

**ОЦЕНКА СТЕПЕНИ РАСТВОРЕНИЯ РАДИОАКТИВНЫХ АЭРОЗОЛЬНЫХ ЧАСТИЦ  
ИЗ ОБЪЕКТА «УКРЫТИЕ»****Е. К. Гаргер, А. А. Одинцов, В. К. Шинкаренко***Институт проблем безопасности АЭС НАН Украины, Чернобыль*

В экспериментах *in vitro* исследовано выщелачивание радионуклидов из радиоактивных аэрозольных частиц, отобранных в различных помещениях объекта «Укрытие» в растворе, имитирующем легочную жидкость и 0,1 моль/л HCl. Методом автордиографии проведена оценка активности аэрозольных «горячих» частиц и ее изменений в ходе процесса растворения. Показано, что степень выщелачивания радионуклидов в растворе-имитаторе легочной жидкости уменьшается в последовательности  $^{137}\text{Cs} \gg ^{90}\text{Sr} > ^{239,240}\text{Pu} \approx ^{241}\text{Am}$ . Степень последующего экстрагирования радионуклидов из аэрозольных «горячих» частиц раствором 0,1 моль/л HCl изменяется в ряду  $^{241}\text{Am} \approx ^{90}\text{Sr} > ^{239,240}\text{Pu} \approx ^{137}\text{Cs}$ .

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

**Введение**

Высокая биологическая опасность радиоактивных аэрозолей чернобыльского генезиса в значительной мере обусловлена присутствием  $\alpha$ -излучающих долгоживущих трансурановых элементов (ТУЭ). Наиболее значимыми с точки зрения внутреннего облучения персонала при ингаляционном поступлении являются микронные и субмикронные топливные частицы со средним медианным диаметром 3 – 4 мкм, концентрация которых при выполнении работ в помещениях объекта «Укрытие» может превышать допустимые значения до  $10^4$  раз [1].

Хорошо известно, что поведение ингалированных радиоактивных веществ в организме определяется соотношением процессов их удержания, перераспределения и выведения. Время удержания на месте осаждения и степень доступности материала для перераспределения в другие ткани напрямую определяется скоростью и полнотой растворения. Последующая доза облучения зависит от распределения радиоактивных веществ в теле и времени экспозиции для различных тканей. При моделировании дозы Международная комиссия по радиологической защите (МКРЗ) [2] рекомендует использование экспериментально определенных коэффициентов растворимости. Учет параметров удельного поглощения радиоактивных веществ дает лучшие оценки дозы, чем использование стандартных значений МКРЗ для классификации радиоактивных веществ по скорости растворения - F (быстро), M (умеренно) и S (медленно). Прямая связь коэффициентов выщелачивания *in vitro* и скоростей растворения в экспериментах с лабораторными животными была показана в ряде работ [3 - 5].

Исследованиям биологической доступности радионуклидов из «горячих» частиц чернобыльского происхождения посвящено ряд работ [6 - 11]

Воздействие 0,8-процентного раствора хлорида натрия, имитирующего среду альвеолярной жидкости легких, на образцы мелкодисперсного выброса, отобранные в виде мазков из помещений объекта «Укрытие» на отметке +43,0 м и «горячих» частиц, отобранные из грунта и графитовой крошки из внутренних помещений разрушенного 4-го блока, исследовано ранее [6]. В работе [7] приведены данные перехода радионуклидов из аналогичных мазков в раствор бикарбоната натрия с pH 7,8 при температуре 37 °C.

Константы скорости выщелачивания  $^{137}\text{Cs}$  и суммы  $\alpha$ -излучающих радионуклидов из образцов, отобранных в помещениях объекта «Укрытие», в растворе Gamble-Ringer'a определены в [8]. При этом в раствор переходило около 70 %  $^{137}\text{Cs}$ , константа выщелачивания для этого радионуклида составляла  $0,002 \pm 0,001 \text{ сут}^{-1}$ , в то время как для суммарной  $\alpha$ -активности эта константа оказалась равной  $0,005 \pm 0,002 \text{ сут}^{-1}$ .

Однако исследование поведения аэрозольных «горячих» частиц в том же растворе Gamble [9,10] показало, что степень перехода радионуклидов в раствор уменьшается в ряду  $^{137}\text{Cs} > ^{90}\text{Sr} \gg ^{239,240}\text{Pu} \geq ^{241}\text{Am}$ , что явно не соответствует данным работы [8]. Вместе с тем необходимо отметить, что и в работе [9] были обнаружены отдельные частицы, поведение которых не укладывалось в приведенное выше соотношение.

Целью данной работы является изучение степени и скорости растворения в имитаторах биологических жидкостей аэрозольных «горячих» частиц, отобранных в различных местах объекта «Укрытие», что позволит уточнить оценки дозовых нагрузок на персонал за счет внутреннего облучения при ингаляционном поступлении радионуклидов.

В отличие от предыдущих работ [6 - 11] поставлена задача радиографического контроля активности отдельных частиц до и после их растворения.

### Материалы и методика эксперимента

Отобранные для исследований аэрозольные фильтры, содержащие «горячие» частицы, можно разделить на три типа (табл. 1). Пробы типа I были отобраны в локальной зоне объекта «Укрытие», второго – в сквозном вертикальном проеме в месте примыкания облицовки южной стены машинного зала к облицовке кровли вдоль ряда "А" в пределах отметок +36,0 ÷ 37,0 на участке между осями 41÷49, третьего - в помещении 406/2 блока Б. Аэрозольные частицы типа III были отобраны с помощью импактора РМ-10, производящего сортировку частиц по их аэродинамическим диаметрам в процессе отбора. Отметим, что пробы 1 – 2 и 3 - 4 представляют собой фрагменты, вырубленные из соответствующего фильтра после его радиографии. Это позволило выбрать участки с характерным распределением частиц по активности. Полученные фрагменты помещали в пластиковые кассеты между двумя капроновыми мембранными фильтрами с диаметром пор 0,22 мкм (рис. 1). Растворение аэрозольных частиц в имитаторах биологических жидкостей проводили в статических условиях.

Таблица 1. Условия отбора проб аэрозолей

Номер и шифр пробы	Установка	Место отбора	Дата отбора	Размер частиц, мкм	Материал фильтра	Суммарная β-активность, Бк
Тип I						
1	Grad	юг локальной зоны (h = 1,8 м)	16 –21.11. 2001 г.	1 частица –24 мкм, остальные < 10*	ткань Петрянова	175
2				1 частица –18 мкм, остальные < 10		114
Тип II						
3	Sessya	подкровельное пространство машинного зала	11 –15.10. 2002 г.	< 10* мкм	стекловолокно	71
4				< 3 - 5* мкм		32
Тип III						
5	PM-10	помещение 406/2 отметка + 12,5 м	20 - 30.10. 2002 г.	2,3 – 4,9	стекловолокно	37
6				1,4 – 2,3		43
7				0,8 – 1,4		19

\* Минимальные размеры для топливных частиц, вычисленные по данным автордиографии.

