

ИССЛЕДОВАНИЕ ЧАСТИЦ, ЭКСТРАГИРОВАННЫХ НА ПЛЕНОЧНЫЕ ПЫЛЕПОДАВИТЕЛИ И МАЗКИ ОБЪЕКТА «УКРЫТИЕ»

О.В.Бородин, В.В.Брык

ИФТТМТ ННЦ ХФТИ, г. Харьков, Украина, e-mail: bryk@kipt.kharkov.ua

Викладені результати електронно-мікроскопічних і рентгено-спектрометричних досліджень зразків проб, отриманих із внутрішніх приміщень Об'єкта «Укриття» (ОУ).

Изложены результаты электронно-микроскопических и рентгено-спектрометрических исследований образцов проб, полученных из внутренних помещений Объекта «Укрытие» (ОУ).

In the given article are presented results of electron-microscopy and x-ray analyze researches of the samples, which are taken from inside area of the object "Ukrytie"

ВВЕДЕНИЕ

В результате аварии 1986 г. на 4 блоке ЧАЭС произошел выброс радиоактивных веществ, которые различными путями попали в производственные помещения. В настоящее время внутри Объекта «Укрытие» (ОУ) бетонные стены и металлические поверхности загрязнены радиоактивными веществами. Для проведения мероприятий по стабилизации ОУ необходимо выяснить степень загрязнения адгезированными частицами радиоактивного вещества бетонных и металлических поверхностей в помещениях ОУ.

Мелко диспергированное топливо («горячие микрочастицы») с размерами 0,1...100 мкм обнаруживается практически во всех помещениях Объекта «Укрытие» (ОУ) как в ближней, так и в дальней зоне [1]. Микрочастицы обладают высокой удельной активностью, и их излучение определяет радиационную обстановку в помещениях ОУ. Кроме того, они подвижны и могут переноситься по помещениям ОУ и выноситься за его пределы, загрязняя при этом промплощадку. Существует большое количество типов горячих частиц, элементный, структурный и радионуклидный составы которых недостаточно изучены. Поэтому исследовательские работы по определению элементного и радионуклидного составов и структурному анализу «горячих микрочастиц» ОУ представляют научный и практический интерес. Как отмечалось в работе [2], всестороннее исследование форм выброшенного топлива важно по многим причинам: во-первых, топливная матрица является носителем многих долгоживущих радионуклидов, представляющих значительную радиационную опасность; во-вторых, изучение частиц топлива может дать уникальную информацию о процессах в аварийном реакторе; в третьих, можно оценить происходящие со временем изменения внутри ОУ.

Для устранения переноса горячих частиц по помещениям ОУ и выноса их за его пределы используются пленочные полимерные пылеподаватели, которые через некоторое время могут быть удалены с загрязненных поверхностей, унося на себе ту или иную часть высокоактивных частиц. Ясно, что после

утилизации загрязненных пленок общая радиационная обстановка на ОУ должна стабилизироваться. С этой точки зрения, важно знать, какие частицы и сколько их уносятся пленками – пылеподавателями различной природы.

В работе приводятся некоторые результаты по исследованию частиц, удаленных тремя видами пылеподавателей с бетонных и металлических поверхностей, в том числе и частиц диспергированного отработавшего топлива.

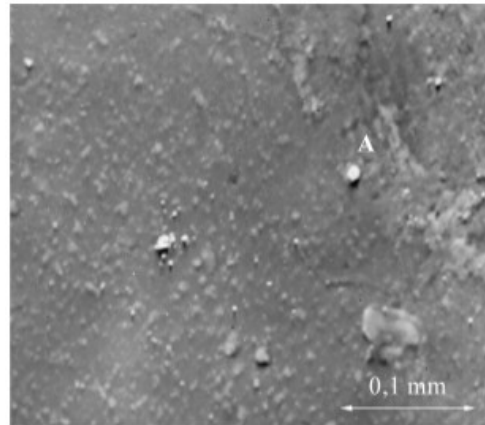


Рис. 1. Структура поверхности пленки Аларадекон с экстрагированными со стены ОУ частицами (яркие частицы – частицы топлива)

