ФИЗИКО-ХИМИЧЕСКИЕ ХАРАКТЕРИСТИКИ ПРОМЫШЛЕННЫХ АЛЬФА-ИЗЛУЧАЮЩИХ АЭРОЗОЛЕЙ: ДАННЫЕ МНОГОЛЕТНИХ ИССЛЕДОВАНИЙ

МОНОГРАФИЯ

Физико-химические характеристики промышленных альфа-излучающих аэрозолей: данные многолетних исследований

Монография

Санкт-Петербург
Наукоемкие технологии
2023

УДК 544.772
ББК 24.6
Ф48

Рецензенты:

Жуковский Михаил Владимирович – д.т.н., профессор, главный научный сотрудник радиационной лаборатории, ФГБУН Института промышленной экологии УрО РАН;

Шишкина Елена Анатольевна – д.б.н., заведующая биофизической лабораторией, ФГБУН Уральский научно-практический центр радиационной медицины ФМБА России.

Авторы:

Е. Е. Аладова, Г. Н. Бобов, В. Э. Введенский, А. Н. Жданов, Р. В. Мелентьева, С. А. Сыпко, В. В. Хохряков

Научные редакторы:

Валентин Федорович Хохряков, д.б.н., профессор;

Сергей Анатольевич Романов, к.б.н. директор ФГБУН ЮУрИБФ ФМБА России

Ф48 **Аладова Е. Е.**

Физико-химические характеристики промышленных альфа-излучающих аэрозолей: данные многолетних исследований. Монография / Е. Е. Аладова, Г. Н. Бобов, В. Э. Введенский, А. Н. Жданов, Р. В. Мелентьева, С. А. Сыпко, В. В. Хохряков. – СПб.: Наукоемкие технологии, 2023. – 382 с. – Авт. указаны на обороте тит. л.

ISBN 978-5-907618-58-9

В монографии представлены результаты многолетних исследований физико-химических свойств альфа-излучающих аэрозолей в подразделениях ведущего предприятия ядерного оружейного комплекса России ПО «Маяк». Определение параметров, характеризующих физико-химические свойства аэрозолей плутония (дисперсный состав и транспортабельность), является одним из основных условий для корректных расчетов величин поступления и доз облучения персонала, работающего в контакте с соединениями нуклида. В монографии широко представлены различные методы исследования размеров аэрозольных частиц: от авторадиографии до современного сверхчувствительного нейтронно-индуцированного метода. Обобщены результаты изучения кинетики растворения аэрозолей плутония в различных имитантах биологической жидкости. Значительное внимание уделено исследованиям процессов образования аэрозолей нанометрового диапазона и их дисперсного состава.

Монография представляет интерес для специалистов, занимающихся вопросами радиационной гигиены и радиационной безопасности, а также контролем внутреннего облучения персонала атомной промышленности.

УДК 544.772
ББК 24.6

© ФГБУН ЮУрИБФ ФМБА России, 2023
© Оформление. Издательство «Наукоемкие технологии», 2023

ISBN 978-5-907618-58-9

ОГЛАВЛЕНИЕ

Список сокращений и обозначений 7
Введение 9
1. Исследование дисперсности промышленных радиоактивных аэрозолей методом авторадиографии 13
1.1. Параметры распределений альфа-активных аэродисперсных систем 17
1.2. Определение плотности альфа-активных аэрозолей производственных участков плутониевого производства ПО «Маяк» 19
1.3. Оптикорадиографический метод определения дисперсности аэрозолей 23
1.3.1. Описание основных этапов оптикорадиографического метода 23
1.3.2. Источники неопределенностей оптикорадиографического метода 43
1.4. Дисперсный состав альфа-активных аэрозолей на плутониевом производстве ПО «Маяк». Результаты исследований 1969–1981 гг. 44
1.5. Дисперсный состав альфа-активных аэрозольных частиц на участках работы с америцием-241 и плутонием-238 59
Заключение 66
Приложение 1 68
Приложение 2 69
Список литературы к главе 1 71
2. Исследование дисперсного состава альфа-излучающих аэрозолей в воздухе рабочих помещений ПО «Маяк» методом инерционного осаждения 73
2.1. Материалы и методы 74
2.1.1. Исследования размеров промышленных альфа-излучающих аэрозолей 74
2.1.2. Выполнение измерений активности ^{241}Am и Pu в пробах аэрозолей 79
2.2. Результаты исследований 82
2.2.1. Дисперсность альфа активных аэрозолей завода РТ 84
2.2.2. Дисперсность альфа активных аэрозолей плутониевого завода 89
2.2.3. Изотопный состав 90
2.2.4. Дисперсность альфа активных аэрозолей плутониевого завода. Специальный отбор для оценки дисперсного состава аэрозолей воздуха рабочих помещений 92
Заключение 93
Список литературы к главе 2 94
3. Оценка скорости абсорбции плутония из респираторного тракта в кровь на основе данных о кинетике диализа промышленных альфа-излучающих аэрозолей 95
3.1. Задержка аэрозольных частиц в дыхательном тракте 96
3.2. Механизмы абсорбции плутония из респираторного тракта в кровь 98
3.3. Определение скорости абсорбции 102
3.3.1. Определение скорости абсорбции *in vivo* и *in vitro* 106
3.3.2. Методические подходы к определению растворимости *in vitro* 111
3.3.3. Растворители, применяемые в *in vitro* тестах 114

3.4. Классификация промышленных аэрозолей с различных рабочих участков ПО "Маяк" по показателю транспортабельности 117
3.4.1. Систематизация рабочих участков ПО "Маяк" по транспортабельности для практического применения в дозиметрии внутреннего облучения 120
3.4.2. Восстановление значений показателя транспортабельности в первые годы работы предприятия 126
3.5. Изучение скорости быстрой абсорбции промышленных аэрозолей плутония *in vitro* в различных имитантах легочной жидкости 132
Заключение 143
Список литературы к главе 3 145
4. Исследование процессов образования нанометровой фракции промышленных альфа-излучающих аэрозолей 150
4.1. Разработка метода выполнения детектирования промышленных альфа-излучающих наночастиц и измерения их размеров 151
4.1.1. Описание диффузионной батареи, использовавшейся в экспериментальных исследованиях 156
4.2. Исследования по разработке метода переноса наночастиц с поверхности сеток диффузионной батареи на поверхность трекового детектора 159
4.2.1. Облучение трековых детекторов в поле нейтронов 171
4.2.2. Подготовка проб к облучению 173
4.2.3. Краткое описание исследовательского ядерного реактора ИВВ-2М 178
4.2.4. Разработка оптимального метода травления трековых детекторов 181
4.2.5. Анализ полученных изображений треков на кремниевом стекле и оценка метрологических характеристик стекол как трековых детекторов 190
4.2.6. Экспериментальные исследования по совершенствованию метода отбора проб наночастиц 195
4.2.7. Теоретические исследования межкаскадного переноса наночастиц в процессе их отбора с использованием диффузионных батарей 198
4.3. Исследование активности нанометровой фракции промышленных альфа-излучающих аэрозолей воздуха рабочих помещений 207
4.3.1. Отбор проб 207
4.3.2. Измерение активности ^{241}Am частиц, уловленных диффузионной батареей 210
4.3.3. Анализ результатов измерений активности ^{241}Am в отобранных пробах 213
Заключение 218
Список литературы к главе 4 220
5. Метод детектирования промышленных альфа-излучающих наночастиц ^{239}Pu и измерения их размеров 221
5.1. Наночастицы и биологические объекты 222
5.1.1. Проблемы безопасности нанотехнологий 222
5.2. Разработка метода интерпретации визуализированных изображений треков 223
5.2.1. Терминология 223
5.2.2. Метод интерпретации визуализированных изображений треков 224

5.3. Совершенствование нейтронно-индуцированного метода измерения размеров наночастиц 247
5.3.1. Исследование динамики травления латентных треков деления 247
5.3.2. Уточнение величины критического угла 256
5.3.3. Оценка оптимальных режимов облучения трековых детекторов 257
5.4. Идентификация наночастиц ^{239}Pu, расположенных в толстом слое тканевых срезов 260
5.4.1. Разработка количественного критерия для отнесения группы треков к звезде 260
5.4.2. Первый алгоритм 264
5.4.3. Второй алгоритм 267
5.5. Моделирование поведения осколков деления ^{239}Pu в биологическом материале 270
5.5.1. Моделирование выхода осколков деления из биологической ткани 273
5.5.2. Моделирование взаимодействия осколков деления с материалом детектора 279
5.5.3. Вычисление координаты наночастицы в толстом слое 282
5.6. Исследование статистических характеристик распределения звезд по числу треков на основе экспериментальных результатов 290
5.7. Определение диаметра и стандартной неопределенности частицы $^{239}PuO_2$ 294
5.7.1. Способ определения количества ядер ^{239}Pu в частице 294
5.7.2. Оценка количества актов деления ^{239}Pu при использовании метода подсчета количества треков в сложной звезде 295
5.7.3. Проверка правильность оценки количества актов деления в сложной звезде 298
5.7.4. Общий подход к определению диаметра частицы $^{239}PuO_2$ и стандартной неопределенности размера 301
5.7.5. Определение диаметра частицы $^{239}PuO_2$, среда между мишенями – воздух 301
5.7.6. Стандартная неопределенность диаметра частицы $^{239}PuO_2$ в простой звезде, среда между мишенями – воздух 305
5.7.7. Стандартная неопределенность подсчета количества треков в сложной звезде, среда между мишенями – воздух 308
5.7.8. Стандартная неопределенность размера частицы при использовании метода подсчета количества треков в сложной звезде, среда между мишенями – воздух 310
5.7.9. Эффективность регистрации в простой звезде в толстом слое 311
5.7.10. Пример расчета эффективности регистрации для простой звезды в толстом слое 313
5.7.11. Стандартная неопределенность эффективности регистрации в толстом слое для простой звезды 314
5.7.12. Определение диаметра частицы $^{239}PuO_2$ в толстом слое для простой звезды 316
5.7.13. Стандартная неопределенность диаметра частицы $^{239}PuO_2$ в толстом слое для простой звезды 318

5.7.14 Стандартная неопределенность подсчета количества треков в сложной звезде в толстом слое 320
5.7.15 Определение диаметра частицы $^{239}PuO_2$ в толстом слое для сложной звезды 322
5.7.16 Стандартная неопределенность размера частиц в толстом слое для сложной звезды 323
Заключение 325
Список литературы к главе 5 327
6. Разработка метода выполнения измерений размеров промышленных наночастиц ^{239}Pu в тканях человека 329
6.1. Разработка модели взаимодействия осколков деления с материалом трекового детектора и определения оптимального флюенса нейтронов 330
6.2. Разработка и изготовление контейнера для облучения трековых детекторов 339
6.3. Нанесение срезов биологических тканей на кварцевые трековые детекторы 341
6.4. Облучение и дальнейшее травление трековых детекторов 342
6.5. Удаление клеевой основы скотча из срезов биологических тканей 345
6.6. Окрашивание срезов 347
6.7. Модернизация микроскопа Leica для работы в проходящем свете 351
6.8. Модернизация подложки для фотографирования детекторов 352
Заключение 356
Список литературы к главе 6 357
7. Исследование размеров промышленных наночастиц ^{239}Pu и их распределения в легких профессиональных работников, имевших контакт с открытыми источниками альфа-излучения 358
7.1. Материалы и методы 359
7.2. Результаты и обсуждение 371
Заключение 378
Список литературы к главе 7 380

СПИСОК СОКРАЩЕНИЙ И ОБОЗНАЧЕНИЙ

АМАД	– медианный по активности аэродинамический диаметр
АМТД	– медианный по активности термодинамический диаметр
БФЛ	– биофизическая лаборатория
ВАО	– высокоактивные отходы
ВНИИФТРИ	– Всероссийский научно-исследовательский институт физико-технических и радиотехнических измерений
ЖКТ	– желудочно-кишечный тракт
ИМУ	– информационно-методические указания
ИПЭ УрО РАН	– Институт промышленной экологии (ИПЭ) Уральского отделения Российской академии наук
ИСБД	– интерстициальный склероз бронхососудистого дерева
ИСРО	– интерстициальный склероз респираторного отдела
КДФ	– крупнодисперсная фракция
МВНК	– метод взвешенных наименьших квадратов
МДФ	– мелкодисперсная фракция
МКРЗ	– международная комиссия по радиологической защите
ММД	– массовый медианный диаметр
ММП	– метод максимума правдоподобия
НПДИ	– нижний предел детектирования измерения
НТР	– нормальный технологический режим
ООТ и РБ	– отдел охраны труда и радиационной безопасности
ОРР	– образцовый радиоактивный раствор
ОСГИ	– образцовый спектрометрический гамма-источник
ПО	– программное обеспечение
ПО «Маяк»	– производственное объединение «Маяк»
РР	– ремонтные работы
РТ	– регенерация топлива
СДФ	– среднедисперсная фракция
СИЧ	– спектрометр излучения человека
СКО	– среднеквадратичное отклонение
ТВЭЛ	– тепловыделяющий элемент
УПФ	– участок подготовки форм

ФИБ-1	– Филиал института биофизики №1
ФМБА	– Федеральное медико-биологическое агентство
ЮУрИБФ	– Южно-Уральский институт биофизики
PSF	– фаголизосомный имитант
SLF	– сыворотка легочной жидкости
SUF	– ультрафильтрат имитанта сыворотки

ВВЕДЕНИЕ

В конце сороковых годов для получения оружейного плутония с целью создания паритета в области ядерного оружия был построен и начал свою деятельность химический комбинат «Маяк». В первые годы работы предприятия на рабочих местах наблюдалась наиболее неблагоприятная радиационная обстановка, технологические операции по получению металлического плутония проводились в открытом виде в неприспособленных для радиохимических работ помещениях. Вследствие отсутствия знаний о воздействии радиоактивного излучения на организм человека и опасности повседневного контакта с радиоактивными материалами, начальный период деятельности ПО «Маяк» характеризовался массовым переоблучением людей. Отсутствие средств индивидуальной защиты органов дыхания при чрезвычайно высоких концентрациях альфа-излучающих аэрозолей, превышающих допустимые нормы в десятки тысяч раз, приводило к высоким уровням ингаляционного поступления плутония в организм персонала.

Для выполнения исследований в области воздействия ионизирующих излучений на человека и различные биологические объекты, а также для целей радиационной безопасности и охраны здоровья персонала предприятий атомной промышленности и населения, проживающего вблизи таких предприятий, в 1953 году был создан Южно-Уральский институт биофизики, тогда ФИБ-1, как первый филиал Московского института биофизики. В ФИБ-1 были образованы отделы радиационной безопасности, радиобиологии, клинический отдел для наблюдения за лицами из персонала, подвергшимися воздействию ионизирующего излучения. Для проведения экспериментальных исследований в области радиобиологии был создан виварий, в котором содержались несколько тысяч подопытных животных – крысы, кролики, собаки.

Одной из задач ученых института была разработка методов контроля и дозиметрии внутреннего облучения от инкорпорированного плутония, что напрямую связано с изучением поведения плутония в организме человека и физико-химических свойств промышленных аэрозолей.

Для решения проблем обеспечения контроля внутреннего облучения работников ПО «Маяк» в 1967 г. в ФИБ-1 была образована лаборатория дозиметрии внутреннего облучения, которую на протяжении 50-ти лет возглавлял д.б.н., профессор В.Ф. Хохряков.

Дозиметрия инкорпорированных нуклидов основана на результатах определения содержания радиоактивных веществ в организме человека с использованием прямого метода измерения гамма-излучения нуклида в теле человека и косвенного метода, основанного на интерпретации результатов измерений активности радиоактивных веществ в экскретах с учетом их кинетики в организме.

На базе накопленных данных о скорости выведения плутония, а также о распределении плутония в органах и тканях бывших работников ПО «Маяк», полученных в ходе радиохимического анализа аутопсийного материала, была разработана первая приближенная биокинетическая модель метаболизма промышленных соединений плутония в организме человека (В. Ф. Хохряков). Модель опиралась на данные об обмене плутония в дыхательном тракте и данные об экскреции с мочой в условиях профессионального контакта с актинидами. Основная идея модели заключалась в разделении промышленных альфа-активных аэрозолей по их физико-химическим характеристикам на классы растворимости.

При ингаляционном поступлении радионуклидов в организм человека первоначальное их отложение в различных отделах дыхательного тракта определяется размером аэрозольных частиц, а процесс очищения дыхательного тракта, т.е. переход из легких в кровяное русло, в значительной мере зависит как от химической формы материала, из которого образуются аэрозольные частицы, так и от размера вдыхаемых частиц. Следовательно, без информации о физико-химических свойствах аэрозолей плутония невозможно корректно оценить уровни облучения органов основного депонирования, обусловленных ингаляционным поступлением плутония.

Масштабные исследования дисперсного состава промышленных аэрозолей плутония в рабочих помещениях основного производства ПО «Маяк» начали проводиться с середины 1960-х, когда остро стояла задача обеспечения оптимально безопасных условий труда для работающих в контакте с соединениями плутония. Полученные знания широко применялись при создании системы мониторинга внутреннего облучения.

Характерной особенностью альфа-распада является возникновение ядер отдачи, взаимодействие которых с атомами кристаллической решетки твердой фазы радиоактивного вещества приводит к образованию фрагментов, размером от единиц до десятков нанометров. Собственные предварительные исследования показали, что наночастицы вносят значимый вклад в суммарную удельную активность промышленных альфа-излучающих аэрозолей воздуха рабочих помещений.

Известно, что наночастицы при их поступлении в организм могут нанести существенный ущерб здоровью человека. Ни в России, ни за рубежом исследований радиационной опасности, а также влияния наночастиц альфа-излучающих актинидов на здоровье человека не проводилось. Имеются отдельные публикации, указывающие на существование наночастиц плутония, но практически полностью отсутствуют научные данные о метаболизме и степени радиационной опасности актинидов, поступающих в организм человека в виде наночастиц.

Настоящая монография подготовлена коллективом авторов Южно-Уральского института биофизики (ЮУрИБФ), она состоит из 7 глав, в которых в логической последовательности обобщены результаты исследований дисперсности и транспортабельности аэрозолей с производственных участков ПО «Маяк», а также современные материалы о свойствах аэрозолей плутония нанометровых размеров и их распределении в легких профессиональных работников.

Первые две главы монографии посвящены методологии оценки размеров аэрозольных частиц. Подробно рассматриваются авторадиографический и инерционный методы определения дисперсности аэрозолей, полученные этими методами экспериментальные значения АМАД, характерные для участков основных производств ПО «Маяк» в 1970-х, 1980-х, 1990-х и 2000-х годах.

В третьей главе изложены результаты исследований показателя транспортабельности аэрозолей на радиохимическом и плутониевом производствах, начиная с первых лет деятельности ПО "Маяк", рассмотрены закономерности его изменения в зависимости от технологических процессов. Важное внимание в главе уделяется оценке радиобиологического параметра, определяющего скорость абсорбции плутония из легких в кровь на ранней стадии легочного клиренса. Уточнение данного параметра на основании сравнительных оценок с имеющимися литературными данными о скорости удаления соединений плутония типа нитрата из легких в кровь человека имеет бесспорное практическое значение, поскольку быстрая фаза определяет до 15% от всей дозы внутреннего облучения органов основного депонирования при ингаляционном поступлении нуклида.

Главы с 4 по 7 посвящены методам и результатам исследований процессов образования аэрозолей плутония нанометрового диапазона, их физико-химических свойств и определению размеров частиц в тканях человека, выполненных уже в 2010-х гг.

В настоящее время реализация ядерных технологий нового поколения требует применения новых видов топлива (смешанное нитридное уран-плутониевое, смешанное оксидное уран-плутониевое и т.д.), содержащих в своем составе плутоний, поэтому проблемы обеспечения радиационно-гигиенической безопасности при изготовлении и работе с новыми видами топлива, а, следовательно, задачи дозиметрии внутреннего облучения от плутония не теряют своей актуальности. В связи с этим материалы монографии будут полезны для применения в современных биокинетических моделях и при дальнейшем совершенствовании методов интерпретации результатов косвенной дозиметрии плутония, связанных с количественными закономерностями транспорта инкорпорированного нуклида в организме работников, что позволит уменьшить неопределенности индивидуаль-

ных дозовых оценок, опираясь на информацию о дисперсности и растворимости аэрозольных частиц на конкретном рабочем участке и улучшить современную систему обеспечения радиационной безопасности при работе с соединениями плутония. Методические подходы к исследованию растворимости и дисперсности аэрозолей плутония, содержащих частицы различного размера, изложенные в монографии, представляются весьма важными как в теоретическом, так и практическом отношении, так как могут быть использованы для исследований метаболизма радионуклидов в организме человека, а также в практике мониторинга внутреннего облучения на различных предприятиях ядерно-топливного цикла Росатома.

Книга выпущена при финансовой поддержке ФМБА России.

1. ИССЛЕДОВАНИЕ ДИСПЕРСНОСТИ ПРОМЫШЛЕННЫХ РАДИОАКТИВНЫХ АЭРОЗОЛЕЙ МЕТОДОМ АВТОРАДИОГРАФИИ

Р. В. Мелентьева, Е. Е. Аладова

Радиоактивные аэрозоли, присутствующие в воздушной среде рабочих помещений предприятий атомной отрасли, могут являться источником облучения персонала.

При ингаляционном поступлении радиоактивных аэрозолей в организм человека их первоначальное отложение в различных отделах дыхательного тракта определяется размером аэрозольных частиц. Характер первоначального отложения радионуклидов в свою очередь определяет уровни облучения тех или иных органов и тканей. Для оценки доз внутреннего облучения при ингаляционном поступлении радионуклида, в частности, необходима информация о параметрах распределения радиоактивности по размерам частиц аэрозоля.

По своему происхождению аэрозоли, загрязняющие воздушное пространство рабочих помещений, подразделяются на дисперсные, образующиеся при измельчении радиоактивных веществ, и конденсационные, возникающие вследствие конденсации при их испарении, и представляют собой полидисперсные системы со сложной морфологией аэрозольных частиц.

Полидисперсный аэрозоль содержит частицы разных размеров, причем размер частиц находится в пределах от некоторой максимальной до определенной минимальной величины в зависимости от условий производственного процесса.

Тот факт, что при одинаковых значениях концентрации радиоактивных аэрозолей во вдыхаемом воздухе и ритме поступления, в зависимости от размеров аэрозольных частиц отложение радиоактивного вещества в верхних дыхательных путях может различаться более чем в 2,5 раза, а в альвеолах до 10 раз [1], говорит о том, что для корректной оценки доз облучения необходимо знать реальное значение размера частиц аэрозолей и их активность в помещениях, где проводятся работы с тем или иным радиоактивным веществом.

Исследования дисперсности аэрозолей плутония на различных радиационно-опасных предприятиях, которые проводились зарубежными исследователями еще в годы становления атомной промышленности – в конце 1950-х, 1960-х гг., показали, что значения активного медианного аэродинамического диаметра (АМАД) могут лежать в широком диапазоне: от 0,1 до 80 мкм [2, 3, 4–7]. Например, величина АМАД аэрозолей

в помещениях предприятия по переработке ядерного топлива в Харуэлле по данным D.Stevens [5] менялась от 3,5 до 6,0 мкм (таблица 1.1).

Таблица 1.1 – Характеристика дисперсности аэрозолей в помещениях предприятия по переработке ядерного горючего в Харуэлле [5]

Помещения	Альфа-активные аэрозоли		Бета-активные аэрозоли	
	АМАД, мкм	β_g	АМАД, мкм	β_g
для сжигания радиоактивных отходов	5,0	2,5	5,0	2,6
для концентрирования жидких радиоактивных отходов	6,0	3,0	6,0	3,0
для дезактивации оборудования	3,5	4,3	5,0	3,4
для обработки высокоактивных материалов в защитной камере	–	–	4,7	2,9

В помещениях плутониевого завода в Уиндскейле [7] величина АМАД также составляла 3,5–6,0 мкм.

По данным [3, 4, 7] плутониевые аэрозоли при нормальных условиях работы оборудования часто характеризовались довольно малыми размерами. Авторы работы [7] установили, что массовый медианный диаметр (ММД) альфа-активных аэрозолей, образующихся в процессе механической и химической обработки плутония (при дроблении, растворении, восстановлении до металлического плутония), составлял 0,88 мкм со стандартным геометрическим отклонением 2,02.

Исследователи из Лос-Аламосской национальной лаборатории определили, что ММД для плутониевой пыли имел значение 0,3–0,5 мкм с геометрическим стандартным отклонением 2,0 во всех изученных случаях [3].

Исследования B. Andersen [9] показали, что в рабочих помещениях Хэнфордского комплекса, построенного в 1943 году в рамках Манхэттенского проекта, присутствовали частицы с ММД, равным 1 мкм. Диапазон ММД исследованных образцов аэрозолей составлял от 0,1 до 4,2 мкм, с преобладанием частиц размером 1 мкм.

В работе R. I. Brunskell and F. Hoff [6] отмечено, что при аварийных ситуациях наблюдалось возрастание среднего размера аэрозольных частиц. Измерения размера частиц аэрозолей, образовавшихся в перчаточном боксе при проведении операции с

плутонием, показали, что массовый медианный диаметр частиц составил 4,1 мкм при стандартном геометрическом отклонении 2,36.

Обширная программа изучения радиоактивных аэрозолей была осуществлена в радиохимических лабораториях научно-исследовательского центра по атомной энергии в Харуэлле [10]. Было обнаружено, что в половине исследованных проб аэрозолей большая часть активности была связана с отдельными «горячими» частицами плутония. Активность «горячих» частиц в 10^4–10^5 раз превышала среднюю активность аэрозольных частиц. По мнению авторов [10], первоначальная неактивная аэрозольная частица становилась радиоактивной в результате адгезии к ее поверхности более мелкой частицы плутония или равномерного загрязнения поверхностного слоя неактивной частицы. Встречались альфа-активные частицы, целиком состоящие из плутония или его соединений. Поэтому удельная активность материала плутониевых аэрозолей изменялась в широких пределах.

Детальные исследования дисперсного состава радиоактивных аэрозолей в помещениях плутониевого завода в Хэнфорде (таблица 1.2) представлены в работе [11]. Из таблицы 1.2 видно, что дисперсный состав радиоактивных частиц имеет два распределения: для мелкодисперсной и среднедисперсной фракций, у которых величина АМАД отличается в несколько раз, что указывает на бимодальное распределение в виде двух логнормальных распределений. Исследования дисперсного состава радиоактивных аэрозолей при работе с обогащенным ураном также показали наличие в воздухе средне- и мелкодисперсных аэрозолей [12].

Первые оценки дисперсности альфа-активных аэрозолей, присутствовавших в воздухе рабочих помещений на производственных участках ПО «Маяк», были сделаны специалистами ФИБ-1 (ЮУрИБФ) и ПО «Маяк» в конце 1960-х гг.

В работе В.И. Бадьина с соавт. [13] описана методика трековой авторадиографии. Применяя трековую авторадиографию в комплексе с микроскопом, авторы изучали аэрозольные частицы, содержащие альфа-излучающие радионуклиды. Таким образом, метод авторадиографии в сочетании с различными техническими приемами и другими методами дал возможность не только регистрировать, но и определять величину активности частиц.

Используя способность авторадиограмм к длительному хранению, в 1980-х гг. был выполнен ретроспективный анализ аэрозольных проб, отобранных с 1969 по 1974 гг., и уточнены ранее полученные данные по дисперсности исследуемых аэрозольных частиц.

Таблица 1.2 – Объемная активность и дисперсность аэрозолей в помещениях плутониевого завода в Хэнфорде [10]

Типы помещения	Объект	Концентрация $\times 10^{-4}$ Бк/м^3	Мелкодисперсная фракция			Среднедисперсная фракция		
			Доля фракции от суммарной активности	АМАД, мкм	β_g	Доля фракции от суммарной активности	АМАД, мкм	β_g
Рабочие помещения	Отделение по очистке и обработке плутония	11,4	0,48	0,24	1,36	0,52	2,46	1,36
	Отделение по металлургической обработке плутония	7,6	0,52	0,27	1,29	0,48	2,51	1,32
	Исследовательская лаборатория	2,4	0,78	0,18	1,61	0,22	2,16	1,20
Административные помещения	Отделение по очистке и обработке плутония	1,6	0,88	0,16	1,35	0,12	1,29	1,19
	Отделение по металлургической обработке плутония	1,0	0,76	0,16	1,62	0,24	1,83	1,17
	Исследовательская лаборатория	1,4	0,78	0,14	1,47	0,22	1,45	1,30

Аэрозольные пробы, отобранные в период 1977–1981гг., изучались уже оптикорадиографическим методом, позволяющим определить размеры мелкодисперсных аэрозолей и аэрозолей с высоким уровнем активности.

К достоинствам оптикорадиографического метода следует отнести высокую чувствительность, наглядность и разрешающую способность. В 1970-е – 80-е года это был единственный прямой метод, который, несмотря на все субъективные ошибки, позволял получать информацию о дисперсности аэрозолей на производстве. Однако, большая трудоемкость процесса микроскопического исследования аэрозольных образцов (подсчет количества треков и определение диаметра частиц), а также сложная математическая обработка большого объема полученного цифрового материала, а в те времена это делалось вручную с помощью логарифмической линейки, не позволили этому методу найти широкое применение в практической дозиметрии.

1.1. Параметры распределений альфа-активных аэродисперсных систем

Отложение аэрозолей является начальным процессом, определяющим какое количество радиоактивного материала останется в респираторном тракте после выдоха. Осаждение аэрозольных частиц может иметь место, как при вдохе, так и при выдохе. Поведение аэрозольной частицы в респираторном тракте будет преимущественно определяться ее размерами, формой и плотностью, но наиболее значимым фактором, является размер.

В зависимости от размера частиц аэрозоли условно подразделяют на мелкодисперсные (менее 0,1 мкм), среднедисперсные (0,1–10 мкм) и крупнодисперсные (более 10 мкм).

Размер аэрозольной частицы определяет какой процесс при ее осаждении на стенки респираторного тракта будет доминирующим:

- гравитационное осаждение (седиментация);
- инерционное осаждение;
- диффузионное осаждение (броуновское движение).

Седиментация и инерционное осаждение являются аэродинамическими эффектами, которые становятся значимыми при диаметре аэрозолей более 0,1 мкм. Диффузионное осаждение, обусловленное броуновским движением, является термодинамическим эффектом, проявляется при диаметре частиц менее 1 мкм и становится более выраженным по мере уменьшения диаметра аэрозолей. Аэродинамические эффекты пренебрежимо малы для аэрозолей с малым диаметром. Аналогично для частиц с достаточно большими размерами влияние термодинамических эффектов пренебрежимо мало. Для аэрозолей

диаметром от 0,1 до 1,0 мкм наблюдается сопоставимое влияние термодинамических и аэродинамических эффектов на процессы осаждения.

Дисперсность аэрозольных частиц во вдыхаемом воздухе может быть различной – от тысячных долей микрона до десятков микрон. Для размера радиоактивных аэрозолей имеет значение характер их образования. При коагуляции активность аэрозольных частиц прямо пропорциональна их радиусу. Если частицы абсорбируются на субмикроскопических пылинках, то активность каждой пылинки пропорциональна ее поверхности. При распылении твердого или жидкого радиоактивного вещества активность обычно пропорциональна объему частицы. В реальных условиях приходится иметь дело с полидисперсными аэрозолями, где не всегда объем частицы характеризует ее активность. В этом случае для оценки биологического эффекта – задержки частиц в органах дыхания и облучения легочной ткани, важное значение имеет медианный аэродинамический диаметр распределения аэрозолей по активности (АМАД) или медианный по активности термодинамический диаметр (АМТД).

АМАД является характеристикой статистического распределения активности полидисперсного аэрозоля по аэродинамическому диаметру d_{ae}. Половина активности рассматриваемого аэрозоля ассоциирована с частицами, которые имеют d_{ae} больший, чем АМАД. Применяется, когда доминирующими механизмами, определяющими отложение в органах дыхания, являются инерционное и гравитационное осаждение, как правило, при АМАД, больших 0,5 мкм.

Медианный по активности термодинамический диаметр (АМТД) – характеристика статистического распределения активности полидисперсного аэрозоля по термодинамическому диаметру d_{th}. Половина рассматриваемой активности ассоциирована с частицами, которые имеют d_{th} больший, чем АМТД. Применяется, когда доминирующим механизмом, определяющим отложение в дыхательной системе, является диффузия, как правило, при АМТД, меньших 0,5 мкм.

Аэродинамический диаметр (d_{ae}) – диаметр сферической частицы единичной плотности (1 г·см$^{-3}$), имеющий такую же скорость гравитационного осаждения, как и рассматриваемая аэрозольная частица.

При отсутствии фактических данных предполагается логнормальное распределение частиц.

В конце 1960-х начале 1970-х годов при исследовании аэрозольных образцов, отобранных в производственных помещениях ПО «Маяк», определялись только параметры счётных распределений частиц по размерам и по активности:

D_g – счетный медианный геометрический диаметр аэрозольных частиц;

β_g – стандартное геометрическое отклонение, характеризующее разброс значений D_g;

A_g – активность аэрозольных частиц диаметра D_g;

β_{Ag} – стандартное геометрическое отклонение, характеризующее разброс значений A_g.

Кроме того, определялись соотношения мелко-, срелне- и крупнодисперсных аэрозолей по количеству частиц и их активности.

По мере усовершенствования оптикорадиографического метода, изучались не только параметры счётных распределений по размерам и по активности, но и параметры распределений активности по размерам аэрозольных частиц:

D_{ag} – активный медианный диаметр, определяемый из распределения активности по диаметрам частиц, мкм;

β_{ag} – стандартное геометрическое отклонение, характеризующее разброс значений D_{ag}.

Параметр D_{ag} дает возможность определить активный медианный аэродинамический диаметр (АМАД) согласно формуле:

$$АМАД = 0,75 \cdot Dag \cdot \sqrt{\rho} \qquad (1.1)$$

где ρ – плотность частиц аэрозоля, г/см^3.

Методы определения плотности изучаемых аэрозолей будут рассмотрены в следующем разделе.

1.2. Определение плотности альфа-активных аэрозолей производственных участков плутониевого производства ПО «Маяк»

Плотность аэрозольных частиц может существенно отличаться от плотности радионуклида, из которого они образуются. Это особенно характерно для аэрозолей, возникающих при конденсации с последующей коагуляцией, и аэрозолей, содержащих агрегаты сложной формы. Кроме того, взвешенные в воздухе частицы всегда содержат большое количество разнообразных примесей, что также ведет к изменению плотности аэрозольных частиц. Если плотность исходного вещества можно найти в многочисленных таблицах и справочниках [22], то плотность аэрозольных частиц приходится определять или рассчитывать, используя при этом косвенные и прямые методы. Косвенные данные о плотности аэрозольных частиц можно получить на основе определения изотопного состава и радиоактивности, а также рентгеноспектрального и нейтронно-активационного анализа. Однако при этом из-за отсутствия информации о состоянии твердых частиц (кристаллическое или аморфное и т. п.), а также об относительной объемной доле микрополостей (раковин, микротрещин, пор и т. п.) могут быть

получены неточные результаты [23]. По данным Фрейлинга и других [24] доля объема частиц, занимаемая газовыми вкраплениями, составляет примерно от 5 до 44%.

В работе [25] описаны методы прямого определения плотности твердых веществ, которые можно применить к промышленным аэрозолям. Из них чаще использовались: пикнометрический метод, в основе которого лежит закон Архимеда; метод определения плотности аэрозольных частиц по установившейся скорости их оседания в жидкости (закон Стокса), и, наконец, метод сравнения исследуемых аэрозолей со стандартными аэрозолями, плотность которых известна при одинаковых условиях осаждения.

Несмотря на простоту, пикнометрический метод не всегда пригоден для промышленных аэрозолей, так как для определения плотности требуется большое количество аэрозольных частиц (порядка 10 мг), которое очень трудно отобрать на фильтр при их малой концентрации в рабочих помещениях.

Метод определения плотности по установившейся скорости движущихся аэрозолей в жидкости тоже имеет свои трудности. В основном это касается подбора жидкости и наблюдения мелких (несколько мкм) аэрозольных частиц, движущихся в жидкости.

Наиболее приемлемым для определения плотности аэрозолей, отобранных на технологических участках ПО «Маяк», оказался метод, основанный на сравнении медианных диаметров изучаемых промышленных и стандартных аэрозолей.

Этот метод состоит из следующих последовательных стадий:

– отбор импактором проб воздуха, содержащих исследуемые аэрозоли;

– отбор импактором стандартных аэрозолей известной плотности, полученных с помощью ультразвукового генератора аэрозолей;

– измерение размеров исследуемых аэрозолей с помощью микроскопа и определение их плотности по формуле:

$$p_1 = \frac{D_2^2}{D_1^2} \cdot p_2 \qquad (1.2)$$

где p_1 – плотность исследуемых аэрозолей, г/см^3;

p_2 – плотность стандартных аэрозолей, г/см^3;

D_1 – медианный диаметр исследуемых аэрозолей, мкм;

D_2 – медианный диаметр стандартных аэрозолей, мкм.

Аэрозоли для исследований плотности отбирались с участков химико-металлургической переработки плутония на пятикаскадный импактор. Скорость прокачки составляла 10 л/мин. В таблице 1.3 приведены технические характеристики импактора.

Таблица 1.3 – Технические характеристики пятикаскадного импактора

Номер каскада	Диаметр сопла, мм	Расстояние между соплами и мишенью, мм	Скорость воздушного потока в сопле, м/с
1	8,0	6,0	3,5
2	4,5	5,0	10,4
3	3,5	4,0	17,3
4	2,0	3,5	53,0
5	1,5	3,0	95,0

Пять каскадов инерционного осаждения (стеклянные подложки) и конечный фильтр обеспечивают сепарацию исходных аэрозольных частиц на 6 фракций. Медианные значения диаметров аэрозольных частиц, осевших на каждой из 5 ступеней импактора, определялись с помощью оптического микроскопа МБИ-11. Медианное значение диаметров аэрозолей, осевших на конечный фильтр, определялись оптикорадиографическим методом. Таким же образом определялись значения медианных диаметров по ступеням и для стандартных аэрозолей, скорость осаждения которых совпадала со скоростью осаждения исследуемых аэрозолей.

В качестве стандартных аэрозолей для градуировки многокаскадного импактора применялись аэрозоли дистиллированной воды, окрашенной чернилами с плотностью 1 г/см^3. Источником получения стандартных аэрозолей служил ультразвуковой генератор УЗГ-2. Распределение как активной, так и неактивной фракций аэрозолей, осажденных на подложку каждой ступени многокаскадного импактора, совпадало. Для каждой ступени импактора были построены распределения стандартных частиц по размерам и найдены их медианы:

$$\overline{D_q} = \sqrt[N]{D_1^{N_1}, D_2^{N_2} \dots D_i^{N_i}} \tag{1.3}$$

где $\overline{D_q}$ – медиана распределения диаметров частиц;

N – общее число частиц аэрозолей;

N_i – количество частиц, размеры которых лежат в интервале D_i;

или

$$\log \overline{D_q} = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^{N} N_i \cdot \log D_i \tag{1.4}$$

В таблице 1.4 представлены данные оптической градуировки импактора.

Аналогично определялись медианные значения диаметров частиц аэрозолей, отобранных с помощью импактора на участках химико-металлургической переработки плутония (таблица 1.5).

Таблица 1.4 – Данные оптической градуировки пятикаскадного импактора

Номер каскада	1	2	3	4	5	Конечный фильтр
Размер частиц, задержанных данным каскадом, мкм	15–35	7–20	5–8	3–6	1–4	0,5–2
Медианные значения диаметров частиц стандартных аэрозолей, мкм	25	13	6	4	2,3	1,5

Таблица 1.5 – Медианные значения диаметров аэрозольных частиц с участка химико-металлургической переработки плутония, осажденных на каскадах импактора

Номер каскада	1	2	3	4	5	Конечный фильтр
Медианные значения оптического диаметра частиц, мкм	12,0	7,0	3,5	2,4	1,5	0,8

Плотность аэрозолей на изучаемых участках (таблица 1.6) рассчитывалась по формуле (1.2) с использованием данных таблиц 1.4 и 1.5.

Таблица 1.6 – Плотность аэрозолей с участка химико-металлургической переработки плутония

Номер каскада	1	2	3	4	5	Среднее значение
Плотность аэрозолей, г/см^3	4,3	3,4	2,9	2,5	2,8	3,2±0,5

Из таблицы 1.6 видно, что плотность промышленных аэрозолей не совпадает с плотностью трансплутониевых элементов, формирующих их активность, что свидетельствует о наличии примесей, входящих в состав частиц аэрозолей.

Похожие результаты оценки плотности аэрозолей получены и на участках по выделению плутония-239 на радиохимическом производстве (таблица 1.7).

Таблица 1.7 – Плотность промышленных аэрозолей на плутониевом участке радиохимического производства

Номер каскада	1	2	3	4	5	Среднее значение
Плотность аэрозолей, г/см^3	2,82	2,70	2,74	3,16	2,98	2,88±0,25

Из таблиц 1.6 и 1.7 видно, что плотность аэрозольных частиц, осаждённых на ступени импактора, можно принять равной 3,0 г/см^3.

Значения медианных диаметров и плотность исследуемых мелкодисперсных аэрозолей на конечном фильтре импактора представлены в таблице 1.8.

Таблица 1.8 – Плотность и значения медианных диаметров аэрозольных частиц мелкодисперсной фракции

№ образца	Медианный диаметр		Плотность	
	D_2 (мкм)	D_1 (мкм)	p_2 (г/см^3)	p_1 (г/см^3)
1	1,4	0,40	1,0	12,25
2	1,4	0,43	1,0	10,60
3	1,4	0,45	1,0	9,68
4	1,4	0,50	1,0	7,84
Среднее значение	–	–	–	10,09±1,34

Согласно таблице 1.8 плотность аэрозольных частиц, осажденных на конечный фильтр импактора, можно принять равной ≈ 10,0 г/см^3.

Используя данные таблиц 1.4 и 1.5, где D_2 = 1,5 мкм – медиана распределения частиц стандартного аэрозоля, а D_1 = 0,8 мкм – медиана распределения радиоактивных и неактивных частиц по оптическому диаметру, рассчитали плотность аэрозоля с участка химико-металлургической переработки плутония, осажденного на конечном фильтре многокаскадного импактора, по формуле (1.2). Согласно расчетам p_1 равно 3,5 г/см^3.

В дальнейшем при расчетах АМАД аэрозольных частиц, отобранных с различных производственных участков ПО «Маяк», принималось, что для аэрозолей грубодисперсной и среднедисперсной фракций их плотность составляет 3 г/см^3, для аэрозолей мелкодисперсной фракции – 10 г/см^3.

1.3. Оптикорадиографический метод определения дисперсности аэрозолей

1.3.1. Описание основных этапов оптикорадиографического метода

Оптикорадиографический метод заключается в обнаружении радиоактивных аэрозольных частиц с помощью фотографического изображения в ядерной эмульсии в специально приготовленных образцах аэрозолей и исследовании образцов с помощью оптического микроскопа. Метод состоит из следующих основных этапов:

1. Отбор аэрозольной пробы на воздушный фильтр.

2. Просветление воздушного фильтра с отобранной пробой аэрозоля в парах ацетона.
3. Нанесение ядерной эмульсии.
4. Экспозиция образцов.
5. Проявка образцов.
6. Просмотр препаратов на микроскопе – измерение диаметра аэрозольных частиц, подсчет количества треков.
7. Математическая обработка цифрового материала, нахождение параметров счетного распределения, распределения активности по размерам частиц.
8. Расчет АМАД.

Подробно остановимся на технической стороне каждого из вышеперечисленных этапов.

1.3.1.1. Подготовка аэрозольного фильтра к авторадиографическому анализу

При авторадиографическом методе изучения аэрозолей необходимо, чтобы в течение экспозиции эмульсия находилась в хорошем контакте с аэрозольными частицами, не затекала между образцом и предметным стеклом и не деформировалась при проявлении и последующих процессах обработки. Поэтому перед просветлением аэрозольного фильтра на стеклянную подложку наносился очень тонкий слой желатина, который благодаря своим сцепляющим свойствам обеспечивал надежное прилипание фильтра к подложке, а желатин, содержащийся в ядерной эмульсии Kodak Type NTB-3, используемой исследованиях, предохранял эмульсию от деформации на всех стадиях ее обработки.

Хорошо высушив, наклеенные на предметные стекла части фильтра помещались в чашку Петри с ацетоном, где фильтры находились в насыщенных парах растворителя в течение 40–50 мин до их полного просветления. За время просветления толщина фильтра уменьшалась до 20–15 мкм, поверхность становилась гладкой, а сам фильтр - прозрачным. Погружение фильтра в эмульсию производилось примерно через сутки после процедуры просветления, так как вес фильтра, увеличивающийся за время обработки на 15–20%, должен уменьшиться до первоначальной величины.

1.3.1.2. Подготовка авторадиограмм

Техника авторадиографии состояла из трех основных этапов: нанесение эмульсии на просветленный фильтр, экспозиция образца и фотообработка ядерной эмульсии. Для выполнения указанных этапов необходимо приготовить ядерную эмульсию, проявитель,

закрепитель и другие фотореактивы, составы которых приведены в Приложении 1. Последовательность процедуры погружения препаратов в эмульсию представлена в Приложении 2. После покрытия ядерной эмульсией, образец помещался в светонепроницаемую черную коробку, которая с целью снижения радиационного фона, обусловленного вкладом радона и его продуктов распада, запечатывалась в Mylar мешок, и экспонировалась. Время экспонирования образца может длиться от 3-х часов до 30 суток.

Последним этапом обработки является фиксирование, промывка и сушка образцов. Готовые образцы в виде авторадиограмм используются для определения диаметра и активности частиц альфа-активного аэрозоля под микроскопом. На рисунках 1.1–1.4 представлены авторадиограммы с изображением альфа-активных частиц, различающихся по форме, размерам и активности.



Рисунок 1.1 – Авторадиограмма альфа-активной аэрозольной частицы с 30 треками

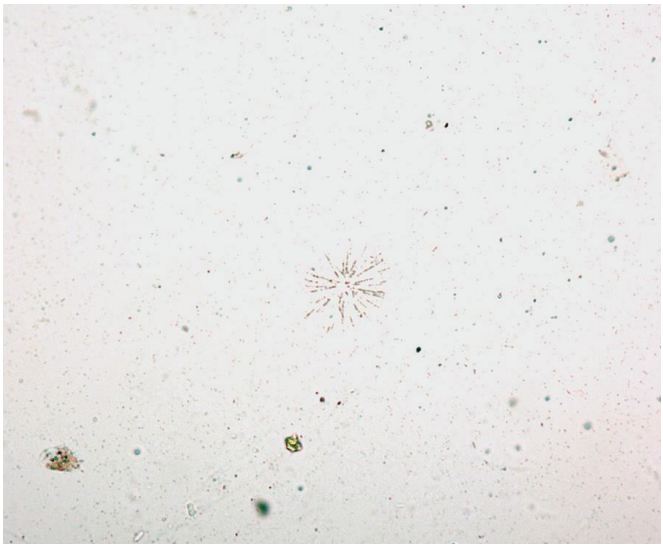


Рисунок 1.2 – Авторадиограмма альфа-активной аэрозольной частицы в виде бесцентровой звезды

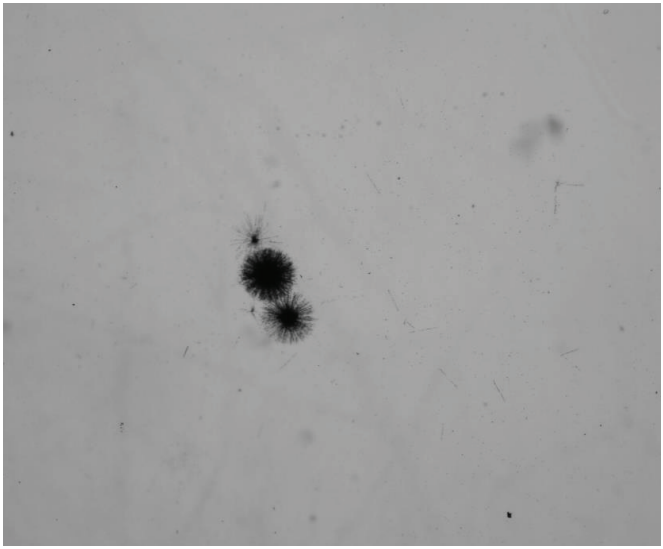


Рисунок 1.3 – Авторадиограмма высокоактивных аэрозольных частиц в виде «паука» и единичные треки

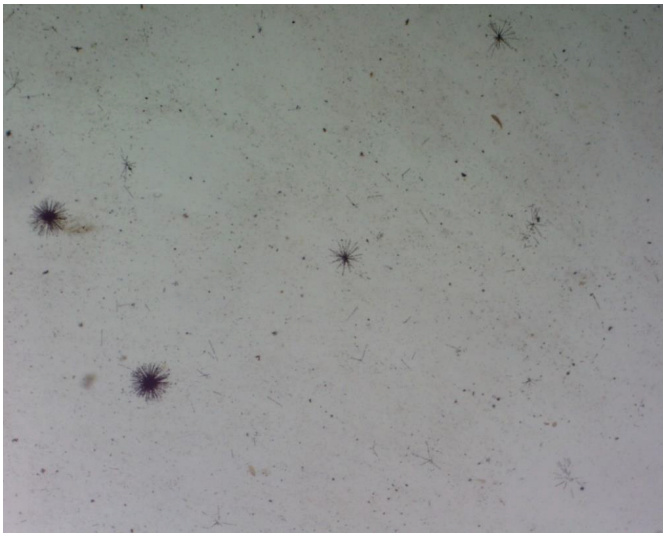


Рисунок 1.4 – Авторадиограмма с альфа-активными аэрозольными частицами различного диаметра и активности, единичные треки

1.3.1.3. Техника определения размеров частиц с помощью оптического микроскопа

В 1970–80 гг. определение линейных размеров аэрозольных частиц проводилось путем их непосредственного измерения под микроскопом. В те годы применялись микроскопы типа МБИ-6 или МБИ-3, диаметр частиц измерялся с помощью окулярного винтового микрометра типа АМ-9-2, который надевался и закреплялся винтом на тубусе микроскопа.

Отсчетный механизм микрометра, позволяющий производить измерения в поле зрения, состоял из неподвижной шкалы с ценой деления 1 мм и подвижной сетки с перекрестием, расположенным в фокальной плоскости окуляра, а также микрометрического винта с отсчетным барабаном, одно деление которого равно 0,01 мм. Перекрестие служило для наводки на объект, а риски для производства отсчетов.

Предварительно с помощью объект-микрометра с ценой деления 0,01 мм определяли цену деления шкалы барабана. Цена деления микрометрического винта при окуляре х15 и объективе х20 составляла 0,3 мкм [14].

С помощью препарат-водителя микроскопа подводили одну сторону частицы к любому делению шкалы и определяли сколько делений шкалы микрометрического винта занимает частица, диаметр которой определяли по формуле:

$$D = n \cdot c_0 \qquad (1.5)$$

где n – число делений шкалы микрометрического винта, которое занимает изображение частицы;

c_0 – цена деления микрометрического винта в мкм;

D – диаметр частицы в мкм.

В современных цифровых микроскопах определение линейных размеров объектов проводится автоматически. Предварительно с помощью объект-микрометра проводится калибровка цифровой системы визуализации микроскопа. Цифровая система визуализации микроскопа состоит из Программного Обеспечения (ПО) и цифровой камеры. Для того, чтобы в ПО появилась возможность измерения и анализа изображений, определяется коэффициент пересчета размера микрообъекта, измеренного в условных единицах «Пиксель» (разрешение цифровой камеры), в размеры метрической системы СИ (мкм, нм или мм). Сняв изображение шкалы объект-микрометра при каждом рабочем увеличении микроскопа и указав известное расстояние в режиме калибровки, задается коэффициент пересчета на реальные единицы длины в системе СИ. Цифровое изображение аэрозольных частиц плутония с автоматическим указанием их диаметра представлено на рисунках 1.5–1.6.



Рисунок 1.5 – Цифровое изображение альфа-активной аэрозольной частицы плутония d = 6,43 µm с 47 треками. Отбор пробы воздуха из помещения плутониевого производства ПО «Маяк»

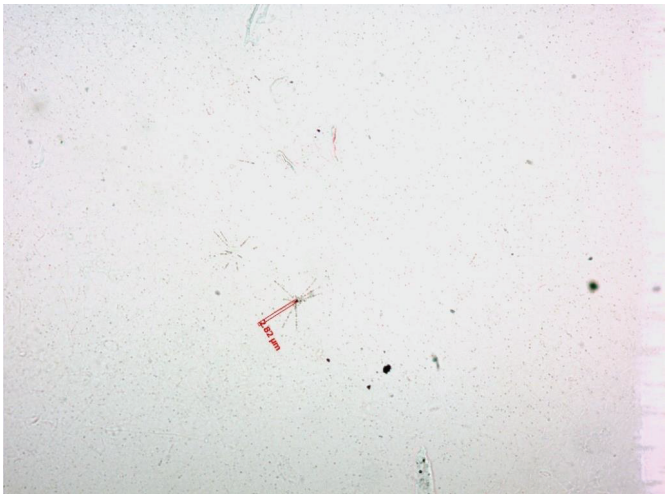


Рисунок 1.6 – Цифровое изображение альфа-активной аэрозольной частицы плутония d = 2,82 µm с 9 треками.
Отбор пробы воздуха из помещения плутониевого производства ПО «Маяк»

После измерения диаметра, с помощью микроскопа считается количество треков вблизи исследуемой аэрозольной частицы, затем рассчитывается активность А частицы:

$$A = 11,57 \cdot 10^{-6} \cdot \frac{N}{t\eta F}, \text{ Бк/частица} \qquad (1.6)$$

где N – число зарегистрированных вокруг частицы треков;

t – время экспозиции образца в сутках;

η – коэффициент, учитывающий самопоглощение аэрозольных частиц;

F – поправка на невидимые треки.

Коэффициенты η и F зависят от размера активных частиц и от максимального пробега альфа-частиц в веществе промышленного аэрозоля. Эта зависимость для плутониевого и уранового производств была исследована в середине 1960-х гг. Бадьиным В. И. и представлена в работе [15], из которой следует, что для изучаемого диапазона размеров частиц произведение коэффициентов η · F равно 0,5.

Конечным этапом оптикорадиографического метода является математическая обработка полученных результатов.

1.3.1.4. Математическая обработка данных авторадиографии

На основании результатов измерений (должно быть проанализировано не менее 300 частиц) составляется таблица, из которой видно, какая доля частиц от их общего количества имеет размеры внутри данного интервала дисперсности. Аналогичная таблица составляется для распределения активности по размерам.

В качестве примера приводится подробная схема математической обработки авторадиографических данных аэрозольной пробы, отобранной в помещении рабочей зоны участка плутониевого производства, состоящей из 17 авторадиограмм (стекол) с различным временем экспозиции от 7 до 30 суток.

Данные анализа счетного распределения 4 авторадиограмм с фиксированным количеством единичных, двойных треков, бесцентровых и высокоактивных частиц в виде «пауков» приведены в таблицах 1.9 – 1.12. В таблицах 1.13 – 1.16 представлены сводные авторадиографические данные о счетном распределении и распределении по активности для аэрозольных частиц среднедисперсной фракции, где

f(D), f(A) – доли количества и активности аэрозолей, диаметры которых лежат в интервале $[D_{i-1} – D_i]$;

F(D), F(A) – кумулятивные доли количества и активности аэрозолей, диаметры которых лежат в интервале $[D_0 – D_i]$.

Для каждого значения F(D), F(A) вычисляют erfξ:

$$erf\,\xi = 2F(D) - 1 \tag{1.7}$$

$$efr\xi = 2F(A) - 1 \tag{1.8}$$

Затем по таблицам интеграла вероятности находят ξ, соответствующее erfξ, где:

$$erf\,\xi = \frac{2}{\sqrt{\pi}}\int_0^{\xi} e^{-\xi^2} d\xi \tag{1.9}$$

Обычно в справочниках приводят значения интеграла:

$$\Phi(x) = \frac{2}{\sqrt{2\pi}}\int_0^{x} e^{-\frac{t^2}{2}} dt \tag{1.10}$$

но

$$erfx = \frac{2}{\sqrt{\pi}}\int_0^{x} e^{-t^2} dt = \Phi(x\sqrt{2}) \tag{1.11}$$

Для нахождения ξ необходимо найденное по таблице значение x разделить на корень из 2. Все вычисления и построения графиков выполнялись в программах Microsoft Excel и Statistica.

При изучении дисперсности аэрозолей с участков ПО «Маяк» в период с 1969 по 1983 гг. принималось, что распределение аэрозолей по размерам подчиняется логнормальному закону [26]. Широкое применение данной модели при описании распределения аэрозолей по размерам обусловлено тем фактом, что по сравнению с другими типами распределений, применение логнормальной модели было теоретически обосновано академиком А.Н. Колмогоровым при описании процесса механического дробления твердых частиц [27].

Таблица 1.9 – Счетное распределение частиц по размерам (стекло № 1)

t эксп. 7 суток
единичные треки 156
двойные 7
бесцентровые частицы 17

	Интервал, мкм	кол-во частиц	f(D)	F(D)	2F	2F-1	x1	ξ
1	0,5	7	0,0843	0,0843	0,1687	–0,8313	–1,3771	–0,9738
2	1,5	17	0,2048	0,2891	0,5783	–0,4217	–0,5561	–0,3933
3	2,5	21	0,2530	0,5422	1,0843	0,0843	0,1056	0,0747
4	3,5	21	0,2530	0,7952	1,5904	0,5904	0,8242	0,5828
5	4,5	7	0,0843	0,8795	1,7590	0,759036	1,1720	0,8288
6	5,5	5	0,0602	0,9398	1,8795	0,8795	1,5519	1,0974
7	6,5	3	0,0361	0,9759	1,9518	0,9518	1,9739	1,3958
8	8,5	1	0,0120	0,9880	1,9759	0,9759	2,252	1,5927
9	12,5	1	0,0120	1	2	1	3,718	2,6294
		83						

Таблица 1.10 – Счетное распределение частиц по размерам (стекло № 2)

t эксп. 7 суток
единичные треки 82
двойные 11
пауки 1

	Интервал, мкм	кол-во частиц	f(D)	F(D)	2F	2F-1	x1	ξ
1	0,5	1	0,0625	0,0625	0,125	–0,875	–1,5423	–1,0906
2	1,5	5	0,3125	0,375	0,75	–0,25	–0,3213	–0,2272
3	2,5	6	0,375	0,75	1,5	0,5	0,6714	0,4747
4	4,5	1	0,0625	0,8125	1,625	0,625	0,8834	0,62469
5	5,5	1	0,0625	0,875	1,75	0,75	1,1455	0,8099
6	6,5	2	0,125	1	2	1	3,0902	2,1851
		16						

Таблица 1.11 – Счетное распределение частиц по размерам (стекло № 3)

t эксп. 20суток
единичные треки 30
двойные 12
пауки 4
бесцентровые частицы 1

Интервал, мкм	кол-во частиц	f(D)	F(D)	2F	2F-1	x1	ξ
0,5	1	0,03333	0,03333	0,06667	-0,93333	-1,8476	-1,3064
1,5	3	0,1	0,13333	0,26667	-0,73333	-1,1154	-0,7887
2,5	8	0,26667	0,4	0,8	-0,2	-0,2559	-0,1809
3,5	3	0,1	0,5	1	0	-0,0025	-0,0018
4,5	3	0,1	0,6	1,2	0,2	0,2508	0,1773
5,5	6	0,2	0,8	1,6	0,6	0,83806	0,5926
6,5	2	0,06667	0,86667	1,733333	0,733333	1,10614	0,7822
7,5	2	0,06667	0,93333	1,866667	0,866667	1,4934	1,0559
8,5	1	0,03333	0,96667	1,933333	0,933333	1,8206	1,2874
9,5	1	0,03333	1	2	1	3,0902	2,1851
	30						

Таблица 1.12 – Счетное распределение частиц по размерам (стекло № 4)

t эксп. 20 суток
единичные треки 46
двойные 2
пауки 2
бесцентровые частицы 1

Интервал, мкм	кол-во частиц	f(D)	F(D)	2F	2F-1	x1	ξ
0,5	4	0,23529	0,23529	0,4706	-0,5294	-0,72478	-0,5125
1,5	4	0,23529	0,47059	0,9412	-0,0588	-0,0763	-0,05396
2,5	5	0,29412	0,76471	1,5294	0,5294	0,718274	0,50789
3,5	2	0,11765	0,88235	1,7647	0,7647	1,181777	0,83564
10,5	1	0,0588	0,94118	1,8824	0,8824	1,556257	1,10044
12,5	1	0,0588	1	2	1	3,090232	2,18512
	17						

Таблица 1.13 – Распределение активности по размерам частиц, мкБк

Интервал, мкм	А, мкБк				f(A)	F(A)	2F	2F-1	x1	ξ
	7суток	**20 суток**	**30 суток**	**сумма**						
0,5	1237,99	555,36	152,6	1945,95	0,032208	0,032208	0,064416	–0,93558	–1,85068	–0,92534
1,5	7355,7	2090,47	180,45	9626,62	0,159334	0,191542	0,383084	–0,61692	–0,8726	–0,4363
2,5	7103,98	3818,95	885,13	11808,06	0,19544	0,354773	0,709547	–0,29045	–0,37273	–0,18637
3,5	6479,22	2591,68	807,54	9878,44	0,163502	0,518275	1,03655	0,03655	0,045574	0,022787
4,5	4106,99	1180,86	285,38	5573,23	0,092245	0,61052	1,221039	0,221039	0,280413	0,140206
5,5	4035,02	4313,53	524,01	8872,56	0,146853	0,757373	1,514745	0,514745	0,697556	0,348778
6,5	2629,85	800,2	125,9	3555,95	0,058856	0,816228	1,632457	0,632457	0,900709	0,450354
7,5	0	2513	397	2910	0,048164	0,864393	1,728786	0,728786	1,099811	0,549906
8,5	1036,66	936,48	0	1973,14	0,032658	0,897051	1,794102	0,794102	1,264368	0,632184
9,5	0	1638,32	308,5	1946,82	0,032223	0,929274	1,858547	0,858547	1,469663	0,734832
10,5	0	96,64	0	96,64	0,0016	0,930873	1,861746	0,861746	1,481573	0,740787
11,5	0	0	164,3	164,3	0,002719	0,933592	1,867185	0,867185	1,502318	0,751159
12,5	1943,76	122,5	0	2066,26	0,034199	0,967792	1,935584	0,935584	1,847904	0,923952
	35929,17	20657,99	3830,81	60417,97						

Standard Error of Estimate = 0,0230

	Coefficient	Std. Error	t	P
a	0,1919	0,0155	12,3916	<0,0001
b	0,7411	0,075	9,8839	<0,0001

активный медианный диаметр и стандартное геометрическое отклонение

Dag	**2,2645**	0,2067	10,9543	<0,0001
bag	**2,08**			

Таблица 1.14 – Счетное распределение частиц по размерам на стеклах с различной экспозицией

Интервал, мкм	Кол-во частиц				f(D)
	7 суток	**20 суток**	**30 суток**	**сумма**	
0,5	8	5	68	81	0,23011
1,5	22	7	23	52	0,1477
2,5	27	13	46	86	0,2443
3,5	22	6	26	54	0,1534
4,5	8	3	10	21	0,0597
5,5	6	7	17	30	0,0852
6,5	5	2	4	11	0,03125
7,5	0	2	1	3	0,00852
8,5	1	1	0	2	0,00568
9,5	0	1	5	6	0,01705
10,5	0	1	0	1	0,00284
11,5	0	0	2	2	0,00568
12,5	2	1	0	3	0,008523
	101	49	202	352	

Standard Error of Estimate = 0,0420

	Coefficient	Std. Error	t	P
a	0,2475	0,035	7,0678	<0,0001
b	1,0989	0,1984	5,539	0,0002

счетный диаметр и стандартное геометрическое отклонение

Dg	**0,9039**	0,2179	4,1477	0,002
bg	**2,95**			

Для анализа полученных результатов строят кривые счетных распределений и распределений активности аэрозольных частиц по размерам. Распределение радиоактивных частиц по размерам в аэродисперсных системах является результатом ряда случайных причин и, согласно литературным данным [16], кривая распределения подчиняется логарифмически-нормальному закону, который имеет вид:

$$f(D) = \frac{1}{2.3 \lg \beta_g \sqrt{\pi D}} \exp\left[-\frac{(\lg D - \lg D_g)^2}{2(\lg \beta_g)^2} \right] \qquad (1.12)$$

Таблица 1.15 – Счетное распределение среднедисперсной фракции

Интервал	Количество частиц					сумма	f(D)	F(D)	2F	2F-1	x	ξ
	4 суток	7 суток	14 суток	20 суток	30 суток							
0,5	2	13	25	18	26	84	0,38182	0,38182	0,76364	–0,2364	–0,3033	–0,2145
1,5	0	7	23	7	13	50	0,22727	0,60909	1,21818	0,21818	0,27435	0,19399
2,5	0	10	12	8	6	36	0,16364	0,77273	1,54545	0,54545	0,74455	0,52647
3,5	0	1	11	1	3	16	0,07273	0,84545	1,69091	0,69091	1,01294	0,71625
4,5	0	1	9	2	1	13	0,05909	0,90455	1,80909	0,80909	1,30202	0,92067
5,5	0	1	5	2	0	8	0,03636	0,94091	1,88182	0,88182	1,55401	1,09885
6,5	0	0	3	1	0	4	0,01818	0,95909	1,91818	0,91818	1,72895	1,22255
7,5	0	1	2	0	0	3	0,01364	0,97273	1,94545	0,94545	1,90681	1,34832
8,5	0	0	0	2	0	2	0,00909	0,98182	1,96364	0,96364	2,07095	1,46438
9,5	0	0	2	0	0	2	0,00909	0,99091	1,98182	0,98182	2,32296	1,64258
12,5	0	0	2	0	0	2	0,00909	1	2	1	3,09024	2,18513
	2	34	94	41	49	220						

Таблица 1.16 – Распределение активности по размерам частиц среднедисперсной фракции, мкБк

Интервал	A, мкБк					сумма	f(A)	F(A)	2F	2F-1	x	ξ
	4 суток	7 суток	14 суток	20 суток	30 суток							
0,5	28,93	78,41	229,7	143,96	83,85	564,85	0,11706	0,11706	0,23412	–0,7659	–1,1903	–0,8417
1,5		152	393,39	89,42	53,24	688,05	0,14259	0,25965	0,51931	–0,4807	–0,6447	–0,4559
2,5		574,84	259,65	97,19	21,37	953,05	0,19751	0,45717	0,91433	–0,0857	–0,1078	–0,0762
3,5		105,8	264,43	64,79	40,88	475,9	0,09863	0,55579	1,11159	0,11159	0,14006	0,09904
4,5		52,09	326,42	37,02	27,77	443,3	0,09187	0,64766	1,29533	0,29533	0,37875	0,26782
5,5		127,3	344,39	64,71	0	536,4	0,11116	0,75883	1,51766	0,51766	0,70222	0,49655
6,5		0	156,48	67,68	0	224,16	0,04646	0,80529	1,61057	0,61057	0,86029	0,60832
7,5		111,57	109,08	0	0	220,65	0,04573	0,85101	1,70203	0,70203	1,04036	0,73564
8,5		0	0	127	0	127	0,02632	0,87733	1,75467	0,75467	1,16127	0,82114
9,5		0	165,46	0	0	165,46	0,03429	0,91162	1,82325	0,82325	1,35019	0,95473
12,5		0	426,44	0	0	426,44	0,08838	1	2	1	3,71947	2,63006
	28,93	1202,01	2675,44	691,77	227,11	4825,26						

Для того, чтобы проверить, являются ли полученные распределения логарифмически нормальными применяют построение в так называемой вероятностно-логарифмической системе координат: по оси ординат откладывают значения ξ, соответствующее F(D) и F(A), а по оси абсцисс – логарифмы диаметров, т. е. строят ξ как функцию диаметра или активности. В результате построения получены прямые (см. рис. 1.7–1.8), что указывает на то, что размеры частиц распределены по логарифмически-нормальному закону. Точка пересечения прямой с осью абсцисс дает возможность определить значение счетного среднего геометрического диаметра D_g, для данного распределения, а тангенс угла наклона прямой к оси абсцисс – величину стандартного отклонения:

$$tg\phi = \frac{1}{\lg \beta_g \sqrt{2}} \tag{1.13}$$

где β_g – стандартное геометрическое отклонение.

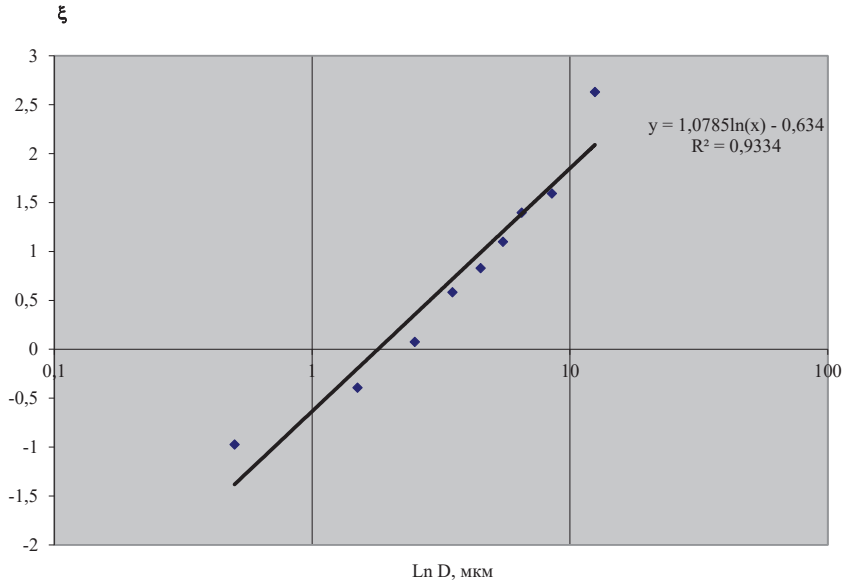


Рисунок 1.7 – Спрямленные интегральные кривые счетного распределения F(D) в вероятностной системе координат

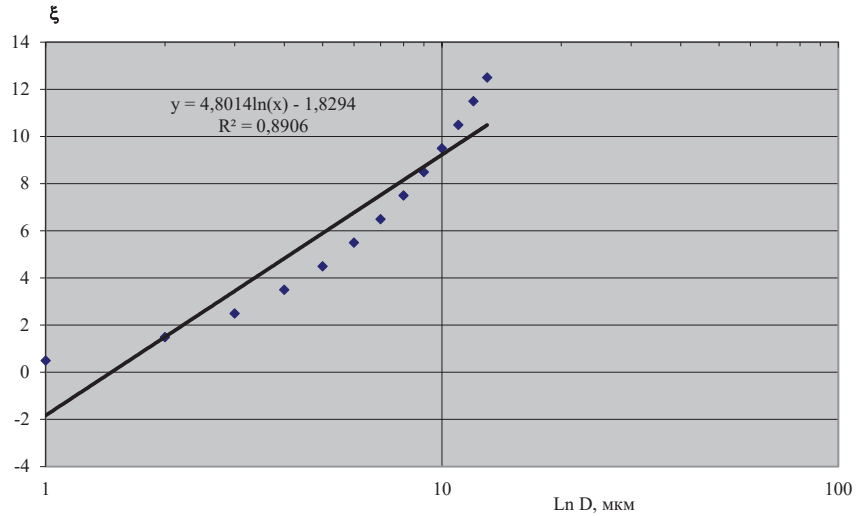


Рисунок 1.8 – Спрямленные интегральные кривые распределения по активности F(A) в вероятностной системе координат

Аналогично определяют параметры распределения активности аэрозольных частиц по размерам – D_{ag} (активный средний геометрический диаметр) и его стандартное геометрическое отклонение β_{ag}.

Помимо логнормальной модели имеются другие виды распределений, адекватно описывающие распределение аэрозольных частиц по размерам [16, 28]. В частности, в исследованиях, выполненных в конце 1990-х гг., применительно к α-активным аэрозолям, получаемым на различных участках плутониевого производства, логнормальная модель крайне приближенно описывала распределение аэрозолей по размерам, в то время как распределение Парето дало адекватное математическое описание наблюдаемых распределений частиц по размерам для трёх различных производственных участков плутониевого производства ПО «Маяк». Поэтому, приступая к количественному анализу дисперсности производственных α-активных аэрозолей и построению моделей распределений по размерам, важно учитывать измерительно-технические возможности применяемого метода измерения размеров частиц, и особенности технологического процесса, при котором произошло образование аэрозоля [29].

Для упрощения анализа процессов, происходящих в аэрозолях, удобно все частицы принимать за сферические. Однако, промышленные аэрозоли, как правило, содержат частицы неправильной формы. Форма аэрозольных частиц, которая зависит от

условия образования аэрозоля, от химического состава и кристаллической структуры частиц, существенно влияет на точность определения дисперсности. Характеристикой формы аэрозольных частиц, важной для понимания аэродинамических свойств частицы неправильной формы, является так называемый аэродинамический форм-фактор, равный среднему отношению сопротивления среды для частицы неправильной формы к сопротивлению среды для сферической частицы той же массы при одинаковой скорости осаждения. Для большинства плутоний-содержащих аэрозолей значение форм-фактора лежит в пределах 1,1–1,9 (Mercer, 1973) [17]. В отсутствии информации о форме частиц изучаемого аэрозоля 66 Публикация МКРЗ рекомендует принимать аэродинамический форм-фактор равным 1,5 [18].

При авторадиографическом исследовании размеров частиц с производственных участков ПО «Маяк» использовалась величина форм-фактора, связанного с аэродинамическим диаметром частиц, из публикации Kotrappa [19], в которой установлено, что значение форм-фактора относительно постоянно для частиц PuO_2 в диапазоне диаметров от 0,7 до 4,0 мкм и его средняя величина равна 1,8 [19].

Аэродинамический диаметр D_{ae}, вычисляется по формуле (Kotrappa) [19]:

$$Dae = \frac{Dev \cdot \sqrt{\rho}}{\sqrt{K}} \tag{1.14}$$

где ρ – плотность частиц аэрозоля, г/см^3;

K – аэродинамический форм-фактор;

D_{ev} – эквивалентный объемный диаметр, вычисляемый из выражения для расчета массы M при допущении, что частица имеет сферическую форму:

$$M = \left(\pi/6\right) \cdot Dev^3 \cdot \rho \tag{1.15}$$

Учитывая, что K = 1,8, получим выражение для *Dae*:

$$Dae = 0,75 \cdot Dev \cdot \sqrt{\rho} \tag{1.16}$$

Размер частиц является одним из наиболее важных параметров при описании поведения ингалированных аэрозолей в организме человека. Поскольку региональное отложение широкого диапазона размеров радиоактивных частиц в отделах респираторного тракта связано с медианным по активности аэродинамическим диаметром, дисперсный состав исследуемых аэрозолей по разработанной методике характеризовался величиной АМАД.

Принимая во внимание выражение (1.16), переход к медианному по активности аэродинамическому диаметру осуществляется по формуле (1.1).

Из доступных литературных источников известно, что плотность радиоактивных аэрозолей радиохимических производств, содержащих диоксид плутония, лежит в пределах от 3 до 12 г/см^3, в зависимости от технологического процесса на исследуемом рабочем участке [14]. В данных исследованиях исходили из допущения, что плотность среднедисперсной фракции составляет 3 г/см^3, а мелкодисперсной фракции – 10 г/см^3 (см. раздел 1.2).

Методика определения размеров частиц мелкодисперсной фракции альфа-активных аэрозолей

Помимо радиоактивных частиц, диаметр которых легко определялся с помощью объект-микрометра, на авторадиограммах было обнаружено значительное количество так называемых бесцентровых звезд (в центре которых под микроскопом не просматривается частица, рис. 1.2) и единичных треков (рис. 1.3–1.4), доля которых менялась в зависимости от времени экспозиции. Такие частицы относятся к субмикронной фракции, имеют диаметр < 0,3 мкм. Размеры таких частиц определяли расчетным методом.

