максимальных растягивающих напряжений в матрице данной ячейки в произвольный момент времени. Выражение для окружного напряжения на внутренней поверхности шарового слоя матрицы имеет вид:

$$\sigma_{\theta} = P_k \{y + 1 - 6y(1 - v_m) / [2y + 1 - v_m(4y - 1)]\} / (y - 1), \quad (2)$$

где  $P_k$  – контактное давление на границе с включением:

$$P_k = (\Delta D/D) / \{ (1 - 2v_{kv}) / E_{kv} + [2 + y - v_m(4 - y)] / (2E_m(y - 1)) \}, \quad (3)$$

параметр  $y = (V_{sf}/V) / (V_m/V)$ ;  $V_{sf}/V$  и  $V_m/V$  – объемные доли ячеек и матрицы в композите, соответственно;  $v_m$  и  $E_m$  – эффективные упругие характеристики матрицы (коэффициент Пуассона и модуль Юнга);  $v_{kv}$  и  $E_{kv}$  – упругие характеристики  $\alpha$ -кварца.

3. Оценка прочности матрицы.

По критерию Мора для хрупких материалов [9], эквивалентные напряжения и условие прочности, соответственно, имеют вид:

$$\sigma_{ekv} = \sigma_{\theta} + (\sigma_B / \sigma_{-B}) P_k; \sigma_{ekv} < \sigma_B, \quad (4)$$

где  $\sigma_B$ ,  $\sigma_{-B}$  – предел прочности материала при одноосном растяжении и сжатии соответственно.

Уравнения (2) – (3) содержат упругие характеристики элементов композита, в частности, двухкомпонентной матрицы. Для нахождения эффективных модулей упругости матрицы, состоящей из стекла с частыми включениями зерен неопределенной формы, в данном рассмотрении применен подход Хашина и Штрикмана, который дает возможность получить наиболее близкие пределы, в которых находятся искомые характеристики, без кон-

кретизации геометрии включений [10,11].

Для иллюстрации предложенной модели проведен расчет развития радиационно-индуцированных напряжений в защитной стеклокерамической форме, содержащей ОТВС РБМК, в течение 100 лет хранения после 10 лет выдержки в водном бассейне. Исходный состав стеклокерамики (масс. %): альбитит – 15; каолин – 85. Фазовый состав полученного композита (масс. %): стеклофаза – 42; муллит – 45; другие кристаллические фазы – 13 (из них  $\alpha$ -кварц – 3). Окисный состав стеклофазы (масс. %):  $\text{SiO}_2$  – 83.3;  $\text{Al}_2\text{O}_3$  – 12.2;  $\text{K}_2\text{O} + \text{Na}_2\text{O}$  – 4.5.

Результаты расчета роста эквивалентных напряжений приведены на рис.3 (кривая 1). Кривые 2 на рисунках 2 и 3 демонстрируют, соответственно, накопление дозы и развитие напряжений в гипотетическом случае, при заведомо завышенной дозе облучения, например, при тесном расположении большого количества капсул в хранилище. Расчет дозы в этом случае оценочный, основанный на использовании зависимости кратности ослабления излучения от толщины защиты из бетона [12].

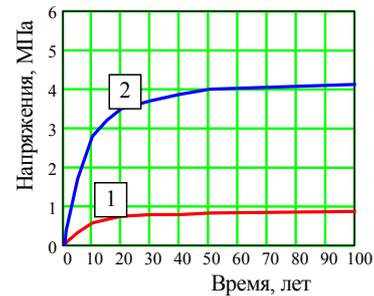


Рис.3. Зависимость эквивалентных напряжений от времени хранения; 1 – одиночная капсула; 2 – капсула в хранилище

Как видно из рис.2 и 3, уровень расчетных радиационно-индуцированных напряжений достаточно низкий (~4 МПа при поглощенной дозе ~9 МГр), в то время как предел прочности на растяжение образцов стеклокерамики данного состава, облученных до аналогичной дозы, составляет ~90 МПа. Из рис.2 также видно, что при 60-100 годах хранения величина поглощенной дозы практически не увеличивается, откуда следует, что по данной модели уровень радиационно-индуцированных напряжений при хранении в течение 100 - 300 лет не возрастет.

Представляется интересным оценить влияние радиационных напряжений на развитие трещин, которые образуются при остывании вокруг крупных зерен в композитных материалах [13].

Для стекла данного окисного состава расчетный модуль Юнга  $E_{st}$  составляет  $8.3 \cdot 10^4$  МПа [14]. Соответствующая удельная энергия разрушения  $\Gamma_i$ , опре-

деленная из соотношения:

$$\Gamma_i = (K_{IC})^2 / 2E_{st} \approx 6 \cdot 10^{-6} \text{ МПа} \cdot \text{м} \quad (5)$$

(при расчете значение коэффициента интенсивности напряжений  $K_{IC}$  для хрупких материалов принято равным  $1 \text{ МПа} \cdot \text{м}^{1/2}$ ).