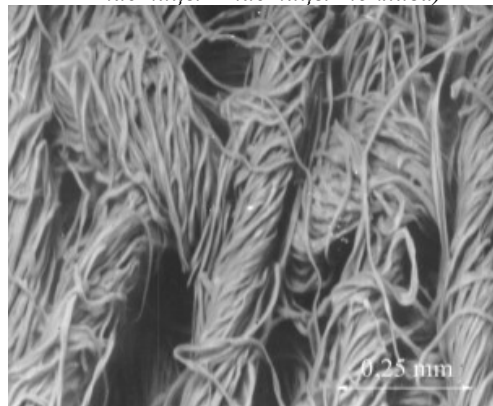


Рис. 2. Структура поверхности пробы (сухой мазок на тканевую основу), снятой с бетонной поверхности в помещении 602/2 ОУ

ИССЛЕДУЕМЫЕ МАТЕРИАЛЫ И МЕТОДИКА

Структурные и рентгеноспектральные исследования проводились на пленках Аларадекон, Селан-3, Акрил, мокрых и сухих мазках, взятых из помещения 602/2, отметка +24,0, ось 51, ряд Е-2М с использованием аналитического электронного микроскопа, оснащенного сканирующей приставкой и рентгеноспектральным энергодисперсионным Si-Li-детектором.

ЭМ-объекты из пленок и "мазков" готовились в три этапа. Вырезанные из пленки и ткани образцы 5...10 мм наклеивались проводящим клеем на углеродный объектодержатель (рис. 1, 2). Затем образец высушивался и обезвоживался. На заключительном этапе образец покрывался тонким слоем аморфного углерода (10...20 нм) для удаления накапливающегося в процессе электронно-микроскопического исследования заряда от электронного пучка. Удаление объемного заряда необходимо для исключения электростатического пробоя в непроводящих материалах с целью получения качественного изображения при электронном сканировании.

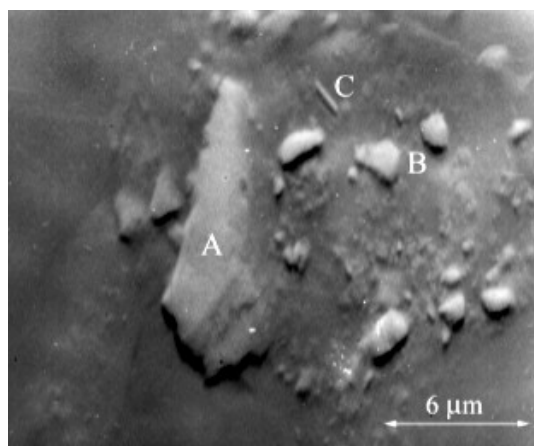


Рис. 3,а. Экстрагированные на пленку Селан-3 частицы различного размера и морфологии. А - частица с большим содержанием Ва; В, С - алюмосиликаты

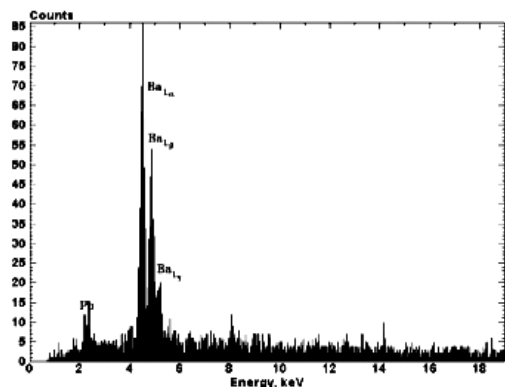


Рис. 3,б. Рентгеновский спектр от частицы А (см.рис. 3,а)

РЕЗУЛЬТАТЫ ИССЛЕДОВАНИЙ

Установлено, что без надрывов, как сплошная пленка отделяется от металлической и от бетонной

поверхностей пленка Аларадекон. Ее свойства мало изменяются даже по прошествии двух месяцев с момента нанесения. Другие исследованные пленки, хоть и были армированы марлевыми волокнами, имели множество надрывов и несплошностей. Хуже всего по этим качествам оказались пылеподавляющие покрытия из акрила.