Экспериментально было выявлено, что с увеличением времени экспозиции аэрозольных образцов доля бесцентровых звезд возрастала от 27 до 85%, а количество единичных треков при этом уменьшалось. Для получения наглядной картинки и удобства выполнения анализа авторадиограмм была подобрана серия экспозиций, и установлено, что для проб воздуха объемом 200–500 литров, отобранных при работах с соединениями плутония, время экспозиций не должно превышать 30 суток.

Подсчитывалось количество видимых альфа-треков вокруг бесцентровой аэрозольной частицы, и учитывая время экспозиции, рассчитывалась активность частиц согласно формуле (1.6). Коэффициент, учитывающий самопоглощение и геометрию аэрозольной частицы ηF для мелкодисперсной фракции, принимался равным 0,5 [14].

Активность аэрозольной частицы можно определить через массу частицы соотношением:

$$A = 4{,}18 \cdot 10^{23} \frac{m}{aT_{1/2}} \qquad (1.17)$$

где m – масса аэрозольной частицы в граммах;

a – атомный вес радиоактивного вещества, из которого состоит изучаемая частица;

$T_{1/2}$ – период полураспада радиоактивного вещества, с.

Совместное решение соотношений (1.6), (1.15) и (1.17) приводит к выражению для определения размеров аэрозолей мелкодисперсной фракции:

$$D = Cp \cdot \sqrt[3]{\frac{N}{t\eta F}} \tag{1.18}$$

где D – диаметр промышленной аэрозольной частицы, в мкм;

Cρ – величина, зависящая от физических и химических свойств промышленных аэрозолей, которая определялась для конкретных производств;

N, t, η F – величины, имеющие значения и размерности те же, что и в формуле (1.6).

Диаметры бесцентровых частиц, рассчитанные по формуле (1.18), приведены в таблице 1.17. Значение Cρ для аэрозолей, содержащих плутоний-239, принималось равным 0,099 [14].

Счетное распределение частиц мелкодисперсной фракции представлено в таблице 1.18, распределение активности по размерам частиц мелкодисперсной фракции в таблице 1.19.

Таблица 1.17 – Расчет диаметра и активности зарегистрированных аэрозольных частиц мелкодисперсной фракции

N число треков	Время экспозиции t, сут	Диаметр частицы D, мкм	Кол-во частиц, n	N с уч. погл.	A, мкБк	Уд. активность q, мкБк/мкм^3	Активность частицы A_g, мкБк
1	4	0,078576	75	150	433,875	22655,9	5,785
2	4	0,099	4	16	46,28	22655,9	11,57
5	4	0,134364	1	10	28,925	22655,9	28,925
11	4	0,174752	1	22	63,635	22655,9	63,635
1	7	0,065205	66	132	218,1771	22655,9	3,305714
2	7	0,082153	30	120	198,3429	22655,9	6,611429
3	7	0,094042	2	12	19,83429	22655,9	9,917143
4	7	0,103506	2	16	26,44571	22655,9	13,22286
5	7	0,111499	1	10	16,52857	22655,9	16,52857
8	7	0,130409	3	48	79,33714	22655,9	26,44571
10	7	0,140479	1	20	33,05714	22655,9	33,05714
21	7	0,179895	1	42	69,42	22655,9	69,42
1	14	0,051753	227	454	375,1986	22655,9	1,652857
2	14	0,065205	42	168	138,84	22655,9	3,305714
3	14	0,074641	2	12	9,917143	22655,9	4,958571

N число треков	Время экспозиции t, сут	Диаметр частицы D, мкм	Кол-во частиц, n	N с уч. погл.	A, мкБк	Уд. активность q, мкБк/мкм^3	Активность частицы A_g, мкБк
4	14	0,082153	1	8	6,611429	22655,9	6,611429
6	14	0,094042	2	24	19,83429	22655,9	9,917143
7	14	0,099	1	14	11,57	22655,9	11,57
8	14	0,103506	2	32	26,44571	22655,9	13,22286
11	14	0,115098	1	22	18,18143	22655,9	18,18143
14	14	0,124732	1	28	23,14	22655,9	23,14
15	14	0,127634	1	30	24,79286	22655,9	24,79286
16	14	0,130409	1	32	26,44571	22655,9	26,44571
18	14	0,135631	1	36	29,75143	22655,9	29,75143
20	14	0,140479	1	40	33,05714	22655,9	33,05714
40	14	0,176993	7	560	462,8	22655,9	66,11429
1	20	0,045952	129	258	149,253	22655,9	1,157
2	20	0,057896	17	68	39,338	22655,9	2,314
3	20	0,066274	2	12	6,942	22655,9	3,471
4	20	0,072944	1	8	4,628	22655,9	4,628
5	20	0,078576	1	10	5,785	22655,9	5,785
6	20	0,0835	1	12	6,942	22655,9	6,942
8	20	0,091903	1	16	9,256	22655,9	9,256
10	20	0,099	1	20	11,57	22655,9	11,57
15	20	0,113327	2	60	34,71	22655,9	17,355
20	20	0,124732	2	80	46,28	22655,9	23,14
30	20	0,142783	1	60	34,71	22655,9	34,71
40	20	0,157153	1	80	46,28	22655,9	46,28
1	30	0,040143	203	406	156,5807	22655,9	0,771333
2	30	0,050576	49	196	75,59067	22655,9	1,542667
3	30	0,057896	5	30	11,57	22655,9	2,314
5	30	0,068643	1	10	3,856667	22655,9	3,856667
8	30	0,080285	1	16	6,170667	22655,9	6,170667
15	30	0,099	1	30	11,57	22655,9	11,57
20	30	0,108964	1	40	15,42667	22655,9	15,42667
30	30	0,124732	5	300	115,7	22655,9	23,14
			902		3232,603		

Таблица 1.18 – Счетное распределение частиц мелкодисперсной фракции

интервал	Количество частиц					сумма	f(D)	F(D)	2F	2F-1	x	ξ
	4 суток	7 суток	14 суток	20 суток	30 суток							
0,045	0	0	0	129	203	332	0,36807	0,36807	0,73614	–0,2639	–0,3396	–0,2401
0,055	0	0	227	17	54	298	0,33038	0,69845	1,3969	0,3969	0,51708	0,36563
0,065	0	66	42	2	1	111	0,12306	0,82151	1,64302	0,64302	0,9173	0,64863
0,075	75	0	2	2	0	79	0,08758	0,90909	1,81818	0,81818	1,32909	0,93981
0,085	0	30	1	1	1	33	0,03659	0,94568	1,89135	0,89135	1,59529	1,12804
0,095	4	2	3	2	1	12	0,0133	0,95898	1,91796	0,91796	1,72771	1,22168
0,105	0	2	2	0	1	5	0,00554	0,96452	1,92905	0,92905	1,79312	1,26793
0,115	0	1	1	2	0	4	0,00443	0,96896	1,93792	0,93792	1,85159	1,30928
0,125	0	0	2	2	5	9	0,00998	0,97894	1,95787	0,95787	2,01287	1,42331
0,135	1	3	2	0	0	6	0,00665	0,98559	1,97118	0,97118	2,15932	1,52687
0,145	0	1	1	1	0	3	0,00333	0,98891	1,97783	0,97783	2,25436	1,59408
0,155	0	0	0	1	0	1	0,00111	0,99002	1,98004	0,98004	2,29113	1,62007
0,175	1	1	7	0	0	9	0,00998	1	2	1	3,09024	2,18513
	81	106	290	159	266	902						

Таблица 1.19 – Распределение активности по размерам частиц, мкБк

интервал	A, мкБк					сумма	f(A)	F(A)	2F	2F-1	x1	ξ
	4 суток	7 суток	14 суток	20 суток	30 суток							
0,045	149,253	0	0	0	156,581	305,834	0,09461	0,09461	0,18922	–0,8108	–1,3135	–0,9288
0,055	0	0	375,199	39,338	87,1607	501,697	0,1552	0,24981	0,49962	–0,5004	–0,6754	–0,4776
0,065	0	218,177	138,84	6,942	3,86	367,819	0,11378	0,36359	0,72718	–0,2728	–0,3491	–0,2469
0,075	433,875	0	9,92	10,413	0	454,208	0,14051	0,5041	1,0082	0,0082	0,01003	0,00709
0,085	0	198,343	6,61	6,942	6,17	218,065	0,06746	0,57156	1,14312	0,14312	0,18009	0,12734
0,095	46,28	19,834	31,404	20,826	11,57	129,914	0,04019	0,61175	1,22349	0,22349	0,28361	0,20055
0,105	0	26,446	26,446	0	15,427	68,319	0,02113	0,63288	1,26576	0,26576	0,33923	0,23987
0,115	0	16,529	18,181	34,71	0	69,42	0,02147	0,65436	1,30871	0,30871	0,39684	0,28061
0,125	0	0	47,933	46,28	115,7	209,913	0,06494	0,71929	1,43858	0,43858	0,58044	0,41044
0,135	28,925	79,337	56,197	0	0	164,459	0,05088	0,77017	1,54033	0,54033	0,73907	0,5226
0,145	0	33,057	33,057	34,71	0	100,824	0,03119	0,80136	1,60271	0,60271	0,84612	0,5983
0,155	0	0	0	46,28	0	46,28	0,01432	0,81567	1,63135	0,63135	0,89862	0,63542
0,175	63,635	69,42	462,8	0	0	595,855	0,18433	1	2	1	3,71947	2,63006
						3232,61						

На изученных аэрозольных пробах были обнаружены также высокоактивные аэрозоли различных размеров (видимых и невидимых под оптическим микроскопом). Наличие таких частиц создавало определенные технико-методические трудности при анализе их активности и размеров. Измерить частицу, имеющую более 50 треков трудно, т.к. треки затемняют саму частицу и затрудняют ее измерение (см. рис. 1.3).

Темные пятна в виде мелких горячих частиц с большим количеством треков (>100), согласно методике, относились к мелкодисперсной фракции, крупные горячие частицы с числом треков порядка ~500, к среднедисперсной.

1.3.2. Источники неопределенностей оптикорадиографического метода

Для того, чтобы оценить погрешность определения размеров частиц и их активности на авторадиограммах, необходимо учесть неопределенности, возникающие на разных стадиях метода.

Первый фактор неопределенности возникал в процессе проявления авторадиограмм. Наблюдалось скопление большого количества треков вдоль пограничной линии фильтра, что затрудняло их количественный анализ. Это происходило вследствие того, что радиоактивное вещество отмывалось растворителем в процессе фиксации препарата. Подобный эффект растекания был описан в литературе при авторадиографических исследованиях тканей, содержавших β-излучатели [20, 21]. Для устранения эффекта растекания применялось тщательное высушивание препарата на стадии просветления и после погружения его в эмульсию.

Наличие фоновых альфа-треков вносит свою неопределенность при определении параметров распределений активности по размерам аэрозолей мелкодисперсной фракции с помощью расчетного метода. Для того, чтобы учесть наличие фоновых альфа-треков, готовились контрольные образцы из чистых фильтров и обрабатывались оптикорадиографическим методом параллельно с аэрозольными пробами.

На точность результата обработки авторадиографических данных влияет также учет поправок на поглощение излучения в слое фильтра и на невидимые альфа-треки. Данные поправки определялись экспериментально [14, 15] и их значения указаны в п.1.3.1.3.

Случайные погрешности при микроскопическом измерении размера частиц, подсчете количества треков, погрешности фотографической техники, неточности определения активности (учет фоновой альфа-активности), отклонение частиц от шарообразной формы, наличие высокоактивных горячих частиц, погрешности в определении плотности изучаемых аэрозолей вносят свой элемент неопределенности при исследовании дисперсности аэрозольных частиц. С учетом данных факторов неопределенность оптикорадиографического метода оценивалась в 30–50% [14].

1.4. Дисперсный состав альфа-активных аэрозолей на плутониевом производстве ПО «Маяк». Результаты исследований 1969–1981 гг.

В разделе представлены результаты исследования дисперсного состава промышленных аэрозолей плутония в рабочих помещениях химико-металлургического производства ПО «Маяк» методом авторадиографии.

По оценкам специалистов по радиационной гигиене ФИБ-1 в 1969 году объемная активность аэрозолей плутония в воздухе операторских зон на заводе по получению и переработке плутония составляла от 0,74 Бк/м^3 до 2,96 Бк/м^3, а в ремонтных зонах – 13,7 Бк/м^3 и выше.

Усовершенствование технологического процесса, оборудования, повышение его герметичности, улучшение работы вентиляционных систем, а также изменение планировки помещений в соответствии с требованиями санитарных правил и рекомендациями специалистов по радиационной гигиене, способствовали постепенному уменьшению объемной активности альфа-излучающих аэрозолей в воздухе на участках, где проводятся работы с плутонием-239. Тем не менее, при любых операциях по переработке плутония-239 имеется вероятность загрязнения воздушной среды рабочих помещений, что может привести к ингаляционному поступлению радиоактивных аэрозолей в организм персонала, работающего на этих участках.

Для исследований пробы аэрозолей отбирали на уровне дыхания человека в рабочих помещениях плутониевого производства при нормальном технологическом режиме (НТР) и во время ремонтных работ (РР).

Исследования показали, что в воздухе обследованных помещений аэрозоли находятся в виде твердых частиц, различающихся по форме, величине и альфа-активности (рисунки 1.9–1.12). Из рисунков 1.9–1.12 видно, что различия наблюдаются и в расположении альфа-треков вокруг частицы. Альфа-треки выходят радиально из одного центра, либо из многих центров, образуя равномерное или неравномерное распределение по поверхности частицы. Во всех случаях источником альфа-треков являются мелкодисперсные частицы плутония с высокой удельной альфа-активностью, которые, либо сами находятся в воздухе, либо осаждаются за счет диффузии на поверхности более крупных неактивных частиц. При осаждении плутония на поверхности весьма крупных неактивных аэрозольных частиц образуются высокоактивные аэрозоли с ак-

тивностью более 10^3 мкБк. Такие высокоактивные аэрозоли встречаются редко, их количество составляет 0,02-2% от всех исследованных альфа-активных аэрозолей. Их удельная активность меняется от $3 \cdot 10^{-4}$ до $4 \cdot 10^2$ мкБк/мкм^3.

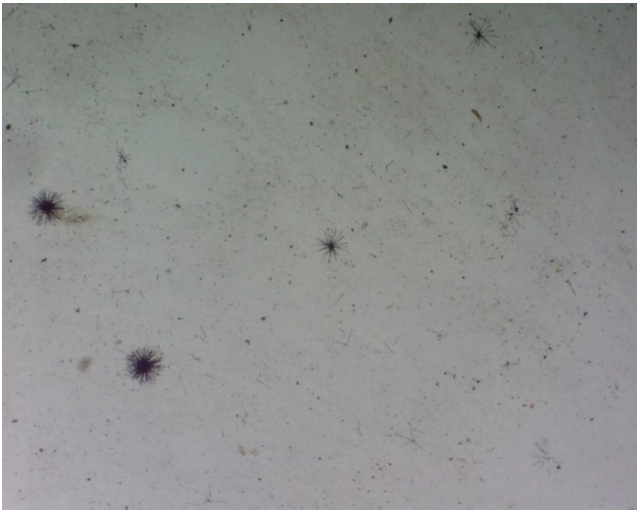


Рисунок 1.9 – Авторадиограмма аэрозольных частиц плутония.
Проба воздуха отбиралась в помещении рабочей зоны
химико-металлургического завода ПО «Маяк»

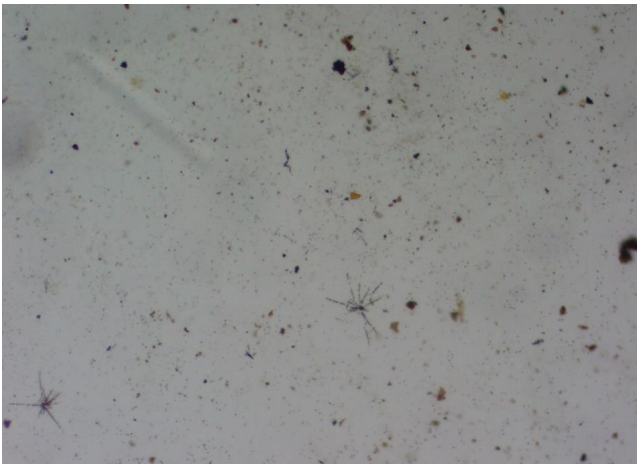


Рисунок 1.10 – Авторадиограмма аэрозольных частиц плутония различного диаметра.
Проба воздуха отбиралась в помещении рабочей зоны
химико-металлургического завода ПО «Маяк»



Рисунок 1.11 – Авторадиограмма аэрозольных частиц плутония
с различным количеством треков. Проба воздуха отбиралась
в помещении рабочей зоны химико-металлургического завода ПО «Маяк»

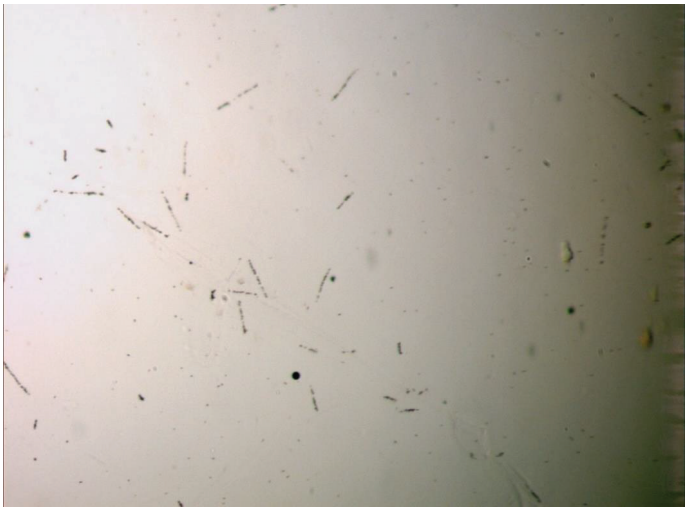


Рисунок 1.12 – Авторадиограмма аэрозольных частиц плутония с единичными треками.
Проба воздуха отбиралась в помещении рабочей зоны
химико-металлургического завода ПО «Маяк»

Основная часть α-активных аэрозолей образуется за счет осаждения плутония на неактивные аэрозоли микронных и субмикронных размеров. Альфа-активность таких аэрозолей колеблется от 1,0 до 970 мкБк, а удельная активность – от 0,02 до 840 мкБк/мкм^3.

Широкий спектр значений размеров частиц, α-активности и удельной активности аэрозолей, вероятно, объясняется тем, что процесс их образования связан со вторичным диспергированием частиц с загрязнённых поверхностей помещений, оборудования, спецодежды и т. д. Анализ данных [30] свидетельствует о том, что в условиях производства степень загрязнения воздушной среды и поверхностей рабочих помещений (как активной, так и неактивной пылью) находится в постоянной взаимосвязи и взаимозависимости.

Радиоактивные вещества и неактивная пыль оседают из воздуха на различные поверхности, и наоборот, переходят с загрязненных поверхностей в воздушную среду, обуславливая ее загрязнение. Следовательно, присутствие в исследуемом воздухе частиц вторичного диспергирования формирует полидисперсный состав аэрозолей, который характеризуется бимодальным или трехмодальным распределением:

– активных мелкодисперсных аэрозолей с удельной активностью порядка $2{,}1 \cdot 10^4$ мкБк/мкм^3;

– активных грубодисперсных аэрозолей с переменной удельной активностью;

– высокоактивных грубодисперсных аэрозолей с переменной удельной активностью, и альфа-активностью выше 10^3 мкБк.

Высокоактивные частицы в аэрозольных пробах, отобранных при нормальном технологическом процессе, встречаются редко и в малом количестве, но каждая присутствующая высокоактивная частица заметно увеличивает параметры распределения альфа-активности грубодисперсной фракции аэрозолей. При ремонтных работах высокоактивные аэрозольные частицы встречаются чаще. В некоторых случаях количество их достигает до 3–5% по счету.

При анализе дисперсности высокоактивные аэрозольные частицы крупных размеров были отнесены к аэрозолям грубодисперсной фракции, как при нормальном технологическом процессе, так и при ремонтных работах.

Результаты показали, что промышленные аэрозоли, образующиеся при работе с плутонием-239, учитывая их размер, альфа-активность, удельную активность, можно разделить на три фракции: мелкодисперсную, среднедисперсную и крупнодисперсную.

Рассмотрим данные о дисперсном составе аэрозолей плутониевого производства ПО «Маяк» за 1969–1971 гг. Результаты ретроспективного анализа 45 аэрозольных проб, отобранных в рабочих помещениях при НТР и РР, представлены в таблице 1.20.

Таблица 1.20 – Соотношение мелкодисперсных, среднедисперсных и крупнодисперсных аэрозолей при работе с плутонием-239 (1969–1971 гг.),%

Характер работ	Место отбора проб	Вид анализа	Мелкодисперсные аэрозоли	Среднедисперсные аэрозоли	Крупнодисперсные аэрозоли
Нормальный технологический Режим (НТР)	Участок металлургической обработки плутония	По счету	18,7	80,4	0,9
		По активности	1,9	47,1	51,0
	Участок химической обработки плутония	По счету	13,3	86,0	0,7
		По активности	1,8	55,2	43,0
Среднее значение		По счету	16,0	83,2	0,8
		По активности	1,8	51,2	47,0
Ремонтные работы (РР)	Участок металлургической обработки плутония	По счету	21,3	76,4	2,3
		По активности	2,4	39,6	58,0

Из представленных в таблице 1.20 данных следует, что при нормальном технологическом процессе аэрозоли мелкодисперсной фракции составляют в среднем 16% по количеству частиц и 1,8% по их альфа-активности. Доля активности среднедисперсных и крупнодисперсных аэрозолей составляет соответственно 98,2%.

При нормальном технологическом процессе несмотря на то, что доля аэрозолей крупнодисперсной фракции по счету составляет всего 0,8%, эти частицы несут на себе практически половину всей альфа-активности, т. е. 47%. Такая же картина наблюдается и при ремонтных работах.

Параметры распределений альфа-активности по размерам аэрозольных частиц, отобранных в помещениях химико-металлургического производства в ходе нормального технологического процесса, рассчитывались на основании анализа 8 аэрозольных проб, а при ремонтных работах – на основании 7 проб (таблица 1.21).

По аналогичной схеме определялись параметры распределений аэрозолей по альфа-активности и по удельной альфа-активности (таблица 1.22).

Таблица 1.21 – Параметры счетных распределений и распределений альфа-активности по размерам аэрозолей химико-металлургического производства плутония-239 (1969–1971 гг.)

Аэрозоли	Место отбора аэрозольных проб	Характер работ	Количество частиц	$D_{мин}$, мкм	$D_{макс}$, мкм	D_g, мкм	β_g	D_{ag}, мкм	β_{ag}
Мелкодисперсные	Участок металлургической обработки	НТР	2486	0,048	0,401	0,100	1,42	0,141	1,42
	Участок химической обработки	НТР	856	0,048	0,314	0,11	1,39	0,141	1,39
	Среднее значение		–	–	–	0,10	1,41	0,141	1,41
	Участок металлургической обработки	Р/Р	961	0,048	0,326	0,15	1,53	0,168	1,55
Среднедисперсные	Участок металлургической обработки	НТР	1277	0,22	104,3	3,2	2,7	8,2	2,6
	Участок химической обработки	НТР	1170	0,22	90,3	3,0	2,5	7,4	2,4
	Среднее значение		–	–	–	3,1	2,6	7,8	2,5
	Участок металлургической обработки	Р/Р	492	0,22	107,9	4,4	3,2	7,8	3,3
Крупнодисперсные	Участок металлургической обработки	НТР	166	42	134,1	24,2	2,0	42,2	2,0
	Участок химической обработки	НТР	139	3,4	126,0	16,8	1,8	37,6	2,4
	Среднее значение		–	–	–	21,5	1,9	39,8	2,2
	Участок металлургической обработки	Р/Р	104	6,8	18,4	2,8	1,9	43,3	2,1

Примечание: НТР – нормальный технологический режим; Р/Р – ремонтные работы

Таблица 1.22 – Параметры распределения аэрозолей, отобранных в помещениях химико-металлургического производства плутония-239, по альфа-активности и по удельной альфа-активности (1969–1971 гг.)

Аэрозоли	Место отбора аэрозольных проб	Характер работ	$A_{мин}$, мкБк	$A_{макс}$ мкБк	A_g, мкБк	β_{ag}	$q_{мин}$, мкБк/мкм^3	$q_{макс}$, мкБк/мкм^3	q_g, мкБк/мкм^3	β_{ag}
Мелкодисперсные	Участок металлургической обработки	НТР	1,2	763	13,8	3,0	–		$2 \cdot 10^4$	–
	Участок химической обработки	НТР	1,0	650	15,0	3,0	–	–	$2 \cdot 10^4$	–
	Среднее значение		–	–	14,4	3,0	–	–	$2 \cdot 10^4$	–
	Участок металлургической обработки	Р/Р	2,3	980	19,3	2,5	–	–	$2 \cdot 10^4$	–
Среднедисперсные	Участок металлургической обработки	НТР	40,0	895	89,0	2,8	$2{,}8 \cdot 10^{-4}$	60,0	6,4	4,8
	Участок химической обработки	НТР	20,4	982	49,0	3,1	$4{,}7 \cdot 10^{-4}$	39,0	4,6	3,9
	Среднее значение		–	–	66,0	2,9	–	–	5,4	4,3
	Участок металлургической обработки	Р/Р	44,0	975	90,3	2,7	$2{,}8 \cdot 10^{-4}$	713	6,8	5,3
Крупнодисперсные	Участок металлургической обработки	НТР	$5 \cdot 10^3$	$1{,}7 \cdot 10^5$	$52 \cdot 10^2$	4,0	0,02	106,7	0,64	3,7
	Участок химической обработки	НТР	$3 \cdot 10^3$	$3{,}6 \cdot 10^5$	$39 \cdot 10^2$	2,4	0,19	211,2	1,49	4,6
	Среднее значение		–	–	$45 \cdot 10^2$	3,0	–	–	1,0	4,1
	Участок металлургической обработки	Р/Р	$4{,}3 \cdot 10^3$	$5{,}4 \cdot 10^5$	$57 \cdot 10^2$	3,7	0,48	223,5	2,8	5,8

Примечание: НТР – нормальный технологический режим; Р/Р – ремонтные работы

Анализ таблиц 1.21 и 1.22 показывает, что значения параметров D_g, β_g, D_{ag}, β_{ag}, характеризующих дисперсный состав аэрозолей мелкодисперсной фракции в воздухе участка по металлургической обработке плутония-239, мало отличаются от перечисленных выше параметров мелкодисперсных аэрозолей других участков. Однако параметры удельной активности мелкодисперсных аэрозолей значительно выше, чем у грубодисперсных аэрозолей и по величине минимального значения ($q_{мин} = 2 \cdot 10^4$ мкБк/мкм^3) близки к удельной активности двуокиси плутония-239. Среднее геометрическое значение удельной активности аэрозолей среднедисперсной фракции составляет 5,4 мкБк/мкм^3 при нормальном технологическом процессе и 6,8 мкБк/мкм^3 при ремонтных работах. У крупнодисперсных аэрозолей удельная альфа-активность в некоторых случаях на порядок меньше, чем у аэрозолей среднедисперсной фракции.

При изучении 16 аэрозольных проб, отобранных в 1971 году с участков химико-металлургического производства, были обнаружены пять аэрозольных частиц, удельная альфа-активность которых близка по значению удельной активности аэрозолей двуокиси плутония. Размеры и альфа-активность этих частиц определялись с помощью оптического микроскопа и авторадиографии, полученные параметры представлены в таблице 1.23.

Таблица 1.23 – Размеры и альфа-активность видимых под оптическим микроскопом частиц

Место отбора аэрозольных проб	Диаметр D, мкм	Альфа-активность A, мкБк	Удельная активность q, мкБк/мкм^3
Участок металлургической обработки	0,68	$3{,}0 \cdot 10^3$	$1{,}8 \cdot 10^4$
Участок химической обработки	0,68	$3{,}4 \cdot 10^3$	$2{,}1 \cdot 10^4$
	1,12	$5{,}1 \cdot 10^3$	$0{,}7 \cdot 10^4$
	2,25	$4{,}9 \cdot 10^3$	$0{,}8 \cdot 10^4$
	2,17	$4{,}6 \cdot 10^3$	$0{,}9 \cdot 10^4$

Аэрозольные частицы, характеристики которых представлены в таблице 1.23, можно отнести:

– к мелкодисперсным аэрозолям (по удельной активности),

– к среднедисперсным аэрозолям (по их размерам),

– к крупнодисперсным аэрозолям (по альфа-активности).

Это говорит о том, насколько сложен дисперсный состав промышленных аэрозолей, и как бы их не делили на фракции, очевидно, что в составе аэрозолей всегда будут присутствовать аэрозольные частицы, обладающие промежуточными параметрами. Важно правильно оценить радиационную опасность аэрозолей, содержащих «горячие» частицы респирабельных размеров.

Таким образом, исследования дисперсности аэрозолей на старом плутониевом производстве, проводимые в период 1969–1971 гг., показали, что альфа-активные аэрозоли представляют собой многокомпонентную смесь твердых частиц сложного состава по химическим и дисперсным характеристикам. Параметры распределений альфа-активных частиц по размерам, альфа-активности и удельной активности (см. таблицы 1.21–1.22) можно использовать для количественного описания аэрозолей при ингаляционном поступлении.

Аналогичные исследования уже в помещениях нового плутониевого производства ПО «Маяк» были проведены и в 1972–1981 гг. Для изучения дисперсного состава аэрозолей каждой фракции был проведен анализ проб, отобранных в помещениях операторских и ремонтных зон. Ежегодно отбирались от 30 до 148 проб как при нормальном технологическом режиме, так и при ремонтных работах (демонтаже и монтаже оборудования, вскрытии оборудования, сварочных работах и т. п.).

Промышленные аэрозоли, как и ранее представляли собой многокомпонентную смесь твердых частиц, разделенных на три фракции: мелкодисперсную, среднедисперсную, крупнодисперсную. Данные по дисперсному составу промышленных аэрозолей при работе с плутонием-239 за этот период представлены в табл. 1.24–1.34.

Параметры распределений мелкодисперсных и крупнодисперсных аэрозолей по размерам определялись, как правило, по нескольким пробам, количество которых варьировалось от 5 до 7.

Параметры распределений аэрозолей среднедисперсной фракции определялись в каждой отобранной пробе, а затем усреднялись по зонам и характеру работ. Число усредняемых проб составляло от 7 до 22.

Таблица 1.24 – Параметры счетных распределений и распределений альфа-активности по размерам мелкодисперсных аэрозолей, отобранных при нормальном технологическом процессе (1972–1980 гг.)

Год использования	Место отбора аэрозольных проб	Кол-во частиц на пробах	D_g, мкм	β_g	D_{ag}, мкм	β_{ag}
1972	операторская	2543	0,11	1,38	0,153	1,48
	ремзона	1453	0,11	1,43	0,148	1,49
1973	операторская	2352	0,07	1,39	0,120	1,40
	ремзона	943	0,08	1,40	0,140	1,43
1974	операторская	2876	0,0	1,39	0,144	1,46
	ремзона	2783	0,10	1,38	0,148	1,48
1977	операторская	7533	0,12	1,38	0,147	1,50
	ремзона	16537	0,12	1,38	0,150	1,38
1980	ремзона	10749	0,10	1,40	0,148	1,39
Среднее значение			0,10	1,39	0,144	1,44
$D_{мин}$ = 0,048 мкм			$D_{макс}$ = 0,328 мкм			

Анализ однородности распределений по критерию Неймана-Пирсона [107] на уровне значимости 0,05 показал, что параметры распределений среднедисперсных аэрозолей по размерам однородны, поэтому дисперсный состав можно характеризовать средним параметром. В связи с этим в таблицах 1.27–1.28 представлены усредненные по размерам и активности параметры распределений аэрозолей среднедисперсной фракции D_g, β_g, D_{ag}, β_{ag}.

Таблица 1.25 – Параметры счетных распределений и распределений альфа-активности мелкодисперсных аэрозолей по размерам, отобранных при ремонтных работах (1972–1981 гг.)

Год исследования	Место отбора аэрозольных проб	Кол-во частиц на пробах	D_g, мкм	β_g	D_{ag}, мкм	β_{ag}
1972	операторская	1381	0,13	140	0,168	1,40
	ремзона	3893	0,13	1,40	0,180	1,49
1973	ремзона	6458	0,11	1,32	0,147	1,46
1974	ремзона	2235	0,11	1,32	0,147	1,46
1980	ремзона	4587	0,14	1,44	0,171	1,44
1981	ремзона	28523	0,07	1,34	0,140	1,34
Среднее значение			0,12	1,37	0,159	1,43
$D_{мин}$ = 0,048 мкм			$D_{макс}$ = 0,313 мкм			

Таблица 1.26 – Параметры счетных распределений и распределений альфа-активности крупнодисперсных аэрозолей по размерам (1974–1981 гг.)

Место отбора аэрозольных проб	Год исследования	Кол-во частиц на пробах	D_g, мкм	β_g	D_{ag}, мкм	β_{ag}
Операторская и ремонтная зоны	1972	437	20,5	1,9	41,3	2,2
	1973	96	19,6	2,0	32,4	2,0
	1974	85	18,3	2,1	30,5	2,1
	1978	81	20,4	3,2	39,4	3,0
	-″-	483	22,8	3,1	42,5	3,0
	1980	9	–	–	–	–
Среднее значение			20,3	2,4	36,8	2,4
$D_{мин}$ = 5,4 мкм			$D_{макс}$ = 119,4 мкм			

Таблица 1.27 – Усредненные параметры счетных распределений и распределений альфа-активности средне дисперсных аэрозолей по размерам при нормальном технологическом процессе

Год исследования	Место отбора аэрозольных проб	Среднее кол-во частиц на пробах	D_g, мкм	β_g	D_{ag}, мкм	β_{ag}
1972	операторская	1789±35	2,5	2,5	5,2	2,5
	ремзона	1368±277	2,6	2,3	7,6	2,3
1973	операторская	2181±183	1,9	2,1	3,8	2,1
	ремзона	518±73	2,6	2,5	6,0	2,4
1974	операторская	1148±38	1,4	2,0	2,4	2,1
	ремзона	1176±154	1,6	2,4	2,6	2,6
1977	операторская	2432±215	2,2	2,3	3,0	3,3
	ремзона	7334±139	1,9	2,2	2,3	2,2
1980	ремзона	604±94	1,5	2,6	3,8	2,7
$D_{мин}$ = 0,33 мкм			$D_{макс}$ = 68,3 мкм			

Таблица 1.28 – Усредненные параметры счетных распределений и распределений активности средне дисперсных аэрозолей по размерам при ремонтных работах

Год исследования	Место отбора аэрозольных проб	Среднее кол-во частиц на пробах	D_g, мкм	β_g	D_{ag}, мкм	β_{ag}
1972	операторская	1789±35	2,4	2,5	8,1	2,4
	ремзона	1368±277	2,1	2,5	11,6	2,7
1973	ремзона	5838±737	2,3	2,4	6,8	2,8
1974	ремзона	3203±79	3,5	2,1	9,3	2,1
1980	ремзона	1393±54	2,0	1,8	4,3	1,8
1981	ремзона (сварка)	463±15	1,3	2,7	2,9	3,3
$D_{мин}$ = 0,33 мкм			$D_{макс}$ = 59,3 мкм			

Одновременно определялись параметры распределений промышленных аэрозолей по альфа-активности и удельной активности (таблицы 1.29, 1.30).

Таблица 1.29 – Параметры распределений мелкодисперсных аэрозолей по альфа-активности и удельной активности при работе с плутонием-239 (1972–1980 гг.)

Год использования	Место отбора аэрозольных проб	Характер работ	Кол-во частиц на пробах	A_g, мкБк	β_{Ag}	q_g, мкБк/мкм^3	B_{qg}
1972	операторская	НТР	2543	14,1	2,7	$2{,}1\cdot10^4$	–
	ремзона	НТР	1453	14,5	2,7	$2{,}1\cdot10^4$	–
1973	ремзона	Р/Р	6458	18,4	2,5	$2{,}1\cdot10^4$	–
1974	ремзона	НТР	2783	14,8	2,5	$2{,}1\cdot10^4$	–
1977	ремзона	НТР	16537	14,9	2,7	$2{,}1\cdot10^4$	–
1980	ремзона	Р/Р	4587	15,2	2,9	$2{,}1\cdot10^4$	–
Среднее значение				15,3	2,7	$2{,}1\cdot10^4$	–
$A_{мин}$ = 1,16 мкБк				$A_{макс}$ = 764 мкБк			
Примечание: НТР – нормальный технологический режим; Р/Р – ремонтные работы							

Таблица 1.30 – Параметры распределений крупнодисперсных аэрозолей по альфа-активности и удельной активности при работе с плутонием-239 (1972–1980 гг.)

Год использования	Место отбора аэрозольных проб	Характер работ	Кол-во частиц на пробах	A_g, мкБк	β_{Ag}	q_g, мкБк/мкм^3	β_{qg}
1972	операторская	НТР	218	$1{,}3\cdot10^3$	2,5	0,9	5,3
	ремзона	Р/Р	219	$1{,}8\cdot10^3$	2,3	0,8	5,4
1973	операторская	НТР	41	$4{,}5\cdot10^3$	2,5	1,1	5,3
	ремзона	Р/Р	55	$4{,}2\cdot10^3$	2,5	1,1	5,8
1974	ремзона	НТР	52	$4{,}8\cdot10^3$	2,3	1,5	5,3
1977	ремзона	НТР	492	$9{,}5\cdot10^3$	3,2	1,9	4,3
1980	ремзона	НТР	3	–	–	–	–
		Р/Р	6	–	–	–	–
$A_{мин}$ = 1018 мкБк				$A_{макс} = 3{,}4\cdot10^5$ мкБк			
$q_{мин} = 3{,}1\cdot10^{-2}$ мкБк/мкм^3				$q_{макс}$ = 368 мкБк/мкм^3			
Примечание: НТР – нормальный технологический режим; Р/Р – ремонтные работы							

Из таблиц 1.24–1.26 видно, что за 1972–1981 годы при работе с плутонием-239 в помещениях операторских и ремонтных зон размеры D_g и D_{ag} мелкодисперсных и крупнодисперсных аэрозолей оставались практически постоянными. У среднедисперсных аэрозолей наблюдалась тенденция к уменьшению значений вышеуказанных параметров, и особенно, основного параметра распределений активности по размерам – D_{ag} (см. таблицы 1.27–1.28). Например, в 1972 году в помещениях операторской зоны при

нормальном технологическом режиме D_{ag} = 5,2 мкм, а в 1974 году – D_{ag} = 2,4 мкм. Аналогично и в помещениях ремонтной зоны в 1972 году D_{ag} = 7,6 мкм, а в 1977 году D_{ag} = 2,3 мкм.

Полученные результаты показывают, что дисперсность радиоактивных аэрозолей меняется во времени, вследствие совершенствования технологии, оборудования и его герметичности.

Количество аэрозолей мелкодисперсной фракции в воздухе рабочих помещений за период 1972–1980 годы увеличилось с 54% до 95% при нормальном технологическом процессе, и с 47% до 77% при ремонтных работах. За этот же период увеличился и относительный вклад их альфа-активности: с 16% до 65% при нормальном технологическом процессе и с 12% до 31% при ремонтных работах. При этом при нормальном технологическом режиме количество аэрозолей среднедисперсной фракции уменьшилось с 44% до 5%, а при ремонтных работах с 50% до 23% (табл. 1.34).

Доля альфа-активности крупнодисперсной фракции аэрозолей к 1980 году уменьшилась до 4,5% при нормальном технологическом процессе и до 7% при ремонтных работах, а среднедисперсной фракции – до 30% при нормальном технологическом процессе.

Таблица 1.31 – Усредненные параметры распределений среднедисперсных аэрозолей, отобранных при нормальном технологическом процессе (1972–1980 гг.) по альфа-активности и удельной активности

Год исследования	Место отбора аэрозольных проб	Среднее кол-во аэрозольных частиц в пробе	A_g, мкБк	β_{Ag}	q_g, мкБк/мкм^3	β_{qg}
1972	операторская	1789±35	19,4	2,9	4,4	4,3
	ремзона	1368±27	20,8	5,1	4,2	4,8
1973	операторская	2181±183	33,2	2,2	10,7	4,0
	ремзона	518±73	5,4	2,1	4,9	6,3
1974	ремзона	1176±154	18,3	3,0	8,5	12,5
1977	операторская	2432±215	21,4	3,4	4,0	8,4
	ремзона	7337±139	23,8	3,9	6,6	8,3
1980	ремзона	604±94	18,2	2,3	8,1	5,7
$A_{мин}$ = 2,54 мкБк		$A_{макс}$ = 925,8 мкБк				
$q_{мин}$ = 0,02 мкБк/мкм^3		$q_{макс}$ = 657,2 мкБк/мкм^3				

Доля альфа-активности, переносимая в ранний период контроля частицами грубодисперсного аэрозоля при ремонтных работах, перераспределилась, увеличив активность среднедисперсных частиц к 1980 году до 60%. При этом активность мелкодисперсных

частиц осталась на прежнем уровне (таблица 1.29). Из таблицы 1.31 следует, что в 1973 году параметры распределений по альфа-активности аэрозолей среднедисперсной фракции в операторской зоне несколько выше, чем значения этих параметров в другие годы.

Аналогичное увеличение параметра A_g, можно наблюдать и в 1980 году при проведении ремонтных работ (таблица 1.32): в 1973 году усредненная активность аэрозольной частицы в ремзоне составляла 61 мкБк, а в 1980 – 81 мкБк.

Таблица 1.32 – Усредненные параметры распределений среднедисперсных аэрозолей, отобранных при ремонтных работах (1972–1981 гг.), по альфа-активности и удельной активности

Год исследования	Место отбора аэрозольных проб	Среднее кол-во аэрозольных частиц в пробе	A_g, мкБк	β_{Ag}	q_g, мкБк/мкм^3	β_{qg}
1972	операторская	1966±157	43,3	2,7	6,0	5,4
1973	ремзона	5835±737	60,9	2,3	9,6	5,8
1974	ремзона	1538±168	46,4	2,6	9,1	6,2
1980	ремзона	1393±54	80,8	2,3	10,6	5,9
1981	ремзона (сварка)	463±15	5,5	2,4	5,9	6,3
$A_{мин}$ = 1,0 мкБк			$A_{макс}$ = 968,3 мкБк			
$q_{мин}$ = 0,024 мкБк/мкм^3			$q_{макс}$ = 839,5 мкБк/мкм^3			

В аэрозольных пробах, отобранных в ремонтных зонах, обнаружены «горячие» частицы, которые можно отнести:

– по размерам к аэрозолям среднедисперсной фракции;

– по альфа-активности к аэрозолям крупнодисперсной фракции;

– по удельной альфа-активности к аэрозолям мелкодисперсной фракции.

Таких частиц при прокачке одинакового объема воздуха (10 м^3) обнаружено:

– в 1973 году – 208 (при нормальном технологическом режиме и ремонтных работах);

– в 1974 году – 16 (при ремонтных работах);

– в 1977 году – 3 (при ремонтных работах);

– в 1981 году – 19 (при сварочных работах).

Таблицы 1.33 и 1.34 характеризуют дисперсный состав промышленных альфа-активных аэрозольных частиц за изучаемые периоды (1969–1971 гг. и 1972–1980 гг.).

Таблица 1.33 – Параметры распределений промышленных аэрозолей плутния-239, характеризующие дисперсный состав в динамике (1969–1980 гг.)

Аэрозоли	Годы исследования	Характер работ	D_g, мкм	β_g	D_{ag}, мкм	β_{ag}	A_g, мкБк	β_{Ag}	q_g, мкБк/мкм^3	β_{qg}
Мелкодисперсные	1969–71	НТР	0,10	1,41	0,141	1,41	14,4	3,0	$2\cdot10^4$	–
		Р/Р	0,15	1,53	0,168	1,55	19,3	2,5	$2\cdot10^4$	–
	1972–80	НТР	0,10	1,39	0,144	1,44	14,7	2,7	$2\cdot10^4$	–
		Р/Р	0,12	1,37	0,159	1,43	16,8	2,7	$2,1\cdot10^4$	–
	Среднее значение		0,12	1,42	0,150	1,45	16,3	2,7	$2,1\cdot10^4$	–
Среднедисперсные	1969–71	НТР	3,1	2,6	7,8	2,5	66,0	2,9	5,45	4,3
		Р/Р	4,4	3,2	7,8	3,3	90,3	2,7	6,8	5,3
	1972	НТР	2,5	2,5	6,3	2,4	20,4	3,8	4,3	4,6
		Р/Р	2,2	2,5	9,7	2,6	43,3	2,7	6,0	5,4
	1980	НТР	1,5	2,6	3,8	2,7	18,2	2,3	8,1	5,7
		Р/Р	2,0	1,8	4,3	1,8	80,8	2,3	10,6	5,9
Крупнодисперсные	1969–71	НТР	21,5	1,9	39,8	2,2	$4,5\cdot10^3$	3,0	1,0	4,1
		Р/Р	27,8	1,9	43,3	2,1	$5,7\cdot10^3$	3,7	2,8	5,8
	1972–80	НТР Р/Р	20,3	2,4	36,8	2,4	$4,3\cdot10^3$	2,4	1,2	5,2
	Среднее значение		23,0	2,0	40,0	2,2	$4,8\cdot10^3$	3,0	1,7	5,0
Примечание: НТР – нормальный технологический режим; Р/Р – ремонтные работы										

Таблица 1.34 – Соотношение мелкодисперсных, среднедисперсных и крупнодисперсных аэрозолей при работе с плутонием-239 (1969–1980 гг.)

Годы исследования	Характер работ	Содержание в%					
		МДФ		СДФ		КДФ	
		По счету	По активности	По счету	По активности	По счету	По активности
1969–71	НТР	16,0	1,3	83,2	51,2	0,8	46,0
	Р/Р	21,3	2,4	76,4	39,6	2,3	58,0
1972	НТР	54,0	15,9	43,8	39,2	2,2	44,9
	Р/Р	47,3	11,7	50,2	33,7	2,5	54,6
1980	НТР	94,5	65,1	5,3	30,4	0,2	4,5
	Р/Р	76,6	30,5	23,3	62,4	0,1	7,1

Анализ представленных материалов по дисперсному составу альфа-активных аэрозолей на плутониевом производстве ПО «Маяк» позволяет сделать следующие выводы:

1) промышленные аэрозоли представляют собой многокомпонентную смесь твердых частиц, дисперсный состав которых неоднороден по качеству и по количеству;

2) промышленные альфа-активные аэрозоли можно разделить на мелкодисперсную, среднедисперсную и крупнодисперсную фракции;

3) состав мелкодисперсных аэрозолей за период 1969–1981 гг. существенно не менялся. Среднее значение параметров распределения альфа-активности аэрозолей по их размерам составляло $D_g = 0{,}12$ мкм, $\beta_g = 1{,}42$ (см. таблицу 1.33). При этом содержание альфа-активности аэрозолей мелкодисперсной фракции за этот период увеличилось с 1,3% до 65,1% (при нормальном технологическом процессе) и с 2,4% до 30,5% (при ремонтных работах) (см. таблицу 1.34);

4) состав среднедисперсных аэрозолей за рассматриваемый период изменился в сторону уменьшения размеров и альфа-активности (см. таблицу 1.27). Величина основного параметра D_{ag} за указанный период уменьшилась в 2 раза с 7,6 ли до 3,8 мкм при нормальном технологическом процессе;

5) дисперсный состав крупнодисперсных аэрозолей, также как аэрозолей мелкодисперсной фракции за период с 1969 по 1980 гг., существенно не изменился. Параметры распределений аэрозолей крупнодисперсной фракции по их размерам, альфа-активности, удельной альфа-активности мало отличались по своим числовым значениям. Значение параметра D_{ag} для аэрозолей крупнодисперсной фракции уменьшилось от 43,3 мкм до 36,8 мкм и в среднем составило 40,0 мкм (см. таблицу 1.33).

1.5. Дисперсный состав альфа-активных аэрозольных частиц на участках работы с америцием-241 и плутонием-238

Данные по дисперсному составу промышленных аэрозолей были получены на участках работы с америцием-241 (1969–1970 гг.) и плутонием-238 (1970–1978 гг.) на ПО «Маяк».

При работе с америцием, аэрозольные пробы отбирались в операторской и ремонтной зонах на участках с трехзональной планировкой технологического процесса. Было отобрано при нормальном технологическом режиме 33 пробы, из них: 15 проб – в операторской, 15 проб – в ремзоне, 3 пробы – в тамбуре, соединяющем эти зоны. Полученные данные по дисперсному составу промышленных аэрозолей представлены в таблицах 1.35 и 1.36.

Анализ данных таблиц показывает, что промышленные аэрозоли при работе с америцием-241 также, как и при работе с плутонием-239, представляют многокомпонентную смесь твердых частиц, состоящую из мелкодисперсной, крупнодисперсной и среднедисперсной фракций.

Таблица 1.35 – Соотношение промышленных аэрозолей по фракциям при работе с америцием-241,%

Место отбора аэрозольных проб	МДФ		СДФ		КДФ	
	По счету	По активности	По счету	По активности	По счету	По активности
Операторска	68,4	32,8	31,3	41,7	0,3	25,5
Ремзона	59,3	34,8	0,3	42,9	0,4	22,3
Среднее значение	63,8	33,8	35,8	42,3	0,4	23,9
Тамбур	55,4	20,5	43,2	35,2	1,3	44,3

Из таблицы 1.35 видно, что в воздухе рабочих помещений выделенные фракции (МДФ, СДФ, КДФ) вносят неодинаковый вклад по количеству альфа-активных частиц. Наибольшее количество частиц относится к мелкодисперсной фракции (55,4% – 68,4%), наименьшее – к аэрозолям крупнодисперсной фракции (0,3% – 1,3%). Однако их вклады по альфа-активности практически одинаковы. Удельная альфа-активность промышленных аэрозолей америция-241 изменялась в широком диапазоне от 0,1 до $1{,}23 \cdot 10^6$ мкБк/мкм^3. Параметры распределений промышленных аэрозолей по размерам, альфа-активности и удельной активности представлены в таблице 1.36.

Таблица 1.36 – Параметры распределений промышленных аэрозолей по размерам, альфа-активности и удельной альфа-активности при работе с америцием-241

Аэрозоли	Место отбора аэрозольных проб	D_g, мкм	β_g	D_{ag}, мкм	β_{ag}	A_g, мкБк	β_{Ag}	q_g, мкБк/мкм^3	β_{qg}
Мелкодисперсные	операторская	0,038	1,5	0,06	1,5	36,0	4,1	$\bar{q}=1{,}23 \cdot 10^6$	–
	ремзона	0,038	1,5	0,08	1,5	34,6	3,5		
	среднее значение	0,038	1,5	0,07	1,5	35,3	3,8		
Среднедисперсные	операторская	4,8	2,4	9,4	2,3	24,1	2,5	0,24	4,8
	ремзона	4,2	2,5	9,3	2,4	31,6	2,5	0,75	6,3
	тамбур	5,7	2,3	11,5	2,6	23,8	2,7	0,24	7,0
	среднее значение	4,9	2,4	10,0	2,4	26,2	2,6	0,35	5,9
Крупнодисперсные	операторская ремзона	30,0	1,8	58,7	2,0	$1{,}32 \cdot 10^3$	4,1	0,1	3,7
$D_{мин}$ = 0,012 мкм				$D_{макс}$ = 123,0 мкм					

Всего было проанализировано 33 аэрозольных пробы, в которых обнаружено 56 крупных альфа-активных частиц. Построены распределения и определены параметры D_g, β_g, D_{ag}, β_{ag}, A_g, β_{Ag}, q_g, β_{qg} аэрозолей грубодисперсной фракции.

Параметры распределений аэрозолей мелкодисперсных фракций определялись на 15 пробах, отобранных в рабочих помещениях операторской и ремонтной зон. Количество частиц в распределении составляло ≈ 1100±100.

Параметры распределений аэрозолей среднедисперсной фракции определяли для каждой пробы, а затем усредняли для каждой из зон. Усреднение параметров проводились по критерию Неймана-Пирсона. Распределение в этом случае строилось для 526±125 аэрозольных частиц.

Сравнение параметров распределений аэрозолей плутония-239 и америция-241 (см. таблицы 1.33 и 1.36) показало, что для мелкодисперсной фракции величина активности частиц A_g при работе с америцием-241 в среднем составляет 35,3 мкБк, что в два раза больше, чем в помещениях при работе с плутонием-239, где среднее значение Ag составляет 16,3 мкБк.

В воздухе рабочих помещений при работе с Am-241 размеры аэрозольных частиц варьируют от минимального значения 0,012 мкм до максимального 123 мкм. В помещениях при работе с Pu-239 обнаружены частицы с минимальным диаметром 0,33 мкм и максимальным диаметром 68,3 мкм.

Таким образом, промышленные аэрозоли рабочих помещений при работе с америцием-241 представляют собой аэродисперсную систему, состоящую из твердых частиц, сорбирующих на своей поверхности α-активные нуклиды. Доля α-активности мелкодисперсной фракции составляет 34%, а среднедисперсной фракции – 42%.

Параметры распределений альфа-активности промышленных аэрозолей по размерам – активный медианный диаметр D_{ag} и стандартное геометрическое отклонение β_{ag}, составляют:

– для аэрозолей мелкодисперсной фракции D_{ag} = 0,07 мкм, β_{ag} = 3,8;

– для аэрозолей среднедисперсной фракции D_{ag} = 10,0 мкм, β_{ag} = 2,6;

– для аэрозолей крупнодисперсной фракции D_{ag} = 58,7 мкм, β_{ag} = 2,0.

Для изучения дисперсного состава промышленных аэрозолей, содержащих плутоний-238, аэрозольные пробы отбирались в рабочих помещениях операторской и ремонтных зон при нормальном технологическом процессе и при ремонтных работах.

Данные о дисперсности промышленных альфа-активных аэрозолей плутония-238, рассчитанные по результатам оптикорадиографического анализа 15 аэрозольных проб,

отобранных в 1970–71 годы, и 18 проб, отобранных в 1978 году, представлены в таблицах 1.37–1.40.

Анализируя данные таблиц 1.37–1.40 можно отметить, что дисперсный состав промышленных аэрозолей в помещениях операторской зоны при нормальном технологическом процессе за период с 1970 по 1978 годы не изменился. Как в 1970 году, так и в 1978 году наибольшая доля и по количеству, и по альфа-активности принадлежала аэрозолям мелкодисперсной фракции. Их количество в воздухе рабочих помещений составляло в 1970 году – 96,5%, в 1978 году – 95%, а доля по альфа-активности – 54,9% и 60,6% соответственно.

Параметры распределений среднедисперсных аэрозолей, характеризующие их размеры и альфа-активность в операторской зоне, за эти годы также не изменились. В воздухе рабочих помещений операторской зоны при нормальном технологическом процессе аэрозоли среднедисперсной фракции характеризовались следующими параметрами:

в 1970 году D_g = 2,4 мкм; D_{ag} = 5,8 мкм; A_g = 13,5 мкБк; q_g = 1,8 мкБк/мкм^3;

в 1978 году – D_g = 2,5 мкм; D_{ag} = 4,5 мкм; A_g = 9,6 мкБк; q_g = 1,9 мкБк/мкм^3.

Таблица 1.37 – Соотношение параметров промышленных аэрозолей мелкодисперсной, среднедисперсной и крупнодисперсной фракции на участке работы с плутонием-238,%

Год исследования	Место отбора аэрозольных проб	Характер работ	Содержание в%					
			МДФ		СДФ		КДФ	
			По счету	По активности	По счету	По активности	По счету	По активности
1970	операторская	НТР	96,49	54,87	3,49	34,80	0,02	10,33
	операторская	Р/Р	90,40	40,50	9,50	39,20	0,10	20,30
	ремзона	НТР	95,63	49,55	4,35	38,96	0,02	11,49
	ремзона	Р/Р	89,50	38,40	1,40	37,10	0,10	24,50
Среднее значение	операторская и ремзона	НТР	96,06	52,20	3,92	36,90	0,02	10,90
		Р/Р	89,95	39,40	9,95	38,20	0,10	22,40
1978	операторская	НТР	94,95	60,55	5,03	31,83	0,02	7,62
	операторская	Р/Р	93,70	52,00	6,30	48,00	–	–
	ремзона	Сварка	89,18	40,30	1,59	39,30	0,23	20,4
		НТР	98,85	96,20	1,15	3,80	–	–
Примечание: НТР – нормальный технологический режим; Р/Р – ремонтные работы								

При ремонтных работах во всех помещениях величина активного медианного диаметра D_{ag} аэрозолей среднедисперсной фракции, содержащих плутоний-238, по сравнению с нормальным технологическим процессом увеличивалась в 1,5 – 2 раза для проб, отобранных в 1970 году, и в 2–3 раза для проб, отобранных в 1978 году. При этом максимальные значения D_{ag} среднедисперсной фракции при ремонтных работах составили 9,4 мкм и 8,0 мкм соответственно в 1970 и 1978 гг.

Таблица 1.38 – Параметры счетных распределений и распределений альфа-активности промышленных аэрозолей по их размерам на пробах, отобранных в 1970–71 годы при работе с плутонием-238

Аэрозоли	Место отбора аэрозольных проб	Характер работ	Кол-во аэрозольных частиц	$D_{мин}$, мкм	$D_{макс}$, мкм	D_g, мкм	β_a	D_{ag}, мкм	β_{ag}
МДФ	Операторская	НТР	8432	0,007	0,15	0,032	1,4	0,047	1,4
	Ремзона	Р/Р	8682	0,007	0,18	0,030	1,5	0,050	1,5
	Среднее значение			–	–	0,031	1,45	0,048	1,45
СДФ	Операторская	НТР	372±33	0,45	20,5	2,4	2,6	5,8	2,6
		Р/Р	938±74	0,30	48,3	5,3	2,4	9,4	2,6
	Ремзона	НТР	684±132	0,45	31,5	2,7	2,5	6,1	2,4
		Р/Р	783±83	0,30	51,4	6,2	2,6	8,3	2,4
	Среднее значение	НТР		–	–	2,6	2,6	6,0	2,5
	Среднее значение	Р/Р		–	–	5,8	2,5	8,8	2,5
КД	Операторская и ремзона		89	4,05	27,5	8,3	1,8	16,8	1,7
Примечание: НТР – нормальный технологический режим; Р/Р – ремонтные работы									

Таблица 1.39 – Параметры счетных распределений и распределений альфа-активности промышленных аэрозолей по их размерам на пробах, отобранных в 1978 году на участке при работе с плутонием-238

Аэрозоли	Место отбора аэрозольных проб	Характер работ	Кол-во аэрозольных частиц	$D_{мин}$, мкм	$D_{макс}$, мкм	D_g, мкм	β_a	D_{ag}, мкм	β_{ag}
МДФ	Операторская	НТР Р/Р	16935	0,07	0,13	0,03	1,5	0,045	1,5
СДФ	Операторская	НТР	676±134	0,045	33,8	2,5	2,3	4,5	2,7
	Операторская	Р/Р	584±27	0,045	30,4	2,7	3,0	8,0	3,4
	Ремзона	НТР	72±15	0,045	8,1	1,2	1,9	1,5	1,9
	Ремзона	Р/Р	840±115	0,045	29,3	3,0	2,1	7,2	3,1
КД	Операторская и ремзона	НТР, Р/Р	108	4,5	26,8	6,8	1,7	12,4	1,7
Примечание: НТР – нормальный технологический режим; Р/Р – ремонтные работы									

Таблица 1.40 – Параметры распределений промышленных аэрозолей по альфа-активности и по удельной альфа-активности на пробах, отобранных в 1970 и в 1978 гг. на участке при работе с плутонием-238

Аэрозоли	Год исследования	Место отбора аэрозольных проб	Характер работ	$A_{мин}$, мкБк	$A_{макс}$, мкБк	A_g, мкБк	β_{Ag}	$q_{мин}$, мкБк/мкм^3	$q_{макс}$, мкБк/мкм^3	q_g, мкБк/мкм^3	β_{qg}
МДФ	1970	Операторская и ремзона	НТР	0,9	$9{,}6\cdot10^3$	166,0	1,7	–	–	$\bar{q} = 5{,}6\cdot10^6$	–
	1978	операторская	НТР	1,2	$6{,}5\cdot10^3$	118,0	1,9	–	–	$\bar{q} = 5{,}7\cdot10^6$	–
	Среднее значение			–	–	140,0	1,8	–	–	$\bar{q} = 5{,}6\cdot10^6$	–
СДФ	1970	Операторская и ремзона	НТР	1,9	$0{,}7\cdot10^3$	13,5	4,1	0,010	524	1,8	9,0
	1978	операторская	НТР	2,3	$0{,}4\cdot10^3$	9,6	3,8	0,004	160	1,9	6,0
		операторская	Р/Р	2,3	$0{,}7\cdot10^3$	11,5	4,7	0,004	255	1,6	14,3
		ремзона	НТР	4,6	$0{,}1\cdot10^3$	10,7	2,4	0,2	184	8,3	5,8
КДФ	1970	Операторская и ремзона	НТР	$1\cdot10^3$	$4{,}3\cdot10^3$	$19{,}4\cdot10^2$	2,2	0,3	30	7,3	3,6
	1978	операторская	НТР	$1{,}6\cdot10^3$	$7{,}8\cdot10^3$	$23{,}4\cdot10^2$	2,4	0,2	422	11,5	3,6
Примечание: НТР – нормальный технологический режим; Р/Р – ремонтные работы											

Анализ результатов исследований дисперсного состава аэрозолей на участке при работе с плутонием-238 показал, что в воздухе рабочих помещений основная активность переносится частицами аэрозоля мелкодисперсной фракции, доля которой составляет от 33,4% до 96,2% по альфа-активности. Можно предположить, что это является результатом радиационного разрушения частиц вещества ядрами отдачи при альфа-распаде, что приводит к уменьшению размера аэрозольных частиц. Подробно механизмы процессов разрушения частиц диоксида плутония ядрами отдачи в объеме частицы и на ее поверхности будут рассмотрены в следующих главах монографии.

Следует отметить, что совершенствование и модификация технологических процессов, проводимые с целью улучшения санитарно-гигиенической обстановки, были направлены на повышение герметичности используемого оборудования, что в свою очередь приводило к уменьшению со временем размеров аэрозольных частиц, попадающих в зону дыхания рабочих.

В таблице 1.41 представлены обобщенные результаты авторадиографического исследования размеров частиц в терминах АМАД и соотношения фракций альфа-активных аэрозолей на участках плутониевого производства за период с 1972 по 2001 гг. [14, 26, 32].

Таблица 1.41 – Размеры и соотношение фракций альфа-активных аэрозолей в рабочих помещениях плутониевого производства

Годы	МДФ		СДФ		КДФ	
	АМАД	По α-акт,%	АМАД	По α-акт,%	АМАД	По α-акт,%
1972	0,44	16,0	10,86	39,2	69,2	44,8
1973	0,44	26,5	8,28	62,8	63,7	10,7
1974	0,44	35,1	4,35	49,7	63,7	15,2
1977	0,44	48,3	4,56	33,5	63,7	18,2
1980	0,44	65,1	5,45	30,4	63,7	4,5
1981	0,44	66,0	4,50	22,6	63,7	11,4
2001	0,25	25,0	4,59	75,0	КДФ отсутствует	

Данные таблицы 1.41 показывают, что с 1972 года доля альфа-активности мелкодисперсной фракции неуклонно возрастала с 16 до 66%, а фракция крупнодисперсных частиц уменьшалась с 44,8 до 11%. В пробах аэрозолей, отобранных в 2001 году в воздухе рабочих помещений, частиц с АМАД более 15 мкм не обнаружено, при этом средний размер частиц среднедисперсной фракции уменьшился с 10,8 до 4,5 мкм.

Заключение

По результатам исследований дисперсного состава аэрозолей, образующихся на производственных участках ПО «Маяк» при работе с альфа-активными радионуклидами, выполненных в период с 1969 по 1981 года, можно сделать следующие выводы:

1. Дисперсная фаза промышленных альфа-активных аэрозолей представляет собой многокомпонентную смесь твердых частиц, размеры которых варьируют:

– от $D_{мин} = 0{,}007$ мкм до $D_{макс} = 185$ мкм;

– альфа-активность от $A_{мин} = 0{,}9$ мкБк до $A_{макс} = 5{,}4 \cdot 10^4$ мкБк;

– удельная альфа-активность от $q_{мин} = 0{,}01$ мкБк/мкм^3 до $q_{макс} = 57 \cdot 10^6$ мкБк/мкм^3.

Каждая фракция характеризуется своими значениями параметров распределений по размерам, активности и удельной активности.

2. Основные параметры распределений альфа-активности аэрозолей мелкодисперсных, среднедисперсных и крупнодисперсных фракций по размерам – активный медианный диаметр (D_{ag}), стандартное геометрическое отклонение (β_{ag}) – отличаются друг от друга своими числовыми значениями.

При работе с америцием-241 активный медианный диаметр D_{ag} по фракциям имеет наибольший разброс среди рассмотренных распределений и составляет:

– для аэрозолей мелкодисперсной фракции $D_{ag} = 0{,}07$ мкм, $\beta_{ag} = 1{,}5$;

– для аэрозолей среднедисперсной фраккции $D_{ag} = 10{,}0$ мкм, $\beta_{ag} = 2{,}4$;

– для аэрозолей крупнодисперсной фракции $D_{ag} = 56{,}7$ мкм, $\beta_{ag} = 2{,}0$.

3. Для аэрозолей мелкодисперсной фракции параметр D_{ag} на конкретном рабочем участке – величина практически постоянная и меняется в зависимости от изотопа:

– при работе с плутонием-239 – $D_{ag} = 0{,}15$ мкм, $\beta_{ag} = 1{,}4$ (АМАД = 0,35 мкм);

– при работе с плутонием-238 – $D_{ag} = 0{,}05$ мкм, $\beta_{ag} = 1{,}4$ (АМАД = 0,12 мкм);

– при работе с америцием-241 – $D_{ag} = 0{,}07$ мкм, $\beta_{ag} = 1{,}5$ (АМАД = 0,17 мкм).

4. Для аэрозолей среднедисперсной фракции параметр D_{ag} зависит от свойств радионуклида, характера работ, времени отбора пробы, а также от применяемого технологического оборудования и его герметичности. На участке при работе с плутонием-239 в ремонтной зоне при нормальном технологическом режиме величина D_{ag} изменялась со временем, уменьшаясь с 7,6 до 2,3 мкм, при этом значение АМАД также уменьшалось с 9,6 до 2,9 мкм:

– в 1972 году $D_{ag} = 7{,}6$ мкм, $\beta_{ag} = 2{,}3$, (АМАД = 9,6 мкм);

– в 1973 году $D_{ag} = 6{,}0$ мкм, $\beta_{ag} = 2{,}4$, (АМАД = 7,6 мкм);

– в 1974 году $D_{ag} = 2{,}6$ мкм, $\beta_{ag} = 2{,}6$, (АМАД = 3,3 мкм);

– в 1977 году D_{ag} = 2,3 мкм, β_{ag} = 2,2, (АМАД = 2,9 мкм).

5. Параметр D_{ag} у аэрозолей крупнодисперсной фракции – величина практически постоянная и изменялась в основном в зависимости от типа производства.

Среднее значение D_{ag} и АМАД аэрозолей крупнодисперсной фракции:

– при работе с плутонием-239 – D_{ag} = 40,0 мкм, β_{ag} = 2,4, (АМАД = 50,8 мкм);

– при работе с плутонием-238 – D_{ag} = 14,4 мкм, β_{ag} = 1,7, (АМАД = 18,3 мкм);

– при работе с америцием-241 – D_{ag} = 58,7 мкм, β_{ag} = 2,6, (АМАД = 74,5 мкм).

6. С течением времени в период исследования дисперсности промышленных альфа-излучающих аэрозолей (с 1969 по 1981 гг.) вклад мелкодисперсной фракции в суммарную удельную активность неуклонно увеличивался, а доля крупнодисперсной фракции уменьшалась, и через тридцать лет, к 2001 году, практически исчезла вследствие изменения радиационной обстановки на рабочих местах.

Приложение 1

Состав ядерной эмульсии, проявителя, закрепителя

1. Авторадиографическая эмульсия тип NTB-3 фирмы Kodak
Номер по каталогу: 165 4441 – 4 ounce(s)
Производитель: Eastman Kodak Company, Rochester, New York 14650

Состав:

Вода	70–75%
Бромид серебра	16%
Желатин	5–10%
Глицерин	1–5%
Н-пропанол	1–5%

2. Проявитель Kodak D-19
Номер по каталогу: 194 6045 – To Make 5 gallons (U.S.)
146 4593 – To Make 1 gallon (U.S.)
Производитель: Eastman Kodak Company, Rochester, New York 14650

Состав:

Концентрат:	Сульфит натрия	55–60%
	Карбонат натрия моногидрат	30–35%
	Гидрохинон	5%
	4-метиламинофенол сульфат	1–5%
	Бромид калия	1–5%
Рабочий раствор:	Вода	85–90%
	Сульфит натрия	5–10%
	Карбонат натрия моногидрат	1–10%
	Гидрохинон	< 1%
	4-метиламинофенол сульфат	< 1%

3. Закрепитель Kodak Fixer
Номер по каталогу: 123 4699 – To Make 32 onces
197 1746 – To Make 1 gallon (U.S.)
197 1753 – To Make 5 gallons (U.S.)
Производитель: Eastman Kodak Company, Rochester, New York 14650

Состав:

Концентрат:		
	Тиосульфат натрия	70–75%
	Аммиачные квасцы, додекагидрат	10–15%
	Ацетат натрия	5–10%
	Метабисульфит натрия	5–10%
	Ангидрид борной кислоты	1–5%
Рабочий раствор:		
	Вода	75–80%
	Тиосульфат натрия	10–15%
	Аммиачные квасцы	1–5%
	Ацетат натрия	1–5%

Приложение 2

Процедура просветления аэрозольных фильтров

Аэрозольный фильтр делят на n равных частей и, аккуратно расправив, каждую частичку наклеивают на предметное стекло с помощью подслоя следующего состава:

Вода – 90 мл;
Желатин – 0.33 г;
Квасцы хромовые 3% – 2.5 мл;
Спиртовой раствор тимола 3% – 10 мл

Порядок приготовления подслоя: желатин заливают холодной водой для разбухания в течение 20–30 мин, затем плавят, не доводя до кипения. После этого вливают 3% раствор квасцов и, медленно помешивая стеклянной палочкой, добавляют спиртовой раствор тимола. Полученный раствор фильтруется через бумажный фильтр.

Процедура погружения препаратов в эмульсию

Препараты перед погружением в эмульсию проходят процедуры депарафинирования и дегидратирования, которые состоят в обработке 100%, 95% и 80% спиртом, после чего препараты высушиваются на воздухе.

Обработка спиртовыми растворами:

погрузить препарат в 80% спирт на 1мин;
в 95% спирт – на 1 мин;
в 100% спирт – на 1 мин.

Подготовка к процедуре погружения препаратов в эмульсию:

Установить оборудование и дополнительные приспособления в темной комнате так, чтобы было удобно ориентироваться в темноте. Два фотографических поддона с фильтровальной бумагой размещают в центре рабочей зоны. Водяная баня – справа от поддонов. Штативы для просушки препаратов размещают в коробках. Стол для нагревания должен быть расположен позади поддонов. Пластиковые коробочки для готовых препаратов – в удобном месте.

1. В темноте поместить эмульсию в водяную баню при t = 43 С на 1 час, убедиться, что не попадает свет.
2. Прогреть стакан в водяной бане, туда поместить контейнер, в который почти до края влить эмульсию, подождать 1 час.
3. Погрузить осторожно каждый препарат в эмульсию на 1–2 сек. Быстро извлечь препарат, держа его строго вертикально, чтобы обеспечить равномерное покрытие эмульсией.
4. Выдержать 1–2 сек, затем нижний конец препарата приложить к фильтровальной бумаге для удаления остатков эмульсии.
5. Подвесить препарат для просушки на 2 часа в условиях влажности 60–70%.
6. Вся процедура от погружения в эмульсию до подвешивания препарата для просушки должна занимать не более 20 сек на каждый препарат.
7. Высушенные препараты помещают в черные пластиковые коробочки, которые помещают в холодильник на определенное время экспозиции.
8. Рекомендуется каждую коробочку запечатать в Mylar мешок с целью снижения радиационного фона, обусловленного вкладом радона и его продуктами распада.

Процедура проявления

1. Необходимо строго выдерживать условия проявления в соответствии с определенными температурой, временем.
2. Необходимо быть внимательным, чтобы не загрязнить препараты или раствор проявителя каплями из стоп-ванны или фиксатором, не следует касаться пальцами эмульсии.

3. Выдержать весь набор химических реактивов и водных растворов в фотокомнате в течение 1 часа для стабилизации температуры при t = 16 С.
4. Расположить емкости в ряд и обработать препараты последовательно в:
   Проявитель – 4 мин;
   Стоп-ванна – 30 сек;
   Три емкости фиксажа – по 2 мин;
   Три емкости дистиллированной воды – по 5 мин.
5. Препараты в темноте извлекают из коробок и помещают в специальные держатели, убедившись, что препараты не соприкасаются.
6. Каждые 30 сек препараты необходимо взбалтывать, промывая их в указанных растворах.
7. Проявленные и промытые препараты помещаются под проточную воду на 5 мин.
   Примечание: избегать перемачивания препаратов, что может привести к их разбуханию.
8. Поместить препараты в 3 смены ксилола, по 5 мин в каждую.
9. Нанести на образец американский бальзам, положить покровное стекло и груз.

Список литературы к главе 1

1. International Commission on Radiological Protection. "Human Respiratory Tract Model for Radiological Protection" Oxford: Elsevier Science, Ltd.; Publication 66, Ann. ICRP 24; 1994.

2. Brunskill R.T. and Tagg B. A study of the size of airborne plutonium production plant. IRPA /2/, p. 82.

3. Moss W.D., Hyatt E.C., Schulte H.F. – Health Phys. 1961, v.5, p. 212.

4. Traser D.C. Problem associated with the production of experimental reactor fuels containing PuO_2. – Health Phys. 1967, v.13, N.10, p. 1133–1143.

5. Stevens D.C. Ann.Occup. Hyg., 1969, v.12, p. 33.

6. Brunkskill R.T., Holf F.B. Aerosol studies on Pu and uranium plants at the Windschale and Springfields works of the United Kingdom Atomic Energy Authority. – In: Assessment of airborne radioactivity. IAEA. Vienna, 1967, p. 463–476.

7. Kirchner R. Amer. Ind. Hyg. Assoc. J. 1966, v.27, N4, p. 397.

8. Newton G.I., Raabe O.G., Teague S.V. Plutonium aerosols inside a safety enclosure at mixed oxide reactor fuel fabrication facility. – Health Phys. 1976, v.31, N6, p. 545.

9. Andersen B.V. Plutonium aerosol particle size distributions in room air. – Health Phys. 1964, v.10, p. 899–907.

10. Sherwood R.J., Stevens D. Some observations on the nature and particle size of airborne plutonium the radiochemical laboratories Harwele. – Ann. Occup. Hyg., 1965, v.8, 1, p. 93–108.

11. Andersen D., Nelson I. Assessment of airborne radioactivity. IAEA. – Vienna. – 1967. – P. 185.

12. Андреева О.С., Бадьин В.И., Корнилов А.Н. Природный и обогащенный уран. Радиационно-гигиенические аспекты. – М.: Атомиздат, 1979. – 216 с.

13. Бадьин В.И., Ситько Р.Я. Определение дисперсности и альфа-активности пылинок на мембранных фильтрах // Сборник радиометрических и дозиметрических методик. – М.: Атомиздат, 1966. – С. 157–172.

14. Мелентьева Р.В. и соавт. "Дисперсность радиоактивных аэрозолей на основных предприятиях атомной промышленности" Отчет ФИБ-1, Том №1, Инв. № 1737, 1983, 109 с.

15. Бадьин В.И. "Исследование дозиметрических характеристик альфа-активных аэрозолей в производстве плутония" Дисс. канд. тех. наук. Москва, ИБФ МЗ РФ СССР, 1967. – 332 с.

16. Райст П. Аэрозоли: введение в теорию/ Пер. с англ. – М.: Мир,1987 – 280 с.