Радиографические исследования воздушных фильтров проводили с использованием медицинской рентгеновской пленки высокой чувствительности CP-BU-new фирмы Agfa. Авторадиографические изображения фрагментов, находящихся внутри кассет, получали пу-

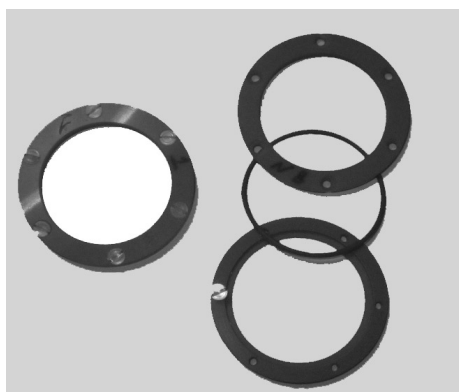


Рис. 1. Фотография кассеты для изучения растворения аэрозольных частиц в статических условиях.

тем поджатия к поверхности мембранных фильтров с обеих сторон кассеты кружочков фотопленки, вырубленных в темноте. В зависимости от активности фрагмента время экспозиции варьировалось от 14 до 32 сут, условия получения радиограмм до и после растворения для данного фрагмента были идентичными. Использовались стандартные рецепты проявляющего и фиксирующего растворов. Цифровые денситограммы пятен получали путем сканирования радиографических изображений в режиме «на просвет» или «на отражение» с помощью сканера Epson perfection-1670. Измерение диаметров пятен на заданном уровне почернения и их суммарной оптической плотности проводили с помощью пакета обработки изображений Image-Pro Plus 5.0.

Из воздушных фильтров, принадлежащих к типу I и отобранных на ЧАЭС в 2002 г., после радиографии были вырезаны фрагменты диаметром 10 мм, содержащие отдельные «горячие» частицы. После повторной радиографии были взяты фрагменты фильтров, содержащие только одну частицу и имеющие низкий уровень фоновой засветки. Суммарная  $\beta$ -активность отобранных частиц была определена с помощью низкофонового пропорционального счетчика LB-720 (Berthold) непосредственно перед экспериментом. Из этих частиц и была сформирована линейка «горячих» частиц известной активности.

Наряду с экспозицией кассет с фрагментами фильтров проводили экспозицию линейки «горячих» частиц с известной активностью. Это позволило получить коэффициенты калибровочной зависимости «активность частицы - интегральная оптическая плотность пятна» и определить активности отдельных частиц на фрагментах фильтра по параметрам их автордиографических пятен [12, 13]. Математическая обработка полученных данных была выполнена в среде пакета Statistica-5.5.

В данной работе для имитации легочной жидкости применяли раствор, химический состав которого приведен в последней колонке табл. 2. По своим составляющим он аналогичен имитаторам легочной жидкости (ИЛЖ), используемым в экспериментах *in vitro* при изучении растворения аэрозольных частиц [11, 14]. Основным компонентом данного водного раствора является хлорид натрия. В нем содержатся также гидрокарбонат натрия и другие компоненты. Свежеприготовленный раствор имеет слабощелочную среду с рН 8,5.

Таблица 2. Состав ИЛЖ, моль/л

Компонент	Serum lung fluid SLF [14]	Модифицированная SLF [11]	ИЛЖ (настоящая работа)
KCl	0,004	0,004	0,004
NaCl	0,145	0,145	0,145
MgCl	0,001	0,001	0,001
NaHCO <sub>3</sub>	0,024	0,024	0,024
Na <sub>3</sub> Citrate	0,0003	0,0003	0,0003
NaAcetate	0,007	0,007	0,007
CaCl <sub>2</sub>	0,0025	0,0013	0,0025
Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	0,0005	0,0005	-
Na <sub>2</sub> HPO <sub>4</sub>	0,002	0,001	-

Кассеты с аэрозольными фильтрами устанавливали на дно емкостей из полиэтилена и заливали по 30 мл свежеприготовленного раствора ИЛЖ. Через заданные промежутки времени (1-й раз через 7 сут, 2 и 3-й через 14 сут) раствор ИЛЖ отбирали полностью и в емкости добавляли по 30 мл свежего ИЛЖ. Суммарное время экспозиции 35 сут. Содержание <sup>137</sup>Cs определяли в каждой порции выщелачивающего раствора. Учитывая низкие

активности  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239+240}\text{Pu}$  и  $^{241}\text{Am}$  в растворах ИЛЖ, полученные нами в предыдущих работах [9, 10], определение этих радионуклидов проводили из объединенной пробы за 35 сут экспозиции.

Для определения степени растворения «горячих» частиц в растворе, имитирующем среду желудочного сока, использовали 0,1 моль/л HCl. После окончания экспозиции «горячих» частиц в растворе ИЛЖ кассеты с аэрозольными фильтрами промывали в дистиллированной воде и заливали 30 мл 0,1 моль/л HCl. По истечении 48 ч раствор отбирали на  $\gamma$ -спектрометрические измерения и последующий радиохимический анализ.

После завершения растворения «горячих» частиц в ИЛЖ и 0,1 моль/л HCl в фильтрах измеряли остаточную активность  $^{137}\text{Cs}$ , проводили сеанс автордиографии, затем аэрозольные фильтры озоляли и определяли содержание  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239+240}\text{Pu}$  и  $^{241}\text{Am}$  в нерастворившемся остатке. За исходную активность  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239+240}\text{Pu}$  и  $^{241}\text{Am}$  проб брали сумму активностей выщелачивающих растворов и нерастворившегося остатка.

Гамма-спектрометрические измерения активностей  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{154}\text{Eu}$  и  $^{241}\text{Am}$  в исходных фрагментах аэрозольных фильтров и выщелачивающих растворах выполняли с помощью полупроводникового спектрометра, включающего детектор из сверхчистого германия GMX-30190-P-S фирмы ORTEC и анализатор WALKLAB фирмы SILENA.

Выделение  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239+240}\text{Pu}$  и  $^{241}\text{Am}$  из выщелачивающих растворов и аэрозольных фильтров было проведено радиохимическими методами. Активность  $^{90}\text{Sr}$  определяли  $\beta$ -радиометрическими измерениями карбоната стронция после выделения по осадительной методике. Выделение и концентрирование  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239+240}\text{Pu}$  и  $^{241}\text{Am}$  производили по ионообменной методике [15]. Активность плутония и америция определяли с помощью  $\alpha$ -спектрометрии.

