

**Ключников Александр Александрович**  
 Академик НАН Украины, доктор технических наук, профессор, Директор Института проблем безопасности атомных электростанций НАН Украины

**Рыбалка Валерий Борисович,**  
 кандидат химических наук, доцент, заведующий сектором радиологических исследований Института проблем безопасности атомных электростанций НАН Украины

**Петелин Георгий Иванович**  
 ведущий инженер Института проблем безопасности атомных электростанций НАН Украины,

**Зимин Юрий Иванович**  
 инженер Института проблем безопасности атомных электростанций НАН Украины

## МОРФОЛОГИЯ ЧАСТИЦ ЯДЕРНОГО ТОПЛИВА ЧЕРНОБЫЛЬСКОГО ВЫБРОСА

*Kluchnikov A.A.*

*Director of Institute for Safety Problems of Nuclear Power Plants of National Academy of Sciences of Ukraine, academician, doctor of technical sciences, professor*

*Rybalka V.B.*

*PhD, head of Sector for Radiologic Investigation, Institute for Safety Problems of Nuclear Power Plants*

*Petelin G.I.*

*Lead engineer of Sector for Radiologic Investigation, Institute for Safety Problems of Nuclear Power Plants*

*Zimin J.I.,*

*Engineer of Sector for Radiologic Investigation, Institute for Safety Problems of Nuclear Power Plants*

*Ключников О.О.*

*Академік НАН України, доктор технічних наук, професор, Директор Інститута проблем безпеки атомних електростанцій НАН України*

*Рибалка Валерій Борисович,*

*кандидат хімічних наук, доцент, завідувач сектором радіологічних досліджень Інститута проблем безпеки атомних електростанцій НАН України*

*Петелін Георгій Іванович*

*провідний інженер Інститута проблем безпеки атомних електростанцій НАН України*

*Зімін Юрій Іванович*

*інженер Інститута проблем безпеки атомних електростанцій НАН України*

**CHERNOBYL POLLUTION NUCLEAR FUEL PARTICLES MORPHOLOGY**

**МОРФОЛОГІЯ ЧАСТИНОК ЯДЕРНОГО ПАЛИВА ЧОРНОБІЛЬСЬКОГО ВИКИДУ**

*Аннотация: По результатам исследования радиоактивных твердофазных выпадений Чернобыльской аварии методами электронной микроскопии и рентгеноструктурного анализа определены морфологические и физико-химические характеристики частиц выброшенного в окружающую среду диспергированного реакторного топлива, их типичность для различных направлений выпадения, что дало возможность использовать фактический материал исследований с целью дополнения принятой версии активной стадии аварии на 4 блоке ЧАЭС.*

*Ключевые слова: чернобыльские выпадения, ядерное топливо, частицы, морфология.*

*Summary: Investigation of Chernobyl's accident solid radioactive pollutions by electronic microscopy methods and X-ray analysis obtained the morphological and physical and chemical characteristics of ejected particles of nuclear fuel, its typicalness for various directions of radio-contamination. Results provided the addition information for the accepted version of anctive stage of failure on 4 Unit of ChNPP are defined.*

*Key words: Chernobyl's accident radioactive pollutions, nuclear fuel, particles, morphology.*

*Аннотація: За результатами дослідження радіоактивних твердофазних випадень Чорнобильської аварії методами електронної мікроскопії і рентгеноструктурного аналізу визначені морфологічні і фізико-хімічні характеристики частинок викинутого в навколишнє середовище диспергованного реакторного палива, їх типовість для різних напрямків випадань, що дало можливість використовувати фактичний матеріал досліджень з метою доповнення прийнятої версії активної стадії аварії на 4 блоці ЧАЕС.*

*Ключові слова: чорнобильські випадіння, ядерне паливо, частинки, морфологія.*

### Актуальность проблемы

Исследование топливных «горячих» частиц (ТГЧ) как основного источника радиационного загрязнения окружающей среды в результате Чернобыльской катастрофы дало возможность получить фактический материал для определения процессов, происходивших в активный момент аварии, так как ТГЧ являются непосредственными участниками и свидетелями этих процессов, несущими на себе их следы. Практически во всех работах по проблеме восстановления истинной картины аварийных процессов в реакторе главное внимание уделяется математическому моделированию энергетики процесса и крайне мало данных о систематических исследованиях аварийного топлива.