17. Mercer, T.T. "Aerosol Technology in Hazard Evaluation" (Academic Press, London), 1973.

18. International Commission on Radiological Protection. "Human Respiratory Tract Model for Radiological Protection" Oxford: Elsevier Science, Ltd.; Publication 66, Ann. ICRP 24; 1994.

19. P. Kotrappa, A. R. Sundararajan "Dynamic shape factors for PuO_2 aerosols useful in autoradiographic particle size analysis" Health Physics, 1975, v. 29, pp. 701–704.

20. Бойд Д.А. Авторадиография в биологии и медицине. Пер. с англ. яз. М., 1959. – 357 с.

21. Роджерс Э. Авторадиография. Пер. с англ. яз. М., 1972. – 302 с.

22. Моисеев А.А., Иванов В.И. Справочник по дозиметрии и радиационной гигиене. – М.: Атомиздат, 1974. – 333 с.

23. Benson P. H. et al. The density of fallout particles from airbursts. – Health Phys., 1967, v.13, N12, p. 1331–1335.

24. Фрейлинг Е. В кн.: Радиоактивные выпадения от ядерных взрывов. Пер. с англ. яз. М., 1968. С. 12.

25. Спурный К., Ч. Ейх и др. "Аэрозоли". Москва: Атомиздат, 1964, 360 с.

26. Лызлов А.Ф., Мелентьева Р.В., Щербакова Л.М. Применение оптико-радиографического метода для исследования дисперсности промышленных α-активных аэрозолей. Вопросы радиац. безопасности. – 2001. – № 3. – С. 63–78.

27. Колмогоров А.Н. О логнормальном законе распределения размеров частиц при дроблении // ДАН СССР. – 1941. – Т. XXXI. – № 2. – С. 99–101.

28. Фукс Н.А. Механика аэрозолей. – М.: Изд-во АН СССР, 1955. – 351 с.

29. Осовец С. В., Аладова Е.Е., Хохряков В.Ф. Сравнительный статистический анализ распределений по размерам производственных α-активных аэрозолей. Вопросы радиационной безопасности. – 2016. – № 3. – С. 68–77.

30. Городинский С. М., Гольдштейн Д.С., Маргулис У.Я. и др. Экспериментальное определение коэффициента перехода радиоактивных веществ с загрязненных поверхностей в воздухе рабочих помещений. – Гигиена и санитария, 1972, № 5, С. 46–50.

31. Андронов С. А., Бадьин В.И., Батова З.Г. и др. Метод контроля поступления аэрозолей в органы дыхания. – Гигиена и санитария, 1976, № 6, С. 62–66.

32. Аладова Е.Е. Исследование дисперсности альфа-активных промышленных аэрозолей методом авторадиографии. – Вопросы радиационной безопасности, 2002, № 4, С. 17–21.

2. ИССЛЕДОВАНИЕ ДИСПЕРСНОГО СОСТАВА АЛЬФА-ИЗЛУЧАЮЩИХ АЭРОЗОЛЕЙ В ВОЗДУХЕ РАБОЧИХ ПОМЕЩЕНИЙ ПО «МАЯК» МЕТОДОМ ИНЕРЦИОННОГО ОСАЖДЕНИЯ

С. А. Сыпко, В. В. Хохряков, В. Э. Введенский

При ингаляционном поступлении радиоактивных веществ в организм человека первоначальное отложение радиоактивных аэрозолей в различных отделах дыхательного тракта определяется размером аэрозольных частиц. Характер первоначального отложения радиоактивного вещества во многом определяет его дальнейшую судьбу и, следовательно, уровни облучения тех или иных органов и тканей.

Дисперсный состав промышленных альфа-излучающих аэрозолей воздуха рабочих помещений ПО «Маяк» изучался в разное время различными исследователями. При этом было использовано два метода: авторадиографии и метод инерционного осаждения аэрозольных частиц.

Первые исследования дисперсного состава альфа-излучающих аэрозолей на указанном производстве были проведены до середины 60 годов. Исследования проводились авторадиографическим методом. Они касались главным образом аэрозолей воздуха рабочих помещений химико-металлургического и литейного производства [1]. В соответствии с полученными результатами авторы указанной работы сделали вывод о том, что частота распределения размеров частиц альфа-излучающих аэрозолей подчинялась логарифмически нормальному закону с АМАД порядка 40±50 мкм. Применив усовершенствованный метод [2] обработки авторадиографических изображений, альфа-треков, упомянутые авторы критически пересмотрели полученные ранее результаты. В соответствии с уточненными данными в пробах аэрозолей воздуха химического и металлургического помещений плутониевого завода за период 1969–1971 гг., которые с точки зрения одномодального распределения ранее характеризовались АМАД в пределах 40÷50 мкм, оказались частицы, которые можно было распределить на три фракции. При этом каждая из фракций подчинялась логарифмически нормальным законом распределения частиц по их размерам. Данные о размерах частиц воздуха металлургического и химического отделений статистически не различались, поскольку имели близкие значения. В таблице 2.1 приведены усредненные характеристики для обоих подразделений [1,2].

Таблица 2.1 – Дисперсный состав альфа-излучающих аэрозолей старого цеха по получению плутония (среднее по химическому и металлургическому отделениям)

Фракция	Доля активности, приходящейся на фракцию	АМАД, мкм	Стандартное геометрическое отклонение
мелкодисперсная	0,02	0,45	1,4
средне дисперсная	0,51	13	2,5
грубодисперсная	0,47	70	2,2

Из таблицы 2.1 следует, что даже в период до середины 60 годов в воздухе рабочих помещений присутствовали аэрозольные частицы субмикронной фракции (АМАД 0,45 мкм). В данный промежуток времени их доля была незначительной.

После пуска нового производства произошли значительные изменения радиационной обстановки, что не могло не сказаться на дисперсном составе промышленных альфа-излучающих аэрозолей.

С середины семидесятых годов по настоящее время прошло более тридцати лет. За это время кардинально изменились технология основного производства, характер перерабатываемых субстратов и радиационная обстановка на рабочих местах. Все это не могло не привести к изменениям физико-химических свойств промышленных альфа-излучающих аэрозолей воздуха рабочих помещений. За прошедшие более чем тридцать лет не проводилось масштабных исследований промышленных альфа-излучающих аэрозолей.

2.1. Материалы и методы

2.1.1. Исследования размеров промышленных альфа-излучающих аэрозолей

Когда воздушный поток, содержащий аэрозоль, неожиданно изменяет направление, частицы вследствие инерции стремятся продолжить движение в прежнем направлении [3]. Если изменение направления вызвано предметом, оказавшимся в потоке, частицы, обладающие значительным импульсом, будут соударяться с ним. Этот процесс получил название «импакция». На этом физическом эффекте работают приборы «импакторы» «сепарирующие» частицы по размерам. Характеристики импакторов зависят от ряда факторов, в том числе от расстояния между срезом сопла и подложкой, формы сопла, направления потока, чисел Рейнольдса, рассчитанных как для сопла, так и для частицы. Не менее важна вероятность «прилипания» частиц к подложке, а также осаждение частиц на стенке импактора.

Конструкция и общий вид импактора собственной конструкции, который применялся для отбора проб промышленных альфа-излучающих аэрозолей, приведены на рисунках 2.1 и 2.2. Импактор изготовлен из нержавеющей стали, он имеет шесть каскадов и оконечный фильтр для улавливания мелкодисперсной фракции частиц. Конструкционные параметры импактора были рассчитаны в соответствии с формулой [4]:

$$d_{50} = \sqrt{St}\sqrt{\frac{9\pi \cdot \mu \cdot a^3}{4\rho_P \cdot Q}} \qquad (2.1)$$

где: d_{50} – аэродинамический диаметр частиц, улавливаемых каскадом импактора с вероятностью 50%, мкм;

St – число Стокса;

a – диаметр сопла каскада импактора. В разработанной конструкции диаметр менялся в пределах от 4,2 до 2,6 мм;

μ – вязкость воздуха при комнатной температуре;

ρ_P – плотность твердой фазы аэрозольной частицы, кг/м^3;

Q – объемный расход воздуха, м^3/с.

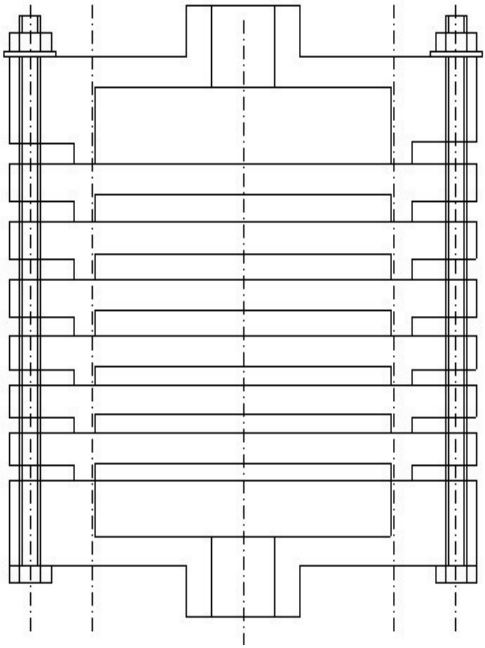


Рисунок 2.1 – Конструкция импактора

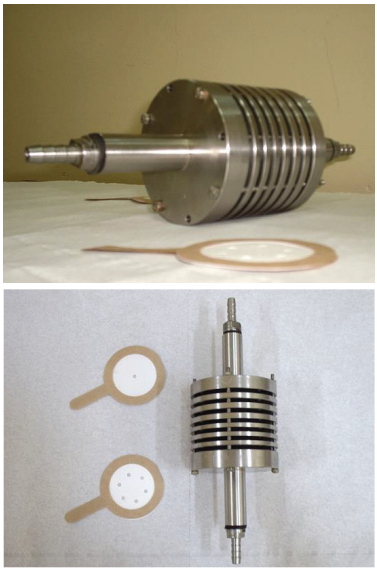


Рисунок 2.2 – Внешний вид импактора

Перед проведением исследований импактор был градуирован в ФГУП ВНИИФТРИ «масляным туманом». Результаты градуировки были проверены ЮУрИБФ с помощью генератора аэрозолей SLG 270. Сравнение расчетных и экспериментальных характеристик (значений АМАД для каждого каскада), приведенных в таблице 2.2, свидетельствует о близости указанных параметров.

Таблица 2.2 – Характеристика каскадов импактора

№ каскада	Число щелей, шт.	Ширина щелей, мм	АМАД, мкм расчетный	АМАД, мкм экспериментальный
I	14	4,2	10	10
II	6	4,2	7,5	6,6
III	3	4,2	5	3,9
IV	4	2,6	3,5	2,6
V	1	2,6	2	1,6
VI	6	4,2	1	1,1
VII*	-	-	<1	0,7
* – аэрозоли с АМАД <1мкм улавливались оконечным фильтром.				

В ходе исследований для расчета АМАД использовали экспериментально определенные характеристики каскадов импактора (таблица 2.2, последняя колонка). Пробы аэрозолей отбирали на расположенные в каскадах импактора фильтры типа АФА-РМП-

20. В качестве оконечного фильтра использовали фильтр типа АФА-РСП-20. Отбор проб аэрозолей проводился из воздуха на рабочих местах отделения 17 завода РТ (отделение получения диоксида плутония путем прокалки оксалата), а также отбирались пробы воздуха вентиляционных систем, обслуживающих данное отделение (как до газоочистки, так и после). Для сравнения полученных результатов (значений АМАД промышленных альфа-излучающих аэрозолей воздуха рабочих помещений завода РТ) с аналогичным показателем для иных производственных помещений ПО «Маяк» были проведены отборы проб аэрозолей воздуха рабочих помещений 117 цеха плутониевого завода.

Продолжительность отбора проб аэрозолей из воздуха помещений 17-го отделения не регламентировалась, а определялась целями эксперимента. В частности, отбор проб аэрозолей из воздуха вентиляционных систем, для которого характерна повышенная объемная активность радиоактивных веществ, проводился в течение коротких промежутков времени (от 60 до 100 минут). Отбор проб аэрозолей воздуха рабочих помещений плутониевого завода проводился в соответствии с утвержденной программой. Продолжительность отбора в этом случае была регламентирована семью сутками. Схема отбора проб промышленных альфа-излучающих аэрозолей и наночастиц приведена на рисунке 2.3.

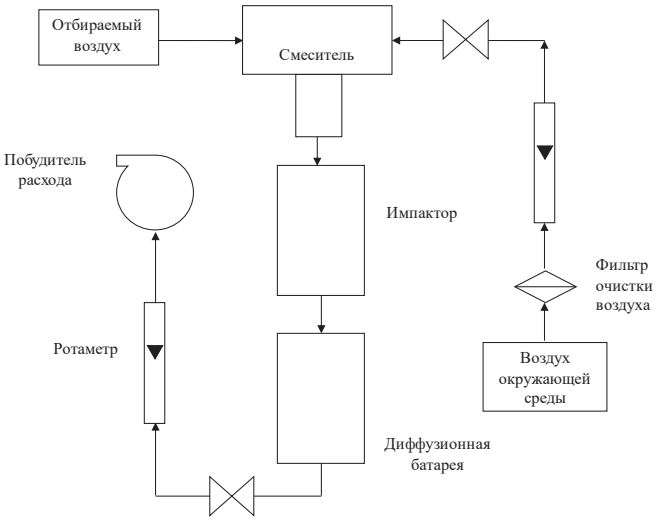


Рисунок 2.3 – Схема отбора проб аэрозолей и наночастиц

Отобранные пробы подвергались гамма-спектрометрическому и альфа-спектрометрическому методам анализа [4, 5]. Оценку АМАД проводили по результатам измерения

альфа или гамма активности аэрозольных частиц, задержанных на каскадах импактора, путем построения нормированной интегральной функции распределения активности рассматриваемого радионуклида по размерам аэродинамического диаметра частиц:

а) проверка соответствия вида распределения логнормальному закону с помощью построения графика на логарифмически вероятностной сетке;

б) определение АМАД и β_g, если распределение является логнормальным;

в) построение гистограммы распределения активности по аэродинамическим диаметрам частиц, если распределение не является логнормальным и определение АМАД и β_g по гистограмме.

На основании измерений активности радионуклида на фильтрах каскадов импактора находят значение интегральной функции распределения $f(d_n)$ в процентах по формуле:

$$A = \sum_{k=1}^{7} A_k$$

$$f\left(d_n\right) = \frac{\left(A - \sum_{i=1}^{n-1} A_i\right)}{A} \qquad (2.2)$$

Зная значение $f(d_n)$, находят значение нормированной нормально распределенной величины u. Значения u, отвечающие заданным значениям функции $f(d_n)$, могут быть найдены с помощью функции *НОРМСТОБР(f(dn))* в программе Microsoft Excel™ (или *NORMSINV(f(dn))* в английской версии программы), либо из справочника. Результаты заносят в таблицу 2.3.

Таблица 2.3 – Расчет характеристик распределения радиоактивного аэрозоля по размерам

№ каскада, n	(d50)n, мкм	An, Бк	Доля активности	Суммарное количество доли активности, $f\left(d_n\right)$	un, (x)	ln(d50)n, (y)
1	10		A_1 / A	$\sum_{i=1}^{7} A_i / A$		
2	6.6		A_2 / A	$\sum_{i=2}^{7} A_i / A$		
3	3.9		A_3 / A	$\sum_{i=3}^{7} A_i / A$		
4	2.6		A_4 / A	$\sum_{i=4}^{7} A_i / A$		

№ каскада, n	(d50)n, мкм	An, Бк	Доля активности	Суммарное количество доли активности, $f(d_n)$	un, (x)	ln(d50)n, (y)
5	1.6		A_5 / A	$\sum_{i=5}^{7} A_i / A$		
6	1.1		A_6 / A	$\sum_{i=6}^{7} A_i / A$		
7	0.7		A_7 / A	A_7 / A		

Логнормальное распределение удобно изображать графически на логарифмически вероятностной координатной сетке. То есть в такой прямоугольной системе координат, по оси ординат которой откладываются логарифмы эффективных аэродинамических диаметров разделения каскадных элементов $(d_{50})_i$, (а проставляются значения диаметров), а по оси абсцисс откладываются значения величины u (а проставляются значения функции $f(d_n)$ в процентах). При этом точка, соответствующая первому каскаду исключается. Если рассматриваемое распределение является логнормальным, то через полученные точки можно провести прямую линию. В этом случае значение диаметра *D50*, при котором $f(D50)=50\%$, равно АМАД, а отношение диаметров D_{84}/D_{50} будет равно β_g, где $f(D_{84})=84\%$.

Если вид распределения не соответствует логнормальному закону, необходимо построить гистограмму плотности распределения [3], где активность частиц A_i, собранных на *i*-й ступени, относятся к интервалу размеров частиц от $(d50)_{i+1}$ до $(d50)_i$. Высота каждого прямоугольника гистограммы есть доля вещества в данном интервале размеров, а ширина – сам интервал.

2.1.2. Выполнение измерений активности ^{241}Am и Pu в пробах аэрозолей

Для определения начальной активности на фильтрах проводили измерения активности ^{241}Am гамма-спектрометрическим методом с использованием полупроводникового детектора “Canberra” (модель GL3825) установки СИЧ со следующими характеристиками: активная площадь 3800 мм^2; диапазон измеряемых энергий гамма-излучения от 7 до 600 кэВ; энергетическое разрешение для линии 122 кэВ составляет 700 эВ.

Для калибровки спектрометра использовали точечный источник ^{241}Am типа ОСГИ-3-2 с активностью 49,6±0,85 кБк для проверки эффективности регистрации γ-квантов в диапазоне энергий 58,8-60,2 кэВ и эталонные фильтры с нанесенной известной активностью ОРР ^{241}Am в диапазоне от 1,8 Бк до 43 Бк для учета геометрии источник–фильтр.

Численные значения метрологических характеристик метода выполнения измерений составляют:

эффективность регистрации – 20±0,19%;

фон установки СИЧ – 0,021±0,0019 $с^{-1}$;

нижний предел детектирования – 0,19 Бк для ^{241}Am и 15 Бк для изотопов Pu.

Геометрия измерений приведена на рисунке 2.4.

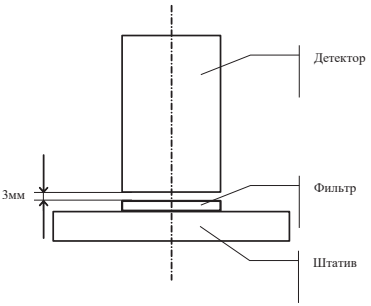


Рисунок 2.4 – Геометрия измерений активности ^{241}Am и изотопов Pu на фильтрах

Измерения суммарной альфа-активности изотопов плутония и америция в пробах аэрозолей проводили радиометрическим методом в слое твердого сцинтиллятора ZnS(Ag) на многоканальном низкофоновом альфа-радиометре РИА-20. Фильтры сжигали в муфеле, осадок озоляли азотной кислотой в присутствии перекиси водорода. Изотопы плутония и америций осаждали с $BiPO_4$, осадок смешивали с люминофором ZnS(Ag), переносили смесь в измерительную кювету диаметром 25 мм (толщина слоя 30 мг/$см^2$) и проводили измерение на РИА-20. При расчете содержания изотопов плутония и америция в пробе учитывают уровни «фоновой» альфа-активности, вносимой с реактивами и материалами при выполнении анализа.

Альфа-активность изотопов плутония и америция (A, Бк) в счетном образце рассчитывали по формуле:

$$A = \left[\frac{\left(N - N_{фк} \right)}{\varepsilon} - A_{ф} \right] \cdot \frac{1}{R}$$

где: N – скорость счета препарата на кювете, $с^{-1}$;

$N_{фк}$ – скорость счета фона канала радиометра, $с^{-1}$;

ε – Эффективность регистрации альфа-излучения в канале радиометра, $с^{-1} \cdot Бк^{-1}$;

$A_{ф}$ – «фоновая» альфа-активность в пробе фильтра, Бк;

R – химический выход изотопов плутония и америция, равный 0,85 доли.

Абсолютное значение суммарной погрешности результата измерения Δ (Бк) рассчитывается в зависимости от активности изотопов плутония и америция А (Бк) в счетном образце по формуле:

$$\Delta = 1{,}066 \cdot 10^{-3} + 0{,}1887 \cdot A$$

Границы относительной суммарной погрешности измерения активности плутония на уровне НПДИ, соответствующего 4 мБк/проба в пробе фильтра, не превышают ±55% при заданной доверительной вероятности P=0,95.

Для измерений использовался низкофоновый многоканальный альфа-радиометр РИА-20, аттестованный в установленном порядке в ВНИИФТРИ, со следующими метрологическими характеристиками:

средняя по каналам фоновая скорость счета – $9 \cdot 10^{-3}$ $с^{-1}$;

средняя по каналам эффективность регистрации – 93%;

предел допустимой основной погрешности – 16%;

нижний предел измерения активности за время экспозиции 8 часов – $4 \cdot 10^{-3}$ Бк.

Для определения изотопного состава плутония использовали для анализа целый фильтр или любая его часть в зависимости от ожидаемого уровня активности ^{241}Am и суммы изотопов Pu на фильтре, измеренной гамма-спектрометрическим методом. После сухого и влажного озоления осадок обрабатывали смесью HNO_3+HF для удаления SiO_2 и переводили в раствор разбавленной 1M HNO_3 для определения начальной суммарной активности (Am+Pu) на фильтре. Оценку начальной активности проводили в аликвоте раствора радиометрическим методом на низкофоновом альфа-радиометре РИА-20. Основываясь на результатах измерения начальной альфа-активности, для химического разделения радионуклидов отбирали аликвоту (из оставшегося раствора) активностью на уровне несколько десятых долей Бк (не более 0,5 Бк в пробе) и вводили известное количество активности радиоактивной метки ^{243}Am для контроля химического выхода Pu.

Химическая подготовка проб для измерения включала следующие стадии:

– анионообменное разделение Pu и Am (и U) на смоле AG 1-4X (100-200 меш);

– выделение Am экстракционно-сорбционной очисткой с помощью Д2ЭГФК (ди-2-этилгексил-фосфорная кислота) и анионита AG MP-1 для освобождения Am от примесей;

– подготовка счетных образцов америция и плутония методом электролитического осаждения из электролита 0,75M H_2SO_4 на стальные полированные диски диаметром 17,5 мм.

Для учета вклада фоновой альфа-активности, вносимой с реактивами и химической посудой в ходе анализа, провели измерение фоновых проб.

Активность (A_i, Бк) ^{238}Pu, ^{239}Pu в счетном образце рассчитывали по формуле:

$$A_i = \frac{A_м}{N_м - N_{фм}} \cdot \left(N_i - N_{фi}\right) - A_{xi}$$

где: $A_м$ – активность внесенной метки, Бк;

$N_м$ – скорость счета импульсов в области спектра альфа-излучения метки ^{242}Pu вместе с фоном, $с^{-1}$;

$N_{фм}$ – скорость счета импульсов фона спектрометра в области спектра альфа-излучения метки ^{242}Pu, $с^{-1}$;

N_i – скорость счета импульсов в области спектра альфа-излучения измеряемого изотопа вместе с фоном, $с^{-1}$;

$N_{фi}$ – рассчитывается согласно программе ALPHAVISION как суммарная скорость счета импульсов фона в области спектра альфа-излучения измеряемого изотопа, учитывающая фон спектрометра $N_{ф0,}$ $с^{-1}$;

A_{xi} – фоновая активность, измеренная на альфа-спектрометре в области альфа-спектра каждого из измеренных изотопов Pu, Бк.

Длительность химического анализа для определения активности Pu в озоленной пробе – 7 дней, Am – 14 дней.

2.2. Результаты исследований

Всего за время проведения исследований дисперсного состава промышленных альфа-излучающих аэрозолей с использованием импактора было проведено более 150 отборов проб аэрозолей и проанализировано 36. Характеристики отборов проб приведены в таблице 2.4.

Из воздуха рабочих помещений завода РТ было отобрано 16 проб, а из воздуха рабочих помещений плутониевого производства – 20 проб. Отбор проб проводился в период с 2004 года по 2013 год.

Отобранные пробы были подвергнуты гамма-спектрометрическому и альфа-спектрометрическому анализу для определения присутствия в них ^{241}Am [6]. Гамма-спектрометрический анализ показал, что часть отобранных проб имели низкую (меньшую НПДИ метода) активность по Am и непригодны для дальнейшего изучения. Из 36 отобранных в различных местах проб только 26 имели активность, достаточную для измерения активности ^{241}Am и определения АМАД по данному нуклиду.

Отдельно были рассмотрены отборы проб работниками ООТ и РБ 20 завода для исследования дисперсного состава аэрозолей воздуха рабочих помещений 20 завода в

2012–2013 гг. (по 3 пробы в году, всего 6 проб). Конкретное место отбора проб неизвестно, но известно, что в 2012 году пробы отбирались в 117 цехе.

Таблица 2.4 – Характеристика проб, использованных для изучения дисперсного состава промышленных альфа-излучающих аэрозолей

№ п/п	Участок производства*)	Продолжительность и скорость отбора
1	17/газооч.	10 минут / 30 л/мин
2	17/ газооч.	10 минут / 30 л/мин
3	17/ газооч.	10 минут / 30 л/мин
4	17/ газооч.	2 минут / 30 л/мин
5	17/ газооч.	1 сутки/ 30 л/мин
6	117/лит.	7 суток / 30 л/мин
7	117/лит.	7 суток / 30 л/мин
8	117/лит.	7 суток / 30 л/мин
9	117/лит.	7 суток / 30 л/мин
10	117/лит.	7 суток / 30 л/мин
11	117/лит.	7 суток / 30 л/мин
12	117/лит.	7 суток / 30 л/мин
13	117/лит.	7 суток / 30 л/мин
14	117/мех.	7 суток / 30 л/мин
15	117/мех.	7 суток / 30 л/мин
16	117/мех.	7 суток / 30 л/мин
17	117/мех.	7 суток / 30 л/мин
18	117/ УПФ	7 суток / 30 л/мин
19	117/ УПФ	7 суток / 30 л/мин
20	117/ УПФ	7 суток / 30 л/мин
21	117/ УПФ	7 суток / 30 л/мин
22	117/боксы	7 суток / 30 л/мин
23	117/боксы	7 суток / 30 л/мин
24	117/боксы	7 суток / 30 л/мин
25	117/боксы	7 суток / 30 л/мин
26	17/ газооч.	30 минут / 30 л/мин
27	17/ газооч.	30 минут / 30 л/мин
28	17/ газооч.	23 часа / 30л/мин
29	17/ газооч.	90 минут / 30 л/мин
30	17/ газооч.	70 минут / 30 л/мин
31	17/ газооч.	60 минут / 30 л/мин
32	17/ газооч.	60 минут / 30 л/мин
33	17/ газооч.	35 минут / 30 л/мин
34	17/ газооч.	20 минут / 30 л/мин
35	17/	4 суток / 30 л/мин
36	17/ газооч.	100 минут / 30 л/мин

Примечание *): – 17 – 17 отделение завода РТ;

– 117 – 117 отделение плутониевого завода;

– газооч. – пробы воздуха из системы вентиляции и газоочистки воздуха рабочих помещений 17 отделения завода РТ;

– лит. – пробы воздуха литейного отделения плутониевого завода;

– мех. – пробы воздуха механического отделения плутониевого завода;

– УПФ – пробы воздуха участка подготовки форм;

– боксы – участок загрузки.

2.2.1. Дисперсность альфа активных аэрозолей завода РТ

Результаты измерения активности ^{241}Am, задержанной на каскадах импактора при отборе проб воздуха рабочих помещений завода РТ приведены в таблице 2.5. Исследование распределения активности ^{241}Am и изотопов плутония, отложившихся на каскадах импактора, позволяют сделать ряд заключений, касающихся дисперсного состава промышленных альфа-излучающих аэрозолей.

Таблица 2.5 – Распределение активности ^{241}Am(Бк) по каскадам импактора и рассчитанный по этим данным АМАД аэрозолей воздуха помещений завода РТ

Проба	1 каскад (10 мкм)	2 каскад (6,6 мкм)	3 каскад (3,9 мкм)	4 каскад (2,6 мкм)	5 каскад (1,6 мкм)	6 каскад (1,1 мкм)	7 каскад (0,7 мкм)	Сумма	АМАД x/β_g, мкм	Место отбора
1	684,3	640,3	361,5	179,9	48,3	64,4	57,9	2036,6	4,8x/2,3	1
2	403,0	177,2	348,5	25,5	20,3	8,7	7,0	990,1	5,3x/1,9	1
3	5305,7	1365,7	101,4	155,4	45,8	49,9	13,0	7036,9	>10	1
4	1384,3	888,8	45,6	74,7	49,8	64,3	63,4	2570,9	7,4x/2,4	1
5	55,3	17,1	6,2	5,7	2,1	2,1	1,3	89,9	9,3x/3,0	2
26	13,8	8,9	1,6	1,6	1,5	0,6	2,3	30,2	6,0x/2,9	1
27	5,0	2,2	5,2	2,8	1,0	1,6	0,4	18,2	3,6x/2,5	1
28	1,0	1,5	0,5	0,9	1,0	0,9	0,9	6,5	2,3x/2,7	3
29	688,5	4336,2	90,1	174,6	881,8	1091,2	15,7	7278,1	3,3x/1,7	1
30	789,9	28,2	18,6	12,3	11,2	13,8	4,0	878,0	>10	1
31	187,1	349,6	42,9	131,3	38,7	44,6	48,5	842,8	3,8x/2,1	1
32	0,7	0,2	0,3	0,3	0,3	0,4	0,2	2,4	2,6x/4,9	1
33	22,0	37,8	0,0	0,3	0,3	0,2	0,1	60,6	5,7x/1,5	1
34	13,9	0,4	0,3	0,2	0,3	0,1	0,2	15,4	>10	1
35	1,0	0,5	148,2	0,1	0,0	0,3	0,0	150,0	3,2x/1,2	3

Проба	1 каскад (10 мкм)	2 каскад (6,6 мкм)	3 каскад (3,9 мкм)	4 каскад (2,6 мкм)	5 каскад (1,6 мкм)	6 каскад (1,1 мкм)	7 каскад (0,7 мкм)	Сумма	АМАД x/β_g, мкм	Место отбора
36	19,9	0,6	0,5	0,5	0,4	0,6	0,2	22,7	>10	1

1 До первичной газоочистки (ремонтные работы)
2 После первичной газоочистки (ремонтные работы)
3 Рабочие помещение (ремонтные работы)

Из таблицы 6 следует, что суммарная по всем каскадам импактора активность ^{241}Am изменялась в широких (более трех порядков величины) пределах. Так, активность ^{241}Am, зарегистрированная в пробе № 32, составила 2,4 Бк, в то время, как активность ^{241}Am в пробе № 29 оказалась равной 7278 Бк. Столь значительное различие не может быть объяснено только различием продолжительности отбора проб (60 мин проба № 32 и 90 мин – проба № 29). Более важную роль играло изменение в период отбора проб объемной активности альфа-излучающих аэрозолей. Последнее, по-видимому, объясняется тем, что в процессе отбора в помещениях 17 отделения завода РТ проводились ремонтные работы различного характера и масштаба, сопровождавшиеся разными уровнями загрязнения воздуха в зависимости от характера работ.

Общей особенностью результатов измерений для большинства проб, отобранных из вентиляционного воздуха, является покаскадное (в зависимости от размера частиц) снижение активности ^{241}Am отобранных аэрозолей. Чем меньше размер на каскаде, тем меньшая доля суммарной по всем каскадам импактора активности ^{241}Am с ними связана (рисунок 2.5).

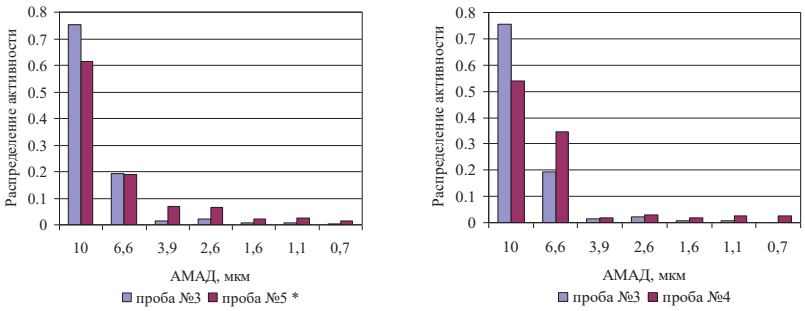
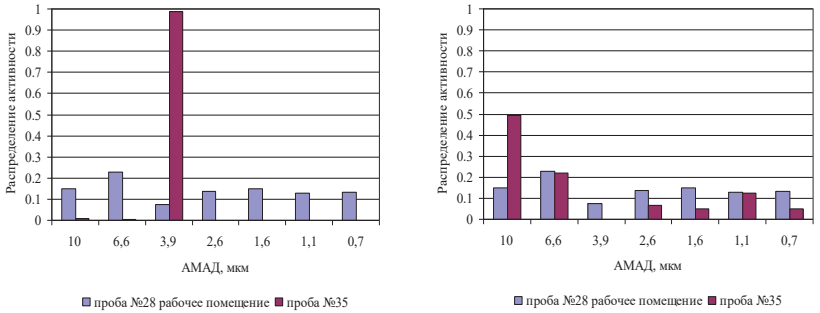


Рисунок 2.5 – Типичное распределение активности ^{241}Am по каскадам импактора. Пробы аэрозолей воздуха рабочих помещений завода РТ

Исключением является один случай, когда основная активность (99%) ^{241}Am в пробе аэрозолей № 35 была обнаружена на третьем каскаде. Столь высокое значение активности радионуклида на данном каскаде возможно обусловлено присутствием в пробе так называемой «горячей частицы». После элиминации рассматриваемого результата измерений и гистограммной перенормировки распределение приняло более привычный вид (рисунок 2.6).



а) с учетом присутствия «горячей частицы»

б) после элиминации результата измерений активности нуклида на третьем каскаде

Рисунок 2.6 – Сравнение распределений активности ^{241}Am по каскадам импактора. Пробы аэрозолей воздуха рабочих помещений завода РТ

Вакуумная разводка штатной системы отбора проб в рабочих помещениях отделения 17 завода РТ не всегда обладала разряжением, достаточным по расходу воздуха для корректного отбора проб аэрозолей, необходимого для анализа их дисперсного состава. Последнее привело к тому, что из воздуха рабочих помещений было отобрано только две пробы, которые имели значения активности Am, достаточные для проведения измерений на уровне, превышающем чувствительность метода выполнения измерений.

Разница вида распределений по каскадам активности ^{241}Am, связанной с аэрозольными частицами, отобранными в вентиляционном воздухе и в воздухе рабочих помещений, показывает, что в первом случае крупные частицы вносят гораздо больший вклад в суммарную активность пробы аэрозолей, чем во втором (рисунок 2.7). Практически для всех проб аэрозолей, отобранных из вентиляционного воздуха, наблюдалось закономерное снижение доли (от суммы по всем каскадам) активности суммы изотопов плутония в зависимости от размера частиц. По мере снижения размеров частиц уменьшалась доля суммарной активности радионуклидов, которая была связана с ними (рисунок 2.8).

Таким образом, большая часть активности суммы изотопов плутония в аэрозолях вентиляционного воздуха была связана с относительно крупными частицами. В рассматриваемых пробах более 70% активности относилось к частицам, которые имели размер, превышавший 6,6 мкм.

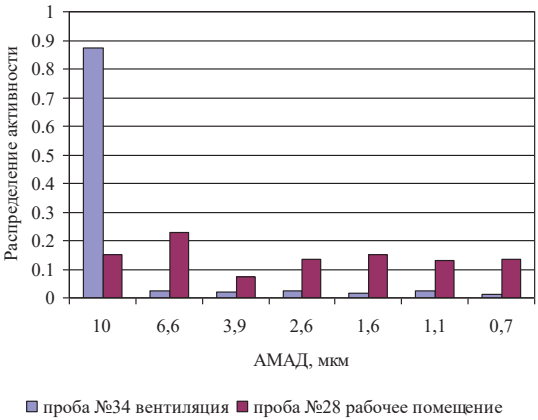


Рисунок 2.7 – Сравнение распределений активности ^{241}Am в пробах аэрозолей вентиляционного воздуха и воздуха рабочих помещений

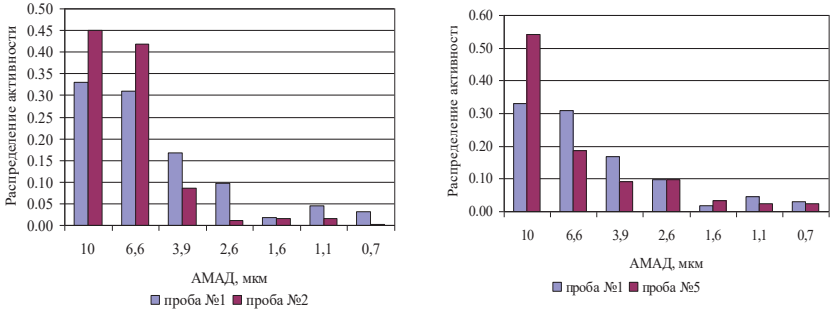


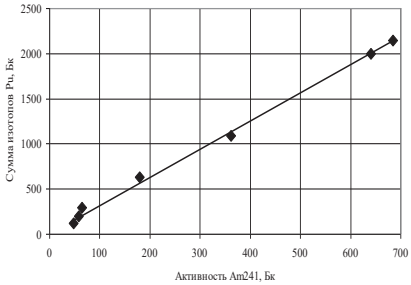
Рисунок 2.8 – Распределение активности изотопов плутония по каскадам импактора в долях от суммы

В таблице 2.6 приведены результаты исследований отношения активности ^{241}Am к суммарной активности альфа-излучающих радионуклидов (^{241}Am+сумма изотопов плутония) для всех проб аэрозолей, активность которых была достоверно измерена гамма-спектрометрическим методом.

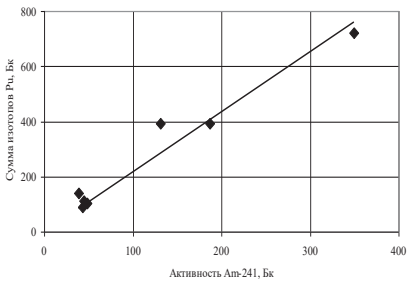
Таблица 2.6 – Отношение активности ^{241}Am к суммарной активности альфа-излучающих радионуклидов в пробах с завода РТ

№ каскада	Номер пробы в соответствии с таблицей 2						Среднее значение	Стандартное отклонение
	1	2	3	5	29	31		
1	0,242	0,198	0,186	0,087	0,294	0,323	0,22	0,08
2	0,243	0,064	0,155	0,079	0,394	0,326	0,21	0,13
3	0,250	0,024	0,537	0,060	0,229	0,324	0,24	0,19
4	0,221	0,217	0,198	0,052	0,248	0,250	0,20	0,07
5	0,288	0,060	0,209	0,055	0,310	0,217	0,19	0,11
6	0,182	0,060	0,108	0,073	0,353	0,284	0,18	0,12
7	0,226	0,136	0,086	0,050	0,581	0,317	0,23	0,20
Среднее значение	0,24	0,11	0,21	0,07	0,34	0,29		
Стандартное отклонение	0,03	0,08	0,15	0,01	0,12	0,04		

Графическая иллюстрация связи между активностью ^{241}Am и суммы изотопов плутония приведена на рисунке 2.9.



Проба № 1



Проба № 31

Рисунок 2.9 – Связь между активностью ^{241}Am и суммарной активностью изотопов плутония

Данные, приведенные в таблице 7 и на рисунке 9, позволяет сказать, что соотношение значений активности ^{241}Am и суммы изотопов плутония, измеренных гамма-спектрометрическим методом, от пробы к пробе не меняется существенным образом. Об этом свидетельствуют не только вклад ^{241}Am в суммарную активность, который меняется от пробы к пробе в пределах от 0,18 до 0,24, но и значения стандартного отклонения, которые меняются в пределах от 0,39 до 0,84. Соотношение значений активности ^{241}Am и суммы изотопов плутония также мало меняется по мере изменения значения АМАД аэрозолей.

Отсюда можно сделать вывод о возможности распространения результатов измерения АМАД по ^{241}Am на сумму изотопов плутония.

2.2.2. Дисперсность альфа активных аэрозолей плутониевого завода

Анализ результатов измерения активности ^{241}Am в аэрозолях, отобранных из воздуха рабочих помещений плутониевого завода, показал, что по всем каскадам активность ^{241}Am в сравнении заводом РТ существенно ниже и меняется в относительно малых пределах. Данное обстоятельство, по-видимому, связано с тем, что в период отбора проб на плутониевом заводе не происходило нештатных или аварийных ситуаций, а также не проводились ремонтные со вскрытием основного технологического оборудования.

Результаты гамма-спектрометрического измерения гамма-активности в пробах аэрозолей воздуха рабочих помещений плутониевого производства приведены в таблице 2.7.

Таблица 2.7 – Распределение активности ^{241}Am(Бк) на каскадах импактора и АМАД аэрозолей воздуха помещений плутониевого завода

Проба	1 каскад (10 мкм)	2 каскад (6,6 мкм)	3 каскад (3,9 мкм)	4 каскад (2,6 мкм)	5 каскад (1,6 мкм)	6 каскад (1,1 мкм)	7 каскад (0,7 мкм)	Сумма	АМАД x/β_g, мкм	Место отбора
6	3,6	1,5	0,2	0,2	0,3	0,1	0,1	6,0	8,8x/2,8	1
7	1,5	0,1	0,1	0,1	0,1	0,1	0,1	2,1	>10	1
8	8,3	7,6	0,9	0,4	0,5	0,1	0,2	18,1	6,4x/1,9	2
12	0,5	0,5	0,7	0,1	0,1	0,1	0,1	2,0	3,8x/2,2	2
13	2,9	2,6	2,2	0,1	0,2	0,5	0,1	8,6	4,9x/2,1	2
14	12,3	1,8	5,3	1,1	0,2	0,1	0,1	20,9	7,0x/2,2	3
15	1,5	0,8	0,6	0,1	0,1	0,1	0,1	3,2	6,0x/2,5	3
16	0,1	0,6	1,1	0,1	0,1	0,1	0,1	2,2	2,9x/1,6	3
17	0,4	0,2	0,3	0,1	0,1	0,1	0,1	1,4	3,8x/3,0	3
21	2,9	0,4	0,1	0,5	0,1	0,1	0,1	4,3	>10	1
22	0,4	0,5	1,1	0,1	0,1	0,1	0,1	2,4	3,4x/1,9	4
23	3,3	0,4	0,4	0,1	0,1	0,1	0,1	4,5	>10	4
25	0,2	0,2	0,4	0,3	0,1	0,1	0,1	1,3	2,7x/2,3	4
1	Участок подготовки форм									
2	Литейный участок									
3	Механический участок									
4	Боксы загрузки									

Суммарная активность пробы № 25 составила 1,3 Бк (таблица 2.7), а активность пробы № 14 – 21 Бк. Распределение активности ^{241}Am по каскадам импактора, характеризующее дисперсный состав аэрозолей демонстрирует закономерное (аналогично заводу

РТ) снижение доли суммарной активности нуклида в зависимости от размеров аэрозольных частиц (рисунок 2.10).

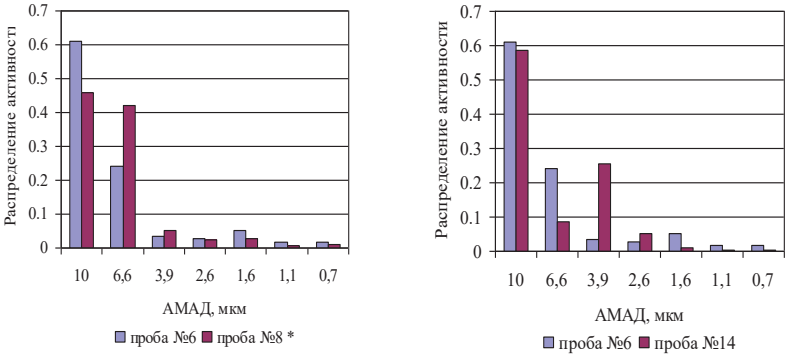


Рисунок 2.10 – Распределение активности ^{241}Am по АМАД аэрозолей плутониевого производства (пробы № 6 и № 8 – литейное отделение, проба № 14 – механическое отделение)

2.2.3. Изотопный состав

В ходе исследований дисперсного состава аэрозолей завода РТ и плутониевого завода был проведен альфа-спектрометрический анализ альфа-излучающих нуклидов, присутствующих в аэрозольных частицах воздуха рабочих помещений указанных заводов. Анализировали следующие пробы:

- завод РТ – проба № 30 (вентиляционный воздух до газоочистки);
- плутониевый завод – проба № 8 (литейное отделение);
- плутониевый завод – проба № 21 (участок подготовки форм).

Результаты альфа-спектрометрического анализа активности нуклидов (таблица 2.8), присутствующих в проанализированных пробах, показали, что, как и при анализе активности ^{241}Am, наблюдается покаскадное снижение доли активности нуклидов по мере снижения размеров, что свидетельствует о преимущественном вкладе в суммарную альфа-активность аэрозолей данных проб сравнительно крупных частиц. Указанный тренд выражен в большей степени для пробы аэрозолей воздуха вентиляционной системы до газоочистки.

Таблица 2.8 – Радионуклидный состав аэрозолей, содержащихся в воздухе производственных помещений заводов

Номер каскада (АМАД)	Активность изотопов, Бк				Вклад в суммарную активность,%		
проба № 30, до первичной газоочистки (ремонтные работы завод РТ)							
	^{241}Am	^{239}Pu	^{238}Pu	сумма	^{241}Am	^{239}Pu	^{238}Pu
1 каскад (10 мкм)	24,7	18,0	33,0	75,7	32,6	23,8	43,6
2 каскад (6,6 мкм)	10,0	5,9	11,7	27,7	36,3	21,5	42,3
3 каскад (3,9 мкм)	4,2	2,7	5,3	12,2	34,5	22,3	43,2
4 каскад (2,6 мкм)	3,8	2,6	6,8	13,2	28,6	19,8	51,6
5 каскад (1,6 мкм)	5,1	3,4	6,5	15,0	34,1	22,7	43,2
6 каскад (1,1 мкм)	5,9	4,3	9,4	19,6	30,1	22,0	47,9
7 каскад (0,7 мкм)	4,5	3,1	6,3	14,0	32,3	22,5	45,2
АМАДх/β_g, мкм	5,0х/4,5	5,4х/5,4	4,7х/5,2	5,0х/5,0	-	-	-
Среднее					32,7	22,1	45,3
СКО					2,6	1,2	3,3
проба № 8, литейный участок (плутониевый завод)							
	^{241}Am	^{239}Pu	^{238}Pu	сумма	^{241}Am	^{239}Pu	^{238}Pu
1 каскад (10 мкм)	0,2	0,5	0,1	0,8	29,1	61,9	9,1
2 каскад (6,6 мкм)	0,2	1,6	0,1	1,9	10,9	84,7	4,4
3 каскад (3,9 мкм)	0,3	0,8	0,0	1,1	25,9	72,3	1,8
4 каскад (2,6 мкм)	0,5	1,1	0,1	1,7	29,9	64,0	6,1
5 каскад (1,6 мкм)	0,2	0,5	0,0	0,7	27,5	68,2	4,3
6 каскад (1,1 мкм)	0,1	0,4	0,0	0,6	25,0	73,6	1,4
7 каскад (0,7 мкм)	0,0	0,1	0,0	0,1	15,8	79,1	5,1
АМАДх/β_g, мкм	2,6х/2,2	3,0х/1,9	4,6х/2,2	3,0х/2,0	-	-	-
Среднее					23,4	72,0	4,6
СКО					7,2	8,1	2,6
проба № 21, участок подготовки форм (плутониевый завод)							
1 каскад (10 мкм)	2,2	2,1	0,2	4,5	48,4	47,3	4,3
2 каскад (6,6 мкм)	0,2	1,1	0,1	1,4	17,9	78,6	3,5
3 каскад (3,9 мкм)	0,1	0,6	0,0	0,7	17,0	78,6	4,5
4 каскад (2,6 мкм)	0,1	0,3	0,1	0,5	15,1	64,5	20,4
5 каскад (1,6 мкм)	0,1	0,2	0,0	0,3	20,3	72,3	7,5
6 каскад (1,1 мкм)	0,1	0,3	0,0	0,3	15,9	78,4	5,7
7 каскад (0,7 мкм)	0,0	0,1	0,0	0,1	15,6	69,8	14,7
АМАДх/β_g, мкм	>10	5,8х/2,8	6,6х/2,9	8,4х/3,2	-	-	-
Среднее					21,5	69,9	8,6
СКО					12,1	11,3	6,4

Распределение активности рассмотренных радионуклидов в пробе вентиляционного воздуха (^{241}Am – 33%, ^{238}Pu – 45%, ^{239}Pu – 20%) показывает превалирование ^{241}Am и ^{238}Pu в суммарной активности альфа-излучающих нуклидов. Для аэрозолей проб воздуха литейного отделения и участка подготовки форм характерна меньшая степень снижения суммарной активности нуклидов в зависимости от размеров аэрозолей. В нуклидном составе этих проб основная часть альфа-активности связана с ^{239}Pu (около 70%). На долю ^{241}Am приходится от 21% до 23% суммарной активности.

2.2.4. Дисперсность альфа активных аэрозолей плутониевого завода. Специальный отбор для оценки дисперсного состава аэрозолей воздуха рабочих помещений

В 2012–2013 гг. проводился отбор проб работниками ООТ и РБ 20 завода для исследования дисперсного состава аэрозолей воздуха рабочих помещений 20 завода (всего 6 проб). Результаты представлены в таблице 2.9. Скорости счёта проб каскадов импактора для отбора проб 2013 г. представлены в таблице 2.10.

Таблица 2.9 – АМАД аэрозолей воздуха помещений завода 20 цех 117 отобранных в 2012–2013 гг.

Год	Проба	АМАД±σ, мкм
2012	1	3,2±0,9
2012	2	2,8±1,0
2012	3	6,3±1,7
2013	1	1,18±0,12
2013	2	1,32±0,39
2013	3	1,10±0,10

Таблица 2.10 – Скорость счёта проб каскадов импактора (справка № 20-ООТиРБ-255-213 от 02.10.2013)

Проба	Каскад 1 (расп/мин)	Каскад 2 (расп/мин)	Каскад 3 (расп/мин)	Каскад 4 (расп/мин)	Каскад 5 (расп/мин)	Каскад 6 (расп/мин)	Каскад 7 (расп/мин)
1	22	56	83	108	125	184	150
2	34	62	99	127	148	214	30
3	12	39	57	92	105	122	180

Конкретное место отбора проб неизвестно, поэтому невозможно провести анализ проб, поэтому данные представлены «как есть».

Заключение

Анализ дисперсного состава альфа-излучающих аэрозолей показал, что в 16 пробах с различных участков радиохимического завода значение АМАД варьировало в широких пределах от более 10 мкм до 2,4 мкм. В выполненных исследованиях не обнаружено крупнодисперсной фракции (размером несколько десятков мкм), игравшей ведущую роль в ингаляционном поступлении аэрозолей в дыхательный тракт персонала для раннего периода деятельности ПО «Маяк» (1949–71 гг.).

В экспериментах с импактором выявлена положительная корреляция между процентом альфа-активности, отложившейся на каскадах, и размером частиц, приписанных данному каскаду. Наибольшая доля активности (до 90%) осаждалась на первом каскаде, где задерживаются частицы размером 10 мкм и более. Исключение составил случай, когда максимальная активность (более 97%) была выявлена на 3-м каскаде, отвечающем размеру 3,9 мкм, что объясняется «горячей частицей», осевшей на данном каскаде.

Таким образом, исследования дисперсного состава современных аэрозолей, выполненные на двух участках ПО «Маяк» в 2013–2014 гг., показали в среднем небольшое различие размеров аэрозольных частиц на участках с разной технологией переработки соединений актинидов. АМАД при проведении ремонтных работ и при штатном режиме работы на указанных участках варьировал в среднем от 2 мкм до 10 мкм и более.

Проведенные исследования также показали, что в промышленных аэрозолях не исключена возможность появления «горячих частиц». Дальнейшие исследования физико-химических свойств, в частности, будут направлены на установление связи частоты появления этих частиц с характером технологии переработки продукта на данном рабочем месте.

Список литературы к главе 2

1. Василенко Е.К., Лызлов А.Ф., Мелентьева Р.В. и др. Возможность применения импактора для оценки дисперсности радиоактивных аэрозолей на производстве по химико-металлургической переработке плутония-239. – В сб.: Гигиена труда и окружающей среды в атомной промышленности. М., 1985. С. 140–145.

2. Мелентьева Р.В., Третьяков Ф.Д., Лызлов А.Ф. и др. Исследование дисперсного состава промышленных аэрозолей в новом производстве химико-металлургической переработки плутония-239 /В сб.: Гигиена труда и окружающей среды в атомной промышленности. М., 1985. – С. 132–139.

3. Райст П. Аэрозоли. Введение в теорию: Пер. с англ. – М.: Мир, 1987. – 280 с.

4. «Америций-241. Гамма-спектрометрический метод измерения активности в пробах аэрозолей, присутствующих в воздухе рабочих помещений». Методика выполнения измерений МВИ 2.6.1 / Сыпко С.А., Ефимов А.В. – Озерск, 2007. – 21 с.

5. «Америций-241, изотопы плутония и урана. Альфа-спектрометрический метод выполнения измерений в пробах воздуха рабочих помещений». Методика выполнения измерений / Макарова М.В. – Озерск. – 2007. – 22 с.

3. ОЦЕНКА СКОРОСТИ АБСОРБЦИИ ПЛУТОНИЯ ИЗ РЕСПИРАТОРНОГО ТРАКТА В КРОВЬ НА ОСНОВЕ ДАННЫХ О КИНЕТИКЕ ДИАЛИЗА ПРОМЫШЛЕННЫХ АЛЬФА-ИЗЛУЧАЮЩИХ АЭРОЗОЛЕЙ

Е. Е. Аладова

Совершенствование дозиметрии инкорпорированного плутония важно для решения проблем по обеспечению радиационной безопасности предприятий атомной индустрии. Данная задача решается с помощью биокинетических моделей транспорта и экскреции, которые разрабатывались в ЮУрИБФ на протяжении последних 50 лет и в настоящее время постоянно совершенствуются, улучшая качество плутониевой дозиметрии [1–3].

Действующая методика расчета доз внутреннего облучения от инкорпорированного плутония по уровню экскреции с мочой учитывает дисперсность и транспортабельность вдыхаемых аэрозолей, от которых напрямую зависят механизмы отложения аэрозольных частиц и очищения дыхательного тракта [2]. Поэтому дальнейшее совершенствование косвенно дозиметрических методов связано с решением биологических вопросов, касающихся количественных закономерностей транспорта инкорпорированного нуклида в организме, опираясь на информацию о физико-химических свойствах аэрозольных частиц, образующихся на рабочих местах.

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

В биофизической лаборатории ЮУрИБФ, начиная с 1975 года, в разные периоды времени, проводились исследования параметров растворимости альфа-активных аэрозолей в подразделениях ПО "Маяк" по методике *in vitro* определения транспортабельности методом диализа в растворе Рингера [1, 4–6].

В 70–80 гг. подробно были исследованы участки плутониевого производства и некоторые участки радиохимического завода. В эти же годы в радиобиологической лаборатории для решения ряда вопросов, связанных с применением ингаляций пентацина, проводились исследования растворимости промышленных аэрозолей плутония на отдельных участках ПО "Маяк" методом ультрафильтрации в разбавленной сыворотке крови [7, 8, 9].

Скорость растворения частиц вещества, попавшего в легкие, определяется как физико-химическими свойствами аэрозоля, так и свойствами биологической среды организма, в которой происходит растворение.

В действующей модели ЮУрИБФ доля нуклида, которая переходит в кровь с относительно большой скоростью в ранней фазе легочного клиренса после осаждения в дыхательном тракте, приравнена к показателю транспортабельности, измеренному методом диализа в растворе Рингера [2, 3]. Поскольку данное предположение является лишь первым приближением, представляло интерес сравнить кинетику растворения различных соединений плутония в имитантах, максимально близких к условиям биологической среды организма человека по солевому составу и температуре, с результатами, полученными в растворе Рингера. Уточнение биокинетических параметров быстрой фазы абсорбции плутония из дыхательного тракта в кровь является актуальной задачей, решение которой необходимо для получения более реалистичных оценок доз облучения при ингаляционном поступлении различных соединений нуклида и снижения их неопределенностей.

Оценка доз внутреннего облучения работников атомных предприятий при ингаляционном поступлении альфа-излучающих аэрозолей является сложной, многоступенчатой задачей. Корректность дозовых оценок, получаемых по существующим биокинетическим моделям, во многом зависит от наличия информации о физико-химических свойствах аэрозолей, присутствующих на рабочих местах, а именно: дисперсности частиц и скорости абсорбции из легких в кровь, от которых напрямую зависят механизмы отложения аэрозольных частиц и очищения дыхательного тракта. Для того, чтобы определить дозу на легкие от инкорпорированного плутония, необходимо понять, что происходит с отложившимися аэрозольными частицами после ингаляции.

3.1. Задержка аэрозольных частиц в дыхательном тракте

Дыхательный тракт представляет собой систему, с помощью которой осуществляется газообмен между организмом и внешней средой, происходит обогащение крови кислородом и одновременное удаление некоторых продуктов, возникающих в результате окислительных процессов, происходящих в организме.

Основные сведения о задержке и транспорте плутония в дыхательном тракте были получены в эксперименте на животных. Достаточно полно они освещены в монографии Л.А. Булдакова с соавторами [10].

В биокинетической модели 66 Публикации МКРЗ [11] дыхательный тракт человека представлен в виде четырех анатомических отделов:

1) экстраторакального (ET), который состоит из носа (ET_1), носовых ходов, гортани и рта (ET_2);
2) бронхиального (BB), состоящего из трахеи и бронхов. Предполагается, что в отделе существует секвестированная доля вещества (BB_{seq});
3) бронхиолярного (bb), состоящего из бронхиол. Предполагается, что в отделе существует секвестированная доля вещества (bb_{seq});
4) альвеолярно-интерстициллярного (AI), в который входят респираторные бронхиолы, альвеолярные мешочки, альвеолы и интерстициальная соединительная ткань.

Начальное отложение вещества в отделах дыхательного тракта зависит от размера вдыхаемого аэрозоля с учетом долей дыхания через рот и нос. Причем, эти типы дыхания зависят от антропометрических характеристик человека, уровня физической активности, имеющихся болезней легких и курения [11].

Для верхних дыхательных путей (экстраторакального ET и бронхиального отделов BB) характерно инерционное осаждение, где частицы, размером более 1 мкм, при резкой смене направления воздушного потока задерживаются на слизистых оболочках. Для частиц диаметром более 4 мкм эффективность осаждения в носовой полости составляет только 50%, и при дальнейшем уменьшении размера частиц увеличивается доля тех частиц, которые проходят через дыхательные пути и попадают в систему разветвляющихся бронхиол и альвеол. Поскольку в этих частях легких воздух движется с малой скоростью, основную роль в осаждении частиц играют уже седиментация и диффузия. Исходя из скорости движения воздушного потока и размера частиц, можно предположить, что величина задержки в легких будет возрастать с уменьшением размера частиц. В нижних дыхательных путях наиболее эффективно задерживаются частицы размером в 1 мкм. При дальнейшем уменьшении размера частиц эффективность осаждения падает, в результате чего примерно 80% частиц диаметром около 0,3 мкм выдыхаются обратно. Частицы, диаметром менее 0,1 микрона, задерживаются в легочных альвеолах, вследствие броуновского движения и диффузии [12].

При увеличении физической нагрузки на организм, когда возрастает минутный объем дыхания и воздух движется через дыхательные пути с большой скоростью, можно ожидать повышения эффективности осаждения частиц аэрозоля в верхних дыхательных путях; в нижних, наоборот, осаждение тем больше, чем дольше находится воздух в легких, в результате чего сильнее сказываются седиментация и диффузия.

Анатомические отделы дыхательного тракта в модели МКРЗ-66 подразделены на несколько частей для того, чтобы наиболее полно описать доступные данные по кинетике

транспорта вещества в дыхательном тракте человека и учесть различные механизмы очищения дыхательного тракта: перенос вещества слизью, захват макрофагами, задержку на стенках воздухоносных путей, связывание с компонентами дыхательного тракта, мгновенную абсорбцию в кровяное русло.

3.2. Механизмы абсорбции плутония из респираторного тракта в кровь

Согласно современным представлениям [11] абсорбция или поглощение вещества кровью представляет собой двухстадийный процесс (рис. 3.1):

- (1) непосредственно растворение – диссоциация частиц в форму, способную абсорбироваться в кровь, и
- (2) с течением времени переход в кровь растворенных или диссоциированных частиц.

Переход в кровь может рассматриваться как мгновенный процесс, но во многих случаях значительная фракция растворенного вещества абсорбируется в кровь медленно вследствие связывания с материалами респираторного тракта.

Из результатов экспериментальных исследований поведения плутония в легких крыс, было установлено, что связь плутония в легких осуществляется с солерастворимыми белками, коллагеном, а при попадании внутрь клеток плутоний связывается с ядрами клеток [13, 14]. По данным Сохранич А. Л. [14] 1/4 от найденного в легких крыс плутония обнаруживается в субклеточных органеллах, причем 30% из него связано с ядерной фракцией.

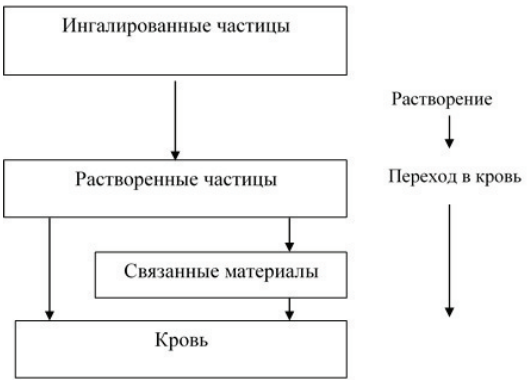


Рисунок 3.1 – Структурная схема модели абсорбции ингалированных частиц из респираторного тракта в кровь

Величина абсорбции зависит от многих факторов, среди которых определяющую роль для твердых частиц играет растворимость материала, попавшего в дыхательный тракт.

С химической точки зрения, процесс растворения частиц в жидком растворителе можно представить так: под влиянием растворителя от поверхности частиц твердого вещества постепенно отрываются отдельные ионы или молекулы и равномерно распределяются по всему объему растворителя. Растворение вещества складывается из двух противоположных процессов: прямого – собственно растворения и обратного – выделение растворенного вещества из раствора, которые протекают до достижения динамического равновесия, при котором число ионов, уходящих в единицу времени с поверхности твердой фазы, равно числу ионов, возвращающихся на эту поверхность. Таким образом, с химической точки зрения, растворимость измеряется концентрацией растворенного вещества в состоянии динамического равновесия.

В респираторном тракте возобновление жидкостного слоя – процесс непрерывный, поэтому растворение не достигает равновесия. Более того, химические реакции, которые приводят к диссоциации частиц, не будут обратимыми. В процесс растворения могут включаться разные механизмы: например, фрагментация частиц – как результат альфа-распада – которая, как предполагалось, являлась причиной более высокой скорости растворения $^{238}PuO_2$ по сравнению с $^{239}PuO_2$ [15]. Тем не менее, в модели респираторного тракта МКРЗ-66, для описания первой стадии абсорбции вещества в кровь используется термин "растворение", невзирая на механизмы.

На процесс растворения различных соединений влияют такие свойства вещества как удельная площадь поверхности частиц, их дисперсность, форма, строение кристаллической решетки [16], гидролизуемость [17], плотность материала.

Mercer в своей работе [18] предположил, что скорость абсорбции вещества в кровь зависит от скорости растворения частицы, которая в свою очередь пропорциональна площади поверхности частицы.

Согласно модели Mercer скорость растворения аэрозольной частицы массой m можно описать кинетическим уравнением первого порядка:

$$dm/dt = - k \cdot S = - k \cdot \alpha_s \cdot D^2 = - k \cdot \alpha_s \cdot m^{2/3} / (\rho \cdot \alpha_v)^{2/3} \qquad (3.1)$$

где: m – масса частицы в момент времени t, г;

S – площадь поверхности частицы в момент времени t, $см^2$;

ρ – плотность вещества частицы, $г/см^3$;

k – постоянная скорости растворения (растворенная масса на единицу площади в единицу времени) г/(сут·см^2);

$\alpha_s = S/D^2$ – форм-фактор или поправка, учитывающая форму поверхности частиц;

$\alpha_v = m/\rho \cdot D^3$ – форм-фактор, или поправка на объем частиц;

D – диаметр частицы в момент времени t, мкм.

По модели Mercer скорость фракционного растворения рассчитывается по формуле:

$$f = -\frac{dm/dt}{m} = \frac{k\alpha_s}{\rho\alpha_v D} \qquad (3.2)$$

Таким образом, скорость растворения обратно пропорциональна диаметру частицы, т. е. при уменьшении размера частиц, увеличивается отношение площади поверхности частицы к ее объёму, а значит, увеличивается поверхность, доступная для контакта с окружающей частицы жидкой средой.

Mercer также показал, что убыль нерастворенной части вещества можно описать двухкомпонентной экспоненциальной функцией, если распределение частиц по размерам соответствует лог-нормальному закону со стандартным геометрическим отклонением σ_g между 1,65 и 2,72. В этом случае скорость растворения уменьшается со временем, так как, по-видимому, самые мелкие частицы, скорость растворения которых наибольшая, растворяются полностью. Существует экспериментальное подтверждение модели растворения Mercer по меньшей мере для нескольких соединений.

Так, например, Morrow [19] отметил, что данная модель хорошо предсказывает период полувыведения для UO_2, а Kreyling [20] обнаружил хорошую корреляцию между начальной скоростью абсорбции из легких собак и удельной поверхностью для частиц Co_3O_4 различных размеров и плотности.

Условно, скорость растворения частиц по модели Mercer можно предсказать, если известны размер, форма и величина постоянной k скорости растворения частиц. Константа k зависит от площади контакта растворяемой частицы со средой растворителя, от скорости диффузии атомов и молекул через слой растворителя к поверхности частицы, от скорости диффузии к поверхности раздела фаз более растворимого компонента в мультикомпонентной частице [21, 22].

Кроме того, следует учитывать, что легочный клиренс плутония в значительной степени осуществляется действием такого механизма как перенос вещества фагоцитами. Большая часть частиц, отложившихся в альвеолярном отделе, захватываются макрофагами бук-

вально в течение нескольких часов после отложения. Скорость растворения существенно различается для частиц, находящихся на поверхности жидкостного слоя эпителия и захваченных макрофагами.

Таким образом, абсорбция в кровь материала, задержанного в дыхательном тракте, определяется одновременным действием сложных механизмов физико-химической и биологической природы, вследствие чего невозможно описание этого процесса в рамках кинетических уравнений первого порядка.

Для того, чтобы достичь кровяного русла, растворенный материал должен пройти через альвеолярно-капиллярный барьер, образованный из жидкостного слоя эпителия и сосудистого эндотелия.

Транспорт через эпителий. Эпителий, выстилающий респираторный тракт, образует непрерывный пласт, все клетки которого связаны друг с другом плотными контактами. По оценке Low F. [23] толщина этой выстилки составляет примерно 0,2 мкм у человека и 0,1 мкм у крысы. Под эпителием располагается базальная мембрана, которая сливается с базальной мембраной эндотелия капилляра, становясь единым образованием, называемым альвеолокапиллярной мембраной. В составе эпителия слизистой оболочки терминальной бронхиолы преобладает реснитчатый эпителий, в то время как в респираторной бронхиоле значительно увеличивается число клеток нересничатого эпителия (клетки Клара). Ресничатые эпителиальные клетки составляют до 2/3 всех эпителиальных клеток в мелких воздухоносных путях. Они имеют около 20 мкм в длину и 6–8 мкм в ширину, сужаясь в базальном отделе до 2 мкм. Реснички и микроворсинки погружены во внеклеточный слой жидкости, покрывающий эпителий. Реснички, длиной до 8–12 мкм и диаметром 0,2–0,3 мкм заканчиваются в базальных тельцах, находящихся в цитоплазме.

Транспорт через эндотелий. Кровеносные капилляры легких выстланы сплошным слоем эндотелия, расположенного на непрерывной базальной мембране. Эндотелиальные клетки имеют уплощенную форму, их высота в области ядра не превышает 5 мкм, а длина клеток колеблется, иногда достигая 20 мкм и более. Электронно-микроскопические исследования механизма транскапиллярного обмена установили существование двух основных способов перемещения частиц для данного типа капилляров: с помощью микропиноцитозных пузырьков и через межклеточные щели [24]. Электронно-микроскопически установлено, что вещества проникают через васкулярный эндотелий в 10–100 раз быстрее, чем через альвеолярный эпителий. Высокая проницаемость эндотелия альвеолярных кровеносных капилляров обусловлена отсутствием непрерывного плотного контакта между эндотелиальными клетками. По своему функциональному значению межэндотелиальные щели соответствуют мелким порам [25].

В экспериментах с применением маркеров показано, что и базальная мембрана играет определенную роль в транспорте веществ через стенку кровеносного капилляра. Базальная мембрана участвует в избирательной проницаемости, выполняя функции более грубого фильтра, чем эндотелий. Через нее свободно проникают мелкие частицы и задерживаются частицы размером 20 нм и более. Частицы микронных размеров, проникая через эндотелий, накапливаются в субэндотелиальной зоне, где они, согласно Clementi F. и Palade G. [26], находятся в движении, пока не попадут в щели базальной мембраны соответствующего размера. Наночастицы размером 5–10 нм беспрепятственно проникают через базальную мембрану.

Пройдя базальный слой и эндотелий, частицы различных веществ попадают в адвентициальную оболочку, где они могут захватываться макрофагами или мигрировать до лимфатических капилляров периваскулярной соединительной ткани.

Высокодисперсные аэрозоли имеют тенденцию к довольно быстрому переходу из легких в кровь. Аэрозольные частицы размером более 0,13 мкм длительное время сохраняются в месте отложения, проникая уже в первые 20 мин в лизосомы и вакуоли альвеолярных фагоцитов и альвеолярного эпителия [27].

В опытах с ингаляцией крыс [28], показано, что количественные характеристики проникновения субмикронной двуокиси, нитрата и цитрата плутония в клетки межальвеолярных перегородок зависят от химической формы плутония. По степени и скорости выведения радионуклида из клеток поверхностного легочного эпителия, альвеолярных и эндотелиальных клеток в первые 7 суток после ингаляции изучаемые соединения располагались следующим образом: цитрат > нитрат > двуокись. В целом, через 14 суток в макрофагах находилось 60–70% радиоактивного вещества, обнаруженного в межальвеолярных перегородках.

3.3. Определение скорости абсорбции

Независимо от агрегатного состояния аэрозольных частиц, различают две фазы абсорбции – быструю и медленную.

В опытах Любчанского Э.Р. [28] с ингаляционной затравкой крыс различных соединений плутония (Pu-IV цитрат, Pu-IV ацетат, Pu-IV карбонат, Pu-IV нитрат) отчетливо выявлены две компоненты альвеолярного клиренса, которым отвечают две фракции, выводящиеся с периодами 5–17,5 суток (34–80%) и 122–209 суток (8–23%).

Фаза быстрой абсорбции в кровь наблюдается сразу после ингаляции даже для относительно нерастворимых соединений. Вероятно, это происходит вследствие присутствия в аэрозольной смеси:

1) более растворимого компонента [29];
2) частиц с относительно нестабильной поверхностью [30];
3) частиц малого размера с относительно большой удельной поверхностью [18];
4) частиц достаточно малого размера, чтобы перейти прямо в кровь [31].

Используемый термин "абсорбция" включает транспорт в кровь частиц размером в несколько нанометров. Smith et. al. [31] и Stradling et. al. [32] в экспериментах на крысах обнаружили, что монодисперсные частицы $^{239}PuO_2$ и $^{238}PuO_2$ размером в 1 нм в течение суток проникали через альвеолярно-капиллярный барьер в кровяное русло, в то время как 99% частиц монодисперсной двуокиси размером 25 нм через 16 суток после ингаляции все еще удерживалось в альвеолах. По наблюдениям Layweryns, Baert [33], межклеточное пространство в кровеносных капиллярах пульмонального отдела не превышает 4 нм. Следовательно, скорость абсорбции полидисперсного аэрозоля из легких в кровь во многом определяется наличием частиц нанометровых размеров [32].

Перед исследователями стоит задача по моделированию многих факторов, влияющих на растворение и переход вещества в кровь, для того чтобы предсказать скорость абсорбции, которая для данного соединения может сильно варьировать. Так, например, несколькими авторами, в том числе и учеными ЮУрИБФ [34, 35], было экспериментально установлено, что скорость абсорбции оксида плутония зависит от таких факторов, как размер частиц, температура получения аэрозоля, изотопный состав, а также присутствие ионов других металлов [36]. То же самое можно сказать о соединениях урана [37].

В ряде экспериментальных работ, выполненных в ЮУрИБФ еще в 60–70-х гг., показано, что длительность задержки в легких собак двуокиси плутония, характеризующейся средними размерами меньшими 1 мкм, значительно меньше, чем частиц микронных размеров.

В работе [35] выполнено сравнение скорости перераспределения $^{239}PuO_2$ в организме собак при ингаляции двуокиси плутония, состоящей из частиц разных размеров: 1) d = 0,02 мкм (температура образования аэрозоля t = 1800° С), 2) d = 1,4 мкм, (t прокаливания 600–700° С). Результаты исследований показали, что частицы мелкодисперсного аэрозоля $^{239}PuO_2$ значительно быстрей абсорбировались в кровь, чем частицы более крупного размера. На основании полученных результатов автор пришел к выводу, что у собак

скорость перемещения субмикронной двуокиси плутония из легких в кровяное русло близка к таковой для нитрата плутония.

В работе [34] изучалось распределение и экскрецию ингаляционно введенной крысам двуокиси плутония и было выявлено, что поведение аэрозолей $^{239}PuO_2$ с размером частиц меньше 1 мкм (t получения = 1800° С) характеризуется быстрым выведением изотопа из легких с высоким отложением резорбированного плутония в скелете и значительной экскрецией.

Следует отметить, что термин "абсорбция" обозначает переход материала в кровь, независимо от механизма всасывания. Процесс абсорбции включает и растворение частиц, и поступление в кровь растворенных субстанций. Кроме того, абсорбция – это любое перемещение в кровь частиц нанометрового диапазона.

В математической модели дыхательного тракта МКРЗ-66 принято допущение, что абсорбция в кровь одинакова во всех отделах дыхательного тракта (включая региональные лимфоузлы), в носовых проходах абсорбция отсутствует.

Простейшая камерная модель абсорбции представлена на рис.2 [11].

В быстрой фазе наряду с механическим клиренсом происходит:

а) мгновенное всасывание в кровь, которое, как уже отмечено, в небольшой степени наблюдается даже у относительно нерастворимых материалов;

б) быстрый переход в промежуточное состояние.

В промежуточной фазе с процессом механического клиренса конкурируют:

а) поглощение в кровь;

б) связывание нуклида с компонентами дыхательной системы, что приводит к недоступности этой фракции вещества для процесса механического клиренса;

В “связанном” состоянии действует процесс медленного растворения с последующим переходом вещества в кровь.

В модели приняты следующие обозначения:

f_r – фракция первоначально отложившегося вещества поступает в компартмент "быстрое растворение", где растворяется со скоростью s_r;

$(1 – f_r)$ – фракция первоначально отложившегося вещества поступает в компартмент "медленное растворение", где растворяется со скоростью s_s.

Чтобы представить во времени процесс перехода вещества в кровь, принято допущение, что фракция f_b удерживается в связанном состоянии, из которого затем переходит в кровь со скоростью s_b, а фракция $(1 – f_b)$ переходит в кровь мгновенно. Согласно данной модели, материал в "связанном" состоянии не выводится механическим клиренсом [38].

В 66 Публикации МКРЗ предложены три класса химических соединений твердой фазы аэрозолей в зависимости от их скорости растворения/абсорбции в кровь: F (fast) – быстрое растворение; M (moderate) – растворение с промежуточной скоростью; S (slow) – медленное растворение.

