

Е. К. Гаргер¹, А. А. Одинцов¹, В. К. Шинкаренко¹, J. Tschiersch²

¹Институт проблем безопасности АЭС НАН Украины, ул. Кирова, 36а, Чернобыль, 07270, Украина

²Helholtz Zentrum Munchen Deutsches Forschungszentrum für Gesundheit und Umwelt (GmbH)
Ingolstadter Landstr, Neuherberg, Deutschland

ПОВЕДЕНИЕ «ГОРЯЧИХ» АЭРОЗОЛЬНЫХ ЧАСТИЦ ИЗ ОБЪЕКТА «УКРЫТИЕ» В ИМИТАТОРАХ ЛЕГОЧНОЙ ЖИДКОСТИ

В имитаторах легочной жидкости различного состава исследована кинетика растворения радиоактивных аэрозольных частиц, отобранных в локальной зоне объекта «Укрытие». Показано, что на одних и тех же фильтрах наряду с относительно малочисленными высокоактивными топливными частицами присутствует большое число малоактивных пылевых частиц, обогащенных ¹³⁷Cs. Изотопный состав, в частности соотношение ¹³⁷Cs/²³⁹⁺²⁴⁰Pu, а также доля перешедшей в раствор фракции радионуклидов для обоих типов частиц существенно отличаются. Для обогащенных ¹³⁷Cs частиц наблюдается более быстрое и более полное растворение, наибольшая поверхностная плотность таких частиц наблюдается на фильтрах, экспонированных на выходе из подкровельного пространства машинного зала. Характерным отличием данных фильтров являются высокие уровни содержания цинка и титана, аэрозоли которых связаны, по-видимому, с процессами деструкции лакокрасочных покрытий стен машинного зала. Высказано предположение о сепарации по растворимости материала осажденных на окрашенные поверхности горячих частиц под воздействием влаги атмосферного конденсата. Кинетика растворения радионуклидов хорошо описывается двух-экспоненциальной моделью. Не выявлено достоверных отличий параметров растворения в имитаторах легочной жидкости разного состава.

Ключевые слова: радиоактивные аэрозоли, имитаторы легочной жидкости, кинетика растворения, радионуклиды, объект «Укрытие».

Введение

Одним из главных факторов, влияющих на формирование и динамику доз внутреннего облучения различных органов при ингаляционном поступлении радионуклидов в организм, является скорость их поступления из респираторного тракта в кровь с последующим отложением в других органах и тканях. Согласно дозиметрической модели дыхательной системы, рекомендованной МКРЗ [1], данный параметр может модифицировать расчетные значения доз в пределах порядка. Дозиметрическая модель ингаляционного поступления радионуклидов МКРЗ рекомендует классифицировать частицы, в зависимости от скорости их растворения, по трем классам (F – быстро растворимые, M – среднерастворимые и S – медленно растворимые) и предлагает стандартизированные значения величин для перехода радионуклидов в кровь, но рекомендует, при возможности, использовать удельные коэффициенты поглощения, полученные из экспериментов *in vitro* или *in vivo*. Хотя данные *in vivo* являются более предпочтительными, определение скорости растворения *in vitro*, как правило, менее трудоемко, оно может быть использовано для получения промежуточных значений между стандартными значениями и параметрами поглощения *in vivo*.

Основная проблема состоит в том, что процесс растворения ингалированных частиц в легком зависит не только от их химического состава, который тоже может быть весьма неопределенным, но и ряда физических свойств – степени кристалличности, пористости и т.п., которые во многом определяются условиями образования частиц. Такая неопределенность наблюдается при производстве уранового концентрата, особенно на этапе обжига диураната аммония [2], сходная проблема возникла при изучении растворения «горячих» частиц чернобыльского происхождения [3]. Моделирование *in vitro* поведения частиц такого рода позволяет более точно прогнозировать их воздействие на организм в случае аварийной ингаляции. Проведенные в работе [2] сравнения скоростей растворения урансодержащих концентратов *in vitro* и *in vivo* показали хорошее (в пределах 25 %) соответствие для малорастворимых соединений типа UF₄, UO₂ и U₃O₈ и раствора Gamble в качестве имитатора легочной жидкости.

Изучению кинетики растворения дисперсных урансодержащих материалов и сопутствующих радионуклидов в имитаторах легочной жидкости посвящено большое число работ, часть из которых представлены в обзорах [4 - 6]. Вместе с тем число публикаций о выщелачивании радионуклидов из

© Е. К. Гаргер, А. А. Одинцов, В. К. Шинкаренко, J. Tschiersch, 2013

аэрозольных «горячих» частиц чернобыльского происхождения весьма ограничено, что связано, по-видимому, с низкой концентрацией радионуклидов в воздухе и большой трудоемкостью их анализа, а также неоднородным распределением частиц по поверхности фильтра и их разнородным составом. Так, в работе [3] было показано, что свойства частиц, находящихся на поверхности одного и того же фильтра могут существенно отличаться.

Принимая во внимание предстоящие работы по преобразованию объекта «Укрытие», информация о поведении аэрозольных частиц различной природы в дыхательной системе человека приобретает важное практическое значение для оценки дозовых нагрузок и планирования мероприятий по их снижению. Целью настоящей работы является исследование *in vitro* особенностей растворения радиоактивных аэрозольных частиц из объекта «Укрытие» в различных по составу имитаторах легочной жидкости.

