

## ИЗУЧЕНИЕ РАСТВОРИМОСТИ ЧЕРНОБЫЛЬСКИХ "ГОРЯЧИХ" ЧАСТИЦ В ИМИТАТОРАХ БИОЛОГИЧЕСКИХ ЖИДКОСТЕЙ

Е. К. Гаргер<sup>1</sup>, А. А. Одинцов, А. Д. Саженок

<sup>1</sup> *Институт агроэкологии и биотехнологии УААН, Киев*

В статических условиях изучалась растворимость аэрозольных "горячих" частиц, отобранных в 1987 г. в г. Припять, в имитаторе легочной жидкости (ИЛЖ - раствор Gamble or Ringer) и 0,1 М HCl. Показано, что выщелачивание радионуклидов из "горячих" частиц в ИЛЖ уменьшается в ряду  $^{137}\text{Cs} > ^{90}\text{Sr} \gg ^{239+240}\text{Pu} \geq ^{241}\text{Am}$ , а их переход в 0,1 М HCl - в ряду  $^{90}\text{Sr} > ^{241}\text{Am} \gg ^{137}\text{Cs} \geq ^{239+240}\text{Pu}$ . Степень перехода  $^{90}\text{Sr}$  и  $^{241}\text{Am}$  в раствор 0,1 М HCl составляет 1,4 - 21,0 и 0,9 - 17,0 % соответственно. В зависимости от размера "горячих" частиц за семь суток в ИЛЖ переходит 0,01 - 0,4  $^{241}\text{Am}$  и 0,02 - 0,3 %  $^{239+240}\text{Pu}$ .

Авария на 4-м блоке Чернобыльской АЭС (ЧАЭС) привела к образованию сложной аэродисперсной системы, состоящей из аэрозолей различной физико-химической природы [1]: частиц диспергированного топлива (топливные частицы); частиц диспергированного вещества, образовавшегося в межгранулярных пустотах топливной композиции за время штатной работы реактора ("горячие" частицы); конденсационных аэрозолей, образовавшихся путем конденсации паров радиоактивных элементов в струе выброса на поверхность аэрозольных частиц и на атмосферные ядра конденсации; фрактальных структур - конденсационных аэрозолей и конгломерата, имевших в основе частицы сажи с объемной плотностью, практически равной плотности воздуха. В работах [2, 3] было показано, что в дыхательных путях персонала, принимавшего участие в ликвидации последствий аварии на ЧАЭС, и населения, проживавшего 1986 - 1987 гг. на территориях, прилегающих к зоне отчуждения, число "горячих" частиц составляло примерно  $4 \cdot 10^7$  и  $3 \cdot 10^3$  част./кг легочной ткани соответственно.

Основными факторами, определяющими выведение веществ из легких, являются размер частиц, их цитотоксичность, растворимость веществ в жидкостях организма и реактивность клеток [4]. В работе [5] по скорости перехода  $^{137}\text{Cs}$  и суммарной  $\alpha$ -активности в раствор, имитирующий легочную жидкость (раствор Gamble or Ringer), изучена устойчивость топливной матрицы "горячих" частиц, отобранных методом мазков на внутренней поверхности стен объекта "Укрытие". Ранее [6, 7] было определено воздействие 0,8 % NaCl и 0,1 М HCl на различные формы топливного выброса ("горячие" частицы, отобранные из грунта, диспергированное топливо, образцы "мазков" из помещений объекта "Укрытие"). По порядку величины переход в раствор по всем радионуклидам происходил одинаково. При определении физико-химических форм  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  и  $^{144}\text{Ce}$  в атмосферных выпадениях в Чернобыле (апрель - июнь 1986 г.) количество водорастворимых форм радионуклидов уменьшалось в ряду  $^{137}\text{Cs} > ^{90}\text{Sr} > ^{144}\text{Ce}$  [8].

Результаты определения растворимости топливных частиц в растворах, имитирующих жидкости организма, могут быть использованы при ретроспективном восстановлении дозовых нагрузок, полученных персоналом при ликвидации последствий аварии на ЧАЭС от ингаляционного поступления радионуклидов в составе радиоактивных аэрозолей. В настоящее время в литературе практически отсутствуют экспериментальные данные о растворимости в имитаторах биологических жидкостей трансурановых элементов чернобыльских выпадений в виде аэрозольных "горячих" частиц.