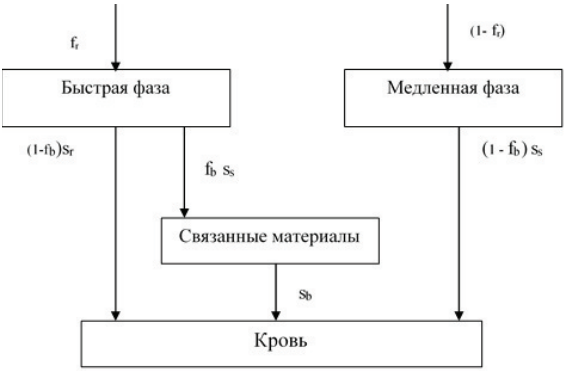


Рисунок 3.2 – Камерная модель абсорбции из легких в кровь МКРЗ-66

Скорость абсорбции для данных классов соединений представлена следующим образом:

(F) – 100% за 10 минут. Это процесс немедленного всасывания в кровь практически всего радионуклида из анатомических отделов BB, bb, и AI и 50% из отдела ET2.

(M) – 10% за 10 минут; 90% выводится за 140 дней. Такова скорость абсорбции для 10% вещества из отделов BB, bb, и 5% из отдела ET2. Около 70% вещества, отложившегося в отделе AI, переходит в кровь.

(S) – 0,1% за 10 минут; 99,9% выводится за 7000 дней. Незначительная абсорбция из отделов ET, BB и bb, в результате 10% вещества, отложившегося в отделе AI, переходит в кровь.

Значения параметров абсорбции из дыхательного тракта в кровь для классов аэрозолей F, M и S согласно МКРЗ-66 представлены в таблице 3.1.

Параметры, представленные в таблице 3.1, были получены в экспериментах на животных, что значительно увеличивает неопределенность при последующей экстраполяции данных на человека.

Биокинетические модели транспорта и экскреции плутония, разработанные под руководством В. Ф. Хохрякова в ЮУрИБФ для персонала ПО "Маяк"[1], представляют собой последовательные модификации известных моделей МКРЗ-30 и МКРЗ-66 [11,

39]. Построенные на реальных данных о метаболизме промышленных соединений плутония в организме человека, эти модели дают более детальное и физиологически более обоснованное описание процессов выведения радионуклидов из дыхательного тракта, как в ранней, так и в поздней фазах легочного клиренса. В то же время прогнозные оценки по моделям ЮУрИБФ справедливы только для отдаленных сроков (через 10 и более лет после начала профессионального контакта с нуклидом).

Таблица 3.1 – Рекомендуемые значения параметров абсорбции из дыхательноготракта в кровь для различных классов аэрозолей (МКРЗ-66)

Класс аэрозоля	F	M	S
f_r	1,0	0,1	0,001
S_r, сутки$^{-1}$	100,0	100,0	100,0
S_s, сутки$^{-1}$	–	0,005	0,0001
f_b	0,0	0,0	0,0

Для корректной дозиметрии и обоснования параметров модели абсорбции плутония в кровь в ранней фазе легочного клиренса по данным диализа *in vitro* промышленных аэрозолей с участков ПО «Маяк» в различных биологических имитантах были получены оценки фракций f_r, $(1 – f_r)$ и скоростей их растворения s_r, s_s, и сопоставлены с данными по растворимости, наблюдаемыми *in vivo* на людях-добровольцах. Полученные результаты представлены в разделе 3.4.

3.3.1. Определение скорости абсорбции *in vivo* и *in vitro*

Абсорбция частиц *in vivo* – это динамический процесс, при котором абсорбированный радионуклид постоянно удаляется током биологической жидкости. Предполагается, что скорость транспорта частиц через клеточные мембраны зависит от физических свойств материала, прежде всего дисперсности, и одинакова для всех типов веществ. С другой стороны, процесс абсорбции включает растворение/диссоциацию частиц и поступление в кровь растворенных субстанций, что, следовательно, зависит от химической формы материала. Таким образом, растворимость радионуклида, определяющая его поведение в организме при ингаляционном поступлении, напрямую зависит от физико-химических свойств вдыхаемых аэрозолей. Количественно растворимость можно оценить с помощью различных *in vitro* тестов.

Вследствие относительной простоты в исполнении и дешевизны *in vitro* тесты постоянно совершенствовались и применялись как хорошее приближение растворения в легких *in vivo.*

Задача экспериментаторов состояла в том, чтобы найти общие закономерности метаболизма плутония у животных и человека и расширить на этой основе возможность применения биокинетических параметров, полученных в условиях *in vitro*.

Например, Miglio и соавт. [40] ингалировали китайским хомячкам и гончим собакам плутоний-содержащие аэрозоли, полученные при разных температурах. Результаты экспериментов представлены в таблице 3.2.

Таблица 3.2 – *In vivo* и *in vitro* скорости растворения плутоний-содержащих аэрозолей с различной температурой образования [40]

t° С образования аэрозоля	Доля Pu, растворенная *in vitro* в 0,1 Н HCl за 2 часа	Доля Pu, растворенная *in vivo* для китайских хомячков за 128 дней	Доля Pu, растворенная *in vivo* для гончих собак за 56 дней
50	0,17	0,69	–
325	0,023	–	0,22
600	0,012	0,04	0,061
900	0,0025	–	0,013
1150	0,00022	0,01	0,011

Растворенная доля плутония *in vivo* была получена путем суммирования количества нуклида, выведенного с мочой, с посмертным содержанием и вычитанием количества нуклида в легких и лимфоузлах. Как видно из таблицы 3.2, направленность изменения доли растворенной фракции *in vivo* и *in vitro* при увеличении температуры образования аэрозолей хорошо согласуются.

Любчанский Э. Р. и Плотникова Л. А. [8] попытались найти корреляцию между растворимостью *in vitro* и *in vivo* с целью использования полученных результатов для оценки степени риска при поступлении соединений плутония с участков радиохимического производства в организм лиц из персонала. Суспензию, содержащую промышленные соединения плутония, вводили крысам интратрахеально и внутримышечно, содержание активности в органах и тканях определяли на восьмые сутки эксперимента. Одновременно определяли растворимость плутония в аэрозольной пробе методом диализа через мембранные фильтры с размером пор 0,15 мкм и коллодиевые мембраны с размером пор 0,04 мкм. В результате была выявлена корреляция фракции плутония, перешедшей во внешний раствор через коллодиевые мембраны, с величиной накопления во внутренних органах на восьмые сутки после введения нуклида и интратрахеально и внутримышечно.

В работе Kanapilly [41] представлены опыты с ингаляцией крысам аэрозольных частиц диоксида плутония субмикронных размеров 9 ± 5 нм и 21 ± 14 нм. Отмечено,

что отложение в организме и в легких было сравнительно выше, чем в опытах с ингаляцией микронных частиц. В этой же статье автор приходит к выводу, что нерастворимые частицы диоксида плутония нанометровых размеров могут быстро транспортироваться из альвеол в кровяное русло в процессе пиноцитоза. Однако, частицы большего размера (25–220 нм) ведут себя несколько иначе. За 17 суток в опытах Kanapilly с крысами заметного перемещения вещества из легких в кровь не было. Более 98% плутония при забое животных нашли в легких и ЖКТ. Выведение плутония с мочой во время первых 4-х дней составляло 83 ± 5% от всей экскреции. Количество плутония, перешедшего из легких в кровь, авторы оценили, сложив количество нуклида, обнаруженного в печени, костях, других тканях и моче. В тканях в среднем было найдено 0,3%, с мочой экскретировалось 0,5% от начального отложения в легких крыс.

J.A. Mewhinney et. al. [42] приводит данные о связи задержки в легких аэрозолей двуокиси плутония, растворимость которых определялась *in vitro*. По результатам экспериментов, чем меньше растворимость *in vitro*, тем дольше задержка в легких гончих собак.

Eidson [43] в работе, посвященной изучению биокинетики промышленных аэрозолей, состоящих из смесей трансурановых элементов, отмечает, что очень трудоемко и сложно исследовать транспортные процессы веществ, образующихся на разных стадиях топливного цикла, с применением лабораторных животных. В данном случае тесты *in vitro* являются удобным средством для предсказания поведения нуклида *in vivo*.

По существу, для того, чтобы оценить возможности применения *in vitro* тестов, нужно понять, что происходит с отложившимися частицами после ингаляции. Для этого необходимо изучить физико-химические свойства вдыхаемых частиц, биохимические факторы, которые могут влиять на начальную скорость растворения *in vivo* и биологические механизмы, влияющие на перенос химически преобразованного радиоактивного вещества из начального места отложения в кровяное русло.

Системы *in vitro* были разработаны для того, чтобы смоделировать способность радионуклида транспортироваться в кровь и с помощью этих систем проводить исследования количественных закономерностей переходных процессов, протекающих в организме человека в ранней фазе легочного клиренса.

Рассмотрим механизмы очищения легких от задержанных аэрозольных частиц (рис. 3.3). При отложении радиоактивной частицы на поверхности воздухоносных путей дыхательного тракта, дисперсионная среда переходит из газовой в жидкую.

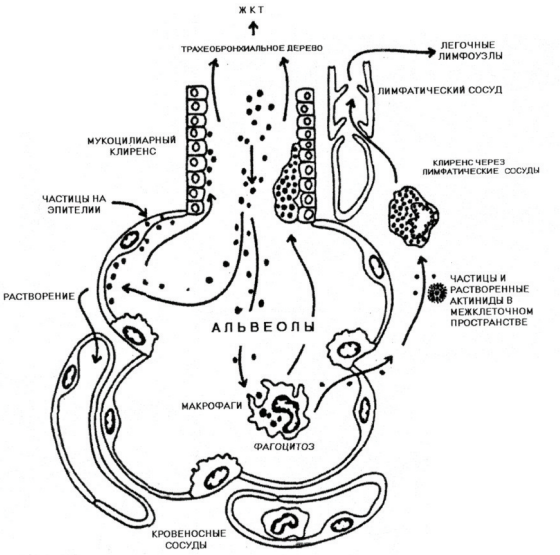


Рисунок 3.3 – Механизмы очищения легких от частиц,
отложившихся в нижних отделах дыхательного тракта после ингаляции

Частицы после отложения удаляются из легких различными путями:

а) фагоцитоз с помощью фагоцитов (макрофагов) в альвеолах или проводящих воздухоносных путях;

б) удаление с помощью реснитчатого эскалатора как отдельных частиц, так и захваченных макрофагами (попадая в верхние дыхательные пути, эти частицы заглатываются и транспортируются в ЖКТ);

в) эндоцитоз (транспорт внутрь клетки) в эпителиальные клетки альвеол;

г) транслокация в интерстициальную легочную ткань, где частицы могут оседать на неопределенно долгое время;

д) транслокация через лимфатические сосуды в лимфоузлы;

е) растворение во внеклеточной легочной жидкости;

ж) растворение во внутриклеточной среде макрофагов и других легочных клеток.

Строго говоря, эти механизмы конкурируют между собой, т. е. протекают одновременно, но в разной степени, в зависимости от природы ингалированных частиц (размера и формы, плотности и массы, химической растворимости и т. д.).

Как уже отмечалось, легочный клиренс плутония в значительной степени осуществляется действием такого механизма, как перенос вещества фагоцитами. В эксперименте [9] показано, что уже через 30 мин после ингаляции крысам цитрата, нитрата или

мелкодисперсной двуокиси, от 30 до 70% количества плутония, обнаруженного в альвеолярном отделе, связано макрофагами. Sanders [27] в своих исследованиях показал, что 90% частиц плутония были захвачены фагоцитами через 24 часа после ингаляции.

Фагоцитоз наиболее выражен для нерастворимых соединений плутония, для которых большую роль играет перенос частиц макрофагами в трахеобронхиальное дерево либо в интерстициальную ткань легочной паренхимы и лимфосистему легких. Макрофаги, содержащие плутоний, под действием излучения могут погибать, а продукты распада этих клеток вновь могут подвергаться фагоцитозу.

Этот феномен очень важен, поскольку химические свойства межклеточной легочной и фаголизосомной жидкостей сильно различаются и, вероятно, будут влиять на скорость растворения аэрозольных частиц *in vivo*. Легочная жидкость нейтральна (pH = 7,2 – 7,4), содержит значительные концентрации нескольких комплексных анионов – карбонатов, фосфатов, цитратов, ацетатов и аскорбатов, и имеет низкий окислительный потенциал. Кроме того, легочная жидкость содержит антиоксиданты – дисмутазу, каталазу и глутатион, которые определяют окислительно-восстановительные характеристики внутриклеточной среды.

Фаголизосомная жидкость имеет pH = 4,3 – 5,5 (в зависимости от вида млекопитающего), не содержит комплексообразующих анионов, кроме фосфатов, и имеет высокий окислительный потенциал из-за присутствия молекул пероксида водорода и гидроксильных радикалов.

Следовательно, можно ожидать, что радиоактивные частицы будут по-разному растворяться в двух различных химических средах – межклеточной и фаголизосомной жидкостях, в зависимости от значения pH, количества комплексообразующего агента, окислительно-восстановительного потенциала. В любом случае, только наиболее растворимые частицы, то есть те, которые способны к значительному или полному растворению менее чем за одни сутки, возможно, избегут захвата фагоцитами.

Matton S. и Bailly I. [45] провели *in vitro* исследования взаимодействия фосфат-ион/UO_2 в среде, имитирующей содержимое лизосом макрофагов. *In vitro* тест проводили в растворителе, содержащем 0 и 10 мМоль фосфата при pH = 5. В течение первого дня растворенная фракция составила 80,55% и 91,13% от исходного содержания в присутствии фосфата и без него соответственно. Полученные результаты подтвердили, что присутствие фосфат-ионов в фаголизосомной жидкости понижает скорость растворения частиц UO_2. Взаимодействие частица/фосфат-ион объясняет более низкую скорость растворения UO_2 после фагоцитоза альвеолярным макрофагом по сравнению со скоростью растворения во внеклеточной жидкости.

Скорость клиренса соединений урана, согласно 30 Публикации МКРЗ, описывается экспоненциальными уравнениями и характеризуется связанными с ними периодами полувыведения. В 66 Публикации МКРЗ интерпретация экспериментальных данных сделана подгонкой параметров легочной ретенции и абсорбции в кровь, которые определяли фракцию быстрой абсорбции f_r, скорость быстрой абсорбции s_r, скорость медленной абсорбции s_s. Данные, полученные в эксперименте *in vitro*, используемые для описания кинетики растворения, выражаются как сумма двух экспонент быстрой и медленной фракций и соответствующих им скоростям:

$$\% F = f_r e^{-Sr \cdot t} + (1 - f_r) e^{-Ss \cdot t} \quad (3.3)$$

Нерастворенная фракция F выражается как процент начальной активности от времени [46].

3.3.2. Методические подходы к определению растворимости *in vitro*

В данном разделе рассмотрены встречающиеся в литературе методики определения скорости растворения различных соединений урана и плутония, так называемые *in vitro* dissolution tests, которые разными исследователями использовались, как скрининговый метод классификации аэрозолей по их растворимости (классы D, W, Y) [39] и типу абсорбции (классы F, M, S) [11], а также как метод определения входных параметров биокинетических моделей (f_r, s_r, s_s), когда не представлялось возможным получить результаты *in vivo* наблюдений [47].

К основным методикам, которые подробно представлены в литературе, относятся: 1) проточная система; 2) система параллельных потоков; 3) пакетный метод (batch метод); 4) фильтр-пакетный (batch/filter) метод; 5) статическая система, содержащая (или не содержащая) альвеолярные макрофаги.

Отличие перечисленных систем заключается в способе взаимодействия растворяемого вещества и растворителя. Состав растворителя будет обсуждаться отдельно.

Проточная система

В этой системе растворитель протекает через мембранные фильтры, на которых предварительно отбирается изучаемое соединение. Скорость потока растворителя через систему регулируется изменением давления в резервуаре. Растворитель циркулирует в постоянном направлении через образец с инжекцией воздуха для обеспечения перемешивания и симуляции условий окисления в легких. По ходу эксперимента, время от времени

измеряется концентрация нуклида в растворителе. Подробное описание проточной системы можно найти в работах Kanapilly et. al. [48], Duport [49].

Данная методика не так проста в исполнении, поскольку довольно часто могут возникать проблемы как с засорением фильтра, так и поддержанием постоянного давления. Поэтому система не нашла широкого применения в экспериментальных исследованиях.

Система параллельного потока

В этой системе растворитель проходит, не через, а параллельно образцу. Частицы на фильтре поддерживаются в смоченном состоянии и смываются растворителем. Преимущество данной системы заключается в относительной простоте поддержания стабильной скорости потока в течение суток, возможности использования сложных растворителей (таких как кровяная сыворотка) и сравнительно небольшой чувствительности системы к влиянию концентрации на растворимость вследствие большого объема используемого растворителя. Данный метод использовался в работе Kanapilly et. al. [50].

Пакетный метод

Исследуемый образец встряхивается в среде растворителя при контролируемой температуре через выбранные интервалы времени. Смесь центрифугируется, отбирается аликвота раствора и анализируется на содержание радионуклида. Вместо аликвоты добавляется свежий растворитель того же объема. В данном методе частицы вещества напрямую контактируют с растворителем и, таким образом, исключается возможное действие мембраны. Пакетный метод применяли в своих исследованиях Potter and Mattson [22]. Существенный недостаток этого метода состоит в том, что нерастворенные частицы могут попасть в объем отбираемой аликвоты, что приводит к искажению результатов и завышению скорости растворения. Степень завышения будет зависеть от дисперсности частиц, их плотности и условий центрифугирования.

Статическая система

Образец помещается между двумя мембранами пористостью 0,1 мкм, зажимается полипропиленовыми кольцами и опускается в растворитель (рис. 3.4, 3.5). Через определенные промежутки времени растворитель меняется и анализируется. Данный тест применялся в работах многих авторов: Kanapilly et.al. [50], Miglio [40], Eidson and Mewhinney [30], Ansoborlo [44], Хохряков В. Ф. и др. [1, 5, 6].

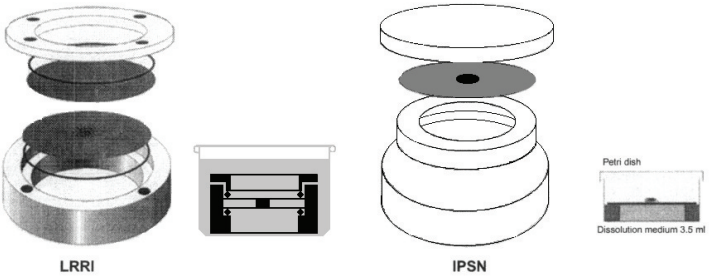


Рисунок 3.4 – Два статических *in vitro* теста:
а – система, используемая в LRRI Лос-Аламосской национальной лаборатории США (Гюльметт (Guilmette));
б – система, применяемая в IPSN Национальном институте ядерной защиты, Франция (Ансоборло (Ansoborlo))

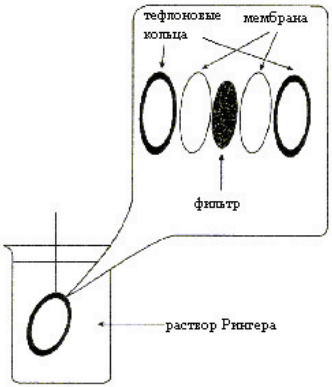


Рисунок 3.5 – Установка для диализа в растворе Рингера, применяемая в ЮУрИБФ [1, 5]

Фильтр-пакетный метод отличается от пакетного метода наличием мембранного фильтра, через который фильтруется анализируемый раствор. Преимущество метода в том, что нерастворенные частицы не попадают в измеряемую аликвоту [17].

Статическая система с макрофагами

Тесты с использованием альвеолярных макрофагов мышей или обезьян представлены в работе Kreiling et. al. [20]. Эти системы были задуманы как попытка учесть факт, что аэрозольные частицы вскоре после отложения в легких подвергаются фагоцитозу, а среда внутри макрофагов значительно отличается по химическому составу от легочной

жидкости. Первый тест с использованием макрофагов, культивированных в газовой фазе, был описан в работе Voisin et.al. [51] для токсических газов, и адаптирован для твердых частиц в экспериментах Henge-Napoli [52]. Данная система заключается в осаждении аэрозолей на мембранный фильтр Гельмана с размером пор 0,1 мкм, который с одной стороны поддерживается в контакте с атмосферным воздухом, и с растворителем – с другой. Мембранный фильтр помещается в тефлоновое кольцо и осторожно опускается в чашку Петри. Тест выполняется в присутствии альвеолярных макрофагов, которые захватывают аэрозольные частицы. Необходимо соблюдение стерильных условий. Обязательна постоянная циркуляция 5% CO_2 при температуре 37° С. Тест был разработан Henge-Napoli et. al. [52], применялся в экспериментах Ansoborlo [44, 47].

Применение систем, содержащих макрофаги, требует особых знаний и навыков в области биологии клетки. Клеточными системами сложно управлять, сложно поддерживать нормальное функционирование макрофагов в условиях *in vitro*, поэтому данная методика не нашла широкого практического применения.

3.3.3. Растворители, применяемые в *in vitro* тестах

Скорость растворения нуклида, попавшего в легкие, определяется как его физико-химическим состоянием, так и свойствами биологической среды организма, в которой происходит растворение.

Необходимой составной частью биологических жидкостей организма являются минеральные соли. От присутствия в клетках и тканях в известных концентрациях тех или иных солей зависит степень дисперсности, гидратации и растворимости многих внутриклеточных и внеклеточных белковых веществ. Большое значение при этом имеют валентность и химическая природа ионов.

В таблице 3.3 приведено содержание важнейших минеральных веществ в лимфе, эритроцитах и плазме крови человека в мг% [53].

Как видно из таблицы, содержание ионов натрия и хлора в плазме и лимфе самое высокое по сравнению с другими элементами, поскольку натрий в тканевых жидкостях присутствует преимущественно в виде хлористого натрия. Бикарбонаты и фосфаты Na и K, являются важнейшими буферами, препятствующими изменению pH крови [53]. Кроме того, в биологических жидкостях содержатся важнейшие органические вещества: лимонная кислота, различные аминокислоты, белки, являющиеся комплексообразующими субстанциями.

Таблица 3.3 – Содержание важнейших минеральных веществ в эритроцитах, плазме крови и лимфе человека в мг%

Вещество	Эритроциты	Плазма и сыворотка	лимфа
Na	50–110	300–340	330
C1	180–200	360–380	410–420
Mg	5	1.7–2	3
K	450–480	15–20	24
HCO_3	210	160	
Ca	следы	9–11	11
P минеральный	следы	2.5–5	
P органический	50–60	8–10	3–4

Анализ данных, полученных при изучении растворимости различных веществ в биосредах, показал, что некоторые соединения, считавшиеся нерастворимыми в воде, показывают значительную растворимость в биологических средах. Так, растворимость трехокиси урана U_2O_3 в воде составляет 1%, а в плазме крови в 40 раз выше [19]. Было отмечено, что растворимость другого соединения урана – UO_4 в воде очень мала и сравнима с растворимостью UO_2 и U_3O_8, а в плазме крови оказалась такой же, как U_2O_3. Авторы объясняют большую растворимость этих соединений в плазме крови по сравнению с растворимостью в воде взаимодействием этих соединений с бикарбонатом плазмы крови и образованием растворимых комплексов. Как уже отмечалось, на растворимость частиц, попавших в биосреду организма, влияют многочисленные факторы биологической и химической природы.

Ионы в организме, подобно веществам в водных растворах, могут подвергаться гидролизу при pH организма с образованием малорастворимых гидроокисей. Особенно склонны к гидролизу в этих условиях многовалентные радионуклиды. Склонность к реакциям гидролиза и комплексообразования является главным свойством, определяющим поведение плутония в организме (Булдаков Л. А. и соавт. [10]). Обе реакции протекают в жидкостях организма настолько интенсивно, что практически невероятно существование плутония в них в форме иона.

Присутствующие в биологических жидкостях карбонаты, фосфаты образуют нерастворимые комплексы с рядом элементов или способствуют образованию нерастворимых коллоидов. Наличие электролитов может вызвать не только перезарядку коллоидных

частиц, но и изменение доли изотопа в форме коллоида. Цитраты, аминокислоты способствуют образованию растворимых комплексов или частичному разрушению коллоидных частиц. Образование растворимых комплексов с нуклидом может происходить и при взаимодействии с низкомолекулярными белками.

Водные растворы солей воспроизводят химический состав легочной жидкости, и в сочетании с *in vitro* системой, тесты моделируют взаимодействие аэрозольных частиц со средой легких. Большинство экспериментов, описанных в литературе, проводились при pH = 7.3, 20 или 37° С и атмосферном давлении.

В самых первых исследованиях использовали настоящую плазму, но невозможность избежать возникающих бактериальных повреждений привели к применению в качестве растворителя имитанта легочной жидкости.

Описание составов растворителей, которые встречаются в литературе, основано на исследованиях химических свойств внеклеточной жидкости Gamble [54].

В медицине солевые растворы, изотонические сыворотке крови (т. е. имеющие осмотическое давление, равное таковому сыворотки крови), применялись, например, для восполнения потерь крови при тяжелых ранениях, операциях и т. п. Изотоничным сыворотке крови является, например, 0.9% раствор NaCl. Его называют физиологическим раствором.

Имитанты легочной жидкости, применяемые *in vitro*, по химическому составу были максимально приближены к тканевой жидкости межклеточных пространств и получили название ультрафильтрат имитанта сыворотки (SUF), фаголизосомный имитант (PSF) сыворотка легочной жидкости (SLF), раствор Гэмбла и раствор Рингера. Составы перечисленных растворов приведены в таблице 3.4.

Таблица 3.4 – Состав водных растворов имитантов биологической жидкости, моль/литр

Соль	**SUF[a]**	**SLF[b]**	**PSF[c]**	**Gamble[d]**	**р-р Рингера[e]**
KC1	–	0,004	–	–	0,002
NaCl	0,116	0,145	0,116	0,116	0,140
$MgCl_2$	–	0,001	–	–	–
NH_4C1	0,010	–	–	0,010	–
$NaHCO_3$	0,027	0,024	–	0,027	0,001
Глицин	0,005	–	0,005	0,006	–
Гидрофталат К			0,027		
L-Cysteine	0,001	–	–	0,001	–

Соль	SUF[a]	SLF[b]	PSF[c]	Gamble[d]	р-р Рингера[e]
Na_3 цитрат	0,0002	0,0003	–	0,0002	–
Na ацетат	–	0,0070	–	–	–
$CaCl_2$	0,0002	0,0025	0,0002	0,0002	0,002
Na_2SO4	–	0.0005	0,005	–	–
H_2SO_4	0,0005	–	–	–	–
Na_2HPO_4	–	0,0020	0,001	–	–
NaH_2PO_4	0,0012	–	–	0,0012	–
DTPA[f]	0,0002	–	–	–	–
ABDC[g]	0,0002	–	0,0002	–	–

[a] Eidson and Mewhinney [30]
[b] Eidson [53], Dennis et. al. [64]
[c]Ansoborlo [44]
[d]Gamble [63]
[e] Хохряков В.Ф. [1, 5]
[f]DTPA – пентацин, хелатный агент, не присутствующий в кровяной сыворотке.
[g]ABDC – алкилбензилдиметил хлорид аммония, антибактериальный агент, не присутствующий в кровяной сыворотке (вносится для предотвращения бактериальных повреждений).

Разумеется, *in vitro* тесты не являются исчерпывающими моделями абсорбции вещества, поскольку невозможно учесть все физиологические факторы, влияющие на скорость абсорбции в кровь в условиях организма человека. Однако, исторически сложилось так, что, пытаясь понять работу сложной системы, сначала ее заменяют более простой. После изучения упрощенной системы, удается разобраться и с более сложной.

Поэтому применяемые на практике *in vitro* тесты, результаты которых дают первое приближение параметров абсорбции f_r, s_r, s_s легочного клиренса по модели МКРЗ-66, на сегодняшний день являются, во-первых, единственным, во-вторых, удобным, простым и достаточно надежным способом оценки скорости растворения ингалированных аэрозолей в дозиметрических целях.

3.4. Классификация промышленных аэрозолей с различных рабочих участков ПО "Маяк" по показателю транспортабельности

Как отмечено в предыдущей главе, согласно модели легочного клиренса МКРЗ-66, радиоактивные аэрозоли разделены на три класса S (slow) – медленные, M (moderate) – промежуточные, F (fast) – быстрые, в зависимости от скорости перехода из легких в кровь.

Данная классификация носит качественный характер, т. к. нет привязки численных значений параметров клиренса к физико-химическим свойствам ингалируемого аэрозоля. Кроме того, на практике в промышленных аэрозолях, как правило, содержится не одно

химическое соединение, а смесь из нескольких. Наконец, скорость растворения и способность проникать через полупроницаемые мембраны в организме находятся в прямой зависимости от дисперсности аэрозолей.

В биофизической лаборатории ЮУрИБФ в середине 70-х гг. был разработан и применяется уже более 40 лет подход для классификации промышленных аэрозолей по показателю транспортабельности (автор идеи В. Ф. Хохряков), характеризующему химическую растворимость ингалированного вещества, и определяемому методом диализа [1, 5].

Чтобы оценить возможности применения выбранного метода для целей дозиметрической классификации, авторы работы [6] исследовали диализ стандартных растворов цитрата плутония и азотнокислого раствора полимерного плутония. Результаты показали существенную разницу скоростей диализа двух отличающихся по химическим свойствам соединений плутония.

В 1970-х гг. в качестве мембран использовали коллодиевые мешочки с размером пор 0,006 мкм, изготовленные из коммерческого коллодия в лабораторных условиях. Начиная с 1987 года стали использовать полупроницаемые мембраны Владипор МФА № 2 средней пористости 0,15–0,25 мкм.

Несмотря на то, что мембраны отличались по размерам пор, сопоставление значений транспортабельности, полученных с применением двух типов мембран, указывали на их сходимость для большинства производственных участков [4].

В методе диализа используется статическая система *in vitro*, подобная описанной в разделе 3.3.2. (см. рис.3.5). В статье [5] подробно представлена методика определения показателя транспортабельности на основе анализа данных диализа нуклида через полупроницаемую мембрану в физиологическом растворе Рингера. Метод позволяет получить объективную количественную характеристику аэрозолей, отражающую те их свойства, которые связаны со скоростью растворения вещества в легких.

Кинетику растворения соединений плутония по полученным экспериментальным данным описали с помощью двух экспоненциальной модели согласно уравнению [1, 5]:

$$Q/Q_0 = a_1 e^{-\lambda_1 t} + a_2 e^{-\lambda_2 t} \qquad (3.4)$$

где: Q – содержание альфа-активности на фильтре в момент времени t, Бк;

Q_0 – исходное содержание альфа-активности на фильтре при t = 0, Бк;

a_1 – доля нуклида, способная к относительно быстрому растворению;

λ_1 – скорость убывания быстрорастворимой фракции, $сут^{-1}$;

a_2 – доля нуклида, подвергаемая медленному растворению;

λ_2 – скорость убывания медленно растворимой фракции, $сут^{-1}$.

Транспортабельность, т. е. доля вещества, находящаяся в транспортабельном состоянии (S), рассчитывается согласно выражению [1]:

$$S = a_1 + a_2 \cdot \lambda_2 / \lambda_1 \quad (3.5)$$

Согласно формуле (3.5) для определения транспортабельности необходимо знание всех параметров двух экспоненциальной модели, получение которых возможно лишь при обработке результатов длительных наблюдений скорости диализа. Анализ результатов диализа большого числа аэрозольных проб из производственных помещений ПО "Маяк" показал, что доля альфа-активности, диализируемая за первые двое суток, практически совпадает с показателем транспортабельности, рассчитанным по данным длительного диализа. Такой подход позволил значительно упростить процесс анализа аэрозолей и оперативно на основе большого количества экспериментальных измерений, охарактеризовать различные производственные участки ПО "Маяк" по показателю транспортабельности S.

С начала 70-х гг. и до настоящего времени в БФЛ ЮУрИБФ методом диализа проанализировано более 1000 проб воздуха, отобранных с различных участков радиохимического и плутониевого производств. В середине 1980-х [4], а позднее в конце 1990-х гг. были выполнены исследования транспортабельности аэрозолей на современном комплексе РТ-1 по переработке отработанного ядерного топлива.

Анализ имеющихся результатов выявил четкую тенденцию к снижению транспортабельности при переходе от начальной (растворение ТВЭЛов) к конечной стадии производственного цикла ПО "Маяк" (получение и механическая обработка металла). Согласно [5], для дозовых оценок технологические участки и аэрозоли разделили на три группы с учетом транспортабельности. Аэрозоли, содержащие нитрат плутония, характеризуются средним значением транспортабельности, равным 3,0%, а аэрозоли диоксида – 0,3%. Указанные значения в терминах МКРЗ соответствуют двум классам растворимости плутониевых аэрозолей: M – промежуточному (moderate) и S – медленному (slow). В производственных условиях встречаются смеси аэрозолей двух классов. Это можно выявить по измеренному показателю транспортабельности. Смеси трудно растворимых и ограниченно растворимых (оксалаты, хлориды, нитраты) на участках химико-металлургического производства характеризовались среднегеометрическим значением транспортабельности, равным 1%. Таким образом, зная индивидуальный профессиональный маршрут, можно получить представление о наиболее вероятных физико-химических свойствах и биологическом поведении ингалированных аэрозолей.

Изучение распределения плутония в организме бывших работников ПО "Маяк" (более 700 случаев) показало, что содержание плутония в легких и легочных лимфоузлах находится в обратной зависимости от показателя транспортабельности аэрозоля (табл. 3.5).

Таблица 3.5 – Относительное содержание плутония в дыхательном тракте в зависимости от показателя транспортабельности [5]

Участок производства	Переработка облученного урана	Получение плутония участок 1	Получение плутония участок 2
Транспортабельность,%	3,0 (1,7)	1,0 (3,0)	0,3 (1,6)
Количество случаев	281	112	45
Содержание в легких,%	2,56 (2,26)	6,50 (2,47)	22,60 (1,81)
Содержание в легких и легочных лимфоузлах,%	3,60 (2,30)	13,20 (2,47)	43,20 (1,80)

Примечание – в скобках приведено стандартное геометрическое отклонение.

Это указывало на то, что дозы облучения легких от инкорпорированного плутония также должны зависеть от транспортабельности.

Таким образом, показатель транспортабельности может служить количественным критерием для классификации промышленных аэрозолей плутония, что особенно важно в тех случаях, когда персонал подвергается воздействию смеси различных соединений нуклида, и применение классификаций, предлагаемых МКРЗ, часто оказывается малоэффективным.

3.4.1. Систематизация рабочих участков ПО "Маяк" по транспортабельности для практического применения в дозиметрии внутреннего облучения

Исследования физико-химических свойств промышленных аэрозолей плутония, постоянно проводимые в БФЛ, обеспечивают систему мониторинга внутреннего облучения персонала ПО "Маяк" исходной информацией, дающей представление о поведении радионуклида в организме человека при ингаляционном поступлении. Наличие такой информации очень важно для корректной дозиметрии на основе разработанных биокинетических моделей.

Учитывая сказанное, для целей электронного учета уровней накопления нуклида в органах основного депонирования и расчета доз внутреннего облучения лиц из персонала была проведена систематизация рабочих участков ПО "Маяк" по показателю транспортабельности на основе экспериментальных исследований транспортабельности аэрозолей и сведений о развитии технологии атомного комплекса за весь период его функционирования.

В отдельном разделе электронной базы данных также содержится информация о среднегодовых концентрациях альфа-активных аэрозолей на каждом исследованном участке.

Предложенная систематизация представляет собой перечень рабочих участков радиохимического и плутониевого заводов, на основании изученных свойств аэрозолей соединений плутония, с указанием показателя транспортабельности аэрозоля, периода работы отделения и технологического процесса.

За основу принимается классификация аэрозолей по транспортабельности, предложенная в ИМУ-88 [55]. ИМУ-88 – это первый в России нормативный документ, регламентирующий контроль внутреннего облучения персонала при работе с промышленными альфа-активными аэрозолями, разработанный в 1988 году специалистами Филиала № 1 института биофизики.

Чтобы охватить все возможные значения транспортабельности (S), промышленные альфа-активные аэрозоли, подразделили на 9 классов (см. табл. 3.6).

Таблица 3.6 – Классификация промышленных альфа-активных аэрозолей по показателю транспортабельности, определяемому методом диализа [9]

Класс	Показатель транспортабельности S,%	Среднее значение S,%
1	0 – 0,05	0,03
2	0,05 – 0,12	0,08
3	0,13 – 0,30	0,20
4	0,31 – 0,80	0,5
5	0,81 – 2,0	1,2
6	2,1 – 5,0	3,0
7	5,1 – 12,0	7,5
8	12,1 – 30	19
9	> 30	50

Основываясь на результатах анализа проб воздуха из рабочих помещений, для дозовых оценок было принято, что согласно методу классификации аэрозолей по показателю транспортабельности (S), технологические участки разделены на три группы:

- участки, где персонал контактирует с трудно растворимыми аэрозолями диоксида плутония, характеризуются S = 0,3% (4 класс);
- участки, где персонал контактирует с относительно растворимыми нитратами плутония, характеризуются S = 3% (6 класс);
- участки, где преобладают аэрозоли смешанного состава, характеризуются S = 1% (5 класс).

Однако, такая группировка участков не учитывает соединений нуклида, образующихся в отделениях экстракции, где величина S значительно отличается от указанных показателей.

Это обстоятельство объясняется тем, что экстракционная технология введена только с 1976 года (см. табл. 3.9) тогда как основная когорта, вошедшая в аутопсийные исследования, состояла из бывших работников, начавших контакт с нуклидом в период с 1948 по 1980 гг.

В предложенной систематизации, для аэрозолей, образующихся в отделениях, где применяется экстракционная технология, при дозовых оценках рекомендуется 8 класс транспортабельности, однако верифицировать правильность использования этого класса растворимости аэрозолей для дозиметрических оценок не представляется возможным из-за отсутствия данных аутопсийных исследований для группы персонала отделений с экстракционной технологией.

Значения показателя транспортабельности для аэрозолей с исследованных технологических участков радиохимического завода представлены в таблице 3.7, с участков завода по получению и переработке плутония – в тавлице 3.8.

Таблица 3.7 – Транспортабельность альфа-активных аэрозолей, образующихся на различных технологических участках радиохимического завода (среднее±среднеквадратическое отклонение)

	Новое производство	Комплекс РТ-1					
Технологический процесс	1984	1985	1986	1987	1999	2001	2002
Растворение урановых блоков	4,3 n=1	3,7±1,4 n=4	-	4,6±2,4 n=3	6,5±1,7 n=6	5,1±0,9 n=16	4,3±0,2 n=12
Ацетатное осаждение	2,9±0,8 n=11	-	2,9±0,6 n=13	-	-	-	-
Сорбция	2,1±0,5 n=5	-	2,0±0,7 n=15	-	-	-	-
Экстракция	10,3±1,9 n=4	13,6±7,4 n=8	15,5±1,5 n=26	8,1±1,0 n=11	16,2±4,6 n=6	18,5±4,9 n=21	17,3±2,8 n=17
Прокалка до PuO_2	0,5±0,2 n=7	0,7±0,3 n=8	0,7±0,3 n=12	0,6±0,2 n=3	-	0,8±0,4 n=21	0,7±0,4 n=16
n – количество аэрозольных проб							

Несмотря на вариативность значений транспортабельности для аэрозолей нитратов плутония – от 3,7 ± 1,4% до 6,5 ± 1,7% на участках радиохимического завода (табл. 3.7), и

от 2,3 ± 0,3% до 6,4 ± 1,5% на участках плутониевого производства (табл. 3.8), а для аэрозолей диоксида плутония – от 0,5 ± 0,02% до 0,8 ± 0,4% на участках радиохимического завода (табл. 3.7), и от 0,2 ± 0,1% до 0,9 ± 0,4% на участках плутониевого производства (табл. 3.8), их средние значения находятся в пределах соответственно 6 и 4 классов.

Таблица 3.8 – Транспортабельность альфа-активных аэрозолей, отобранных с различных рабочих участков завода по получению и переработке плутония (среднее±среднеквадратическое отклонение)

Химическое отделение						
Год исследования	1975	1977	1987	1998	2001	2003
Кол-во фильтров	23	20	8	7	24	27
S±σ	2,6±0,5	2,5±0,3	2,3±0,3	6,4±1,5	4,5±1,2	5,4±1,5

Химико-металлургическое отделение					
Год исследования	1977	1978	1987	1998	2003
Кол-во фильтров	17	8	8	5	20
S±σ	0,6±0,1	0,5±0,2	0,6±0,2	2,1±0,3	1,6±0,4

Литейно-механический участок									
Год исследования	1975	1976	1977	1978	1979	1987	1998	2001	2003
Кол-во фильтров	12	8	8	4	56	5	17	14	22
S±σ	0,2±0,1	0,2±0,1	0,5±0,2	0,3±0,03	0,3±0,04	0,4±0,2	0,8±0,3	0,9±0,4	0,8±0,4

Таким образом, с целью систематизации аэрозоли на каждом участке отнесены к одному из четырех обнаруженных классов с указанием измеренного значения S или экстраполированного в соответствии с технологическим процессом и химическим составом перерабатываемого продукта на те периоды работы отделений, когда измерения транспортабельности еще не проводились (см. табл. 3.9, 3.10).

Согласно технологии на подавляющем большинстве рабочих участков радиохимического завода в основном присутствовали аэрозоли нитрата плутония, на участках плутониевого производства – аэрозоли смешанного состава. Отделения прокалки до PuO_2, где конечным продуктом являлся диоксид плутония, а также участки экстракционного разделения нуклидов, отличались наличием в составе аэрозолей, наряду с другими химическими соединениями, соответственно трудно растворимого диоксида и быстрорастворимых комплексов с органическими лигандами.

Таблица 3.9 – Технологические участки радиохимического завода с указанием показателя транспортабельности

Завод	Код	Период работы	Технологический процесс	S,%
Радиохимический завод	1	1949–1977	Хранение хим. реагентов	3,0
	2	1949–1977	Растворение урановых блоков	**4,3***
	3	1949–1967	Окислительное ацетатное осаждение	3,0**
	4	1949–1967	Хранение химических реагентов	3,0
	5	1949–1952	Регенерация ацетата натрия	3,0
	6	1949–1967	Восстановительное ацетатное осаждение	3,0
	7	1949–1968	Концентрирование Pu	3,0
	8	1949–1952	Лантан-фторидная технология	3,0
	9	1949–1952	Хранение фторидных растворов	3,0
	10	1949–1954	Вакуумное отделение	3,0
	11	1949–1952	Экстракция плутония	3,0
	12	1949–1965	Выдержка ВАО	3,0
	13	1949–1952	Регенерация экстрагента	3,0
	14	1949–1964	Марганцево-ниобиевая очистка, восстановительное ацетатное осаждение	3,0
	15	1949–1952	Сорбция ПД	3,0
	16	1952–1955	щелочное осаждение плутония	3,0
	17	1952–1971	Переработка ВАО	3,0
	18	1967–1971	Получение PuO_2	1,0
	19	1953–1967	Регенерация ацетата натрия	3,0
	20	1955–1964	Аффинаж Pu	3,0
Радиохимический завод-дублер	21	1959–1987	Растворение	**4,3**
	22	1959–1976	Окислительное ацетатное осаждение	3,0
	22	1976–1987	Экстракция, реэкстракция U, Pu	**14,2**
	23	1959–1987	Восстановительное ацетатное осаждение	**2,9**
	24	1959–1987	Марганцево-ниобиевая очистка, восстановительное ацетатное осаждение	**2,9**
	25	1959–1987	Концентрирование Pu	**2,9**
	26	1959–1987	Сорбционное разделение U, Pu	**2,1**
	27	1959–1987	Оксалатное осаждение, прокалка до PuO_2	**0,6**
	28	1959 – н/в	Хранение ВАО	3,0
	29	1959–1987	Осаждение гидроокиси Al	3,0
	30	1959 – н/в	Дезактивация оборудования	3,0
	31	1959 – н/в	Снабжение хим. реагентами	3,0
	32	1959 – н/в	Дезактивация спецодежды	3,0
	33	1959 – н/в	Снабжение хим. реагентами	3,0
	34	1959 – н/в	Хранение Mn-Nb пульпы	3,0
	35	1965–1987	Электролитическое восстановление U^{VI}	3,0
Комплекс по регенерации облученного ядерного топлива	36	1971 – н/в	Хранение ОТВС	3,0
	37	1977 – н/в	Измельчение ТВЭЛов	3,0
	38	1977 – н/в	Растворение	**5,0**
	39	1977 – н/в	Экстракция и реэкстракция	**14,2**
	40	1981 – н/в	Экстракция и реэкстракция	**14,2**
	41	1979 – н/в	Осаждение U	3,0
	42	1977 – н/в	Экстракция	**14,2**
	43,44	1977 – н/в	Осаждение Np, Pu и прокалка	**0,8**
	45	1979 – н/в	Упаривание растворов ВАО	3,0
	46	1977–1981	Экстракция и реэкстракция	**14,2**
	47	1973 – н/в	Хранение и выдержка ВАО	3,0
	48	1986 – н/в	Отверждение ВАО	3,0
	49	1980 – н/в	Хранение отработанного экстрагента	3,0

* – средние значения показателя транспортабельности, полученные путем анализа образцов воздуха в период с 1984 по 2002 гг.,

** – значения показателя транспортабельности согласно принятой классификации с учетом применяемой технологии.

Таблица 3.10 – Технологические участки плутониевого производства с указанием показателя транспортабельности промышленных аэрозолей

Код	Период работы	Технологический процесс	S,%
50–51	1949–1962	химия + металлургия	1,0
52–53	1976 – н/в	изготовление ТВЭЛ	1,0
54	1963–1973	металлургия	1,0
55	1973 – н/в	химия	3,0
56–59	1963–1975	химия + металлургия (U)	**1,0***
60	1960 – н/в	химия	3,0**
61–62	1951 – н/в	анализ продукта (U, Pu – окислы, хлориды, оксалаты)	**1,0**
63	1951 – н/в	анализ продукта (Pu – окислы, хлориды, оксалаты)	**1,0**
65	1951 – н/в	анализ продукта (U – окислы, хлориды, оксалаты)	1,0
66–68	1949–1960	аффинаж	1,0
69	1955–1962	переработка шлаков	1,0
70	1949–1970	переработка лит.-механического цеха	1,0
71	1949–1970	переработка азотнокислых растворов от регенерации оборотов и отходов	3,0
72	1950–1980	механическая обработка деталей	**0,5**
73	1950–1980	дефектоскопия деталей	0,3
74	1967–1968	экстракционная установка	3,0
75	1962–1973	металлургия и переработка шлаков	1,0
76	1959–1979	переработка шлаков	1,0
77	1949–1970	регенерация оборотов и отходов	1,0
79	1954–1960	нанесение слоя никеля	1,0
80	1959 – н/в	упаковка и хранение готовой продукции	1,0
81	1950–1980	сборка, герметизация, упаковка готовой продукции	**0,5**
82	1950–1980	измерение физических параметров деталей	0,3
83	1950–1980	подготовка литейной оснастки	0,3
84	1950–1980	получение литейных заготовок, прессование	0,3
85	1959 – н/в	дефектоскопия деталей	0,3
86	1950–1980	механическая обработка деталей	0,3
87	1959 – 1980	отливка заготовок	0,3
88	1959 – н/в	химия	**3,9**
89–90	1972 – н/в	химия	**3,9**
91	1972 – н/в	установка "Пакет"	0,3
92	1970 – н/в	производство металлического плутония	**0,5**

* – средние значения показателя транспортабельности, полученные путем анализа образцов воздуха в период с 1975 по 2002 гг.,

** – значения показателя транспортабельности согласно принятой классификации с учетом применяемой технологии.

3.4.2. Восстановление значений показателя транспортабельности в первые годы работы предприятия

Работники ПО "Маяк" – это первая когорта, которая дала информацию об отдаленных последствиях инкорпорации плутония для здоровья человека. Огромный объем данных аутопсийных исследований и измерений экскреции нуклида наряду с учетом физико-химических свойств аэрозолей дает возможность построения надежной модели дозиметрии плутония. Для расширения эпидемиологических когорт важно реконструировать дозы для работников первых лет работы предприятия (многие из которых уже умерли), не обследованных на содержание плутония, но чей профессиональный маршрут известен.

Поскольку экспериментально транспортабельность аэрозолей определялась только с 1974 года, то для уточнения ретроспективных доз внутреннего облучения от инкорпорированного плутония для лиц из персонала, начавших работу в период с 1948 до 1974 гг., и снижения неопределенностей дозовых оценок, необходимо было восстановить значения показателя транспортабельности (S) аэрозолей на рабочих местах, начиная с первых лет работы предприятия. Эту задачу решали, используя данные аутопсийных исследований распределения нуклида в организме работников ПО "Маяк", накопленные в ФИБ-1 за 30 лет, и сведения по истории развития технологии производства.

В рамках выполненных исследований была изучена когорта из 623 бывших работников радиохимического и плутониевого заводов предприятия с учетом информации об истории профессионального облучения, которая включала даты начала и окончания работы на производственном участке, переходы с одного участка на другой и специальность. В разработку включены 434 случая с радиохимического завода, 124 человека из химико-металлургического отделения и 65 человек из литейно-механического отделения завода по получению и переработке плутония.

В рамках биокинетической модели поведения плутония в дыхательном тракте, дозиметрические оценки сильно зависят от класса аэрозолей, физико-химические свойства которых в значительной степени определяют размер депо фиксации f_b и скорость медленной резорбции в кровь s_s [2].

Эмпирически установлена связь параметров адаптированной к данным о метаболизме соединений плутония в организме работников ПО "Маяк" модели легочного клиренса МКРЗ-66 с транспортабельностью аэрозолей (S):

$$f_b = a_1 \cdot S^{b1} \tag{3.6}$$

$$s_s = a_2 \cdot S^{b2} \tag{3.7}$$

Минимизацией функции: $\Sigma \ln^2(E/O)$,

где E – ожидаемая величина параметра f_b или s_s;

O – наблюдаемая величина параметра f_b или s_s;

получаем выражение для ожидаемых параметров модели:

$$f_r = S/100, \tag{3.8}$$

$$f_b = 0{,}0723 \cdot S^{-0.931}, \tag{3.9}$$

$$s_s = 5{,}63 \cdot 10^{-4} \cdot S_1^{1.142} \text{ сут}^{-1}, \tag{3.10}$$

Ожидаемые параметры по формулам (3.9) и (3.10) были найдены на основе метода подгонки "модельных" расчетных данных к фактически выявленному распределению с использованием известных параметров f_b и s_s для трех классов транспортабельности. Рассчитанные согласно алгоритму значения параметров представлены в таблице 3.11.

Таблица 3.11 – Сводная таблица ожидаемых и наблюдаемых параметров

S,%	f_b^*	f_b	s_s^*, сут$^{-1}$	s_s, сут$^{-1}$
0,3	0,2140	0,2211	$2{,}20 \cdot 10^{-4}$	$2{,}47 \cdot 10^{-4}$
1,0	0,0816	0,0766	$6{,}49 \cdot 10^{-4}$	$5{,}07 \cdot 10^{-4}$
3,0	0,0338	0,0350	$1{,}74 \cdot 10^{-3}$	$1{,}98 \cdot 10^{-3}$
* наблюдаемые параметры				

Поскольку использованы данные, полученные при посмертных исследованиях персонала, основная часть которого подвергалась ингаляционному воздействию грубо дисперсных аэрозолей до 70-х гг., наблюдаемые параметры взяты из одной из модификаций дозиметрической модели, разработанной в ЮУрИБФ, "Дозы-2000" [2] при АМАД = 15 мкм.

Имея расчетные значения содержания плутония в легких для любых значений длительности профессионального контакта и времени, прошедшего после прекращения ингаляционного поступления до смерти, при условии, что $R_{lung\ mod} = R_{lung\ aut}$, рассчитали "модельное" значение показателя транспортабельности S_{mod}, где:

$R_{lung\ mod}$ – расчетное относительное содержание нуклида в легких с учетом S_{mod}.

$R_{lung\ aut}$ – фактически выявленное посмертное относительное содержание нуклида в легких от общего количества в организме.

Очевидно, что относительное содержание плутония в легких $R_{lung\ aut}$ при указанном ритме поступления однозначно зависит от транспортабельности. Это означает, что для каждого результата посмертного определения $R_{lung\ aut}$ можно в рамках модели "Дозы – 2000" с учетом уравнений (3.9) и (3.10) рассчитать величину соответствующего "модельного" значения показателя транспортабельности S_{mod}.

Радиохимическое производство

Рассчитав S_{mod} для каждого аутопсийного случая (с радиохимического производства выбрано 434 случая) по приведенному выше алгоритму, анализируемый материал, хранящийся в электронной базе данных "Аутопсия", разделили на группы с учетом года начала контакта с плутонием.

В таблице 3.12 представлены, усредненные по группам расчетные значения S_{mod} и относительное содержание в легких $R_{lung\ aut}$ для каждой выбранной группы, динамика во времени значений S_{mod} для радиохимического производства представлена на рисунке 3.6.

Таблица 3.12 – Расчетное усредненное значение S_{mod} и относительное содержание плутония в легких по аутопсийным данным $R_{lung\ aut}$ в зависимости от года начала контакта с радионуклидом для радиохимического завода (среднее ± среднеквадратичное отклонение)

Начало контакта	1948–53	1954–59	1960–65	1966–71	1972–83
Число случаев	244	117	44	20	9
$R_{lung\ aut}$,%	3,68 ± 2,5	9,36 ± 6,95	13,91 ± 10,31	12,80 ± 6,87	13,30 ± 5,8
S_{mod},%	3,1 ± 1,8	1,9 ± 1,1	1,5 ± 0,9	2,1 ± 1,5	3,8 ± 1,9

Наиболее высокие уровни относительного содержания в дыхательном тракте наряду с наименьшим значением S_{mod} отмечены в группе персонала, начавшей работу в 1960–65 гг., т. е. в годы проведения существенных изменений в технологии. Вероятно, это является следствием того, что после ввода в эксплуатацию в 1959 году отделения по получению двуокиси плутония, в аэрозольной смеси появляются частицы трудно растворимого $^{239}PuO_2$. После этого относительно высокий уровень накопления нуклида в легких сохраняется до 80-гг. Это позволяет думать, что вклад трудно растворимого компонента играет существенную роль в указанное время.

Используя эмпирически полученные значения транспортабельности и рассчитанные на основе анализа аутопсийного материала, составили сводную таблицу (см. табл. 3.13) динамики S во времени, начиная с 1948 года, на технологических участках радиохимического производства, где по технологии персонал мог контактировать с различными соединениями плутония, с целью применения данной информации для уточнения индивидуальных дозовых оценок.

Таблица 3.13 – Динамика средневзвешенных значений показателя транспортабельности на радиохимическом производстве на основе анализа аутопсийных данных (1948–1983 гг.) и данных, полученных путем анализа фильтров (1984–2002 гг.)

	Аутопсийные данные					Образцы воздуха		
	1948–53	1954–59	1960–65	1966–71	1972–83	1984–86	1987–99	2001–2002
Аэрозоли нитрата плутония	3,2 ± 1,0	2,4 ± 0,8	2,4 ± 0,6	3,6 ± 1,5	4,8 ± 1,5	4,1 ± 0,2	5,5 ± 0,9	5,2 ± 0,6
Смешанные аэрозоли	2,2 ± 0,5	1,7 ± 0,2	1,8 ± 0,2	–	–	2,5 ± 0,4	–	–
Аэрозоли диоксида плутония	–	–	0,5 ± 0,3	–	–	0,7 ± 0,1	0,7 ± 0,2	0,9 ± 0,2
Среднее по производству	3,1 ± 1,8	1,9 ± 1,1	1,5 ± 0,8	2,1 ± 1,5	3,9 ± 1,9	2,5 ± 1,2	3,9 ± 2,1	3,1 ± 2,1

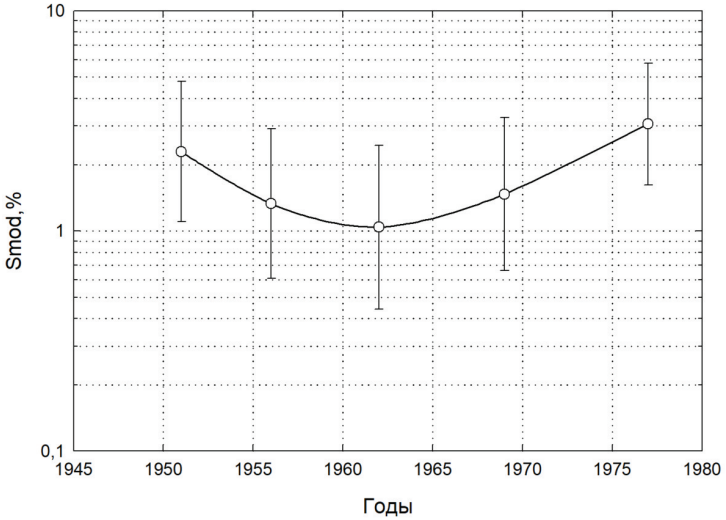


Рисунок 3.6 – Рассчитанное на основе аутопсийного материала значение S_{mod} для радиохимического производства, представленное во времени

Плутониевое производство

Экспериментальные исследования транспортабельности альфа-активных аэрозолей в рабочих помещениях литейно-механического и химико-металлургического отделений нового плутониевого производства стали проводиться с 1975 года. До указанного времени динамику транспортабельности восстановили ретроспективным методом сравнительного анализа посметрных данных о распределении нуклида в организме лиц из персонала со свойствами аэрозолей (табл. 3.14, 3.15, рис. 3.7, 3.8).

Из табл. 3.14 и рис.3.7 видно, что начиная с 1950 года, на литейно-механическом участке наблюдается увеличение S_{mod} наряду с уменьшением относительного содержания в легких $R_{lung\ aut}$ в зависимости от года начала контакта с плутонием. На данном участке эта зависимость является достоверной, в то время как на химико-металлургическом участке прослеживается лишь тренд к увеличению S_{mod} со временем (табл.3.15, рис.3.8). Вероятно, это объясняется тем, что на литейно-механическом участке по технологии образуются мелкодисперсные металлические частички, в то время как на химико-металлургическом присутствуют и частицы жидкой фазы. Кроме того, по данным Мелентьевой Р.В. в 70-х начале 80-х гг. при исследовании дисперсного состава аэрозолей из рабочих помещений плутониевого производства была выявлена тенденция к увеличению доли мелкодисперсной фракции наряду с уменьшением со временем среднего размера частиц (см. Главу 1).

Таблица 3.14 – Расчетное усредненное значение S_{mod}, относительное содержание плутония в легких $R_{lung\ aut}$ по аутопсийным данным в зависимости от года начала контакта с радионуклидом для литейно-механического участка плутониевого производства

Годы	1948-53	1954-59	1960-65	1966-71	1972-83
Кол-во случаев	19	27	11	4	4
$R_{lung\ aut}$	0,29±0,11	0,29±0,11	0,35±0,14	0,14±0,01	0,08±0,02
S_{mod}	0,4±0,2	0,6±0,5	0,4±0,2	0,9±0,4	2,3±0,6

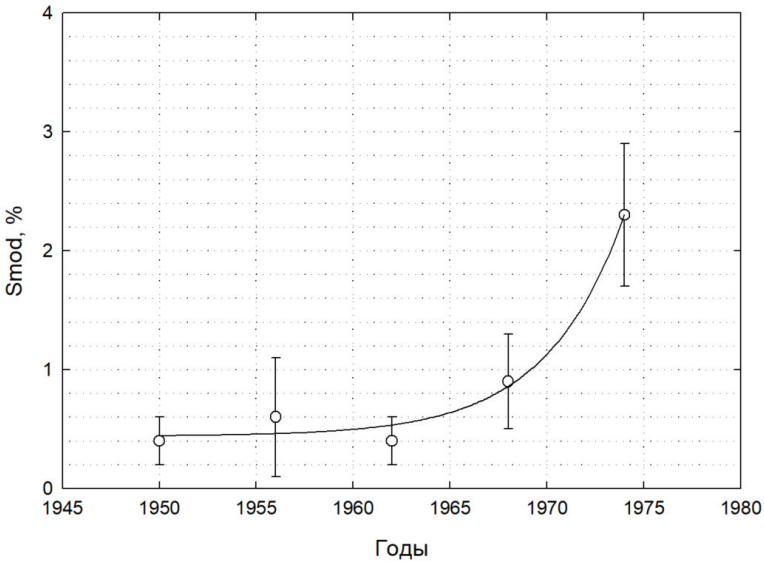


Рисунок 3.7 – Рассчитанное на основе аутопсийного материала значение Smod для литейно-механического участка плутониевого производства

Таблица 3.15 – Расчетное значение S_{mod}, относительное содержание плутония в легких $R_{lung\ aut}$ для химико-металлургического отделения плутониевого производства

Годы	1948–53	1954–59	1960–65	1966–71	1972–83
Кол-во случаев	51	43	17	10	3
$R_{lung\ aut}$	0,096 ± 0,057	0,115 ± 0,052	0,085 ± 0,045	0,084 ± 0,09	0,052 ± 0,043
S_{mod}	1,4 ± 0,9	1,2 ± 0,8	2,1 ± 1,4	2,0 ± 1,3	2,2 ± 1,2

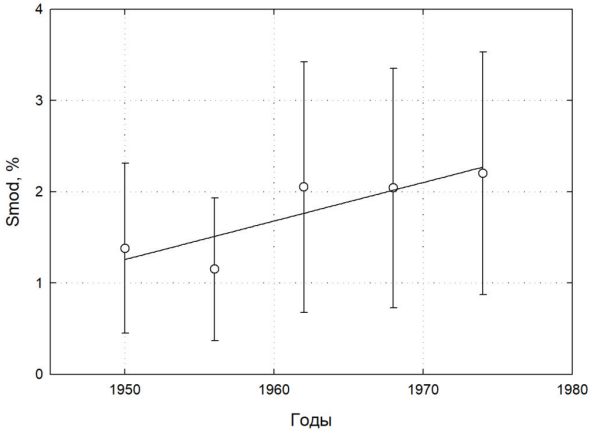


Рисунок 3.8 – Рассчитанное на основе аутопсийного материала значение Smod для химико-металлургического участка плутониевого производства

Можно предположить, что выявленное посмертно накопление плутония в легких экспоненциально уменьшается со временем вследствие уменьшения среднего размера частиц и, следовательно, увеличения доли частиц способных к мгновенной резорбции в кровь. А это в свою очередь соответствует отмеченной тенденции к увеличению показателя транспортабельности на изученных участках.

3.5. Изучение скорости быстрой абсорбции промышленных аэрозолей плутония *in vitro* в различных имитантах легочной жидкости

Модель дыхательного тракта МКРЗ-66 предлагает три класса растворимости ингалируемого аэрозоля F, M и S, и устанавливает для этих классов параметры абсорбции из дыхательной системы в кровь. Необходимым этапом корректной оценки доз внутреннего облучения является определение данных параметров в каждом отдельном случае, поскольку реальное поведение аэрозолей может сильно отличаться от модельного.

Как правило, влияние различных свойств аэрозолей на процессы абсорбции, распределения и экскреции радиоактивных веществ исследуются *in vivo* в экспериментах на лабораторных животных. Основанием для подобного подхода служит сходство механизмов транспорта у млекопитающих и, следовательно, схожая физиологическая реакция человеческого организма на попадание в легкие аэрозолей, содержащих ради-

онуклиды. Простота и дешевизна тестов *in vitro* позволяет рассматривать их как альтернативу сложным, дорогостоящим и трудоемким исследованиям *in vivo*. Но тогда возникает проблема выявления корреляции между результатами экспериментов, проводимых в условиях *in vitro* и *in vivo*. Изучению корреляционных соотношений растворимости различных соединений урана *in vitro* и *in vivo* посвящено достаточно большое количество зарубежных публикаций [47, 53, 58, 59], гораздо меньше таких публикаций посвящено соединениям плутония [8, 50].

Традиционно в биофизической лаборатории ЮУрИБФ растворимость промышленных соединений плутония с технологических участков ПО "Маяк" определялась методом диализа в физиологическом растворе Рингера и характеризовалась показателем транспортабельности, который является количественным критерием для классификации промышленных аэрозолей, как правило состоящих из смеси различных соединений плутония, когда классификация по МКРЗ малоэффективна.

В действующей модели ЮУрИБФ доля нуклида f_r, которая переходит в кровь с относительно большой скоростью в ранней фазе легочного клиренса после осаждения в дыхательном тракте, приравнена к показателю транспортабельности, измеренному в растворе Рингера ($f_r = a_1$).

Однако, существуют имитанты легочной жидкости, по химическому составу более приближенные к биологическим жидкостям организма, чем раствор Рингера. Согласно модели легочного клиренса частицы после отложения удаляются из легких с помощью "частичного" транспорта и растворения как во внеклеточной легочной жидкости, так и во внутриклеточной жидкости макрофагов. Для более реалистичного моделирования процесса абсорбции нуклида в кровь необходимо учитывать наличие макрофагального растворения.

Химические свойства межклеточной легочной жидкости и цитоплазмы макрофага сильно различаются и, следовательно, можно, ожидать, что аэрозольные частицы будут по-разному растворяться в этих различных биологических средах в зависимости от таких факторов как значение pH среды, количество комплексообразующего агента, окислительно-восстановительный потенциал и т. д.

В связи с вышесказанным, возникает вопрос: в какой степени раствор Рингера соответствует свойствам биологической жидкости и насколько согласуются значения быстро резорбируемой фракции f_r, используемые в действующей модели, с данными *in vivo* наблюдений?

В наших исследованиях динамика растворения оксида, нитрата плутония и аэрозолей смешанного состава изучалась в трех разных по составу растворителях: в 2-х имитантах легочной жидкости – SUF и раствор Рингера, и фаголизосомном имитанте PSF (составы имитантов см. табл. 3.4), в статической *in vitro* системе (рис. 3.5).

Для исследований брали по 6 равных частей с каждого фильтра, на которых отбирались образцы аэрозолей с участков, где персонал контактиовал с аэрозолями диоксида плутония, нитрата плутония и смешанного состава, и анализировали по 2 части фильтра в трех различных растворителях. Части фильтров помещали между двух полупроницаемых мембран, скрепляли их тефлоновыми кольцами и погружали в стаканы с тремя разными растворами, каждый объемом 80 мл. В качестве полупроницаемых мембран использовали мембранные фильтры Владипор МФА-МА №2 с диаметром пор 0,15 -0, 25 мкм.

In vitro тесты проводили при температуре 37 °С, pH=7,4 в имитанте ультрафильтрата сыворотки SUF и в растворе Рингера, и при pH=4,0 в фаголизосомном имитанте PSF. Во избежание испарения SUF и для поддержания постоянного значения pH, пробы с SUF хранились в газопроточном термостате, который обеспечивал постоянную циркуляцию 5% смеси CO_2 и сжатого воздуха. Смена всех растворов осуществлялась по следующей схеме: в первые сутки через час, 2 часа, 4 часа, 8 часов. Далее первые сутки, вторые сутки, 4 суток, 7 суток, 10 суток и затем еженедельно до 52 суток.

Методики *in vitro* тестов для SUF и PSF, были разработаны в Lovelace Inhalation Toxicology Research Institute (г. Альбукерке, США); метод диализа в растворе Рингера - в лаборатории внутренней дозиметрии ЮУрИБФ.

Содержание плутония в пробах диализата, мембран и фильтров определяли путем соосаждения его из азотнокислых растворов зольного остатка анализируемой пробы с фосфатом висмута и последующего измерения альфа-активности осадка, смешанного с порошкообразным сцинтиллятором. Результаты представляли в виде выраженной в процентах доли продиализированного плутония (содержание в диализате) от суммарного содержания в диализате и на фильтрах.

Результаты исследований динамики растворения исследуемых аэрозолей плутония в различных имитантах биологической жидкости представлены в таблицах 3.16–3.18 и на рисунках 3.9–3.11.

Таблица 3.16 – Параметры растворения аэрозолей диоксида плутония в трех растворителях

Растворитель	Фракция, способная к быстрому растворению a_1,%	Скорость убывания быстро растворимой фракции λ_1 , сут$^{-1}$	Фракция, подвергаемая медленному растворению a_2,%	Скорость убывания медленно растворимой фракции λ_2 , сут$^{-1}$
SUF	4,69	0,8940	95,20	0,0006
PSF	1,73	0,2377	97,82	0,0005
Раствор Рингера	0,34	2,1879	99,56	0,0003

Таблица 3.17 – Параметры растворения аэрозолей нитрата плутония в трех растворителях

Растворитель	Фракция, способная к быстрому растворению a_1,%	Скорость убывания быстро растворимой фракции λ_1 , сут$^{-1}$	Фракция, подвергаемая медленному растворению a_2,%	Скорость убывания медленно растворимой фракции λ_2 , сут$^{-1}$
SUF	21,55	0,7977	76,59	0,0038
PSF	7,37	3,1452	89,95	0,0036
Раствор Рингера	2,53	4,5900	97,35	0,0011

Таблица 3.18 – Параметры растворения аэрозолей смешанного состава в трех растворителях

Растворитель	Фракция, способная к быстрому растворению a_1,%	Скорость убывания быстро растворимой фракции λ_1 , сут$^{-1}$	Фракция, подвергаемая медленному растворению a_2,%	Скорость убывания медленно растворимой фракции λ_2 , сут$^{-1}$
SUF	15,86	0,2051	84,03	0,0014
PSF	5,65	1,5828	93,28	0,0013
Раствор Рингера	1,32	0,8556	98,36	0,0005

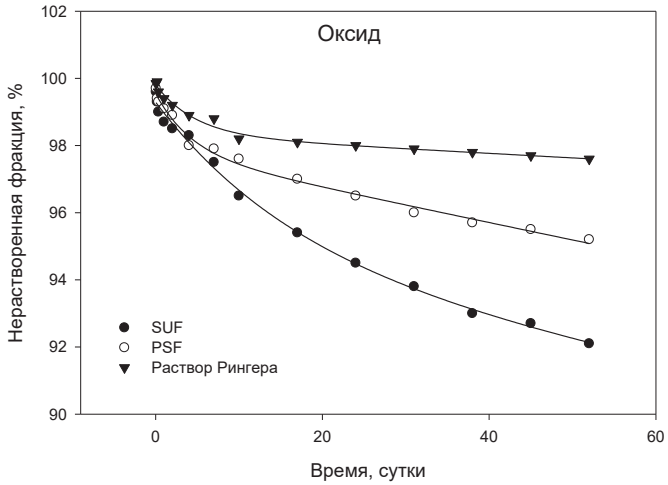


Рисунок 3.9 – Динамика растворения аэрозолей, содержащих оксид плутония в различных имитантах биологической жидкости

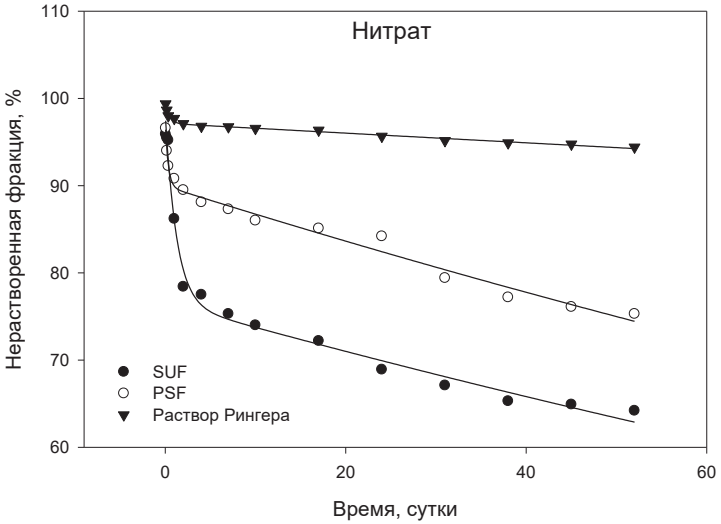


Рисунок 3.10 – Динамика растворения аэрозолей, содержащих нитрат плутония, в различных имитантах биологической жидкости

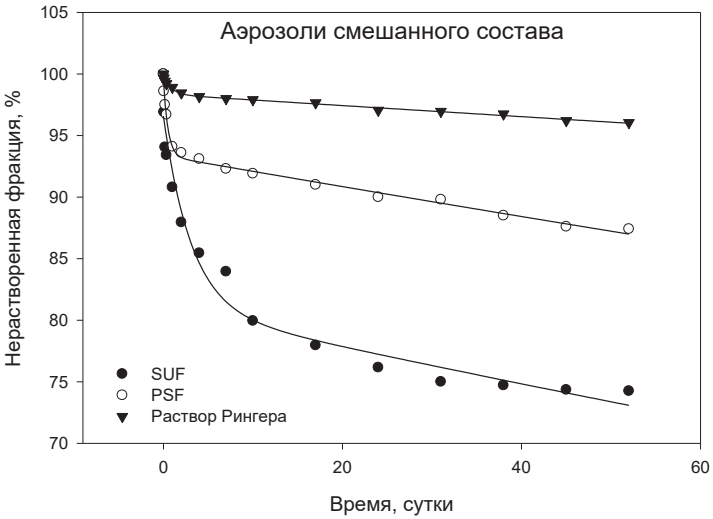


Рисунок 3.11 – Динамика растворения аэрозолей смешанного состава в различных имитантах биологической жидкости

Из таблиц 3.16–3.19 и рисунков 3.9–3.11 следует, что полученные параметры растворения согласуются со свойствами химических соединений, входящих в состав исследуемых промышленных аэрозолей. Причем скорость растворения в имитанте ультрафильтрата легочной сыворотки SUF выше для всех трех соединений. Тренды растворения изучаемых аэрозолей в имитантах биологических жидкостей с различной кислотностью соответствуют представлениям о поведении соединений плутония в условиях достаточно высокой (pH = 4,0) и низкой (pH = 7,4) концентрации водородных ионов. Полученные экспериментально значения параметров растворения соединений плутония в растворе Рингера близки к параметрам действующей модели ЮУрИБФ (рис. 3.12).

Согласно рекомендациям МКРЗ-66, в зависимости от типа химического соединения параметру f_r приписывают значения от 0,001 до 0,1 (Таблица 3.19). Однако, как уже подчеркивалось, во всех случаях, когда это возможно, рекомендуется пользоваться результатами прямых наблюдений.

Параметры растворения нитрата плутония в имитанте легочной жидкости SUF очень близки к данным, опубликованным в 2002 году Stradling, G.N., Etherington G. [46, 60]. В этих работах представлены результаты исследования параметров абсорбции в кровь нитрата плутония Pu-237, ингалированного двум мужчинам-добровольцам (см. таб. 3.20).