Материалы и методика эксперимента

Отобраны три группы проб, соответствующие трем различным сценариям воздействия респираторных «горячих» частиц (табл. 1). Аэрозольные частицы были отобраны на воздушные фильтры, которые экспонировались в 1988 г. на окраине г. Припять и в 2002 г. вблизи и на выходе из подкровельного пространства объекта «Укрытие». Более подробно условия отбора проб описаны в работах [3, 7, 8].

Радиографические исследования воздушных фильтров проводили с использованием высокочувствительной медицинской рентгеновской пленки фирмы Kodak, согласно методикам, описанным в [9, 10]. Местоположение отдельных «горячих» частиц локализовали, совмещая копию автордиограммы с фильтром, после чего вырубали фрагменты, содержащие либо отдельные одиночные частицы ($d_{фр} = 8$ мм), либо фоновые области, с минимально-возможным содержанием крупных частиц ($d_{фр} = 47$ мм).

Таблица 1. Условия отбора проб аэрозольных частиц [3]

№ сценария	Место отбора и расстояние до объекта «Укрытие»	Дата	Фильтровентиляционная установка	Материал фильтра
1	Выход ¹ из подкровельного пространства машинного зала ¹	03 – 15.10.2002	Sesija, 70 м ³ /ч	Стеклоткань
2	Юг локальной зоны, 50 м	16 – 21.11.2001	Gradient, 500 м ³ /ч	Ткань Петрянова
3	г. Припять, 4 км	09 – 10.05.1988	Тайфун, 5000 м ³ /ч	Ткань Петрянова
		23 – 24.08.1988		

Выбранные фрагменты помещали в кассеты из политетрафторэтилена между двумя капроновыми мембранными фильтрами с диаметром пор 0,22 мкм (рис. 1, а). Выщелачивание проводили в статических условиях при комнатной температуре, согласно [4, 5]. Составы растворов-имитаторов легочной жидкости приведены в табл. 2. Кассеты с фрагментами фильтров располагали вертикально в кюветах из полиметилметакрилата (см. рис.1, б), что позволило избежать образования пузырьков воздуха под мембранными фильтрами и существенно уменьшить объемы рабочих растворов. Для большей части фрагментов экстрагирующий раствор ($V = 25$ см³) меняли через 7 сут, т.е. на 7, 14, 21, 28, 35 и 55-е сутки. Для другой части фрагментов был выбран ряд экспозиций: 1, 3, 8, 15 и 29 сут.

Измерения активности γ -излучающих радионуклидов ¹³⁷Cs и ²⁴¹Am проводили с помощью полупроводникового спектрометра с детектором из сверхчистого германия GMX-30190-P-S фирмы ORTEC.

Общую β -активность фрагментов фильтров, отдельных «горячих» частиц, а также активность счетных образцов после осаждения ⁹⁰Sr измеряли с помощью 16-канального α -, β -мультidetектора IN-20 (Canberra). Альфа-спектрометрические измерения источников плутония и америция производили на восьмиканальном α -спектрометре OSTETE PC фирмы EG&G ORTEC.

¹ Сквозной проем в месте примыкания облицовки стены машинного зала к облицовке кровли вдоль ряда А между осями 41 – 49 на отметке + 36,5 м.

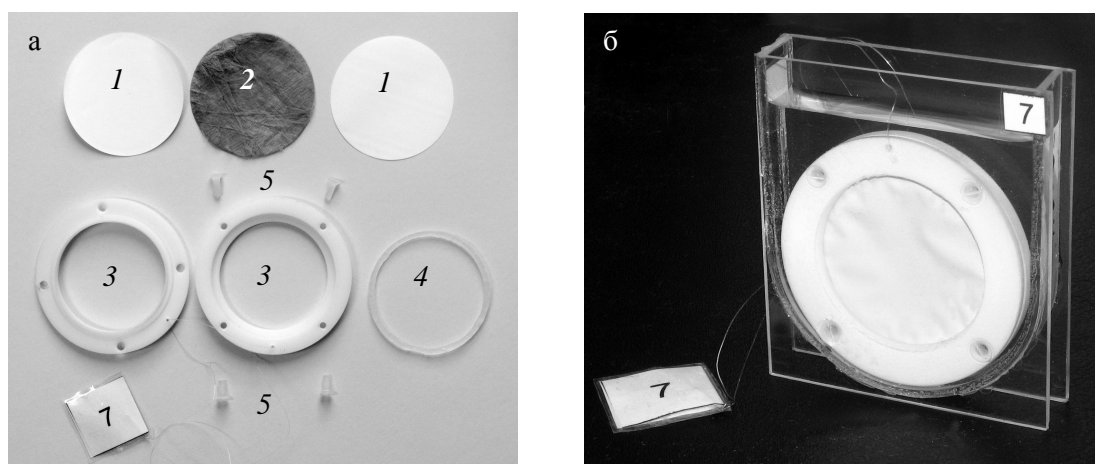


Рис. 1. Оборудование для изучения кинетики растворения «горячих» частиц в имитаторе легочной жидкости.

а – кассета для фильтров: 1 – мембранные фильтры, 2 – исследуемый фрагмент, 3 – оправка-держатель, 4 – уплотнительное силиконовое кольцо, 5 – стягивающие винты; *б* – кассета в растворе.