Задача настоящей работы - изучение растворимости аэрозольных топливных частиц, различной дисперсности в растворах, имитирующих биологические жидкости.



В качестве объекта исследований были взяты аэрозольные фильтры (ткань Петрянова), которые экспонировались в октябре - ноябре 1987 г. в г. Припять на фильтровентиляционной установке "Тайфун", и "горячие" частицы, отобранные с поверхности почвы в г. Припять, которые являются наземным источником аэрозолей при процессе вторичного ветрового подъема.

Предварительно с помощью радиометра "Бета" было проведено сканирование поверхности фильтра с целью выявления участков с повышенной радиоактивностью. В результате были вырезаны фрагменты фильтра диаметром 6 - 7 см. Методом автордиографии произведена оценка дисперсного состава аэрозольных "горячих" частиц и определено количество "горячих" частиц на каждом фрагменте аэрозольного фильтра. В качестве примера на рис. 1 представлена автордиограмма фрагмента аэрозольного фильтра диаметром 6,5 см, на котором идентифицировано семь "горячих" частиц, из которых шесть имели примерно одинаковый размер (а), и фрагмента размером 2 × 2,5 см (б), содержащего одну частицу, в три раза крупнее.

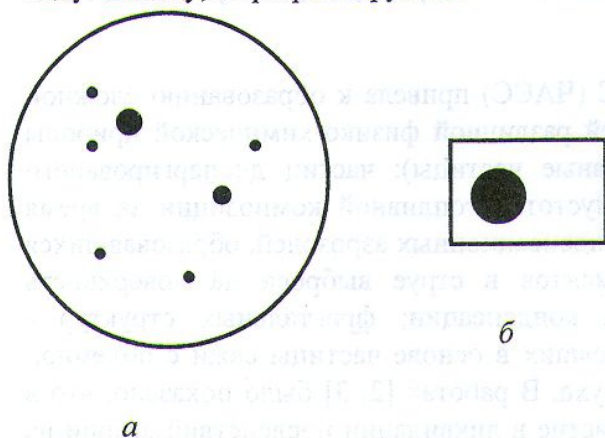


Рис. 1. Автордиограмма фрагментов аэрозольного фильтра.

$^{241}\text{Am}$  и  $^{244}\text{Cm}$ .

Для измерения  $^{137}\text{Cs}$  в аэрозольных фильтрах (ткань Петрянова) и растворах, имитирующих биологические жидкости, использовался гамма-спектрометр на базе полупроводникового детектора серии GMX-30190 (эффективность 32,5 %, разрешение 1,89 кэВ на линии 1,33 МэВ) и многоканального буфера 919 SPECTRUM MASTER фирмы ORTEC.

Концентрирование и выделение без носителей  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239+240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Am}$  и  $^{244}\text{Cm}$  из аэрозольных фильтров и выщелачивающих растворов проводилось по методике [13].

Источники для альфа-спектрометрических измерений готовили электрохимическим осаждением плутония, америция и кюрия из сернокислого раствора с pH 2,1 на диски полированной нержавеющей стали. Химический выход америция и кюрия, определяемый с помощью радиоактивной "метки"  $^{243}\text{Am}$ , составляет 50 - 60 %, а плутония, определяемый с помощью радиоактивной "метки"  $^{236}\text{Pu}$  - 60 - 80 %. Содержание альфа-излучающих радионуклидов плутония и америция измеряли на 8-канальном альфа-спектрометре OCTETE PC фирмы ORTEC с полупроводниковыми кремниевыми детекторами серии ULTRA с эффективностью регистрации более 25 %, собственный фон для области энергии выше 3 МэВ не более 1 имп./ч, энергетическое разрешение 19 кэВ на линии 5486 кэВ ( $^{241}\text{Am}$ ). Радиометрическое определение  $^{90}\text{Sr}$  производили на 10-канальной низкофоновой установке BERTHOLD LB 770 PC, собственный фон которой составляет  $0,45 \pm 0,12$  имп./мин. Типичные альфа-спектры источников плутония (а) и америция (б), выделенных из аэрозольных "горячих" частиц, представлены на рис. 2.