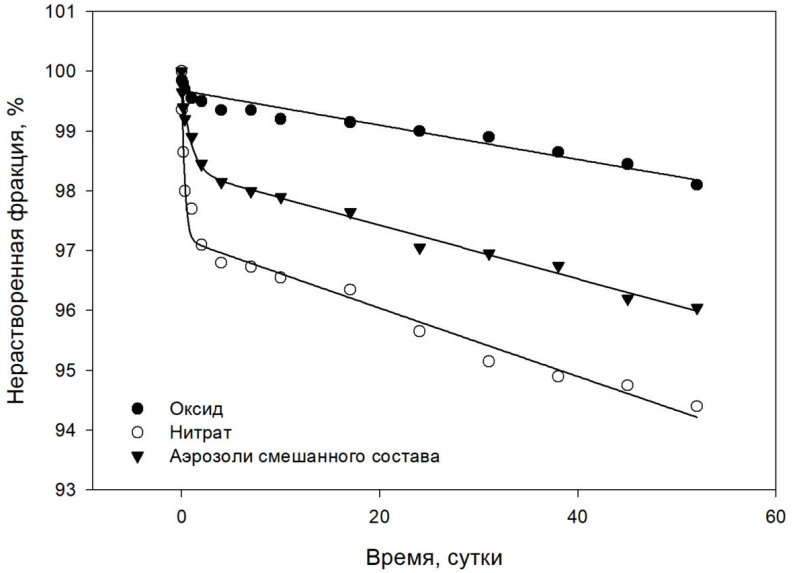


Рисунок 3.12 – Динамика растворения аэрозолей,
содержащих различные соединения плутония, в растворе Рингера

Таблица 3.19 – Численные значения параметров растворения аэрозолей оксида, нитрата плутония и смешенного состава согласно дозиметрическим моделям ЮУрИБФ [2] и МКРЗ-66 [11]

	Оксид ЮУрИБФ МКРЗ (класс S)		Нитрат ЮУрИБФ МКРЗ (класс M)		Аэрозоли смешанного состава ЮУрИБФ МКРЗ (класс M)	
Доля быстрого растворения, f_r	0,003	0,001	0,03	0,1	0,01	–
Скорость быстрого растворения, s_r, сут$^{-1}$	100	100	100	100	100	–
Скорость медленного растворения, s_s, сут$^{-1}$	0,00025	0,0001	0,002	0,005	0,051	–
Депо фиксации, f_b	0,22	0,0	0,035	0,0	0,077	–

В ряде работ Talbot et.al. [61, 62, 63] в экспериментах на животных было показано, что биокинетика Pu-237 соответствует долгоживущим изотопам плутония. Плутоний-237 распадается главным образом за счет захвата электронов с периодом полураспада 45 дней. Альфа-частицы выделяются только при 0,005% его распада. Так как этот нуклид может

быть получен с относительно небольшими количествами альфа-излучающих загрязняющих веществ, то ^{237}Pu может быть использован для исследований биокинетики плутония у человека [64]. Вследствие высокой удельной активности Pu-237, были некоторые сомнения в том, что его метаболизм будет таким же, как у альфа-излучающих изотопов плутония, обычно встречающихся в ядерной промышленности. Сравнительный анализ биокинетики чистого Pu-237 и Pu-237, содержащего значительные количества альфа-излучающего плутония, после введения крысам путем внутривенной инъекции в виде цитрата, показал, что распределение и выведение “чистого” и “нечистого” ^{237}Pu были сходными, и в хорошем согласии с результатами ранее опубликованных исследований с использованием цитрата ^{239}Pu и ^{241}Pu, что подтверждает возможность использования ^{237}Pu для изучения метаболизма Pu у человека.

Таблица 3.20 – Экспериментальные и модельные параметры абсорбции для нитрата плутония

	Дни	f_r	s_r (сут$^{-1}$)	s_s (сут$^{-1}$)
Волонтер 1	0 – 120	0,23	0,22	0,0032
Волонтер 2	0 – 120	0,21	0,40	0,0025
Крысы	0 – 84	0,09	20	0,0055
Модель МКРЗ-66 Тип М	–	0,1	100	0,0050
Модель ЮУрИБФ	–	0,03	100	0,0020

Эксперимент Stradling, G.N. и Etherington G. заключался в следующем. Двум здоровым мужчинам ингалировали аэрозоли нитрата ^{237}Pu/^{244}Pu с размером частиц 1,1 мкм. Задержку в легких и других органах измеряли с помощью установки СИЧ в течение 120 дней после ингаляции [46, 60]. Одновременно измеряли содержание плутония в образцах мочи, кала и крови.

В таблице 3.20 представлены экспериментально полученные значения параметров абсорбции f_r, s_s, s_r, для нитрата плутония при ингаляции 2-м волонтерам, эксперимента с крысами (Bailey et. al., 1999) [65], и значения по моделям МКРЗ-66 и ЮУрИБФ.

Сравнения скорости медленной абсорбции s_s показали неплохую сходимость для всех приведенных значений.

Значения параметров быстрой фазы абсорбции в эксперименте с волонтерами $f_r = 0,23$ и $f_r = 0,21$ совпали с параметрами растворения аэрозолей нитрата плутония в имитанте легочной жидкости SUF $a_1 = 21,55\%$.

Что касается модельных значений параметров быстрой фазы абсорбции, то f_r по модели МКРЗ-66 в 2 раза, а по модели ЮУрИБФ – в 7 раз меньше значений, полученных в эксперименте с волонтерами (см. табл.3.20). Возможно, это является следствием того, что не учтены мало изученные закономерности метаболизма радионуклида в ранней фазе легочного клиренса.

Значения параметра быстрорастворимой фракции a_1 в имитанте ультрафильтрата сыворотки SUF для нитрата, смеси и двуокиси равны соответственно значениям 21,55%, 15,86% и 4,69% и на порядок превышают значения этого параметра, полученные с применением стандартного метода диализа в растворе Рингера – 2,53%, 1,32%, 0,34%.

Значение параметра a_1 в имитанте SUF для аэрозолей нитрата плутония согласуется с результатами экспериментов *in vitro,* выполненных в ЮУрИБФ в 1972–1976 гг. методом ультрафильтрации в разбавленной сыворотке крови человека для стандартного раствора нитрата плутония и аэрозолей, отобранных с некоторых производственных участков радиохимического и плутониевого заводов (15–25%) [7], а также с результатами полученными в экспериментах *in vivo* на крысах с ингаляцией нитрата плутония (15–18%) [34]. Близость величин, полученных в разных исследованиях и разными методами, указывает на корректность установленного в данном исследовании значения параметра быстрой абсорбции из легких в кровь в ранней фазе легочного клиренса для нитрата плутония в имитанте сыворотки SUF.

Согласно модели МКРЗ-66, при $s_r = 100$ сут$^{-1}$ для соединений класса М, концентрация плутония в крови должна достичь максимального значения через несколько минут после ингаляции. Однако, по результатам того же эксперимента с волонтерами, максимальная концентрация плутония в крови была зарегистрирована только через 36 часов, показав, что реально s_r намного меньше рекомендуемого действующими моделями. Это говорит о том, что используемые в настоящее время параметры модели абсорбции плутония в кровь в ранней фазе обоснованы недостаточно и для корректной дозиметрии необходимы дальнейшие исследования в этом направлении.

В практических целях представляло интерес определить влияние полученных значений параметров абсорбции на оценку доз облучения.

На рис. 3.13–3.15 приведена динамика накопления в организме нитрата плутония и динамика накопления эквивалентных доз облучения легких при условии хронического ингаляционного поступления 1 Бк/сут аэрозолей нитрата и оксида плутония с АМАД = 1мкм за 50 лет, предсказанная по экспериментальным параметрам абсорбции, полученным в растворителях SUF, PSF, по модели МКРЗ (тип S, M) и по модели ЮУрИБФ.

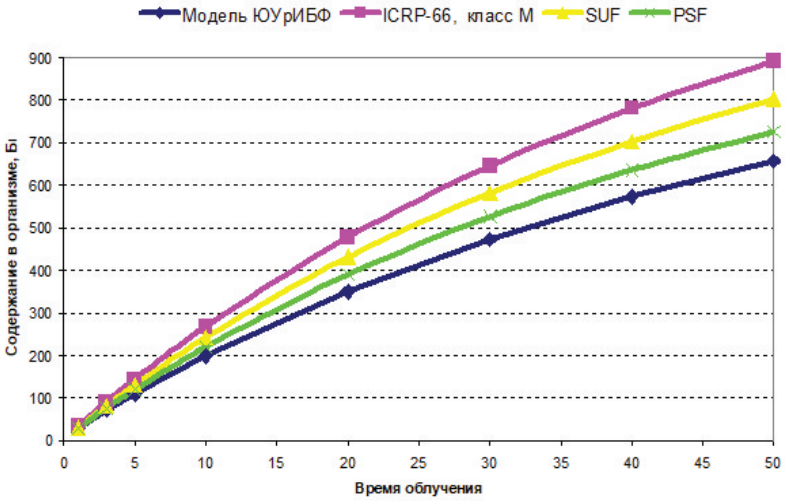


Рисунок 3.13 – Сравнение динамики накопления в организме нитрата плутония при хроническом поступлении 1 Бк/сут, АМАД = 1мкм по модельным параметрам абсорбции МКРЗ-66 (класс М), ЮУрИБФ, для имитанта ультрафильтрата сыворотки SUF и для фаголизосомного имитанта PSF

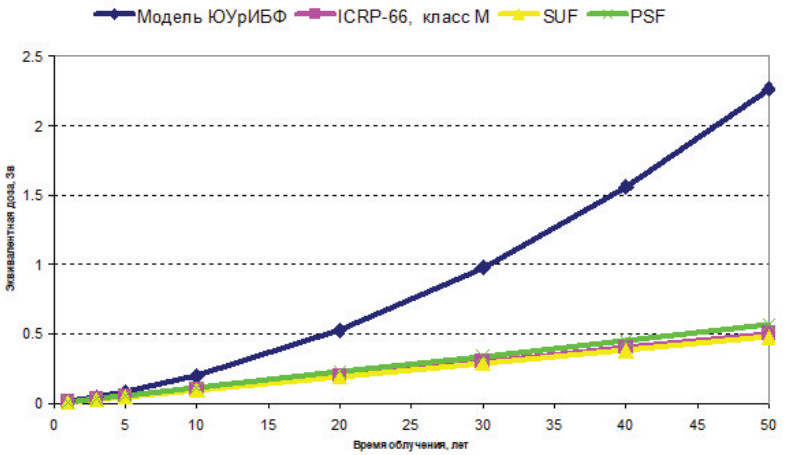


Рисунок 3.14 – Динамика накопления дозы в легких при условии хронического поступления 1 Бк/сут нитрата плутония с АМАД = 1мкм за 50 лет с использованием параметра абсорбции fr для растворителей SUF и PSF, по модели МКРЗ (класс М) и по модели ЮУрИБФ

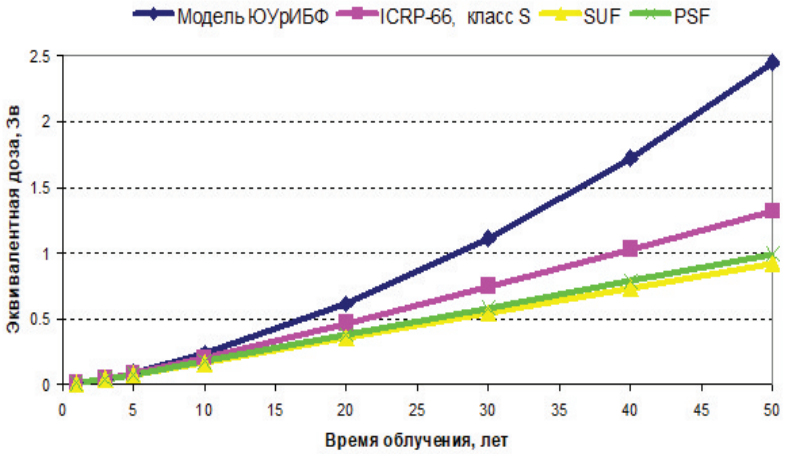


Рисунок 3.15 – Динамика накопления дозы в легком при условии хронического поступления 1 Бк/сут оксида плутония с АМАД = 1мкм за 50 лет с использованием параметра абсорбции fr для растворителей SUF и PSF, по модели МКРЗ (класс S) и по модели ЮУрИБФ

Согласно параметрам, полученным при растворении в имитантах SUF и PSF, нитрат плутония абсорбируется в кровь соответственно в 8,5 и в 3 раза быстрее, чем по модели ЮУрИБФ, и относится к соединениям класса М. Высокая доля f_r абсорбции в кровь в случае SUF и PSF и, следовательно, быстрый переход в системные органы в ранней фазе клиренса 21,5% от задержанной в легких активности, приводит к тому, что содержание плутония в организме, рассчитанное по модели ЮУрИБФ, на 10–30% ниже содержания, рассчитанного по другим моделям (рис.3.13), что приводит к неопределенностям оценок доз на органы.

Из рисунка 3.14 видно, что применение нового параметра быстрой абсорбции f_r в дозиметрической модели МКРЗ-66 для случая хронического поступления нитрата плутония приводит к уменьшению дозы на легкие в 4 раза по сравнению с моделью ЮУрИБФ.

В настоящее время *in vitro* исследования при прочих равных условиях являются единственно возможным подходом к получению информации о физико-химических свойствах ингалированного материала, которую иным способом зачастую получить просто невозможно. Следовательно, полученные результаты являются новой и полезной информацией о растворимости промышленных соединений плутония в различных имитантах биологической жидкости, причем особенно важно сравнение полученных значений с имеющимися *in vivo* данными и рекомендованными параметрами.

Что касается аэрозолей оксида плутония, то более высокая, чем ожидалось, скорость растворения *in vitro* в имитанте SUF (см. рис. 3.15), возможно, объясняется преобладанием на исследованных фильтрах аэрозольных частиц субмикронных размеров. Как известно, в экспериментальных исследованиях на животных установлен более высокий уровень всасывания в кровь мелкодисперсных частиц двуокиси плутония по сравнению с грубодисперсными [34]. Поскольку данные о дисперсности изучаемых аэрозолей отсутствуют, предположение требует более детальных исследований.

Таким образом, сравнительный анализ результатов выполненного исследования с опубликованными *in vivo* данными, полученными в эксперименте с добровольцами, показали, что параметры абсорбции нитрата плутония из респираторного тракта в кровь f_r, s_s, s_r, близки параметрам, полученным *in vitro* в имитанте ультрафильтрата сыворотки SUF.

Из вышесказанного следует, что при ингаляционном поступлении аэрозолей нитрата плутония в ранней фазе легочного клиренса в кровь переходит фракция нуклида в 8,5 раз большая, чем предсказывает модель ЮУрИБФ, и для количественной оценки параметра f_r при расчетах доз внутреннего облучения более обосновано использовать значения, полученные *in vitro* в растворителе SUF, максимально приближенном по своему химическому составу к физиологической жидкости.

Установленный факт позволяет применять полученные в исследовании значения параметров быстрой абсорбции для совершенствования биокинетических моделей поведения аэрозолей плутония в дыхательном тракте.

Заключение

По результатам анализа растворимости альфа-активных аэрозолей с участков радиохимического и плутониевого заводов в период с конца 70-х до начала 2000-х гг. методом диализа проведена систематизация производственных участков по транспортабельности с учетом их периода работы, характера технологического процесса и состава перерабатываемого продукта с целью методического обеспечения дозиметрического контроля внутреннего облучения персонала ПО "Маяк".

Расчетным методом на основе сравнительного анализа посмертных данных о распределении плутония в организме работников ПО "Маяк" со свойствами промышленных аэрозолей плутония восстановлены значения показателя транспортабельности для участков радиохимического и плутониевого производств на тот период, когда экспериментальные измерения показателя еще не проводились.

Динамика средневзвешенных значений показателя транспортабельности (S) на радиохимическом производстве, составленная на основе анализа аутопсийного материала и данных, полученных при анализе образцов воздуха, показала, что среднее значение S по производству колебалось около 3% за весь период эксплуатации предприятия. Небольшое снижение транспортабельности, наряду с увеличением уровня накопления нуклида в легких, наблюдалось в годы пуска отделения по получению двуокиси плутония, что говорит о существенной роли трудно растворимой фракции в указанный период.

Проведен сравнительный анализ кинетики растворения *in vitro* аэрозолей промышленных соединений плутония (оксид, нитрат и их смесь) с применением трех типов имитантов биологической жидкости: физиологический раствор Рингера, имитант ультрафильтрата сыворотки SUF, фаголизосомный имитант PSF. В результате получено, что величина растворимой фракции в SUF для аэрозолей нитрата плутония, равная 21,5%, в 7 раз превосходит значения параметра быстрой абсорбции в ранней фазе легочного клиренса f_r, принятые моделью ЮУрИБФ (3%), и в 2 раза МКРЗ-66 (10%), и совпадает с литературными данными *in vivo* наблюдений в экспериментах с привлечением добровольцев. Установленный факт позволяет применять полученное для аэрозолей нитрата плутония значение параметра f_r при совершенствовании биокинетических моделей поведения плутония в дыхательном тракте, используемых при расчете доз внутреннего облучения лиц из персонала.

Взаимосоответствие между кинетикой растворения оксида, нитрата плутония и аэрозолей смешанного состава в различных имитантах физиологической жидкости позволяет анализировать аутопсийные данные по распределению нуклида в организме лиц из персонала, классифицированные по транспортабельности в растворе Рингера, для ревизии и совершенствования действующих биокинетических моделей с учетом данных, полученных с использованием новых более физиологичных имитантов.

Список литературы к главе 3

1. Хохряков В.Ф. Обмен промышленных соединений плутония в организме человека. Моделирование транспорта и разработка косвенной дозиметрии. – Дис. докт. мед. наук. – М., 1984. – 322 с.

2. Хохряков В.Ф., Суслова К.Г., Востротин В.В., Романов С.А. Адаптация моделей легочного клиренса МКРЗ-66 к данным о кинетике обмена плутония у персонала "Маяка". – Мед. радиология и радиационная безопасность, 2001, Том 46, № 6, с. 76–83.

3. Khokhryakov V., Suslova K., Aladova E., Vasilenko E., Miller S., Slaughter D., Krahenbuhl M. Development of an Improved Dosimetry System for the Workers at the Mayak Production Association. – Health Phys., 2000, v.79, № 1, p. 72–76.

4. Самуйлова Э.В., Бычинский А.А., Лобанов Б.Г. Сравнительные данные о транспортабельности альфа-активных аэрозолей на различных участках радиохимического производства. Бюлл. радиац. мед. 1992, № 2, с. 12–15.

5. Хохряков В.Ф., Суслова К.Г., Цевелева И.Т., Аладова Е.Е. Объективный способ классификации альфа-активных аэрозолей для целей дозиметрии внутреннего облучения. – Мед. радиология и радиационная безопасность, 1998, № 4, с. 41–45.

6. Хохряков В.Ф., Суслова К.Г., Цевелева И.Т., Лызлов А.Ф. Транспортабельность альфа-активных аэрозолей радиохимического предприятия. – Бюл. радиац. мед. 1987, № 2, с. 98–102.

7. Любчанский Э.Р., Плотникова Л.А. и др. Ускорение выведения плутония из организма человека. ФИБ-1, 1976, инв.№ 1196.

8. Любчанский Э.Р., Плотникова Л.А. и др. К вопросу о растворимости промышленных соединений плутония-239 в имитанте легочной жидкости. ФИБ-1, 1974, инв. № 1016.

9. Любчанский Э.Р., Поплыко М.Г. Микролокализация плутония-239 в структурных элементах межальвеолярных перегородок после ингаляции различных его соединений. – Мед. радиология, 1979, № 9, с. 58–63.

10. Булдаков Л.А., Любчанский Э.Р., Москалев Ю.И., Нифатов А.П. Проблемы токсикологии плутония. – М.: Атомиздат, 1969. – 368 с.

11. International Commission on Radiological Protection. Human respiratory tract model for radiological protection. ICRP Publication 66. – Oxford: Pergamon Press, 1994. – 482 p.

12. Спурный К., Йех Ч., Седлачек Б., Шторх О. Аэрозоли. Пер. с чешского. – М.: Атомиздат, 1964. – 359 с.

13. Сохранич А.Л. Связь плутония-239 с некоторыми компонентами легочной и костной тканей и влияние на нее пентацина. Дисс. канд. биол. наук, М., 1985.

14. Сохранич А.Л. Локализация плутония в ядерной фракции клеток легочной ткани. Медицинская радиология, 1987, № 12, с. 51–53.

15. Fleishner, L.R., Raabe, O.G. Fragmentation of respirable PuO2 particles in water by alpha-decay – A mode of dissolution. – Health Phys., 1977, v.32, p. 253–257.

16. Bruno, J. A reinterpretation of the solubility product of solid uranium dioxide. – Acta Chem. Scand. A., 1989, v. 43, p. 99–100.

17. Ansoborlo, E., Chalabreysse, J., Henge-Napoli, M.H., Pujol, E. In vitro chemical and cellular tests applied to uranium trioxide with different hydration states. – Environ. Health. Persp., 1992, v. 97, p. 139–143.

18. Mercer, T.T. On the role of particle size in the dissolution of lung burdens. – Health Phys., 1967, v. 13, p. 1211–1221.

19. Morrow P.E., Gibb F.R., Beiter H.D. Inhalation studies of uranium trioxide. – Health Phys., 1972, v. 23, № 3, p. 273–280.

20. Kreyling W.G. Aerosol particles parameters maintaining lung clearance by intracellular dissolution and translocation. – J. Aerosol Sci., 1990, v. 21, p. 371–374.

21. Moss, O.R. Simulants of lung interstitial fluid. – Health Phys., 1979, v. 36, p. 447–448.

22. Potter, R.M., Mattson, S.M. Glass fiber dissolution in a physiological saline solution. – Glastech. Ber., 1991, v. 64, № 1, p. 16–28.

23. Low F.N., Daniels C.W. Electron microscopy of the rat lung. – Anat. Rec., 1952, v. 113, p. 437–443.

24. Ерохин В.В. Функциональная морфология легких. – М.: Медицина, 1987. – 270 с.

25. Чернух А.М., Александров П.Н., Алексеев О.В. Микроциркуляция. – М.: Медицина, 1975. – 455 с.

26. Clementi, F., Palade, G.E. Intestinal capillaries. Permiability to peroxidase and ferritin. – J. Cell. Biol., 1969, vol. 41, p. 33-38.

27. Sanders C. L. The distribution of inhaled $^{239}PuO_2$ particles within pulmonary macrophages. – Arch. Environ. Health, 1969, v.18, p. 904–912.

28. Любчанский Э.Р. Поведение ^{239}Pu в организме крыс после однократной ингаляции некоторых его химических соединений. – Радиобиология, 1967, том 7, выпуск 4, с. 541–547.

29. Stradling, G.N., Stather, J.W., Price, A. Et. al. Limits of intake and the interpretation of monitoring data for workers exposed to industrial uranium bearing dust. – Radiat. Prot. Dosim., 1989, v. 26, p. 83–87.

30. Eidson, A. F., Mewhinney, J.A. In vitro dissolution of respirable aerosols of industrial uranium and plutonium mixed oxide nuclear fuels. – Health Phys., 1983, v. 45, p. 1023–1037.

31. Smith, H., Stradling, G.N., Loveless, B.W. et. al. The in vivo solubility of plutonium-239 dioxide in the rat lung. – Health Phys., 1977, v. 33, p. 539–551.

32. Stradling, G.N., Loveless, B.W., Ham, G.J. et. al. The biological solubility in the rat of plutonium present in mixed plutonium-sodium aerosols. – Health Phys., 1978, v. 35, № 2, p. 229–235.

33. Lauweryns, J.M., Baert, J.H. Alveolar clearance and the role of the pulmonary lymphatics. – Am. Rev. Respir. Dis., 1977, № 115, p. 625–683.

34. Чудин В.А. Обмен в организме аэрозолей двуокиси плутония разной дисперсности при поступлении через органы дыхания. Дисс. канд. биол. наук, М., 1978.

35. Харунжин В.В. Двуокись плутония-239. Метаболизм, клиника и терапия при ингаляционном пути поступления. Дисс. доктора мед. наук. М., 1986, 396 с.

36. International Commission on Radiological Protection. The metabolism of plutonium and related elements. ICRP Publication 48. – Oxford: Pergamon Press, 1986.

37. Chazel, V., Houpert, P., Ansoborlo, E. Effect of U3O8 specific surface area on in vitro dissolution, biokinetics, and dose coefficients. – Radiat. Prot. Dosim., 1998, v.79, p. 39–42.

38. Bailey, M.R., Guilmette, R., Jarvis, N., Roy, M. Practical application of the new ICRP human respiratory tract model. – Radiat. Prot. Dosim., 1998, v.79, № 1–4, p. 17–22.

39. International Commission on Radiological Protection. Limits for intakes of radionuclides by workers. ICRP Publication 30. – Oxford: Pergamon Press, 1980.

40. Miglio, J.J., Maggenburg, B.A., Brooks, A.L. A rapid method for determining the relative solubility of plutonium aerosols. – Health Phys., 1977, v. 33, p. 449–457.

41. Kanapilly, G.M., Diel J.H. Ultrafine PuO2 generation, characterization and short-term inhalation study in the rat. – Health Phys., 1980, v. 39, p. 505–519.

42. Mewhinney, J.A., Eidson, A.F., Wong, V.A. Effect of wet and dry cycles on dissolution of relatively insoluble particles containing plutonium. – Health Phys., 1987, v. 53, p. 377–384.

43. Eidson, A., F. Comparison of physical chemical properties of powders and respirable aerosols of industrial mixed uranium and plutonium oxide fuels. – Health Phys., 1982, v. 42, p. 531–536.

44. Ansoborlo, E., Henge-Napoli, M.H., Chazel, V. et. al. Review and critical analysis of available in vitro dissolution tests. – Health Phys., 1999, v. 77, p. 638–645.

45. Matton, S., Bailly, I., Maissiot, P., Ansoborlo, E., Fritsch, P. Phosphate/UO2 interaction during in vitro dissolution of inhalable particles in a medium simulating the phagolysosomal compartment. – Radiat.Prot.Dosim., 1998, v.79, № 1–4, p. 49–51.

46. Stradling, G.N., Etherington G., Hodgson, A., Bailey M.R. et. al. Comparison between biokinetics of inhaled plutonium nitrate and gadolinium oxide in humans and animals. – Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 2002, v. 252, № 2, p. 315–325.

47. Ansoborlo, E., Guilmette, R., Hoover, M.D. et. al. Application of in vitro dissolution tests for different uranium compounds and comparison with in vivo data. – Radiat. Prot. Dosim., 1998, v. 79, p. 33–37.

48. Kanapilly, G.M., Goh, C. Some factors affecting the in vitro rates of dissolution of respirable particles of relatively low solubility. – Health Phys., 1973, v. 25, p. 225–237.

49. Duport, P., Robertson, R., Ho, K., Horvath, F. Flow-through dissolution of uranium-thorium ore dust, uranium concentrate, uranium dioxide, and thorium alloy in simulated lung fluid. – Radiat. Prot. Dosim., 1991, v. 38, p. 121–133.

50. Kanapilly, G.M., Raabe, O.G., Goh, C. et. al. Measurement of in vitro dissolution of aerosols particles for comparison to in vivo dissolution in the low respiratory tract after inhalation. – Health Phys., 1973, v. 24, p. 497–507.

51. Voisin, C., Aerts, C., Jakubzak, E., Tonnel, A. La culture cellulaire en phase gazeuse. Un nouveau modele d'etude in vitro des activites des macrophages alveolaires. – Bull. Eur. Physiopathol. Respir., 1976, v. 38, p. 347–348.

52. Henge-Napoli, M.H., Ansoborlo, E., Donnadieu-Claraz, M., et. al. Solubility and transferrability of several industrial forms of uranium oxides. – Radiat. Prot. Dosim., 1994, v. 53, p. 157–161.

53. Збарский Б.И., Иванов И.И., Мардашев С.Р. Биологическая химия. – М.: Медгиз, 1954. – 619 с.

54. Gamble J.L. Chemical anatomy, physiology and pathology of extracellular fluid. Boston: Harvard University Press; 1967.

55. Выявление, учет и медицинское наблюдение за носителями плутония-239 у человека и животных. Инструктивно-методические указания. ИМУ-88. Под ред. Э.Р. Любчанского и В.Ф. Хохрякова. – М., 1987. – 101 с.

56. Лызлов А.Ф., Мелентьева Р.В., Щербакова Л.М. Применение оптикорадиографического метода для исследования дисперсности промышленных альфа-активных аэрозолей. – Вопросы радиационной безопасности, 2001, № 3, с. 63–78.

57. Мелентьева Р.В., Третьяков Ф.Д., Лызлов А.Ф. и др. Исследование дисперсного состава промышленных аэрозолей в новом производстве химико-металлургической переработки плутония-239. – В сб.: Гигиена труда и окружающей среды в атомной промышленности. М., 1985, с. 132–139.

58. Andre S., Metivier, H., Auget, D. Assessment of uranium tetrafluoride dissolution in the lung by in vivo and in vitro methods. – Radiat. Prot. Dosim., 1989, v. 26, p. 75–81.

59. Griffith, W.C. Cuddihy, R.G., Boecker, B.B. et. al. Comparison of solubility of aerosols in lungs of laboratory animals (Abstract). – Health Phys., 1983, v. 45, p. 233.

60. Etherington, G., Shutt, A.L., Stradling, G.N. et. al. A study of the human biokinetics of inhaled plutonium nitrate. – Ann. Occup. Hyg., 2002, v. 46 (Supplement 1), p. 350–352.

61. Talbot, R.J., Knight, D.A., Morgan A. Biokinetics of 237Pu citrate and nitrate in the rat: implications for Pu studies in man. – Health Phys., 1990, v. 59, № 2, p. 183–187.

62. Talbot, R.J., Newton D., Dmitriev. Sex-related differences in the human metabolism of plutonium. – Radiat. Prot. Dosim., 1997, v. 71, № 2, p. 107–121.

63. Talbot, R.J., Newton D., Warner, A.J. Metabolism of injected plutonium in two healthy men. – Health Phys., 1993, v. 65, № 1, p. 41–46.

64. Newton, D., Dmitriev, S.N. Tracking the behaviour of plutonium in man.– Radionuclides and Heavy Metal in Environment, 2001, v. 5, p. 1–8.

65. Bailey, M.R., Guilmette, R., Jarvis, N., Roy, M. Practical application of the new ICRP human respiratory tract model. – Radiat. Prot. Dosim., 1998, v. 79, № 1 – 4, p. 17–22.

4. ИССЛЕДОВАНИЕ ПРОЦЕССОВ ОБРАЗОВАНИЯ НАНОМЕТРОВОЙ ФРАКЦИИ ПРОМЫШЛЕННЫХ АЛЬФА-ИЗЛУЧАЮЩИХ АЭРОЗОЛЕЙ

С. А. Сыпко, Г. Н. Бобов, В. В. Хохряков, В. Э. Введенский

Согласно рекомендациям рабочей группы МКРЗ 66 предлагается при использовании моделей дыхательного тракта характеризовать размеры вдыхаемых аэрозольных частиц аэродинамическим диаметром (АМАД), равным 5 мкм [1, 2]. Задержка альфа активных аэрозолей актинидов в организме увеличивается по мере уменьшения размеров частиц. По данным [2] снижение размеров аэрозолей плутония обоих классов транспортабельности (умеренно и трудно растворимых) от АМАД ≈ 5 мкм до АМАД ≈ 0,001 мкм увеличивает значение эффективной дозы внутреннего облучения в 3,5–5 раз. В этой же работе на основании анализа более 70 литературных источников по дисперсности аэрозолей на производствах разных типов показано, что на радиохимических и плутониевых заводах ядерного топливного цикла размеры аэрозольных частиц могут варьировать в широких пределах, характеризуемых рамками 0,3 < АМАД < 8 мкм. Обращает внимание производство ^{238}Pu, на участках которого (система боксов по переработке диоксида) выявлены аэрозоли с АМАД = 0,16 мкм при стандартном геометрическом отклонении σ = 2,8. Последнее свидетельствует о возможности существования на плутониевом производстве аэрозолей со значительным вкладом в ингалируемую альфа-активность частиц нанометровых размеров: 0,001–0,7 мкм [2], что указывает на актуальность исследований поведения этой фракции аэрозолей как для радиобиологии, так и для дозиметрии актинидов. Следовательно, возникает необходимость создания методологии проведения экспериментов, радикально отличающейся от тех приемов и способов, которые применялись при рутинном биофизическом исследовании по определению уровней накопления и доз облучения персонала радиохимической промышленности.

Важнейшими задачами, возникшими на данном этапе, являются разработка оригинальных приборов и методик по выявлению нанометрового компонента альфа активных аэрозолей, включающая в себя:

- отбор проб из воздуха с использованием диффузионной батареи;
- разработку теоретических основ и моделей межкаскадного переноса наночастиц в процессе их отбора, а также практических приемов снижения масштабов данного явления;

- разработку методики перенесения проб с сеток термодиффузионной батареи на поверхность трековых детекторов;
- исследования по разработке методов детектирования наночастиц актинидов;
- исследования физико-химических свойств промышленных альфа-излучающих наночастиц;
- исследование процессов, которые приводят к возникновению наночастиц.

4.1. Разработка метода выполнения детектирования промышленных альфа-излучающих наночастиц и измерения их размеров

Механизм действия диффузионных батарей основывается на том, что коэффициент диффузии броуновской частицы обратно пропорционален ее размеру. Если частица в процессе броуновского движения входит в соприкосновение со стенкой канала, по которому направляется аэрозоль, то она, как правило, задерживается на поверхности. Считается, что в поверхностном слое газа отсутствуют силы, способные вернуть частицу в поток. В результате, по мере продвижения аэрозоля вдоль канала аэрозольный поток воздуха обедняется аэрозольными частицами. Из уравнения Эйнштена-Смолуховсого [3] следует, что в процессе броуновского движения среднеквадратичное отклонение частицы пропорционально коэффициенту броуновской диффузии. Таким образом, при движении аэрозоля по каналу в первую очередь поток покидают частицы с самым маленьким размером. Для эффективной работы диффузионной батареи необходимо иметь такую конструкцию прибора, которая обеспечивает наибольшее отношение площади поверхности к объему.

Зависимость между размером частицы и коэффициентом диффузии (D) задается уравнением Эйнштейна [4–7]:

$$D = \frac{kTCu(d)}{3\pi\mu d} \tag{4.1}$$

где k – постоянная Больцмана, $1{,}38 \cdot 10^{-16}$ эрг·К$^{-1}$;

T – температура, К;

d – диаметр броуновской частицы, мкм;

μ – вязкость воздуха, равная $1{,}83 \cdot 10^{-4}$ г·см$^{-1}$·с$^{-1}$;

$Cu(d)$ – поправка Каннингхэма.

В случае, когда диаметр частицы очень мал и близок к средней длине свободного пробега молекул среды, Каннингем и Милликен предположили, что сила сопротивления движению частицы должна быть меньше, чем предсказываемая согласно закону Стокса. Различие в зависимости силы сопротивления от размера частицы соответствует различию

условий, в которых происходит движение частиц, различающихся по размерам. Для больших частиц основным источником сопротивления являются вязкость среды, тогда как для маленьких частиц или при очень низкой вязкости среды преобладающим механизмом сопротивления уже не может служить вязкость среды вследствие роли инерции молекул газа при столкновении их с частицами. Когда размеры частиц приближаются к молекулярным (нанометры), сила сопротивления среды становиться функцией сечения частицы в соответствии с моделью Ньютона для лобового сопротивления. Для учета этого эффекта вводится корректирующий коэффициент Каннингема. Поправка Каннингема используется, когда диаметр частицы меньше 1 мкм и рассчитывается в соответсвии с выражением:

$$Cu = 1 + \frac{\lambda}{d}\left(2{,}429 + 0{,}84\, exp\left(-0{,}43\frac{d}{\lambda}\right)\right), \tag{4.2}$$

где λ – средний свободный пробег молекул в воздухе, равный $6{,}53 \cdot 10^{-6}$ см при температуре 20° С.

Теория осаждения частиц при прохождении через фильтры была исследована и рассмотрена Yeh (1972) [4], Davies (1973) [5] и Kirsch and Stechkina (1978) [6]. В работе [6] разработана теория фильтрации, связывающая характеристики проницаемости диффузионной батареи с параметрами сетки и скоростью потока воздуха. Проницаемость экрана P описывается следующим полуэмпирическим уравнением:

$$P = \frac{c}{c_0} = \exp\left(-n\frac{4\alpha b_n}{\pi(1-\alpha)d_f}\varepsilon\right), \tag{4.3}$$

где c – счетная концентрация частиц на выходе из единичной ячейки диффузионной батареи;

c_0 – счетная концентрация частиц на входе в единичную ячейку диффузионной батареи;

n – число экранов в диффузионной батарее;

b_n – толщина экрана, мм;

d_f – диаметр проволоки экрана, мм;

α – доля твердого объема экрана;

ε – эффективность задержки частиц единичной ячейкой диффузионной батареи.

Доля твердого объема α экрана может быть подсчитана посредством измерения твердого и суммарного объемов экрана:

$$\alpha = \frac{объем\quad твердого\quad экрана}{суммарный\quad объем\quad экрана} = \frac{4m_n}{\pi d_n^2 b_n \rho_f} \tag{4.4}$$

где m_n – масса экрана, кг;

d_n – диаметр экрана, м;

ρ_f – плотность материала экрана, кг/м^3.

Эффективность задержки для единичной ячейки батареи районе максимального проскока может быть представлена как сумма эффективностей диффузии, ε_D, прямого касания, ε_{IN}, инерционного осаждения, ε_{IM}, и совместного влияния диффузии и касания, ε_{ID}:

$$\varepsilon = \varepsilon_D + \varepsilon_{IN} + \varepsilon_{IM} + \varepsilon_{ID} \tag{4.5}$$

В соответствии с теорией фильтрации, указанные эффективности могут быть рассчитаны следующим образом:

$$\varepsilon_D = 2{,}7Pe^{-2/3} \tag{4.6}$$

$$\varepsilon_{IN} = (2 \cdot k)^{-1} f(R) \tag{4.7}$$

$$\varepsilon_{ID} = 1{,}24(k \cdot Pe)^{-1/2} R^{2/3} \tag{4.8}$$

В приведенных выше формулах буквенными обозначениями заменены следующие выражения:

$$f(R) = (1+R)^{-1} - (1+R) + 2(1+R)\ln(1+R) \tag{4.9}$$

$$I = (29{,}6 - 28\alpha^{0{,}62})R^2 - 27{,}5R^{2{,}8} \tag{4.10}$$

$$R = \frac{d}{d_f} \tag{4.11}$$

$$k = -0{,}5\, ln(\tfrac{2\alpha}{\pi}) + \tfrac{2\alpha}{\pi} - 0{,}75 - \left(\tfrac{\alpha}{\pi}\right)^2 \tag{4.12}$$

$$Pe = \frac{d_f v_0}{D} \tag{4.13}$$

$$St = \frac{p_p d^2 v_0 Cu}{9\mu d_f} \tag{4.14}$$

где R – параметр захвата;

Pe – число Пекле;

ρ_f – число Стокса;

V_0 – линейная скорость прокачки, м/с;

ρ_p – плотность частиц, кг/м^3.

Число Пекле характеризует соотношение между диффузией и конвекцией. Если число Пекле мало, преобладает молекулярная диффузия. Если же оно велико, то преобладает конвективный перенос и вклад диффузии будет незначительным.

Экранные диффузионные батареи используются в диапазоне диаметров частиц, имеющих размеры от 0,5 до 300 нм.

Основными параметрами, влияющими на свойства экрана с точки зрения эффективности улавливания, являются диаметр проволоки и доля твердого объема, вычисляемая согласно уравнению (4.4) из известной массы экрана и плотности материала.

Расчет характеристик металлических сетчатых экранов проводили согласно теории, разработанной Ченгом и Йехом в 1980 году [7].

Зависимость проницаемости экрана диффузионной батареи от скорости прокачки для частиц различного размера приведена на рисунках 4.1–4.4.

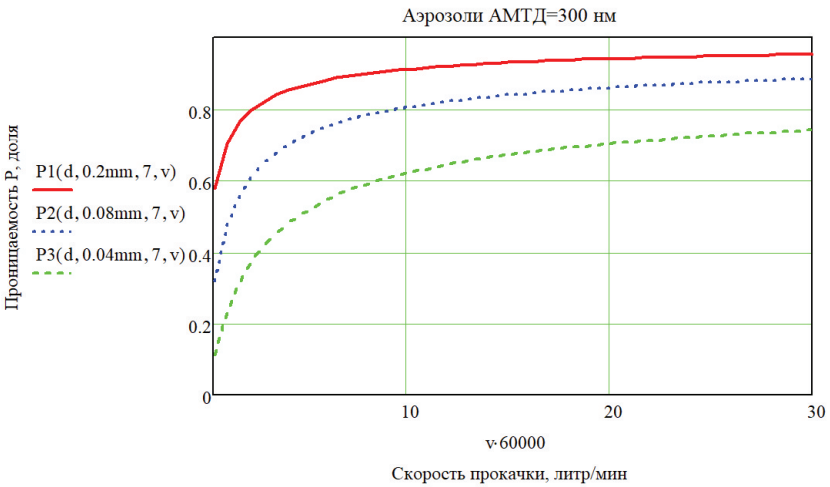


Рисунок 4.1 – Зависимость проницаемости экрана диффузионной батареи от скорости прокачки для частиц размером 300 нм

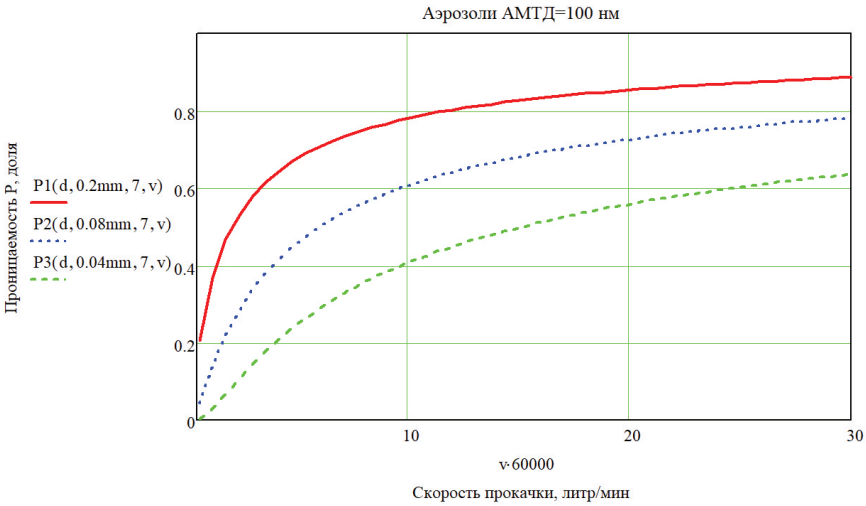


Рисунок 4.2 – Зависимость проницаемости экрана диффузионной батареи от скорости прокачки для частиц размером 100 нм

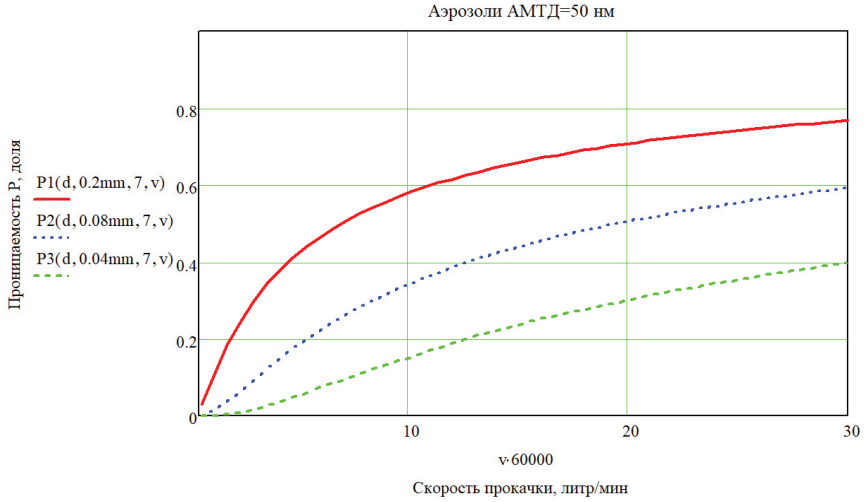


Рисунок 4.3 – Зависимость проницаемости экрана диффузионной батареи от скорости прокачки для частиц размером 50 нм

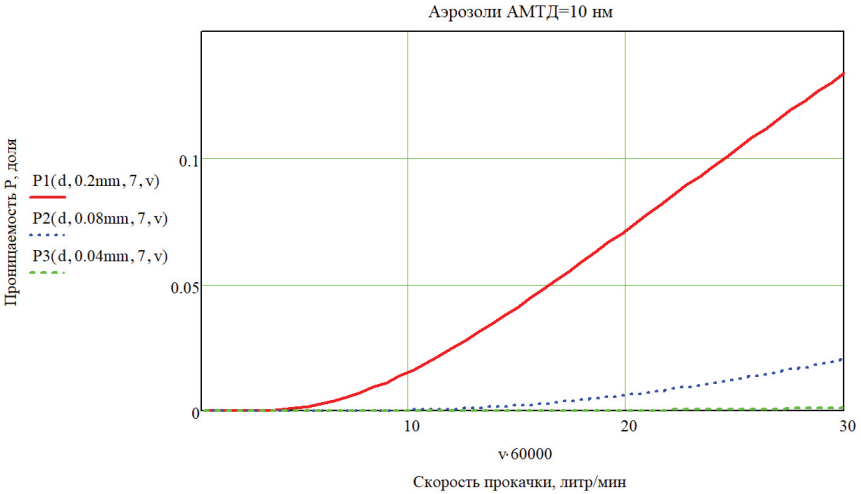


Рисунок 4.4 – Зависимость проницаемости экрана диффузионной батареи от скорости прокачки для частиц размером 10 нм

Анализ зависимости проницаемости экрана при одном и том же расходе воздуха показывает, что доля задержанных на одном экране частиц увеличивается по мере снижения размера. При этом увеличение скорости прокачки аэрозоля через экраны приводит к снижению доли частиц задержанных на нем. Таким образом, варьируя числом экранов диффузионной батареи, можно добиться сдвига кривой проницаемости по спектру размеров частиц, что позволяет вырезать аэрозоли определенного размера из всего спектра.

4.1.1. Описание диффузионной батареи, использовавшейся в экспериментальных исследованиях

Диффузионная батарея представляет собой конструкцию, состоящую из набора фигурных колец (восемь штук), одно из которых имеет крестообразный упор для предотвращения разрыва аэрозольного фильтра под напором отбираемого воздуха. В состав диффузионной батареи входят верхняя и нижняя крышки, имеющие входное и выходное отверстия для впуска и выпуска отбираемого воздуха, а также двух штуцеров, служащих для подсоединения батареи к пробоотборной системе и побудителю расхода воздуха. На кольцо с крестообразным упором в зависимости от целей эксперимента можно помещать аэрозольный фильтр. Штуцеры, фигурные кольца, а также верхняя и нижняя крышки выполнены из алюминиевого деформируемого сплава Д16 (ОСТ 1 90395-91).

Для исключения проникновения радиоактивных аэрозолей внешней среды во внутреннее пространство диффузионной батареи в ее конструкции предусмотрены уплотнительные кольца. Указанные кольца плотно надеваются на выступы фигурных колец. Кольца выполнены из резины МБС (ТУ 38105116-81).

Крестообразное кольцо с фильтром или без него устанавливается первым по ходу отбираемого воздуха. Между фигурными кольцами помещаются улавливающие экраны. Они представляют собой круглые металлические сетки, выполненные из нержавеющей стали марки 12Х18Н10Т (ТУ 14-4-507-99). Для отбора наночастиц различных размеров использовалось три типа сеток. Их характеристики приведены в таблице 4.1.

На последний каскад диффузионной батареи помещается аэрозольный фильтр типа АФА-РМП-20 или АФА-РСП-20 для улавливания частиц, преодолевших все сетчатые экраны.

Конструкция скрепляется с помощью восьми анкерных болтов диаметром 4 мм и длиной 250 мм, выполненных из сварочной проволоки 04Х19Н11М3. Входной и выходной штуцеры монтируются с помощью резьбового соединения. Соединительные места также снабжены резиновыми уплотнениями.

Таблица 4.1 – Параметры металлических сеток (экранов)

Характеристики сеток	Типы сеток		
	0,04х0,03	0,08х0,055	0,2х0,13
размер ячейки, мм	0,04	0,08	0,2
диаметр проволоки, мм	0,03	0,055	0,13
вес квадратного метра, г	165	287	657
размер ячейки, меш	362,9	188,1	77,0
плотность, г/мм^3	0,00795	0,00795	0,00795
толщина экрана, мм	0,068	0,124	0,293
вес сетки, г	0,466	0,811	1,86
диаметр сетки, мм	60	60	60
доля твердого объема	0,307	0,292	0,283

Схема конструкции и общий вид диффузионной батареи, использовавшейся для отбора проб промышленных альфа-излучающих наночастиц, приведены на рисунках 4.5 и 4.6.

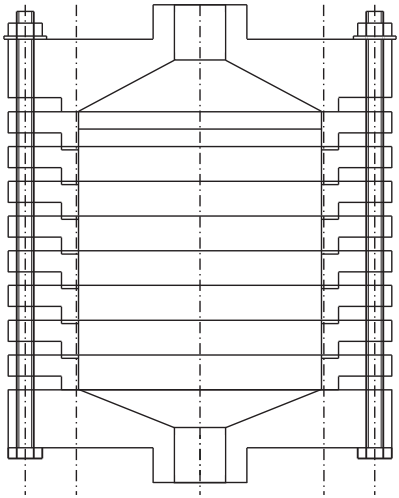


Рисунок 4.5 – Конструкция диффузионной батареи



Рисунок 4.6 – Внешний вид диффузионной батареи

4.2. Исследования по разработке метода переноса наночастиц с поверхности сеток диффузионной батареи на поверхность трекового детектора

Необходимость разработки метода переноса наночастиц с поверхности сеток диффузионной батареи является очевидной, так как необходимо подвергать нейтронному облучению образец наночастиц, находящихся на поверхности трекового детектора.

Можно сформулировать несколько возможных технических решений этого вопроса:

- приведение в непосредственное соприкосновение сетки диффузионной батареи с поверхностью трекового детектора и помещение полученной сборки в поле нейтронов;
- термическое отделение наночастиц от поверхности сетки диффузионной батареи и нанесение их на поверхность трекового детектора;
- электростатическое отделение наночастиц от поверхности сетки диффузионной батареи с последующим нанесением их на поверхность трекового детектора;
- использование рабочей жидкости.

Приведение в соприкосновение сетки с поверхностью трекового детектора является на первый взгляд самым простым решением. Однако изготовление образца сетки с диаметром равным или меньшим диаметру трекового детектора неминуемо приведет к потере наночастиц, в количестве, которое будет неизвестным. Поверхности трекового детектора достигнут осколки деления ядер только тех наночастиц, которые находятся непосредственно на поверхности детектора. Учитывая характерное расстояние пролета осколка в воздухе можно с уверенностью предполагать, что лишь крайне малое число осколков деления достигнут поверхности трекового детектора. Кроме того возникают практически непреодолимые проблемы с градуировкой такого метода детектирования наночастиц. В дополнение необходимо отметить, что в процессе облучения сборки «сетка – трековый детектор» в поле нейтронов будет происходить активация ядер материала сетки, что существенно затруднит последующий анализ.

При термическом отделении наночастиц от поверхности сетки диффузионной батареи необходимо нагреть сетку до температуры приблизительно 400–500° С, потоком чистого воздуха подхватить отделившиеся частицы и нанести их на поверхность трекового детектора. В данном случае возникают технические сложности при нанесении наночастиц на поверхность трекового детектора, так как механизм осаждения наночастиц на поверхность трекового детектора будет носить диффузионный характер. В результате эффективность нанесения наночастиц на поверхность детектора будет крайне низкой.

Электростатический метод отделения наночастиц с поверхности сетки может заключаться в сборке электрического конденсатора, одной из обкладок которого будет служить собственно сетка с находящимися на ее поверхности наночастицами. В электростатическом поле наночастицы могут отделяться от поверхности сети, после чего их очищенным потоком воздуха можно попытаться осадить на поверхность трекового детектора. В этом случае проблема осаждения отделившихся наночастиц будет практически той же, что и в случае термического отделения. В дополнение к этому дополнительную неопределенность вносит отсутствие информации об электрических свойствах промышленных альфа-излучающих наночастиц.

В ходе предыдущих исследований было выяснено два важных факта. Первый факт состоит в следующем. В «сухих» условиях, когда сетки диффузионной батареи доставлялись из места отбора проб в лабораторные помещения, наночастицы практически полностью переместились с поверхности сеток на поверхность защитных бумажных конвертов. Иначе говоря, сил межмолекулярного взаимодействия оказывается недостаточно для прочного удержания наночастиц на сетках диффузионной батареи в условиях, когда сетка взаимодействует с инородной поверхностью.

Второй факт обнаружился в процессе исследований транспортабельности наночастиц. В первой серии экспериментов, когда диализу подвергались наночастицы, находившиеся на защитных фильтрах упаковки для перемещения проб в лабораторные помещения. Было получено, что значение транспортабельности этих частиц (плутония связанного с наночастицами) варьирует в пределах от 23% до 36%. Во втором эксперименте исследовалась кинетика диализа плутония, связанного с наночастицами, находившимися на поверхности сеток диффузионной батареи. Было обнаружено, что значения транспортабельности варьировали в пределах от 0,9% до 2,7%. Это оказались практически на порядок величины меньшими, чем в первом случае.

В качестве рабочей гипотезы, объясняющей наблюдаемое различие в поведении частиц в «сухих» условиях и при погружении в раствор Рингера, было сформулировано следующее положение. В «сухих» условиях частицы удерживаются на поверхности сеток диффузионной батареи с помощью слабо действующих сил межмолекулярного взаимодействия, которые являются т.н. слабо действующими силами. При погружении сетки, содержащей на своей поверхности наночастицы диоксида плутония, на поверхности, как сетки, так и наночастиц возникает двойной электрический слой. Учитывая то, что сетка изготовлена из нержавеющей стали и является металлом, а наночастицы

предполагаются состоящими из окисла металла (диоксида плутония), полярность двойного электрического слоя, образующегося на поверхностях указанных материалов, должна быть противоположной. В результате удержание наночастиц на поверхности металлических сеток осуществляется действием электростатических сил, которые значительно прочнее удерживают частицы на поверхности, чем силы межмолекулярного взаимодействия.

Учитывая изложенное, выше было принято решение, что возможным способом переноса наночастиц с поверхности сеток диффузионной батареи может быть способ, использующий рабочую жидкость. Метод рабочей жидкости заключается в том, что на первом этапе наночастицы переносятся в рабочую жидкость. Жидкость, которая содержит в себе наночастицы, наносится на поверхность детектора. После испарения жидкости наночастицы остаются на поверхности трекового детектора. Такой образец можно подвергать облучению нейтронами. В качестве рабочих предполагалось выбирать такие жидкости, которые не приводят к существенным химическим изменениям свойств наночастиц. Кроме того, для сдвига потенциала двойного электрического слоя предполагалось на сетку подавать потенциал определенной полярности.

В ходе исследований, направленных на разработку эффективного и приемлемого по затратам способа переноса наночастиц с поверхности сеток диффузионной батареи на поверхность трековых детекторов проводились эксперименты по переносу наночастиц в промежуточную жидкость. Эксперименты предполагали использование воздействия разности потенциалов для ускорения процесса. В ходе исследований были проведены следующие эксперименты:

- перенос наночастиц в дистиллированную воду под действием разности потенциалов, подаваемой на сетку и электрод, расположенные в жидкости (разность потенциалов менялась в пределах от 1 В до 100 В);
- перенос наночастиц в спирт под действием разности потенциалов, подаваемой на сетку и электрод, расположенный в жидкости (разность потенциалов 100 В).

Для проведения исследований характера перехода наночастиц с поверхности сеток диффузионной батареи в воду было сконструировано и изготовлено устройства, которое состояло из двух медных колец, фторопластового кольца, необходимого для исключения короткого замыкания в электрической цепи, а также медного диска. К одному из колец, а также к медному диску были припаяны электроды, представляющие из себя медные кабели, изолированные от внешней среды фторопластовым изолятором. Медные кольца и

расположенная между ними сетка скреплялись специальным зажимом. Общий вид деталей представлен на рисунке 4.7.

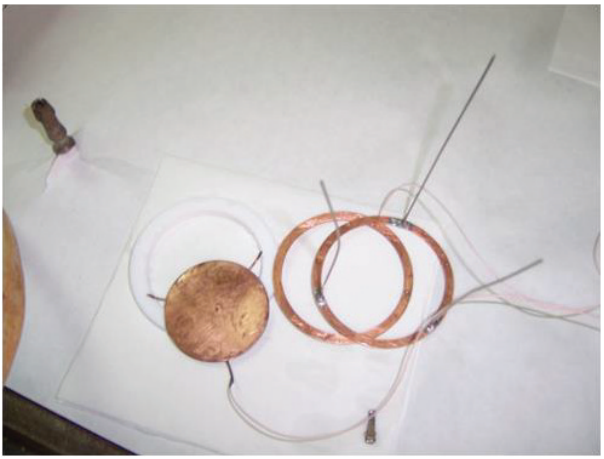


Рисунок 4.7 – Устройство для переноса наночастиц в разборе

Для проведения экспериментов была собрана следующая электрическая схема (рисунок 4.8). Для этого детали сборки, включая чистую (без наночастиц) металлическую сетку, были смонтированы, как показано на рисунке 4.8.

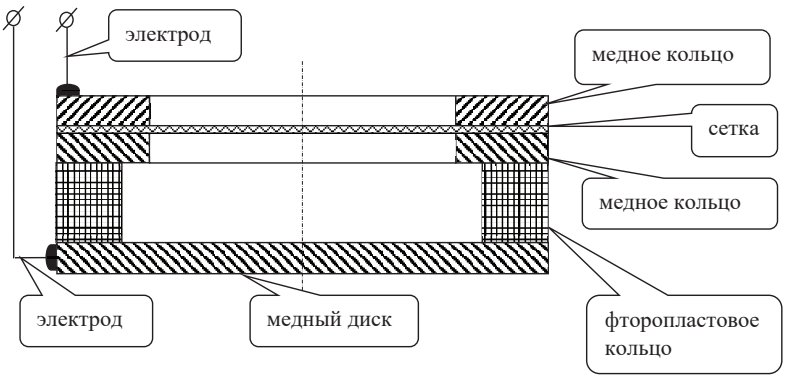


Рисунок 4.8 – Сборка металлической сетки и электродов для перемещения наночастиц в воду

Сборку помещали в стеклянный стакан объемом 400 мл (см. рисунок 4.9) и заливали рабочей жидкостью (дистиллированной водой или этиловым спиртом).



Рисунок 4.9 – Сборка металлической сетки и электродов
для перемещения наночастиц в воду

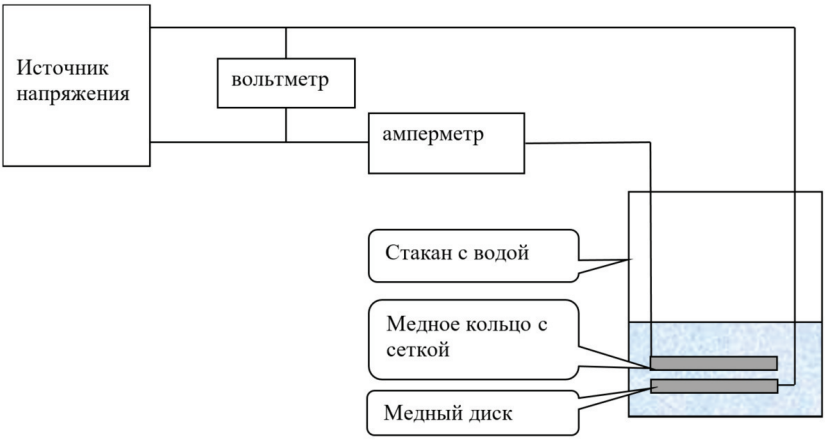


Рисунок 4.10 – Электрическая схема для проведения эксперимента

В ходе разработки метода переноса наночастиц с поверхности сетки диффузионной батареи на поверхность трекового детектора было проделано 14 различных экспериментов по переносу наночастиц с поверхности сеток в рабочую жидкость.

Методика первых трех экспериментов, в которых в качестве рабочей жидкости использовалась дистиллированная вода, заключалась в следующем. Сборку, состоящую из сетки, закрепленной между двух медных колец, фторопластового изолирующего кольца и медного диска помещали в стакан объемом 400 мл. Затем аккуратно с помощью стеклянной палочки конструкция заливалась дистиллированной водой. Объем воды составлял 100 мл. На первом шаге эксперимента разность потенциалов на сборку не подавалась. Сборка выдерживалась в воде в течение 5 мин. После этого она извлекалась из стакана с водой и помещалась каждый раз на чистую фильтровальную бумагу. На последующих стадиях эксперимента ту же самую сборку помечали в новый чистый стакан и так же заливали дистиллированной водой. Однако в отличие от первого шага на сетку подавали положительный потенциал, а на медный диск – отрицательный. Время выдержки сборки в стакане составляло 5 мин. Затем процедура повторялась. При этом на каждом новом шаге эксперимента разность потенциалов, подаваемых на сетку, увеличивали в следующей последовательности: 1; 2; 5; 10; 20; 50 и 100 В.

В последующих экспериментах переход наночастиц в воду в отсутствие разности потенциалов не определялся. Проводили изменение полярности разности потенциалов, подаваемых на электроды системы (сетку и медный диск). Продолжительность экспонирования также составляло 5 мин. Разность потенциалов менялась в последовательности, приведенной выше.

Активность суммы ^{241}Am и альфа-излучающих изотопов плутония измеряли альфа-радиометрическим методом, который описан выше. При этом каждая сетка диффузионной батареи, на которой осталось определенное количество радиоактивных нуклидов, подвергалась двукратному кипячению в азотной кислоте в течение 20 мин каждый раз. Каждый полученный азотнокислый раствор подвергался анализу раздельно.

Результаты измерений альфа-активности актинидов в полученных субстратах приведены в таблице 4.2, графическая иллюстрация зависимости активности наночастиц, перешедших в дистиллированную воду от подаваемой разности потенциалов приведена на рисунке 4.11.

Анализ данных, приведенных в таблице 4.2, позволяет сказать следующее. В первом эксперименте, при подаче положительного потенциала на сетку, в дистиллированную воду за время всего эксперимента перешел 41% суммарной активности, содержащейся на поверхности сетки. 59% активности было обнаружено в смывах (азотнокислых растворах,

полученных при кипячении сеток). При этом в первом смыве содержалась практически вся активность, оставшаяся на сетке после эксперимента.

Во втором эксперименте, когда на сетку подавался отрицательный потенциал, в дистиллированную воду за время всего эксперимента перешло только 7% активности, в то время как на сетке осталось 93% активности.

Таблица 4.2 – Активность нуклидов в пробах воды и на сетках диффузионной батареи (сетки DI2PR7, DI2PR6 и DB_9S2)

Разность потенциалов, подаваемая на электроды (сетка – медный диск), В		Полярность потенциала, подаваемого на сетку		
		+	–	+
		Активность субстрата, Бк		
0	Дистиллированная вода (100 мл)	4,50E-03	*)	*)
1		1,58E-02	3,67E-03	8.33E-04
2		1,02E-02	2,33E-03	1.29E+00
5		7,08E-02	3,82E-02	1.00E-03
10		1,98E-02	2,67E-03	1.00E-03
20		9,33E-03	5,67E-03	**)
50		5,63E-02	1,15E-02	6.67E-04
100		6,50E-03	9,33E-03	1.00E-03
Первый смыв с сетки		2.69E-01	9,60E-01	1,82E-01
Второй смыв с сетки		9.00E-03	1,23E-02	8,33E-04
Суммарная активность		4.71E-01	1,05E+00	1,48E+00
Активность в воде		1.93E-01	7,33E-02	1,30E+00
Активность на сетке		2.78E-01	9,72E-01	1,83E-01
Доля активности в воде,%		41.0	7,0	87,7
Доля активности на сетке,%		59.0	93,0	12,3

Примечание: *) измерения не проводились; **) ниже НПДИ МИ

В третьем эксперименте, когда на сетку также подавался положительный потенциал, в дистиллированную воду перешло 87,7% активности, первоначально содержавшейся на сетке. После проведения эксперимента на сетке осталось всего 12,3% начального значения активности. Однако детальный анализ ряда измерений активности наночастиц в порциях дистиллированной воды показывает, что во второй порции была обнаружена чрезвычайно высокая активность нуклидов, составившая ≈ 1,3 Бк в 100 мл воды. Этот артефакт не позволяет результаты третьего эксперимента использовать в общем анализе характера перехода наночастиц с поверхности сеток в воду.

Графическая иллюстрация зависимости перехода частиц с поверхности сеток в воду (рисунок 4.11) также свидетельствует о том, что при подаче положительного потенциала на сетку в дистиллированную воду переходит существенно большее количество наночастиц, чем в случае подачи на сетку отрицательного потенциала.

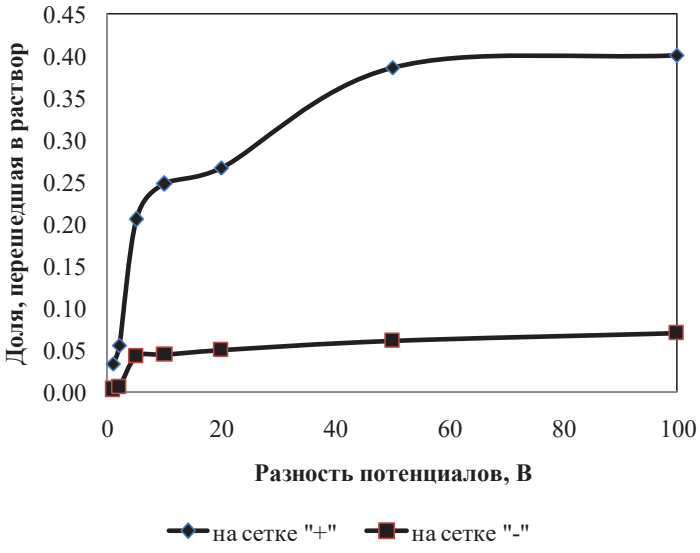


Рисунок 4.11 – Переход наночастиц в дистиллированную воду под действием разности потенциалов

Методика следующей серии экспериментов по переносу наночастиц с поверхности сеток диффузионной батареи заключалась в следующем. Описанную выше сборку, состоящую из сетки с отобранными наночастицами, закрепленную между двумя медными кольцами, изолирующее кольцо из фторопласта и медный диск помещали на дно стеклянного стакана объемом 400 мл. После чего аккуратно по стеклянной палочке сборку заливали рабочей жидкостью. Затем на электроды подавалась разность потенциалов, равная 100 В. Сборка выдерживалась в таком состоянии в течение 5 мин. После этого она извлекалась из стакана с жидкостью. Альфа-радиометрическому анализу подвергались рабочая жидкость, смывы с сеток и в отдельных случаях смывы с остальных элементов сборки, а именно: медные кольца и диск (электроды). В этих случаях значение измеренной активности смывов с электродов приплюсовывались к активности, обнаруженной в смывах с поверхности сеток. Затем собиралась новая сборка. При этом сетка заменялась на новую. Процедура

повторялась, стой лишь разницей, что производилась замена полярности подаваемой на электроды разности потенциалов.

Результаты первых двух экспериментов, когда в качестве рабочей жидкости использовалась дистиллированная вода, приведены в таблице 4.3. Из таблицы 4.3 следует, что при подаче на сетку отрицательного потенциала в воде было обнаружено лишь 1,2% суммарной активности, содержавшейся на сетке. В смывах с поверхности сеток было обнаружено 98,6% суммарной активности. Во втором эксперименте на сетку подавали положительный потенциал. В результате в дистиллированной воде обнаружили 67,2% активности наночастиц, находившихся на сетке. В смывах с поверхности сеток было обнаружено 32,8% суммарной активности.

Таблица 4.3 – Активность нуклидов в пробах воды и на сетках диффузионной батареи (второй эксперимент, рабочая жидкость – вода)

Наименование показателя	Активность, Бк	
	На сетке «–»	На сетке «+»
№ сетки	DI2PR3	DB8_1S2
Дистиллированная вода	1,5E-03	6,2E-02
Смыв с сетки	1,0E-01	3,0E-02
Сумма воды и смыва	1,1E-01	9,3E-02
Доля, перешедшая в воду,%	1,4	67,2
Доля, оставшаяся на сетке,%	98,6	32,8

В следующих шести экспериментах в качестве рабочей жидкости использовали этиловый спирт. В остальном процедура ничем не отличалась от процедуры, описанной для предыдущего опыта. Результаты измерений активности наночастиц, перешедших в рабочую жидкость и оставшихся на поверхности сеток, приведены в таблице 4.4.

Из таблицы 4.4 следует, что при подаче отрицательного потенциала на сетку в этиловом спирте обнаруживались низкие значения активности, которые менялись в пределах от 0,1% до 2,4% от суммарной активности наночастиц первоначально присутствовавших на поверхности сеток. В то же время на поверхности сеток оставалось от 97,6% до 99,9% от суммарной активности. Активность кислотных смывов с поверхности элементов сборки, как правило, составляли незначительную долю от активности смывов с поверхности сеток.

Таблица 4.4 – Активность нуклидов в пробах спирта и на сетках диффузионной батареи

Показатель	Активность, Бк	
	На сетке «–»	На сетке «+»
№ сетки	DB9_2S2	DB8_1S3
Этиловый спирт	4,7E-02	1,6E-02
Смыв с сетки	1,9E+00	2,4E-02
Сумма спирта и смыва	2,0E+00	4,0E-02
Доля, перешедшая в спирт,%	2,4	40,5
Доля, оставшаяся на сетке,%	97,6	59,5
№ сетки	DB6_3S2	DB6_3S3
Этиловый спирт	5,3E-03	9,4E-01
Смыв с сетки *	7,7E-01	4,4E-01
Сумма спирта и смыва	7,8E-01	1,4E+00
Доля, перешедшая в спирт,%	0,7	68,3
Доля, оставшаяся на сетке,%	99,3	31,7
№ сетки	DI3PR1	DI2PR1
Этиловый спирт	7,3E-03	8,7E-02
Смыв с сетки *	5,1E+00	4,3E-01
Сумма спирта и смыва	5,1E+00	5,2E-01
Доля, перешедшая в спирт,%	0,1	16,7
Доля, оставшаяся на сетке,%	99,9	83,3

Примечание: *) суммарная активность смывов с сеток и электродов.

По результатам первых одиннадцати экспериментов были сделаны предварительные выводы. Они заключаются в следующем.

При подаче положительного потенциала на сетку в рабочую жидкость переходит (55 ± 13)% в случае воды и (59 ± 26)% в случае спирта от суммарной активности наночастиц, находившихся на поверхности сеток. На сетках оставалось (45 ± 13)% и (41 ± 26)% для случаев дистиллированной воды и этилового спирта соответственно. То есть, как в случае воды, так и в случае спирта при подаче положительного потенциала на сетку в течение 5 минут в рабочую жидкость, будь то дистиллированная вода или этиловый спирт, переходит около половины активности частиц, первоначально находившихся на поверхности сеток. В ходе экспериментов с подачей отрицательного потенциала на сетку с наночастицами в рабочую жидкость переходит чрезвычайно малое количество радиоактивного вещества, первоначально присутствовавшего на поверхности

сеток в виде наночастиц (от 0,1% – спирт до 7% – вода). Исключение составил эксперимент с сеткой DB9_2S2, в ходе которого в рабочей жидкости было обнаружено 31,7% от суммарной активности.

Необходимо отметить, что применение описанной выше процедуры не позволило полностью перевести наночастиц с поверхности сеток диффузионной батареи в рабочую жидкость. Даже при подаче положительного потенциала на сетках оставалось от 16% до 68% суммарной активности, первоначально содержавшейся на их поверхности. Как было показано выше, в ходе экспериментов с подачей положительного потенциала на сетку за 5 мин выдержки поверхность сеток покидает около половинных активности частиц, присутствующих на ней. Учитывая полученный результат, в дальнейшем необходимо провести дополнительные исследования по повышению эффективности переноса наночастиц в рабочую жидкость, увеличив время выдержки по сравнению с той, которая использовалась в настоящем исследовании.

Здесь уместно сделать несколько замечаний. В ходе исследований не было возможности использовать сетки и находящиеся на их поверхности наночастицы с абсолютно одинаковыми свойствами. Распределение счетного количества наночастиц было неизвестным и очевидно менялось от сетки к сетке. Таким образом говорить об идентичности условий проведенных экспериментов не представляется возможным.

Дополнительным важным фактором, который мог существенно исказить картину переноса наночастиц в рабочую жидкость, является возможность присутствия на поверхности сеток частиц микронного размера. Под воздействием условий окружающей среды, создаваемых в эксперименте, эти частицы могут, как покидать поверхность сетки, так и оставаться на ней. Это способно внести существенные изменения в результаты измерений, так как микронная альфа-излучающая частица по массе, а значит, и по активности на несколько порядков величины превышает наночастицу. Этот аспект также требует в дальнейшем изучения и учета при определении параметров распределения наночастиц по размерам.

В качестве рабочей жидкости был выбран этиловый спирт, скорость испарения которого на много выше скорости испарения воды, что снижает вероятность попадания на поверхность трекового детектора инородных частиц делящихся материалов из окружающей среды.

На основе полученной общей закономерности переноса наночастиц с поверхности сеток диффузионной батареи в рабочую жидкость была предложена следующая схема переноса наночастиц на поверхность трековых детекторов:

Собирается сборка, состоящая из сетки диффузионной батареи, содержащей наночастицы, закрепленной между двумя медными кольцами, а также медного диска и помещается в стакан объемом 400 мл.

- Полученную конструкцию аккуратно по стеклянной палочке заливают 100 мл этилового спирта.
- На электроды подают разность потенциалов, равную 100 В. Положительный потенциал подают на сетку.
- Сборку под напряжением выдерживают в течение 5 мин.
- Трековый детектор, представляющий собой особо чистое кварцевое стекло помещают на специально нагреваемый стол
- Аликвоту спирта, содержащего наночастицы, наносят на нагретую для быстрого испарения поверхность трекового детектора.

Описанная процедура была реализована в ходе нанесения на трековые детекторы перенесенных в спирт наночастиц, первоначально находившихся на поверхности трех сеток диффузионной батареи (DB4_2S4, DB4_2S5, DB4_2S6). Указанные сетки были получены при проведении отбора проб наночастиц. Это – четвертая, пятая и шестая сетки по ходу движения воздуха в диффузионной батарее.

После нанесения проб наночастиц на трековые детекторы, полученные в ходе экспериментов субстраты подверглись альфа-радиометрическому анализу для определения активности наночастиц, перешедших в спирт, оставшихся на поверхности сеток и электродов. Результаты измерений приведены в таблице 4.5.

Анализ данных, приведенных в таблице 4.5, показывает, что в первом эксперименте в спирт переместилось 18,2% суммарной активности наночастиц, присутствовавших на поверхности сетки, во втором – 72,8%, а в третьем – только 2,9%. Результаты, полученные в первом эксперименте и особенно во втором противоречат общей закономерности переноса, обнаруженной в предыдущих одиннадцати экспериментах. Это обстоятельство еще раз подтверждает необходимость углубленных исследований, направленных на совершенствование метода переноса наночастиц с поверхности сеток диффузионной батареи на поверхность трекового детектора.

Таблица 4.5 – Активность нуклидов в пробах воды и на сетках диффузионной батареи (нанесение наночастиц на трековые детекторы)

Показатель	Активность, Бк
	На сетке «+»
№ сетки	DB4_2S6
Этиловый спирт	6,6E-02
Смыв*)	3,0E-01
Сумма спирта и смыва	3,7E-01
Доля, перешедшая в спирт,%	18,2
Доля, оставшаяся на сетке,%	81,8
№ сетки	DB4_2S5
Этиловый спирт	2,4E-01
Смыв с сетки*)	8,9E-02
Сумма спирта и смыва	3,3E-01
Доля, перешедшая в спирт,%	72,8
Доля, оставшаяся на сетке,%	27,2
№ сетки	DB4_2S4
Этиловый спирт	2,3E-02
Смыв с сетки*)	7,9E-01
Сумма спирта и смыва	8,1E-01
Доля, перешедшая в спирт,%	2,9
Доля, оставшаяся на сетке,%	97,1

Примечание: *) измерялась активность смыва с сетки и электродов.

4.2.1. Облучение трековых детекторов в поле нейтронов

Исследования физических и химических свойств наночастиц плутония, а так же их метаболизма в организме человека невозможны без разработки соответствующих методов выполнения измерений. Учитывая специфику исследований, которая заключается в чрезвычайно малых размерах объекта изучения (а, следовательно, крайне низкой его активности), можно сформулировать следующие требования к методам выполнения измерений:

- метод выполнения измерения должен быть неразрушающим, иначе говоря, в процессе подготовки проб наночастиц и последующего измерения сами частицы не должны подвергаться разрушению;
- метод выполнения измерений должен обладать очень высокой чувствительностью.

Оба требования, как отмечалось, вытекают из малых размеров объекта исследований. Из литературы известно, что наночастицы плутония или фрагменты, которые образуются в результате альфа-распада изотопов, могут иметь размеры не более (10^4–

10^5) атомов. В связи с этим применение радиометрических методов анализа в исследованиях свойств наночастиц плутония в значительной мере ограничено. Это связано и с тем, что в процессе радиохимического анализа как правило, проводится так называемое влажное озоления, которое заключается в обработке пробы кислотами до полного растворения радиоактивного вещества. Затем анализируемое радиоактивное вещество тем или иным способом выделяется и подвергается ядерно-физическому анализу (измерение активности). Очевидно, что в таких условиях возможное присутствие в анализируемом образце даже незначительного числа частиц плутония микронного диапазона способно кардинально (на несколько порядков величины) изменить результат анализа и его последующую трактовку.

