

УДК 546:799.4
© 2002

**ИССЛЕДОВАНИЕ ФИЗИКО-ХИМИЧЕСКИХ СВОЙСТВ
АЛЬФА-АКТИВНЫХ АЭРОЗОЛЕЙ НА ПРОИЗВОДСТВЕ
ПО ПОЛУЧЕНИЮ И ПЕРЕРАБОТКЕ ПЛУТОНИЯ**

Е.Е. Аладова, В.Ф. Хохряков

Россия, г. Озерск, Южно-Уральский институт биофизики

О.А. Бондаренко

Украина, г. Киев, Институт медицинской радиологии

В работе представлены результаты исследования динамики показателя транспортабельности альфа-активных аэрозолей на производстве по получению и переработке плутония за период с 1977 по 1999 гг. и результаты последних измерений дисперсности 10 аэрозольных проб методом ТГД авторадиографии. Согласно полученным данным, показатель транспортабельности зависит от химических свойств субстрата, а его средние значения на всех изученных участках увеличились в несколько раз по сравнению с результатами прежних лет. Значение АМАД, рассчитанное по результатам авторадиографии, колеблется на различных участках от 0,55 до 1,09 мкм.

Согласно современным представлениям легочной модели бб Публикации МКРЗ механизмы отложения и очищения дыхательного тракта напрямую зависят от физико-химических свойств ингалируемых аэрозолей – транспортабельности и дисперсности. Исследования вопроса о влиянии этих свойств на легочный клиренс различных промышленных соединений плутония проводятся в ФИБ-1 с 70-х гг. На основе анализа секционного материала была установлена корреляция между относительным содержанием в легких и показателем транспортабельности, определяемым методом диализа [1]. Оценка дисперсности α -активных аэрозолей на изучаемых участках ПО «Маяк» проводилась эпизодически в период с 1969 по 1981 гг. При этом была установлена полимодальность частоты распределения размеров частиц аэрозолей с тенденцией к уменьшению АМАД со временем [2]. На основе проведенных исследований, для оценки величины ингаляционного поступления плутония-239 на плутониевом производ-

стве было рекомендовано исходить из допущения, что АМАД α -активных аэрозолей равен 1 мкм.

В реальных условиях производства дисперсность и растворимость радиоактивных веществ может варьировать в самых широких пределах [3], во многих случаях эти характеристики, вследствие проводимых усовершенствований и модификаций технологических процессов, нестабильны, поэтому с целью получения корректных дозовых оценок необходимо постоянно контролировать данные показатели на конкретных рабочих участках.

В связи с вышеизложенным, целью данной работы является изучение динамики показателя транспортабельности в период с 1977 по 1999 гг. и предварительное исследование дисперсности промышленных альфа-активных аэрозолей, отобранных с участков по получению и переработке плутония, современным методом авторадиографии в слое твердотельного детектора ядерного излучения (ТТДЯИ) типа CR-39.

МАТЕРИАЛЫ И МЕТОДЫ ИССЛЕДОВАНИЯ

В период с марта 1998 по сентябрь 1999 гг. с ряда технологических участков плутониевого производства отобрали по несколько проб воздуха аспирационным методом на фильтры АФА РСП-20. Всего за данный период было исследовано 24 фильтра.

Для определения коэффициента транспортабельности брали по 3 одинаковые части (1/6) с каждого фильтра, так чтобы минимальное количество альфа-активности на анализируемой части было не менее 3 Бк. Транспортабельность измеряли методом диализа [4] альфа-активности, задержанной на аэрозольном фильтре при отборе проб воздуха, через полупроницаемую мембрану типа Владипор МФА-МА-2 со средней пористостью 0,15 мкм в физиологическом растворе Рингера в течение 7 сут, меняя раствор в первые сутки 4 раза каждые 2 ч, остальное время – один раз в сутки. После завершения диализа по методикам радиохимического анализа, разработанным в ФИБ-1 и утвержденным во ВНИИМ им. Д.И. Менделеева [5], определяли содержание плутония и америция в пробах диализата, мембран и фильтров и измеряли альфа активность на низкофоновом альфа-радиометре РИА-05. Для каждого сегмента фильтра рассчитывали показатель транспортабельности аэрозолей по формуле:

$$Si = \frac{Q_i}{Q_0} \cdot 100\%,$$

где Q_i – содержание альфа-активности в диализате; Q_0 – начальная альфа-активность на анализируемой части фильтра, определяемая как сумма альфа-активности, измеренная в диализате, на фильтре и мембране.

