

ИЗУЧЕНИЕ РАСТВОРИМОСТИ АЭРОЗОЛЕЙ ОБЪЕКТА «УКРЫТИЕ» В ЖИДКОСТЯХ РАЗЛИЧНОГО ХИМИЧЕСКОГО СОСТАВА

© 2011 г. А. А. Одинцов, Б. И. Огородников

Институт проблем безопасности АЭС НАН Украины, Чернобыль

Определена степень и скорость растворимости радиоактивных аэрозолей, отобранных в 2005 и 2007 гг. из системы «Байпас» объекта «Укрытие» в дистиллированной воде, имитаторах легочной жидкости, имитаторе блочной воды и соляной кислоте с концентрацией 0,1 моль/л. Показано, что степень растворимости радионуклидов ^{90}Sr , ^{137}Cs , $^{238,239,240}\text{Pu}$ и ^{241}Am зависит от химического состава жидкости. Кинетика растворимости ^{90}Sr , ^{137}Cs хорошо описывается двухэкспоненциальной моделью.

Ключевые слова: радиоактивные аэрозоли, растворимость, радионуклиды, объект «Укрытие».

Введение

Проблема облучения органов дыхания персонала объекта «Укрытие» вследствие поступления радиоактивных аэрозолей поднималась в нескольких научных публикациях. Так, в [1] отмечено, что ингаляционная составляющая дозы «может быть существенной, прежде всего при проведении строительного-монтажных и других работ, связанных с повышенным образованием пыли». Однако авторы, представив алгоритм расчета дозы от ингаляционного поступления радионуклидов и относительный вклад α - и β -излучающих нуклидов в дозу внутреннего облучения, не конкретизировали величины дозовых коэффициентов, зависящих от растворимости радиоактивных аэрозолей в легких, поскольку таких исследований не проводили.

Без данных по растворимости рассчитанная доза может изменяться в широких пределах. Для плутония дозовый коэффициент увеличивается в три раза при переходе от класса растворимости S к классу M, а для труднорастворимых форм ^{241}Am и ^{137}Cs дозовые коэффициенты в Публикации № 66 МКРЗ [2] вообще не приводятся.

В связи с этим при разработке в 1999 – 2002 гг. в НИИРЗ АТН Украины методики оперативного контроля внутреннего облучения персонала объекта «Укрытие» [3 – 7] было принято, что для ^{137}Cs тип системного поступления состоит из равных долей, т.е. по 50 %, медленного (S) и быстрого (F) классов. Для остальных радионуклидов-продуктов Чернобыльской аварии был рекомендован класс S до введения в регламент объекта «Укрытие» инструментального метода контроля растворимости аэрозоля.

В работе [8] была исследована растворимость в имитаторе легочной жидкости (ИЛЖ) двух размерных фракций частиц (1 – 10 и более 10 мкм), выделенных путем седиментации в воде аэрозолей, отобранных в 1995 г. на фильтры при сельскохозяйственных работах в 5 км на запад от ЧАЭС (полигон близ с. Чистоголовка). Полученные для ^{137}Cs , ^{90}Sr и $^{239+240}\text{Pu}$ периоды полурасстворения медленно растворимой компоненты, на которую приходилось свыше 85 – 90 % активности каждого радионуклида, позволяют классифицировать исследованные частицы как нерастворимые при ингаляции. Однако эти результаты нельзя напрямую перенести на аэрозоли, находящиеся в объекте «Укрытие», минимум по трем причинам: 1) пробы отбирали во внешней среде, а не в помещениях объекта «Укрытие»; 2) частицы пролежали в земле около 9 лет и взаимодействовали с почвенным субстратом; 3) после пробоотбора их дисперсный состав был искусственно сепарирован (выделены две фракции) относительно исходных частиц, выпавших в 1986 г. из радиоактивного облака.

Примерно такие же исследования, как в работе [8], были выполнены в работах [9, 10]. Аэрозоли были отобраны в 1987 г. на фильтрующие материалы ФПП-15-1,5 в г. Припять на расстоянии около 3 км на северо-запад от ЧАЭС. На фильтрах с помощью автордиографии были идентифицированы аэрозольные «горячие» частицы. Эти участки фильтров были

вырезаны и помещены на три-четыре недели в ИЛЖ. В отличие от работы [8] показано, что частицы проявляют индивидуальные свойства. Переход радионуклидов в ИЛЖ уменьшался в ряду $^{137}\text{Cs} > ^{90}\text{Sr} \gg ^{239+240}\text{Pu} \geq ^{241}\text{Am}$. В целом же в публикациях [9, 10] было констатировано, что «горячие» частицы могут быть классифицированы как трудно-растворимые при ингаляционном поступлении в дыхательную систему человека». Это согласуется с результатами работы [8], но аэрозоли вновь были отобраны вне стен объекта «Укрытие».

Таким образом, имеющиеся к настоящему времени исследования по растворимости радиоактивных аэрозолей чернобыльского генезиса не могут в полной мере характеризовать физико-химические свойства частиц, находящихся непосредственно в воздушной среде помещений объекта «Укрытие».

Цель данной работы – исследование влияния химической природы жидкостей на степень растворимости радиоактивных аэрозолей объекта «Укрытие».

Материалы и методика эксперимента

Характеристики проб. Для отбора проб использовали переносную воздухоудку Н-810 и аналитические волокнистые фильтры Петрянова площадью 20 см². Воздуходвку размещали в помещении 4004/1 на срезе цилиндрического вентиляционного канала системы «Байпас» диаметром 1,4 м. Воздух прокачивали со скоростью около 80 см/с в течение 1 – 2 ч. Для обеспечения изокинетичности отбора аэрозолей перед фильтром устанавливали конусную насадку.

Пробы аэрозолей были отобраны в утренние часы (табл. 1). Дисперсный состав аэрозолей, поступавших в систему «Байпас», был определен с помощью трехслойных фильтров Петрянова, изготовленных в ГНЦ РФ «НИФХИ им. Л. Я. Карпова». Как правило, активностный медианный аэродинамический диаметр (АМАД) радиоактивных частиц-носителей долгоживущих продуктов Чернобыльской аварии находился в диапазоне 2 – 6 мкм [11].