Таблица 2. Состав растворов-имитаторов легочной жидкости, моль/л

Соль	Модифицированный SLF		Раствор Gamble
	[3]	Настоящая работа	
NaCl	0,145	0,145	0,116
KCl	0,004	0,004	
NH ₄ Cl			0,01
MgCl ₂	0,001	0,001	
NaHCO ₃	0,024	0,024	0,027
Глицин			0,006
L-Цистеин			0,001
Na ₃ -цитрат	0,0003	0,0003	0,0002
Na-ацетат	0,007	0,007	
CaCl ₂	0,0025	0,0012	0,0002
Na ₂ HPO ₄		0,001	
NaH ₂ PO ₄			0,0012
pH		8,2	7,6

зации 2 - 3 недели, это активности порядка $0,01 \div 0,05$ Бк. Дальнейшее увеличение экспозиции приводит к возникновению сплошного фона, что дает основание предполагать наличие большого количества более мелких частиц, слияние автордиографических пятен от которых и порождает фон. Была предпринята попытка разделить частицы по их активностям и отдельно исследовать области фона. С помощью радиографии фильтры были разделены на фрагменты-высечки содержащие крупные и мелкие радиографические пятна. Следует отметить, что разделение было далеко не полным – на фрагментах малого диаметра (5 – 8 мм) кроме отдельных топливных частиц присутствует неко-

² Автордиография позволяет оценить активность частицы, но не ее размер. Но поскольку между диаметром «горячей» частицы и ее активностью существует непосредственная связь $d = \sqrt[3]{\frac{6A}{\pi\rho_A\rho}}$, где A – активность частицы,

ρ_A – удельная активность материала частицы и ρ – его плотность, более активные топливные частицы имеют большие размеры.

Выделение ^{90}Sr , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ и ^{241}Am из выщелачивающих растворов и остатков аэрозольных фильтров после их экстракции было проведено радиохимическими методами. Активность ^{90}Sr определяли по данным β -радиометрических измерений, ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ и ^{241}Am – с помощью α -спектрометрии, ^{137}Cs – γ -спектрометрии. Статистическая обработка проводилась в среде пакета Statistica.

Результаты и их обсуждение

Автордиограммы воздушных фильтров свидетельствуют о существенной неоднородности распределения «горячих» частиц по их поверхности. При этом основная активность приходится на долю нескольких крупных² частиц, находящихся среди большого количества мелких частиц с малой активностью. Возможности автордиографической регистрации мелких частиц ограничены, в нашем случае при временах экспози-

торое фоновое радиоактивное загрязнение ($\leq 10\%$), пропорциональное, по-видимому, площади высечек, на «фоновых» высечках большого диаметра (47 мм) наблюдается большое количество мелких радиографических пятен, соответствующих активностям частиц порядка $n \cdot 10^{-1}$ Бк. Изотопный состав этих фрагментов, для различных сценариев отбора, как и в работе [3], оказался разным. Соотношение активности $^{137}\text{Cs}/^{239+240}\text{Pu}$ для крупных и мелких частиц существенным образом зависит от выбранного сценария (рис. 2). Так, для сценариев 1 и 2 наблюдаются как минимум два сорта частиц – крупные топливные и мелкие фоновые, обогащенные ^{137}Cs . Для сценария 3 соотношение $^{137}\text{Cs}/^{239+240}\text{Pu}$ крупных и мелких частиц соответствует топливному составу, несколько обедненному по цезию.

Снижение поверхностной плотности мелких частиц на фильтрах, экспонированных вблизи южной стены объекта «Укрытие» (сценарий 2), можно объяснить сепарацией частиц в выходящих из-под крыши объекта воздушных потоках. При этом более крупные и более плотные топливные части-

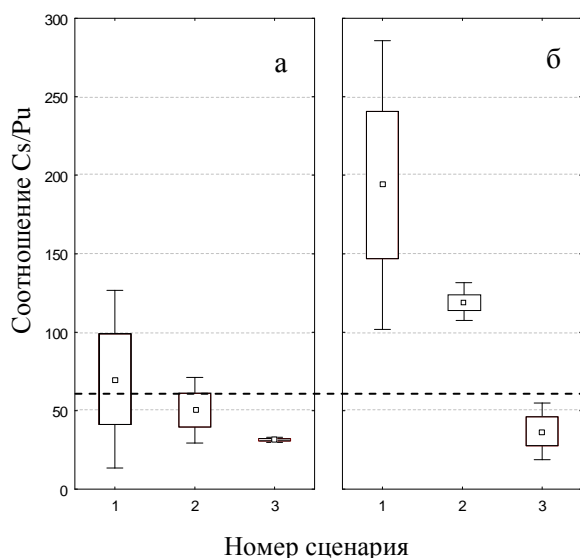


Рис. 2. Соотношение $^{137}\text{Cs}/^{239+240}\text{Pu}$ для различных сценариев отбора «горячих» частиц:

- а) высечки малого диаметра ($d = 8\text{мм}$), содержащие отдельные частицы;
- б) фоновые области ($d = 47\text{мм}$),
- - - пунктирная линия соответствует среднему топливу 4-го блока ЧАЭС.

- - среднее,
- - среднее $\pm \sigma$,
- I - среднее $\pm 1,96\sigma$,

где σ – среднеквадратическое отклонение.

цы выпадают в зоне нахождения пробоотборника, более мелкие или менее плотные – пролетают над ним. Отсутствие мелких, обогащенных ^{137}Cs частиц на фильтрах, экспонированных в г. Припять (сценарий 3), связано, по-видимому, с тем, что отобранные топливные частицы были подняты в воздух в результате процессов ресуспензии. Выпавшие вместе с ними на поверхность почвы конденсационные частицы на протяжении двух лет были растворены атмосферными осадками, росой и почвенной влагой. Этот же процесс растворения способствовал снижению уровня цезия в топливных частицах.