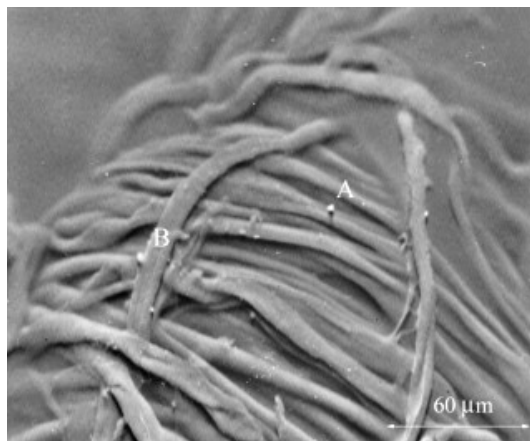
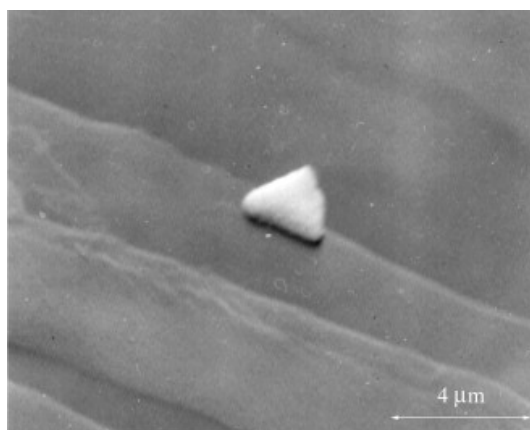
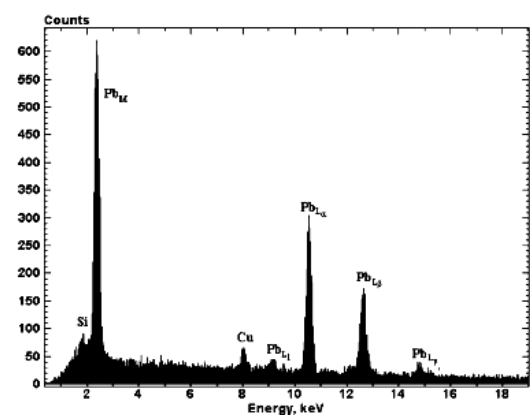


Рис. 4. Изображение пленки Селан 3, снятой с металлической поверхности в помещении 602/2 ОУ



а



б

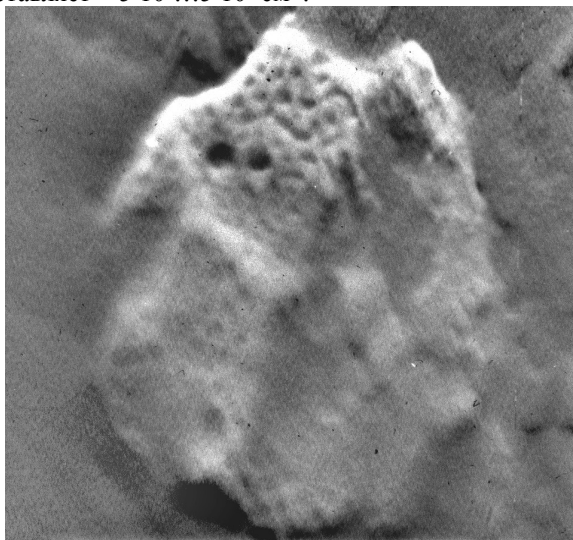
Рис. 5. Экстрагированная частица свинца(а) и рентгеновский спектр от нее(б)

Очевидно по этой причине на пленке Аларадекон обнаружено наибольшее число различных частиц, удаленных как с металлических, так и с бетонных поверхностей. Общий вид пленки с захваченными

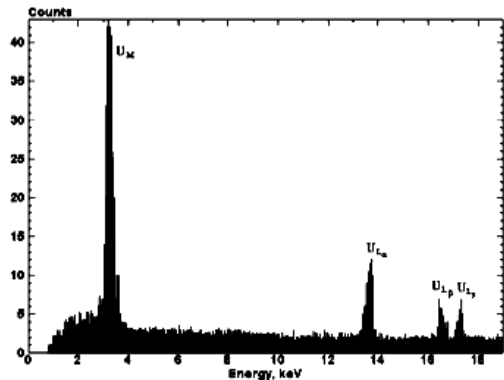
ми ею фрагментами загрязнения приведен на рис. 1, 3, 4, 5.

Во всех взятых пробах основная часть обнаруженных частиц представляет собой пылевидные частицы бетона и песка, содержащие окислы Al, Si, Ca, K в различных пропорциях и представляющих собой мелкодисперсные частицы полевых шпатов, кварца и т.п. (см.рис. 3, 4, 5,а).

Частицы, содержащие уран, обнаружены только на аларадеконовых пленках. Распределение этих частиц по размерам (1...20 мкм) представлено на рис. 2. Концентрация сильно меняется от места к месту и составляет $\sim 5 \cdot 10^2 \dots 5 \cdot 10^3 \text{ см}^{-2}$.