Таблица 1. Условия отбора проб аэрозолей

Номер пробы	Отбор		Объем воздуха, м ³	Марка фильтра	АМАД, мкм
	дата	время			
1	01.09.2005	08 ⁵⁷ – 10 ²⁰	10,4	ФПА-70-0,12	4,3
2	30.08.2005	09 ²⁰ – 11 ²⁸	14,7	АФА РМП-20	
3	15.03.2005	11 ²³ – 13 ⁵⁵	18,3	ФПА-70-0,12	2,1
4	15.03.2005	11 ²³ – 13 ⁵⁵	18,3	ФПА-70-0,26	2,1
5	06.09.2005	09 ⁰⁶ – 11 ⁰⁰	10,9	ФПА-70-0,12	11,1
6	06.09.2005	11 ⁰⁰ – 13 ¹²	14,2	ФПА-70-0,12	10,8
7	13.02.2007	09 ³⁴ – 11 ²⁵	9,5	ФПА-70-0,12	5,8
8	22.02.2007	09 ⁰¹ – 11 ⁰⁷	12,7	ФПА-70-0,12	4,5
9	02.09.2005	08 ³⁶ – 10 ³³	12,0	ФПА-70-0,12	6,4
10	02.09.2005	10 ³⁶ – 12 ³⁰	12,5	ФПА-70-0,12	

Объем воздуха, прокачанный через фильтры, составлял от 9,5 до 18,3 м³, что сравнимо с референтным объемом дыхания за рабочую смену при легкой физической нагрузке персонал категории А (8,3 м³) [12]. Более подробно условия отбора проб описаны в работе [13]. Объемные активности радионуклидов в воздухе системы «Байпас» объекта «Укрытие» в период отбора проб приведены в табл. 2. Как следует из табл. 2, объемная концентрация ^{90}Sr в воздухе превышает ДКА^{inhal} в два раза, трансурановых элементов (ТУЭ) – в 6 – 24 раза.

Таблица 2. Содержание радионуклидов в воздухе объекта «Укрытие», Бк/м³

Дата	⁹⁰ Sr	¹³⁷ Cs	²³⁸ Pu	^{239 + 240} Pu	²⁴¹ Am
01.09.2005	228 ± 30	317 ± 30	1,83 ± 0,19	4,52 ± 0,48	6,92 ± 0,87
30.08.2005	65,3 ± 6,8	156 ± 14	0,51 ± 0,05	1,16 ± 0,14	1,77 ± 0,22
15.03.2005	50,3 ± 3,3	68,3 ± 3,1	0,38 ± 0,03	0,84 ± 0,07	1,52 ± 0,27
06.09.2005	22,9 ± 1,9	93,6 ± 5,5	0,22 ± 0,03	0,51 ± 0,05	0,86 ± 0,11
06.09.2005	5,99 ± 0,56	32,4 ± 1,4	0,055 ± 0,006	0,13 ± 0,02	0,22 ± 0,03
13.02.2007	15,8 ± 1,6	16,8 ± 1,1	0,11 ± 0,01	0,23 ± 0,02	0,51 ± 0,05
22.02.2007	5,04 ± 0,47	24,4 ± 1,6	0,033 ± 0,004	0,077 ± 0,009	0,13 ± 0,02
02.09.2005	7,42 ± 0,75	19,2 ± 1,2	0,092 ± 0,017	0,26 ± 0,03	0,39 ± 0,04
02.09.2005	12,8 ± 1,6	16 ± 1	0,088 ± 0,016	0,31 ± 0,03	0,36 ± 0,04
Среднее	23 ± 22	53 ± 49	0,19 ± 0,17	0,44 ± 0,37	0,72 ± 0,61
ДКА ^{inhal} [16]	10	60	0,03	0,06	0,03

Методика исследования растворимости аэрозолей. Для исследования растворимости аэрозолей из большого массива аэрозольных проб, отобранных в объекте «Укрытие», были взяты высокоактивные фильтры, экспонированные в вентиляционном канале системы «Байпас» в 2005 и 2007 гг.

Исходная активность радионуклидов в аэрозольных фильтрах приведена в табл. 3. В табл. 4 даны отношения активностей радионуклидов к активности ²³⁹⁺²⁴⁰Pu. Как следует из табл. 4, относительный радионуклидный состав аэрозольных частиц, находившихся в воздушной среде объекта «Укрытие» (с учетом погрешности определения активности радионуклидов), приблизительно одинаков и близок к расчетным значениям для ядерного топлива 4-го энергоблока [14].

Таблица 3. Содержание радионуклидов в аэрозольных фильтрах, Бк/пробу

Номер пробы	⁹⁰ Sr	¹³⁷ Cs	²³⁸ Pu	^{239 + 240} Pu	²⁴¹ Am
1	2370 ± 300	3300 ± 300	19 ± 2	47 ± 5	72 ± 9
2	960 ± 100	2300 ± 200	7,4 ± 0,8	17 ± 2	26 ± 3
3	800 ± 50	1100 ± 50	5,9 ± 0,5	13 ± 1	24 ± 4
4	120 ± 10	150 ± 10	0,98 ± 0,12	2,3 ± 0,2	3,8 ± 0,4
5	250 ± 20	1020 ± 60	2,4 ± 0,3	5,6 ± 0,5	9,4 ± 1,1
6	85 ± 8	460 ± 20	0,78 ± 0,09	1,9 ± 0,2	3,1 ± 0,4
7	150 ± 15	160 ± 10	1,0 ± 0,1	2,2 ± 0,2	4,8 ± 0,5
8	64 ± 6	310 ± 20	0,42 ± 0,06	0,98 ± 0,11	1,6 ± 0,2
9	89 ± 9	230 ± 10	1,1 ± 0,2	3,1 ± 0,3	4,7 ± 0,5
10	160 ± 20	200 ± 10	1,1 ± 0,2	3,8 ± 0,4	4,5 ± 0,5