### Исследование топливных «горячих» частиц

Для изучения ТГЧ авторами применены методы электронной микроскопии, микронзондового анализа, гамма-спектрометрии, рентгеновской дифрактометрии и оригинальных методов сепарации индивидуальных ТГЧ из проб реперной сети Чернобыльской зоны отчуждения. В данной работе рассматриваются ТГЧ размером от 10 мкм и более, сохранившие признаки строения облучённого диоксида урана, а также другие радиоактивные твердофазные выпадения, образование которых обусловлено процессами аварии.

По результатам исследования свыше 1200 образцов частиц составлены база данных и атлас горячих частиц (ГЧ), введена классификация ГЧ по морфологическим признакам и элементному составу. Согласно классификации ГЧ разделены на топливный и топливно-конструкционный классы, которые в свою очередь включают в себе 6 и 5 типов соответственно согласно морфологических отличий.

Исследование ТГЧ, выделенных из проб

Западного радиоактивного следа, сформировавшегося в первый момент аварии до начала активных действий по ликвидации её последствий, привлекает внимание тем, что в этом направлении на достаточном удалении от станции не произошло смешивания выброшенного взрывом топлива с радиоактивными выпадениями последующих периодов аварии [1]. ТГЧ на этом направлении представляют собой неокисленный диоксид урана, сохранивший все морфологические признаки облучённого топлива. Это важно при рассмотрении результатов исследования ТГЧ с точки зрения ретроспективной оценки аварийных процессов, происходивших в топливе перед взрывом и непосредственно в момент взрыва.

Частицы топливного класса, отобранные из проб почвы по Западнему радиоактивному следу, представляют собой фрагменты двух структурных кольцевых зон топливных стержней [2]. ТГЧ периферийной кольцевой зоны с исходной структурой спрессованного порошка диоксида урана, состоящего из плоских зёрен неправильной формы иллюстрирует рис. 1. Во время работы реактора под воздействием высоких температур начинается рекристаллизация исходной структуры, т.е. процесс роста структурно более совершенных равноосных зёрен, размер которых доходит до 50 мкм. Эти зёрна имеют отличительную форму характерных полиэдров, грани которых в основном имеют форму искажённых пятиугольников. Ровная поверхность этих граней (при увеличении до 10 тыс. крат) декорирована отверстиями от пузырьков осколочных газов, по количеству которых можно в первом приближении оценить длительность кампании топливной кассеты (рис. 2).