Таблица 3. Коэффициенты корреляции между суммарной β -активностью фрагмента и активностями отдельных радионуклидов

	$\Sigma\beta$	^{137}Cs	^{90}Sr	$^{239+240}\text{Pu}$	^{241}Am
$\Sigma\beta$	1	0,89	0,96	0,96	0,96
^{137}Cs	0,89	1	0,75	0,75	0,76
^{90}Sr	0,96	0,75	1	0,99	0,99
$^{239+240}\text{Pu}$	0,96	0,75	0,99	1	1,00
^{241}Am	0,96	0,76	0,99	1,00	1

Для всех образцов наблюдаются высокие, статистически достоверные (на уровне $p > 0,99$) корреляции как между суммарной β -активностью фрагмента и общим содержанием радионуклидов (^{137}Cs , ^{90}Sr , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am), так и между отдельными радионуклидами (табл. 3). В то же время по ряду параметров наблюдаются значительные различия между свойствами фрагментов различных диаметров, взятых с одних и тех же фильтров. Степень достоверности этих отличий была определена с помощью t -теста Стьюдента для независимых выборок. Его результаты для группы фильтров, отобранных в подкровельном пространстве машинного зала (сценарий 1) представлены в табл. 4. Из таблицы видим, что «фоновые» фрагменты достоверно отличаются содержанием ^{137}Cs и общей β -активностью.

Таблица 4. Результаты сравнения ряда параметров для двух типов фрагментов фильтров (сценарий-1) на предмет их принадлежности к разным генеральным совокупностям

Активности или их соотношения для фрагмента фильтра	Средние значения		Отношение средних значений	Достоверность отличий
	"Фоновые" высечки, (d = 47 мм) N = 11	Отдельные частицы (высечки d = 8 мм) N = 11		
I. Активность фрагмента до выщелачивания, Бк				
Измеренная β -активность	78,8	44,0	1,8	>0,98
^{137}Cs	51,3	17,1	3,0	>0,99
^{90}Sr	13,3	12,7	1,05	0,16
$^{239+240}\text{Pu}$	0,27	0,26	1,03	0,13
^{241}Am	0,49	0,48	1,03	0,094
Избыточная активность ^{137}Cs по сравнению со средним топливом	34,7	1,116	31,1	>0,99
II. Соотношение активностей до выщелачивания				
$^{137}\text{Cs}/(^{239+240}\text{Pu})$	194	70	2,8	>0,99
$^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$	3,8	1,4	2,7	>0,99
$^{137}\text{Cs}/^{241}\text{Am}$	112	38,9	2,9	>0,99
$^{90}\text{Sr}/^{239+240}\text{Pu}$	52,2	51,4	1,01	0,1
$^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$	1,75	1,79	0,98	0,34
III. Перешедшая в раствор активность, Бк				
^{137}Cs	28	2,7	10,3	>0,99
^{90}Sr	0,86	0,15	5,70	0,99
$^{239+240}\text{Pu}$	0,0031	0,00056	5,54	0,95
^{241}Am	0,0036	0,0021	1,69	0,89

Существенных отличий как по общему содержанию, так и по соотношениям активностей для других радионуклидов не наблюдается. Отметим, что эти отличия полностью определяются подбором образцов и свидетельствует лишь о хороших условиях для их сравнения, т.е. совпадение средних активностей в некоторой мере случайно. Более существенными являются соотношения между отдельными нуклидами (см. табл. 4, II), определяемые их балансом в материале «горячих» частиц. Отсутствие достоверных отличий в соотношениях активностей $^{90}\text{Sr}/^{239+240}\text{Pu}$ и $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ крупных и мелких частиц свидетельствует о том, что эти радионуклиды сосредоточены в частицах с одной и той же, предположительно топливной, матрицей.

Таблица 5. Результаты сравнения ряда параметров для двух типов фрагментов фильтров (сценарий 2) на предмет принадлежности к разным генеральным совокупностям

Активности или их соотношения для фрагмента фильтра	Средние значения		Отношение средних значений	Достоверность отличий
	"Фоновые" высечки, (d = 47 мм) N = 5	Высечки с отдельными частицами (d = 5+8 мм) N = 5		
Соотношение активностей до выщелачивания				
$^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$	2,64	0,86	3,1	0,98
$^{137}\text{Cs}/(^{239+240}\text{Pu})$	119	50,3	2,4	0,97
$^{137}\text{Cs}/^{241}\text{Am}$	66,1	26,5	2,5	0,98
Перешедшая в раствор активность				
^{90}Sr , Бк	1,12	0,28	4,1	0,99
^{137}Cs , Бк	6,6	2,3	2,8	0,85
Доля перешедшей в раствор активности				
^{90}Sr , Бк	0,08	0,0057	14	0,99
$^{239+240}\text{Pu}$, Бк	0,003	0,00069	4,9	0,97
^{241}Am , Бк	0,003	0,00089	3,3	0,82

Достоверный избыток ^{137}Cs на фоновых высечках связан, по-видимому, с наличием мелких частиц иной, возможно конденсационной, природы. Исходя из таких соображений, следовало ожи-

дать, что в процессе растворения будет наблюдаться относительно быстрое растворение конденсационных цезиевых частиц и более медленное - частиц топливной матрицы. Однако, кроме ожидаемого избытка растворимой части ^{137}Cs для «фоновых» высечек, по сравнению с отдельными топливными частицами (рост в 10 раз), мы наблюдаем достоверное ($p > 0,95$) 5-кратное увеличение перешедших в раствор активностей ^{90}Sr и $^{239+240}\text{Pu}$. В процессе выщелачивания также достоверно нарушается баланс между отдельными радионуклидами, в растворившейся фракции наблюдается значительный рост доли ^{137}Cs и ^{90}Sr по отношению к $^{239+240}\text{Pu}$. Для сценария 2 (табл. 5) наблюдаются похожие соотношения, однако из-за меньшего объема выборки уровень достоверности отличий существенно снижен.