Длина трещины, для которой напряжение порядка 4 МПа является критическим, определенная по соотношению Гриффитса [15]:

$$c = \pi \Gamma_i E_{st} / \sigma^2 \approx 100 \text{ мм}, \quad (6)$$

что примерно в 500 раз больше реально возможных технологических трещин в данном композите.

Таким образом, результаты расчетов, выполненных в рамках предложенной модели и при принятых значениях размерных изменений компонентов композита под облучением, свидетельствуют о том, что радиационно-индуцированные напряжения, развивающиеся в стеклокерамическом материале защитной формы с ОТВС РБМК в течение 100 - 300 лет хранения, не могут явиться причиной деградации материала и нарушения целостности барьерного стеклокерамического слоя защитной формы.

Работа выполнена при поддержке гранта УНТЦ, проект № 1580.

#### ЛИТЕРАТУРА

1. С.Ю. Саенко. Капсулирование отработавшего ядерного топлива в защитные стеклокерамические формы: технологический подход и оценка применения // *Труды Международной конференции Украинского ядерного общества*. Киев, 19 – 20 сентября 2000 г.
2. С.Ю. Саенко, Р.В. Тарасов, И.А. Петельгузов, С.В. Габелков, А.Г. Родак. Коррозионная стойкость в водной среде стеклокерамических матриц, полученных методом ГИП // *Труды XIV Международной конференции по физике радиационных явлений и радиационного материаловедения* // Алушта, Крым, 12

– 17 июня 2000 г., с. 298–299.

3. В.С. Чиркин. *Теплофизические свойства материалов ядерной техники*. М.: «Атомиздат», 1968.
4. W.J. Weber, P. Roberts. A Review of Radiation Effects in Waste Forms // *Nuclear Technology*. 1983, Feb., v. 60, 178–198.
5. Ж.С. Ажажа, С.В. Габелков, С.Ю. Саенко и др. Математическая модель развития механических напряжений в стеклокерамике под облучением // *Материалы Международной конференции "Передовая керамика – третьему тысячелетию"*, 5 – 9 ноября 2001 г., г. Киев, Украина.
6. W.J. Weber. Radiation Effects in Waste Glasses // *Nuclear Instruments and Physics Research*. 1988, v. B32, p. 471–479.
7. Van Konynenburg and Guinan. Radiation effects in Synroc-D // *Nuclear Technology*. 1983, v. 60, Feb., 206–217.
8. Z. Zhu, P. Jung. Irradiation Induced Dimensional Changes in Ceramics // *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*. 1994, v. B91, p. 269–273.
9. *Сопrotивление материалов деформированию и разрушению*. Ч.1. /Под ред. В.Т.Трощенко, "Наукова думка", Киев, 1993.
10. *Композиционные материалы*. Т. 2. Механика композиционных материалов /Под ред. Дж. Сендечки. М.: «Мир», 1978.
11. Р. Кристенсен. *Введение в механику композитов*. М.: «Мир», 1982.
12. Л.Р. Кимель, В.П. Машкович. *Защита от ионизирующих излучений*: Справочник. М.: «Атомиздат», 1972.
13. *Композиционные материалы*. Т. 5. Разрушение и усталость /Под ред. Л. Браутман. М.: «МИР», 1978.
14. *Стекло*: Справочник /Под ред. Н.М. Павлушкина. М.: «Стройиздат», 1973.
15. К. Хеллан. *Введение в механику разрушения*. М.: «Мир», 1988.

#### МОДЕЛЬНО-РОЗРАХУНКОВЕ ПРОГНОЗУВАННЯ РОЗВИТКУ РАДІАЦІЙНО-ЗУМОВЛЕНИХ НАПРУГ В ЗАХИСНІЙ СКЛОКЕРАМІЧНІЙ ФОРМІ

*Ж.С. Ажажа, С.В. Габелков, И.М. Неклюдов, С.Ю. Саенко, Р.В. Тарасов, Г.О. Холомеев, Е.П. Шевякова, Б.А. Шиляев*

Запропоновано модель та алгоритм розрахунку напруг, викликаних радіаційно-зумовленими розмірними змінами компонентів композиту з дисперсними частками, що рівномірно розподілені в двохкомпонентній матриці. Як приклад здійснена розрахункова оцінка розвитку напруг в склокерамічній захисній формі, що вміщує ВТВЗ РБМК на протязі 100 років зберігання після 10 років витримування у водяному басейні.

#### MODEL-CALCULATED PREDICTION OF DEVELOPMENT IRRADIATION-INDUCED STRESSES IN GLASS-CERAMIC PROTECTION FROM

***Zh. S.Azhazha, S.V. Gabelkov, I.M. Heklyudov, S.Yu. Sayenko, R.V. Tarasov, G.A. Kholomeev,  
E.P. Schevyakova, B.A. Schilyaev***

The model and algorithm of accounting of the stresses caused by irradiation-induced size changes of a composite components with dispersal particles which are distributed in regular intervals in two-component matrix are offered. As an example, the assessment of development of stresses in glass-ceramic protective form containing RMBK spent nuclear fuel within 100 years of storage after preliminary cooling in water pool within 10 years is carried out.