а



б

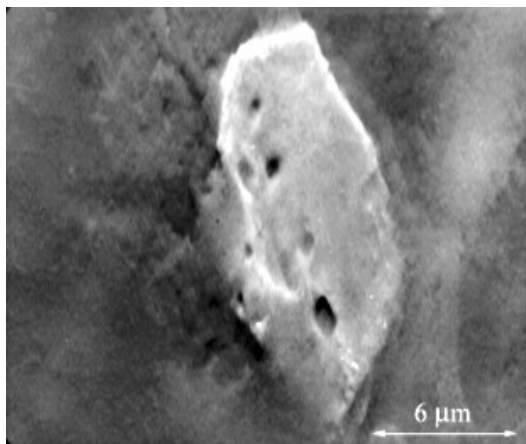
Рис. 6. Экстрагированная на пленку Аларадекон частица топлива (а) и рентгеновский спектр от нее (б)

Выявлено два основных вида частиц: частицы, имеющие резкие границы (рис. 6), что дает основание предполагать их возникновение в процессе разрушения объекта больших размеров, и частицы с оплавленными краями (рис. 7). На поверхности обоих типов частиц наблюдаются открытые поры размером 0.2...0.3 мкм. Размер отдельных пор достигает 1 мкм. Перечисленные выше признаки предположительно указывают, что это мельчайшие осколки топлива – диоксида урана, проработавшего определенное время в реакторе.

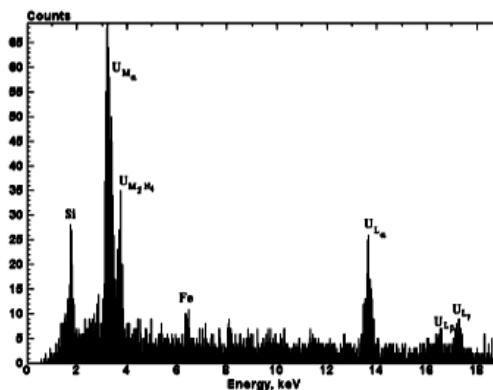
На всех пленках разных типов обнаружены еще два вида частиц, состоящих преимущественно из тяжелых элементов Ba и Pb (рис. 3, 5). В составе Ba частиц зафиксировано присутствие Cs и Sr.

ОБСУЖДЕНИЕ

Наблюдаемые нами горячие частицы облученного топлива совпадают по размеру с частицами, извлеченными из воздушных фильтров в октябре-ноябре 1988 г [2]. В обоих случаях наблюдались горячие частицы размером до 20 мкм. Средний же размер в нашем случае в 2 раза больше и составляет ~ 9 мкм против 5 мкм (рис.8).



а



б

Рис. 7. Экстрагированная на пленку Аларадекон урановая частица с примесью Si(а) и рентгеновский спектр от нее (б)

В состав некоторых частиц входит силикатная примесь в концентрации до 10% и железо (см.рис. 7,б). Часть частиц не содержала посторонних примесей, что, очевидно, свидетельствует о различной истории их эволюции после взрыва (см.рис. 6,а). Та часть частиц, которая не содержит примесей кремния, была рассеяна в холодном виде. Об этом свидетельствует и размер пор в таких частицах. Поры по размеру не превышают 1 мкм и характерны для отработавшего топлива в нормальных условиях, без перегрева. Аномально больших пор до 10 мкм, появляющихся в перегретом топливе, в таких частицах не наблюдалось.

Таким образом, форма наблюдаемых топливных частиц, размер пористости и отсутствие в их составе силикатов свидетельствуют о низкотемпературном характере разрушения и аэрозолировании части топлива в момент взрыва. На основании этого авторы считают, что топливо рассыпалось на частицы, размером несколько микрометров при относительно низкой температуре, а затем вследствие ухудшения теплосъема началось плавление конструкционных материалов реактора и материалов засыпки.

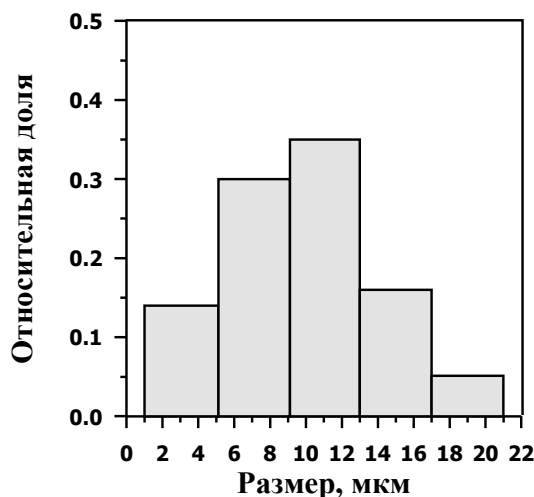


Рис. 8. Распределение топливных частиц по размерам

Учитывая размер и концентрацию экстрагированных урановых частиц на поверхности пленки, нетрудно оценить общее количество топлива, находящегося на исследуемой поверхности. Эта величина оказывается не меньше 1 г/м^2 .