Согласно данным табл. 4 мелкие частицы, по сравнению с крупными, имеют избыточное количество ^{137}Cs и повышенную скорость выщелачивания последнего. Скорость выщелачивания других радионуклидов, входящих в состав мелких частиц, также существенно повышена. Можно было бы предположить, что относительно быстрорастворимые и обогащенные цезием частицы по своей природе являются конденсационными, а повышенная скорость растворения других радионуклидов связана с наличием мелких топливных частиц с высокой удельной поверхностью.

Таблица 6. Плотность поверхностного загрязнения фильтров металлами

Сценарий отбора	Ca	Cu	Fe	Mn	Pb	Sr	Ti	Zn
	мкг/см ² , в скобках – тысяча импульсов на пик							
1			2,5	(1,5)		(18,7)	(7,6)	147
2			4,7		0,2			0,6
3	0,4	1,5	50	(1,4)	0,7	(2,2)	(0,4)	1,9

Однако большие сомнения вызывает сам факт существования мелких конденсационных частиц в составе аэрозолей из объекта «Укрытие» спустя 18 лет после аварии, поскольку такие частицы, имея существенную растворимость и высокую адгезионную способность, должны были бы исчезнуть в течение столь длительного промежутка времени. Рентгенофлуорес-

центные исследования экспонированных в подкровельном пространстве машинного зала фильтров выявили повышенные содержания на их поверхности цинка и титана (табл. 6), коррелирующие с плотностью фонового загрязнения ^{137}Cs . Учитывая высокий, по сравнению с другими местами отбора проб, уровень содержания этих элементов среди депонированных на фильтре частиц, можно предположить, что процесс высвобождения «конденсационных» частиц связан с разрушением поверхности стен машинного зала, окрашенных белилами. (Белила в качестве пигмента обычно содержат оксиды цинка и/или титана, свинцовые белила используются преимущественно в живописи.) Стены машинного зала изначально аккумулировали на окрашенных поверхностях как топливные, так и конденсационные частицы, а спустя 18 лет происходила деструкция слоя краски с высвобождением ранее захваченных частиц и частиц пигментов. Нет оснований утверждать, что наблюдаемые малоактивные аэрозольные частицы, формирующие фоновые загрязнения фильтров, являются изначальными конденсационными частицами. По-видимому, на поверхности стен машинного зала происходила сепарация радионуклидов по их растворимости: из адсорбированных на окрашенной поверхности стен «горячих» частиц в капли конденсата атмосферной влаги вымывались растворимые компоненты, которые сорбировались на поверхности или формировали отдельные микрочастицы после высыхания капель. Многократное повторение этого процесса и могло привести к образованию наблюдаемых нами фоновых микрочастиц. Это предположение объясняет также повышенный переход в раствор других радионуклидов, не свойственных для конденсационных частиц, в частности плутония и америция.

Исходя из предположения о нахождении на фильтре частиц двух типов, оценим плотность загрязнения поверхности фильтра избыточным ^{137}Cs . Для этого из суммарной активности ^{137}Cs вычтем топливную компоненту, рассчитанную по измеренной активности $^{239+240}\text{Pu}$ и известному среднему соотношению $^{137}\text{Cs}/^{239+240}\text{Pu} \approx 61$ для топлива. Плотность фонового загрязнения для ряда фрагментов фильтров из машинного зала составила: $3 \div 8.10 - 2,2$, $8 \div 11.10 - 0,56$, $11 \div 15.10.2002 \text{ г.} - 0,17 \text{ Бк/см}^2$, что соответствует $0,16$, $0,05$ и $0,02 \text{ Бк/м}^3$ в воздухе и свидетельствует о существенной изменчивости концентрации цезиевых частиц со временем. Отметим, что состав пылевых частиц на воздушных фильтрах, экспонированных вблизи г. Припять в 1988 г. (сценарий 3) близок к составу почвенной пыли [11].

Двухэкспоненциальное приближение

Описание кинетики растворения дисперсных частиц в виде суммы двух экспонент позволяет выделить быстро- и медленно растворимые компоненты

$$a_{\text{ост}} = a_1 e^{-\lambda_1 t} + a_2 e^{-\lambda_2 t} = a_1 e^{-\frac{\ln 2 \cdot t}{T_1}} + a_2 e^{-\frac{\ln 2 \cdot t}{T_2}} \quad (1)$$

здесь $a_{ост}$ – остающаяся нерастворенная часть активности; a_1 и a_2 – доли быстро- и медленно-растворимой фракций; $a_1 + a_2 = 1$; λ_1 и λ_2 – константы скорости растворения фракций; T_1 и T_2 – времена полурастворения.