Таблица 4. Отношение активности радионуклидов к активности ²³⁹⁺²⁴⁰Pu

Номер пробы	⁹⁰ Sr	¹³⁷ Cs	²³⁸ Pu	²⁴¹ Am
1	50	70	0,41	1,54
2	56	135	0,44	1,53
3	59	84	0,44	1,78
4	53	64	0,42	1,64
5	45	195	0,43	1,67
6	44	235	0,41	1,58
7	69	72	0,47	2,14
8	66	318	0,43	1,62
9	31	77	0,37	1,44
10	44	53	0,31	1,18
Среднее	52 ± 11	130 ± 89	0,41 ± 0,04	1,61 ± 0,25
Расчет	51	62	0,49	1,67

Основные методические особенности экспериментов по изучению растворимости радиоактивных аэрозолей изложены в работах [9, 10]. Фильтры АФА РМП-20 и ФПА-70-0,12 помещали в кассеты между двумя мембранными фильтрами с размером пор 0,2 мкм. В статических условиях проведено растворение аэрозольных проб в следующих жидкостях:

- 1 – дистиллированная вода (имитатор атмосферных осадков);
- 2 – ИЛЖ SLF, pH 8,4;
- 3 – ИЛЖ “Gamble”, pH 7,6;
- 4 – 0,1 моль/л HCl;
- 5 – имитатор блочной воды (ИБВ), pH 9,4.

Кассеты с фильтрами устанавливали в емкости из оргстекла и заливали 25 мл раствора. Через определенные промежутки времени раствор отбирали полностью, а в емкости добавляли по 25 мл свежего раствора. Химический состав растворов, имитирующих легочную жидкость, приведен в табл. 5. Основной компонент данных растворов – хлорид натрия. В них содержатся также гидрокарбонат натрия и другие компоненты. Динамику перехода радионуклидов из аэрозольных фильтров в ИЛЖ изучали в статических условиях в течение 34 – 36 сут.

Таблица 5. Состав ИЛЖ

Реагент	Раствор SLF		Раствор Gamble	
	моль/л	г/л	моль/л	г/л
NaCl	0,145	8,56	0,116	6,79
KCl	0,004	0,31		
NH ₄ Cl			0,01	0,54
MgCl ₂	0,001	0,1		
NaHCO ₃	0,024	2,02	0,027	2,27
Glycine			0,006	0,45
L-Cysteine			0,001	0,18
Na ₃ Citrate	0,0003	0,48	0,0002	0,056
NaAcetate	0,007	0,56		
CaCl ₂	0,0012	0,28	0,0002	0,044
Na ₂ HPO ₄	0,001	0,18		
NaN ₂ PO ₄			0,0012	0,19

В качестве раствора ИБВ готовили раствор, содержащий карбонаты, гидрокарбонаты и фосфаты натрия в количестве, соответствующем средним значениям проб воды из неорганизованных скоплений объекта «Укрытие» (табл. 6). Пробы жидких радиоактивных отходов объекта «Укрытие» содержат также поверхностно активные вещества и органические компоненты, которые поступают при проведении сеансов пылеподавления. В настоящей работе для упрощения проведения радиохимического анализа реагенты, входящие в состав пылеподавляющего раствора, в ИБВ не добавлялись. Свежеприготовленный раствор ИБВ имеет щелочную среду с pH 9,4.

Содержание ¹³⁷Cs в растворах определяли гамма-спектрометрическими измерениями. Выделение ⁹⁰Sr, ²³⁸Pu, ²³⁹⁺²⁴⁰Pu и ²⁴¹Am из выщелачивающих растворов и остатков аэрозольных фильтров после экспонирования в растворах было проведено радиохимическими методами. Активность ⁹⁰Sr определяли бета-радиометрическими измерениями, а ²³⁸Pu, ²³⁹⁺²⁴⁰Pu и ²⁴¹Am – с помощью альфа-спектрометрии.

Таблица 6. Состав ИБВ

Реагент	Содержание в растворе	
	моль/л	г/л
Na ₂ CO ₃	0,0017	0,18
NaHCO ₃	0,0082	0,69
NaN ₂ PO ₄	0,00003	0,0045

Результаты экспериментов и их обсуждение

Гамма-спектрометрические измерения и радиохимический анализ жидкостей после растворения аэрозольных “горячих” частиц показали, что ^{137}Cs , ^{90}Sr , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ и ^{241}Am присутствуют во всех использованных растворах. Степень и скорость выщелачивания плутония и америция из аэрозольных частиц раствором ИЛЖ зависит от размера “горячих” частиц [8 – 10]. С уменьшением их размера степень растворимости повышается, что согласуется с теоретическими расчетами скоростей растворимости дисперсных материалов.

Степень растворимости радионуклидов из аэрозольных проб в жидкостях различного химического состава представлена в табл. 7.

Таблица 7. Степень растворимости радионуклидов, % от исходного содержания

Раствор	^{90}Sr	^{137}Cs	$^{239+240}\text{Pu}$	^{241}Am
Дистиллированная вода	$1,5 \pm 0,2$	13 ± 2	$0,26 \pm 0,07$	$1,0 \pm 0,3$
ИЛЖ № 1	$4,1 \pm 0,8$	48 ± 5	$1,6 \pm 0,3$	$0,52 \pm 0,11$
ИЛЖ № 2	$9,4 \pm 2,4$	49 ± 6	$0,62 \pm 0,22$	$0,33 \pm 0,14$
ИБВ	$5,9 \pm 1,2$	25 ± 4	$1,2 \pm 0,4$	$2,2 \pm 0,5$
0,1 моль/л HCl	16 ± 3	45 ± 11	11 ± 3	14 ± 3

Растворимость радионуклидов уменьшается в ряду $^{137}\text{Cs} > ^{90}\text{Sr} > ^{241}\text{Am} \approx ^{239+240}\text{Pu}$. Переход в растворимое состояние ^{238}Pu и $^{239+240}\text{Pu}$ практически одинаков, поэтому данные для ^{238}Pu в настоящей работе не приводятся. По степени растворения аэрозольных «горячих» частиц использованные растворы можно расположить в следующем ряду: 0,1 моль/л HCl > ИЛЖ № 1 \approx ИЛЖ № 2 > ИБВ > H₂O. Растворимость ^{137}Cs в 0,1 моль/л HCl и растворах ИЛЖ № 1 и № 2 одинаковая. Следует отметить, что высокая растворимость ^{90}Sr и особенно ^{241}Am и $^{239+240}\text{Pu}$ в 0,1 моль/л HCl свидетельствует о присутствии в аэрозольных «горячих» частицах карбонатных и гидроокисных соединений этих радионуклидов.