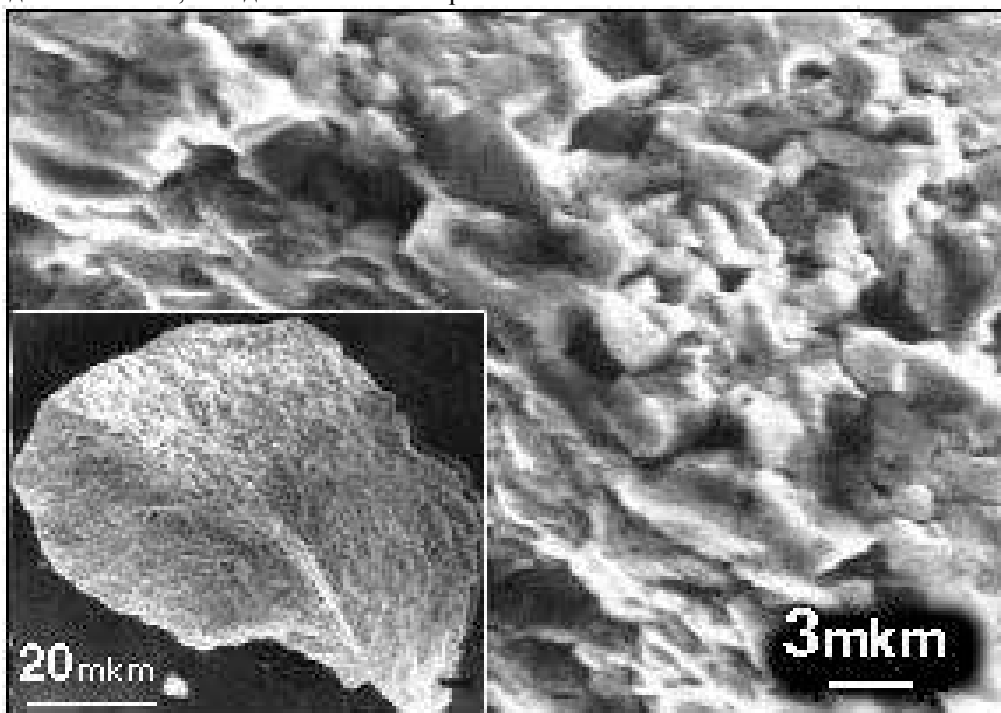
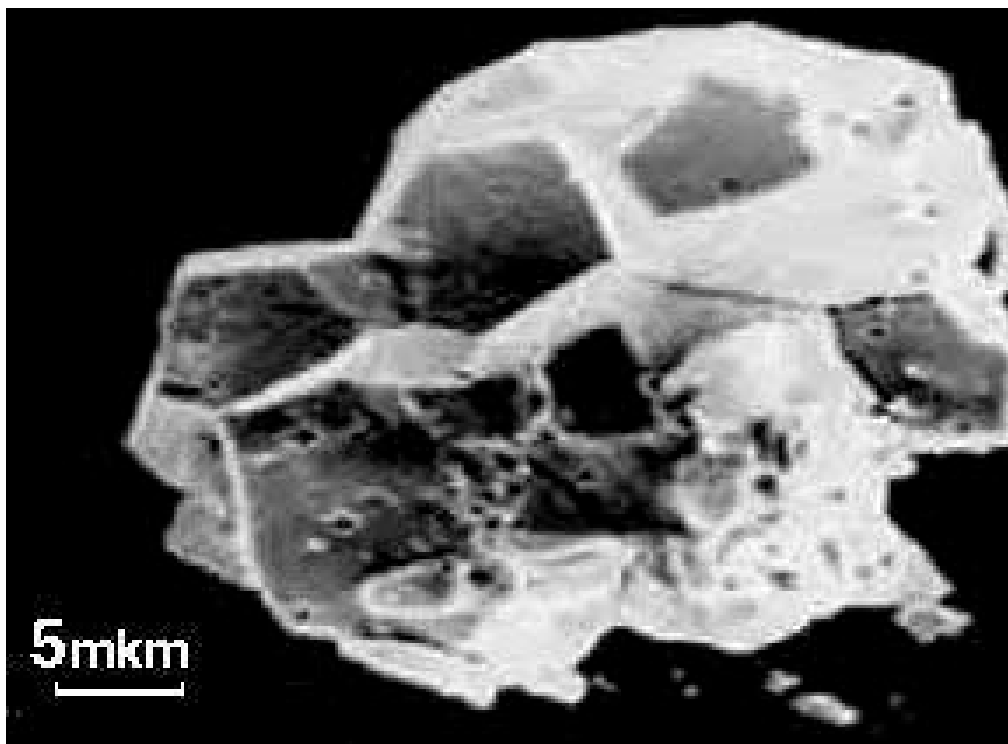


Рис.1. ТГЧ из кольцевой (внешней) зоны топливной таблетки



*Рис.2. ТГЧ из зоны равноосных зёрен топливной таблетки*

При исследовании дефектов ТГЧ, особенностей морфологических отклонений от структуры поверхности поликристаллов диоксида урана, сравнении полученных результатов с литературными данными, посвященными изучению выхода

газообразных продуктов деления и их воздействию на материал топливного сердечника, внимание привлекает следующее. В [3] приведены данные о последствиях увеличения выхода