Альфа-спектрометрические измерения выполняли на восьмиканальном  $\alpha$ -спектрометре фирмы EG&G ORTEC OCTETE PC с полупроводниковыми кремниевыми детекторами серии BU-017-450-100 ULTRA с эффективностью регистрации 25 %. Собственный фон для энергий выше 3 МэВ не более 1 имп/ч.

### Результаты исследований и их обсуждение

Исходные автордиограммы ячеек, полученные до растворения «горячих» частиц, изображены на рис. 2. Первые три отобранных фрагмента содержат крупные высокоактивные частицы, четвертый – много мелких частиц, образцы 5 - 7 содержат фрагменты фильтров с различных ступеней импактора. В табл. 1 приведены диапазоны аэродинамических диаметров частиц, оседающих на данных ступенях согласно техническим характеристикам импактора. Большинство радиорафических пятен образцов 5 - 7 представляют собой суперпозицию пятен от многих близкорасположенных «горячих» частиц малой активности, отложенных на стекловолоконном фильтре под дюзой импактора. Для таких комбинированных пятен изложенная выше методика радиорафического определения активности неприменима.

Использование автордиографических методов позволяет оценить степень неоднородности фильтра и выбрать характерные фрагменты для последующего растворения. Помимо этого радиография позволяет получить информацию о дисперсии активностей «горячих» частиц, представленных на фильтре или его фрагменте. На рис. 3 приведены автордиограммы проб 1 и 2 и результаты определения активностей отдельных «горячих» частиц, вычисленные по параметрам их пятен. Здесь же приведена оценка минимальных размеров частиц, исходя из предположения об их топливном составе ( $A_{\text{уд}} = 2,48 \cdot 10^9$  Бк/г, вычислено согласно данным [16]). Видно, что основной вклад в суммарную активность фрагмента вносят несколько наиболее крупных частиц.

На рис. 4 попарно приведены автордиограммы исследуемых аэрозольных фильтров до и после растворения в растворах ИЛЖ и 0,1 моль/л HCl. Условия получения радиограмм (время экспозиции, режим проявления и сканирования) идентичны. Представленные автордиограммы наглядно свидетельствуют о том, что в процессе растворения количество

мелких частиц значительно снизилось, а на фильтрах 3 и 4 они практически полностью растворились. Крупные частицы более устойчивы к воздействию ИЛЖ и 0,1 моль/л HCl. Хорошо видно, что после растворения линейные размеры соответствующих пятен «горячих» частиц значительно уменьшились, однако активности некоторых пятен изменились по-разному (пары пятен отмечены стрелками). Это свидетельствует о существенном снижении активности «горячих» частиц в процессе растворения, поскольку диаметр авторадиографического пятна пропорционален активности, а также о неоднородности физико-химических свойств отдельных частиц. Кроме растворения следует отметить смещение ряда частиц в процессе растворения, что затрудняет соотнесение соответствующих изображений.

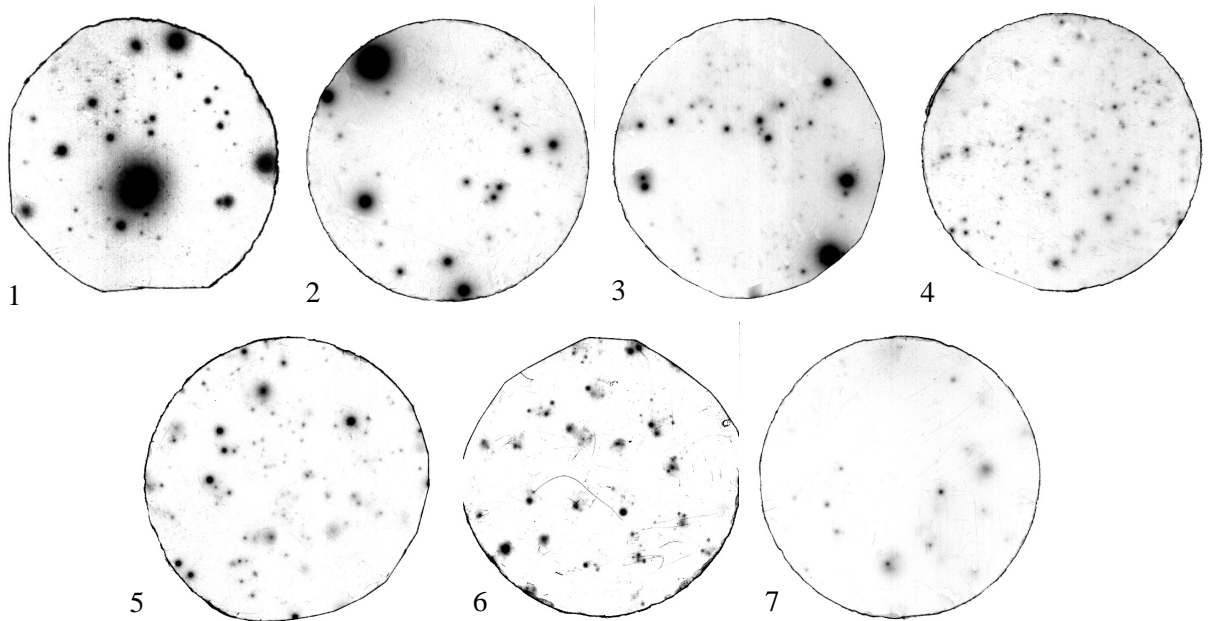
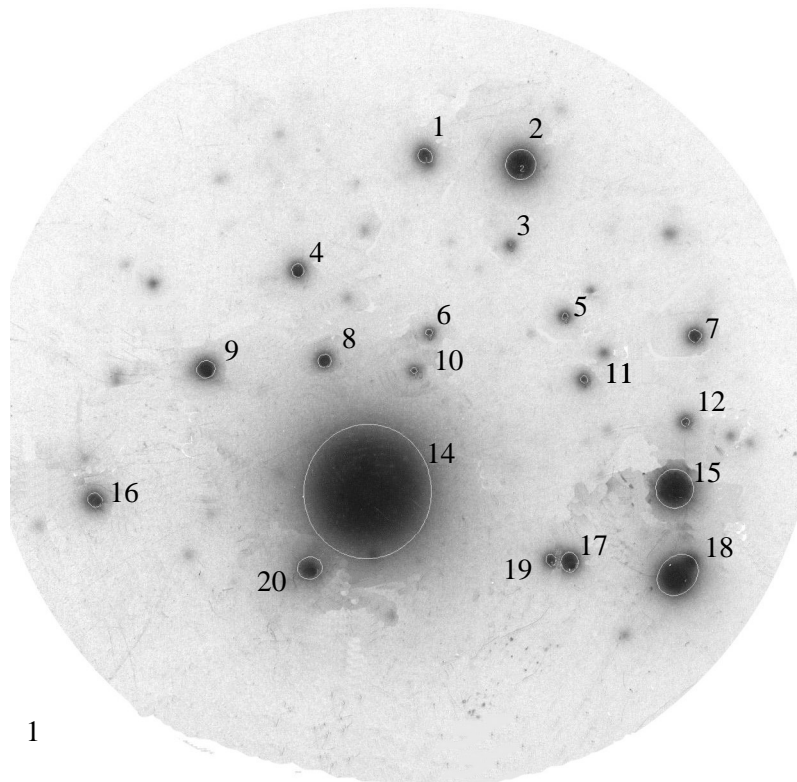