Полученные данные по растворимости аэрозолей в дистиллированной воде и ИБВ показывают, что взаимодействие атмосферных осадков с дисперсной фазой в помещениях объекта «Укрытие» приводит к образованию жидких радиоактивных отходов. Взаимодействие воды с бетонными конструкциями приводит к образованию гидрокарбонатных растворов, в которых степень растворимости аэрозольных “горячих” частиц в два-три раза выше. Растворимость ^{241}Am в воде и ИБВ в 2 – 4 раза выше, чем $^{239+240}\text{Pu}$ (см. табл. 7). Эти данные объясняют относительное обогащение ЖРО объекта «Укрытие» по ^{241}Am (отношение $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ в 2 – 5 раз выше расчетного) [15].

Кинетику растворения исследуемых аэрозолей описали с помощью двухэкспоненциальной модели согласно уравнению (1)

$$A(t)/A_0 = ae^{-\lambda_1 t} + be^{-\lambda_2 t}, \quad (1)$$

где $A(t)$ – содержание активности на фильтре в момент времени t , Бк; A_0 – исходное содержание активности на фильтре при $t = 0$, Бк; a – доля нуклида, способная к относительно быстрому растворению; λ_1 – константа скорости быстрого растворения, сут⁻¹; b – доля нуклида, подвергаемая медленному растворению; λ_2 – константа скорости медленного растворения, сут⁻¹. Обработка экспериментальных данных проведена с помощью программы «Статистика».

Результаты расчетов представлены в табл. 8 и 9.

Кинетика растворения ^{90}Sr и ^{137}Cs хорошо описывается двухэкспоненциальной моделью (рис. 1 и 2).

На рис. 3 показана динамика растворения ^{90}Sr и ^{137}Cs в жидкостях различного состава.

Таблица 8. Параметры растворения аэрозолей по ¹³⁷Cs в различных жидкостях

Параметры растворения	Gamble	SLF	H ₂ O*	ИБВ	0,1 моль/л HCl
Фракция а, %	44	47	10	11	41
λ_1 , сут ⁻¹	1,72	1,67	1,66	1,01	2,2
Фракция б, %	56	53	90	89	59
λ_2 , сут ⁻¹	0,0046	0,0027	0,0011	0,0052	0,0026

* Дистиллированная вода.

Таблица 9. Параметры растворения аэрозолей по ⁹⁰Sr в различных жидкостях

Параметры растворения	Gamble	SLF	H ₂ O	ИБВ	0,1 моль/л HCl
Фракция а, %	7,1	2,5	1,3	2,1	12
λ_1 , сут ⁻¹	1,27	1,68	2,03	0,65	1,11
Фракция б, %	92,9	97,5	98,7	97,9	88
λ_2 , сут ⁻¹	0,00079	0,00047	0,00011	0,0012	0,0017

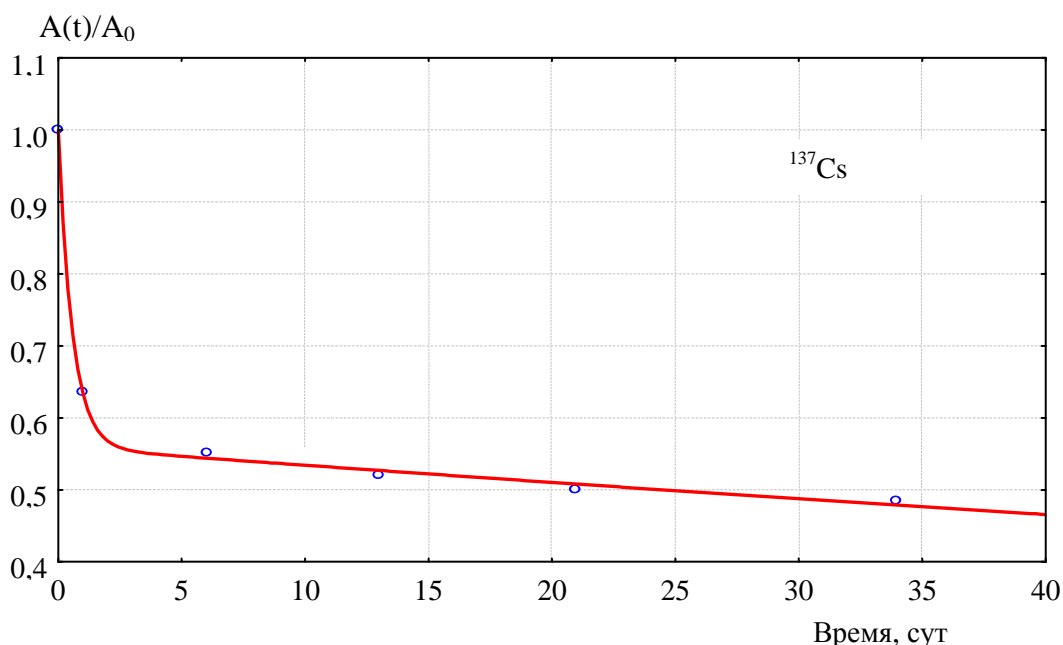


Рис. 1. Динамика растворения ¹³⁷Cs в ИЛЖ
(○ – экспериментальные данные, кривая – двухэкспоненциальная модель).

Переход ²³⁹⁺²⁴⁰Pu и ²⁴¹Am в исследованные растворы происходит значительно медленнее. В данном случае применение формулы (1) к анализу экспериментальных данных по ²³⁹⁺²⁴⁰Pu и ²⁴¹Am не позволило получить достоверные значения параметров а, б, λ_1 и λ_2 . Значения констант растворимости ²³⁹⁺²⁴⁰Pu и ²⁴¹Am определено по кинетическому уравнению первого порядка $dA(t)/dt = -k_1 A$ (табл. 10).