Транспортабельность аэрозолей на фильтре S рассчитывали как средний показатель из трех значений S_i полученных для трех образцов.

Для 10 фильтров, проанализированных на растворимость, совместно с дозиметристами из киевского института медицинской радиологии было оценено распределение частиц по размерам методом ТТД автордиографии.

РЕЗУЛЬТАТЫ ИССЛЕДОВАНИЯ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Согласно 66 модели дыхательного тракта выведение радиоактивных веществ, отложившихся в легких, является результатом действия двух конкурирующих процессов – поглощение вещества в жидкости тела и механического транспорта в ЖКТ, обусловленного действием мерцательного эпителия на попавшие в легкие частицы [6]. Относительная роль этих механизмов в процессе легочного клиренса является важным фактором, определяющим уровень и характер распределения дозы в организме. Соотношение скоростей удаления радионуклидов из легких указанными путями сложным образом зависит как от дисперсности, так и от химической растворимости ингалируемых аэрозолей.

В настоящее время недостаточно научной информации по моделированию факторов, влияющих на растворение и переход вещества в кровь, для того чтобы предсказать скорость абсорбции определенных соединений, которая для данного соединения может сильно варьировать. Например, скорость абсорбции оксида плутония зависит от размера частиц, метода и температуры образования, изотопного состава и присутствия примесей [7, 8]. Аэрозоли, встречающиеся на практике, как правило, являются сложными по химическому и дисперсному составу смесями, и в данном случае метод диализа объективен и удобен для быстрого определения транспортабельной фракции нуклида, которая готова к мгновенной абсорбции в кровь.

РЕЗУЛЬТАТЫ ИССЛЕДОВАНИЯ ТРАНСПОРТАбельности

В табл. 1 приведены данные по транспортабельности альфа-активных аэрозолей с 3-х основных участков плутониевого производства в динамике за период, начиная с середины 70-х и до 1999 гг. [9–11]. Сопоставление данных таблицы показало, что средние значения транспортабельности на всех трех участках

Таблица 1

Динамика показателя транспортабельности альфа-активных аэрозолей, отобранных с 3-х рабочих участков завода по получению и переработке плутония

Химическое отделение							
Год исследования	1975		1977		1987		1999
Количество фильтров	23		20		8		3
S±σ	2,61±0,53		2,48±0,28		2,34±0,30		7,46±1,47
Химико-металлургическое отделение							
Год исследования	1977		1978		1987		1999
Количество фильтров	17		8		8		3
S±σ	0,62±0,12		0,46±0,15		0,56±0,21		3,84±1,34
Литейно-механический участок							
Год исследования	1975	1976	1977	1978	1979	1987	1999
Количество фильтров	12	8	8	4	56	5	18
S±σ	0,15±0,08	0,21±0,08	0,46±0,18	0,31±0,03	0,27±0,04	0,37±0,20	0,88±0,32

не изменялись с первых лет исследования и до начала 90-х. Это в свою очередь указывает на неизменность в данный период состава перерабатываемых субстратов и условий образования альфа-активных аэрозолей в рабочих помещениях. Однако результаты последних исследований 1999 г. свидетельствуют об увеличении показателя транспортабельности на всех трех рассматриваемых технологических участках в несколько раз.

Полученные данные показали, что транспортабельность аэрозолей, как и ожидалось, зависит от химических свойств перерабатываемого субстрата, а ее средние значения на участках производства по получению и переработке плутония уменьшаются при переходе от стадии растворения (химическое отделение) до получения металла (отделение механической обработки) от 7,46 до 0,88%, что заметно отличается от показателей, полученных в 1987 г. и соответствующих значениям от 2,34 до 0,37%.

Такое увеличение, возможно, объясняется следующими причинами. В настоящее время

прекращена наработка оружейного плутония, в основном ведется переработка отработавшего топлива атомных электростанций, поэтому согласно требованиям времени совершенствуются применяемые технологии. К тому же, модификация технологических процессов, направленная на улучшение санитарно-гигиенической обстановки, ведет к улучшению герметичности оборудования и, как следствие, к уменьшению размеров аэрозольных частиц, попадающих в зону дыхания рабочих. Во-вторых, промышленные аэрозоли, как отмечалось выше, являются сложными по химическому и дисперсному составу смесями, и более высокая скорость растворения может объясняться преобладанием в смеси более растворимого компонента. Кроме того, анализ внешнего раствора, мембран и фильтров на содержание америция, растворимость которого в среднем от двух до семи раз превышает таковую для плутония [8], показал, что его доля составляет в среднем до 15% от общей альфа-активности, задержанной на фильтре при отборе проб воздуха.