Рис. 2. Авторадиограммы аэрозольных фильтров перед растворением (номера изображений соответствуют номерам фрагментов в таблице 1).

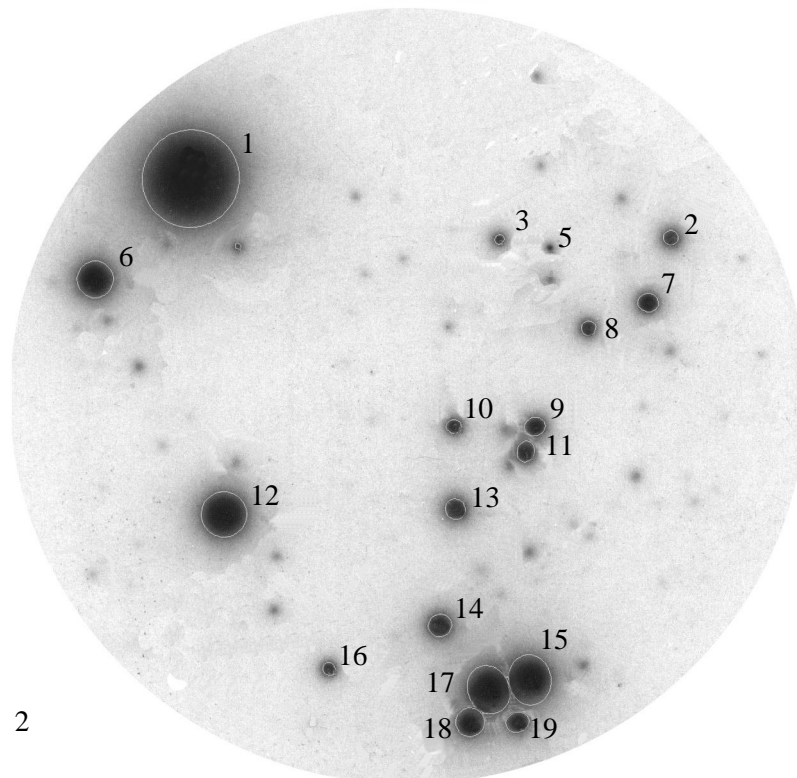
Исходная активность радионуклидов  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{154}\text{Eu}$ ,  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239+240}\text{Pu}$  и  $^{241}\text{Am}$  в аккумулярованных на отобранных аэрозольных фильтрах «горячих» частицах, приведена в табл. 3. Все «горячие» частицы, независимо от места отбора, содержат продукты деления и ТУЭ - плутоний и америций. Содержание  $^{154}\text{Eu}$ , превышающее минимально детектируемую активность, определено только в двух пробах с наиболее крупными «горячих» частицах и в выщелачивающих растворах не определялось.

Наличие в «горячих» частицах  $^{90}\text{Sr}$  и ТУЭ свидетельствует о том, что они содержат облученное топливо 4-го блока ЧАЭС. Для оценки степени фракционирования радионуклидов в топливной матрице «горячих» частиц рассчитаны отношения между активностями различных радионуклидов. В качестве реперных радионуклидов взяты  $^{239}\text{Pu} + ^{240}\text{Pu}$ , так как они являются продуктами реакций  $^{238}\text{U}(n, \gamma)^{239}\text{U}(\beta)^{239}\text{Np}(\beta)^{239}\text{Pu}(n, \gamma)^{240}\text{Pu}$  и наиболее прочно связаны с урановой матрицей «горячих» частиц. В табл. 4 приведено отношение активностей  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{238}\text{Pu}$  и  $^{241}\text{Am}$  к активности  $^{239+240}\text{Pu}$  и отношение активностей  $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$ . Соотношения между радионуклидами  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Am}$  и  $^{239+240}\text{Pu}$  в аэрозольных «горячих» частицах в целом хорошо согласуются с расчетными значениями (см. последнюю строку таблицы) по их наработке для топлива 4-го блока ЧАЭС на момент аварии с учетом распада ко времени измерений и погрешности определения.

Сравнение отношений активностей  $^{137}\text{Cs}/^{239+240}\text{Pu}$ ,  $^{90}\text{Sr}/^{239+240}\text{Pu}$  и  $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$  для аэрозолей, отобранных в помещении 406/2 и за пределами объекта «Укрытие», свидетельствует о существенных отличиях радионуклидного состава аэрозолей разного типа.



№	А, Бк	% от Σ	d min, мкм
14	164,4	81,3	23,3
18	9,5	4,7	9,0
15	8,3	4,1	8,6
2	4,9	2,4	7,2
20	2,7	1,3	6,0
17	1,9	0,9	5,2
9	1,8	0,9	5,2
16	1,3	0,6	4,6
1	1,2	0,6	4,5
8	1,1	0,5	4,4
7	1,0	0,5	4,3
4	1,0	0,5	4,2
19	0,8	0,4	4,0
12	0,5	0,2	3,4
11	0,5	0,2	3,3
5	0,4	0,2	3,2
6	0,4	0,2	3,1
10	0,4	0,2	3,1



№	А, Бк	% от Σ	d min, мкм
1	77,1	62,7	18,1
15	12,3	10,0	9,8
12	12,0	9,8	9,7
17	11,7	9,5	9,6
6	7,8	6,3	8,4
18	4,3	3,5	6,9
14	2,9	2,4	6,0
19	2,5	2,0	5,8
13	2,3	1,9	5,6
7	2,2	1,8	5,5
9	2,1	1,7	5,5
11	2,0	1,6	5,4
2	1,3	1,1	4,6
10	1,2	1,0	4,6
8	1,2	1,0	4,5
16	1,0	0,8	4,2
3	0,7	0,6	3,7
4	0,4	0,3	3,1
5	0,1	0,1	2,0

Рис. 3. Радиограммы фрагментов фильтров 1 и 2, активности отдельных «горячих» частиц и их вклад в суммарную активность, оценка минимальных размеров «горячих» частиц.