*Рис.3. Фрактография образца топлива после испытания в реакторе РВФ.*

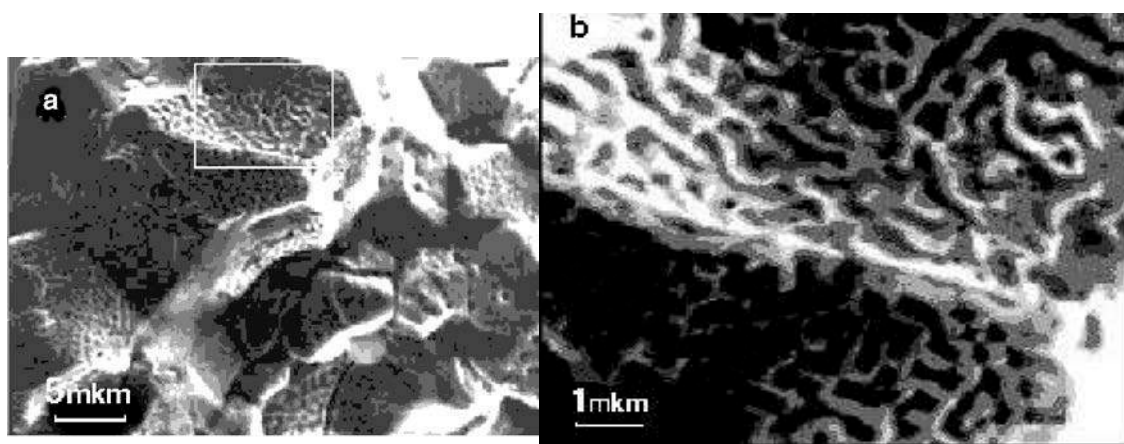


Рис.4. Фрагмент поверхности топливной частицы Чернобыльского выброса.

газообразных осколков деления в переходных режимах при увеличении мощности реактора с разными скоростными параметрами. Там же сообщается о проведенном эксперименте с оксидным топливом в реакторе взрывного действия (импульсном) Power Burst Facility в Айдахо и приведена фрактография топлива зоны равноосных зёрен после этого эксперимента (рис. 3).

В пробах Западного радиоактивного следа среди топливных частиц обнаружены морфологически абсолютно идентичные частицы, одна из которых представлена на рис. 4.

Происхождение такого микрорельефа поверхности обусловлено тем, что при мгновенном скачке мощности образующиеся газообразные осколки деления создают в окружающей матрице избыточное давление, при котором эквивалентные напряжения превышают предел текучести диоксида урана. В результате этого на гранях зёрен топлива возникают пластические деформации, локальность которых обусловлена расположением и плотностью дислокаций. Наличие таких частиц в Чернобыльском выбросе указывает на имевшее место воздействие на часть топлива очень короткой и мощной вспышки нейтронного потока, сопоставимой с длительностью и мощностью импульсов нейтронного потока в исследовательских импульсных реакторах, т.е. является доказательством произошедшей самоподдерживающейся цепной реакции (СЦР) с взрывными параметрами.

В выборке ТГЧ Западного следа практически нет фрагментов зоны столбчатых зёрен топливных таблеток. Для реакторов РБМК-1000 температура центральной части твэла при максимальной мощности составляет 2100 °С [5]. В этом режиме уже через 10 часов работы в центре топливной таблетки микроструктура равноосных зёрен трансформируется в зону столбчатых зёрен, морфология которых имеет свои характерные особенности. Граница этой зоны в зависимости от времени работы перемещается к периферии и через 1000 часов может достигать до 0,5 радиуса таблетки [6], т.е. значительная часть топлива приобретает такую структуру.

Это справедливо для той зоны реактора, где

поддерживается соответствующий поток нейтронов и находится топливо, проработавшее соответствующее время. На периферии реактора, где нейтронный поток уменьшается, нет условий для образования в таблетках топлива столбчатой микроструктуры. Отсутствие в исследованной массе частиц Западного следа этой структуры может указывать на то, что взрыв произошел в «холодной» области реактора, где температура центральной части твэлов в штатном режиме работы реактора не превышала температуры начала образования зоны столбчатых зёрен. В пробах других направлений радиоактивного выпадения ТГЧ со структурой столбчатых зёрен зафиксированы.

Доля частиц второго, топливно-конструкционного (ТКГЧ) класса (рис. 5–7), матрица которых в основном имеет элементный состав U-Zr-O, среди частиц Западного следа размером более 10 мкм превышает 50 %. Изучение состава и распределения уран-цирконий в теле частиц выявляет очень пёструю картину. Количественное вещественное соотношение ТКГЧ очень разнообразно: от циркониевых частиц с примесью диоксида урана до состоящих в основном из диоксида урана с примесью циркония. По распределению – от гомогенного состава частицы до сосуществования в пределах одной частицы областей перемешанного состава с дискретностью неоднородности от нескольких микрометров и более.