Анализ полученных данных показал, что основное количество ¹³⁷Cs (30 – 45 %) переходит в ИЛЖ в первые 7 сут. Вероятнее всего, это связано с растворением наиболее мелких аэрозольных частиц. В последующие периоды скорость значительно снижается, и спустя 36 сут (или несколько ранее) процесс растворения цезия определяется его диффузией из внутреннего объема крупных частиц. Возможно, на второй стадии растворяются частицы, которые когда-то уже взаимодействовали с водой и из них «быстрый» радиоцезий уже частично выщелочился. Это так называемые вторичные аэрозоли.

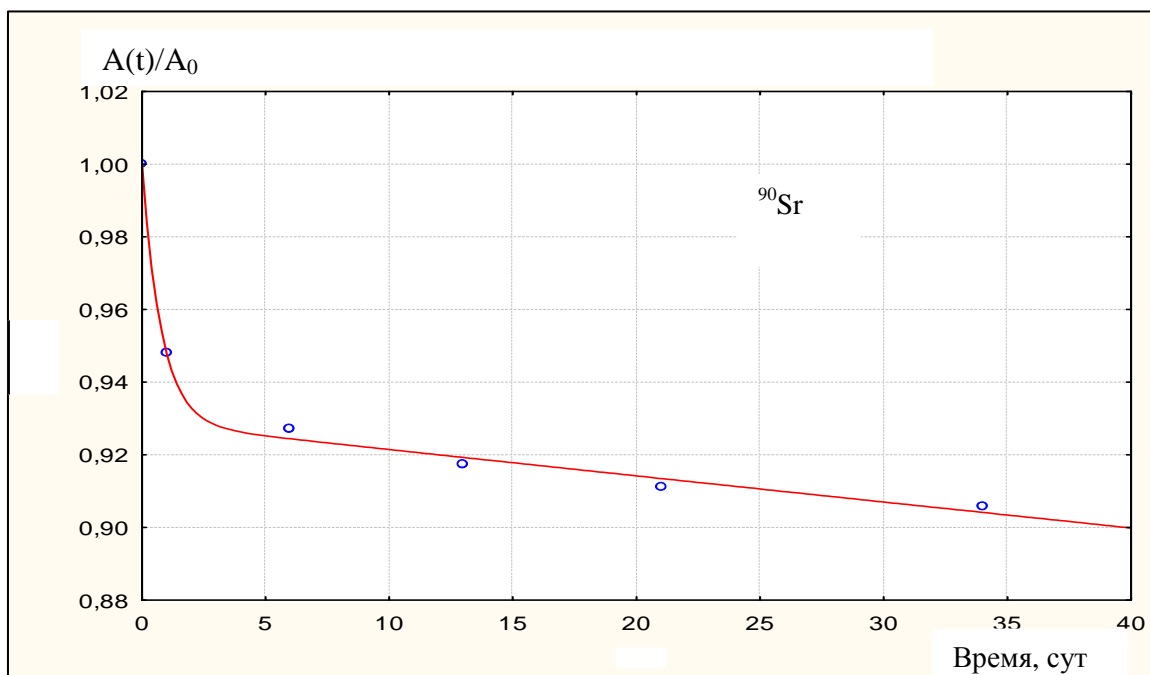


Рис. 2. Динамика растворения ^{90}Sr в ИЛЖ
(\circ – экспериментальные данные, кривая – двухэкспоненциальная модель).

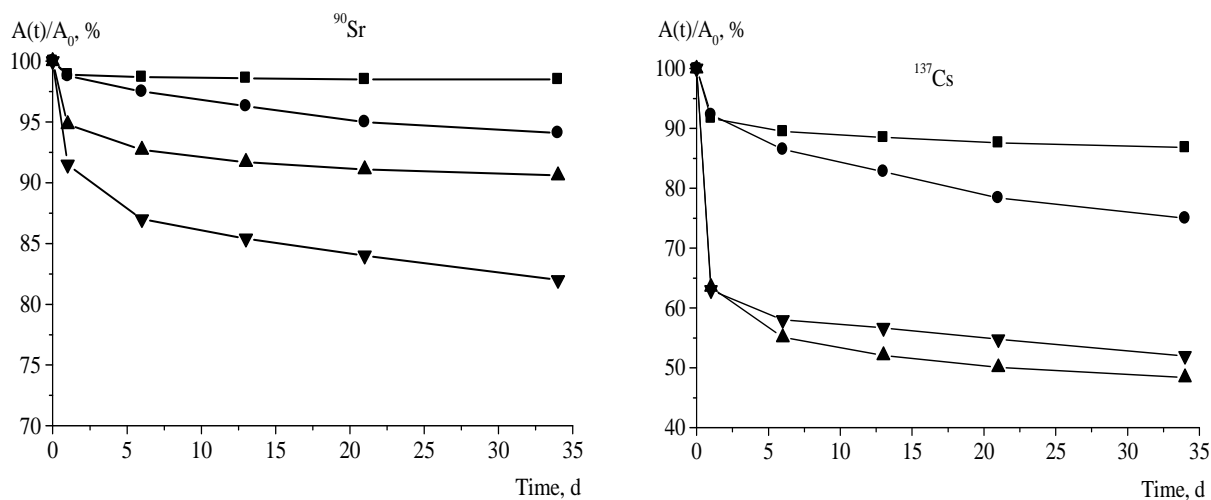


Рис. 3. Доля ^{90}Sr и ^{137}Cs , оставшихся в аэрозольных частицах, в зависимости от времени пребывания в растворах (\blacksquare – дистиллированная вода, \bullet – ИБВ, \blacktriangle – ИЛЖ № 2, \blacktriangledown – 0,1 моль/л HCl).

Таблица 10. Константы растворимости λ_1 , сут $^{-1}$

Радионуклид	Gamble	SLF	H ₂ O	ИБВ	0,1 моль/л HCl
$^{239+240}\text{Pu}$	0,00018	0,00045	0,000077	0,00036	0,0037
^{241}Am	0,000097	0,00014	0,00029	0,00065	0,0048

На рис. 4 показана динамика растворения $^{239+240}\text{Pu}$ и ^{241}Am в жидкостях различного состава.