Сущность метода нейтронно-индуцированной трековой дозиметрии заключается в следующем. Анализируемый образец (в нашем случае – это наночастицы) помещают между двумя трековыми детекторами. Полученную сборку подвергают облучению в поле нейтронов. В результате деления ядер ^{239}Pu возникают осколки. В среднем суммарная кинетическая энергия осколков, образующихся при делении ядер ^{235}U и ^{239}Pu, составляет величину, приблизительно равную 203 МэВ. Осколки, взаимодействуя с материалом трекового детектора, оставляют в нем след разрушения. После облучения трековый детектор подвергают специальной обработке для визуализации образовавшихся треков. В качестве материала трековых детекторов в зависимости от характера исследований используют поликарбонат (CR-39), лавсан, слюду, стекло, кварц.

В ходе текущих исследований трековые детекторы облучались в целях:

- определения фонового содержания делящихся материалов в различных типах трековых детекторов;
- оценки значений метрологических характеристик трековых детекторов, включая фон, эффективность регистрации актов деления и НПДИ детекторов;
- отработки химической процедуры травления поверхности детекторов для визуализации треков деления;
- облучения проб наночастиц для оценки возможности их детектирования и оценки их размеров.

Облучению подвергались следующие типы трековых детекторов: предметное стекло марки, особо чистое кварцевое стекло, лавсан и детектор типа CR-39.

4.2.2. Подготовка проб к облучению

Всего за период с мая по конец декабря 2010 года было проведено три облучения. Первое, пробное облучение проводилось в целях оценки возможности достижения требуемых параметров поля нейтронов и значений основных технологических параметров. Второе облучение ставило своей задачей определение фонового содержания делящихся материалов в детекторах и оценку метрологических характеристик простых стекол и кварцевых. Третье облучение проводилось с целью оценки возможности с помощью нейтронно-индуцированного метода трекового анализа детектирования наночастиц и оценки их размеров.

Перед вторым и третьим облучениями проводили подготовку трековых детекторов, которая заключалась в нанесении на их поверхность заранее известного количества ^{239}Pu из образцового радиоактивного раствора (ОРР) (второе облучение) и проб наночастиц, содержащих ^{239}Pu (третье облучение).

Перед вторым облучением было произведено нанесение различного объема ОРР ^{239}Pu на трековые детекторы четырех типов (покровное стекло, кварцевое стекло, лавсан, CR-39) и сборка их в определенном порядке в контейнеры (пластиковые коробки от фотопленки). Перед нанесением ОРР ^{239}Pu было рассчитано число детекторов, необходимых для полного заполнения контейнеров, а также объем ОРР ^{239}Pu, необходимый при предполагаемом флюенсе для возможности провести подсчет визуализированных треков с учетом того, что объемная активность ^{239}Pu в ОРР составляла 0,04786 Бк/мл. Результаты расчетов приведены в таблице 4.6.

Таблица 4.6 – Объем ОРР и активность наносимые на поверхность трековых детекторов

Объем ОРР ^{239}Pu, см^3	0,5	0,2	0,05	0,02
Активность, Бк	2,39E-02	9,57E-03	2,39E-03	9,57E-04

Нанесение ОРР на поверхность детекторов проводили при помощи дозатора. Все детекторы были сформированы в две группы для помещения в контейнеры с учетом толщины детекторов разного типа и размера контейнеров. Данные о заполнении контейнеров детекторами по их типам приведены в таблице 4.7.

Таблица 4.7 – Численное распределение трековых детекторов по контейнерам

Тип детектора	Толщина одного детектора, мм	Высота, занимаемая детекторами в 1 контейнере, мм	Высота, занимаемая детекторами во 2 контейнере, мм
стекло	1		19,0
кварц	3	36,0	
лавсан	0,2	5,2	4,8
CR-39	1,2		21,6
контейнер	47	41,2	45,4
	Число детекторов с ОРР		
стекло			13
кварц		9	
лавсан		16	16
CR-39			12
	Число фоновых детекторов		
стекло			6
кварц		3	
лавсан		10	8
CR-39			6
	Наносимая активность ^{239}Pu, Бк		
стекло			9,14E-02
кварц		5,46E-02	
лавсан		9,00E-02	9,00E-02
CR-39			6,75E-02
Сумма		0,393	

После нанесения ОРР трековые детекторы высушивались при комнатной температуре в течение двух суток. В результате был получен следующий набор детекторов, представленный в таблице 4.8.

Таблица 4.8 – Распределение трековых детекторов четырех типов по контейнерам

Тип детектора	0,5 мл	0,2 мл	0,05 мл	0,02 мл	фоновый с кислотой	фон без кислоты	1 контейнер	2 контейнер
стекло, шт.	1	6	3	3	3	3		19
кварц, шт.		5	2	2	1	2	36	
лавсан, шт.		16	8	8	9	9	5,2	4,8
CR-39, шт.		6	3	3	3	3		21,6
Суммарная высота набора детекторов							41,2	45,4

Полученные трековые детекторы были упакованы в пластиковые контейнеры в соответствии со схемой, приведенной в таблице 4.9. Для прочного удержания трековых детекторов различного диаметра в контейнере на его дно и на верхнюю часть пространства помещали упругий материал, а также лавсановые листы.

Таблица 4.9 – Схема сбора трековых детекторов четырех типов по контейнерам

1 контейнер		2 контейнер		
38 детекторов		61 детектор		
лавсан + *		лавсан + *	CR-39 фон кислота	
лавсан фон кислота		стекло фон	стекло фон кислота	
лавсан фон кислота		лавсан фон	CR-39 фон кислота	
лавсан фон кислота		лавсан фон кислота	лавсан фон кислота	
лавсан фон		CR-39 фон	лавсан 0.02	
лавсан 0.02		CR-39 фон	стекло 0.02	
лавсан фон		CR-39 фон	лавсан 0.05	
лавсан 0.2		CR-39 0.02	стекло 0.05	
лавсан фон	лавсан фон кислота	CR-39 0.2	лавсан 0.2	
кварц фон	лавсан фон кислота	CR-39 0.05	стекло 0.2	лавсан 0.2
лавсан 0.2	лавсан 0.02	CR-39 0.2	лавсан 0.2	стекло фон
кварц фон	лавсан 0.02	CR-39 0.02	стекло 0.2	стекло фон кислота
лавсан 0.2	лавсан 0.05	CR-39 0.2	лавсан 0.2	стекло фон
лавсан 0.02	лавсан 0.05	CR-39 0.05	стекло 0.2	стекло фон кислота
кварц 0.02	лавсан 0.2	CR-39 0.2	лавсан 0.2	стекло 0.02
лавсан 0.05	лавсан 0.2	CR-39 0.2	стекло 0.2	стекло 0.02
кварц 0.05	кварц фон кислота	CR-39 фон кислота	лавсан 0.2	стекло 0.05
лавсан 0.05	кварц 0.02	лавсан фон	лавсан фон кислота	стекло 0.05
кварц 0.2	кварц 0.05	CR-39 0.02	лавсан фон кислота	стекло 0.2
лавсан 0.2	кварц 0.2	лавсан 0.02	лавсан 0.02	стекло 0.2
кварц 0.2	кварц 0.2	CR-39 0.05	лавсан 0.02	стекло 0.5
лавсан 0.2	лавсан фон	лавсан 0.05	лавсан 0.05	лавсан фон
кварц 0.2	лавсан фон	CR-39 0.2	лавсан 0.05	лавсан фон
лавсан 0.2	*	лавсан 0.2	лавсан 0.2	*

Примечание на схеме знаком «*» помечен упругий материал

Подготовка трековых детекторов к третьему облучению проводилась следующим образом. Производился перенос наночастиц с поверхности сеток в этиловый спирт. Затем с помощью дозатора аликвоты спирта, содержащего наночастицы наносили на поверхность кварцевого стекла, помещенного на нагревательный стол для быстрого испарения спирта (рисунок 4.11). Нагревательный стол способен удерживать температуру трекового детектора на уровне 700 С. В дополнение он снабжен специальным вентилятором для ускорения испарения спирта.

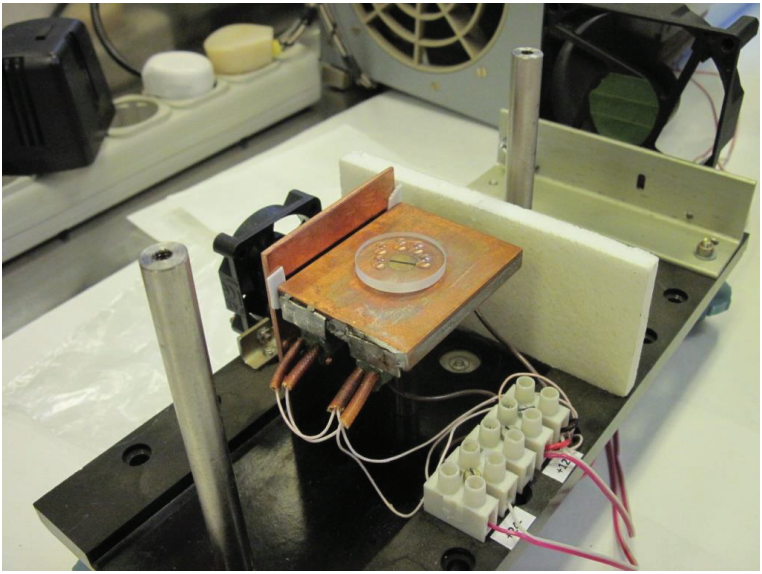


Рисунок 4.11 – Нанесение ОРР на поверхность кварцевого стекла

Было использовано оставшиеся количество кварцевых детекторов, необходимое для полного заполнения контейнеров. Рассчитывали объем наносимого ОРР и этилового спирта, содержащего субмикронные аэрозоли, необходимой активности из имеющихся растворов. Указанные данные приведены в таблице 4.10.

Таблица 4.10 – Объем и активность растворов, наносимых на трековые детекторы

Номер сетки	OPP	DB4_2S4	DB4_2S5	DB4_2S6
Объем, мл	0.0075	0,150	0,500	0,700
Активность, Бк	3,59E-04	2,74E-05	9,32E-04	3,54E-04

После нанесения растворов на поверхность детекторов полученные образцы высушивались. Общая характеристика полученного набора детекторов представлена в таблице 4.11.

Таблица 4.11 – Характеристика набора образцов, подготовленных для третьего облучения

	3 контейнер
Количество детекторов с ОРР, шт.	2
Количество детекторов с наночастицами, шт.	6
Количество фоновых детекторов, шт.	0
Нанесенная активность ОРР ^{239}Pu, Бк	7,18E-04
Наносимая активность изотопов Pu и ^{241}Am, Бк	2,63E-03
Суммарная активность альфа-излучающих нуклидов, Бк	3,34E-03

После подготовки образцов они были упакованы в контейнер для облучения в поле нейтронов. Схема упаковки детекторов в контейнере представлена в таблице 4.12.

Таблица 4.12 – Схема упаковки детекторов в контейнере

3 коробка
8 детекторов
ТЭМ
лавсан фон
кварц DB4_2S4
лавсан фон
кварц DB4_2S5
лавсан фон
кварц DB4_2S6
лавсан фон
Кварц ОРР 0.0075 мл
лавсан фон
кварц DB4_2S4
кварц DB4_2S5
кварц DB4_2S6
Кварц ОРР 0.0075 мл
лавсан фон
лавсан доб + ТЭМ

Облучение образцов проводилось на исследовательском ядерном реакторе ИВВ-2М ОАО «Институт реакторных материалов», расположенного в г. Заречный Свердловской области.

4.2.3. Краткое описание исследовательского ядерного реактора ИВВ-2М

Водо-водяной исследовательский ядерный реактор бассейнового типа ИВВ-2М (ИЯР ИВВ-2М) был спроектирован и создан на базе отечественного бассейнового реактора ИРТ-2000. Физический пуск реактора был проведен 22 апреля 1966 года. В период 1974 г. – 1982 г. была проведена реконструкция реактора на проектную мощность 20 МВт. В настоящее время реактор эксплуатируется на номинальной мощности 15 МВт.

Активная зона ИЯР ИВВ-2М состоит из тепловыделяющих сборок типа ИВВ-2М, экспериментальных устройств и окружена бериллиевым отражателем. Компоновка активной зоны выбирается в соответствии с конкретной задачей на кампанию на основе типовых или вновь разработанных картограмм.

Активная зона и боковой отражатель реактора расположены в бассейне, заполненном химически обессоленной водой, который окружен массивом бетона, выполняющим роль биологической защиты. Вода в бассейне является одновременно теплоносителем активной зоны, замедлителем, торцевым отражателем и биологической защитой в верхнем направлении.

Активная зона и боковой отражатель заключены в алюминиевый корпус (обечайку) и размещаются на опорной решетке, которая содержит ячейки (посадочные гнезда) для установки тепловыделяющих и блоков отражателя. Шаг решетки – треугольный и равен 64 мм. Полное число ячеек в опорной решетке под ТВС и блоки отражателя – 186. Количество тепловыделяющих сборок в рабочей загрузке активной зоны может изменяться от 30 до 42.

Конструктивные решения реактора и блочная структура активной зоны и отражателя, однотипность и взаимозаменяемость элементов активной зоны обеспечивают реактору физико-конструктивную гибкость, что позволяет создавать различные компоновки активной зоны, изменять количество секций, их размеры и размещение в опорной решетке, а также изменять размеры экспериментальных устройств и их нейтронно-физические и теплотехнические характеристики.

Основные технические и физические характеристики реактора ИВВ-2М приведены в таблице 4.13.

Компоновка активной зоны на момент проведения измерений соответствовала картограмме № 706 от 26.03.2010, представленной на рисунке 4.12.

Облучение подготовленных образцов проводилось в канале АЛ-1. Канал АК-1 представляет собой «сухой» канал, изготовленный из алюминиевой трубы диаметром 52 мм с толщиной стенки 2 мм. «Сухой» канала АК-1 установлен на пробку активной зоны и его донышко находится на уровне 330 мм выше низа активной зоны. Защита от прямого

воздействия гамма излучения активной зоны реактора на персонал обеспечивается заданной кривизной канала. Для исключения случайного попадания в канал посторонних предметов канал имеет пробку. Канал АК-1 крепится к площадке СУЗ специальным кронштейном. Схема расположения «сухого» канала АК – 1 в опорной решетке активной зоны реактора ИВВ-2М представлена на рисунке 2.7.

Таблица 4.13 – Основные характеристики реактора ИВВ-2М

Параметр	Характеристика
Номинальная мощность	15 МВт
Топливная сборка: – содержание урана, г – обогащение по ^{235}U,% – длина топливного слоя, мм	 225 90 500
Топливная загрузка активной зоны: – количество топливных сборок, шт. – объем активной зоны, л – количество ^{235}U, кг	 36-42 64-75 до 8,3
Охлаждение активной зоны: – общий расход теплоносителя, $м^3$/час – расход теплоносителя через топливную сборку, $м^3$/час – температура теплоносителя на входе в активную зону, ^0C – подогрев теплоносителя в активной зоне, ^0C	 1100 18 до 40 до 28
Неравномерность энерговыделения (max): – по радиусу активной зоны – по высоте активной зоны	 1,4 1,4
Плотность потока нейтронов (max): – тепловых, $см^{-2}\cdot с^{-1}$ – Быстрых (E≥0,1 МэВ), $см^{-2}\cdot с^{-1}$	 $5\cdot10^{14}$ $2\cdot10^{14}$

Плотность потока нейтронов определена нейтронно-активационным методом с использованием следующих аттестованных детекторов:

- Co и Au-детекторы – для измерения плотности потока тепловых (E < 0,625эВ) нейтронов;
- In-детекторы – для измерения плотности потока быстрых (E > 1,15МэВ) нейтронов.

Результаты измерения плотности потока тепловых (E < 0,625эВ) нейтронов в «сухом» канале АК-1 представлены в таблице 4.14.

Таблица 4.14 – Плотность потока тепловых (E < 0,625эВ) нейтронов на 1МВт мощности реактора в «сухом» канале АК-1 (яч. 12–16)

Расстояние от дна «сухого» канала, см	Плотность потока тепловых нейтронов, нейтр./см^2·с (Au-детекторы)	Плотность потока тепловых нейтронов, нейтр./см^2·с (Co-детекторы)	Ошибка измерения,%
1	$2{,}93 \cdot 10^{10}$	$2{,}99 \cdot 10^{10}$	10
10	$2{,}87 \cdot 10^{10}$	$2{,}90 \cdot 10^{10}$	10
20	$2{,}69 \cdot 10^{10}$	$2{,}49 \cdot 10^{10}$	10

Результаты измерения плотности потока быстрых (E > 1,15МэВ) нейтронов в «сухом» канале АК-1 представлены в таблице 4.15.

Таблица 4.15 – Плотность потока быстрых (E > 1,15МэВ) нейтронов на 1МВт мощности реактора в «сухом» канале АК-1 (яч. 12–16)

Расстояние от дна «сухого» канала, см	Плотность потока нейтронов с E > 1,15МэВ, нейтр./см^2·с	Ошибка измерения,%
1	$1{,}51 \cdot 10^9$	10
10	$1{,}49 \cdot 10^9$	10
20	$1{,}18 \cdot 10^9$	10

Работы по облучению трековых детекторов включали следующие этапы:

- подготовительные работы к загрузке трековых детекторов в активную зону реактора;
- загрузка трековых детекторов в «сухой» канал АК-1;
- проведение облучения трековых детекторов для достижения заданного флюенса тепловых нейтронов;
- завершение облучения и выгрузка трековых детекторов из «сухого» канала АК-1.

Облучение трековых детекторов до достижения численного значения флюенса тепловых нейтронов $10^{16} \div 10^{18}$ нейтрон/см^2. Значение флюенса предварительно согласовывалось. При работе ИЯР ИВВ-2М на номинальной мощности 15 МВт, расчетное время набора заданого флюенса тепловых нейтронов в «сухом» канале АК-1 составляляло от 6 до 650 часов.

Пластмассовые контейнеры с трековыми детекторами упаковывались в полиэтиленовую пленку. Упакованные контейнеры помещались в алюминиевый пенал без верхней крышки (диаметр 45 х 1,5 мм и длина 200 мм), который на нержавеющем тросике,

закрепленном через отверстия в верхней части пенала, загружался в «сухой» канал АК-1. Загрузка пенала с трековыми детекторами в «сухой» канал АК-1 (ячейка 12–16) осуществлялся персоналом группой физики и технологии ИЯР, по распоряжению начальника ИЯР. Трековые детекторы облучались в активной зоне реактора в соответствии РИ-09.74/09 «Исследовательский ядерный реактор. Руководство по эксплуатации». При достижении значения флюенса тепловых нейтронов, пенал с трековыми детекторами подтягивался на 3–4 метра над активной зоной для распада короткоживущих нуклидов. После выдержки облученных трековых детекторов в «сухом» канале АК-1 контейнеры с трековыми детекторами передавались ЮУрИБФ в установленном на предприятии порядке.

4.2.4. Разработка оптимального метода травления трековых детекторов

Под визуализацией или выявлением треков деления подразумевается любая процедура, которая обеспечивает увеличение первоначальной зоны дефектов, образуемых при взаимодействии осколка деления с материалом трека, до размеров, позволяющих использовать для анализа обычные оптические микроскопы. Наиболее распространенным способом визуализации треков является метод избирательного травления поверхности детектора.

Задача данного этапа исследований заключалась в разработке такого метода травления детекторов, при котором представляется возможным по визуальному изображению треков деления приписывать полученные треки группе поделившихся ядер, принадлежащих наночастице (с определенной вероятностью). Это означает, что необходимо добиться:

- собственно визуализации треков деления;
- определенной формы треков, когда их продольные размеры значительно превышают поперечные, что в свою очередь позволит приписывать группу треков актам деления ядер, принадлежащих одной наночастице (с определенной вероятностью);
- увеличения значения верхнего предела определения числа треков, обусловленных делением ядер одной наночастицы, за счет снижения перекрытия одного трека другим или несколькими.

На первом этапе эксперимента проводили травление трех типов детекторов: кварцевое стекло, обычное предметное стекло, а также лавсан. На одну поверхность каждого детектора наносили известное количество ^{239}Pu в виде образцового раствора нитрата плутония. Другая сторона детектора оставалась чистой и использовалась для определения фонового загрязнения каждого детектора делящимися материалами.

Указанные трековые детекторы были облучены в поле нейтронов. При этом флюенс составил следующие значения $8{,}96 \cdot 10^{15}$ см$^{-2}$ и $2{,}20 \cdot 10^{15}$ см$^{-2}$.

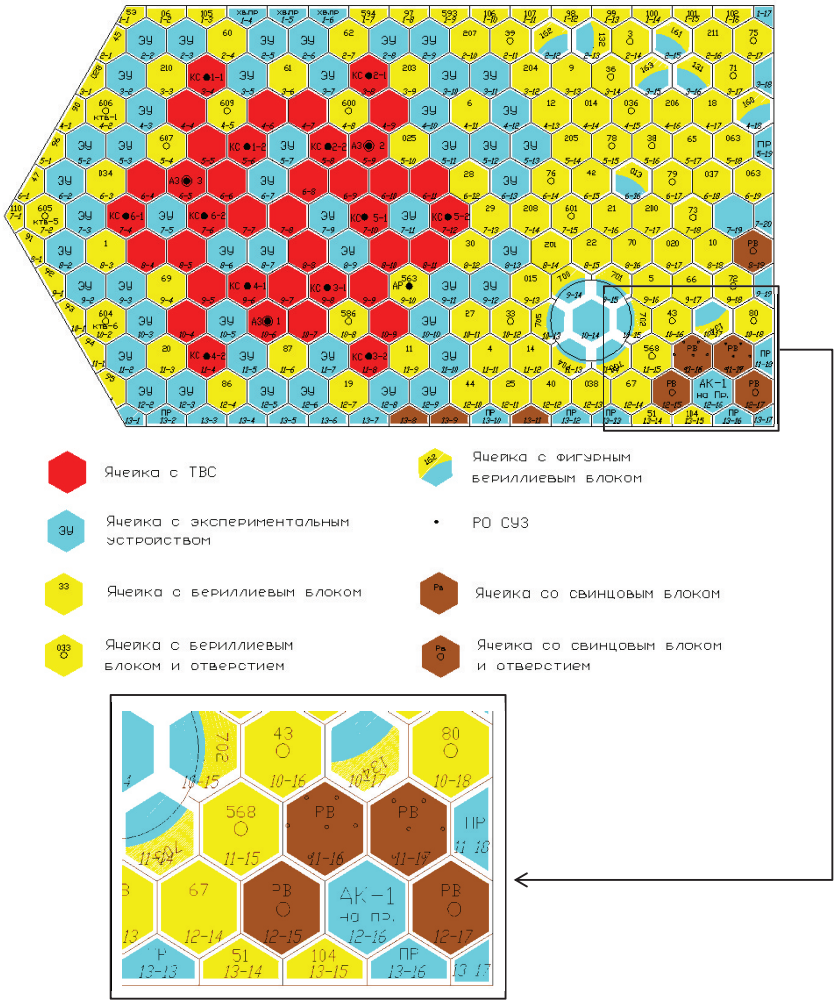


Рисунок 4.12 – Компоновка активной зоны реактора ИВВ-2М

На первом этапе исследований проводилось травление трековых детекторов в условиях, которые рекомендованы литературе [8]. Условия процедур предварительного травления детекторов приведены в таблице 4.16.

По окончании процедуры травления детекторы подвергались промывке в дистиллированной воде и высушивались на фильтровальной бумаге. Протравленные и высушенные детекторы просматривались с помощью оптического микроскопа OLYMPUS B4x41. Цифровые изображения получались с использованием цифрового фотоаппарата OLYMPUS C4000, соединенного с компьютером.

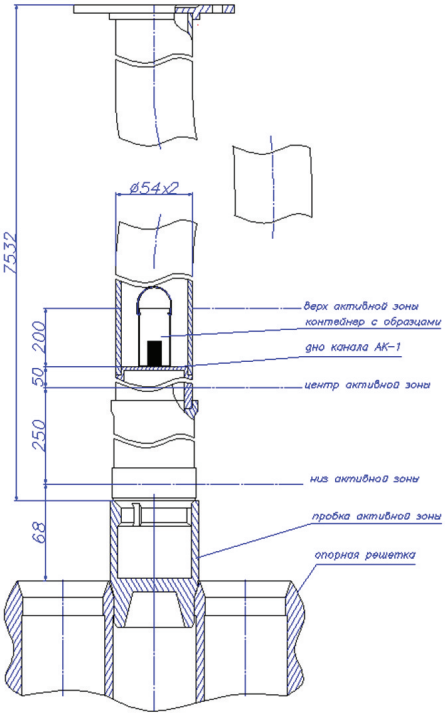


Рисунок 4.13 – Схема расположения «сухого» канала АК – 1
в опорной решетке активной зоны реактора ИВВ-2М и облучаемого образца

После облучения кварцевых стекол не было зафиксировано, сколько-нибудь заметного потемнения материала детектора. Данное обстоятельство свидетельствует об отсутствии в кварцевом стекле посторонних примесей. Характерная картина протравленных по описанной выше процедуре треков деления в кварцевом стекле представлена на рисунке 4.14.

Таблица 4.16 – Первичные условия травления, рекомендуемые в литературе [8]

Тип детектора	Травитель	Температура, ^{0}C	Время, мин.	Концентрация,%
Кварцевое стекло	HF	20	6	48 (40*)
Предметное стекло	HF	20	15	3,5
Лавсан	NaOH	60	180	25

*При отсутствии HF необходимой концентрации, использовалась имеющаяся в наличии

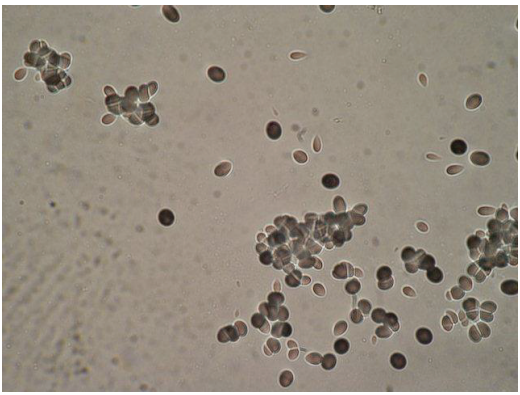
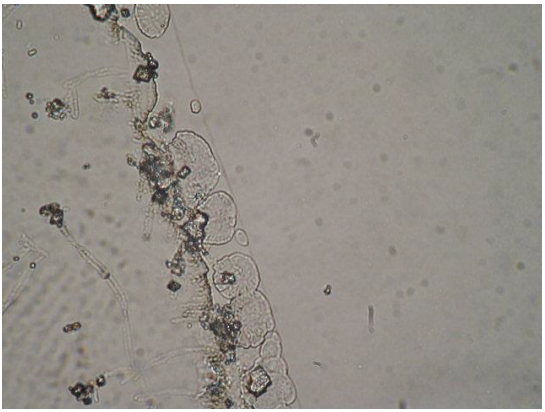


Рисунок 4.14 – Характерная картина треков деления на поверхности кварцевого стекла, протравленных в соответствии с рекомендацией [8]

Анализ изображений протравленных треков деления, изготовленных из кварцевого стекла позволяет сказать следующее. Треки деления меняют форму от закругленных конусов («семечки») до темных практически круглых пятен. В условиях описанной выше процедуры травления (концентрация плавиковой кислоты и время травления) число треков, имеющих округлую или овальную форму оказалось значительно большим, чем число треков, имеющих форму закругленного конуса. Характерной особенностью полученных изображений треков является то, что наряду с отдельно расположенными треками были зарегистрированы их скопления. При этом в отдельных случаях число единичных треков в указанных скоплениях оказывалось настолько большим (рисунок 4.14), что подсчет числа треков оказался затруднительным. Особенно большое количество скоплений треков деления было зафиксировано на границе участка нанесения образцового раствора ^{239}Pu (высохшей капли образцового раствора). Отдельные скопления наблюдались и на отдельных участках в центре трекового детектора.

Образование скоплений треков деления явилось, по-видимому, следствием процесса концентрирования образцового раствора ^{239}Pu и образования кристаллов нитрата плутония в результате испарения воды из образцового раствора, нанесенного на поверхность кварцевого стекла. На рисунке 4.15, где приведены характерные изображения поверхности кварцевых стекол перед их травлением, отчетливо видны кристаллы нитрата плутония.

После облучения обычных (предметных) стекол было зафиксировано заметное потемнения материала детектора. Это свидетельствует о присутствии в обычном стекле значительного количества посторонних примесей. Характерная картина протравленных по описанной выше процедуре треков деления в обычном стекле представлена на рисунке 4.16.



а)



б)

Рисунок 4.15 – Кристаллы нитрата плутония
а) – на границе участка нанесения ОРР, б) участок нанесенного ОРР

Анализ изображений протравленных треков деления, образовавшихся на поверхности обычного стекла позволяет сказать следующее. Протравленные треки деления в основном были представлены пятнами, которые имеют округлую и овальную форму. В отличие от особенности группировки треков деления, наблюдавшейся в кварцевом стекле

(наличие групп значительного числа треков) в случае обычного стекла не было зарегистрировано явления группировки. Треки были расположены на поверхности обычного стекла сравнительно равномерно с учетом того, что их образование в результате деления является случайным процессом.

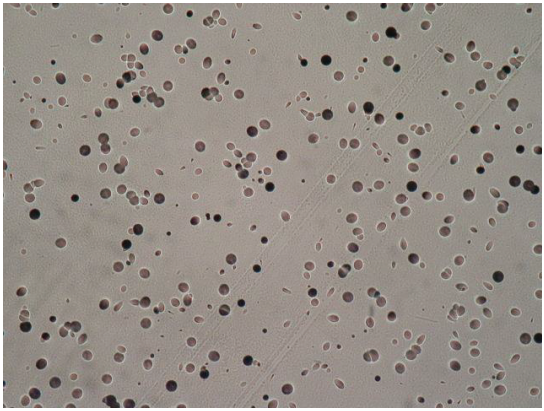


Рисунок 4.16 – Треки деления в обычном стекле с нанесенным ^{239}Pu

Полученный результат, возможно, является следствием того, что в отличие от хорошо отполированного и имеющего незначительное количество примесей поверхность кварцевого стекла характеризуется относительно малой поверхностной плотностью центров кристаллизации. Напротив, поверхность обычного стекла имеет существенно большую шероховатость, чем специально полированное кварцевое стекло и, следовательно, существенно большую плотность центров кристаллизации, чем кварцевое стекло.

В результате при высыхании раствора нитрата плутония ОРР образуется большее число кристаллов нитрата плутония, однако, их размеры были существенно меньшими, чем в случае полированного чистого кварцевого стекла. В результате на поверхности обычного стекла наблюдались отдельные треки.

На рисунке 4.17 приведено изображение протравленных треков деления на поверхности обычного стекла без нанесения на него ^{239}Pu.

На втором этапе исследований по разработке оптимальных условий травления трековых детекторов проводилось изучение зависимости вида протравленных трековых детекторов от условий травления. В ходе второго эксперимента проводилась серия из четырех травлений поверхности одного и того же кварцевого стекла в плавиковой кислоте.

Концентрация плавиковой кислоты составляла 10%, а продолжительность каждого последовательного травления составляла 6 мин. После каждой единичной процедуры травления кварцевое стекло промывалось дистиллированной водой и высушивалось на фильтровальной бумаге. После высушивания протравленное стекло анализировалось с использованием оптического микроскопа, тип которого был указан выше.

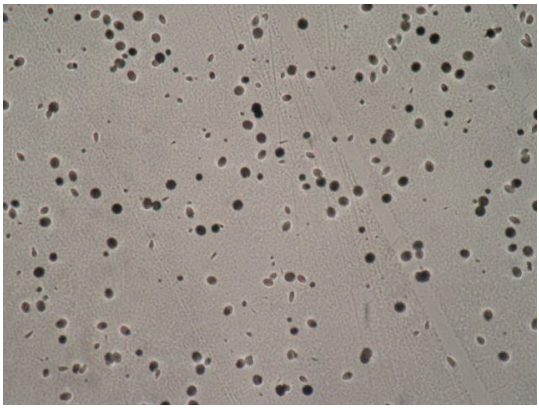
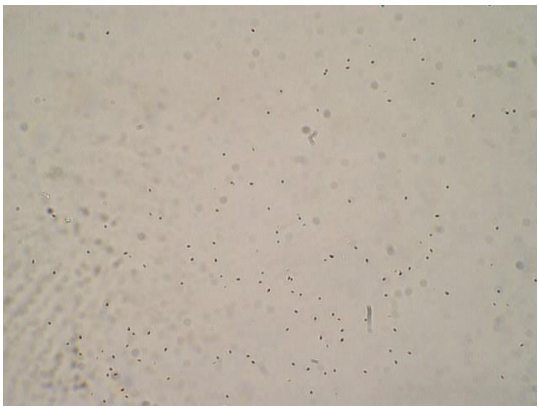


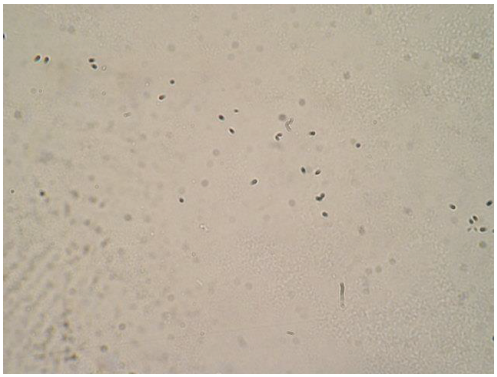
Рисунок 4.17 – Треки деления в обычном стекле, обусловленные фоном

Характерный вид протравленных треков на поверхности кварцевого стекла представлен на рисунке 4.18.

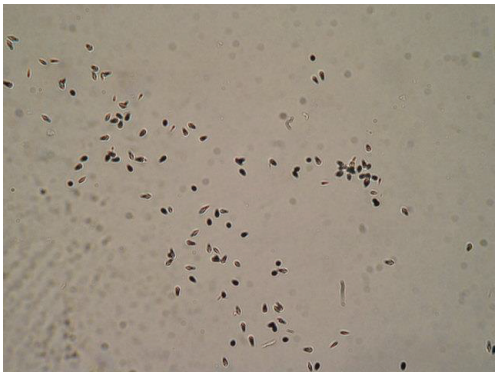


а)

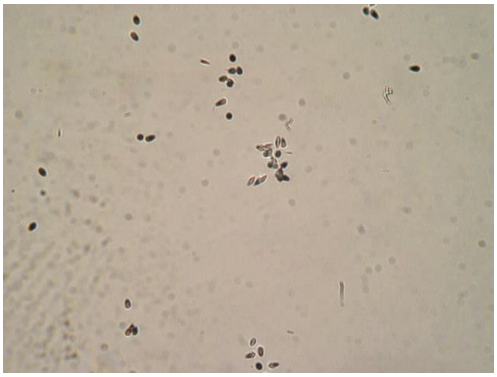
Рисунок 4.18 – Характерный вид треков деления на поверхности кварцевого стекла при различных значениях продолжительности травления,
а) – 6 мин, б) – 12 мин, в) – 18 мин, г) – 24 мин



б)



в)



г)

Рисунок 4.18 (продолжение) – Характерный вид треков деления на поверхности кварцевого стекла при различных значениях продолжительности травления, а) – 6 мин, б) – 12 мин, в) – 18 мин, г) – 24 мин

Анализ изображений треков деления, приведенных на рисунке 4.18. Позволяет сказать следующее. По мере увеличения продолжительности травления наблюдался рост размеров треков деления. Так, если после первых 6 минут травления протравленные треки представляли собой точки, то уже после третьего травления отчетливо проявилась их форма. В ходе четырех травлений размеры треков увеличились с ≈ 1 мкм, после выполнения первой процедуры травления до ≈ 2–4 мкм – после четвертой.

По форме треки деления в подавляющем большинстве случаев представляли собой либо закругленные конусы, либо овалы неправильной формы с затемненной окраской более острого конца. Наблюдались отдельные треки, имевшие практически круглую форму. Также как и в предварительном эксперименте наблюдались группы треков деления. Однако вследствие того, что размер треков, полученных в ходе серии травлений, оказался меньше, чем в первом случае, а также из-за того, что большинство треков имело форму закругленного конуса, подсчет числа треков в группе заметно улучшился вследствие повышения возможности разделения их на изображении.

Наличие описанной формы дает возможность определить точку входа осколка деления в материал трекового детектора (рисунок 4.19). В дополнение к этому повышается достоверность результатов подсчета числа треков, принадлежащих группе треков. Последнее обстоятельство повышает надежность оценки эффективности регистрации актов деления и снижает систематическую погрешность определения числа атомов в детекторе с нанесенным образцовым раствором и числа атомов в наночастицах из-за возможного перекрытия близко расположенных треков.

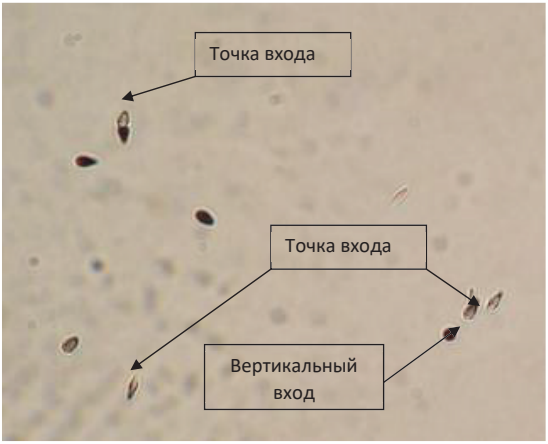


Рисунок 4.19 – Фрагмент изображения треков деления (24 мин. травления) с указанием точки входа осколка деления в материал детектора

Таким образом, оптимальной процедурой травления треков кварцевого стекла следует считать травление стекла в плавиковой кислоте с концентрацией 10% в течение 24 мин.

4.2.5. Анализ полученных изображений треков на кремниевом стекле и оценка метрологических характеристик стекол как трековых детекторов

Одной из задач настоящего этапа исследований было определение метрологических характеристик стекол как трековых детекторов и выбор на основании полученных значений указанных характеристик типа трекового детектора для исследований свойств наночастиц.

После травления был произведен осмотр детекторов при помощи оптического микроскопа Olympus на максимально возможном увеличении. Ввиду визуально равномерного распределения треков на стеклянных детекторах (рис. 4.16 и 4.17) было принято решение о произведении фотосъемки стеклянных детекторов с шагом смещения предметного столика, равным 1 мм по горизонтали и 1 мм по вертикали. В условиях значительной неравномерности (скученности) треков деления при нанесении ОРР на поверхность кварцевого стекла и крайне низкой поверхностной плотности треков на поверхности фонового образца поверхность кварцевых стекол была подвергнута полному анализу.

Съемка кварцевого детектора производилась следующим образом. Поскольку предметный столик оснащен линейкой с нониусом, было сделано 15 фотографий встык по ширине и 15 встык по длине. Ориентиром для съемки встык при этом служил экран фотоаппарата. По полученным фотографиям было рассчитано среднее смещение по горизонтали и по вертикали за один кадр, оно составило 0,32 и 0,233 мм соответственно. Поскольку шаг смещения по горизонтали был больше, что обусловлено углом поворота фотоаппарата относительно предметного столика, съемка встык производилась горизонтальными рядами. Каждый последующий снимок одного ряда (т. е. «полоски» от одной границы детектора до другой) производился после смещения предметного столика при помощи нониуса на полученный шаг (округленный до 0,3 мм с учетом точности нониуса, равной 0,1 мм). Перемещение между рядами осуществлялось на границе детектора, оно производилось при помощи экрана фотоаппарата. В ходе съемки метод получения фотографий встык при помощи нониуса зарекомендовал себя как неточный, поскольку фотографии либо частично перекрывались, либо между ними были пробелы.

После приспособления микроскопа Leica на нем был сфотографирован кварцевый детектор Z1K0,2_17. Было получено 3778 фотографий, часть из которых представляла собой снимки подложки. Ввиду неровности подложки значительная часть фотографий была

нечеткой, что вызвало определенные сложности при обсчете, среди которых следует отметить сложность различения треков и грязи и сложности, связанные с подсчетом числа треков в конгломератах.

На рисунке 4.20 приведен пример подсчета треков деления на снимке протравленного обычного стекла.

На рисунке 4.20 следует обратить внимание на полосу, проходящую через всю фотографию. Эта полоса является царапиной.

Для кварцевых детекторов были обсчитаны все фотографии. Полученные данные представлены в таблице 4.16.

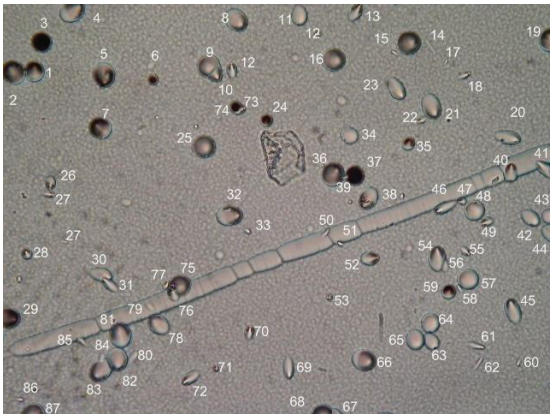


Рисунок 4.20 – Пример обсчета числа треков деления на поверхности обыкновенного стекла

Таблица 4.16 – Результат обсчета кварцевых детекторов

Детектор	Нанесенная активность	Число обсчитанных фотографий	Суммарное число треков	Число фоновых треков
Z1K0,2_3	$9{,}57 \cdot 10^{-3}$	1212	26914	218
Z1K0,2_17	$9{,}57 \cdot 10^{-3}$	1459	42989	198

Число актов деления было рассчитано по формуле:

$$N_f = N_{ядерОРР} \cdot \Phi \cdot \sigma_f \cdot 10^{-24} \qquad (4.15)$$

где N_f – число актов деления;

$N_{ядер,Орр}$ – число ядер плутония, нанесенных на детектор в виде ОРР;

Ф – флюенс нейтронов, $см^{-2}$;

σ_f – сечение реакции деления, барн;

10^{-24} – коэффициент перехода от барн к $см^{-2}$.

Число актов деления составило 71000.

Значение эффективности регистрации осколков деления было рассчитано по формуле:

$$\varepsilon = \frac{N_{тр} - N_{тр,ф}}{N_{тр,расч}} \cdot 100\% \quad (4.16)$$

где $N_{тр}$ – общее число треков;

$N_{тр,ф}$ – число фоновых треков;

$N_{тр,расч}$ – число треков, обусловленных делением ядер плутония, нанесенных на поверхность трекового детектора, соответствующее числу актов деления.

Для детектора Z1K0,2_3 оно составило 38%, а для детектора Z1K0,2_17 – 60%. Полученные данные приведены в таблице 4.17.

Таблица 4.17 – Эффективность регистрации для кварцевых детекторов

Показатель	Расчетное число треков, обусловленное нанесенным ^{239}Pu из ОРР	Детектор	
		Z1K0,2_3	Z1K0,2_17
Число треков	71000	26914	42989
Фоновое число треков		218	198
Без фона		26696	42791
Эффективность регистрации,%		38	60

Из таблицы 4.17 следует, что использование кварцевых стекол в качестве детекторов осколков деления ядер ^{239}Pu позволяет производить регистрацию осколков с эффективностью 38 ÷ 60%. Среднее значение эффективности регистрации ε составляет$\bar{\varepsilon}$:

$$\varepsilon = (\varepsilon_1 + \varepsilon_2) / 2 = 49\% \quad (4.17)$$

Исходя из полученных данных, были рассчитаны предел детектирования и минимальная детектируемая активность.

Среднее значение фона было рассчитано по формуле:

$$\bar{N}_{тр,ф} = \frac{N_{1тр,ф} + N_{2тр,ф}}{2}, \quad (4.18)$$

где $\bar{N}_{тр,ф}$ – среднее значение фона;

$N_{1тр,ф}$ и $N_{2тр,ф}$ – число фоновых треков на детекторе Z1K0,2_3 и Z1K0,2_17 соответственно.

Оно составило 208 треков. Среднее квадратичное отклонение фона $\sigma_ф$ составило 14,14 треков. Предел детектирования был рассчитан по формуле:

$$LD = 4{,}65 \cdot \sigma_ф + 2{,}71 \tag{4.19}$$

Он составил 68 треков. Минимальная детектируемая активность была рассчитана по формуле:

$$МДА = \frac{\lambda \cdot LD \cdot 100\%}{\varepsilon \cdot \Phi \cdot \sigma_f \cdot 10^{-24}} \tag{4.20}$$

Значение МДА составило 20 мкБк.

Из полученного значения МДА следует, что применение кварцевых стекол в качестве детекторов осколков деления позволяет определять низкие уровни активности плутония – 20 мкБк, что в 50 раз меньше значения МДА (1 мБк) применяемого в настоящее время альфа-спектрометрического метода измерений.

В случае стекол обсчету была подвергнута первая, пятая, каждая последующая пятая и последняя фотография для каждой стороны детектора. В редких случаях, когда фотография была слишком нечеткой или детектор занимал менее половины фотографии (т. е. была сфотографирована граница детектора), обсчету подвергалась следующая по номеру фотография. После подсчета числа треков были получены следующие данные, представленные в таблице 4.18.

Таблица 4.18 – Результат обсчета стекол

Детектор	Нанесенная активность ^{239}Pu из ОРР, Бк	Число обсчитанных фотографий	Суммарное число треков
Z2SF12	0	107	9158
	0	109	8598
Z2S0,05_7	$2{,}39 \cdot 10^{-3}$	105	9444
	0	103	9214
Z2S0,5_3	$2{,}39 \cdot 10^{-2}$	105	10425
	0	110	7521

Общее число треков на детекторе было рассчитано по формуле:

$$N_{общ} = \frac{N_{ср} \cdot S}{S_{фото}} \tag{4.21}$$

где $N_{общ}$ – общее число треков на детекторе;

S – площадь детектора; S = 527 мм^2;

$S_{фото}$ – площадь фото; S = 0,32·0,233 = 0,07456 мм^2.

Полученные данные приведены в таблице 4.19.

Для расчета эффективности регистрации по формуле (4.15) было получено расчетное число треков на детекторах Z2S0,05_7 и Z2S0,5_3. Оно составило 43100 и 431000 треков соответственно.

По формуле (4.16) было рассчитано значение эффективности регистрации осколков деления для стекол Z2S0,05_7 и Z2S0,5_3. Оно составило 16 и 51% соответственно.

Таблица 4.19 – Общее число треков на стеклянных детекторах

Детектор	Нанесенная активность ^{239}Pu из ОРР, Бк	Среднее число треков на фото	Суммарное число треков на детекторе
Z2SF12	0	86	607900
	0	79	558400
Z2S0,05_7	$2{,}39\cdot10^{-3}$	90	631600
	0	89	629100
Z2S0,5_3	$2{,}39\cdot10^{-2}$	99	699700
	0	68	480600

Средняя эффективность регистрации:

$$\varepsilon = (\varepsilon_1 + \varepsilon_2) / 2 = 34\%$$

Полученные данные приведены в таблице 4.20.

Таблица 4.20 – Результаты обработки данных для стеклянных детекторов

Показатель	Детектор	
	Z2S0,05_7	Z2S0,5_3
Число треков, обусловленное нанесенным ^{239}Pu из ОРР	43100	431000
Число треков фактическое	636100	699700
Число треков фона	629100	480600
Число обнаруженных треков за вычетом фона	7000	219100
Эффективность,%	16	51

Из таблицы 4.20 следует, что эффективность регистрации осколков деления ядер плутония-239 для стеклянных детекторов колеблется в широком диапазоне – от 16 до 51%.

По полученным данным были рассчитаны предел детектирования и минимальная детектируемая активность:

Среднее значение фона составило 569000 треков.

Среднее квадратичное отклонение фона σ_ϕ составило 66000 треков.

Предел детектирования *LD* был рассчитан по формуле (4.19). Его значение составило 306900 треков.

Минимальная детектируемая активность была рассчитана по формуле (4.20). Она составила 50 мБк.

Полученное высокое значение МДА позволяет сделать вывод о невозможности применения стеклянных детекторов для регистрации осколков деления.

4.2.6. Экспериментальные исследования по совершенствованию метода отбора проб наночастиц

Как уже неоднократно указывалось, отобранные наночастицы в «сухих» условиях легко покидают поверхность сеток диффузионной батареи. Об этом свидетельствует не только опыт перемещения проб наночастиц с места отбора в лабораторные помещения в бумажных пакетах, когда частицы практически полностью переместились с поверхности сеток на внутреннюю поверхность пакета. Присутствие значительных количеств радиоактивных веществ на поверхности защитных фильтров типа АФА-РМП-20 также указывает на то, что наночастицы могут покидать поверхность металлических сеток.

Приведенные факты указывают на то, что в процессе отбора проб наночастиц с использованием диффузионной батареи может происходить перенос частиц с каскада на каскад. Этот процесс должен приводить к искажению картины распределения наночастиц по размерам, получаемого на основе результатов измерения активности частиц, задержанных на сетках.

В ходе настоящих исследований была проведена попытка снизить межкаскадный перенос наночастиц. Основная идея, которая лежала в основе разрабатываемого способа снижения межкаскадного переноса наночастиц, является следствием соображения о том, что наночастицы удерживаются на поверхности сетки с помощью сил межмолекулярного взаимодействия. При этом предполагалось, что если поверхность сетки (проволоки) покрыть несколькими молекулярными слоями плохо испаряющейся жидкости, то масштаб межкаскадного переноса наночастиц можно снизить или вовсе исключить.

Методика проведения эксперимента по снижению межкаскадного переноса наночастиц заключалась в следующем. На поверхность сеток диффузионной батареи наносится глицерин. Проводится отбор проб наночастиц на сетки, покрытые глицерином. Затем сравниваются результаты измерений активности наночастиц, отобранных на «сухие» сетки и сетки, покрытые глицерином.

Процедура нанесения глицерина на поверхность сеток заключалась в следующем. Глицерин растворяли в этиловом спирте по схеме, приведенной в таблице 4.21. Затем сетку погружали в раствор глицерина в этиловом спирте. После извлечения сетка высушивалась на воздухе при комнатной температуре в течение трех суток. Для визуализации процесса растворения, концентрации и высыхания глицерина в раствор бал добавлен индикатор – метиловый оранжевый.

Таблица 4.21 – Схема разбавления глицерина

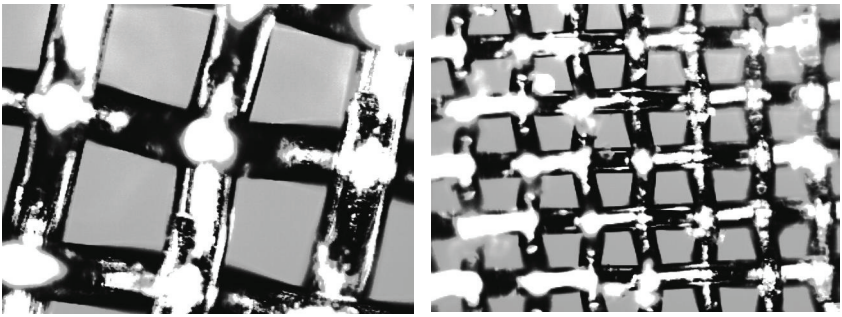
Концентрация глицерина,%	Объем исходного глицерина, мл	Объем добавляемого спирта, мл
100	20	0
75	20	0 + 7
50	20	0 + 7 + 13
25	20	0 + 7 + 13 + 40
10	20	0 + 7 + 13 + 40 + 120
1	2	198

По результатам опыта по нанесению спиртовых растворов глицерина были сделаны фотографии экранов на микроскопе LEICA DMI5000M до и после эксперимента (рисунок 4.20).

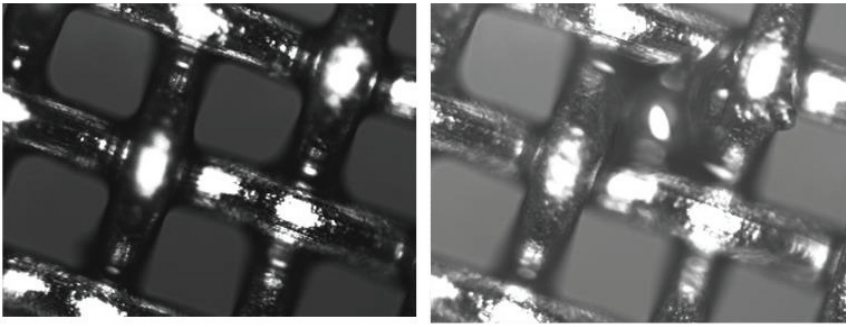
Отбор проб частиц проводился по стандартной схеме № 1, описанной в разделе 3. После отбора проб на сетки, покрытые глицерином и сетки, которые глицерином не покрывались, был проведен гамма-спектрометрический анализ активности ^{241}Am, содержавшегося в материале отобранных частиц.

Влияние нанесения глицерина на процесс улавливания частиц сетками диффузионной батареи можно проследить путем сравнительного анализа относительного распределения активности ^{241}Am по сеткам и оконечному фильтру в условиях, когда при отборе проб глицерин наносился, и когда его не было на поверхности сеток. В наиболее явном виде рассматриваемое влияние отчетливо наблюдается при отборе частиц на сетки, размер ячеек которых составлял 0,2 мм. Как будет показано ниже в процессе отбора проб частиц

на мелкие сетки (с размером ячеек 0,08 и 0,04 мм) на распределение относительной активности влияют более мощные факторы, чем покрытие глицерином. Результаты расчета относительной активности ^{241}Am на сетках диффузионной батареи и оконечном фильтре приведены в таблице 4.22.



До нанесения на их поверхность глицерина



После нанесения на них глицерина

Рисунок 4.20 – Нанесение глицерина на поверхность сеток

Сравнение распределений относительной активности ^{241}Am показывает следующее. В случае использования глицерина доля активности ^{241}Am на оконечном фильтре составила 0,57% и 18%. В случаях, когда глицерина не было на поверхности сеток, рассматриваемый показатель составил 67%, 93% и 98%. Столь разительное различие в распределении относительной активности ^{241}Am по-видимому объясняется следующим образом.

Таблица 4.22 – Относительная активность ^{241}Am на сетках диффузионной батареи при отборе частиц на сетки с ячейками 0,2 мм

	Применение глицерина				
	Применялся		Не применялся		
Номер пробы	№ 3	№ 11	№ 1	№ 2	№ 8
Экран 1	*)	0,9744	0,2927	0,0049	0,0042
Экран 2	*)	0,0005	0,0106	0,0021	0,0060
Экран 3	0,7987	0,0015	0,0053	0,0145	0,0089
Экран 4	*)	0,0032	0,0049	0,0006	*)
Экран 5	*)	0,0143	0,0025	0,0005	*)
Экран 6	*)	*)	0,0096	0,0011	*)
Экран 7	0,0213	0,0003	0,0084	0,0031	*)
Выходной фильтр	0,1800	0,0057	0,6660	0,9732	0,9809
Сумма	1,0000	1,0000	1,0000	1,0000	1,0000

Примечание: *) – результат не превышал НПДИ гамма-спектрометрического метода выполнения измерений.

При движении аэрозоля сквозь сетку отдельные сравнительно крупные частицы могут сталкиваться с поверхностью сетки. В случае соударения частицы с поверхностью, покрытой глицерином частица задержится на ней («прилипнет»), и будет изъята из потока воздуха. в результате такого взаимодействия оконечного фильтра может достичь лишь малая доля частиц, первоначально попавших в диффузионную батарею.

При столкновении сравнительно крупной частицы с поверхностью сетки, свободной от глицерина, велика вероятность, что частица может отразиться от поверхности и вновь возвратиться в поток воздуха. В результате большое количество частиц в конечном итоге окажется уловленным оконечным фильтром. Кроме того в данном случае не следует исключать влияния межкаскадного переноса частиц, когда первоначально осевшая на поверхности сетки частица по тем или иным причинам отрывается от нее и вовлекается в поток воздуха.

4.2.7. Теоретические исследования межкаскадного переноса наночастиц в процессе их отбора с использованием диффузионных батарей

Формулировка физических принципов, лежащих в основе описания процессов межкаскадного переноса наночастиц.

Каким образом наночастицы улавливаются поверхностью сеток диффузионных батарей, и каким образом наночастицы удерживаются на их поверхности (силы межмолекулярного взаимодействия), условие улавливания: кинетическая энергия наночастицы

меньше потенциала межмолекулярного взаимодействия молекул поверхности сетки и молекул, составляющих наночастицу.

Причины, по которым наночастицы могут покидать поверхность сеток. Основное условие отрыва наночастицы с поверхности состоит в том, что при взаимодействии наночастицы с объектами окружающей среды должна быть совершена работа, превышающая энергию связи наночастицы с поверхностью сетки.

- Попадание еще не уловленной наночастицы в наночастицу, находящуюся на поверхности сетки. Следует учитывать то, что в набегающем воздухе могут присутствовать и частицы неактивной фракции.

- Попадание в наночастицу молекул газа (воздуха), имеющих достаточно большую кинетическую энергию, чтобы в процессе взаимодействия преодолеть потенциал межмолекулярного взаимодействия.

- Тепловое движение молекул, как поверхности сетки, так и молекул наночастиц. Скорости теплового движения молекул могут оказаться столь велики, что их кинетической энергии будет достаточно для преодоления потенциала межмолекулярного взаимодействия.

- Альфа-распад ядер актинидов, присутствующих в наночастице с излучением альфа-частицы и возникновением ядра отдачи. Кинетическая энергия ядер отдачи, образующихся в результате альфа-распада, варьирует в пределах десятков КэВ, что превышает энергию связи наночастицы с поверхностью сетки. Вероятность данного события для единичной наночастицы, состоящей из ^{238}Pu, ^{239}Pu и ^{241}Am мала. Тем не менее, для ансамбля большого числа наночастиц указанный фактор может играть значимую роль при их уносе.

Природа перечисленных выше механизмов обладает одной общей и важной характеристикой. Она носит вероятностный характер. Следовательно, число наночастиц, покинувших поверхность улавливающей сетки, в единицу времени (скорость уноса) должно быть количественно связано с числом наночастиц, находящихся на поверхности сетки. Иначе говоря, скорость уноса наночастиц с поверхности сетки должно быть прямо пропорционально количеству наночастиц, находящихся на ее поверхности.

Таким образом, в ходе отбора наночастиц с помощью диффузионной батареи действуют два процесса: улавливание наночастиц поверхностью сетки и их унос.

Рассмотрим единичную ячейку диффузионной батареи (рисунок 4.21).

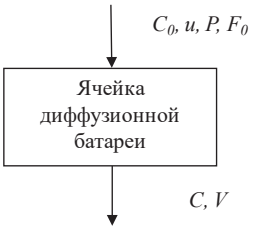


Рисунок 4.21 – Единичная ячейка диффузионной батареи

Пусть на рассматриваемую ячейку поступает поток воздуха, содержащий наночастицы одного и того же размера. Введем обозначения:

C_0 – концентрация наночастиц на входе в ячейку;

C – концентрация наночастиц на выходе из ячейки;

u – объемный расход воздуха, поступающего на ячейку;

P – проницаемость ячейки;

F_0 – количество наночастиц, осаждающихся на ячейке в единицу времени (поступление): $F_0 = C_0 u$.

Концентрации, а также поступление могут выражаться в категориях числа частиц, их массы или активности.

Теория осаждения частиц в диффузионных батареях вводит понятие проницаемости P, физический смысл которой заключается в том, что она представляет собой отношение концентрации наночастиц на выходе из ячейки к их концентрации на входе:

$$P = \frac{c}{c_0} \tag{4.21}$$

Используя выражение для проницаемости, можно рассчитать количество наночастиц, отложившихся на единичной ячейке и поток наночастиц, преодолевших ее по формулам:

$$V = F_0 \left(1 - P\right) \tag{4.22}$$

$$F_1 = F_0 P \tag{4.23}$$

Как указывалось выше, накопление наночастиц на сетке диффузионной батареи обусловлено действием двух факторов: улавливанием наночастиц на сетке ячейки и удаление (срыв) наночастиц с ее поверхности. Таким образом, уравнение, описывающее зависимость от времени количества наночастиц на сетке единичной ячейки диффузионной батареи будет иметь вид:

$$\frac{dN(t)}{dt} = F_0(1-P) - \lambda N(t), \tag{4.24}$$

где $N(t)$ – зависимость от времени количества наночастиц, накапливающихся на единичной ячейке диффузионной батареи;

t – время, с;

λ – постоянная уноса наночастиц с поверхности ячейки диффузионной батареи, $с^{-1}$.

Рассмотрим диффузионную батарею, состоящую из 7 улавливающих ячеек одного оконечного фильтра, служащего для окончательного улавливания наночастиц (рисунок 4.23). На вход диффузионной батареи (первая ячейка) поступает воздух, содержащий наночастицы. В процессе движения наночастицы в результате броуновского движения улавливаются сетками батареи. Эффективность улавливания определяется значением проницаемости ячейки (P). Кроме улавливания частиц происходит процесс их отрыва с поверхности сеток. Покинувшие поверхность сетки наночастицы вовлекаются в поток воздуха и в свою очередь также подвергаются захвату сетками, которые лежат ниже по потоку воздуха.

Для моделирования процесса накопления наночастиц на сетках диффузионной батареи и межкаскадного переноса частиц необходимо сделать ряд допущений.

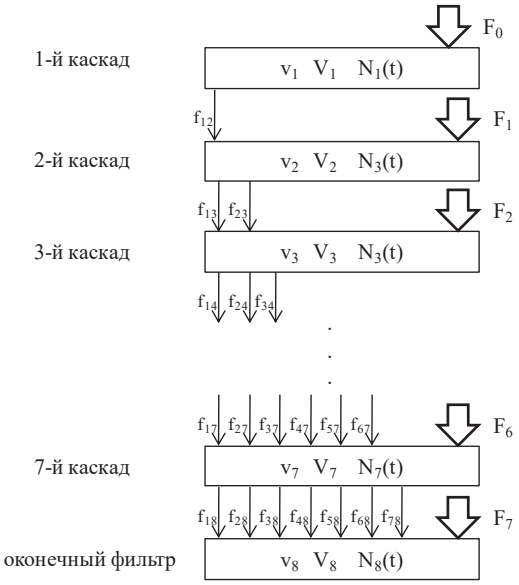


Рисунок 4.23 – Модель диффузионной батареи, состоящей из 7 каскадов и одного оконечного фильтра

Будем предполагать следующее:

- все наночастицы, поступающие в диффузионную батарею обладают одинаковыми размерами и формой;
- все сетки ячеек диффузионной батареи с точки зрения улавливания наночастиц обладают одинаковыми свойствами;
- все сетки ячеек диффузионной батареи обладают одинаковыми свойствами с точки зрения отрыва наночастиц, следовательно, значения постоянных уноса наночастиц с поверхности всех сеток одинаковы.

Для удобства формулировки математической модели процесса накопления наночастиц на сетках диффузионной батареи поведение наночастиц, которые за рассматриваемый промежуток времени не подвергались срыву, и наночастиц, которые хотя бы раз покидали поверхность сетки, будем рассматривать раздельно.

Введем следующие обозначения:

F_i – поступление на i-ю сетку диффузионной батареи тех частиц, которые за рассматриваемый промежуток времени не подвергались срыву и не были вовлечены в поток прокачиваемого воздуха;

f_{ij} – поступление на j-ю сетку наночастиц, покинувших i-ю сетку в результате срыва и вовлечения в поток прокачиваемого воздуха;

V_i – отложение на i-й сетке диффузионной батареи тех частиц, которые за рассматриваемый промежуток времени не подвергались срыву и не были вовлечены в поток прокачиваемого воздуха;

v_i – отложение на j-ю сетку наночастиц, покинувших i-ю сетку в результате срыва и вовлечения в поток прокачиваемого воздуха.

Принимая во внимание сформулированные выше допущения и математические выражения для проницаемости, отложения наночастиц на единичной ячейке диффузионной батареи, а также потока частиц, преодолевших ячейку, можно показать, что отложение на i-й сетке диффузионной батареи тех частиц, которые за рассматриваемый промежуток времени не подвергались срыву, рассчитывается в соответствии с выражением:

$$V_i = F_0 \left(1 - P\right) P^{(j-1)} \tag{4.25}$$

где j – текущий индекс суммирования.

Для оконечного фильтра выражение для рассматриваемого показателя имеет вид:

$$V_n = F_0 P^n, \tag{4.26}$$

где n – число каскадов рассматриваемой диффузионной батареи, включая оконечный фильтр.

Поступление на j-ю сетку наночастиц, покинувших i-ю сетку в результате срыва и вовлечения в поток прокачиваемого воздуха, может быть рассчитано по формуле:

$$f_{ij} = \lambda N_1(t) P^{(j-1)} \tag{4.27}$$

где $N_1(t)$ – Зависимость от времени содержания наночастиц на первой сетке диффузионной батареи.

Используя выражение (2.13) можно получить формулу расчета отложения на j-й сетке наночастиц, покинувших i-ю сетку в результате срыва и вовлечения в поток прокачиваемого воздуха, следующего вида:

$$v_i = (1-P)\lambda \sum_{j=1}^{j=(i-1)} P^{(i-j-1)} N_j(t), \tag{4.28}$$

где $N_j(t)$ – Зависимость от времени содержания наночастиц на j-й сетке диффузионной батареи.

Для оконечного фильтра выражение для рассматриваемого показателя принимает вид:

$$v_i = \lambda \sum_{j=1}^{j=n} P^{(n-j)} N_j(t) \tag{4.29}$$

Принимая во внимание приведенные выше выражения можно написать следующую систему уравнений, описывающих накопление наночастиц на сетках диффузионной батареи и оконечном фильтре:

$$\frac{dN_i(t)}{dt} = F_0(1-P)P^{(i-1)} + (1-P)\lambda \sum_{j=1}^{j=(i-1)} P^{(i-j-1)} N_j(t) - \lambda N_i(t) \tag{4.30}$$

$$\frac{dN_n(t)}{dt} = F_0 P^n + \lambda \sum_{j=1}^{j=(n-1)} P^{(n-j-1)} N_j(t) - \lambda N_i(t),$$

где $1 < i < n$ – сетки диффузионной батареи;

$i = n$ – оконечный фильтр диффузионной батареи.

Начальные условия имеют вид:

$$N_i(0) = N_{i0}, 1 < i \le n, \tag{4.31}$$

где N_{i0} – значения содержания наночастиц в улавливающих ячейках, включая сетки и оконечный фильтр в начальный момент времени ($t = 0$).

Система уравнений, описывающая накопление наночастиц в элементах диффузионной батареи, имеющей 7 сетчатых каскадов и один оконечный фильтр, была решена

аналитически и численно. Сравнение полученных значений накопления наночастиц на ячейках батареи показало, что различия наблюдаются в пятой значащей цифре. Рассмотрим два предельных случая:

- в чистую диффузионную батарею поступают наночастицы, причем интенсивность указанного поступление не изменяется во времени;
- на первом каскаде диффузионной батареи находится определенное количество наночастиц, а в диффузионную батарею поступает абсолютно чистый воздух (не содержащий альфа-излучающих наночастиц).

Начальные условия для первого случая имеют вид:

$$N_i(0) = 0, \quad 1 < i \le n \tag{4.32}$$

Графическая иллюстрация решения системы уравнений при указанных начальных условиях когда на диффузионную батарею подается поток наночастиц F_0, равный 1 Бк/с при значениях проницаемости и постоянной уноса наночастиц, составляющих P = 0,05 и $\lambda = 0{,}01\ c^{-1}$ соответственно представлена на рисунках 4.22 и 4.23.

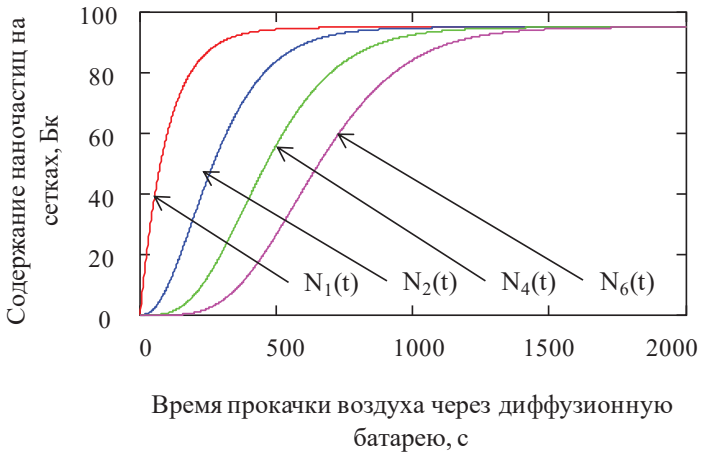


Рисунок 4.22 – Содержание наночастиц на сетках диффузионной батареи с номерами 1, 2, 4, 6 в зависимости от времени прокачки, Бк.

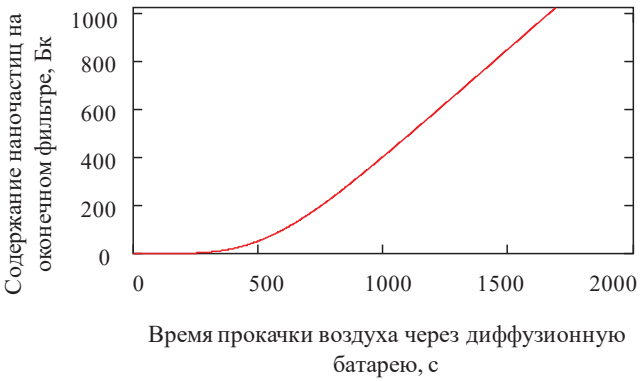


Рисунок 4.23 – Содержание наночастиц на оконечном фильтре в зависимости от времени прокачки, Бк

Анализ полученного решения позволяет сказать следующее. Зависимость активности наночастиц, накапливающихся на сетках диффузионной батареи отражает два процесса: отложение наночастиц на поверхности улавливающих элементов и унос наночастиц в результате их срыва. На начальном этапе происходит увеличение содержания наночастиц на сетке, которое затем сменяется состоянием динамического равновесия, при котором количество уловленных сеткой наночастиц становится равным количеству наночастиц, покинувших поверхность сетки. При этом в отличие от первой сетки, где скорость роста активности наночастиц на начальной стадии практически неизменна, на сетках, лежащих ниже по потоку воздуха, этот показатель претерпевает увеличение до некоторого относительно постоянного уровня. После этого на всех сетках наблюдается уровень динамического равновесия. В этом случае активность наночастиц, поступающих на первый каскад диффузионной батареи, равно активности частиц, проникающих последнюю сетку. Зависимость активности наночастиц, задержанных оконечным фильтром, на начальном этапе отражает медленный рост значений. Затем наблюдается линейное увеличение активности наночастиц, которое по времени отвечает состоянию динамического равновесия активности наночастиц на предлежащих сетках диффузионной батареи. Иначе говоря, на данном временном промежутке активность поступающих на сетки диффузионной батареи наночастиц равна активности наночастиц улавливаемых оконечным фильтром.

Рассмотрим случай межкаскадного переноса наночастиц в случае, когда на сетке первого каскада имеются наночастицы, на остальных улавливающих элементах диффузионной батареи их нет, а на вход в батарею подается чистый воздух, не содержащий радиоактивных частиц (второй предельный случай). Это случай по своим условиям наиболее

близок к условиям экспериментального изучения процессов межкаскадного переноса наночастиц. В описанной ситуации начальные условия будут иметь следующий вид:

$$N_1(0) = 1000\text{Бк} \quad (4.33)$$

$$N_i(0) = 0,\ 2 < i \leq n \quad (4.34)$$

Значения проницаемости и постоянной уноса наночастиц, также составляли $P = 0{,}05$ и $\lambda = 0{,}01\ c^{-1}$ соответственно. Графическая иллюстрация решения системы уравнений при описанных начальных условиях представлена на рисунках 4.42 и 4.25:

Анализ полученного решения позволяет сделать следующие выводы. Активность изначально содержавшихся наночастиц на первой сетке диффузионной батареи экспоненциально снижается, что является следствием предполагавшегося процесса уноса наночастиц с ее поверхности. Количество наночастиц на последующих сетках определяется двумя процессами: накоплением наночастиц в результате улавливания частиц, покинувших первую сетку и уносом частиц с поверхности сеток.

В результате активность наночастиц на последующих сетках на первом этапе претерпевает рост, который затем сменяется снижением значений по мере того, как количество задерживаемых наночастиц на рассматриваемой сетке сравнивается с числом частиц, покидающих ее поверхность. Чем ниже по ходу движения воздуха расположена рассматриваемая сетка, тем позже по времени достигается максимум уровня накопления наночастиц. Зависимость от времени активности наночастиц на оконечном фильтре имеем S-образную форму, которая отражает рост числа накопленных частиц на первом этапе процесса. В отдаленные сроки процесса активность наночастиц, задержанных оконечным фильтром, перестает увеличиваться. Это означает, что практически все наночастицы переместились с первой сетки на оконечный фильтр.

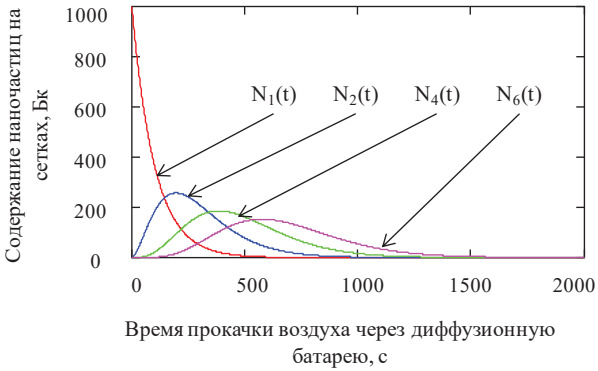


Рисунок 4.24 – Содержание наночастиц на сетках диффузионной батареи с номерами 1, 2, 4, 6 в зависимости от времени прокачки, Бк

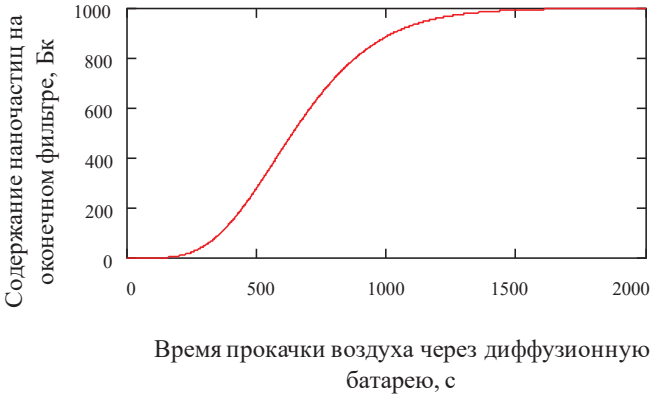


Рисунок 4.25 – Содержание наночастиц на оконечном фильтре, Бк

4.3. Исследование активности нанометровой фракции промышленных альфа-излучающих аэрозолей воздуха рабочих помещений

4.3.1. Отбор проб

Пробы отбирались из воздуха отделения оксалатного осаждения, прокалки и получению диоксида плутония из отработавшего ядерного топлива завода РТ. Данное отделение характеризуется наиболее высокими уровнями объемной активности альфа-излучающих аэрозолей. Многолетние исследования нуклидного состава промышленных альфа-излучающих аэрозолей воздуха рабочего помещения, из которого проводился отбор проб наночастиц, показывает, что процентное содержание указанных выше изотопов составляет:

- ^{238}Pu – 58%;
- ^{239}Pu – 22%;
- ^{241}Am – 20%.

В ходе исследований применялось несколько схем отбора проб. Выбор той или иной схемы определялся целями исследований. Наиболее полная схема (схема № 1) отбора проб промышленных альфа-излучающих аэрозолей и наночастиц приведена на рисунке 4.26.