Микрондовый количественный анализ состава ТКГЧ показывает превышение содержания кислорода для состава  $UO_2-Zr$  и его недостачу для состава  $UO_2-ZrO_2$ , причём количество кислорода коррелирует с количеством циркония. Это свидетельствует о том, что ещё до взрыва произошло частичное окисление циркония, возможно вследствие термической диссоциации воды в технологических каналах. Рентгеноструктурный анализ некоторых ТКГЧ показывает, что материал, из которого они состоят, явно прошёл через стадию быстрой кристаллизации и дают достаточно отчётливую дифракционную картину. Их рентгенограммы не могут быть отождествлены ни с  $UO_2$ , ни с Zr, ни с  $ZrO_2$ , в то же время хорошо сопоставляются с эталонными спектрами  $NdZr_3O_{5,6}$ ,  $Ce_2Zr_3O_{10}$  [8].

Результаты количественного и структурного

анализов показывают, что перед взрывом реактора происходило окисление циркониевых деталей ТВС, их плавление и плавление топливных стержней. Наличие почти во всех ТКГЧ  $^{60}\text{Co}$  указывает на то, что при этом происходило довольно интенсивное перемешивание расплава. Затем произошла быстрая кристаллизация расплава с образованием соединений типа твёрдых растворов, представляющих собой тройную систему  $\text{UO}_2\text{-Zr-ZrO}_2$  с примесью коррозионно-стойкой стали (материал дистанцирующих решёток ТВС) и реликтов частиц не расплавившегося топлива.

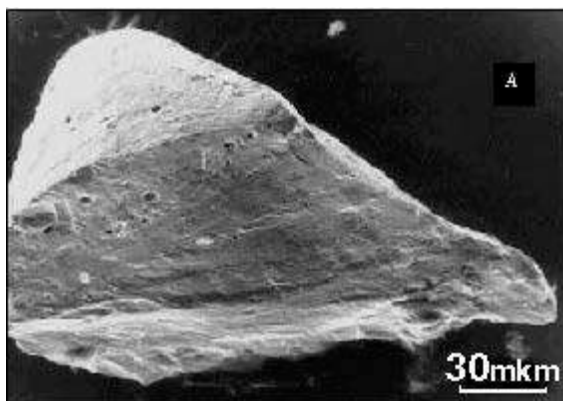


Рис.5. ТКГЧ массивной формы.

Внешний вид ТКГЧ разнообразен, размер найденных частиц колеблется от 10 до 850 мкм. Типичную морфологическую характеристику этих частиц представляют неправильные обломочные, массивные формы, шлакоподобные и оплавленные поверхности. Для частиц с массивной структурой характерно монолитное строение частиц с острыми сколами и гладкой поверхностью граней, что свидетельствует о том, что они образовались дроблением материала, находящегося в твёрдой фазе (рис. 5).

Поверхность шлакоподобных частиц содержит округлые каверны различных размеров и плотности распределения, что предполагает прохождение расплава через стадию быстрой кристаллизации (рис. 6). Оплавленная поверхность несёт следы оплавленности как отдельных деталей, так и всей поверхности (рис. 7). При этом сами частицы, несмотря на микронные размеры, сохраняют изометрическую форму. Это говорит о том, что термическое воздействие на частицу было очень кратковременным. Следует особо подчеркнуть, что среди частиц состава U-Zr-O нет частиц, имеющих сферическую или каплевидную форму.



Рис.6. ТКГЧ шлаковидной морфологии.

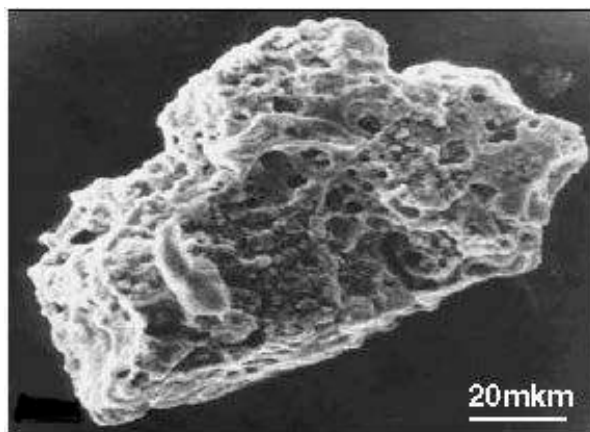


Рис.7. ТКГЧ с оплавленной поверхностью.