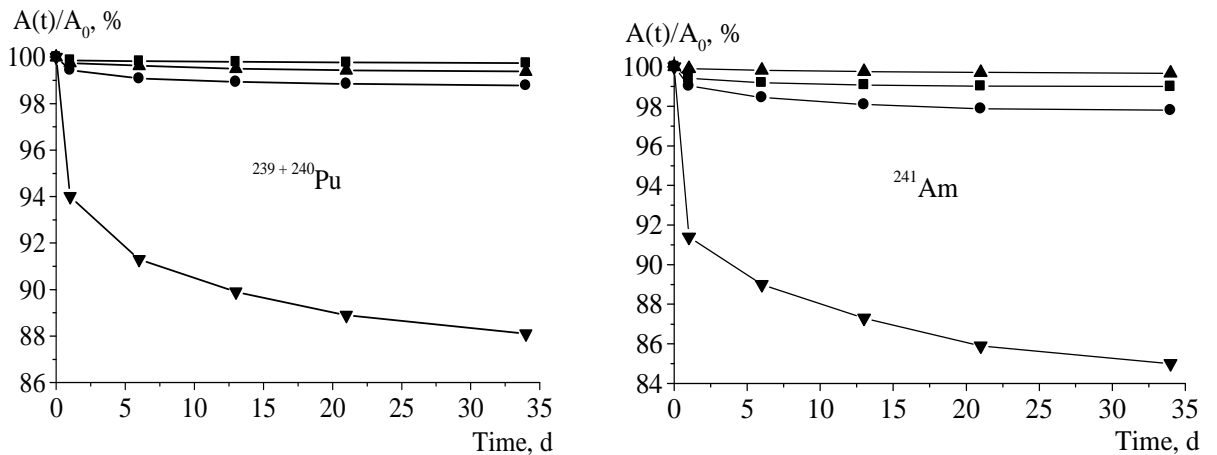


Рис. 4. Доля $^{239+240}\text{Pu}$ и ^{241}Am , оставшихся в аэрозольных частицах, в зависимости от времени пребывания в растворах (■ – дистиллированная вода, ● – ИБВ, ▲ – ИЛЖ № 2, ▼ – 0,1 моль/л HCl).

Растворимость ^{90}Sr в ИЛЖ за время более 30 сут составляет 4 – 9 %. Однако следует отметить, что в растворе 0,1 моль/л HCl, который обычно используется в качестве имитатора желудочного сока, степень растворимости ^{90}Sr более высокая и достигает 16 %.

Результаты радиохимического анализа показали, что степень растворимости ^{238}Pu и $^{239+240}\text{Pu}$ в ИЛЖ составляет 0,6 – 1,6 %, а ^{241}Am 0,3 – 0,5 %. В 0,1 моль/л HCl степень растворимости $^{239+240}\text{Pu}$ составляет 11 % и значительно ниже, чем ^{241}Am , растворимость которого 14 %.

Оценка времени, необходимого для полного перехода радионуклидов в ИЛЖ при условии сохранения скорости, зарегистрированной во второй стадии эксперимента, т.е. после 15 – 20 сут, показала, что ^{137}Cs будет растворяться от одного до трех лет, ^{90}Sr – около 10 лет, а $^{239+240}\text{Pu}$ и ^{241}Am – еще дольше.

Полученные экспериментальные данные позволяют определить референтный тип ингаляционного поступления радионуклидов. На основании растворимости радионуклидов в ИЛЖ, можно заключить, что в исследуемых аэрозолях около половины количества ^{137}Cs относится к классу растворимости F, остальное – к классу S. Растворимость ^{90}Sr частично можно отнести к классу M, но большую часть к классу S. Трансурановые элементы $^{239+240}\text{Pu}$ и ^{241}Am полностью попадают в класс S.

Представляет несомненный интерес сопоставить результаты, полученные в наших экспериментах, с серией исследований, выполненных В. А. Кутьковым (Институт биофизики Минздрава СССР, Москва) с соавторами [16 – 20]. Они занимались преимущественно аэрозольными “горячими” частицами, образовавшимися в первый момент при взрыве реактора 4-го блока ЧАЭС и попавшими в легкие свидетелей аварии. Это были мелкодиспергированные фрагменты ядерного топлива с включенными в них радионуклидами, накопившимися за время штатной работы реактора. К “горячим” относили высокоактивные частицы микронных размеров.

В работах [16 – 20] на основе исследований выщелачивания радионуклидов из топливных частиц была создана модель их поведения в легких человека. Она базируется на экспериментальных данных, показывающих, что продукты деления ядерного топлива и ТУЭ прочно связаны с матрицей диоксида урана. Вследствие этого радионуклиды топливных частиц при попадании в организм человека проявляют черты коллективного поведения в барьерных органах – органах дыхания, желудочно-кишечного тракта и коже. Химическая деструкция топливной матрицы (оксиды урана) является основным процессом, приводящим к проникновению радионуклидов в кровь, после чего они ведут себя независимо [16].

При ингаляционном поступлении они проявляют себя в легких как элементы, находящиеся в соединениях, относящихся к типу S [2].

Сопоставление наших данных с растворимостью “горячих” топливных частиц в экспериментах В. А. Кутькова с соавторами [16 – 20] показывает, что динамика перехода радионуклидов в раствор была разной. Высокие скорости перехода в раствор ^{137}Cs и ^{90}Sr , в десятки раз превышавшие скорости растворения $^{239+240}\text{Pu}$ и ^{241}Am , свидетельствовали, что в пробах, отобранных из системы «Байпас» объекта «Укрытие» 30 августа и 1 сентября 2005 г., радионуклиды находились в составе аэрозолей, которые лишь частично принадлежали к классу “топливные”. Судя по работам, которые в конце августа – начале сентября 2005 г. проводили при стабилизационном мероприятии 14а, это были диспергированные частицы, образовавшиеся в результате перемещений строительных материалов, зачистки бетонных сооружений, долбления старого бетона и укладки нового, сварки и резки металлических конструкций и т.д. Естественно, что при таких работах в воздухе могли появляться топливные частицы, которые осели на различных поверхностях во многих помещениях объекта «Укрытие» в первые дни после взрыва реактора 4-го блока ЧАЭС. Однако, судя по растворимости в ИЛЖ и сопоставляя с данными работ [16 – 20], не они определяли высокие концентрации радионуклидов в воздухе при отборе проб аэрозолей в августе – сентябре 2005 г., а аэрозоли, образовавшиеся в результате техногенной деятельности в период стабилизационных работ.