Определение степени растворимости "горячих" частиц проводили согласно методики описанной в работах [9 - 11]. Фрагменты аэрозольных фильтров помещались в кассеты из тефлона между двумя мембранными фильтрами с размером пор 0,15 мкм и плотно закрывались. Кассеты с фильтрами помещались в горизонтальном положении в стеклянные стаканы и выдерживались при комнатной температуре в течение 7 - 28 дней в растворе, имитирующем легочную жидкость (ИЛЖ) [12], затем в течение трех дней в 0,1 М HCl в качестве имитатора желудочного сока. Через заданные промежутки времени раствор отбирался и в нем определяли содержание радионуклидов  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239+240}\text{Pu}$ ,



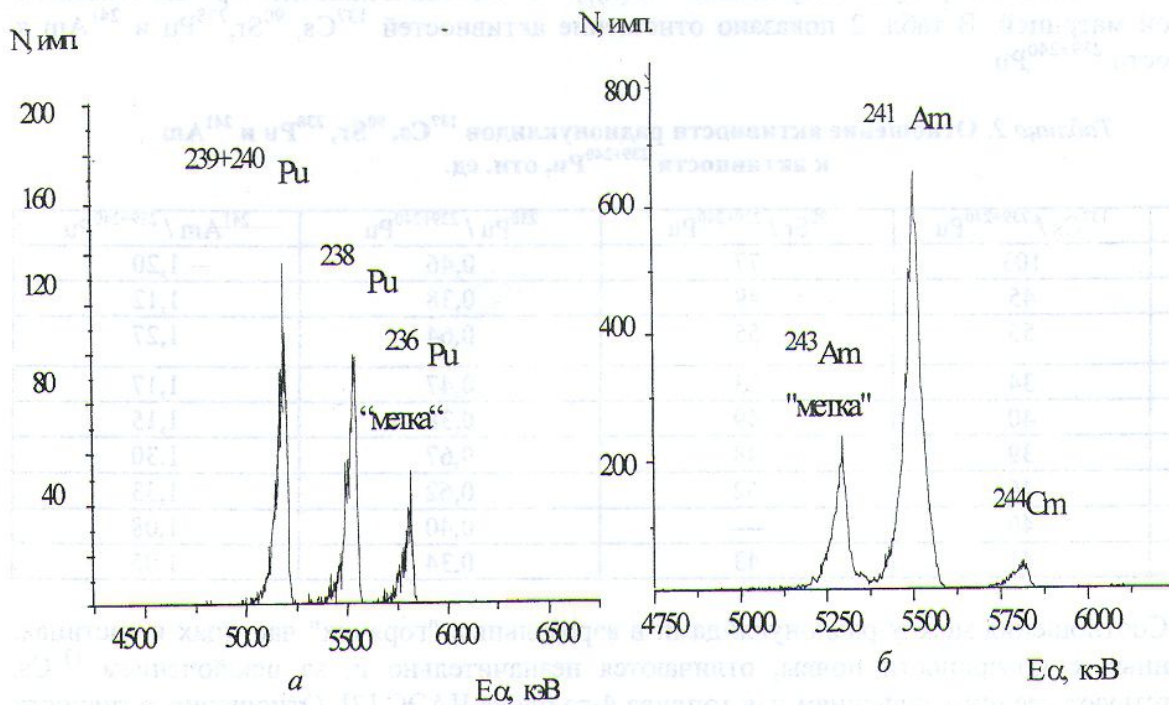


Рис. 2. Типичные альфа-спектры источников плутония (а) и америция (б), выделенных из аэрозольных "горячих" частиц.

В табл. 1 приведено содержание радионуклидов в фрагментах аэрозольных фильтров (1 - 7) и топливных "горячих" частицах, отобранных с поверхности почвы (8, 9) в ближней зоне ЧАЭС. Погрешность определения не превышает 10 - 15 %.

Таблица 1. Содержание радионуклидов в фрагментах аэрозольных фильтров (в октябре - ноябре 1987 г., г. Припять) и "горячих" частицах

№	<sup>137</sup> Cs	<sup>90</sup> Sr	<sup>239+240</sup> Pu	<sup>238</sup> Pu	<sup>241</sup> Am	<sup>244</sup> Cm
Фрагменты аэрозольных фильтров, Бк / пробу						
1	3,6	2,7	0,035	0,016	0,042	н.о.
2	2,9	3,2	0,065	0,025	0,073	н.о.
3	6,1	6,1	0,11	0,07	0,14	н.о.
4	6,1	9,6	0,18	0,084	0,21	0,0077
5	8,0	9,7	0,20	0,075	0,23	н.о.
6	17	21	0,43	0,29	0,56	0,034
7	28	38	0,61	0,38	0,81	0,045
Отдельные "горячие" частицы, Бк / част.						
8	530	н.о.	13	5,2	14	0,75
9	910	940	22	7,5	23	0,27

Примечание: н.о. - не определялось.