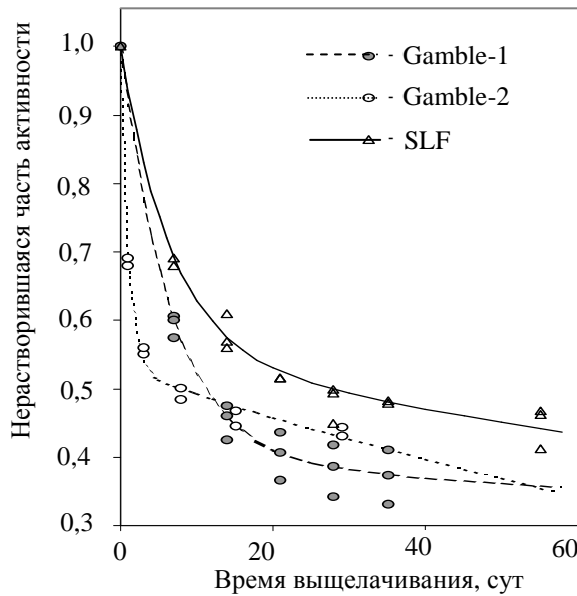


Рис. 3. Кинетика выщелачивания ¹³⁷Cs из фоновых фрагментов фильтров, (сценарий 1) в зависимости от состава имитатора легочной жидкости.

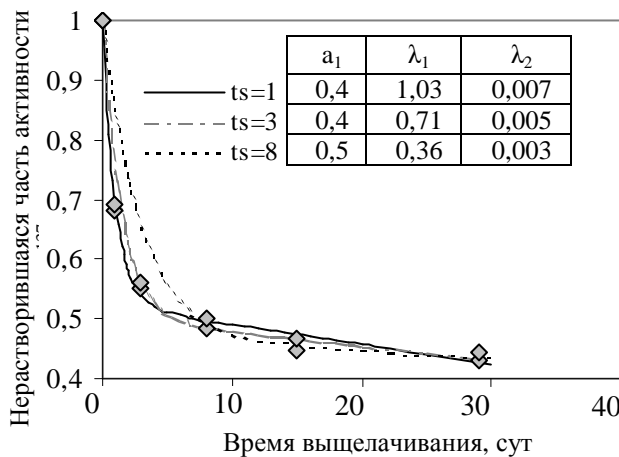


Рис. 4. Двухэкспоненциальное приближение в зависимости от длительности первой экспозиции t_s .

мало по сравнению с периодом полурастворения. Так, значению $\lambda_2 = 0,002$ соответствует период полурастворения $T_2 = 347$ сут, т.е. для более точного определения этой величины нужны времена экспозиции порядка года.

Таблица 7. Параметры описания кинетики растворения ¹³⁷Cs суммой двух экспонент в зависимости от выбора имитатора легочной жидкости (длительность первой экспозиции 7 сут)

Имитант легочной жидкости	a_1	a_2	Доверительный интервал для a_1		λ_1			λ_2		
					Значение	Доверительный интервал		Значение	Доверительный интервал	
	-95 %	+95 %	-95 %	+95 %		-95 %	+95 %			
SLF	0,60	0,40	0,45	0,76	0,16	0,095	0,22	0,002	-0,01	0,014
Gamble	0,48	0,52	0,41	0,55	0,14	0,1	0,17	0,003	0,000	0,006

При этом вовсе не обязательно иметь две группы частиц с отличающимися свойствами. Так, согласно [12], кинетика растворения совокупности однородных по составу частиц с изначальным логнормальным распределением диаметров описывается двумя экспонентами, параметры которых определяются массовым медианым диаметром совокупности частиц D_m , их стандартным геометрическим отклонением σ_g и константой скорости растворения при условии, что $1.65 < \sigma_g < 2.72$.

На рис. 3 представлена зависимость активности ¹³⁷Cs в нерастворившейся части фоновых фрагментов от времени выщелачивания в двух имитаторах легочной жидкости, а в табл. 7 – соответствующие параметры двухэкспоненциальной модели. Близкие значения средних и перекрытие их доверительных интервалов свидетельствуют об отсутствии достоверных отличий кинетики растворения в растворах SLF и Gamble.

Из рис. 3 видим, что скорость растворения быстрой компоненты и соответствующий период полурастворения для фрагментов одного и того же фильтра, в том же растворителе (Gamble-1 и Gamble-2) существенно зависят от выбранного ряда времен экспозиции.

Аналогичные изменения в аппроксимирующей функции можно получить, последовательно убирая точки, соответствующие временам 1 и 3 сут (рис. 4.). Следовательно, наблюдаемая скорость растворения быстрой компоненты в нашем случае несколько занижена, т.е. $\lambda_1 > 1,03$ и $T_1 < 0,67$ сут.

Для получения более точного результата выбор времени первой экстракции t_1 должен обеспечивать выполнение условия $t_1 < T_1$. Отметим также, что константы скоростей растворения медленной компоненты определены с большой погрешностью и носят ориентационный характер. Это связано с тем, что время экспозиции мало

В табл. 8 приведены усредненные по двум растворителям параметры кинетики растворения радионуклидов.