ИЗМЕРЕНИЯ ДИСПЕРСНОСТИ

Для исследования предполагаемой корреляции между коэффициентом транспортабельности и размерами аэрозольных частиц, совместно с коллегами из киевского Института медицинской радиологии проведены исследования дисперсного состава аэрозольных проб 10 фильтров, для которых ранее определен показатель транспортабельности S , методом автордиографии с использованием ТТДЯИ типа СК-39. Суть метода заключалась в следующем: фильтр экспонировался в плотном контакте с пластиковым детектором TASTRAK (типа СК-39), который является идеальным детектором ядерного излучения и, в первую очередь, альфа-излучения. При прохождении сквозь пластик альфа-частицы создавали скрытые разрушения молекул его полимера. Время экспонирования для разных проб составляло от 70 до 980 мин в зависимости от активности пробы. После экспонирования для выявления и увеличения образовавшихся разрушений, пластик протравлялся в 6М NaOH при температуре 70 °С в течение 3-х часов. Затем промытый и высушенный пластик обра-

батывался с помощью сканирующей оптической системы Olympus в ручном и автоматическом режимах. Площадь сканирования составляла 1 см². При стандартной эффективности регистрации равной 25%, были получены результаты, представленные в табл. 2 и на гистограммах рис. 1–3.

На рис. 4 представлены типичные изображения кластеров (звезд), отвечающих относительно высокоактивной (а) и низкоактивной (б) частицам.

Размер аэрозольных частиц определяли расчетным методом:

$$A = \frac{N}{E \cdot t} \quad (1)$$

где A – альфа-активность частицы, Бк;
 N – количество зарегистрированных треков в частице;
 E – эффективность регистрации;
 t – время экспозиции, с.

$$D_{ac} = \sqrt[3]{\frac{6V}{\pi}}, \quad (2)$$

D_{ac} – аэродинамический диаметр частицы, мкм;

Таблица 2

Результаты исследования физико-химических характеристик (транспортабельности и дисперсности) альфа-активных аэрозолей на заводе по получению и переработке плутония

Технологический участок	Соединения плутония	S , %	Диаметр частиц, соответствующий 1 треку, мкм	% единичных треков	D_{ac} , средний аэродинам. диаметр, мкм	АМАД, мкм	σ_g
Химическое отделение	Нитраты	7,46±1,47	0,24±0,05 n=3	46	0,43 n=3	0,55 n=3	1,23 n=3
Химико-металлургическое отделение	Нитраты, хлориды, оксалаты, оксиды	3,84±1,34	0,28±0,05 n=3	42	0,44 n=3	0,57 n=3	1,14 n=3
Литейно-механический участок	Оксиды, персный металлы	0,88±0,32	0,23±0,05 n=4	34	0,46 n=4	1,09 n=4	1,28 n=4

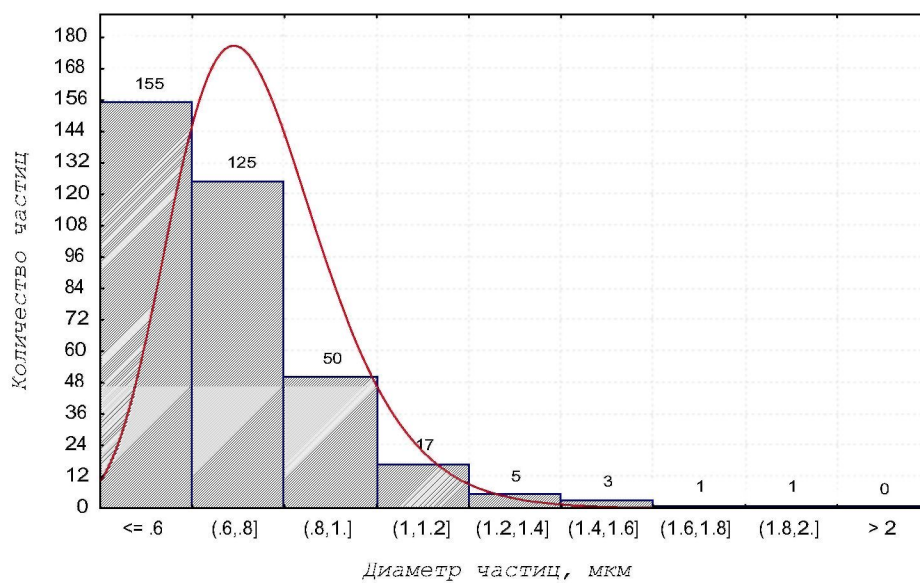


Рис. 1. Распределение частиц аэрозоля, отобранного в механическом отделении, по диаметрам