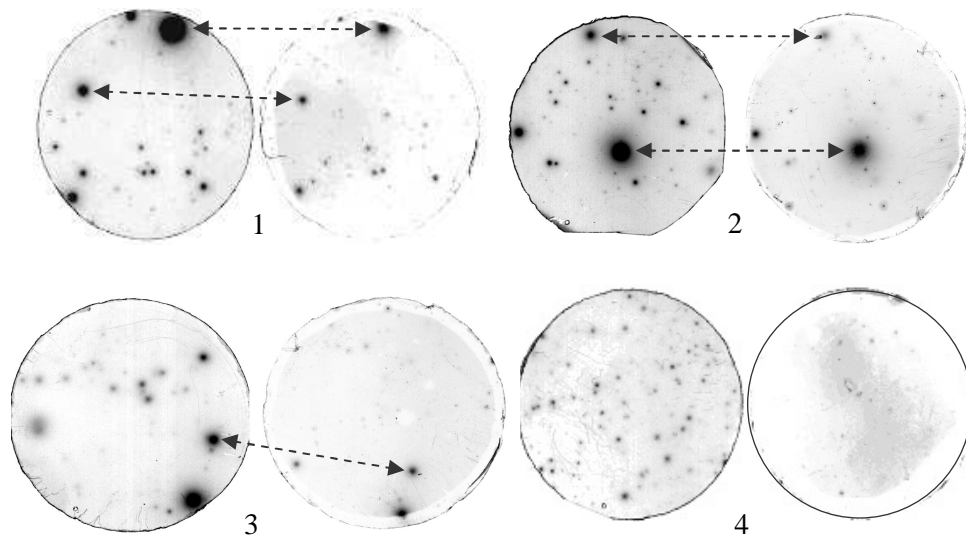


Рис. 4. Авторадиограммы фрагментов аэрозольных фильтров 1 - 4 до и после обработки в растворах ИЛЖ и 0,1Н HCl. Стрелками отмечены пятна, соответствующие одной и той же частице до и после экстракции.

Таблица 3. Содержание радионуклидов в аэрозольных «горячих» частицах, Бк/пробу

Номер пробы	$^{137}\text{Cs}$	$^{154}\text{Eu}$	$^{241}\text{Am}$	$^{90}\text{Sr}$	$^{238}\text{Pu}$	$^{239+240}\text{Pu}$
1	$83 \pm 8$	$0,75 \pm 0,19$	$1,6 \pm 0,2$	$60 \pm 8$	$0,58 \pm 0,11$	$1,2 \pm 0,2$
2	$60 \pm 6$	$0,37 \pm 0,17$	$1,1 \pm 0,2$	$48 \pm 9$	$0,41 \pm 0,11$	$0,83 \pm 0,19$
3	$26 \pm 3$	----*	$0,57 \pm 0,12$	$19 \pm 5$	$0,19 \pm 0,04$	$0,39 \pm 0,09$
4	$19 \pm 2$	----	$0,13 \pm 0,04$	$4,5 \pm 1,1$	$0,035 \pm 0,009$	$0,084 \pm 0,022$
5	$36 \pm 4$	----	$0,077 \pm 0,025$	$4,8 \pm 0,9$	$0,010 \pm 0,003$	$0,029 \pm 0,008$
6	$44 \pm 4$	----	$0,071 \pm 0,022$	$4,4 \pm 1,2$	$0,013 \pm 0,004$	$0,031 \pm 0,009$
7	$19 \pm 2$	----	$0,036 \pm 0,011$	$3,8 \pm 1,3$	$0,008 \pm 0,003$	$0,017 \pm 0,008$

- Менее минимально детектируемой активности.

Таблица 4. Отношение активностей радионуклидов к активности  $^{239+240}\text{Pu}$  и соотношение  $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$ , отн. ед.

Номер пробы	$^{137}\text{Cs}/^{239+240}\text{Pu}$	$^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$	$^{90}\text{Sr}/^{239+240}\text{Pu}$	$^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$	$^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$
1	69	1,33	50	0,48	1,38
2	72	1,32	58	0,49	1,25
Среднее	71	1,33	54	0,49	1,31
3	68	1,46	49	0,49	1,39
4	222	1,54	54	0,42	4,15
Среднее	145	1,5	52	0,46	2,8
5	1320	2,85	152	0,34	7,44
6	1410	2,29	141	0,42	9,93
7	1120	2,11	223	0,47	5,03
Среднее	1280	2,41	172	0,41	7,47
Расчет	67	1,54	56	0,50	1,20

Следует отметить, что аэрозольные частицы, отобранные в помещении 406/2, обогащены  $^{137}\text{Cs}$  относительно  $^{239+240}\text{Pu}$  в 15 – 20 раз и в 2 – 4 раза по  $^{90}\text{Sr}/^{239+240}\text{Pu}$ . Для соотношения радионуклидов  $^{137}\text{Cs}$  -  $^{90}\text{Sr}$  также наблюдается шестикратное превышение содержания  $^{137}\text{Cs}$  относительно расчетных значений. В работе [17] определено, что для аэрозолей с

аэродинамическим диаметром 0,6 – 2 мкм, отобранных из подреакторных помещений 207/4 и 318/2 объекта «Укрытие» в 2006 - 2008 гг., среднее значение отношения объемных активностей аэрозолей со всеми долгоживущими β-излучателями к объемной активности аэрозолей с α-излучателями составило  $380 \pm 60$  при расчетном значении для топливных «горячих» частиц  $\Sigma\beta(^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y} + ^{137}\text{Cs} + ^{241}\text{Pu}) / \Sigma\alpha(^{238}\text{Pu} + ^{239}\text{Pu} + ^{240}\text{Pu} + ^{241}\text{Am} + ^{244}\text{Cm})$ , равном 64,7 на январь 2007 г. Средневзвешенное отношение суммарной β-активности к суммарной α-активности  $\Sigma\beta(^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y} + ^{137}\text{Cs}) / \Sigma\alpha(^{238}\text{Pu} + ^{239+240}\text{Pu} + ^{241}\text{Am})$  аэрозолей из помещения 406/2 (диапазон размера частиц 0,8 - 4,9 мкм) составляет  $420 \pm 40$ , что хорошо согласуется с данными работы [17].