Среди описанных выше частиц особо выделяются гибридные частицы. Они представляют собой агрегаты равноосных зёрен, поверхность которых покрыта тонкой оболочкой толщиной порядка десятых долей микрона, слабо связанной с основным материалом частицы. Происхождение такой оболочки можно объясняется тем, что данная частица находилась в атмосфере паров циркония, которые конденсировались на более холодной поверхности частицы (рис. 8).

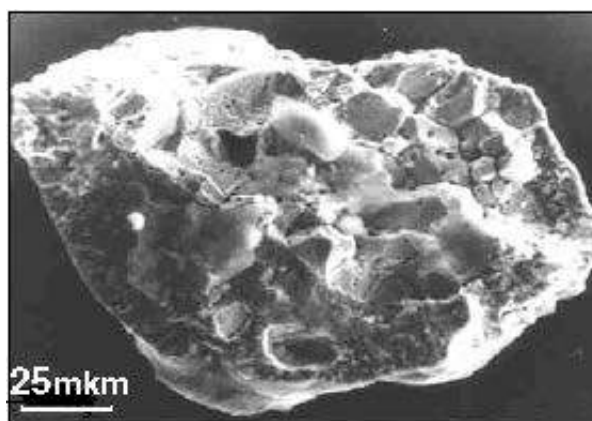


Рис.8. ТКГЧ с частично разрушенной циркониевой оболочкой.

Микрондовый рентгеноспектральный анализ подтверждает наличие в составе оболочки циркония. Определение присутствия урана в ней затруднительно из-за малой толщины оболочки, находящейся на содержащей уран матрице.

### Выводы

Проведены исследования горячих частиц облученного ядерного топлива методом электронной микроскопии. Представлена разработанная классификация горячих частиц по морфологическим признакам и элементному составу. При исследовании дефектов топливных горячих частиц, особенностей морфологических отклонений от структуры поверхности поликристаллов диоксида урана, сравнении полученных результатов с литературными данными, посвященными изучению выхода газообразных продуктов деления убедительно показан

факт существования СЦР с взрывными параметрами в локальной области реактора

На основании вышесказанного существующую версию аварии на 4-м блоке ЧАЭС можно дополнить следующим. При разгоне реактора в отсутствие регулирующих стержней и снижении расхода воды в технологических каналах [4] произошел переход пузырькового кипения к плёночному, что обусловило быстрый перегрев твэлов в условиях кризиса теплоотдачи. Интенсивное вскипание теплоносителя увеличило давление в аварийных каналах, которое не успевало эффективно компенсироваться отводом пара системой защиты от превышения давления в основном контуре теплоносителя. Резкое повышение давления в каналах привело к блокированию поступления в них воды, что обусловило ещё большее увеличение реактивности. Катастрофический разгон реактора теперь мог сдерживаться только влиянием эффекта Доплера и ксеноновым отравлением.

Нарастание мощности при кризисе теплоотдачи обусловило плавление оболочки и самих топливных стержней твэлов. Это привело к некоторому пространственному уплотнению топлива и выходу из него легколетучих продуктов деления, что ухудшило ситуацию из-за уменьшения ксенонового отравления в аварийной зоне реактора [5]. Можно предположить, что в течении первых секунд толстостенные каналные трубы, отдавая тепло графитовой кладке, сохраняли свои прочностные параметры. Затем по мере разогрева и увеличения пластичности материала произошло их разрушение под действием внутреннего давления. Падение давления и возобновление поступления воды вызвало быстрое охлаждение расплава, что резко уменьшило влияние Доплер-эффекта и вызвало СЦР с взрывными параметрами в локальной области реактора, дальнейшее развитие которой было остановлено разрушением его активной зоны.

Опираясь на данные загрязнения стронцием-90 по оси Западного следа, по приближенным оценкам определено, что в пределах расстояния 2,5...30 км от 4-го блока реактора находится около 2,5 т диспергированного облученного топлива, выброшенного непосредственно взрывом.