Как видно из табл. 1 в "горячих" частицах содержатся все основные долгоживущие трансурановые радионуклиды, что позволяет сделать вывод о том, что эти частицы представляют собой диспергированное топливо 4-го блока ЧАЭС, т. е. радионуклиды находятся в матрице, состоящей из диоксида урана. Для оценки степени фракционирования радионуклидов в топливной матрице во время аварии обычно используют радионуклидные соотношения [1, 7]. В данной работе в качестве реперных радионуклидов взяты <sup>239</sup>Pu + <sup>240</sup>Pu,



так как они являются продуктами реакций  $^{238}\text{U}(n,\gamma)^{239}\text{U} \rightarrow$  и т.д. и наиболее прочно связаны с урановой матрицей. В табл. 2 показано отношение активностей  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{238}\text{Pu}$  и  $^{241}\text{Am}$  к активности  $^{239+240}\text{Pu}$ .

Таблица 2. Отношение активности радионуклидов  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{238}\text{Pu}$  и  $^{241}\text{Am}$  к активности  $^{239+240}\text{Pu}$ , отн. ед.

№	$^{137}\text{Cs} / ^{239+240}\text{Pu}$	$^{90}\text{Sr} / ^{239+240}\text{Pu}$	$^{238}\text{Pu} / ^{239+240}\text{Pu}$	$^{241}\text{Am} / ^{239+240}\text{Pu}$
1	103	77	0,46	1,20
2	45	49	0,38	1,12
3	55	55	0,64	1,27
4	34	53	0,47	1,17
5	40	49	0,38	1,15
6	39	48	0,67	1,30
7	46	62	0,62	1,33
8	40	----	0,40	1,08
9	41	43	0,34	1,05

Соотношения между радионуклидами в аэрозольных "горячих" частицах и частицах, отобранных с поверхности почвы, отличаются незначительно и, за исключением  $^{137}\text{Cs}$ , соответствуют средним значениям для топлива 4-го блока ЧАЭС [7]. Отношение активности  $^{238}\text{Pu}$  к активности  $^{239+240}\text{Pu}$  изменяется от 0,34 до 0,67, что свидетельствует о разной степени выгорания топлива, причем более высокие значения характерны для аэрозольных частиц.

При допущении, что частицы имеют сферическую форму, можно оценить линейные размеры исследованных "горячих" частиц. В работе [7] показано, что средняя плотность "горячих" частиц из проб ближней зоны ЧАЭС составляет  $10,0 \pm 0,8 \text{ г/см}^3$ . Усредненная удельная активность  $^{239+240}\text{Pu}$  в облученном топливе 4-го блока составляет  $1,3 \cdot 10^7 \text{ Бк/г}$  (по урану). В расчетах использовались значения активности  $^{239+240}\text{Pu}$  в "горячих" частицах (см. табл. 1). Расчетные диаметры исследованных аэрозольных "горячих" частиц составляют 5 – 20 мкм, а "горячих" частиц, отобранных с почвы, 45 - 60 мкм. Оцененные аналогичным методом линейные диаметры ингалированных "горячих" частиц составляли 0,4 - 1,0 мкм [3]. При исследовании более 300 радиоактивных частиц определено, что размеры топливо-содержащих частиц лежат в пределах 5 - 170 мкм [14]. "Горячие" частицы, содержащие уран, продукты деления и изотопы  $^{239}, ^{240}, ^{241}\text{Pu}$ , отобранные в 1986 г. в Швеции, имели размеры от 2,2 до 21,0 мкм [15].