Содержание  $^{137}\text{Cs}$  в растворе ИЛЖ и степень выщелачивания  $^{137}\text{Cs}$  из «горячих» частиц представлены в табл. 5. Основное количество  $^{137}\text{Cs}$  от 2 до 36 % в зависимости от размера и типа аэрозольных «горячих» частиц растворяется в течение первых 7 сут. В последующие периоды скорость растворения значительно снижается. Растворимость «горячих» частиц, отобранных в локальной зоне объекта «Укрытие» (тип I), на порядок ниже, чем аэрозолей из внутренних помещений объекта «Укрытие».

Таблица 5. Содержание  $^{137}\text{Cs}$  (Бк/пробу) в растворе ИЛЖ и степень выщелачивания, % от исходного содержания

Номер пробы	Активность $^{137}\text{Cs}$ в растворе ИЛЖ							
	1 (7 сут.)		2 (14 сут.)		3 (14 сут.)		Σ (35 сут.)	
	Бк	%	Бк	%	Бк	%	Бк	%
1	$1,9 \pm 1,1$	2,3	$1,0 \pm 0,2$	1,2	МДА	---	2,9	3,5
2	$1,0 \pm 1,0$	1,6	МДА	---	МДА	---	1,0	1,6
3	$5,1 \pm 1,0$	19	$0,4 \pm 0,2$	1,7	$2,3 \pm 1,2$	8,8	7,8	29
4	$6,8 \pm 1,0$	36	МДА	---	МДА	---	6,8	36
5	$11 \pm 1$	31	$0,9 \pm 0,3$	2,5	$1,5 \pm 0,5$	4,3	13	38
6	$11 \pm 1$	25	$4,9 \pm 1,0$	11	$1,4 \pm 0,6$	3,3	17	39
7	$5,6 \pm 1,1$	29	$0,8 \pm 0,3$	4,2	$0,5 \pm 0,3$	2,6	6,9	36

Степень выщелачивания раствором ИЛЖ  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{239+240}\text{Pu}$  и  $^{241}\text{Am}$  из «горячих» частиц представлена в табл. 6. Степень растворения  $^{238}\text{Pu}$  с учетом погрешности определения равна  $^{239+240}\text{Pu}$  и в таблице не приведена. В зависимости от типа аэрозольных «горячих» частиц в раствор ИЛЖ за 35 сут переходит 1,5 – 7,8 %  $^{90}\text{Sr}$ , 0,53 – 9,0 %  $^{239+240}\text{Pu}$  и 0,42 – 6,4 %  $^{241}\text{Am}$ .

Таблица 6. Степень выщелачивания радионуклидов из аэрозольных «горячих» частиц раствором ИЛЖ (экспозиция 35 сут), % от исходного содержания

Номер пробы	$^{90}\text{Sr}$	$^{239+240}\text{Pu}$	$^{241}\text{Am}$
1	2,2	1,3	0,75
2	1,5	0,53	0,42
3	1,7	1,9	1,1
4	7,8	9,0	6,4
5	5,8	2,2	---
6	4,3	4,5	3,1
7	4,4	1,8	2,2

Аномально высокая степень растворения пробы 4, возможно, связана с физико-химическими свойствами «горячих» частиц при практически одинаковых размерах частиц (см. рис. 3 и 4), не превышающем 5 мкм согласно радиографической оценке. Средние значения степени растворимости частиц трех типов показаны на рис. 5. Без учета пробы 4 степень растворимости радионуклидов в растворе ИЛЖ уменьшается в ряду  $^{137}\text{Cs} \gg ^{90}\text{Sr} > ^{239,240}\text{Pu} \approx ^{241}\text{Am}$ . Аналогичные результаты получены в работе [9] для аэрозолей приземного слоя воздуха г. Припять, отобранных в 1987 г., но степень растворимости аэрозольных «горячих» частиц была значительно ниже:  $^{137}\text{Cs}$  - 12 %,  $^{90}\text{Sr}$  - 3,8 %,  $^{239+240}\text{Pu}$  - 0,54 % и  $^{241}\text{Am}$  - 0,72 %.



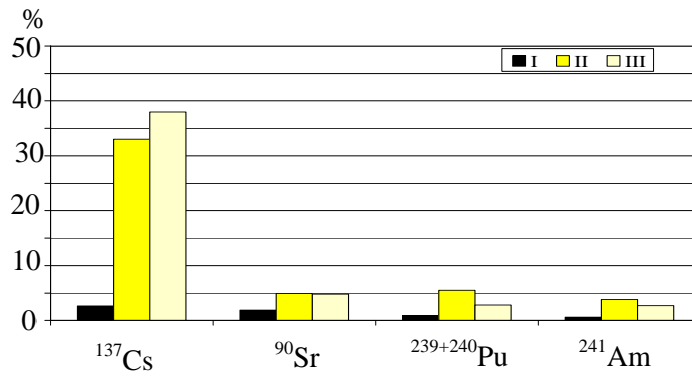


Рис. 5. Средняя степень выщелачивания радионуклидов из аэрозольных «горячих» частиц различных типов раствором ИЛЖ.

Для определения степени экстрагирования «горячих» частиц в 0,1 моль/л HCl после экспозиции кассет с аэрозольными фильтрами в растворе ИЛЖ кассеты промывали дистиллированной водой, подсушивали на воздухе и заливали раствором 0,1 моль/л HCl. В табл. 7 показана степень экстрагирования радионуклидов из «горячих» частиц в растворе 0,1 моль/л HCl. При сравнении данных табл. 6 и 7 видно, что степень растворимости  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{239,240}\text{Pu}$  и  $^{241}\text{Am}$  в растворе ИЛЖ и последующего растворения в 0,1 моль/л HCl кардинально отличаются. В растворе 0,1 моль/л HCl наибольшую степень растворимости имеют стронций и америций, цезий и плутоний растворяются в 2 – 4 раза меньше. В зависимости от размера и места отбора аэрозольных «горячих» частиц в раствор 0,1 моль/л HCl переходит 2 – 74 %  $^{90}\text{Sr}$ , 7 – 58 %  $^{241}\text{Am}$ , 1 – 18 %  $^{137}\text{Cs}$  и 2 – 23 %  $^{239+240}\text{Pu}$ .

Таблица 7. Степень выщелачивания радионуклидов из аэрозольных «горячих» частиц 0,1 моль/л HCl, % от исходного содержания

Номер пробы	$^{137}\text{Cs}$	$^{90}\text{Sr}$	$^{239+240}\text{Pu}$	$^{241}\text{Am}$
1	1,2	4,5	4,7	11
2	2,8	2,0	1,9	7,4
3	11	7,9	4,4	14
4	4,2	21	17	42
5	8,8	60	23	44
6	11	74	16	45
7	18	65	14	58

На рис. 6 показана степень выщелачивания радионуклидов из трех исследованных типов проб в 0,1 моль/л HCl. Степень выщелачивания радионуклидов из аэрозольных «горячих» частиц раствором 0,1 моль/л HCl изменяется в ряду  $^{241}\text{Am} \approx ^{90}\text{Sr} > ^{239,240}\text{Pu} \approx ^{137}\text{Cs}$ .