Выполнение в объекте «Укрытие» строительных работ по стабилизационному мероприятию № 14а в августе – сентябре 2005 г. привело к значительному загрязнению воздуха радиоактивными аэрозолями. Так, в пробе, отобранной 1 сентября в вентиляционной системе «Байпас», соединяющей развал центрального зала 4-го блока ЧАЭС с высотной трубой ВТ-2, объемная активность смеси долгоживущих β -излучающих нуклидов составила 1100 Бк/м^3 и втрое превысила контрольную концентрацию. При этом содержание отдельных радионуклидов достигло следующих значений: ^{137}Cs – 320, ^{154}Eu – 2,2, ^{238}Pu – 1,8, $^{239+240}\text{Pu}$ – 4,5 и ^{241}Am – 6,9, Бк/м^3 . Частицы-носители радионуклидов имели АМАД $4 \pm 0,3 \text{ мкм}$ при $\sigma = 1,5$.

Пробы аэрозолей, отобранные на фильтры Петрянова, позволили определить не только концентрации и дисперсный состав аэрозолей-носителей продуктов Чернобыльской аварии, но и исследовать их растворимость в различных жидкостях. Была прослежена динамика перехода в раствор β -излучающих нуклидов ^{137}Cs и ^{90}Sr и α -излучающих трансурановых элементов ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ и ^{241}Am . Последние вносят основной вклад в дозу внутреннего облучения персонала объекта «Укрытие» при вдыхании аэрозолей.

Установлено, что для всех вышеуказанных радионуклидов имеется быстрая начальная стадия растворения в ИЛЖ, которая после 10 – 15 сут стабилизируется и значительно замедляется. Скорость перехода радионуклидов в ИЛЖ уменьшается в ряду $^{137}\text{Cs} > ^{90}\text{Sr} \gg \gg ^{239+240}\text{Pu} \approx ^{241}\text{Am}$. Константа скорости растворимости медленно растворимой части ^{137}Cs составляет $(3 - 5) \cdot 10^{-3} \text{ сут}^{-1}$. Для $^{239+240}\text{Pu}$ и ^{241}Am константы на два порядка величины ниже.

Проведенные эксперименты показали, что в аэрозолях, находившихся в объекте «Укрытие» в 2005 и 2007 гг., около половины количества ^{137}Cs относилось к классу F (быстрое растворение), остальное – к классу S (медленное растворение). Переход ^{90}Sr в ИЛЖ частично относился к классу M (промежуточная скорость растворения), но в основном к классу S. ТУЭ $^{239+240}\text{Pu}$ и ^{241}Am полностью попадали в класс S. Таким образом, исследованные аэрозоли, попадающие в организм в результате дыхания, можно рассматривать как труднорастворимые.

По-иному складывается “судьба” аэрозолей, оседающих при дыхании в носовых пазухах и носоглотке. При заглатывании слизи они попадают в желудочно-кишечный тракт и начинают растворяться в желудочном соке, который в данных исследованиях имитировала 0,1 моль/л соляная кислота. Как следует из представленных выше данных, в желудочном соке аэрозоли растворяются существенно быстрее, чем в остальных исследованных жидкостях, а радионуклиды, находившиеся в частицах, попадают в кровеносную систему и разносятся внутри организма.

Полученные данные по растворимости аэрозолей в дистиллированной воде и ИБВ показывают, что взаимодействие атмосферных осадков с дисперсной фазой радиоактивного загрязнения помещений объекта «Укрытие» приводит к образованию жидких радиоактивных отходов. Это происходит как при осаждении аэрозольных частиц на дождевых каплях, так и на каплях туманов, которые из внешней среды проникают в подкровельное пространство и помещения через неплотности и щели объекта «Укрытие». В обводненных аэрозолях тотчас начинается процесс перехода радионуклидов из твердой фазы в жидкую.

Известно также, что вследствие атмосферных осадков и конденсации влаги на нижних отметках объекта «Укрытие» перманентно существует зеркало воды площадью около 1000 м², рассредоточенное по ряду помещений. Аэрозоли, оседающие на водные поверхности, также растворяются. При этом часть радионуклидов переходит в состав истинных растворов, а часть остается в составе коллоидных частиц. Последние в застойных зонах частично оседают и накапливаются в илах, а частично уходят с блочными водами за пределы объекта «Укрытие». По пути они могут отфильтровываться в различных пористых средах и оставаться там в течение длительного времени, например до полного растворения. Как следует из проведенных экспериментов, растворимость аэрозолей в блочной воде иная, чем в каплях дождя или тумана, т.е. в дистиллированной воде. Это связано с тем, что блочная вода имеет химический состав, зависящий от взаимодействия дистиллированной воды с бетонными конструкциями и другими материалами развала реактора 4-го блока. В образующихся гидрокарбонатных растворах степень растворимости аэрозольных «горячих» частиц в два-три раза выше, чем в дистиллированной воде. Растворимость ²⁴¹Am в дистилляте и ИБВ в 2 – 4 раза выше, чем ²³⁹⁺²⁴⁰Pu (см. табл. 7). Из этого становится понятным процесс обогащения жидких радиоактивных отходов объекта «Укрытие» ²⁴¹Am (отношение ²⁴¹Am/²³⁹⁺²⁴⁰Pu в 2 – 5 раз выше расчетного).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Батий В.Г., Деренговский В.В., Егоров В.В. и др. Расчет доз ингаляционного поступления радионуклидов и внешнего облучения хрусталика глаза, кожи, кистей и стоп β-частицами // Проблемы Чернобиля. – 2000. – Вып. 6. – С. 96 – 103.
2. ICRP Publication 66. Human respiratory tract model for radiological protection // Ann. ICRP. – 1994. – Vol. 24, No 1 – 3.
3. Временные методические рекомендации по расчету эффективной дозы облучения персонала при планировании работ в помещениях 4-го энергоблока ЧАЭС / ОП ЧАЭС. Объект «Укрытие». – Славутич. 2000.
4. Методика оперативного контроля внутреннего облучения персонала объекта «Укрытие». Методические указания. – К.: НИИРЗ АТН Украины, 2000. – 18 с.
5. Методика расчета доз внутреннего облучения персонала объекта «Укрытие» (по результатам оперативного контроля). Методические указания / ОП ЧАЭС. Объект «Укрытие». – Славутич, 2000. – 25 с.
6. Технические предложения по системе контроля внутреннего ингаляционного облучения: (Отчет) / ОП ЧАЭС. Объект «Укрытие». Сост. А. К. Сухоручкин. – ТО. – Инв. № 98. – Славутич. 1999.
7. Отчет по опытной эксплуатации методики расчета доз внутреннего облучения персонала объекта «Укрытие» (по результатам оперативного контроля) / ГСП ЧАЭС. Объект «Укрытие» (ЦРБ). – ТО. – Инв. № 188. – Славутич, 2002. – 34 с.
8. Кашипаров В.А., Йощенко В.И., Зварич С.И. и др. Оценка растворимости чернобыльских радиоактивных аэрозолей при ингаляции // Радиохимия. – 1997. – Т. 39, вып. 1. – С. 77 – 79.
9. Garger E.K., Sazhenyk A.D., Odintsov A.A. et al. Solubility of airborne radioactive fuel particles from the Chernobyl reactor and implication to dose // Radiat. Environ. Biophys. – 2004. – Vol. 43. – P. 43 – 49.
10. Гаргер Е.К., Саженьюк А.Д., Одинцов А.А. и др. Оценка констант скорости растворения in vitro радиоактивных топливных частиц // Радиационная биология. Радиэкология. – 2004. – Т. 44, № 2. – С. 229 – 235.