Таблица 8. Усредненные параметры кинетики растворения радионуклидов (длительность первой экспозиции 1 сут)

Радионуклид	a_1			λ_1			λ_2		
	Значение	Доверительный интервал		Значение	Доверительный интервал		Значение	Доверительный интервал	
		-95 %	+95 %		-95 %	+95 %		-95 %	+95 %
^{137}Cs	0,43	0,38	0,47	1,33	0,49	2,18	0,008	0,005	0,012
$^{137}\text{Cs}^*$	0,54	0,45	0,63	1,44	0,37	2,51	0,031	0,019	0,042
^{90}Sr	0,075	0,061	0,088	1,22	0,46	1,98	0,0004	-0,0004	0,0012
$^{239+240}\text{Pu}$	0,03	0,02	0,04	1,76	-0,95	4,47	0,0003	-0,0005	0,0011
^{241}Am	0,004	0,003	0,006	1,8	-2,0	5,6	0,00007	0,00001	0,00013

* За вычетом топливной компоненты.

Выводы

1. Фильтры, экспонированные на выходе из подкровельного пространства машинного зала и вблизи объекта «Укрытие» содержат «горячие» частицы, по крайней мере, двух типов – относительно высокоактивные топливные и малоактивные, обогащенные ^{137}Cs .

2. Кинетика растворения радионуклидов хорошо описывается двухэкспоненциальной моделью, параметры которой позволяют определить класс растворимости ^{137}Cs , ^{90}Sr , $^{239+240}\text{Pu}$ и ^{241}Am в исследованных аэрозолях как класс S (медленное растворение) для топливных частиц и отнести растворимость ^{137}Cs в малоактивных цезиевых частицах к классу F (быстрое растворение).

3. Достоверных отличий кинетики растворения ^{137}Cs , $^{239+240}\text{Pu}$ и ^{241}Am в имитаторах легочной жидкости различного состава не обнаружено.

4. Обнаружена корреляция поверхностной активности обогащенных цезием частиц с содержанием цинка и титана на поверхности фильтров, что позволяет предположить в качестве ассоциированного источника поверхности лакокрасочных покрытий, находящихся в машинном зале объекта «Укрытие».

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. ICRP Publication 66. Human respiratory tract model for radiological protection // Ann. ICRP. – 1994. – Vol. 24, No 1 – 3.
2. Eidson A. F., Griffith Jr. W. C. Techniques for yellowcake dissolution studies in vitro and their use in bioassay interpretation // Health Phys. – 1984.- Vol. 46, No. 1 (January). - P. 151-163.
3. Гаргер Е. К., Одинцов А. А., Шинкаренко В. К. Оценка степени растворения радиоактивных аэрозольных частиц из объекта «Укрытие» // Проблемы безопасности атомных электростанций і Чернобиля. – 2009. – Вип. 12. – С. 125 – 136.
4. Ansoborlo E., Guilmette R. A., M. D. Hoover 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.
5. Ansoborlo E., Henge-Napoli M.H., Chazel V. et al. Review and critical analysis of available in vitro dissolution tests // Health Phys. - 1999. - Vol. 77. - P. 638–645.
6. Sdraulig S., Franich R., Tinker R.A. et al. In vitro studies of uranium bearing material in simulated lung fluid // J. Environ. Radioactivity. – 2008. – Vol. 99. – P. 527 – 538.
7. Garger E. K., Sazhenyuk 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.
8. Garger E.K., Kashpur V. A., Li W.B., Tschirsch J. Radioactive aerosols released from the Chernobyl Shelter into the immediate environment // Radiat. Environ. Biophys. – 2006.- Vol. 45. – P. 105 – 114.
9. 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.
10. Шинкаренко В.К. К определению активности «горячих» частиц радиографическим методом // Проблемы безопасности атомных электростанций і Чернобиля. – 2008.- Вип. 9. - С. 130 - 139.
11. Кабата-Пендиас А., Пендиас Х. Микроэлементы в почвах и растениях. - М.: Мир, 1989. - 439 с.
12. Mercer T.T. On the role of particle size in the dissolution of lung burdens // Health Physics Pergamon Press. - 1967. - Vol. 13. - P. 1211 - 1221.

Є. К. Гаргер¹, О. О. Одінцов¹, В. К. Шинкаренко¹, J. Tschiersch²

¹Інститут проблем безпеки АЕС НАН України, вул. Кірова, 36а, Чорнобиль, 07270, Україна

²Helholtz Zentrum Munchen Deutsches Forschungszentrum für Gesundheit und Umwelt (GmbH)
Ingolstadter Landstr, Neuherberg, Deutschland

ПОВЕДІНКА «ГОРЯЧИХ» АЕРОЗОЛЬНИХ ЧАСТОК З ОБ'ЄКТА «УКРИТТЯ» В ІМІТАТОРАХ ЛЕГЕНЕВОЇ РІДИНИ

Досліджено кінетику розчинення радіоактивних аерозольних часток, відібраних у локальній зоні об'єкта «Укриття» в імітаторах легеневої рідини різного складу. Показано, що на тих самих фільтрах поряд з відносно малочисельними високоактивними паливними частинками присутнє велике число малоактивних пилових часток, збагачених ¹³⁷Cs. Ізотопний склад, зокрема співвідношення ¹³⁷Cs/²³⁹⁺²⁴⁰Pu, а також доля фракції радіонуклідів, що перейшла у розчин для обох типів часток суттєво відрізняються. Для збагачених ¹³⁷Cs часток спостерігається більш швидке й більш повне розчинення, найбільша поверхнева щільність таких часток спостерігається на фільтрах, експонованих на виході з простору під дахом машинного залу. Характерною відмінністю даних фільтрів є високі рівні вмісту цинку й титану, аерозолі яких пов'язані, очевидно, з процесами деструкції лакофарбових покриттів стін машинного залу. Висловлюється припущення про сепарацію матеріалу гарячих часток, відкладених на пофарбованих поверхнях, по розчинності під впливом вологи атмосферного конденсату. Кінетика розчинення радіонуклідів добре описується двоєкспоненціальною моделлю. Не виявлено достовірних відмінностей параметрів розчинення в імітаторах легеневої рідини різного складу.