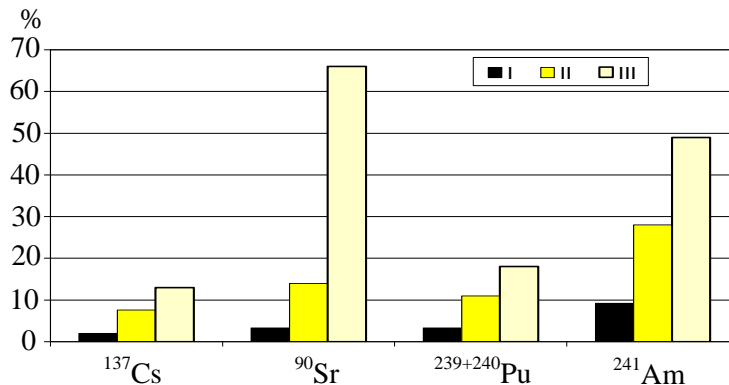


Рис. 6. Средняя степень выщелачивания радионуклидов из аэрозольных «горячих» частиц различных типов раствором 0,1 моль/л HCl.

Процесс растворения «горячих» частиц можно описать кинетическим уравнением первого порядка [9]

$$dA/dt = -k_1A \text{ или } k = -\ln(A_t/A_0)/t,$$

где  $A_t$  – активность радионуклида в момент  $t$  после начала растворения;  $A_0$  – активность радионуклида в начальный момент времени;  $t$  – время растворения;  $k$  – константа скорости выщелачивания (растворения),  $\text{сут}^{-1}$ . Этот подход не учитывает физико-химические характеристики «горячих» частиц и особенности химического поведения радионуклидов цезия, стронция, плутония и америция. Однако он прост и удобен для экспрессной оценки скорости выщелачивания радионуклидов из «горячих» частиц. В табл. 8 приведены константы скорости выщелачивания  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{239+240}\text{Pu}$  и  $^{241}\text{Am}$  из трех типов аэрозолей раствором ИЛЖ. Полученные в данной работе значения констант скорости выщелачивания радионуклидов для «горячих» частиц, отобранных в локальной зоне объекта «Укрытие» (тип I), хорошо согласуются с данными работы [10] (последняя строка табл. 8). Константы выщелачивания радионуклидов из «горячих» частиц, отобранных из помещений объекта «Укрытие» (тип II и III) значительно выше.

Таблица 8. Константы выщелачивания радионуклидов из «горячих» частиц,  $k \cdot 10^{-4} \text{сут}^{-1}$

Тип аэрозоля	$^{137}\text{Cs}$	$^{90}\text{Sr}$	$^{239+240}\text{Pu}$	$^{241}\text{Am}$
I	7,5	5,5	2,6	1,7
II	110	14	16	11
III	140	14	8,1	7,8
г. Припять, 1987 г. [10]	38 (0,36 – 112)	12 (1,5 – 34)	0,89 (0,32 – 6,5)	1,4 (0,24 – 7,9)

На рис. 7 представлена временная зависимость константы скорости выщелачивания для  $^{137}\text{Cs}$ . Видно, что в пределах точности измерений временная зависимость констант скорости выщелачивания для частиц типов II и III совпадает. Это свидетельствует о близости физико-химических свойств частиц, отобранных в помещении 406/2 и машинном зале.

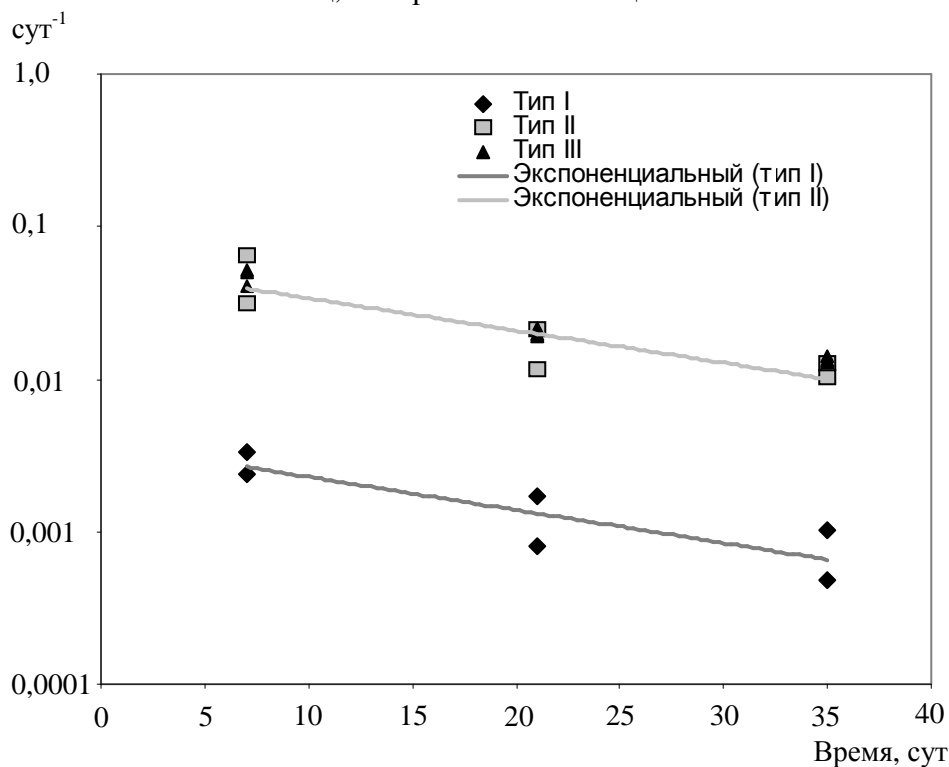


Рис. 7. Зависимость константы скорости выщелачивания  $^{137}\text{Cs}$  в ИЛЖ от времени.

## Выводы

1. Радиографические исследования свидетельствуют о неоднородности распределения отдельных «горячих» частиц по поверхности фильтра, что необходимо учитывать при выборе фрагмента для изучения растворения радиоактивных аэрозолей *in vitro*.

2. Степень выщелачивания радионуклидов из «горячих» частиц определяется как их размером (активностью), так и физико-химическими свойствами, связанными с генезисом частиц. На одном и том же фрагменте могут присутствовать частицы различного генезиса.