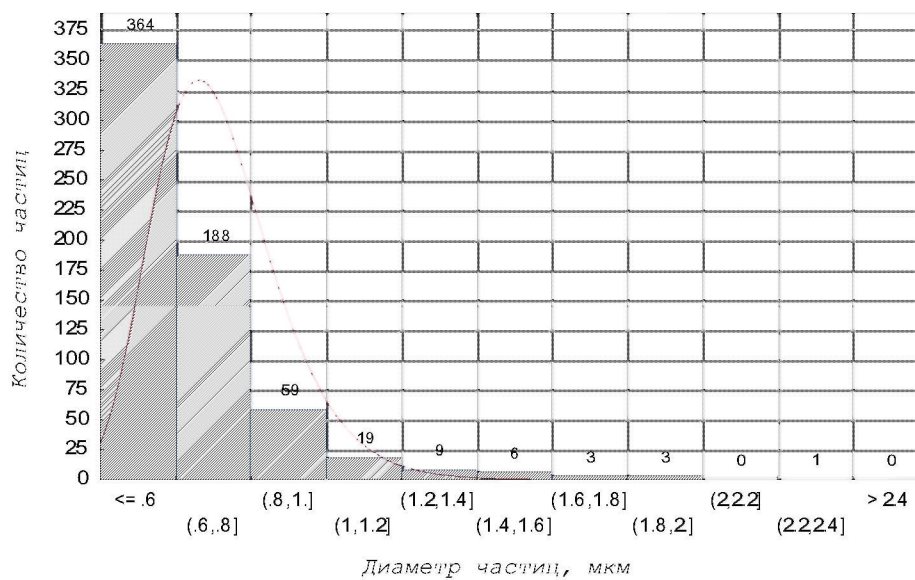


Рис. 2. Распределение частиц аэрозоля, отобранного в химическом отделении, по диаметрам

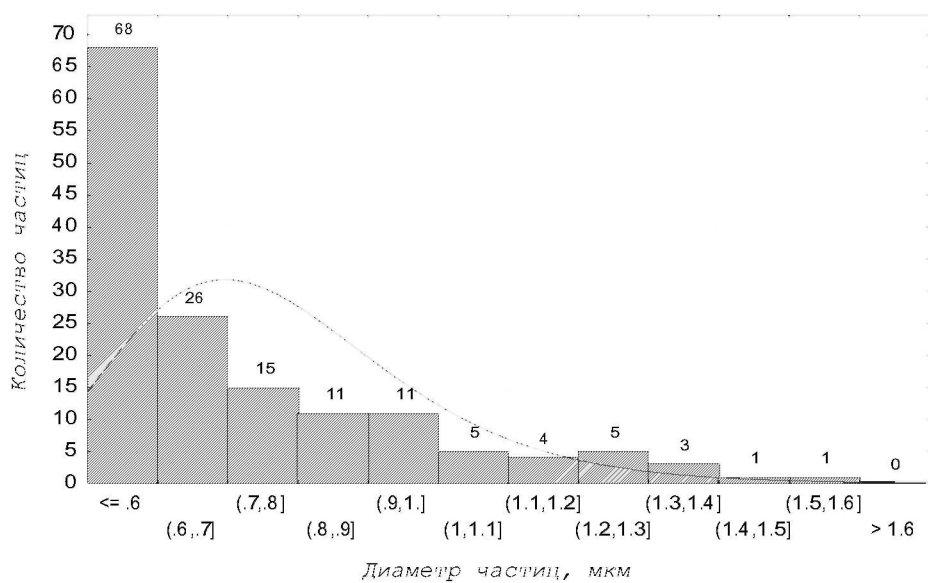


Рис. 3. Распределение частиц аэрозоля, отобранного в химико-металлургическом отделении, по диаметрам