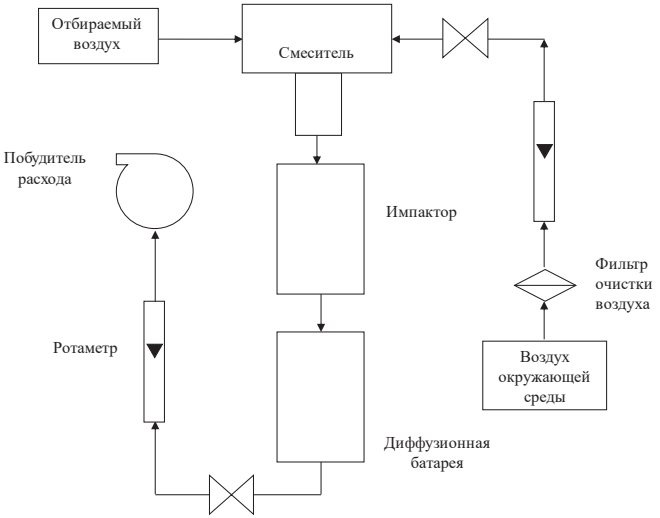


Рисунок 4.26 – Схема № 1 отбора проб аэрозолей и наночастиц

По этой схемы проба воздуха сперва подается на смеситель, где она разбавляется предварительно очищенным воздухом. Затем разбавленная смесь поступает в импактор, где на его семи каскадах осаждаются крупные аэрозольные частицы, так что на вход в диффузионную батарею поступают аэрозольные частицы, АМАД которых не превышает 0,7 мкм. Здесь следует отметить, что в группе частиц аэрозоля, характеризующихся АМАД = 0,7 мкм, могут присутствовать в определенном количестве частицы, превышающие указанный размер. Обедненная крупными частицами смесь поступает в диффузионную батарею, на семи каскадах которой происходит улавливание наночастиц. Конечный каскад диффузионной батареи представляет собой фильтр, который задерживает все частицы, преодолевшие сетки диффузионной батареи. Затем воздух поступает в ротаметр, по показаниям которого регулируется расход воздуха через систему. В качестве побудителя расхода использовалась штатная заводская разводка вакуума.

Смеситель потоков отбираемого и предварительно очищенного от радиоактивных аэрозолей воздуха использовался для снижения объемной активности отбираемого воздуха. Использование смесителя позволяло проводить подключение пробоотборной схемы к заводскому пробоотборному тракту, не допуская проникновения в нее альфа-излучающих аэрозолей воздуха внешней среды, при значениях расхода воздуха через систему, которые не соответствуют рабочему. Применение смесителя в соотношении расходов (20÷40)% загрязненного и (60÷80)% предварительно очищенного позволяло варьировать

объемную активность аэрозоля, поступающего в пробоотборную систему, поддерживая расход воздуха на рабочем уровне.

Использование данной схемы отбора проб позволяет при обработке результатов измерений активности сеток и проб с каскадов импактора провести оценку активности нанометровой фракции промышленных альфа-излучающих аэрозолей и при определенных условиях оценить распределение наночастиц по размерам.

По данной схеме было отобрано 13 проб, из которых 7 штук отбирались на «чистые» сетки, а 6 проб было отобрано на сетки, покрытые тонким слоем глицерина.

Вторая схема (схема № 2) отбора проб приведена на рисунке 4.27. В соответствии с данной схемой разбавленный в смесителе отбираемый воздух сперва поступает на аэрозольный фильтр типа АФА-РСП-20, который используется в штатной системе мониторинга загрязнения воздуха рабочих помещений предприятий ядерного топливного цикла. После прохождения фильтра не задержанные на нем частицы поступают в диффузионную батарею, где они осаждаются на сетках. Результаты измерения активности отобранных с помощью описанной выше схемы позволят оценить проскок аэрозолей через фильтр АФА-РСП-20 и эффективность штатной системы мониторинга загрязнения воздуха рабочих помещений. По описанной схеме было отобрано 3 пробы.

Третья схема отбора проб отличается от второй тем, что вместо фильтра типа АФА-РСП-20 устанавливается фильтрующий материал средства индивидуальной защиты органов дыхания «Лепесток -200» (рисунок 4.27).

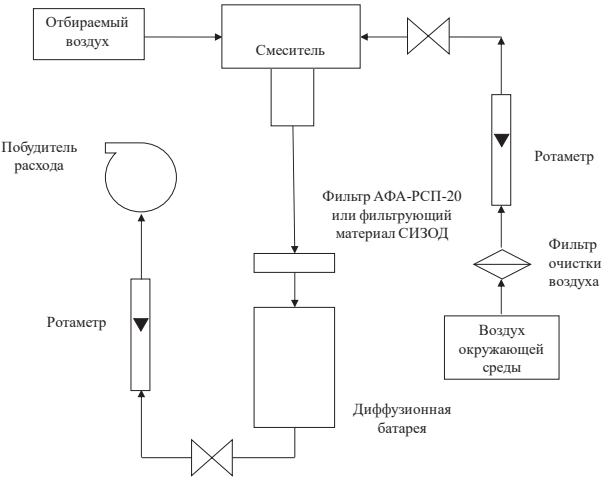


Рисунок 4.27 – Вторая и третья схемыотбора проб аэрозолей и наночастиц

В данном случае имеется возможность оценить эффективность улавливания аэрозолей всех фракций материалом СИЗОД, который используется на предприятиях Росатома РФ. По данной схеме было отобрано 3 пробы.

Четвертая схема отбора проб представлена на рисунке 4.28. В соответствии с четвертой схемой отбираемый воздух после разбавления направляется непосредственно в диффузионную батарею. При этом в соответствии с теорией фильтрации крупные частицы практически не улавливаются сетками диффузионной батареи и улавливаются оконечным фильтром.

4.3.2. Измерение активности ^{241}Am частиц, уловленных диффузионной батареей

Результаты измерения активности частиц, уловленных сетками диффузионной батареи и оконечным фильтром в сравнении с данными, полученными при отборе проб по первой схеме, при достаточной статистике измерений позволят провести оценку вклада в активность наночастиц на сетках частиц микронного размера. По данной схеме было отобрано 3 пробы. После отбора проб был проведен гамма-спектрометрический анализ активности ^{241}Am, присутствовавшего в частицах уловленных сетками диффузионной батареи и фильтрами. Результаты указанных измерений приведены в таблице 4.24. Кроме измерений активности ^{241}Am на сетках диффузионной батареи были проведены измерения активности данного нуклида в пробах импактора, которые были получены в ходе отбора 11-й, 12-й и 13-й проб по первой схеме. Результаты этих измерений представлены в таблице 4.25. В качестве замечаний к полученным результатам измерения активности нуклидов на каскадах импактора и диффузионной батареи промышленных альфа-излучающих аэрозолей необходимо подчеркнуть следующие обстоятельства – при отборе проб аэрозолей из воздуха рабочих помещений завода РТ ремонтных операций не проводилось. Нештатных ситуаций, связанных с разгерметизацией основного оборудования и поступлением в помещения значительного количества альфа-излучающих аэрозолей также не было зарегистрировано.

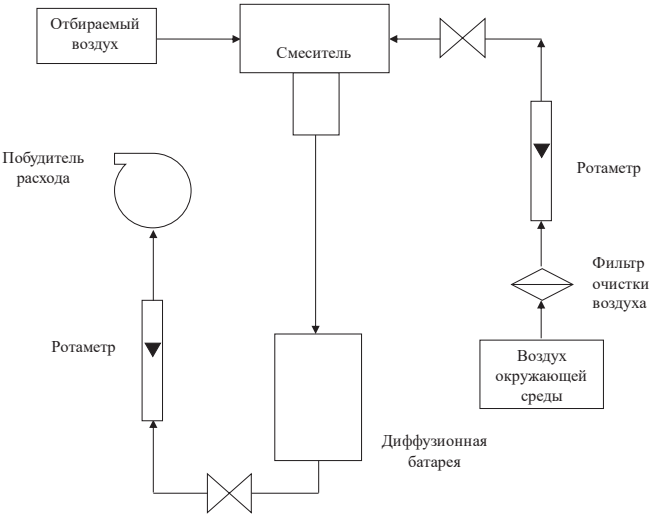


Рисунок 4.28 – Четвертая схема отбора аэрозолей и наночастиц

Таблица 4.24 – Распределение активности ^{241}Am (Бк) в пробах диффузионной батареи

	Активность ^{241}Am, Бк					
Проба (размер ячеек экрана, наличие глицерина)	1 (0,2 мм, нет)	2 (0,2 мм, нет)	3 (0,2 мм, да)	4 (0,08 мм, нет)	5 (0,08 мм, да)	6 (0,04 мм, нет)
Входной фильтр	-	-	-	-	-	-
Экран 1	444,71	0,96	*	215,69	123,72	12,75
Экран 2	16,03	0,41	*	57,33	42,26	0,33
Экран 3	8,12	2,82	4,88	1,63	24,10	0,70
Экран 4	7,45	0,12	*	0,86	148,75	0,00
Экран 5	3,81	0,09	*	0,26	17,43	0,08
Экран 6	14,60	0,21	*	0,19	17,40	*
Экран 7	12,80	0,61	0,13	2,58	2,72	7,99
Выходной фильтр	1011,87	189,33	1,10	31,47	72,36	2,92
Объем воздуха, литр	280	370	370	340	370	350
Проба (размер ячеек экрана, наличие глицерина)	7 (0,04 мм, да)	8 (0,2 мм, нет)	9 (0,08 мм, нет)	10 (0,04 мм, нет)	11 (0,2 мм, да)	12 (0,08 мм, да)
Входной фильтр	-	-	-	-	-	-
Экран 1	4,50	0,36	89,29	48,89	1152,85	*
Экран 2	*	0,51	1,58	4,49	0,62	*
Экран 3	*	0,76	*	*	1,73	*

	Активность ^{241}Am, Бк					
Экран 4	*	*	*	*	3,77	*
Экран 5	*	*	1,12	*	16,96	*
Экран 6	*	*	*	0,39	*	0,14
Экран 7	*	*	*	*	0,37	0,17
Выходной фильтр	0,34	83,85	9,75	0,48	6,78	0,98
Объем воздуха, литр	380	380	380	380	380	380
Проба (размер ячеек экрана, наличие глицерина)	13 (0,04 мм, да)	14 (0,2 мм, нет)	15 (0,08 мм, нет)	16 (0,04 мм, нет)	17 (0,2 мм, нет)	18 (0,08 мм, нет)
Входной фильтр	-	988.51	1093.75	673.69	511.62	2905.12
Экран 1	1,73	0,11	*	0,28	*	*
Экран 2	2,26	*	*	0,12	*	*
Экран 3	0,62	*	*	0,12	0,17	*
Экран 4	4,24	1,99	*	*	*	*
Экран 5	0,48	*	*	*	*	*
Экран 6	0,16	0,16	*	*	0,14	*
Экран 7	*	*	*	*	*	*
Выходной фильтр	2,79	0,70	0,29	1,38	*	*
Объем воздуха, литр	380	380	380	380	380	380
Входной фильтр	427,37					
Экран 1	*	8,41	158,30	582,13		
Экран 2	*	9,22	0,29	2,95		
Экран 3	*	2,15	0,19	1,59		
Экран 4	*	20,82	1,41	1,77		
Экран 5	*	18,09	0,10	2,00		
Экран 6	*	0,10	0,33	1,33		
Экран 7	*	0,69	0,12	2,24		
Выходной фильтр	0,21	787,64	16,96	192,83		
Объем воздуха, литр	380	380	380	380		

Примечание: * – результат не превышал НПДИ гамма-спектрометрического метода выполнения измерений.

Таблица 4.25 – Распределение активности ^{241}Am (Бк) в пробах импактора

Номер каскада	Активность ^{241}Am, Бк
Каскад 1	1958,72
Каскад 2	1283,30
Каскад 3	382,95
Каскад 4	184,95
Каскад 5	179,94
Каскад 6	158,57
Объем воздуха, литр	1140

4.3.3. Анализ результатов измерений активности ^{241}Am в отобранных пробах

Суммарная активность ^{241}Am частиц, уловленных сетками и фильтром диффузионной батареи, характеризуется большим (в пределах трех порядков величины) разбросом. Так, рассматриваемый показатель в пробе № 12 составил 1,3 Бк, в то время как суммарная активность пробы № 1 составила ≈ 1500 Бк. Значительный разброс является следствием изменений объемной активности анализируемого воздуха в связи с выполнением тех или иных технологических операций.

Распределение активности ^{241}Am по улавливающим элементам диффузионной батареи от пробы к пробе характеризовался значительной вариабельностью. Об этом свидетельствует распределение относительной активности ^{241}Am в пробах № 6 и № 10. Указанное распределение приведено на рисунке 4.29.

Несмотря на указанную неравномерность распределения активности ^{241}Am наблюдается общая закономерность в рассматриваемом показателе. Она заключается в следующем. Для большинства проб на первой сетке и оконечном фильтре регистрировались сравнительно большие значения активности ^{241}Am. В то же время значения данного показателя на промежуточных сетках оказался сравнительно низок. Графическая иллюстрация сказанного приведена на рисунке 4.30, где изображено относительное (в долях от суммарной активности) распределение активности ^{241}Am на сетках трех типов (с размером ячеек 0,2, 0,08 и 0,04 мм).

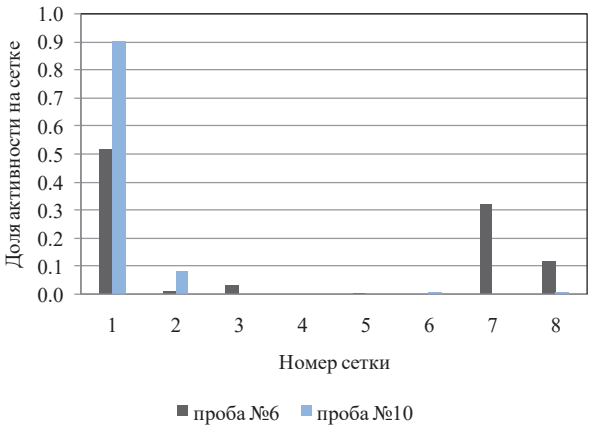


Рисунок 4.29 – Распределение относительной активности по улавливающим элементам диффузионной батареи (восьмой улавливающий элемент – оконечный фильтр)

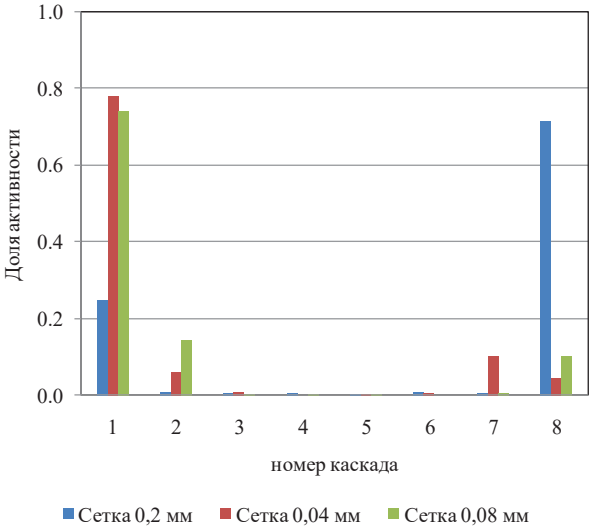
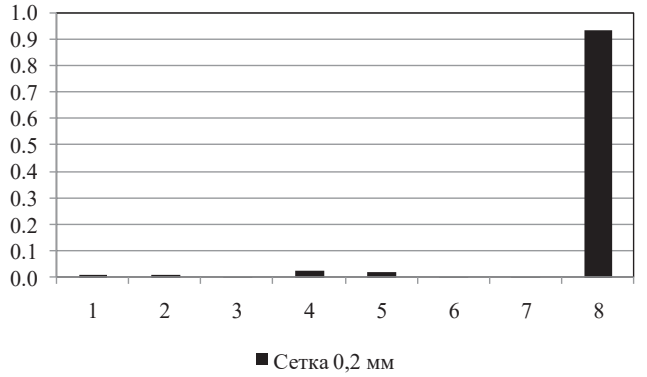
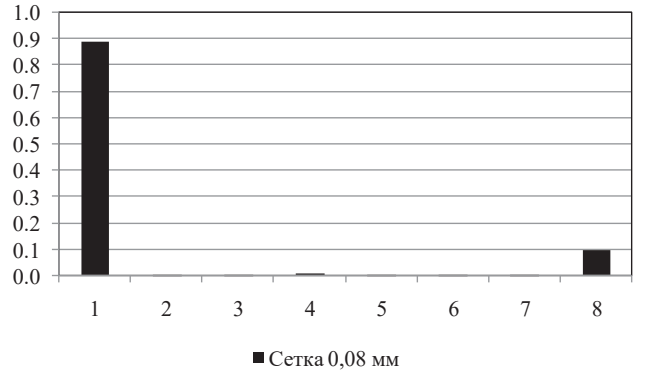


Рисунок 4.30 – Распределение активности ^{241}Am по улавливающим элементам, включая оконечный фильтр (№ 8)

Приведенное на рисунке 4.30 распределение относительное активности ^{241}Am было получено путем усреднения результатов измерений для каждого случая (ячейки 0,2, 0,08 и 0,04 мм). Пробы отбирались по первой схеме, когда отбираемы воздух в начале проходил через импактор, в результате чего крупнодисперсная фракция аэрозоля не попадала в диффузионную батарею и на вход в диффузионную батарею поступали частицы, АМАД которых не превышал 0,7 мкм.

Значительный интерес представляет анализ результатов измерения активности ^{241}Am на улавливающих элементах диффузионной батареи, когда пробы воздуха отбирались по второй схеме. В этом случае проба воздуха направлялась непосредственно в диффузионную батарею без предварительной очистки с помощью импактора или фильтрующего материала. Относительное распределение активности ^{241}Am, по улавливающим элементам диффузионной батареи, включая оконечный фильтр, представлено на рисунке 4.31.





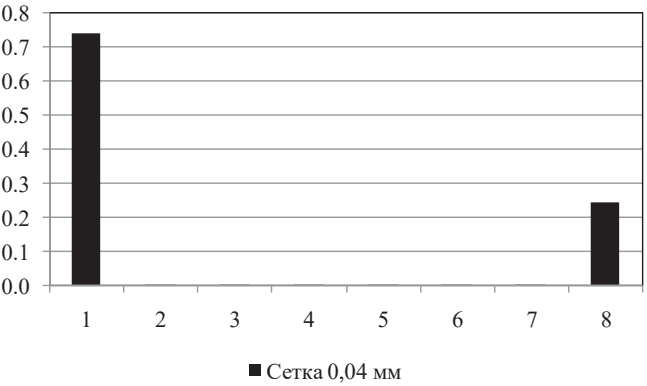


Рисунок 4.31 – Относительное распределение активности ^{241}Am частиц
на улавливающих элементах диффузионной батареи при отборе проб по второй схеме

Прежде, чем перейти к анализу данных, приведенных на рисунке 4.31, необходимо сделать ряд замечаний, необходимых для дальнейшего анализа. Суммарная активность ^{241}Am частиц, отобранных в ходе данного эксперимента, значительно не различалась и составила 847 Бк, 178 Бк и 786 Бк для сеток с размерами ячеек 0,2 мм, 0,08 мм и 0,04 мм соответственно. Учитывая это обстоятельство можно предполагать, что состояние технологического оборудования в период отбора проб существенно не различалось. Следовательно, и спектр размеров аэрозольных частиц не мог различаться кардинально. То есть в диффузионную батарею поступала смесь частиц различных размеров. Дополнительно необходимо отметить следующее обстоятельство. Отбирался воздух до газоочистки. Значит, среди аэрозольных частиц должны были превалировать частицы сравнительно больших размеров.

Из рисунка 4.31 следует, что в случае использования для отбора проб сетки с размером ячейки 0,2 мм 93% активности ^{241}Am было обнаружено на оконечном фильтре. Суммарная активность частиц, уловленных сетками, составила 7%. В случае, когда для отбора проб использовались сетки, размер ячеек которых составлял 0,08 мм и 0,04 мм, на первой по ходу отбираемого воздуха сетке была обнаружена большая активность ^{241}Am. Для случая отбора на сетки с ячейками 0,08 мм относительная активность составила 89%. Для сеток с размером ячеек 0,04 мм этот показатель составил 74%. Активность частиц, уловленных оконечным фильтром, равнялась 9,5% и 24% для сеток с размером ячеек 0,08 мм и 0,04 мм соответственно. Во всех трех отборах активность ^{241}Am частиц на промежуточных сетка была чрезвычайно мала.

В рамках теории фильтрации, разработанной для сетчатых диффузионных батарей, считается, что крупные частицы размером более 1 мкм улавливаются сетками с очень низкой эффективностью. Иначе говоря, крупные частицы без особого труда могут преодолевать сетки и улавливаться оконечным фильтром. Если теория фильтрации верна, то для условий рассматриваемого отбора проб на оконечном фильтре следует ожидать значительную относительную активность. Как указывалось выше, такая картина распределения наблюдалась только в первом случае (сетки 0,2 мм). Во втором и третьем случаях наблюдалась прямо противоположная картина. Для объяснения полученного результата можно выдвинуть несколько предположений: изменение спектра размеров частиц, попадание в диффузионную батарею крупной высоко активной частицы и т. п.

Трудно себе представить, что за время, прошедшее между первым и вторым отборами проб (1 сутки) произошло столь катастрофическое изменение спектра размеров частиц, так что через 24 часа активность наночастиц в общей смеси возросла с 1% до 89%.

Наблюдаемую картину распределения относительной активности можно попытаться объяснить поступлением в диффузионную батарею крупных частиц, активность которых существенно выше суммарной активности наночастиц. Однако в этом случае при первом отборе проб на фоне большого числа наночастиц в диффузионную батарею должна попасть одна единственная частица, которая успешно преодолела все сетки диффузионной батареи, и задержаться на оконечном фильтре, обеспечивая его относительную активность на уровне 93% суммарной активности пробы. Одновременно с этим во втором отборе в диффузионную батарею должно поступить ровно две крупные микронные частицы. При этом первая большая по размерам должна быть уловлена первой сеткой, а вторая, преодолев все семь сеток, должна быть, уловлена оконечным фильтром. В третьем отборе проб должна наблюдаться та же самая картина с двумя крупными частицами. Очевидно, что описанная выше ситуация является также маловероятной, как и катастрофическое изменение спектра размеров отбираемых аэрозолей.

Столь противоречивая картина распределения относительной активности ^{241}Am по улавливающим элементам диффузионной батареи в случае применения сеток с различными размерами ячеек может быть дано следующее разумное объяснение. Теория фильтрации частиц через сетки диффузионной батареи является работоспособной для сеток с размером ячеек около 0,2 мм. В случае фильтрации частиц через мелкие сетки теория фильтрации неверно описывает процесс улавливания крупных частиц. Таким образом, для исследования свойств наночастиц и, в частности, их размеров мелкие сетки не применимы.

Сравнение результатов измерений суммарной активности ^{241}Am частиц, уловленных импактором и диффузионной батареей, показывает, что на долю частиц, уловленных диффузионной батареей (АМАД < 0,7 мкм) приходится 29% от суммарной активности, частиц, уловленных двумя устройствами.

Анализ измерений удельной активности ^{241}Am на улавливающих элементах второй и третьей схем отбора проб показывает, что фильтры типа АФА-РСП-20 и фильтрующий материал СИЗОД «Лепесток-200» высокоэффективно улавливают как аэрозоли микронных размеров, так и наночастицы. Проскок аэрозолей через один слой фильтра типа АФА-РСП-20 варьировал в пределах от 0,026% до 0,3%. В случае применения фильтрующего материала СИЗОД «Лепесток-200» значение этого параметра менялось от 0,05% до 0,06%.

Заключение

В ходе исследования процессов образования нанометровой фракции промышленных альфа-излучающих аэрозолей разработан метод переноса наночастиц с поверхности сеток диффузионной батареи на поверхность трекового детектора. В качестве рабочей жидкости испытывались дистиллированная вода и этиловый спирт. Процесс перехода частиц в рабочую жидкость стимулировали подачей разности потенциалов разной полярности на металлическую сетку и электрод. Было показано, что при подаче на сетку отрицательного потенциала лишь единицы процентов частиц покидают поверхность сетки. Напротив подача на сетку положительного потенциала стимулировала процесс перехода частиц в рабочую жидкость. Тем не менее, полного переноса частиц в рабочую жидкость достичь не удалось. После нанесения на трековые детекторы ОРР плутония они были подвергнуты облучению в поле нейтронов. Статистическая обработка визуализированных треков показала, что МДА для кварцевого стекла составила 20 мкБк, в случае обычного стекла – 50 мБк, из чего был сделан вывод о том, что для исследований свойств наночастиц приемлемым трековым детектором является кварцевое стекло. В ходе исследований по совершенствованию метода отбора проб наночастиц была разработана теория межкаскадного переноса наночастиц, а также проведены исследования по снижению межкаскадного переноса. Показано, что нанесение на сетки диффузионной батареи тонкого слоя глицерина межкаскадный перенос наночастиц снижается.

При выполнении исследований активности нанометровой фракции промышленных альфа-излучающих аэрозолей воздуха рабочих помещений с помощью диффузионной батареи было отобрано 22 пробы. Каждый улавливающий элемент диффузионной батареи был подвергнут гамма-спектрометрическому анализу для определения активности ^{241}Am, присутствующего в наночастицах. Сравнительный анализ распределения активности ^{241}Am по улавливающим элементам диффузионной батареи выявил существенные различия в суммарной активности от пробы к пробе, которая достигала трех порядков величины (от 1,3 Бк до 1500 Бк). Анализ распределения относительной активности ^{241}Am по улавливающим элементам продемонстрировал значительную неравномерность. В большинстве случаев основная активность частиц регистрировалась на первой сетке батареи и на оконечном фильтре. Сравнение результатов измерений суммарной активности ^{241}Am частиц, уловленных импактором и диффузионной батареей, показывает, что на долю частиц, уловленных диффузионной батареей (АМАД < 0,7 мкм) приходится 29% от суммарной активности, частиц, уловленных двумя устройствами. Сравнительный анализ относительного

распределения ^{241}Am по улавливающим элементам диффузионной батареи в условиях использования сеток, имеющих различные значения ячеек, дал основание усомниться в работоспособности теории фильтрации для сеток с размером ячеек 0,08 мм и 0,04 мм. Таким образом, для исследований размеров наночастиц предложено использовать сетки с размером ячеек 0,2 мм.

Анализ измерений удельной активности ^{241}Am на улавливающих элементах второй и третьей схем отбора проб показывает, что фильтры типа АФА-РСП-20 и фильтрующий материал СИЗОД «Лепесток-200» высокоэффективно улавливают как аэрозоли микронных размеров, так и наночастицы. Проскок аэрозолей через один слой фильтра типа АФА-РСП-20 варьировал в пределах от 0,026% до 0,3%. В случае применения фильтрующего материала СИЗОД «Лепесток-200» значение этого параметра менялось от 0,05% до 0,06%.

Список литературы к главе 4

1. International Commission on Radiological Protection. Human respiratory tract model for radiological protection. ICRP Publication 66. – Oxford: Pergamon Press, 1994. – 482 p.

2. M.D. Dorrian, M.R. Bailey, Particle Size Distributions of Radioactive Aerosols Measured in Workplaces. // Radiat. Prot. Dosim., Vol. 60, No. 2, pp. 119–133 (1995).

3. Эйнштейн А., Смолуховский М. Броуновское движение: Сборник статей. – М. – Л.: ОНТИ, 1936.

4. Yeh H.C. A fundamental study of aerosol filtration by fibrous filters. Ph. D. Thesis, university of Minnesota. (1972).

5. Davies C.N. Air filtration. Academic Press, New York. (1973).

6. Kirsch A.A. and Stechkina I.B. Fundamentals of aerosol science. Chap. 4, p. 165, 1978, New York.

7. Cheng Y.S., Yeh H.C. Theory of screen type diffusion battery. Journal of Aerosol Science 11: 313–319; 1980.

8. Гангрский Ю.П., Марков И.Г., Перелыгин В.П. Регистрация и спектрометрия осколков деления. – М.: Энергоатомиздат, 1979. 224 с.

5. МЕТОД ДЕТЕКТИРОВАНИЯ ПРОМЫШЛЕННЫХ АЛЬФА-ИЗЛУЧАЮЩИХ НАНОЧАСТИЦ ^{239}Pu И ИЗМЕРЕНИЯ ИХ РАЗМЕРОВ

В. Э. Введенский, С. А. Сыпко, Г. Н. Бобов

Исследования физических и химических свойств наночастиц $^{239}PuO_2$, а также их метаболизма в организме человека невозможны без разработки соответствующих методов выполнения измерений. Учитывая специфику исследований, которая заключается в чрезвычайно малых размерах объекта изучения (а, следовательно, крайне низкой его активности), можно сформулировать следующие требования к методам выполнения измерений:

- метод выполнения измерения должен быть неразрушающим, иначе говоря, в процессе подготовки проб наночастиц и последующего измерения сами частицы не должны подвергаться разрушению;
- метод выполнения измерений должен обладать очень высокой чувствительностью.

Оба требования, как отмечалось, вытекают из малых размеров объекта исследований. Из литературы известно, что наночастицы плутония или фрагменты, которые образуются в результате альфа-распада изотопов, могут иметь размеры не более (10^4–10^5) атомов. В связи с этим применение радиометрических методов анализа в исследованиях свойств наночастиц плутония в значительной мере ограничено. Это связано с тем, что в процессе радиохимического анализа, как правило, проводится так называемое влажное озоление, которое заключается в обработке пробы кислотами до полного растворения радиоактивного вещества. Затем анализируемое радиоактивное вещество тем или иным способом выделяется и подвергается ядерно-физическому анализу (измерение активности). Очевидно, что в таких условиях возможное присутствие в анализируемом образце незначительного числа частиц плутония микронного диапазона способно кардинально (на несколько порядков величины) изменить результат анализа и его последующую трактовку. Для иллюстрации сказанного достаточно оценить активность Pu, содержащегося в частице размером 1 мкм. И активность нуклида в частице размером 10 нм.

Цель данного исследования состояла в разработке метода измерения диаметра наночастиц $^{239}PuO_2$ и оценке метрологических характеристик разработанного метода.

Основные задачи:

- Разработка метода интерпретации визуализированных изображений треков;
- Исследование динамики травления латентных треков деления;

- Разработка количественного критерия для отнесения группы треков к звезде;
- Разработка метода измерений диаметра наночастиц $^{239}PuO_2$;
- Разработка метода измерения диаметра частицы $^{239}PuO_2$ в том случае, когда все треки в звезде сосчитать невозможно (далее сложной звезде);
- Оценка метрологических характеристик метода измерения диаметра наночастиц $^{239}PuO_2$.

5.1. Наночастицы и биологические объекты

5.1.1. Проблемы безопасности нанотехнологий

Известно, что наночастицы и наносистемы влияют на здоровье человека [1]. Обычно к наночастицам относят объекты, размер которых не превышает 700 нм. За максимальный размер нанообъекта принимают 100 нм. Виды опасности нанообъектов связывают с их физико-химическими свойствами: высокой дисперсностью, характером процессов взаимодействия с жидкостями организмов, элементами живой клетки. Наночастицы демонстрируют поведение в биологических системах, которое существенно отличается от поведения частиц другого размера [1–9].

Анализ литературных данных показывает, что для исследований свойств наночастиц приемлемыми могут оказаться следующие методы измерения:

- авторадиографический метод;
- метод нейтронно-индуцированной трековой дозиметрии;
- метод электронной микроскопии.

Метод авторадиографии успешно применяется для изучения дисперсного состава промышленных альфа-излучающих аэрозолей, а также в исследованиях микрораспределения актинидов в органах и тканях подопытных животных и человека [10]. Однако применимость данного метода в исследованиях свойств наночастиц весьма ограничено. Нетрудно оценить число альфа-распадов ^{239}Pu, составляющих наночастицу размером в 10^4 атомов (максимальный размер фрагментов, образующихся при альфа-распаде этого радионуклида в микронных частицах) за один год наблюдения. Оно составляет ≈0,3. Иначе говоря, за период в 3 года каждый фрагмент диоксида Pu указанного размера в среднем даст приблизительно один альфа-распад. Учитывая то, что эффективность регистрации альфа-распадов авторадиографического метода составляет приблизительно 0,3 [11], можно с уверенностью оценить, что приблизительно за 10 лет наблюдений в среднем будет образовываться один альфа-трек. Исключение составляют актиниды, имеющие сравнительно короткий период полураспада. К таким альфа-излучающим радионуклидам

относится ^{238}Pu. Неслучайно при исследовании фрагментации диоксида ^{238}Pu был применен рассматриваемый метод выполнения измерений. Однако производственных участков, в воздухе рабочих помещений которых присутствует диоксид ^{238}Pu без примеси ^{239}Pu, крайне мало. В подавляющем большинстве производственных помещений в состав промышленных альфа-излучающих аэрозолей входит ^{239}Pu. Причем массовая доля этого нуклида значительно превалирует. Таким образом, можно сделать вывод о том, что авторадиографический метод неприменим в исследованиях свойств нанометровых промышленных аэрозолей ^{239}Pu.

Сущность метода нейтронно-индуцированной трековой дозиметрии заключается в следующем. Анализируемый образец помещают между двумя трековыми детекторами. Полученную сборку подвергают облучению в поле нейтронов. В результате деления ядер ^{239}Pu возникают осколки. В среднем суммарная кинетическая энергия осколков, образующихся при делении ядер ^{235}U и ^{239}Pu, составляет величину, приблизительно равную 203 МэВ. Осколки, взаимодействуя с материалом трекового детектора, оставляют в нем латентный трек. После облучения трековый детектор подвергают специальной обработке для визуализации образовавшихся латентных треков. В качестве материала трековых детекторов в зависимости от характера исследований используют поликарбонат (CR-39), лавсан, слюду, стекло, кварц. Флюенс нейтронов, который необходимо создать для получения, например, десяти треков деления ядер ^{239}Pu в наночастице, имеющей размер 10^4 атомов. Он составляет приблизительно 10^{18}см$^{-2}$. Учитывая то, что плотность потока тепловых нейтронов исследовательских реакторов составляет величину приблизительно $(2\div3)10^{14}$ с$^{-1}$см$^{-2}$, оценка времени необходимого для получения 10 треков деления будет лежать в пределах $(2\div3)10^3$ с или несколько часов. Оценка проведена с учетом того, что эффективность регистрации нейтронно-индуцированного трекового метода составляет величину приблизительно равную 0,9 [12,13]. Таким образом, можно считать, что метод трековой дозиметрии является пригодным для проведения исследований свойств наночастиц ^{239}Pu. Недостатком данного метода является то, что с его помощью не представляется возможным определить морфологические характеристики ни самих наночастиц, ни микронных частиц, которые генерируют свободные фрагменты.

5.2. Разработка метода интерпретации визуализированных изображений треков

5.2.1. Терминология

Звезда – это группа треков от отдельной наночастицы ^{239}Pu на поверхности трекового детектора, полученных в результате нейтронно-индуцированного метода.

Простая звезда – это звезда, в которой возможно визуально сосчитать все треки с помощью оптического микроскопа.

Сложная звезда – это звезда, в которой по каким-либо причинам невозможно визуально сосчитать все треки, например, некоторые треки перекрываются, или область звезды выходит за площадь детектора и т. п.

Толстый слой – этот термин применяется для случая, когда между трековых детекторов расположена ткань органов человека. Этот термин введен для упрощения повествования. Для случая, когда между трековыми детекторами – воздух специальный термин не вводился.

5.2.2. Метод интерпретации визуализированных изображений треков

Нейтронно-индуцированный метод определения активности ^{239}Pu, присутствующего в наночастицах диоксида плутония, включает в себя следующие этапы:

- облучение наночастиц, нанесенных на поверхность трекового детектора, в поле тепловых нейтронов;
- визуализация латентных треков путем травления поверхности детектора;
- классификация полученных изображений треков путем их группировки в отдельные звезды, образованные в результате деления ядер ^{239}Pu, содержащихся в одной наночастице;
- подсчет числа треков в классифицированных звездах;
- расчет активности ^{239}Pu и размеров наночастиц с учетом числа треков, образующих звезду, спектра нейтронов, их флюенса, сечения реакции деления^{239}Pu и эффективности регистрации осколков деления трековым детектором.

В связи со сказанным возникает две взаимосвязанные проблемы. Первая состоит в необходимости отделения фоновых треков, обусловленных делением ^{235}U от треков, создаваемых делением ядер ^{239}Pu, содержащихся в наночастицах малого размера. Вторая проблема заключается в разработке количественного критерия отнесения группы визуализированных треков к данной звезде, образованной в результате деления наночастицы под воздействием тепловых нейтронов. В ходе исследований, направленных на разработку нейтронно-индуцированного метода измерения размеров наночастиц, проводился анализ изображений визуализированных треков деления, который показал следующее. Треки образуют следующие конфигурации:

- одиночные треки, которые могут являться, либо следствием деления ^{235}U, присутствующего в приповерхностном слое материала детектора, либо результатом деления ^{239}Pu, содержащегося в наночастице столь малого размера, что при данном значении флюенса и эффективности регистрации будет зарегистрирован единичный трек;

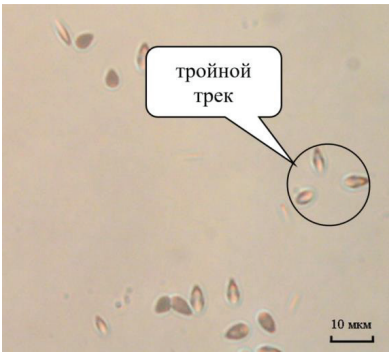
- двойные треки, расположенные, как вплотную, так и на различных расстояниях (рис. 5.1);
- звезды, образованные треками, исходящими из одного центра, а также звезды, которые центров не имели (рис. 5.1);
- группы близко расположенных треков, которые можно интерпретировать как треки, образованные делением ядер ^{239}Pu, содержащегося в одной или более наночастиц;
- образования близко расположенных треков, которые по геометрическим соображениям нельзя рассматривать в качестве результата деления ядер плутония, расположенных в наночастице (рис. 5.1).

Таким образом, при решении задачи классификации изображений треков возникло две качественно различавшиеся ситуации. В первой визуализированные треки, в числе которых были парные или тройные треки, начала которых располагались вплотную, а также звезды, имевшие явный центр, с очевидностью можно было приписывать одной наночастице. Во втором случае этого сделать было нельзя, что приводило к необходимости прибегать к дополнительным рассуждениям и использовать некоторые критерии, выполнение которых позволяло приписывать видимые треки к звезде, образованной делением ядер ^{239}Pu, содержащегося в одной наночастице.

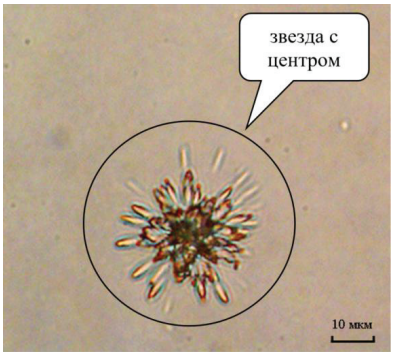
Как указывалось ранее, характерный вид визуализированных треков в подавляющем большинстве случаев позволяет определить направление влета осколка деления в материал детектора. С геометрической точки зрения в условиях идеально плоской поверхности треки деления ^{239}Pu, содержащегося в одной наночастице, должны исходить из одной точки. Учитывая большую разницу в масштабах характерных размеров наночастицы (нанометры) и визуализированного трека (единицы микрон), можно с уверенностью линейными размерами наночастицы пренебречь. Несмотря на это, наряду со звездами, очевидным образом имевшими центр, в большом количестве наблюдались звезды, единого центра не имевшие. Вместе с тем оси симметрии этих треков пересекались в малой окрестности, что указывало на образование латентных треков осколками деления, вылетавшими из одной точки. То есть они были образованы делением ядер ^{239}Pu, содержащихся в одной наночастице. Теоретически можно представить, что в описанной окрестности одновременно было локализовано несколько наночастиц, которые были причиной образования треков, образующих звезду без центра. Однако в ходе анализа изображений треков было выявлено сравнительно большое число звезд, не имевших центров. В связи с этим представляется маловероятным, что звезды без центров являются следствием скопления нескольких наночастиц в узких областях, характерный размер которых исчисляется единицами микрон.



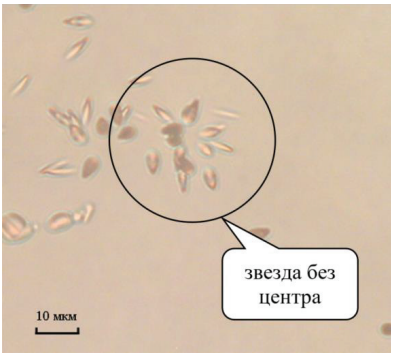
Двойной трек с расположенными вплотную единичными треками



Тройной трек, из единичных треков, расположенных на расстоянии друг от друга



Звезда, образованная треками, исходящими из одного центра



Звезда, образованная треками, которые не исходят из одного центра

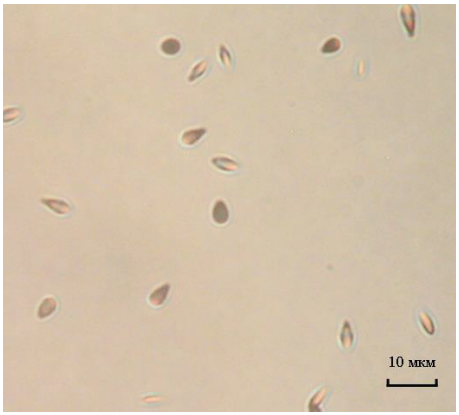


Рисунок 5.1 – Взаимное расположение треков. Близко расположенные треки, которые нельзя рассматривать как результат деления ^{239}Pu, в наночастице

В действительности поверхность детектора не представляет собой абсолютную «геометрическую» плоскость. Два последовательно помещаемых в сборку детектора не соприкасаются абсолютно не только по причине отклонения поверхностей от плоскостности. Между двумя последовательно расположенными детекторами в процессе работы с ними (нанесение на поверхность образцов наночастиц, ОРР и т.п.) из окружающей среды могут попадать неактивные частицы, размер которых может исчисляться единицами микрон. Поэтому две смежные стороны детекторов в сборке никогда не соприкасаются «абсолютно» во всех своих точках. Иными словами, между смежными сторонами детекторов всегда существует свободное пространство. С физической точки зрения образовавшиеся осколки деления наночастиц могут перемещаться в пространстве между поверхностями смежных трековых детекторов. В отдельных случаях, когда существует достаточно большое пространство, фрагменты способны перемещаться на сравнительно большие расстояния от точки их первоначального образования (рис. 5.2).

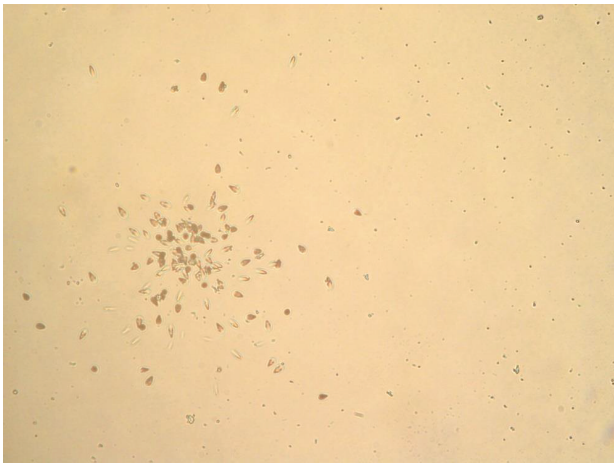


Рисунок 5.2 – Пример перемещения фрагментов наночастиц

Возможность существования таких условий проиллюстрирована на рисунках 5.3 и 5.4, где приведен результат анализа профиля поверхности облученного и протравленного детектора площадью 1 мм^2. Из рисунков 5.3 и 5.4 следует, что в направлении оси X перепад высот поверхности детектора на расстоянии 1 мм может достигать 8 мкм. Иными словами, можно утверждать, что в данном направлении теоретически расстояние между смежными детекторами способно достигать величины 16 мкм. Из этих же рисунков (5.3 и 5.4) видно, что вовсе не вся поверхность трекового детектора представлена

только некоторыми «впадинами» и «выпуклостями». Так, в направлении Y на отдельных участках высота поверхности детектора практически не меняется (неизменный красный цвет в левой части квадрата рисунка 5.3), или меняется в пределах 0,5 мкм (синий участок поверхности). То есть существенная часть поверхности детектора может обладать значительной плоскостностью. Отсюда следует, что образовавшиеся фрагменты могут быть существенно ограничены в своем движении. И, наконец, существуют участки поверхности смежных трековых детекторов, которые прилежат друг к другу «вплотную» так, что наночастицы могут находиться между ними «вплотную». Это приводит к минимальному разлету фрагментов и образованию звезд с явно выраженными центрами.

В результате деления ядер ^{239}Pu, содержащихся в наночастице, расположенной на одной стороне детектора, возникают осколки, которые, достигая поверхности противоположного детектора, образуют в нем латентные треки (рис. 5.5).

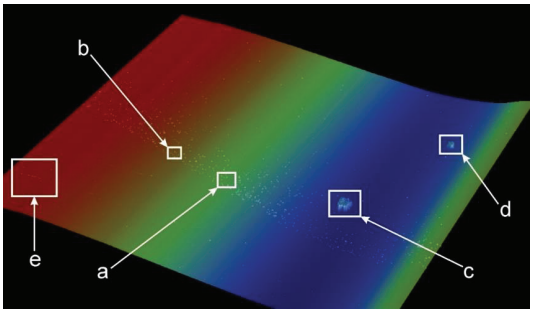


Рисунок 5.3 – Поверхность детектора площадью 1мм^2. Участки a-e особенности поверхности детектора. Участки a и b – визуализированные треки деления. Участки c и d – инородные объекты на поверхности. Участок e – царапина на поверхности детектора

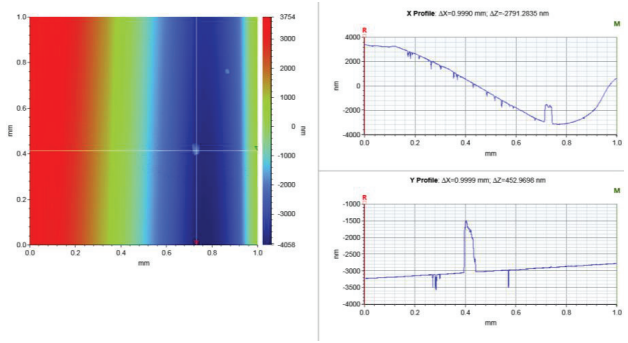


Рисунок 5.4 – Анализ профиля поверхности детектора площадью 1 мм^2

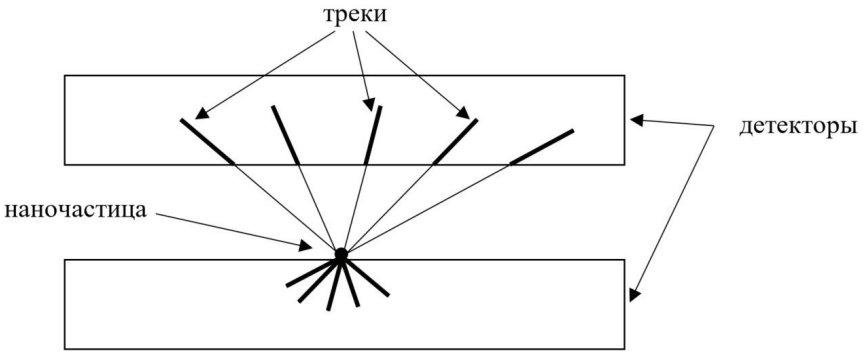


Рисунок 5.5 – Образование звезд без центра (схематично)

При этом латентные треки в материале противоположного детектора разнесены от точки вылета осколков. В результате визуализированные треки образуют звезды без центров.

Анализ характерных размеров разбросов треков вокруг центра звезд показал, что максимальный радиус расположения точек входа осколков деления в материал смежного детектора составлял приблизительно 25 мкм. Следовательно (рис. 5.6), максимальное расстояние между двумя смежными детекторами можно оценить по формуле:

$$H = R\,\mathrm{ctg}(\alpha_k) \tag{5.1}$$

где H – максимальное расстояние между смежными детекторами, мкм;

R – максимальный радиус расположения точек влета осколков деления в материал смежного детектора;

α_k – критический угол.

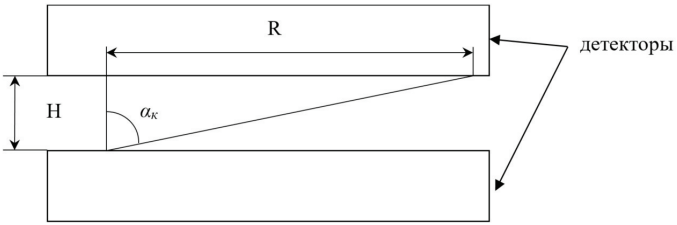
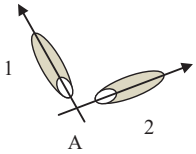
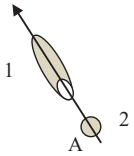
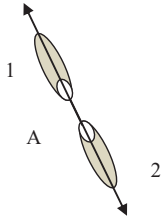
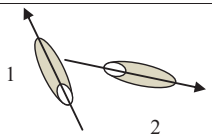
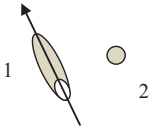
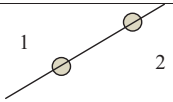


Рисунок 5.6 – Расчет максимального расстояния между смежными детекторами

Оценки показывают, что матожидание расстояния между детекторами может составлять 30 мкм. Для упрощения предполагали, что площадка, над которой существует

свободное пространство, имеет форму круга. Таким образом, площадь поверхности (ΔS), над которой имеется свободное пространство можно оценить значением $1{,}19 \cdot 10^{-3}$ мм.

Таблица 5.1 – Возможные конфигурации парных треков

№ п/п	Вид конфигурации	Описание
1		Линии симметрии двух треков пересекаются в точке А, положение которой можно легко определить. Углы входа осколков деления в материал детектора не равны π/2
2		Треки деления находятся на одной линии симметрии. Осколок № 1 входит в материал детектора под углом, не равным к π/2. Осколок № 2 входит в мишень под углом близким к π/2. Линии симметрии пересекаются в точке А
3		Линии симметрии траков совпадают. Осколки входят в материал детектора под углами не равными π/2. Точку, из которой осколки вылетели, путем геометрического построения определить не представляется возможным
4		Треки не находятся на одной оси симметрии. Точки образования треков не совпадают. Осколки входят в материал детектора под углами не равными π/2
5		Через треки нельзя провести общую линию симметрии. Осколок № 1 вошел в материал детектора под углом близким к π/2. Осколок № 2 вошел в материал детектора под углом, не равным π/2. Точки образования осколков не совпадают
6		Через треки можно провести линию симметрии. Оба осколка входят в материал детектора под углами, близкими к π/2. Точки вылета осколков не совпадают

Как указывалось выше в процессе реализации метода измерений размеров наночастиц необходимо провести классификацию изображений визуализированных треков

на основе их взаимного расположения. В таблице 5.1 приведены возможные конфигурации пары близко расположенных треков. Для простоты дальнейшего изложения под линией симметрии подразумевали проекцию траектории прямолинейного движения осколка деления в материале детектора на плоскость его поверхности.

Качественный анализ приведенной в таблице 5.1 классификации конфигураций взаимного расположения треков позволяет сделать следующие выводы. Случаи 1, 2 и 3 теоретически допускают возможность трактовать изображения как группу треков, образованных осколками деления, вылетевшими из одной точки (A), а значит обусловленных делением ядер ^{239}Pu, содержащихся в одной наночастице. В случаях 3, 4, 5 и 6 вошедшие в материал детектора осколки деления образовались в точках, расположенных на слишком большом расстоянии друг от друга, чтобы принадлежать одной наночастице. В этом случае треки следует трактовать как результат деления фонового урана, расположенного в приповерхностном слое детектора или как треки, образованные делением ^{239}Pu, содержащегося в наночастицах столь малого размера, что при данном значении флюенса произошел единичный акт деления.

Разработку метода измерения активности ^{239}Pu, содержащегося в наночастицах и размеров самих наночастиц проводили в два этапа. На первом этапе разрабатывали количественные критерии и условия, при выполнении которых два или более визуализированных трека можно с уверенностью трактовать как треки деления ядер ^{239}Pu, содержащегося в одной наночастице. На втором этапе оценивали вероятность такого взаимного расположения фоновых треков, при котором их также можно трактовать как треки, создаваемые осколками деления ядер ^{239}Pu, содержащегося в одной наночастице. Под фоновыми треками в данном случае подразумевались треки, обусловленные делением ядер ^{235}U, который присутствует в материале детектора в виде примеси.

Для получения количественных критериев того, что два наблюдаемых трека созданы делением ядер ^{239}Pu, расположенных в одной наночастице, рассматривали наиболее общий случай из возможных конфигураций, допускающих существование наночастицы (конфигурация № 1). В целях упрощения геометрического построения без потери общности рассуждений изображения треков разворачивали вокруг прямой AB, перпендикулярно пересекающей поверхность детектора в точке O, таким образом, чтобы оба трека оказались на одной линии симметрии. На рисунке 5.7 приведено изображение развернутых треков в вертикальном сечении.

На данном этапе треки представляли в виде отрезков прямой линии CD и EF. Через L обозначали длину двух визуализированных треков. Через a и b – их проекции на плос-

кость детектора. Отрезки c и d представляют собой проекции на плоскость детектора отрезков C_1O и OE от точки пересечения (O), соответствующей расположению наночастицы, до точек входа осколков в материал детектора. Через H обозначено расстояние между смежными сторонами двух детекторов, образующих свободное пространство площадью ΔS, в пределах которого осколки, испущенные из наночастицы, расположенной на одной стороне поверхности детектора свободно достигают противоположной поверхности смежного детектора, образуя в его материале латентные треки. Из геометрического построения можно получить выражение, связывающее некоторые из перечисленных выше параметров.

$$c\sqrt{\frac{L^2}{a^2}-1} = d\sqrt{\frac{L^2}{b^2}-1} \tag{5.2}$$

Учитывая, что свободное пространство между двумя смежными детекторами в плане имеет форму круга, а также выражение (5.2), можно получить формальные выражения условий, при которых два наблюдаемых трека обусловлены взаимодействием осколков деления ядер ^{239}Pu, расположенных в одной наночастице, с материалом трекового детектора:

$$\begin{aligned} a+b+c+d &\le 2\sqrt{\frac{\Delta S}{\pi}} \text{ для конфигураций 1 и 3} \\ a+b+e &\le 2\sqrt{\frac{\Delta S}{\pi}} \text{ для конфигурации 2} \end{aligned} \tag{5.3}$$

где e – видимый диаметр трека, вошедший по нормали в детектор.

Количественные критерии того, что два трека, представляемых отрезками, созданы осколками деления ядер ^{239}Pu, расположенных в одной наночастице, качественно отражают принцип классификации реально наблюдаемых визуализированных треков. Однако в действительности визуализированные треки обладают более сложной геометрией, которая определяется материалом трекового детектора и технологией травления. В связи с этим на втором этапе рассматривали более сложную конфигурацию травимого трека. Геометрия травимого трека без учета влияния диффузии продуктов реакции определяется действием двух процессов:

- скоростью травления материала детектора вдоль латентного трека (V_T);
- скоростью травления неповрежденного материала поверхности детектора (V_B).

При описании динамики формы визуализируемого трека в первом приближении принимали следующие допущения:

- линейная скорость травления материала детектора вдоль трека (V_T) является постоянной величиной в течение всего процесса;
- линейная скорость травления неповрежденного материала (V_B) постоянна и изотропна.

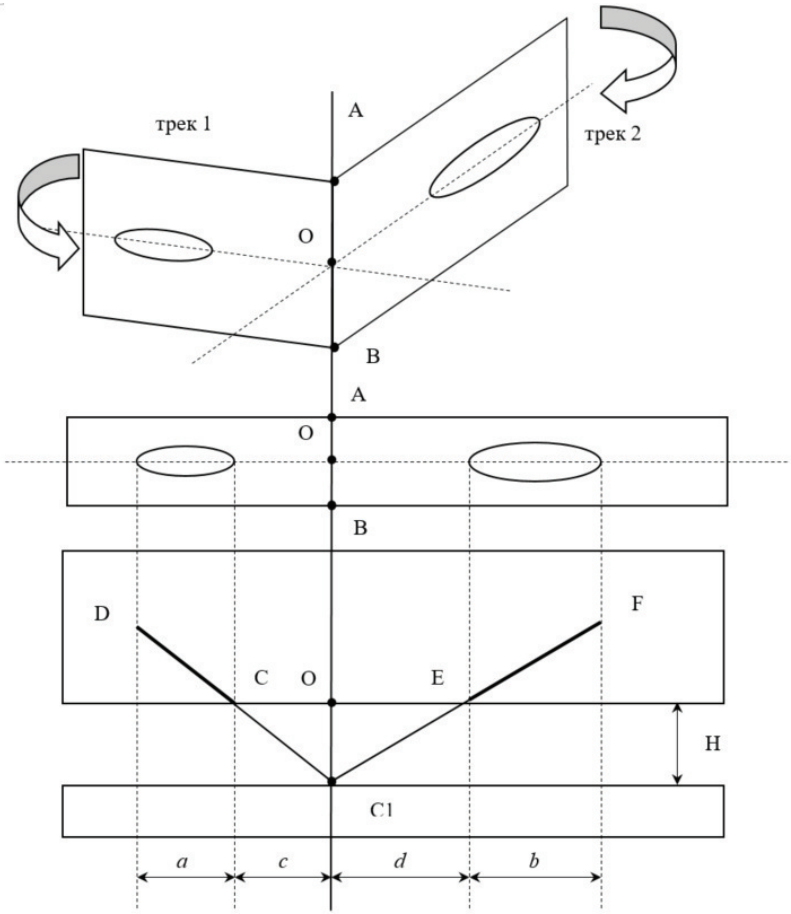


Рисунок 5.7 – К выводу геометрических условий принадлежности двух треков одной звезде

В таких предположениях визуализированный трек представляет собой конус (рис. 5.8).

Получение количественного критерия принадлежности двух треков к одной звезде в рамках конусной модели треков проводили в два этапа. На первом шаге рассчитывали

значения углов влета осколков деления в материал детектора на основе результатов измерения координат крайних точек изображений визуализированных треков. При этом предполагали, что расстояние между поверхностями смежных детекторов в районе расположения треков не меняется. Иными словами предполагали, что поверхности детекторов параллельны. На втором этапе выводили собственно количественный критерий для значений координат крайних точек изображений треков, выполнение которого гарантирует принадлежность двух треков к одной звезде. В основе критерия лежало предположение о том, что глубина травлении одинакова для всех треков.

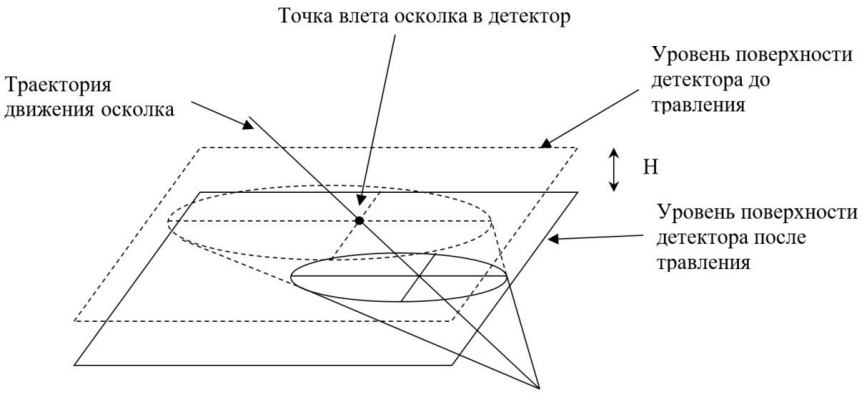


Рисунок 5.8 – Коническая модель визуализированного трека

Рассматривали наиболее общий случай конфигураций взаимного расположения визуализированных треков (№ 1 в таблице 5.1). Так же, как и в случае с отрезками без потери общности рассуждений изображения треков разворачивали относительно оси, проходящей через точку пересечения осей симметрии треков до их совмещения в прямую линию. На рисунке 9 приведено изображение вертикального сечения двух развернутых в одну линию конических треков плоскостью, перпендикулярной плоскостям, отвечающим поверхностям детекторов. Точка О соответствует точке вылета осколков деления из наночастицы. Точки A_1 и A_2 отвечают точкам влета двух осколков деления в материал детектора. Отрезки B_1C_1 и B_2C_2 лежат на линии пересечения поверхности конусов с вертикальной плоскостью сечения. Через x_{11}, x_{12}, x_{21} и x_{22} обозначены координаты крайних точек изображений визуализированных треков. Угол $D_1A_1C_1$ соответствует углу (φ) входа первого осколка деления в материал детектора. Угол $D_2A_2C_2$ соответствует углу (ψ) входа второго осколка деления в материал детектора. Углы $B_1C_1A_1$ и $B_2C_2A_2$ являются углами раскрытия

конусов при травлении детектора (δ). Значения углов конусов зависят от энергии нуклонов материала детектора и способа его травления. Для обоих треков линейная скорость травления вдоль трека одинакова. Следовательно, и значения углов раскрытия конусов равны. Для кварца и осколков деления значения рассматриваемого угла меняется в пределах от 13^0 до 19^0 [14]. В расчетах принято, что среднее значения угла равно 16^0.

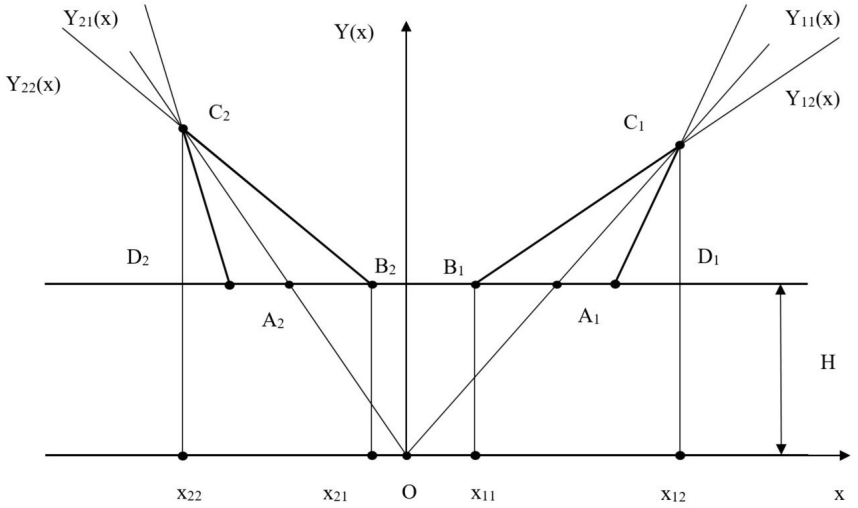


Рисунок 5.9 – Схема взаимного расположения протравленных треков

Для расчета значений углов влета осколков деления в материал детекторов декартовую систему координат размещали таким образом, чтобы ее начало совпадало с точкой расположения наночастицы (или точкой вылета осколков деления), а ось *x* совпадала с линией пересечения поверхности нижнего детектора и вертикальной секущей плоскости.

В выбранной прямоугольной системе координат уравнение прямой линии, совпадающей с траекторией движения осколка деления, имеет вид:

$$Y_{11}(x) = tg(\varphi)x \tag{5.4}$$

где $Y_{11}(x)$ – функция, описывающая прямую линию, совпадающую с траекторией движения осколка деления;

φ – угол влета осколка деления в материал детектора.

Уравнение, описывающее прямую линию, совпадающую с линией пересечения конуса с вертикальной плоскостью, имеет следующий вид:

$$Y_{12}(x) = tg(\varphi - \delta)x + x_{12}\left[tg\varphi - tg(\varphi - \delta)\right] \tag{5.5}$$

где $Y_{12}(x)$ – функция, описывающая прямую линию, пересечения конуса с вертикальной плоскостью.

Используя уравнение (5.5), рассчитывали расстояние (H) между двумя детекторами:

$$Y_{12}(x_{11}) = H = (x_{11} - x_{12})tg(\varphi - \delta) + x_{12}tg\varphi \tag{5.6}$$

Из данного уравнения путем преобразований получали уравнение, которое связывало тангенс угла влета осколка деления в материал детектора и расстояние между смежными детекторами вида:

$$tg^2\varphi_{12} + \frac{a+b+dH}{bd}tg\varphi - \frac{ad+H}{bd} = 0 \tag{5.7}$$

где $a = (x_{11} - x_{12})$

$b = x_{12}$

$d = tg\varphi$

Его решение имеет вид:

$$(tg\varphi)_{1,2} = -\frac{a+b+dH}{2bd} \pm \sqrt{\left(\frac{a+b+dH}{2bd}\right)^2 + \frac{ad+H}{bd}} \tag{5.8}$$

Принимали во внимание только положительные значения тангенсов углов падения осколков деления на поверхность детектора, так как рассматривали углы в пределах от 0 до $\pi/2$. Значения углов рассчитывались в соответствии с выражением:

$$\varphi = arctg\left[-\frac{a+b+dH}{2bd} + \sqrt{\left(\frac{a+b+dH}{2bd}\right)^2 + \frac{ad+H}{bd}}\right] \tag{5.9}$$

В терминах измеряемых величин выражение для расчета угла φ принимает вид:

$$\varphi = arctg\left[-\frac{x_{11} - Htg\delta}{2x_{12}tg\delta} + \sqrt{\left(\frac{x_{11} - Htg\delta}{2x_{12}tg\delta}\right)^2 + \frac{(x_{11} - x_{12})tg\delta + H}{x_{12}tg\delta}}\right] \tag{5.10}$$

Рассуждая аналогично для угла влета второго осколка деления (ψ), получаем:

$$\psi = arctg\left[-\frac{x_{21} - Htg\delta}{2x_{22}tg\delta} + \sqrt{\left(\frac{x_{21} - Htg\delta}{2x_{22}tg\delta}\right)^2 + \frac{(x_{21} - x_{22})tg\delta + H}{x_{22}tg\delta}}\right] \tag{5.11}$$

Учитывая границы изменений угла δ среднее значение $tg\delta$ принималось равным 0,28. Значение H принимали равным 2,4 мкм.

В основе количественного критерия принадлежности двух треков одной звезде лежит предположение о том, что глубина травления трека вдоль направления движения осколка деления в материале детектора одинакова для всех треков. Таким образом, для первого и второго рассматриваемых треков можно написать следующие выражения условий:

$$L = \sqrt{\left(x_{12} - Hctg\varphi\right)^2 + \left(x_{12}tg\varphi - H\right)^2} \tag{5.12}$$

$$L = \sqrt{\left(x_{22} - Hctg\psi\right)^2 + \left(x_{22}tg\psi - H\right)^2} \tag{5.13}$$

где L – глубина травления трека.

На рисунке 5.9 глубина травления обозначена отрезками A_1C_1 и A_2C_2 для первого и второго треков соответственно.

Очевидно, что полученное из геометрических и физических оснований условие принадлежности двух треков одной звезде не будет выполняться из-за неопределенностей измеряемых величин. В выражения для расчетов значений углов влета осколков деления в материал детектора, а также глубины травления входят измеряемые величины L, x_{11}, x_{12}, x_{21} и x_{22}. Измерения x_{11}, x_{12}, x_{21} и x_{22} проводились с некоторой погрешностью, обусловленной отсутствием четкой границы трека на изображении. Глубину травления (L) определяли путем измерения изображений самых длинных визуализированных треков. При этом считалось, что угол влета осколков деления в материал детектора, образовавших эти треки равен критическому. Так как изображения визуализированных треков фактически представляет собой проекции реально существующих треков, в расчет глубины травления вводили поправку на критический угол, равную $\cos(\alpha_к)$. Результаты определения среднего значения глубины травления представлены в таблице 5.2.

Таблица 5.2 – Оценка глубины травления

№ п/п	Координаты крайних точек видимого трека, мкм		Длина видимого трека, мкм	Глубина травления, мкм
	x	y		
1	4,49	5,44	9,66	9,73
2	5,16	4,63	9,50	9,57
3	3,11	6,28	9,60	9,67
4	6,78	2,10	9,73	9,80
5	3,80	5,41	9,05	9,12
6	4,83	4,95	9,47	9,54
7	5,75	2,65	8,67	8,74
Среднее значение			9,38	9,45
СКО			0,30	0,30

Из таблицы следует, что глубина травления в среднем составляет 9,5 мкм. При этом среднее квадратичное отклонение составило 0,3 мкм или 3,2%. В связи с тем, что на данном этапе не ставилась задача изучения неопределенности выполнения критериев (формулы 5.12, 5.13), считалось, что если расчетная глубина травления трека не превышает значения, равного 9,5 мкм, то геометрическое условие выполняется.

Оценка вероятности того, что два наблюдаемых фоновых трека могут трактоваться как треки, обусловленные делением ядер плутония, содержащегося в одной наночастице, базируется на вычислении вероятности появления следующих трех независимых событий:

1) появление двух или более треков в пределах элемента площади детектора (ΔS), определяемой расстоянием между поверхностями смежных детекторов и критическим углом образования латентного трека. Описанное означает, что осколки деления, зарегистрированные детектором, теоретически могли вылететь из одной точки, т.е. из одной наночастицы;

2) такое взаимное расположение треков в плоскости поверхности детектора, которое вообще допускает вылет осколков деления ядер ^{239}Pu, расположенных в одной наночастице;

3) выполнение условия вылета двух осколков деления ядер ^{239}Pu из одной точки (или малой окрестности этой точки), расположенной в плоскости перпендикулярной поверхности детектора.

Таким образом, суммарная вероятность (P) того, что два фоновых трека, созданные в результате деления ядер ^{235}U, и, удовлетворяющие приведенным выше геометрическим условиям, могут трактоваться как треки, обусловленные делением ядер ^{239}Pu, содержащегося в одной наночастице может быть рассчитана в соответствии с выражением:

$$P = P_1 P_2 P_3 \tag{5.14}$$

где P_1 – вероятность обнаружения одного трека в пределах элемента площади ΔS;

P_2 – вероятность такого взаимного расположения двух треков в плоскости поверхности детектора, которое вообще допускает вылет осколков деления ядер ^{239}Pu, расположенных в одной наночастице;

P_3 – вероятность вылета двух осколков деления ^{239}Pu из малой окрестности точки, расположенной в плоскости перпендикулярной поверхности детектора.

Следовательно, вероятность того, что два трека, удовлетворяющие приведенным выше геометрическим условиям, могут трактоваться как треки, обусловленные делением ядер ^{239}Pu, содержащегося в одной наночастице будет:

$$P = 1 - P_1 P_2 P_3 \tag{5.15}$$

Считалось, что фоновые треки обусловлены делением ядер урана, который в виде примеси присутствует в материале детектора, представляющего собой синтетический кварц. Считалось, что примесь урана равномерно распределена по объему кварца. Кроме того, следует упомянуть о том, что при делении ядер трансурановых нуклидов разлет осколков деления является изотропным.

Вероятность обнаружить один фоновый трек в области (ΔS) может быть рассчитана в соответствии с выражением:

$$P = N\frac{\Delta \mathrm{S}}{S} \tag{5.16}$$

где P – вероятность обнаружения одного трека в пределах элемента площади ΔS;

N – наблюдаемое число фоновых треков на всей поверхности детектора;

S – площадь поверхности детектора (можно обследованная, если она существенно больше элемента площади).

Учитывая равномерность распределения фоновых ядер урана в приповерхностном слое детектора, можно утверждать, что появление двух или более фоновых треков в некоторой области являются независимыми событиями. Поэтому вероятность наблюдения двух фоновых треков в пределах элемента площади поверхности ΔS есть

$$P_1 = P_g^{\,2} \tag{5.17}$$

Анализ характерных размеров разброса треков вокруг звезд показывает, что типичный радиус расположения наиболее удаленных точек входа осколков деления в материал трекового детектора составляет 25 мкм. Следовательно, площадь элемента площади поверхности ΔS можно оценить значением $1{,}96 \cdot 10^3$ мкм^2. Площадь трекового детектора диаметром 25 мм оценивается значением $1{,}96 \cdot 10^9$ мкм^2. Число фоновых треков, обусловленных делением ^{235}U, содержащегося в приповерхностном слое детектора оценивается значением 10^3 штук. Таким образом, вероятность того, что в пределах элемента площади ΔS будет обнаружен единичный трек, будет составлять 10^{-3}. Соответственно вероятность обнаружения двух треков в пределах рассматриваемого элемента площади можно оценить значением 10^6.

При выполнении оценки вероятности события, когда расположение треков в плоскости поверхности детектора удовлетворяют геометрическим требованиям, вытекающим из условия вылета осколков деления из одной точки, рассматривали конфигурации, допускавшие появление такого события. Указанные конфигурации приведены в таблице 5.2 под номерами 1, 2 и 3.

Вероятность появления конфигурации 1 равна 0,5 при условии, что все направления траекторий входа осколков деления в материал детектора равновероятны.

Для конфигурации 2 необходимо выполнение условия, чтобы ось симметрии изображения трека 1 пересекает изображение трека 2 (рис. 5.7). Ось симметрии изображения трека, входящего в материал детектора под углом не равным π/2, должна с некоторой погрешностью пересекать изображение трека осколка, входящего в материал детектора под прямым углом. Для консервативной оценки значения вероятности принимали, что отклонение оси симметрии от точки центра изображения круглого трека составляет половину его диаметра (D/2) (рис. 5.10). Вероятность появления описанного события равна отношению угла, определяемого половиной диаметра круглого трека и расстоянием между треками к 2π:

$$P_2 = \frac{\gamma}{2\pi} \tag{5.18}$$

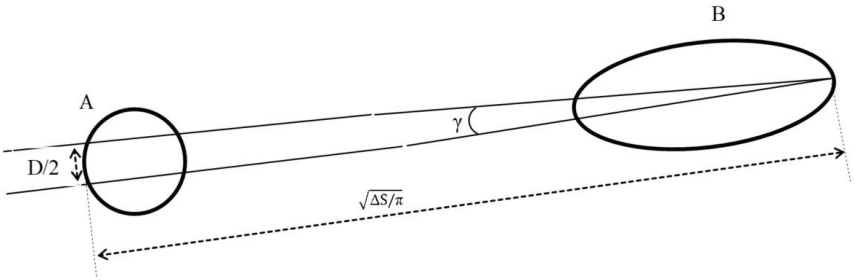


Рисунок 5.10 – Треки деления находятся на одной линии симметрии

Считали, что в условиях случайного равномерного и независимого расположения точек образования осколков деления фонового урана в приповерхностном слое детектора, среднее расстояние между двумя попавшими в площадку ΔS равно радиусу круга площадью ΔS, откуда

$$\gamma \approx sin(\gamma) = \frac{D}{4\sqrt{\frac{\Delta S}{\pi}}} \tag{5.19}$$

где D – диаметр круга площадью ΔS.

Таким образом, вероятность рассматриваемого события может быть рассчитана в соответствии с выражением:

$$P_2 = \frac{\gamma}{2\pi} = \frac{D}{4\sqrt{\Delta S \pi}} \tag{5.20}$$

С учетом того, что типичный радиус площадки ΔS составляет 25 мкм, а диаметр круглого трека – 3 мкм, рассматриваемая величина может быть оценена значением, равным $1{,}5.10^{-2}$.

Аналогично рассуждая, можно получить значение вероятности появления события, при котором будет наблюдаться конфигурация 3. Эту вероятность можно рассчитать в соответствии с выражением:

$$P_2 = \left(\frac{\gamma}{2\pi}\right)^2 = \frac{D^2}{16\Delta S\pi} \tag{5.21}$$

Учитывая то, что характерный размер ширины трека равен диаметру трека, входящего в материал детектора, рассматриваемую величину оценили значением, равным $1{,}44 \cdot 10^{-4}$.

В основе оценки вероятности события, когда два осколка деления вылетают из некоторой окрестности, лежал тот факт, что координаты крайних точек визуализированных треков измеряются с некоторой погрешностью. Как указывалось выше при определении значений углов влета осколков деления в материал детектора использовались измеряемые значения координат крайних точек изображений визуализированных треков. Реальные цифровые изображения не имеют четко выраженных границ (рис. 5.11). Это является следствием нескольких причин. Главная причина заключается в том, что реальный визуализированный трек, а не обладает геометрически четкой границы пересечения визуализируемого трека с поверхностью детектора. Форма реально получаемых визуализируемых треков существенно сложнее, чем форма модели (рис. 5.12).