На рис. 3 показана диаграмма изменения растворимости аэрозольных "горячих" частиц в ИЛЖ при растворении в течение семи дней, в зависимости от их активности по  $^{239+240}\text{Pu}$ , которая пропорциональна размерам частиц. Как видно из рис. 3, выщелачивание радионуклидов из аэрозольных "горячих" частиц в ИЛЖ уменьшается в ряду  $^{137}\text{Cs} > ^{90}\text{Sr} >> ^{239+240}\text{Pu} \geq ^{241}\text{Am}$ . Заметное отличие степени растворимости  $^{137}\text{Cs}$  для частиц с активностью  $^{239+240}\text{Pu}$ , равной 0,43 и 0,61 Бк/част. (расчетные диаметры 16 и 19 мкм соответственно), можно объяснить тем, что они отобраны с фильтров, которые экспонировались в разные периоды, и физико-химические характеристики воздушных аэрозолей могли заметно отличаться. В зависимости от размера частиц в ИЛЖ переходит 0,01 – 0,4 %  $^{241}\text{Am}$  и 0,02 – 0,3 %  $^{239+240}\text{Pu}$ .

Растворимость аэрозольных горячих частиц в 0,1 М HCl показана на рис. 4 (время растворения три дня). Переход радионуклидов в раствор 0,1 М HCl уменьшается в ряду  $^{90}\text{Sr} > ^{241}\text{Am} >> ^{137}\text{Cs} \geq ^{239+240}\text{Pu}$ . Наибольшая степень перехода в раствор 0,1 М HCl характерна для  $^{90}\text{Sr}$  и может составлять 1,4 - 21,0 %. Следует отметить, что выщелачивание  $^{241}\text{Am}$  из аэрозольных частиц составляет 4 - 17 %. Как видно из рис. 4, в условиях эксперимента в анализируемых растворах 0,1 М HCl содержание  $^{239+240}\text{Pu}$  независимо от раз



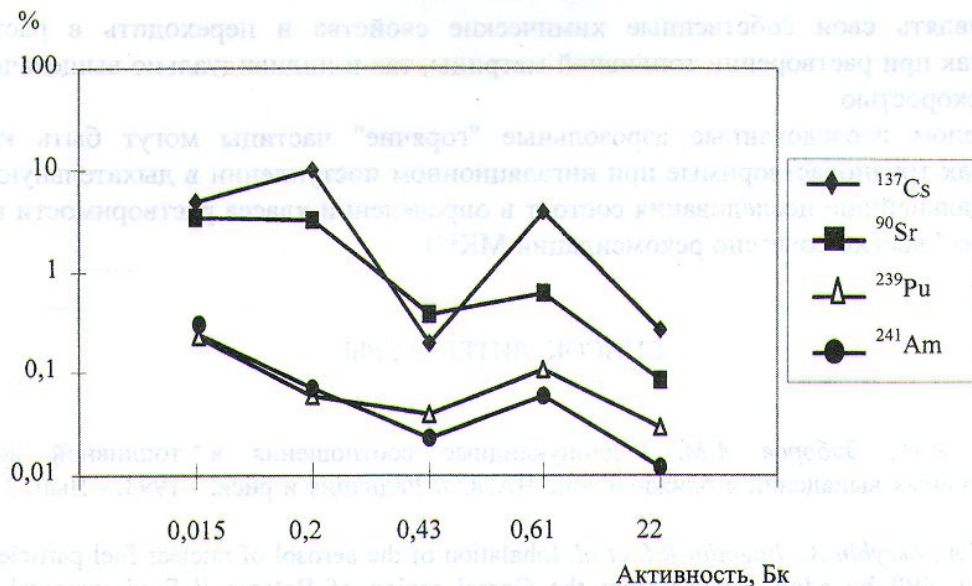


Рис. 3. Диаграмма растворимости аэрозольных "горячих" частиц в ИЛЖ в зависимости от их активности (<sup>239+240</sup>Pu), % содержания в частице.

мера частиц не превышает одного процента. Такое различие в растворимости <sup>241</sup>Am и <sup>239+240</sup>Pu требует дополнительного исследования, так как может быть как минимум две причины низкой концентрации плутония в растворе 0,1 М HCl. Первая - это выщелачивание <sup>90</sup>Sr и <sup>241</sup>Am 0,1 М HCl без растворения урановой матрицы и вторая - растворение матрицы и переход в раствор <sup>90</sup>Sr, <sup>241</sup>Am и <sup>239+240</sup>Pu с последующим образованием труднорастворимых соединений плутония, которые задерживаются мембранным фильтром.