Размер топливных частиц, обнаруженных на стенах помещения 602/2, показывает, что эти частицы относятся к мелкодисперсной фракции до 20 мкм из наблюдаемого спектра частиц топлива, обнаруженных внутри и вокруг ОУ [2]. По размеру эти частицы совпадают с частицами, извлеченными из воздушных фильтров. Это свидетельствует о том, что после распыления топлива в результате взрыва крупные частицы выпали из воздушно-пылевой смеси непосредственно вокруг станции, а более мелкие образовали воздушно-аэрозольную смесь и, находясь во взвешенном состоянии, вместе с воздушными массами распространились на большие расстояния и в труднодоступные места. Тем самым загрязнили внутренние помещения ОУ и окружающую среду далеко вокруг реактора.

Что касается наличия на поверхностях ОУ частиц Рb, то они попали туда в результате аэрозолирования засыпанного в горящий реактор свинца.

Обнаруженные в значительном количестве частицы Ва образовались, вероятно, в процессе миграции и конгломерации радиоактивного (короткоживущего) Cs и его распада до Ва.

ВЫВОДЫ

1. Установлено, что без надрывов, как сплошная пленка отделяется пленка алараде-

кон. Ее свойства мало изменяются даже по прошествии двух месяцев с момента нанесения. Пленки Селан-3 и Акрил, несмотря на армирование их марлевыми волокнами, имели множество надрывов и несплошностей. Хуже всего по этим качествам оказались пылеподавляющие покрытия из акрила. По этой причине на пленке Аларадекон обнаружено наибольшее число и разновидности частиц, удаленных как с металлических, так и с бетонных поверхностей.

Среди частиц, экстрагированных с поверхностей помещения 602/2, отметка +24,0, ось 51, ряд Е-2М пылеподавляющей пленкой Аларадекон, обнаружены горячие частицы облученного топлива. Топливные частицы имеют как острые ломаные, так и оплавленные края и представляют собой мелкодисперсные обломки штатного облученного топлива. Их размер лежит в пределах $1 \dots 20 \text{ мкм}$. Концентрация сильно меняется от места к месту и составляет $\sim 5 \cdot 10^2 \dots 5 \cdot 10^3 \text{ см}^{-2}$. Оценочная концентрация облученного топлива на стенах помещения 602/2 составляет $\sim 1 \text{ г/м}^2$.

2. Обнаружены мелкодисперсные частицы Рb. Их наличие на поверхностях ОУ связано, по-видимому, с результатом аэрозолирования засыпанного в горящий реактор свинца.

3. Обнаруженные в значительном количестве частицы Ва образовались, вероятно, в процессе миграции и конгломерации радиоактивного Cs и его распада до стабильного изотопа Ва.

4. Форма наблюдаемых топливных частиц, размер пористости и отсутствие в их составе силикатов свидетельствуют о низкотемпературном характере разрушения и аэрозолировании части топлива в момент взрыва. На основании этого авторы склонны разделить складывающееся мнение о том, что топливо рассыпалось на частицы, размером несколько микрометров при относительно низкой температуре, а затем вследствие ухудшения теплосъема началось плавление конструкционных материалов реактора и материалов засыпки.

5. Во всех взятых пробах основная часть обнаруженных частиц представляет собой пылевидные частицы бетона и песка, содержащие окислы Al, Si, Ca, K в различных пропорциях и представляющих собой мелкодисперсные частицы полевых шпатов, кварца и т.п.

Работа проводится в рамках Программы сотрудничества с Международным Чернобыльским Центром (МЧЦ) по определению уровня радиоактивного загрязнения сооружений и оборудования на ОУ.

ЛИТЕРАТУРА

1. А.А.Ключников. *Результаты научно-исследовательских и опытно-конструкторских работ, проводимых в Объекте «Укрытие» в обеспечение его стабилизации*. Препринт НАН Украины. Межотрасл. Науч.-тех. Центр «Укрытие». Чернобыль, 1996, 21с.
2. С.А.Богатов, А.А.Боровой, Ю.В.Дубасов, В.В.Ло-

моносов. Форма и характеристики частиц топливно-го выброса при аварии на Чернобыльской АЭС

//*Атомная энергия*. 1990, т.69, вып.1, с. 36-40.