11. Хан В.Е., Огородников Б.И., Калиновский А.К. и др. Контроль выбросов радиоактивных аэрозолей из объекта «Укрытие» в 2005 г. // Проблемы безопасности атомных электростанций і Чернобиля. – 2006. – Вип. 6. – С. 85 – 95.
12. Норми радіаційної безпеки України (НРБУ-97). – К., 1997. – 121 с.
13. Одинцов А.А., Огородников Б.И. Растворимость радиоактивных аэрозолей объекта «Укрытие». – Чернобыль, 2008. – 16 с. – (Препр. / НАН Украины. ИПБ АЭС; 08-2).
14. Ключников А.А., Краснов В.А., Рудько В.М., Щербин В.Н. Объект «Укрытие»: 1986 – 2006. – Чернобыль: Ин-т проблем безопасности АЭС НАН Украины, 2006. – 168 с.
15. Одинцов А.А., Хан В.Е., Краснов В.А. и др. Трансурановые элементы в жидких радиоактивных отходах объекта «Укрытие» // Радиохимия. – 2009. – Т. 51, № 4. – С. 337 – 343.
16. Кутьков В.А. Радионуклидное загрязнение воздушной среды в результате аварии на Чернобыльской АЭС и облучение легких // Патология органов дыхания у ликвидаторов аварии на Чернобыльской АЭС / А. Г. Чучалин, А. Л. Черняев, К. Вуазен. – М.: Грантъ, 1998. – С. 10 – 43.
17. Кутьков В.А., Муравьев Ю.Б., Арефьева З.С., Комарицкая О.И. «Горячие частицы» – взгляд спустя семь лет после аварии на Чернобыльской АЭС // Пульмонология. – 1993. – № 4. – С. 10 – 19.
18. Кутьков В.А., Муравьев Ю.В. Дозиметрия внутреннего излучения «горячих» топливных частиц Чернобыльской аварии // Мед. радиол. – 1994. – № 4. – С. 4 – 9.
19. Кутьков В.А., Погодин Р.И., Скрыбин А.М. Облучение жителей Гомельской области, связанное с ингаляцией «чернобыльских топливных частиц» // Радиация и риск. – 1996. – № 7. – С. 131 – 139.
20. Кутьков В.А., Дементьев С.М., Гусев И.А. Дозы внутреннего облучения лиц, участвовавших в апреле – мае 1986 г. в ликвидации последствий аварии на Чернобыльской АЭС // Мед. радиол. – 1996. – № 3. – С. 24 – 31.

ВИВЧЕННЯ РОЗЧИННОСТІ АЕРОЗОЛІВ ОБ'ЄКТА «УКРИТТЯ» В РІДИНАХ РІЗНОГО ХІМІЧНОГО СКЛАДУ

О. О. Одинцов, Б. І. Огородников

Визначено ступінь і швидкість розчинності радіоактивних аерозолів, відібраних у 2005 та 2007 р. із системи «Байпас» об'єкта «Укриття» в дистильованій воді, імітаторах легеневої рідини, імітаторові «блокової» води та соляній кислоті з концентрацією 0,1 моль/л. Показано, що ступінь розчинності радіонуклідів ^{90}Sr , ^{137}Cs , $^{238,239,240}\text{Pu}$ і ^{241}Am залежить від хімічного складу рідини. Кінетика розчинності ^{90}Sr , ^{137}Cs добре описується двоекспоненціальною моделлю.

Ключові слова: радіоактивні аерозолі, розчинність, радіонукліди, об'єкт «Укриття».

THE STUDY OF SOLUBILITY OF OBJECT «UKRYTTYA» AEROSOLS IN LIQUIDS OF DIFFERENT CHEMICAL COMPOSITION

O. O. Odintsov, B. I. Ogorodnikov

A degree and speed of solubility of the radioactive aerosols selected in 2005 and 2007 from the system «Bypass» of object «Ukryttya» in the distilled water, imitators of pulmonary liquid, imitator of «sectional» water and muriatic acid with the concentration 0.1 clothes were research. It is rotined that degree of solubility of radionuclides of ^{90}Sr , ^{137}Cs , $^{238,239,240}\text{Pu}$ and ^{241}Am depends on chemical composition of liquid. Kinetics of solubility of ^{90}Sr , ^{137}Cs is well described by a two exponential model.

Keywords: radioactive aerosols, solubility, radionuclide, object «Ukryttya».

Поступила в редакцию 12.01.11