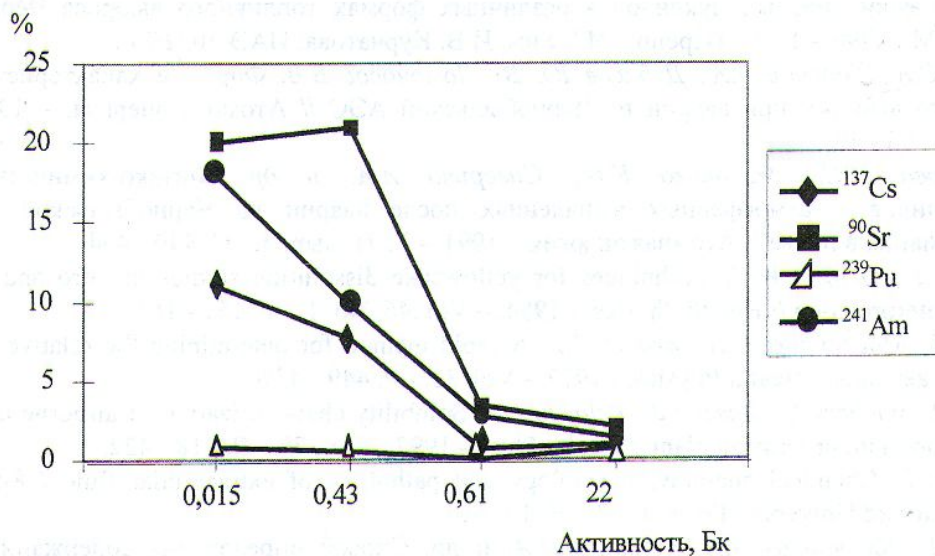


Рис. 4. Степень перехода радионуклидов в раствор 0,1 М HCl в зависимости от активности "горячих" частиц (<sup>239+240</sup>Pu), % содержания в частицах.

В отличии от работы [5], где предполагается, что ингалированные в составе топливных частиц радионуклиды проявляют одинаковое поведения в организме человека и переходят в растворимое состояние только при растворении топливной матрицы, полученные в настоящей работе экспериментальные данные показывают, что при ингаляционном поступлении радионуклидов в составе аэрозольных "горячих" частиц они



могут проявлять свои собственные химические свойства и переходить в растворимое состояние как при растворении топливной матрицы, так и индивидуально выщелачиваться с различной скоростью.

В целом исследованные аэрозольные "горячие" частицы могут быть классифицированы как труднорастворимые при ингаляционном поступлении в дыхательную систему человека. Дальнейшие исследования состоят в определении класса растворимости аэрозольных "горячих" частиц согласно рекомендаций МКРЗ.

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Ермилов А.П., Зиборов А.М. Радионуклидные соотношения в топливной компоненте радиоактивных выпадений в ближней зоне ЧАЭС // Радиация и риск. - 1993. - Вып. 3 - С. 134 - 138.
2. Kutkov V.A., Skrybin A., Pogodin R.I. et al. Inhalation of the aerosol of nuclear fuel particles from the Chernobyl NPP by adult persons from the Gomel region of Belarus // Environmental impact of radioactive release. - Vienna: IAEA. - 1995. - P. 107 - 115.
3. Vlasov P.A., Shevchenko A.A., Shashlov S.V. et al. Chernobyl hot particles in the lungs of personal involved in the post-accident clean-up actions and of inhabitants of the contaminated Ukrainian and Belarus territories // One decade after Chernobyl: Summing up the consequence of the accident. - Vienna: IAEA - TECDOC 964. - 1997. - Vol. 2 - P. 3 - 9.
4. Биологические эффекты ингалированных радионуклидов. / Под ред. А. А. Моисеева - М.: Энергоатомиздат. - 1984 - 131 с.
5. 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.
6. Богатов С.А., Боровой А.А., Дворецкий В.И. и др. Исследование устойчивости наиболее радиологически опасных нуклидов в различных формах топливного выброса Чернобыльской аварии. - М., 1990. - 17 с. - (Препр. / ИАЭ им. И.В. Курчатова; ИАЭ-5022/3).
7. 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.
8. Бобовникова Ц.И., Махонько К.П., Сиверина А.А. и др. Физико-химические формы радионуклидов в атмосферных выпадениях после аварии на Чернобыльской АЭС и их трансформация в почве // Атомная энергия. - 1991. - Т. 71, вып. 5. - С. 449 - 454
9. Eidson A. F., Griffith W.C. Techniques for yellowcake dissolution studies in vitro and their use in bioassay interpretation // Health Physics. - 1984. - Vol. 46, No. 1. - P. 151 - 163.
10. Miglio J.J., Muggenburg B.A., Brooks A.L. A rapid method for determining the relative solubility of plutonium aerosols // Health Physics. - 1977. - Vol. 33. - P. 449 - 457
11. Metzger R., Wichers D., Vaselein J., Velasquez P. Solubility characterization of airborne uranium from an in situ uranium processing plant // Health Phys. - 1997. - Vol. 72. - P. 418 - 422.
12. Gamble J. L. Chemical anatomy, physiology and pathology of extracellular fluid / 8-th edition. - Boston: Harvard University Press, 1967. - P. 4 - 11.
13. Агеев В.А., Ключников А.А., Одинцов А.А. и др. Способ определения содержания плутония, продуктов деления урана и трансурановых элементов в окружающей среде - А.с. SU № 1701047. - МКИ G21G4/04. - 1991.
14. Булыга С.Ф., Жук И.В., Кивец М.К. и др. Радиологические исследования постчернобыльского радиоактивного загрязнения биосферы республики Беларусь трансурановыми элементами // Атомная техника за рубежом. - 1998. - № 4. - С. 3 - 9.
15. Perkins R.W., Robertson D.E., Thomas C.W., Young J.A. Comparison of nuclear accident and nuclear test debris. // Environmental contamination following a major nuclear accident. - Vienna: IAEA. - 1990. - Vol. 1. - P. 111 - 139.