***Оставшаяся после взрыва в шахте реактора часть активной зоны имела высокую температуру вследствие продолжающейся цепной реакции и начавшегося горения графита. Вследствие этого легколетучие радионуклиды, выходящие в атомарном виде из топлива разрушенных твэлов, конденсировались на пылевых и аэрозольных частицах и выносились разогретыми потоками воздуха на большую высоту и расстояния. В это же время под воздействием высоких температур происходит окисление на воздухе диоксида урана до  $U_3O_8$ , вызывающее быстрое (за 2...3 часа) разрушение компактных зёрен топлива до частиц субмикронных размеров (рис. 9).***

Большая часть конденсационных горячих частиц осела в районе Весняное-Полесское (азимут 260, удаление 32...55 км), вследствие чего образовалось так называемое «цезиевое пятно», практически не содержащее топливных частиц. Существование цезиевого пятна показывает, что после

взрывного выброса топлива течение аварии имело более спокойный характер, из реактора выносились в основном легколетучие радионуклиды, выброс топлива был ничтожно мал.

Это ещё подтверждается тем, что ТГЧ с признаками окисления диоксида урана на западном направлении в пробах почвы встречаются крайне редко.

Ситуация изменилась 27-28.04.1986 г., когда началась засыпка реактора путём сбрасывания различных материалов. Ветер изменил направление на северное, что определило формирование Северного следа выпадений, основное загрязнение которого имеет топливную составляющую. Механическое воздействие на окисленное топливо материалов засыпки, сбрасываемых с большой высоты в компактной упаковке, привело к образованию особо плотного и масштабного радиационного загрязнения в северном направлении [7]. В отличие от Западного загрязнения Северного следа состоит из частиц окисленного топлива высокой степени дисперсии.

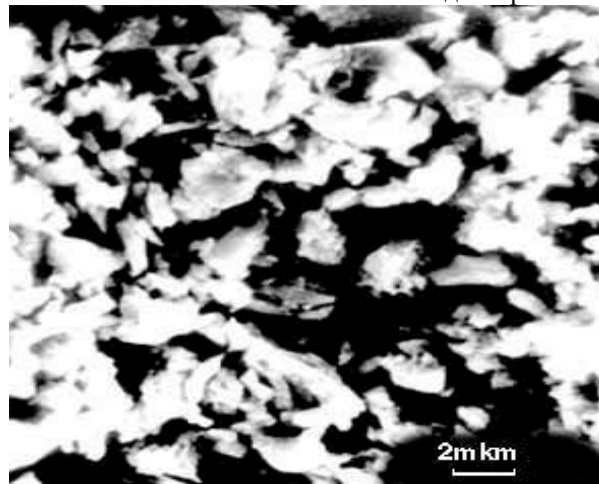


Рис.9. Осколки окисленной на воздухе топливной частицы.

В период формирования Южного следа (2-6.05.1986 г.) зафиксировано увеличение интенсивности радионуклидного выброса за счет образования в развале реактора из прежде разведенных очагов единой области расплава. Это усилило конвективный поток над развалом и обусловило увеличение массы, высоты подъема и отдаленности выпадения частиц, что подтверждается фактами отбора на Южном радиоактивном следе относительно крупных (свыше 100 мкм) частиц из проб дальних точек реперной сети.

#### Список литературы

1. Атлас Чернобыльской зоны отчуждения. – К.: Изд. «Картография», 1996. – 26 с.
2. Емельянов В.С. Металлургия ядерного горючего / В.С. Емельянов, А.И. Евстюхин. – М.: Атомиздат, 1968. – 484 с.
3. Фрост Б. Твэлы ядерных реакторов / Б. Фрост. – М.: Энергоатиздат, 1986. – 240 с.
4. Авария на Чернобыльской АЭС и ее последствия. Информация, подготовленная для совещания экспертов МАГАТЭ (25-29 августа 1986 г.). – М.: ГКИАЭ СССР, 1986.

5. Доллежалъ Н.А. Канальный ядерный энергетический реактор / Н.А. Доллежалъ, И.Я. Емельянов. – М.: Атомиздат, 1980. – 208 с.

6. Годин Ю.Г. Оксидное топливо в ЯЭУ / Ю.Г. Годин. – М.: Изд. МИФИ, 1986. – 88 с.

7. Кашпаров В.А. Кинетика растворения чернобыльских топливных частиц и выщелачивание из них радионуклидов в почвах зоны отчуждения / В.А.

Кашпаров [и др.] // Науч.-техн. сб. Проблемы Чернобыльской зоны отчуждения, 1998. – Вып. 5. – С. 24–33.

8. Тепикин В.Е. Горячие» частицы уран-циркониевого состава Чернобыльской аварии / Тепикин В.Е. [и др.]. – Чернобыль, 1993. – 19 с. – (Препр./НПО «Припять»).