Ключові слова: радіоактивні аерозолі, імітатори легеневої рідини, кінетика розчинення, радіонукліди, об'єкт „Укриття”.

E. K. Garger¹, O. O. Odintsov¹, V. K. Shinkarenko¹, J. Tschiersch²

¹Institut for Safety Problems of Nuclear Power Plants NAS of Ukraine, Kirova str., 36a, Chornobyl, 07270, Ukraine

²Helholtz Zentrum Munchen Deutsches Forschungszentrum für Gesundheit und Umwelt (GmbH)
Ingolstadter Landstr, Neuherberg, Deutschland

BEHAVIOUR OF "HOT" AEROSOL PARTICLES FROM OBJECT "UKRYTTYA" IN SIMULATORS OF A PULMONARY LIQUID

In simulators of a pulmonary liquid of various structures the kinetics of dissolution of the radioactive aerosol particles selected in a local zone of object "Ukryttya" is investigated. It is shown, that on the same filters along with rather small highly active fuel particles there is a big number low activity the dust particles enriched ¹³⁷Cs. The isotope structure, in particular a parity ¹³⁷Cs/²³⁹⁺²⁴⁰Pu, and also a share of the fraction which have passed in a solution radionuclides for both types of particles essentially differ. For enriched ¹³⁷Cs particles faster and fuller dissolution is observed, the greatest superficial density of such particles is observed on the filters exhibited on an exit from подкровельного of space of a machine hall. Characteristic difference of the given filters are high levels of the content of zinc and the titan which aerosols are connected, apparently, with processes destruction of paint and varnish coverings of walls of a machine hall. The assumption about separation on solubility of a material of the hot particles besieged on a painted surface under the influence of moisture of an atmospheric condensate is come out. The dissolution kinetics of radionuclides is well described two exponential by model. It is not revealed authentic differences of parameters of dissolution in simulators of a pulmonary liquid of different structure.

Keywords: radioactive aerosol, simulate lung fluid, disolution kinetics, radionuclides, object "Ukryttya".

REFERENCES

1. ICRP Publication 66. Human respiratory tract model for radiological protection // Ann. ICRP. – 1994. – Vol. 24, No 1 – 3.
2. Eidson A. F., Griffith Jr W. C. Techniques for yellowcake dissolution studies in vitro and their use in bioassay interpretation // Health Physics. - 1984. - Vol. 46, No. 1 (January). - P. 151 - 163.
3. Garger E. K., Odintsov O. O., Shinkarenko V. K. Estimation of the degree of dissolution radioactive aerosols particles from object "Ukryttya" // Problemy bezpeky atomnyh elektrostansiy I Chornobylya (Problems of nuclear power plants and of Chornobyl). – 2009. – Iss. 12. – P. 125 – 136. (Rus)
4. Ansoberlo E., Guilmette R. A., Hoover M. D., Chazel V, Houpert P., Henge-Napoli H. M. 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.
5. Ansoberlo, E., Henge-Napoli, M.H., Chazel, V., Gilbert, R., Guilmette, R.A. Review and critical analysis of available in vitro dissolution tests // Health Phys. - 1999. -Vol. 77. P. 638–645.
6. Sdraulig S., Franich R., Tinker R.A., Solomon S., O'Brien R., Johnston P.N. In vitro studies of uranium bearing material in simulated lung fluid // J. Environ. Radioactivity. – 2008. – Vol. 99. – P. 527 – 538.

7. *Garger E. K., Sazhenyuk A. D., Odintsov A. A., Paretzke H. G., Roth P., Tschiersch J.* Solubility of airborne radioactive fuel particles from the Chernobyl reactor and Implication to dose // *Radiat. Environ. Biophys.* – 2004. – Vol. 43. – P. 43-49.
8. *Garger E. K., Kashpur V. A., Li W. B., Tschirsch J.* Radioactive aerosols released from the Chernobyl Shelter into the immediate environment // *Radiat. Environ. Biophys.* – 2006.- Vol. 45. – P. 105 – 114.
9. *Garger E.K., Gorkovenko B. L., Shinkarenko V. K.*. About measurement β -activity of the large quality hot particles with autoradiography // *Problemy bezpeky atomnyh elektrostantsiy I Chornobylya (Problems of nuclear power plants' safety and of Chornobyl)*. – 2005. - Iss. 2.- P. 33 - 40. (Rus)
10. *Shinkarenko V. K.* To determination of activity oh hot particles by a radiographic method // *Problemy bezpeky atomnyh elektrostantsiy i Chornobylya (Problems of nuclear power plants' safety and of Chornobyl)*. – 2008.- Iss. 9. - P.130-139. (Rus)
11. *Kabata-Pendias A., Pendias X.* Microelements in soils and plants. Moskva: Mir, 1989. - 439 p. (Rus)
12. *Mercer T. T.* On the role of particle size in the dissolution of lung burdens // *Health Physics Pergamon Press*, 1967. - Vol. 13. - P. 1211 - 1221.

Надійшла 12.02.2013

Received 12.02.2013