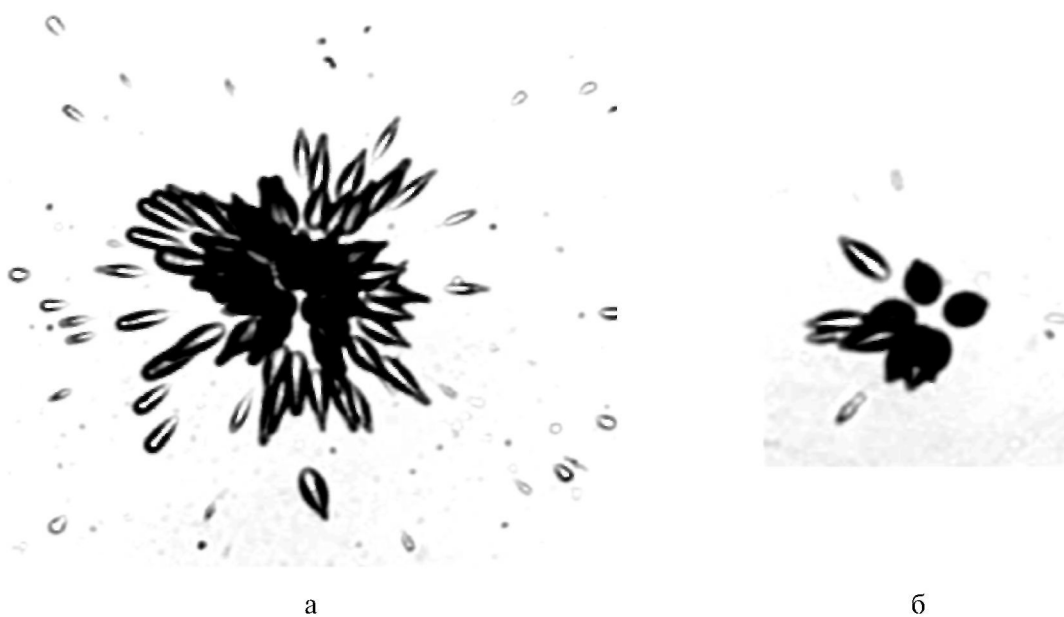


Рис. 4. Типичные изображения кластеров («звезд») отвечающих относительно высокоактивной (а) и низкоактивной (б) частицам

$$V = \frac{A}{A_{уд}} \quad (3)$$

Для частиц диоксида плутония $A_{уд} = 3,43 \cdot 10^{-2}$ Бк/мкм³.

Величину активного медианного аэродинамического диаметра определяли по формуле:

$$АМАД = 0,75 \cdot \sqrt{\frac{\rho}{1 \text{ г/см}^3}} \cdot D_{ac}, \quad (4)$$

где ρ – плотность α -активных аэрозолей, г/см³.

По данным работ [12] плотность промышленных аэрозолей радиохимических производств лежит в пределах от 3 до 12 г/см³. Мелентьева Р.В. [2] при расчетах АМАД использовала для грубодисперсной фракции величину плотности 3 г/см³ и для мелкодисперсной фракции – 10 г/см³. В наших исследованиях мы исходили из допущения, что плотность аэрозолей на участках химического и химико-металлургического отделений, где в воздухе присутствуют в основном нитраты, хлориды, оксалаты и в меньшей степени оксиды плутония, составляет 3 г/см³, а в отделении механической обработки, где преобладают оксиды, плотность материала аэрозольных частиц принимали равной 10 г/см³.

В табл. 2 представлены результаты обработки данных автордиографии и рассчитанные по формуле (4) величины АМАД исследуемых аэрозолей.

Анализ полученных данных показал, что на всех трех изученных участках в среднем 40% зарегистрированной активности находится в форме единичных треков, диаметр которых не превышает 0,28 мкм. Последнее не исключает возможности наличия частиц, активности которых не хватает для излучения за выбранное время экспозиции.

Для обработки данных принимается, что счетные распределения аэрозольных частиц по размерам и по активности подчиняются логарифмически-нормальному закону. Значения среднего геометрического диаметра и стандартное отклонение определялись по формулам [13]:

$$lg d_i = \left[\frac{\sum n_i (lg d_g - lg d_i)^2}{\sum (n_i) - 1} \right]^{1/2}, \quad (5)$$

$$lg d_g = \frac{\sum n_i lg d_i}{\sum n_i}. \quad (6)$$

На гистограммах рис. 1–3 представлены распределения частиц по размерам для каждого участка.