3. Степень выщелачивания радионуклидов в растворе имитатора легочной жидкости уменьшается в последовательности  $^{137}\text{Cs} \gg ^{90}\text{Sr} > ^{239,240}\text{Pu} \approx ^{241}\text{Am}$ .

4. Экстракция в имитаторе желудочного сока, проведенная после выщелачивания в ИЛЖ, обнаруживает иную последовательность:  $^{241}\text{Am} \approx ^{90}\text{Sr} > ^{239,240}\text{Pu} \approx ^{137}\text{Cs}$

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. 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.
2. International Commission on Radiological Protection (ICRP), 1994. Human Respiratory Tract Model for Radiological Protection // ICRP. Publication 66.
3. Kanapilly G. M., Raabe O. G., Goh C. H. T., Chimenti R. A.. Measurement of *in vitro* dissolution of Aerosol Particles for Comparison to *in vitro* dissolution in the Lower Respiratory Tract after inhalation // Health Physics Pergamon Press. - 1973. - Vol. 24 (May). - P. 497 - 507.
4. Migloi J. J., Muggenburg B.A., Brooks A. L. A Rapid method for determining the relative solubility of plutonium aerosols // Health Physics. - 1977. - Vol. 33 (November). - P. 449 - 457.
5. Ansoberlo E., Guilmette R.A., Hoover M.D. et al. Application of *in vitro* dissolution tests to different uranium compounds and comparison with *in vivo* data // Radiation Protection Dosimetry. – 1998. - Vol. 79, No 1-4. - P. 33 - 37.
6. Богатов С.А., Боровой А.А., Дворецкий В.И. и др. Исследование устойчивости наиболее радиологически опасных нуклидов в различных формах выброса Чернобыльской аварии. - Москва, 1990. – 17 с. – (Препр. / Ин-т атомной энергии им. И. В. Курчатова; ИАЭ-5022/3).
7. Баяев А.С., Богатов С.А., Быховская Л.И. и др. Расчетно-экспериментальное определение дозовых нагрузок на дыхательную систему при ингаляции «горячих» частиц для персонала, принимавшего участие в работах по ЛПА на ЧАЭС. - Москва, 1992. – 19 с. – (Препр. / Ин-т атомной энергии им. И. В. Курчатова; ИАЭ-5484/14).
8. Kutkov V. A., Komaritskaya O. I. In Vitro solubility of Chernobyl nuclear fuel aerosol with respect to collective behavior of its radionuclides // IRPA9 International Congress on Radiation Protection. - 1996. - Vol. 2. - P. 445 - 447.
9. 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.
10. 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.
11. Каушаров В.А., Йощенко В.И., Зварич С.И. и др. Оценка класса растворимости чернобыльских радиоактивных аэрозолей при ингаляции // Радиохимия. – 1997. – Т. 39, № 1. – С. 77 – 79.
12. Гаргер Е.К., Горковенко Б.Л., Шинкаренко В.К. Об измерении β-активности большого количества «горячих» аэрозольных частиц с помощью автордиографии // Проблемы безопасности атомных электростанций і Чернобиля – 2005. - Вип. 2. - С. 33 - 40.
13. Шинкаренко В.К. К определению активности «горячих» частиц радиографическим методом // Там же. – 2008. – Вип. 9. – С. 130 – 139.
14. Eidson A.F., Griffith W.C. Techniques for yellow cake dissolution studies *in vitro* and their use in bioassay interpretation // Health Physics. – 1984. – Vol. 46, No. 1. – P. 151 – 163.
15. Ageyev V. A., Odintsov O. O., Sajeniouk A. D. Routine radiochemical method for the determination of  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239+240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Am}$  and  $^{244}\text{Cm}$  in environmental samples // J. Radioanal. Nucl. Chem. – 2005. - Vol. 264, No. 2. – P. 337 – 342.

16. Богатов С.А., Боровой А.А., Дубасов Ю.В., Ломоносов В.В. Форма и характеристики частиц топливного выброса при аварии на Чернобыльской АЭС // Атомная энергия. - 1990. - Т. 69, вып. 1. - С. 36 - 40.
17. Бадковский В.П., Ключников А.А., Кравчук Т.А. и др. Мониторинг аэрозольной обстановки в некоторых подреакторных помещениях объекта «Укрытие» // Проблемы безопасности атомных электростанций и Чернобиля. – 2008. – Вып. 10. – С. 99 – 110.

### ОЦІНКА СТУПЕНЯ РОЗЧИНЕННЯ РАДІОАКТИВНИХ АЕРОЗОЛЬНИХ ЧАСТИНОК З ОБ'ЄКТА «УКРИТТЯ»

Е. К. Гаргер, О. О. Одинцов, В. К. Шинкаренко

В експериментах *in vitro* досліджено вилуговування радіонуклідів із радіоактивних аерозольних частинок, відібраних у різних приміщеннях об'єкта «Укриття» в розчині, що імітує легенеvu рідину і в 0,1 моль/л HCl. Методом авторадіографії проведено оцінку активності аерозольних «гарячих» частинок та її змін у процесі розчинення. Показано, що ступінь вилуговування радіонуклідів в імітаторі легеневої рідини зменшується в послідовності  $^{137}\text{Cs} \gg ^{90}\text{Sr} > ^{239,240}\text{Pu} \approx ^{241}\text{Am}$ . Ступінь наступної естракції радіонуклідів з аерозольних «гарячих» частинок розчином 0,1 моль/л HCl змінюється в ряду  $^{241}\text{Am} \approx ^{90}\text{Sr} > ^{239,240}\text{Pu} \approx ^{137}\text{Cs}$ .

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

### ESTIMATION OF THE DEGREE OF DISSOLUTION RADIOACTIVE AEROSOLS PARTICLES FROM OBJECT « UKRYTTYA »

E. K. Garger, A. A. Odintsov, V. K. Shynkarenko

In the experiments of *in vitro* solubility of radioactive aerosols from object « Ukryttya » in solution imitating a pulmonary liquid and 0,1 M HCl. By the method of radioautography the estimation of dispersible and quantitative composition of aerosols is conducted before and after experiments on dissolution of aerosols «hot» particles. It is shown that the degree of solubility of radionuclide in solution of imitator of pulmonary liquid diminishes in the next sequence  $^{137}\text{Cs} \gg ^{90}\text{Sr} > ^{239,240}\text{Pu} \approx ^{241}\text{Am}$ . Degree of leaching of radionuclide from aerosols «hot» particles by solution 0,1 M HCl changes among  $^{241}\text{Am} \approx ^{90}\text{Sr} > ^{239,240}\text{Pu} \approx ^{137}\text{Cs}$ .

*Keywords:* aerosols, autoradiography, solubility, radionuclide, «Ukryttya» object.

Поступила в редакцію 30.06.09