**ВИВЧЕННЯ РОЗЧИННОСТІ ЧОРНОБИЛЬСЬКИХ "ГОРЯЧИХ" ЧАСТИНОК В ІМІТАТОРАХ БІОЛОГІЧНИХ РІДИН**

**Є. К. Гаргер, О. О. Одинцов, А. Д. Саженок**

У статичних умовах вивчалась розчинність аерозольних "горячих" частинок, відібраних у 1987 р. в м. Прип'ять, в імітаторі легеневої рідини (ІЛР - розчині Gamble or Ringer) і 0,1 М НСІ. Показано, що перехід радіонуклідів із "горячих" частинок в ІЛР зменшується в ряду  $^{137}\text{Cs} > ^{90}\text{Sr} \gg \gg ^{239+240}\text{Pu} \geq ^{241}\text{Am}$ , а в 0,1 М НСІ -  $^{90}\text{Sr} > ^{241}\text{Am} \gg \gg ^{137}\text{Cs} \geq ^{239+240}\text{Pu}$ . Частинка розчиненого в 0,1 М НСІ  $^{90}\text{Sr}$  і  $^{241}\text{Am}$  складає 1,4 - 21,0 та 0,9 - 17,0 % відповідно. Залежно від розміру "горячих" частинок за сім діб в ІЛР переходить 0,01 - 0,4 %  $^{241}\text{Am}$  і 0,02 - 0,3 %  $^{239+240}\text{Pu}$ .

**THE STUDY OF SOLUBILITY CHORNOBYL "HOT" PARTICLES IN SIMULATED LUNG FLUID**

**E. K. Garger, A. A. Odintsov, A. D. Sajenuk**

The solubility of the aerosol "hot" particles selected at Pripjat region in 1987 in simulated lung fluid (SLF - Gamble's or Pinger's solutions) and 0,1 M HCl was studied statistically. The result showed that leaching of the radionuclides in SLF decrease in line  $^{137}\text{Cs} > ^{90}\text{Sr} \gg \gg ^{239+240}\text{Pu} \geq ^{241}\text{Am}$  and in 0,1 M HCl  $^{90}\text{Sr} > ^{241}\text{Am} \gg \gg ^{137}\text{Cs} \geq ^{239+240}\text{Pu}$ . In dissolution experiments with 0,1 M HCl estimated the soluble portion of the  $^{90}\text{Sr}$  and  $^{241}\text{Am}$  as 1,4 - 21,0 and 0,9 - 17,0 % correspondingly. In accordance with the size of the "hot" particles 0,01 - 0,4 %  $^{241}\text{Am}$  and 0,02 - 0,3 %  $^{239+240}\text{Pu}$  were dissolve in the SLF during seven days .

Поступила в редакцию 12.03.01