Согласно расчетам активный медианный аэродинамический диаметр аэрозольных частиц, присутствующих в воздухе исследованных участков производства по получению и переработке плутония увеличивался от 0,55 до 1,09 мкм при переходе от начальной к конечной стадии технологического процесса, в то время как показатель транспортабельности снижался. Таким образом, экспериментально установлена корреляция между скоростью проникновения частиц через мембрану и их размерами. Mercer в своей работе [14] показал, что растворение частиц является определяющим фактором, контролирующим скорость абсорбции вещества, отложившегося в респираторном тракте, в кровь, а скорость растворения пропорциональна площади поверхности частиц, следовательно, обратно пропорциональна диаметру частиц. Вероятно, растворение в первые часы диализа объясняется прохождением через мембрану мелких не образующих конгломератов частиц, размеры которых не превышают размеров пор мембраны. К сожалению вследствие недостатка данных, не удалось графически экстраполировать долю мелких частиц с АМАД 0,15 мкм, которые при отсутствии адсорбционных эффектов на поверхности мембраны могут свободно перейти во внешний раствор.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В результате проведенных исследований установлено, что вследствие изменения технологии и нуклидного состава перерабатываемого субстрата показатель транспортабельно-

сти увеличился в несколько раз на всех изученных участках по получению и переработке плутония по сравнению с результатами, полученными в предыдущие годы. Транспортабельность аэрозолей на исследованных участках варьирует в зависимости от технологического процесса от 0,88 до 7,46% и характеризуется средним показателем $4,06 \pm 2,30\%$. По предварительным данным, полученным при обработке результатов 10 аэрозольных проб, исследованных методом ТТДЯИ автордиографии с использованием твердотельного детектора, наблюдается слабая корреляция между скоростью растворения частиц и их размерами. Значение АМАД варьирует на изученных участках от 0,55 до 1,09 мкм.

ЛИТЕРАТУРА

1. Хохряков В.Ф., Сулова К.Г., Цевелева И.А., Аладова Е.Е. Объективный способ классификации альфа-активных аэрозолей для целей дозиметрии внутреннего облучения // Медицинская радиология и радиационная безопасность, 1998, № 2.
2. Мелентьева Р.В., Третьяков Ф.Д., Бадьин В.И. Дисперсность радиоактивных аэрозолей на основных предприятиях атомной промышленности: Отчет о НИР / ФИБ-1, 1983.
3. Dorrian M.D. and Bailey M.R. Particle size distributions of radioactive aerosols measured in workplaces // Radiation Protection Dosimetry. — 1995. — Vol. 60, №. 2. — P. 119–133.
4. МВИ. Методика определения показателя транспортабельности промышленных альфа-активных аэрозолей методом диализа / ФИБ-1.
5. МВИ. Плутоний. Анионообменное определение низких уровней альфа-активности в образцах секционного материала / ФИБ-1, НПО «ВНИИМ им. Д.И. Менделеева».
6. International Commission on Radiological Protection. Human respiratory tract model for radiological protection. Oxford: Elsevier Science, Ltd.; Publication 66, Ann. ICRP 24; 1994.
7. Miglio J.I., Muggenburg B.A., Brooks A.L. A rapid method for determining the relative solubility of Pu aerosols // HP. — 1977, Vol 33. — P. 449–457.
8. Patterson J.H., Nelson G.B., Matlock G.M. The dissolution of Pu-238 in environmental and biological systems // HP. — 1974.
9. Хохряков В.Ф., Сулова К.Г., Цевелева И.С. Транспортабельность альфа-активных аэрозолей радиохимического предприятия // Бюл. радиационной медицины. — 1987, № 1.
10. Хохряков В.Ф., Сулова К.Г., Негров А.Н. Классификация альфа-активных аэрозолей плутониевого производства по растворимости: Отчет о НИР / ФИБ-1, 1975.
11. Самуйлова Э.В., Бычинский А.А., Лобанов Б.Г. Сравнительные данные о транспортабельности альфа-активных аэрозолей на различных участках радиохимического производства // Бюл. радиационной медицины. — 1992, №3.
12. Лызлов А.Ф., Мельников Л.В., Василенко Е.К. Исследование параметров воздушной среды рабочих помещений заводов: Отчет / ФИБ-1. — 1981. — 18 с.
13. Райст П. Аэрозоли. — М.: Мир, 1987. — 278 с.
14. Mercer T.T. On the role of particle size in the dissolution of lung burdens. // Health Phys. — 1967. — 13. — С.1211–1221.