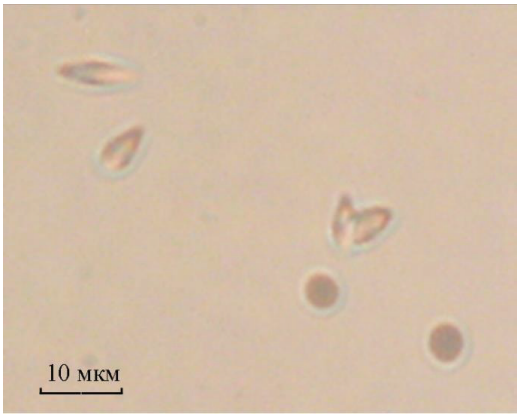


Рисунок 5.11 – Реальное цифровые изображение,
не имеющее четко выраженных границ

Это является следствием различных условий диффузии продуктов химической реакции травления в различных точках границы раздела твердой фазы (материала детектора) и жидкой фазы (травителя).

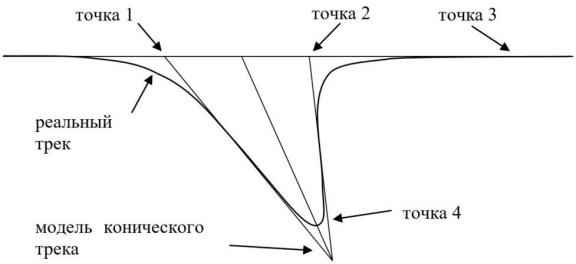


Рисунок 5.12 – Сравнение модельного (конического) трека и реально получаемого в процессе травления

Так, в точках 1 и 2 скорость диффузии продуктов химической реакции превышает скорость диффузии в точке 3 (неповрежденный участок). Поэтому линейная скорость травления материала детектора в точках 1 и 2 превышает линейную скорость травления неповрежденной поверхности в точке 3. Как следствие четкой границы не образуется. Скорость диффузии продуктов химической реакции, образующихся при травлении материала вдоль трека, по мере продвижения фронта границы раздела фаз вглубь детектора снижается. В результате снижается линейная скорость травления, и форма визуализируемого трека перестает быть конической.

Оценку погрешности определения координат крайних точек проводили следующим образом. Помещали первую точку на границу наблюдаемого ровного по цвету поля изображения. Вторую точку размещали на границе переходных цветов к явно затемненному участку (рис. 5.13). Затем измеряли расстояние между точками. Результаты измерений приведены в таблице 5.3.

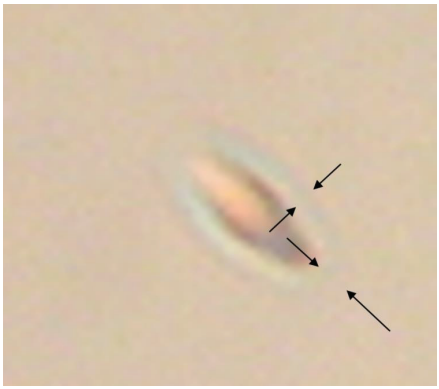


Рисунок 5.13 – Оценка погрешности определения координат крайних точек визуализированного трека

Таблица 5.3 – Оценка погрешности измерения координат крайних точек визуализированных треков

№ п/п	Координаты точек, мкм		Погрешность, мкм
	x	y	
1	0,67	0,67	1,19
2	0,50	0,81	1,20
3	0,64	0,76	1,25
4	0,54	0,81	1,22
5	0,81	0,45	1,17
6	0,10	0,93	1,18
7	0,98	0,02	1,23
8	0,81	0,55	1,23
9	0,62	0,66	1,14
Среднее значение			1,20
СКО			0,03

Из таблицы 5.3 следует, что среднее значение погрешности измерения координат крайних точек изображений треков составляет 1,2 мкм при среднем квадратичном отклонении 0,3 мкм.

Проводили консервативную оценку рассматриваемой вероятности, т.е. выбирали такие условия, при которых оцениваемая величина принимала максимальное значение. Для этого делали следующее построение (рис. 5.14).

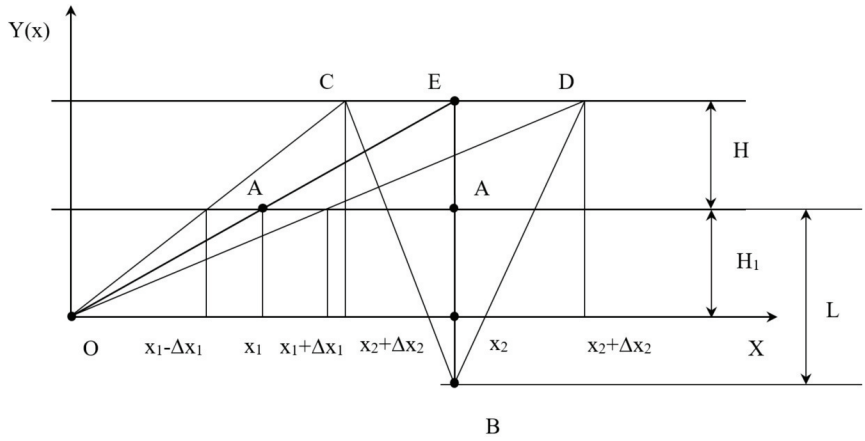


Рисунок 5.14 – К оценке вероятности вылета осколков из одной точки

Начало декартовой системы координат помещали в терминальную точку первого трека, т.е. в ту точку, где процесс травления трека завершился. Ось абсцисс направляли параллельно плоскости поверхности детектора. На рисунке 5.14 точка О обозначает терминальную точку первого трека. Точка В обозначает терминальную точку второго трека. Отрезки ОЕ и ВЕ отвечают траекториям движения осколков деления. Считалось, что вследствие погрешностей измерения координат крайних точек визуализированных треков, траектория движения осколка должна лежать внутри некоторого угла, определяемого значением погрешности измерения. На рисунке 5.14 обозначен углом COD. Через H обозначено расстояние между детекторами. Через L обозначена глубина травления вдоль трека. На рисунке 5.14 длина отрезков OA_1 и BA_2 равна L. Считали, что два осколка вылетели из одной точки, если она расположена внутри некоторой области (в данном случае внутри отрезка CD), размер которой определяется погрешностью (Δx) измерения координат крайних точек визуализированного трека. В связи с тем, что оценивали максимальное значение вероятности рассматриваемого события, выбирали такой угол вылета трека, при котором длина отрезка принимает наибольшее значение. Для детектора таким углом является критический угол $\alpha_к$, для монокристалла кварца равный 83^0 [14]. Вероятность рассматриваемого события равна произведению вероятности того, что линия, отвечающая траектории движения первого осколка деления лежит в пределах угла COD, и вероятность того, что линия, описывающая движение второго осколка лежит в пределах угла CBD. Выбор такой геометрии ориентации направления движения второго осколка обуславливался тем, что оценивалось максимальное значение вероятности рассматриваемого события, или максимального значения угла CBD. Очевидно, что при любом ином расположении терминальной точки В данный угол, а значит и вероятность будут принимать меньшее значение.

Прямые линии, на которых лежат отрезки OC, OE и OD, описываются следующими уравнениями:

$$\begin{aligned} Y_1(x) &= tg(\varphi + \Delta_1)x \\ Y_2(x) &= tg(\varphi)x \\ Y_3(x) &= tg(\varphi - \Delta_2)x, \end{aligned} \tag{5.22}$$

где φ – Угол EOB;

Δ_2 – Отклонение от угла φ, определяемое значением погрешности измерения Δx (на рисунке 5.14 угол COE и EOD).

Для угла EOD обозначим:

$$x_1 = Lcos(\alpha_k)$$
$$x_2 = x_1 + \Delta x \tag{5.23}$$

Из геометрического построения и вида функций, описывающих прямые линии, очевидно, что имеет место соотношение:

$$x_1 tg\varphi = x_2 tg\left(\varphi - \Delta_2\right) \tag{5.24}$$

откуда:

$$tg\left(\Delta_2\right) = \frac{tg\left(\varphi\right)\left(1 - \frac{x_1}{x_2}\right)}{\frac{x_1}{x_2} tg^2\left(\varphi\right) + 1} \tag{5.25}$$

значение угла Δ_2 вычисляется в соответствии с выражением:

$$\Delta_2 = arctg\left(\frac{tg\left(\varphi\right)\left(1 - \frac{x_1}{x_2}\right)}{\frac{x_1}{x_2} tg^2\left(\varphi\right) + 1}\right) \tag{5.26}$$

Для угла EOD обозначим:

$$x_1 = Lcos(\alpha_k)$$
$$x_2 = x_1 - \Delta x \tag{5.27}$$

Из геометрического построения и вида функций, описывающих прямые линии, очевидно, что имеет место соотношение:

$$x_1 tg\varphi = x_2 tg\left(\varphi + \Delta_1\right) \tag{5.28}$$

откуда:

$$tg\left(\Delta_1\right) = \frac{tg\left(\varphi\right)\left(\frac{x_1}{x_2} - 1\right)}{\frac{x_1}{x_2} tg^2\left(\varphi\right) + 1} \tag{5.29}$$

значение угла Δ_2 вычисляется в соответствии с выражением:

$$\Delta_1 = arctg\left(\frac{tg\left(\varphi\right)\left(1 - \frac{x_1}{x_2}\right)}{\frac{x_1}{x_2} tg^2\left(\varphi\right) + 1}\right) \tag{5.30}$$

Таким образом, вероятность (P_{31}) того, что траектория движения первого осколка лежит в пределах угла COD с учетом того, что треки в процессе травления выявляются

только те треки, которые созданы осколками, влетающими в детектор в пределах двух критических углов, может быть рассчитана в соответствии с выражением:

$$P_{31} = \frac{\Delta_1 + \Delta_2}{2\pi} \frac{2\alpha_k}{\pi} \tag{5.31}$$

При расчетах принимали значение погрешности измерения (Δx), равную половине полученного при анализе изображений значения (0,6 мкм). Оценки показывают, что значение вероятности P_{31} составляет $2{,}1 \cdot 10^{-3}$.

Для оценки вероятности того, что траектория движения второго осколка деления будет лежать внутри угла CBD, введем следующие обозначения: $\Delta_3 = \text{CBE}$, а $\Delta_4 = \text{EBD}$. из геометрического построения, приведенного на рисунке 5.11, следует, что:

$$\begin{aligned} CE &= \left(H + H_1\right) ctg\left(\varphi + \Delta_1\right) = \left(H + Lsin\left(\alpha_k\right)\right) ctg\left(\varphi + \Delta_1\right) \\ CE &= \left(H + H_1\right) ctg\left(\varphi - \Delta_2\right) = \left(H + Lsin\left(\alpha_k\right)\right) ctg\left(\varphi - \Delta_2\right) \end{aligned} \tag{5.32}$$

Откуда значения углов Δ_3 и Δ_2 могут быть рассчитаны в соответствии с выражениями:

$$\begin{aligned} \Delta_3 &= arctg\left[\frac{\left(H + Lsin\left(\alpha_k\right)\right) ctg\left(\varphi + \Delta_1\right)}{L + H}\right] \\ \Delta_4 &= arctg\left[\frac{\left(H + Lsin\left(\alpha_k\right)\right) ctg\left(\varphi - \Delta_2\right)}{L + H}\right] \end{aligned} \tag{5.33}$$

При заданных значениях L, H и α_k значения углов Δ_3 и Δ_2 составили 0,471 и 0,469 соответственно, а вероятность (P_{32}) события, когда траектория движения второго осколка деления будет находиться в пределах угла CBD, составит:

$$P_{32} = \frac{\Delta_3 + \Delta_4}{2\pi} \frac{2\alpha_k}{\pi} = 0{,}14 \tag{5.34}$$

Общая вероятность того, что два осколка деления вылетают из одной точки (или малой окрестности этой точки), расположенной в плоскости перпендикулярной поверхности детектора может быть оценена значением:

$$P_3 = P_{31} P_{32} = 2{,}1 \cdot 10^{-3} \cdot 0{,}14 = 2{,}9 \cdot 10^{-4} \tag{5.35}$$

Таким образом, максимальное значение вероятности события, когда два фоновых трека, созданные в результате деления ядер ^{235}U, и, удовлетворяющие приведенным выше геометрическим условиям, могут трактоваться как треки, обусловленные делением ядер ^{239}Pu, содержащегося в одной наночастице:

для конфигурации 1 составит $1{,}5 \cdot 10^{-7}$;

для конфигурации 2–$3{,}5 \cdot 10^{-9}$;

а для конфигурации 3–$4{,}5 \cdot 10^{-11}$.

Полученные оценки показывают, что если в ходе анализа изображений визуализированных треков два из них удовлетворяют полученным геометрическим условиям, то вероятность события, что рассматриваемые треки являются результатом деления ядер ^{235}U, крайне мала. Следовательно, данные треки с уверенностью можно трактовать как треки, обусловленные делением ядер ^{239}Pu, содержащиеся в одной наночастице. Очевидно, что если при анализе изображений треков встречаются ситуации, когда более двух близко расположенных трека удовлетворяют полученным геометрическим условиям, их с еще большей уверенностью можно трактовать в качестве треков, созданных делением ядер ^{239}Pu, содержащегося в одной наночастице.

Процедура классификации треков заключалась в следующем:

1) если при анализе изображений обнаруживаются парные треки, точки входа в материал детектора расположены вплотную или звезды, имеющие явный центр, то такие группы треков следует трактовать как треки, созданные делением ядер ^{239}Pu, содержащегося в одной наночастице;

2) в случае обнаружения близко расположенных треков проводится оценка углов входа осколков деления в материал детектора. Затем проводится проверка выполнимости равенства значений глубин травления. Если полученные значения не превышают 9,5 мкм, треки приписываются одной наночастице. В случае группировки более, чем двух треков проводится последовательная попарная проверка выполнимости геометрических условий вылета осколков деления из одной точки. Выполнение условий является свидетельством принадлежности треков одной наночастице;

3) в условиях, когда геометрический критерий не выполняется треки рассматриваются как единичные.

5.3. Совершенствование нейтронно-индуцированного метода измерения размеров наночастиц

5.3.1. Исследование динамики травления латентных треков деления

Совершенствование нейтронно-индуцированного метода измерения размеров наночастиц, содержащих ^{239}Pu, является важной составляющей в исследованиях физических, химических и биологических свойств наночастиц диоксида ^{239}Pu. В рамках конической модели протравленного латентного трека (рис. 5.15) несложно показать, что видимый диаметр протравленного трека может быть рассчитан в соответствии с выражением [15]:

$$D = 2V_b t\sqrt{\frac{n-1}{n+1}}$$
$$n = \frac{V_t}{V_b} \tag{5.36}$$

где D – видимый диаметр протравленного трека, мкм;

V_b – скорость травления неповрежденного материала трекового детектора, мкм/мин;

t – продолжительность травления, мин;

V_t – скорость травления поврежденного материала детектора вдоль трека, мкм/мин.

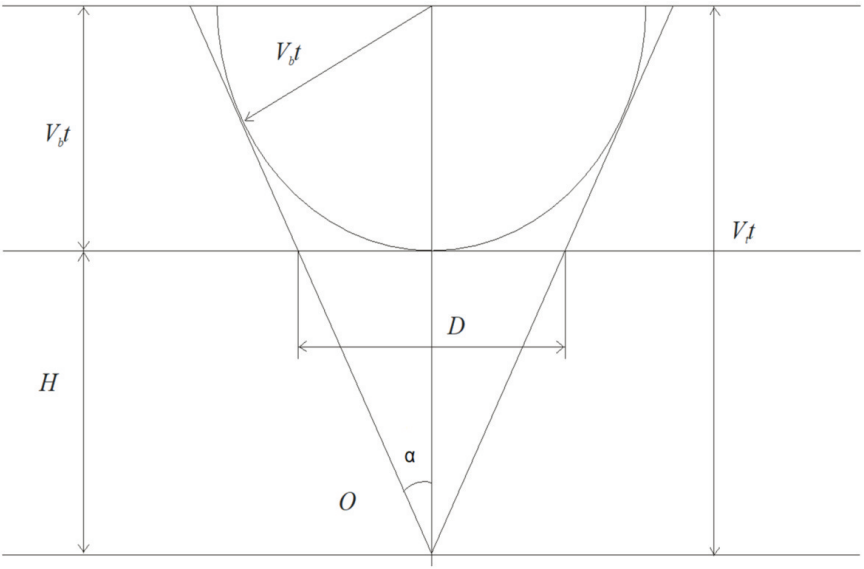


Рисунок 5.15 – Коническая модель протравленного трека

Основой всех трековых методов является различие в скоростях травления материала детектора: скорость травления материала детектора вдоль трека V_t превышает скорость травления неповрежденного материала V_b. Учитывая этот факт, имеют место следующие соотношения, полученные из (5.36):

$$n > 1$$
$$\frac{D}{2} < V_b t \tag{5.37}$$

Экспериментальная проверка данного соотношения дает дополнительные сведения, полезные для совершенствования нейтронно-индуцированного метода измерения

размеров наночастиц, содержащих ^{239}Pu. Для этого необходимо получить экспериментальные значения диаметров протравленных треков, образованных осколками, влетавшими в материал детектора по нормали к его поверхности, и значение скорости травления неповрежденного материала детектора.

Измерение с помощью микроскопа показало, что в случаях, когда осколок деления влетал в детектор по нормали к его поверхности, диаметр видимого протравленного трека составлял 3,0 мкм.

Измерение скорости травления неповрежденного материала трекового детектора проводили двумя методами. Первый заключался в сравнении результатов измерения массы детектора до и после многократного травления его поверхности. Второй метод основывался на сравнении результатов измерений толщины детектора до и после травления с использованием микрометра.

Ранее было выяснено, что для получения оптимальных для анализа и счета изображений визуализированных треков поверхность детектора необходимо протравить 10% раствором HF в течение 24 минут при комнатной температуре с перемешиванием раствора каждые 6 мин. Очевидно, что не представляется возможным определить весовым методом снижение массы детектора, полученное при единичном травлении. В связи с этим для определения скорости V_b проводили многократное травление поверхности детектора.

Экспериментальная процедура заключалась в следующем:

Детектор взвешивали на аналитических весах (Mettler Toledo, точность 0,1 мг). После этого проводили измерения толщины детектора в 30 различных точках с использованием микрометра (МК 0–25, точность 0,01 мм).

Детектор помещали в специальную фторопластовую ячейку и сборку погружали в стакан, также выполненный из фторопласта, с 10% раствором HF. Продолжительность единичного травления составляла 24 минуты. Каждые 6 мин проводили перемешивание раствора.

По истечении 24 минут ячейку с детектором перемещали во второй стакан с таким же раствором. Травление проводили по той же процедуре, что и в первом стакане. В это время раствор HF в первом стакане заменяли на «свежий» (той же концентрации).

По достижении 10 циклов обработки поверхности детектора его промыли под струей проточной воды в течение 10 минут и высушили.

Проводили взвешивание детектора и измеряли его толщину в 30 различных точках. В дополнение проводили фотографирование поверхности детектора при помощи микроскопа.

По окончании измерений процедура многократного травления поверхности детектора была повторена. В результате детектор был подвергнут двадцатикратному травлению.

Детектор, выбранный для эксперимента, был облучен на экспериментальном ядерном реакторе ИР ИВВ-2М. Флюенс составил $4 \cdot 10^{17}$ см$^{-2}$. Детектор был предварительно протравлен в 40% HF в течение 10 минут (рис. 5.16). Вид треков на детекторе после предварительного травления, а также вид треков после 10 и 20 травлений представлен рисунках 16–18. Несмотря на то что на поверхности детектора было зафиксировано значительное число треков деления, вклад травления материала детектора вдоль треков, образованных делением ^{239}Pu, нанесенного на экспериментальный детектор, в суммарное снижение массы детектора пренебрежимо мал. Об этом свидетельствует анализ изображений, полученных в ходе проведения эксперимента. После предварительного травления, проведенного до начала эксперимента, близкая к сферической форма визуализированных треков свидетельствовала о том, что достигнутая глубина травления близка к значению длины латентного трека. Следовательно, в приповерхностном слое детектора практически полностью отсутствовали участки, поврежденные осколками деления (рис. 5.16). Снимки поверхности детектора после 10 и 20 циклов (рисунки 5.17 и 5.18) травления подтверждают это. Результаты измерений толщины и массы детектора в ходе эксперимента приведены в таблице 5.4.

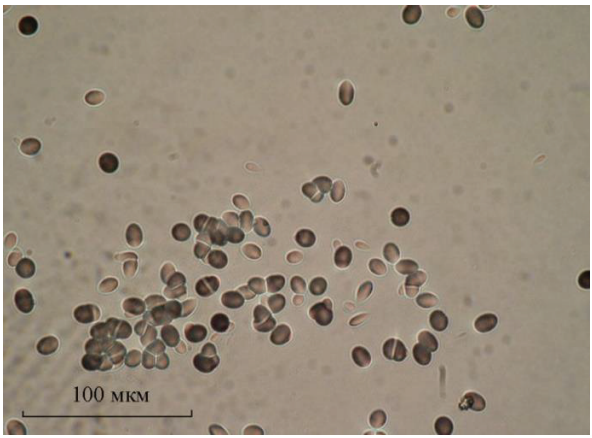


Рисунок 5.16 – Вид треков на детекторе после предварительного травления в 40% HF в течение 10 минут

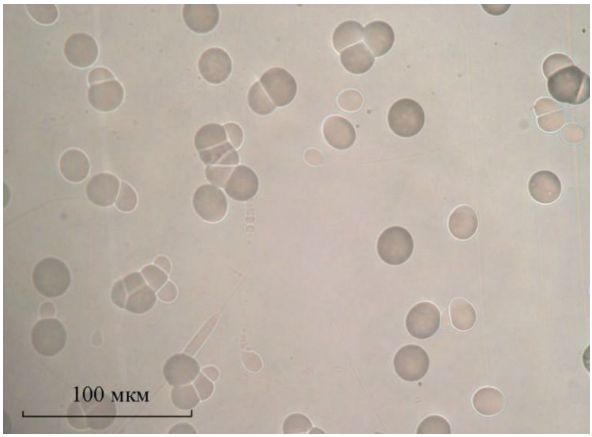


Рисунок 5.17 – Вид треков после 10-ти травлений 10% раствором HF продолжительностью 24 минуты каждое

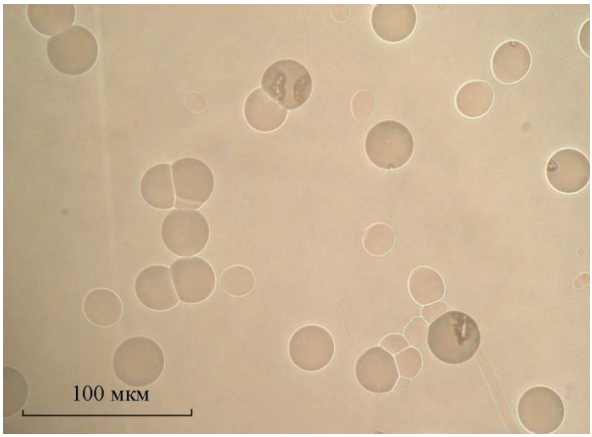


Рисунок 5.18 – Вид треков после 20-ти травлений 10% раствором HF продолжительностью 24 минуты каждое

Таблица 5.4 – Результаты измерений толщины и массы детектора

Число травлений	Толщина детектора, мм	Масса детектора, г
0	3,10	3,3309
10	3,085*	3,3112
20	3,07	3,2922
* – цена деления шкалы микрометра 0,01 мм, но при измерении толщины детектора после 10 травлений микрометр показывал значение, расположенное визуально строго между 3,08 и 3,09 мм, поэтому было взято среднее значение		

Расчет уменьшения толщины одной стороны детектора за одно травление Δh на основе результатов измерений микрометром проводили по формуле:

$$\Delta h = \frac{h_0 - h_i}{2i}, \tag{5.38}$$

где Δh – изменение толщины детектора за одно травление, мм;

h_0 – толщина детектора до травления, мм;

h_i – толщина детектора после i травлений, мм;

i – число травлений;

2 – коэффициент, учитывающих одновременное травление с двух сторон детектора.

Расчет уменьшения толщины одной стороны детектора за одно травление Δh, на основе весового метода измерений, в предположении, что детектор протравливается равномерно со всех сторон (рис. 5.20), проводился по формуле:

$$\Delta h = \frac{\Delta m_i}{i\rho S} = \frac{m_0 - m_i}{2i\rho\pi r\left(r + h\right)}, \tag{5.39}$$

где Δm_i – изменение массы детектора за i травлений, г;

i – число травлений;

ρ – плотность кристаллического кварца, г/мм^3;

S – площадь поверхности детектора, мм^2;

m_0 – масса детектора до травления, г;

m_i – масса детектора после i-го травления, г;

h – высота детектора до травления, мм;

r – радиус детектора, мм.

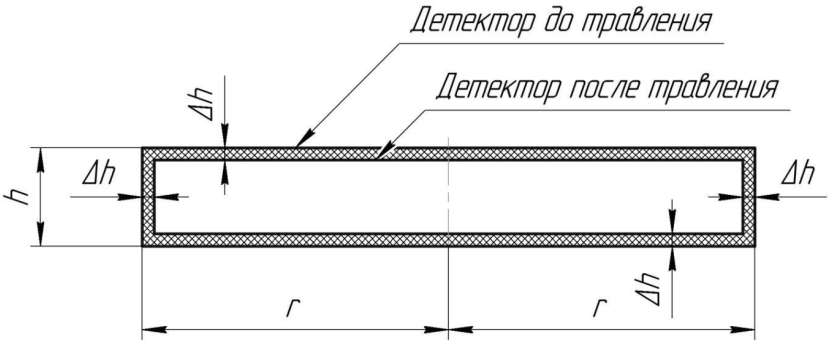


Рисунок 5.19 – Равномерное травление детектора со всех сторон. Штриховкой показана стравливаемая область детектора

Результаты измерений приведены в таблице 5.5.

Таблица 5.5 – Результаты расчета толщины единичного травления

Количество травлений	Толщина единичного травления, мкм	
	Измеренная с применением микрометра	Измеренная с применением весов
10	0,75	0,73
20	0,75	0,72
Среднее	0,75(0,24)*	0,73(0,02)*
* – стандартная неопределенность [16]		

Из таблицы 5.5 следует, что в результате единичного травления измеренная с помощью микрометра толщина травления поверхности детектора составила 0,75(0,24) мкм. Та же самая величина, рассчитанная при помощи весового метода, составила 0,73(0,02) мкм. Полученные различными методами результаты измерений близки. Для дальнейших рассуждений было принято значение толщины единичного травления, равное 0,73 мкм, так как стандартная неопределенность весового метода существенно ниже.

Измеренное значение толщины единичного травления и есть произведение скорости травления неповрежденной поверхности детектора V_b на продолжительность травления t. Подставляя в выражение (5.37) значения наблюдаемого диаметра D вертикального трека и произведения скорости травления на его продолжительность $V_b t$, получаем парадоксальный результат:

$$1,5(0,1) < 0,73(0,02) \tag{5.40}$$

Для объяснения полученного результата и снятия противоречия была выдвинута гипотеза. Она заключалась в том, что монокристаллический кварц, из которого изготовлен трековый детектор, обладает анизотропией физических и химических свойств. Как следствие, скорость травления неповрежденного материала неодинакова в разных направлениях. Правдоподобность гипотезы проверялась путем сравнения расчетного значения критического угла с экспериментальными данными, приведенными в литературе [14]. Считали, что скорость травления неповрежденного осколками деления материала монокристаллического кварца в горизонтальном (вдоль поверхности детектора) и вертикальном (по нормали к поверхности детектора) направлениях различны (рис. 5.21). Далее в рассуждениях числовые значения будут представлены без их неопределенностей.

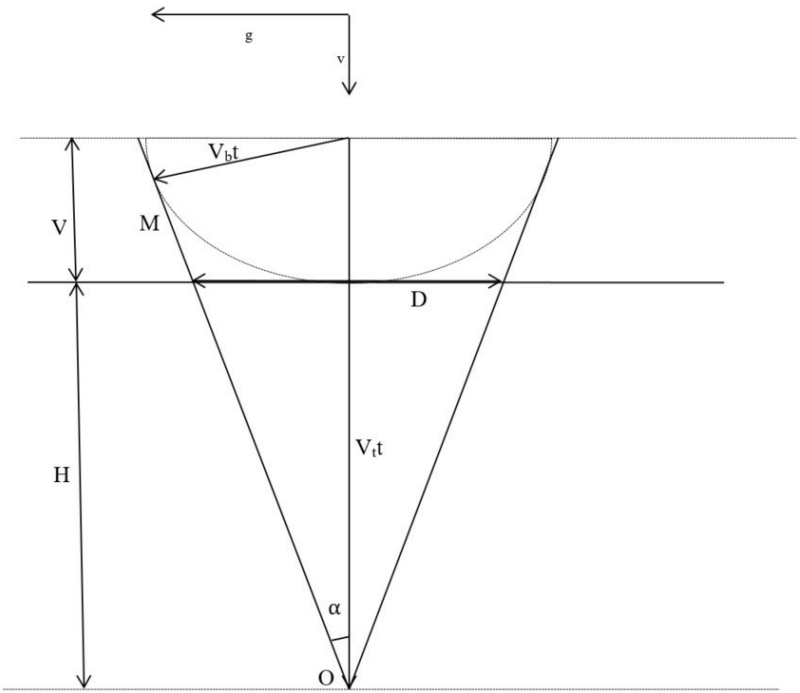


Рисунок 5.20 – Коническая модель с различными скоростями травления

В этом случае скорость травления материала детектора в направлении по нормали к внутренней поверхности конуса может быть выражена следующим образом:

$$V_b = \sqrt{(\sin\alpha)^2 V_v^2 + (\cos\alpha)^2 V_g^2}, \tag{5.41}$$

где α – угол раскрытия конуса;

V_v – скорость травления мишени по нормали к поверхности;

V_g – скорость травления мишени в горизонтальной плоскости.

Скорость травления материала детектора вдоль латентного трека может быть выражена через вертикальную скорость травления неповрежденного материала детектора следующим образом:

$$V_t = nV_v \tag{5.42}$$

Горизонтальную скорость травления материала детектора можно определить как:

$$V_g = kV_v \tag{5.43}$$

Здесь n>1 и k>1 есть некоторые параметры. При условии, что длина визуализированного трека составляет 7,0 мкм, имеем:

$$V_v t = 0,73\,мкм$$

$$V_g t = \frac{D}{2} = 1,5\,мкм \tag{5.44}$$

$$V_t t = 7,0\,мкм$$

Из (5.42)–(5.44) были получены следующие оценки: n=9,59; k=2,05. На основе полученных результатов была проведена оценка значения критического угла, т. е. такого максимального угла падения осколка деления на поверхность детектора, при котором латентный трек полностью расположен в слое детектора, протравленного в процессе визуализации (рис. 5.21).

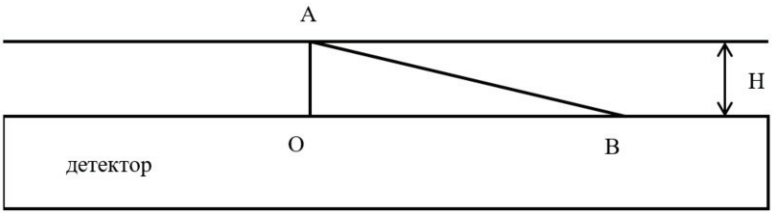


Рисунок 5.21 – К определению критического угла

На рисунке 21 H – глубина травления неповрежденного материала детектора, отрезок AB отвечает длине латентного трека, расположенного в стравливаемом слое материала детектора. Угол OAB является критическим углом. Угол падения осколка деления OBA соотносится с критическим углом, как:

$$\widehat{\mathrm{OAB}} = \frac{\pi}{2} - \widehat{\mathrm{OBA}} \tag{5.45}$$

Учитывая соотношения (5.42), (5.43), можно показать:

$$sin\,\widehat{\mathrm{OBA}} = \frac{1}{n} \tag{5.46}$$

Критический угол рассчитывался в соответствии с выражением:

$$\widehat{\mathrm{OAB}} = \frac{\pi}{2} - arcsin\left(\frac{1}{n}\right) \tag{5.47}$$

Оценка значения критического угла, полученная для n=9,59, составляет 84^0. Из литературных источников [14] известно, что для детекторов, выполненных из кварца, критический угол равен 83^0, что близко к полученной оценке. Следовательно, в первом приближении можно считать, что проверяемая рабочая гипотеза верно объясняет наблюдаемую картину.

5.3.2. Уточнение величины критического угла

Величина критического угла участвует в расчете эффективности регистрации при переходе от количества треков в звезде к активности и размеру частицы, соответствующей данной звезде [15]. Величина критического угла зависит от материала мишени. Эффективность регистрации ε взаимозависима с критическим углом φ, поэтому можно вычислить критический угол φ, используя значения эффективности регистрации ε [15]:

$$\varphi = arccos\left(1-\varepsilon\right) \tag{5.48}$$

Расчет эффективности регистрации актов деления трековым детектором ε проводили с использованием ОРР ^{239}Pu по методике [17]. Результаты приведены в таблице 5.6. Стандартную неопределенность типа А средней эффективности регистрации актов деления трековым детектором $u\left(\overline{\varepsilon}\right)$ (таблица 5.6) вычисляли по формуле экспериментального стандартного отклонения среднего значения [16]:

$$u\left(\overline{\varepsilon}\right) = \sqrt{\frac{1}{n\left(n-1\right)}\sum_{i=1}^{n}\left(\varepsilon_i - \overline{\varepsilon}\right)^2} \tag{5.49}$$

где $\overline{\varepsilon}$ – средняя эффективность регистрации актов деления трековым детектором по всем *i*;

ε_i – эффективность регистрации актов деления i-м трековым детектором;

n – количество трековых детекторов.

Для нахождения критического угла φ использовали формулу (5.48) и значения эффективности регистрации $\varepsilon = 82,5\left(3,26\right)\%$ (таблица 5.6). Полученное значение критического угла $\varphi = 79,92\left(1,91\right)^0$ хорошо согласуется со значением 83^0, приведенным в [14], и хорошо согласуется с представленным в главе «Исследование динамики травления латентных треков деления» значением 84^0.

Таблица 5.6 – Эффективность регистрации актов деления трековым детектором ε

Детектор	Эффективность регистрации ε,%
302	72,28
303	77,99
403	78,49
414	80,00
501	94,91
703	94,22
704	79,58
среднее	82,49(3,26)

5.3.3. Оценка оптимальных режимов облучения трековых детекторов

Образцы анализируемых наночастиц могут характеризоваться различными распределениями частиц по размерам. Это означает, что при заданном значении достигаемого флюенса частицы, имеющие слишком малый размер и низкое число делящихся ядер, не создадут достаточного числа треков деления, необходимых для их подсчета. В то же время большие по размерам наночастицы создадут такое значительное число треков, что из-за их наложения друг на друга подсчет треков будет невозможным. Отсюда возникает задача выбора оптимального режима облучения наночастиц. В настоящее время подсчет треков выполняется человеком, что вносит в конечный результат элемент субъективизма. Поэтому для разработки оптимальных режимов облучения детекторов с нанесенными на их поверхность образцами наночастиц, необходимо использовать не детерминированный критерий, а «мягкий инструмент». В качестве такого инструмента предлагается использование двух границ флюенса «сверху» и «снизу».

Граница «сверху» подразумевает флюенс нейтронов как функцию от расстояния между мишенями и размером частиц: $\Phi_{св} = \Phi_{св}\left(H_T, N_{ядер}\right)$. Задача сводится к оценке количества различимых треков на круге диаметром L. Максимальный диаметр (L) звезды может быть рассчитан в соответствии с выражением (5.50) (рис. 5.22).

$$\mathrm{L} = 2H\tan\varphi = 2\left(H_T + h\right)\tan\varphi \tag{5.50}$$

где L – максимальный размер звезды, мкм;

H_T – расстояние между мишенями, мкм;

h – толщина стравливаемого слоя, мкм;

φ – критический угол входа трека, рад.

Число актов деления рассчитывается по формуле:

$$N_f = \varepsilon N_{ядер}\Phi\sigma_f 10^{-24} \tag{5.51}$$

где N_f – число актов деления;

ε – чувствительность регистрации актов деления трековым детектором;

$N_{ядер}$ – число ядер плутония;

Φ – флюенс нейтронов, см$^{-2}$;

σ_f – сечение реакции деления, барн;

10^{-24} – коэффициент перехода от барн к см^2.

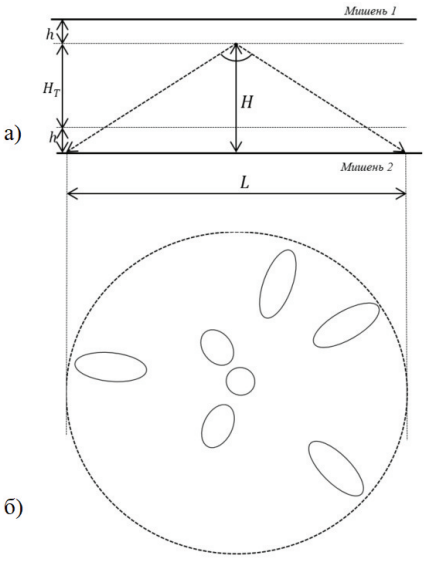


Рисунок 5.22 – а) – вид сбоку; б) – вид сверху звезды на мишени (схематично)

Число осколков деления, попавших в круг диаметра L, определяется по формуле:

$$N_\omega = 2N_f \frac{\omega}{4\pi} = N_f \left(1 - \cos\varphi\right) \tag{5.52}$$

где N_ω – количество осколков деления, попавших в круг диаметра L;

N_f – число актов деления;

ω – телесный угол с углом растра α, ср (стерад);

φ – критический угол входа трека, рад.

Очевидно, что форма треков зависит от угла входа: в центре звезды – это круг, ближе к периферии – это овал. Вокруг каждой точки входа трека в мишень можно описать круг с центром в точке входа и диаметром, равным диаметру трека, входящего по нормали в мишень. Предполагали, что оператор может сосчитать число треков, если оно не превышает числа описанных кругов, полностью покрывающих круг диаметра L без пересечений (рис. 5.23). Это предположение эвристическое и очень «сильное», так как оно занижает границу «сверху».

В такой постановке – это классическая задача о покрытии кругами круга. Ее решение [18] имеет вид:

$$N_\omega = \mathrm{n} = \frac{\pi}{\sqrt{12}} \frac{L^2}{D^2} \tag{5.53}$$

где D – диаметр вписанного круга, равен диаметру трека, входящего по нормали в мишень, мкм;

L – максимальный размер звезды, мкм;

n – верхняя оценка числа вписанных кругов диаметра D, в круг диаметра L.

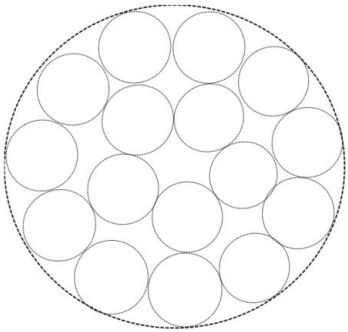


Рисунок 5.23 – Описанные круги, полностью покрывающие круг диаметра L без пересечений

Объединяя вместе (48) – (51), получим границу “сверху”:

$$\Phi_{св}\left(H_T, N_{ядер}\right) = \frac{\pi}{\sqrt{12}} \frac{4\left(H_T + h\right)^2 \left(\tan\varphi\right)^2}{D^2} \frac{1}{\varepsilon N_{ядер} \sigma_f 10^{-24} \left(1 - \cos\varphi\right)} \tag{5.54}$$

При оценке границы флюенса «снизу» считаем, что звезду из треков достаточно хорошо характеризует, по крайней мере, три трека. В связи с этим искомую оценку рассчитываем, как функцию от размера частиц: $\Phi_{сн}\left(N_{ядер}\right)$. В данном случае зависимость от расстояния между мишенями не интересует, потому что даже при нулевом расстоянии три трека различимы. Задача сводилась к расчету флюенса нейтронов, при котором испускаются три осколка деления в телесный угол ω. Из (5.50), (5.51) получаем:

$$\Phi_{сн}\left(N_{ядер}\right) = \frac{3}{\varepsilon N_{ядер} \sigma_f 10^{-24} \left(1 - \cos\varphi\right)} \tag{5.55}$$

При нахождении необходимого флюенса нейтронов необходимо придерживаться следующего алгоритма: наиболее вероятные значения $H_T, N_{ядер}$ определяются по предполагаемому распределению расстояний между мишенями и предполагаемому распределению наночастиц по размеру. По этим значениям и формулам (5.53), (5.54) рассчитываем значения $\Phi_{св}$ и $\Phi_{сн}$. Искомое значение оптимального флюенса (Φ) находится из соотношения: $\Phi_{сн} \le \Phi \le \Phi_{св}$.

Для практических целей интересно определить масштаб различий полученных границ «сверху» и «снизу» при заданных входных параметрах. Указанный масштаб определяли через отношения $\frac{\Phi_{св}}{\Phi_{сн}}(H_T)$ имеющего вид:

$$\frac{\Phi_{св}}{\Phi_{сн}}(H_T)=\frac{1}{3}\frac{\pi}{\sqrt{12}}\frac{4(H_T+h)^2(\tan\varphi)^2}{D^2} \tag{5.56}$$

Численное значение отношения $\frac{\Phi_{св}}{\Phi_{сн}}$ для входных данных $H_T=0,3; h=0,75; D=3,0; \varphi=79,92^0$:

$$\frac{\Phi_{св}}{\Phi_{сн}}(0,3)=\frac{1}{3}\frac{\pi}{\sqrt{12}}\frac{4(0,3+0,75)^2(\tan 79,92^0)^2}{3,0^2}=4,7 \tag{5.57}$$

Разработанный подход является эффективным инструментом для решения задачи оптимизации режима облучения. Полученные границы позволяют точнее определять флюенс облучения в зависимости от предполагаемых характеристик наночастиц. Это повысит эффективность использования материальных средств для достижения результатов в изучении дисперсного состава промышленных альфа-излучающих наночастиц.

5.4. Идентификация наночастиц ^{239}Pu, расположенных в толстом слое тканевых срезов

5.4.1. Разработка количественного критерия для отнесения группы треков к звезде

Звезда имеет две интересующие характеристики: координата центра звезды и количество визуализированных треков деления, приписанных данной звезде. Координата центра звезды совпадает с проекцией точки вылета осколков деления на плоскость мишени, тем самым, определяется проекция место депонирования радиоактивного элемента в препарате тканевых срезов (далее – толстом слое) на плоскость мишени. По количеству визуализированных треков деления определяется активность наночастицы, депонированной в найденном месте препарата.

Разработаны два алгоритма, позволяющие в группе визуализированных треков деления находить центры звезд и приписывать найденным центрам визуализированные треки.

Допустим, осколок деления вылетел из точки *N* и осколок летит не по нормали к плоскости мишени. Полет осколка по нормали к плоскости мишени является тривиальным случаем в рамках решаемой проблемы. Проецируем визуализированный трек деления и

предполагаемую точку вылета осколка деления на плоскость мишени (рис. 5.24). *N'* – проекция предполагаемой точки вылета *N* на плоскость мишени. Известно, что осколок деления в процессе движения имеет практически прямолинейную траекторию движения. Логично предположить, что:

$$N' \in [B, C) \tag{5.58}$$

где A, B – вершины визуализированного трека. Для определенности, вершина, ближняя к точке входа трека в мишень, всегда будет указываться второй;

$[B, C)$ – луч, с началом в точке *B,* параллельный отрезку $[A, B]$.

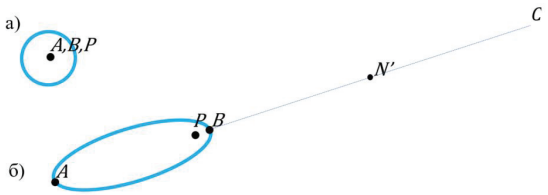


Рисунок 5.24 – вид сверху проекции визуализированного трека деления (схематично) на плоскость мишени: а) осколок вошел вертикально; б) осколок вошел под углом. *B* – вершина визуализированного трека деления, ближняя к точке *P* предполагаемого входа осколка деления в мишень. *N'* – проекция точки *N* вылета осколка деления на плоскость мишени

Удаление точки *N'* от точки *B* зависит от высоты точки вылета осколка деления над мишенью и от угла входа в мишень, но заведомо не превышает величину L_{max} (рис. 5.25):

$$L_{\max} = \frac{2\left(H_{Tmax} + h\right)\sqrt{1-\left(\sin\varphi\right)^2}}{2\sin\varphi} \tag{5.59}$$

где L_{max} – максимальное удаление точки *N'* от точки *B* ;

H_{Tmax} – максимальное расстояние между мишенями;

h – толщина стравливаемого слоя;

φ – критический угол входа трека.

Вершины визуализированного трека деления точки A, B определяются визуально. Невозможно абсолютно точно определить вершины визуализированного трека деления точки A, B из-за дискретности изображения, конечной точности позиционирования, размытости границ и тому подобное (рис. 5.27). Поэтому вводим величину $\tau > 0$ – это максимальная ошибка определения проекции точки вылета осколка деления.

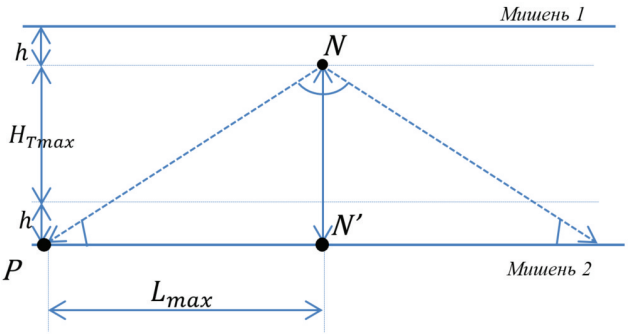


Рисунок 5.25 – Вид сбоку двух мишеней (схематично). *P* – точка входа осколка деления в мишень. *N'* – проекция точки *N* вылета осколка деления на плоскость мишени.

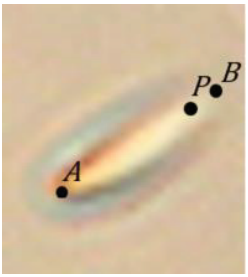


Рисунок 5.26 – Визуализированный трек деления (вид сверху). *A* – вершина визуализированного трека деления. *B* – вершина визуализированного трека деления, ближняя к предполагаемой точке *P* входа осколка деления в мишень

Оценим сверху величину τ. Предположим, что существуют «истинные» A_t, B_t вершины визуализированного трека, определенные абсолютно точно, и существует «истинная» N'_t – проекция точки *N* вылета осколка деления на плоскость мишени. В этом случае *N'* имеет смысл оцененной проекции точки *N* вылета осколка деления на плоскость мишени (рис. 5.27):

$$N'_t \in [B_t, C_t) \tag{5.60}$$

Точки L_t, *L* определяются следующим образом:

$$L_t \in [B_t, C_t), |B_t, L_t| = L_{max} \tag{5.61}$$

$$L \in [B, C), |B, L| = L_{max} \tag{5.62}$$

где A_t, B_t – «истинные» вершины визуализированного трека;

$[B_t, C_t)$ – луч, с началом в точке B_t, параллельный отрезку $[A_t, B_t]$;

L_{max} – максимальное удаление проекции точки вылета осколка деления на плоскость мишени от вершины, визуализированного трека деления, ближней к точке предполагаемого входа осколка деления в мишень (формула 5.59).

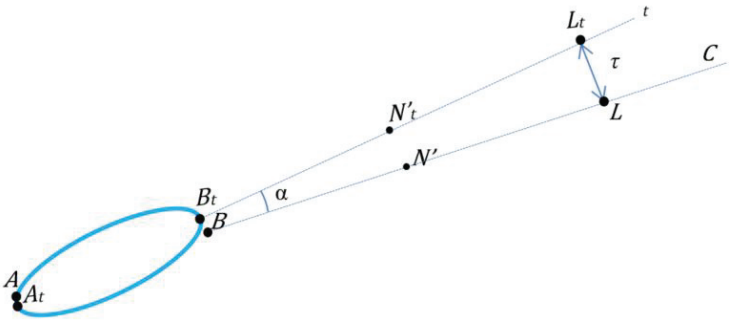


Рисунок 5.27 – Визуализированный трек деления (вид сверху). A_t, B_t – «истинные» вершины визуализированного трека; A, B – визуально определенные вершины визуализированного трека деления; «истинная» N'_t – проекция точки N вылета осколка деления на плоскость мишени; N' – оцененная проекции точки N; L_t, L – максимально возможное удаление точек N'_t, N' от точек B_t, B соответственно

Величина α есть функция, зависящая от дискретности изображения, конечной точности позиционирования, размытости границ и тому подобное. Величину α оценить сложно из-за слишком большого числа параметров с большой вариабельностью, но грубую оценку можно получить из того соотношения, что среднестатистический визуализированный трек деления имеет разрешение на фотографии 21x9 пикселей. Так как пиксель имеет равную линейную длину по горизонтали и вертикали, получаем:

$$\sin\frac{\alpha}{2} \approx \frac{1}{42} \tag{5.63}$$

Из построения очевидно, что максимум τ принимает в момент, когда N'_t совпадает L_t, и N' – с L, принимая во внимание что $|B_t, B| \ll L_{max}$ и (5.63) получаем оценку сверху величины τ:

$$\tau = |L_t,\ L| = 2L_{\max}\sin\frac{\alpha}{2} \approx \frac{1}{21}L_{max} \tag{5.64}$$

Входными данными для алгоритма являются:

L_{max} – максимальное удаление проекции точки вылета осколка деления на плоскость мишени от вершины, визуализированного трека деления, ближней к точке предполагаемого входа осколка деления в мишень (5.59);

τ – максимальная ошибка определения проекции точки вылета осколка деления (5.64);

множество пар вершин визуализированных треков. Для определенности, вершина ближняя к точке входа трека в мишень, всегда будет указываться второй:

$$\left(A\left(x_1, y_1\right), B\left(x_2, y_2\right)\right)_k,\ k \in K,\ \text{count}(K) > 1 \tag{5.65}$$

где $A\left(x, y\right)$ – $\left(x, y\right)$ есть декартовы координаты точки A;

K – множество визуализированных треков, количество треков > 1 .

Выходными данными для алгоритма являются:

множество координат центров звезд;

множество визуализированных треков деления, приписанных каждой звезде.

5.4.2. Первый алгоритм

1. Построение равномерной плоской пространственной сетки.

Определим границы сетки, так, чтобы все потенциальные центры звезд попали во внутреннюю область пространственной сетки:

$$X_{max} = \max_{k \in K}\left(x_2\right)_k + L_{max} \tag{5.66}$$

$$X_{min} = \min_{k \in K}\left(x_2\right)_k - L_{max} \tag{5.67}$$

$$Y_{max} = \max_{k \in K}\left(y_2\right)_k + L_{max} \tag{5.68}$$

$$Y_{min} = \min_{k \in K}\left(y_2\right)_k - L_{max} \tag{5.69}$$

где $\left(x_2, y_2\right)$ – декартовы координаты вершины визуализированного трека ближней к точке входа трека в мишень (точка *B,* рисунок 5.25);

L_{max} – максимальное удаление проекции точки вылета осколка деления на плоскость мишени от вершины визуализированного трека деления, ближней к точке предполагаемого входа осколка деления в мишень (формула 5.59).

Шаг δ по пространству сетки может быть весьма произвольным, так как представленный алгоритм вычислительно устойчивый. Точность полученного результата зависит от δ. Но несоразмерно мелкий шаг сетки существенно замедляет процесс вычисления. Слишком большой шаг может сместить искомые центры звезд. Определим шаг сетки через величину максимальной ошибки определения проекции точки вылета осколка деления τ. Предположим, что «истинная» ошибка конкретной реализации распределена равномерно на отрезке [0,τ]. Тогда ε определим через математическое ожидание ошибки определения проекции точки вылета осколка деления:

$$\delta = \frac{\tau}{2} \tag{5.70}$$

Символом ω_δ обозначим множество узлов *(i,j)* равномерной пространственной сетки.

2. Введем расстояние для ω_δ до визуализированных треков.

Определим расстояние $r_{i,j,k}$ от точки $W_{i,j} \in \omega_\delta$ до трека $k \in K$:

1) если трек образовался при входе осколка деления по нормали к поверхности детектора. Тогда (рис. 5.28):

$$\left(A(x_1, y_1) \equiv B(x_2, y_2)\right)_k \tag{5.71}$$

$$r_{i,j,k} = \left|W_{i,j}, B_k\right| \tag{5.72}$$

2) если трек образовался при входе осколка деления не по нормали к поверхности детектора, и если возможно, опустив перпендикуляр из точки $W_{i,j}$ к отрезку $\left[B, L\right]_k$, получим точку E_k. Тогда (рис. 5.28):

$$r_{i,j,k} = \left|W_{i,j}, E_k\right| \tag{5.73}$$

для $k \in K$, не определенных в 1) и 2) примем:

$$r_{i,j,k} = \infty \tag{5.74}$$

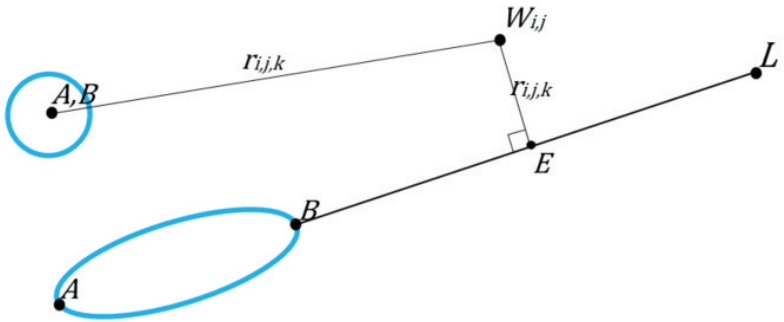


Рисунок 5.28 – Определение расстояния для ω_δ до визуализированных треков: а) расстояние от точки $W_{i,j}$ до трека, если трек образовался при входе осколка деления по нормали к поверхности детектора; б) расстояние от точки $W_{i,j}$ до трека, если трек образовался при входе осколка деления не по нормали к поверхности детектора. A, B – визуально определенные вершины визуализированного трека деления. $\left|B, L\right| = L_{max}$. E – точка пересечения перпендикуляра, проведенного из $W_{i,j}$ до отрезка $\left[B, L\right]$

3. Построим функцию $F_{i,j}(x)$ для всех $W_{i,j} \in \omega_\delta$ и $x \geq 0$ такую, что:

$$F_{i,j}(x) = \frac{\text{count}(N)}{\text{count}(K)},\ r_{i,j,n} < x,\ n \epsilon N,\ N \subseteq K \tag{5.75}$$

4. Вычислим координату центра звезды $W_{I,J}$ такую, что максимизировать функцию $F_{i,j}$:

$$\max_{\omega_8} F_{i,j}(x \le \tau) \tag{5.76}$$

5. Определим множество визуализированных треков деления N, удовлетворяющих условию приписываются данной звезде $W_{I,J}$, найденной в п.4.

$$r_{I,J,n} \le \tau,\ n \in N,\ N \subseteq K \tag{5.77}$$

6. Удалим из K все визуализированные треки N, найденные в п.5 (формула 5.77) и если K не пусто перейдем к п.2

$$K = K - N \tag{5.78}$$

7. Алгоритм закончил свою работу.

Пример результата работы программы приведен на рисунке 5.30 для исходных данных на рисунке 5.29.

В результате работы представленного алгоритма получили все звезды и у каждой звезды две характеристики: координата центра звезды и количество визуализированных треков деления, приписанных данной звезде. Координата центра звезды определяет место депонирования радиоактивного элемента в препарате. Количество визуализированных треков деления, приписанных звезде, определяет активность радиоактивного элемента. Звезды могут накладываться друг на друга (рис. 5.29). Естественным ограничением на количество визуализированных треков является различимость визуализированных треков для оператора, производящего оцифровку изображения.



Рисунок 5.29 – Пример нескольких пересекающихся звезд

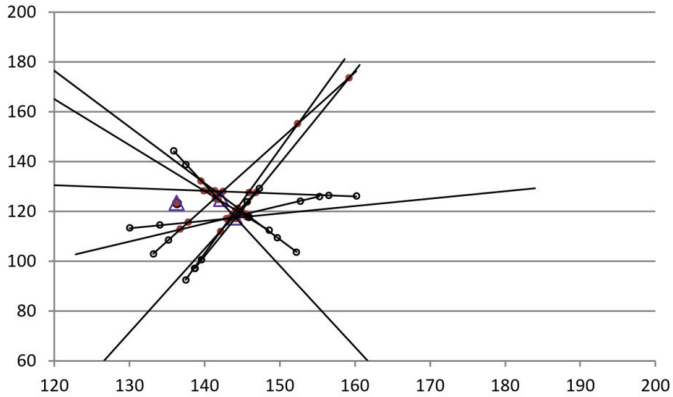


Рисунок 5.30 – Незаполненные кружочки – визуально определенные вершины визуализированного трека деления. Заполненные – точки пересечения проекций на плоскость мишени движения осколков деления. Треугольники – результат работы представленного алгоритма. Крайний левый треугольник имеет всего один визуализированный трек, от осколка деления, вошедшего в мишень по нормали к плоскости мишени. По осям декартовы координаты (мкм)

5.4.3. Второй алгоритм

Пусть плоская пространственная сетка состоит из узлов точек пересечений проекций на плоскость мишени движения осколков деления. Пространственная сетка перестает быть равномерной. При таком построении плоской пространственной сетки не все визуализированные треки могут быть обработаны. Не будут обработаны визуализированные треки, проекции которых на плоскость мишени движения осколков деления не имеет пересечений с другими проекциями, и, соответственно, не будут занесены в пространственную сетку. Для этих визуализированных треков невозможно определить центр звезды. Но можно сказать, что у этой неопределенной звезды только один визуализированный трек, и определена область, где может находиться центр данной звезды: отрезок $[B, L]$ (рисунок 5.30). Такие визуализированные треки необходимо обрабатывать отдельно. Также необходимо обрабатывать отдельно визуализированные треки, у которых осколок деления входил в мишень по нормали к плоскости мишени. Каждый такой визуализированный трек приписывается одной звезде и центр звезды совпадает с центром трека.

1. Строим пространственную сетку. K – множество визуализированных треков, пересечения которых попали в пространственную сетку. Пересечения пространственной сетки являются потенциальными центрами звезд.

2. Выбираем любой визуализированный трек (например, $k \in K$) и анализируем все существующие пересечения его отрезка $[B,L]_k$ со всеми $[B,L]_N, N \subset K$ (рис. 5.30).

Из всех пересечений O_N выбираем точку $O_n, n \in N$ таким образом, чтобы выполнялось соотношение:

$$\min_{n \in N} \left| \frac{|B_k O_n|}{|A_k B_k|} - \frac{|B_n O_n|}{|A_n B_n|} \right|, \; N \subseteq \left(K - \{k\}\right), \tag{5.79}$$

где k – зафиксировано в п.2.

3. O_n является центром звезды, а $\{k\}+\{n\}$ – есть подмножество визуализированных треков, приписанных данной звезде.

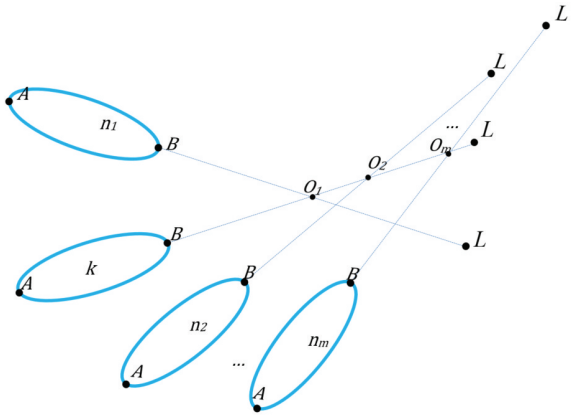


Рисунок 5.31 – Визуализированные треки деления (вид сверху). A, B – визуально определенные вершины визуализированного трека деления; L – максимально возможное удаление проекции точки вылета осколка деления на плоскость мишени от точки B.

$O_N = \{O_1, \ldots, O_m\}$ –пересечения отрезков $[B,L]_N, N \subset K$ с

4. Удалим из K визуализированные треки $\{k\}+\{n\}$, найденные в п.3 (формула 23) и, если K не пусто, перейдем к п.1.

$$K = K - \left(\{k\}+\{n\}\right) \tag{5.80}$$

5. Большая часть полученных центров звезд расположена группами (рис. 5.30). Опишем окружность с центром O_{u_i} и радиусом τ (формула 5.64) вокруг близлежащих центров звезд O_{N_i}, решая минимаксную задачу алгоритмом перебора таким образом, чтобы:

$$count(U) \to min \tag{5.81}$$

$$u_i \in U,\ count\left(N_i\right) \to max \tag{5.82}$$

$$\left|O_{u_i} O_{n_{ij}}\right| \le \tau,\ u_i \in U,\ n_{ij} \in N_i \tag{5.83}$$

Каждой звезде с центром $O_{u_i}, u_i \in U$ припишем визуализированные треки, приписанные звездам O_{N_i}.

6. Алгоритм закончил свою работу. Множество O_U и есть искомые центры звезд с приписанными визуализированными треками (рис. 5.32).

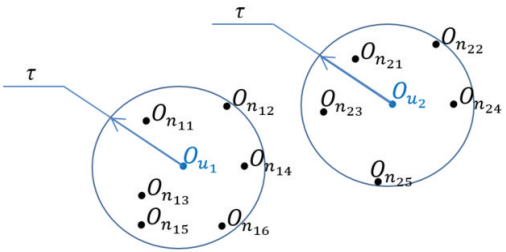


Рисунок 5.32 – Найденные центры звезд (схематично). Множества O_{N_i} – центры звезд, найденные до пункта 5 второго алгоритма. Множество O_U найдено в 5 пункте алгоритма

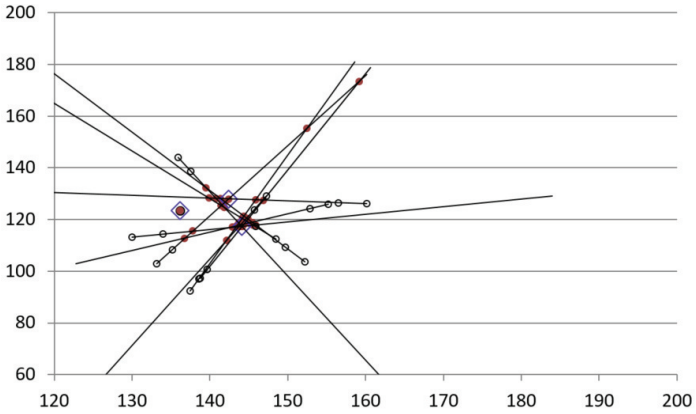


Рисунок 5.33 – Незаполненные кружочки – визуально определенные вершины визуализированного трека деления. Заполненные – точки пересечения проекций на плоскость мишени движения осколков деления. Четырехугольники – результат работы представленного алгоритма (результаты, близкие до совпадения изображений, не представлены). Крайний левый четырехугольник имеет всего один визуализированный трек, от осколка деления, вошедшего в мишень по нормали к плоскости мишени. По осям декартовы координаты (мкм)

В отличие от первого алгоритма, который является универсальным, второй алгоритм применим на мишенях с небольшим количеством визуализированных треков. Результаты работы первого алгоритма (рис. 5.30) и второго алгоритма (рис. 5.33) очень схожи между собой.

5.5. Моделирование поведения осколков деления ^{239}Pu в биологическом материале

Моделирование выполнялось ИПЭ УрО РАН в рамках договора между ИПЭ УрО РАН и ФГУП ЮУрИБФ, результаты приведены далее. Данные моделирования были переданы в ЮУрИБФ в виде текстовых файлов, и на их основе были получены формулы вычисления координаты наночастицы в толстом слое. Производилось моделирование облучением тепловыми нейтронами пробы биологического материала, содержащие изотопы плутония, закладываемые в контакте с трековым детектором из особо чистого кварца, не содержащего как активирующихся примесей, так и не содержащей примесей делящихся материалов – урана и тория. В результате облучения тепловыми нейтронами, образуются осколки деления плутония, регистрируемые трековым детектором. Ядерно-физические характеристики основных радиоизотопов плутония приведены в работе [19].

Деление атомных ядер может быть вызвано различными частицами, однако практически наиболее выгодно использовать для этой цели нейтроны. Отсутствие кулоновского сил отталкивания позволяет нейтронам со сколь угодно малой кинетической энергией приблизиться к ядру на расстояние меньше радиуса действия ядерных сил. Захват ядром нейтрона приводит к возбуждению ядра, и, если энергия возбуждения достаточна, происходит деление.

Характерной особенностью деления является то, что осколки, образующиеся в результате деления, как правило, имеют существенно разные массы. Так, например, в случае наиболее вероятного деления ^{235}U отношение масс осколков равно 1,46. Тяжелый осколок при этом имеет массовое число 139, легкий – 95. Деление на два осколка с такими массами не является единственно возможным [20]. Массовое распределение осколков деления тяжелых ядер представляет собой т. н. «двугорбую кривую». На рисунке 5.34 показаны массовые распределения осколков деления тепловыми нейтронами ^{234}U и более тяжелых ядер, в том числе ^{239}Pu. Вероятность деления на два равных по массе осколка не равна нулю. При делении тепловыми нейтронами вероятность симметричного деления примерно на три порядка меньше, чем в случае наиболее вероятного деления на осколки с A = 139 и 95. Асимметричное деление можно объяснить влиянием оболочечной структуры ядра. Ядро стремится разделиться таким образом, чтобы основная часть нуклонов осколка образовала устойчивый магический остов. В процессе

деления основная часть энергии освобождается в виде кинетической энергии осколков деления. Такой вывод можно сделать из того, что кулоновская энергия двух соприкасающихся осколков приблизительно равна энергии деления. Под действием электрических сил отталкивания кулоновская энергия осколков переходит в кинетическую энергию.

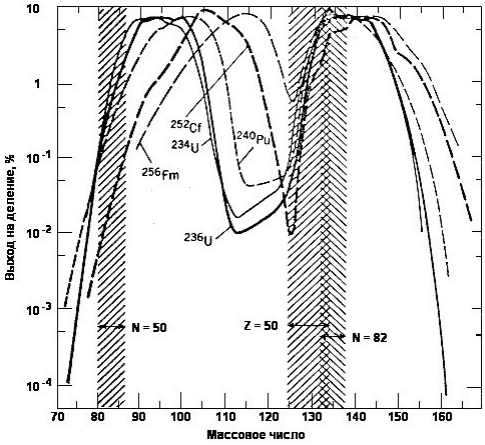


Рисунок 5.34 – Массовые распределения осколков деления тепловыми нейтронами ^{233}U, ^{235}U, ^{239}Pu и спонтанного деления ^{252}Cf, ^{256}Fm [20]

Между кинетическими энергиями E осколков и их массами M существует следующее соотношение, вытекающее из закона сохранения импульса:

$$E_л/E_т = M_т/M_л \quad (5.84)$$

где $E_л$ и $M_л$ и относятся к легкому осколку, а $E_т$ и $M_т$ – к тяжелому.

Кинетическая энергия осколков деления сравнительно мало зависит от энергии возбуждения делящегося ядра, так как излишняя энергия обычно идет на возбуждение внутреннего состояния осколков. Средняя масса легкой группы практически линейно растет с ростом массы делящегося ядра, в то время как средняя масса тяжелой группы остается практически неизменной (A ≈ 140). Таким образом, практически все добавочные нуклоны идут в легкие осколки (рис. 5.35).

Задача моделирования – определение эффективности регистрации осколков деления для реальных условий эксперимента с учетом толщины проб биологического материала (среза) и реального энергетического распределения осколков деления. Для корректной оценки размеров частиц необходимо знать вероятность образования трека при делении плутония в облученном образце. Вероятность регистрации трека определяется различ-

ными параметрами, такими, как энергия осколка деления, угол вхождения в материал детектора, глубина залегания исходного ядра в облучаемом материале. Простое аналитическое решение данной задачи отсутствует. В связи с этим необходимо моделирование процессов взаимодействия осколков деления с материалом детектора для различных условий эксперимента, учитывая влияние толщины пробы биологического материала и параметры регистрирующего детектора.

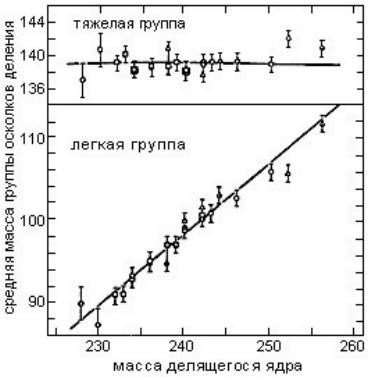


Рисунок 5.35 – Зависимость средних масс легкой и тяжелой групп осколков от массы делящегося ядра [20]

Для моделирования взаимодействия ядер отдачи, образовавшихся при распаде ^{239}Pu с веществом детектора, был использован программный пакет SRIM 2013 (The Stopping and Range of Ions in Matter). SRIM – программный пакет, позволяющий рассчитать параметры взаимодействие ионов с материалом мишени с помощью метода Монте-Карло. В общем виде для расчетов в каждой из программ пакета необходимо задать атомный номер иона, его массу и энергию. Основной программой, входящей в пакет SRIM, используемой в данной работе является программа TRIM (TRansport of Ions in Matter). TRIM позволяет рассмотреть взаимодействие ядер отдачи со сложными мишенями, состоящих из разных материалов. Вычисления производятся на основе метода Монте-Карло (метода статистических испытаний).

Результатом моделирования в данной программе являются выходные файлы, в которых указываются энергия, направление вылета, координаты конечной точки. Также пользователь может наблюдать в реальном времени процесс моделирования на графиках столкновений в разных проекциях. Также в данной работе используется программа Ion Stopping and Range in Targets, помощью которой подсчитываются потери энергии ионов в веществе. Данная программа производит быстрые вычисления, результатом которых

являются таблицы тормозных способностей, пробега, и их разброса для любого иона любой энергии как в любой элементарной мишени, так и для мишеней сложного состава [21].

5.5.1. Моделирование выхода осколков деления из биологической ткани

Проводилось моделирование выхода осколков деления плутония из биологической ткани с целью последующей оценки эффективности регистрации их трековыми детекторами. Диапазон толщин биологической ткани был задан в пределах от 1 до 10 мкм и взяты значения 1, 2, 4, 7, 10 мкм. Изначальное положение и траектория вылета осколков деления задавались случайным образом. Для этого были составлены входные файлы, содержащие в себе характеристики осколков деления, такие как атомный номер элемента, энергия осколка, глубина залегания в мишени (в биологической ткани), где находилась частица в начальный момент времени (его ось x координат) и угол падения осколка, задаваемый тремя направляющими косинусами относительно осей. Энергия задавалась исходя из расчетов на основе двугорбого массового распределения осколков деления ^{239}Pu тепловыми нейтронами, рассмотренного ранее. Атомный номер элемента подбирался в соответствии с массовым числом, полученным из данного распределения. Также на основе двугорбого распределения задавалось количество историй в соответствии с вероятностью выхода того или иного осколка деления. Результаты расчетов представлены в таблице 5.7.

Таблица 5.7 – Рассчитанные параметры осколков деления на основе «двугорбого распределения»

%, выход на деление	A1, массовое число 1	Z1, заряд ядра 1	Элемент 1	E1, энергия ядра 1, МэВ	A2, массовое число 2	Z2, заряд ядра 2	Элемент 2	E2, энергия ядра 2, МэВ
0,006	75	33	As	117,23	162	61	Pm	54,27
0,09	80	35	Br	113,61	157	59	Pr	57,89
0,8	85	37	Rb	109,99	152	57	La	61,51
2,5	90	38	Sr	106,37	147	56	Ba	65,13
5	95	42	Mo	102,76	142	52	Te	68,74
8	100	44	Ru	99,14	137	50	Sn	72,36
7	105	46	Pd	95,52	132	48	Cd	75,98
1	110	48	Cd	91,90	127	46	Pd	79,60
0,04	115	50	Sn	88,28	122	44	Ru	83,22
0,06	120	50	Sn	84,66	117	44	Ru	86,84
0,06	125	52	Te	81,05	112	42	Mo	90,45
5	130	54	Xe	77,43	107	40	Zr	94,07
7	135	54	Xe	73,81	102	40	Zr	97,69
7	140	56	Ba	70,19	97	38	Sr	101,31
4	145	58	Ce	66,57	92	36	Kr	104,93
1	150	58	Ce	62,96	87	36	Kr	108,54
0,3	155	59	Pr	59,34	82	35	Br	112,16
0,01	160	61	Pm	55,72	77	33	As	115,78

Глубина залегания задавалась случайным образом при помощи генератора случайных чисел MS Excel. Направление вылета осколка задавалось с использованием сферической системы координат. Угол вылета, определяющий направление, задается тремя направляющими косинусами, зависящими от углов θ и φ, которые изображены на рисунке 5.36. Углы θ и φ рассчитывались по формулам:

$$\theta = N \cdot 2\pi, \tag{5.85}$$

$$\varphi = M \cdot \pi, \tag{5.86}$$

где N, $M \in [0,1]$ – случайные числа.

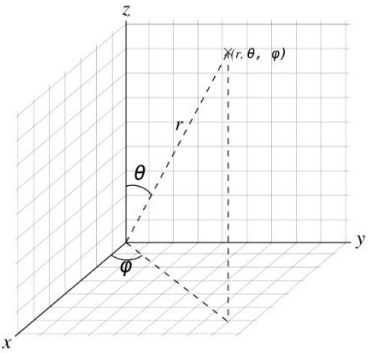


Рисунок 5.36 – Сферическая система координат

Направляющие косинусы вычислялись следующим образом:

$$\cos(x) = \cos(\phi), \tag{5.87}$$

$$\cos(y) = \sin(\phi) \cdot \sin(\theta), \tag{5.88}$$

$$\cos(z) = \sin(\phi) \cdot \cos(\theta). \tag{5.89}$$

Во входных файлах, содержалась достаточная для моделирования информация о направлении, энергии и глубине залегания осколков деления. В результате моделирования были получены выходные файлы, содержащие в себе информацию об энергии осколков деления, вышедших из образца биологической ткани, и угле, под которым осколок вылетел из мишени. Примеры энергетических распределений осколков, имеющих наибольший процент выхода на деление, в зависимости от толщины мишени представлены на рисунках 5.37–5.39. С уменьшением толщины пробы биологического материала, энергетическое распределение смещается в область больших энергий.

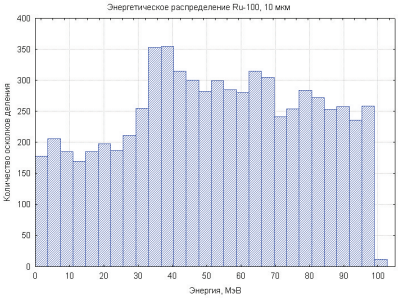


Рисунок 5.37 – Энергетическое распределение осколков деления с A=100, толщина пробы биологического материала 10 мкм

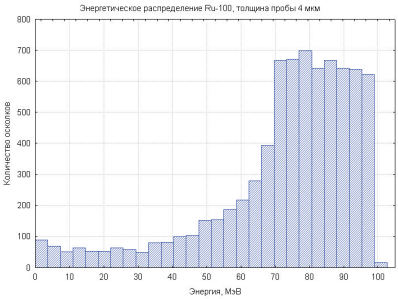


Рисунок 5.38 – Энергетическое распределение осколков деления с A=100, толщина пробы биологического материала 4 мкм

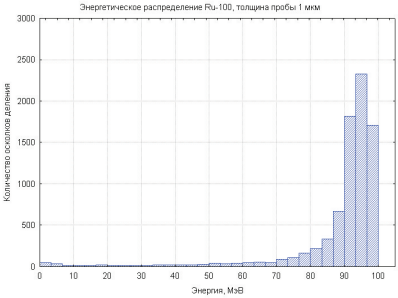


Рисунок 5.39 – Энергетическое распределение осколков деления с A=100, толщина пробы биологического материала 1 мкм

Примеры угловых распределений осколков, имеющих наибольший процент выхода на деление, в зависимости от толщины пробы биологического материала представлены на ри-

сунках 5.40–5.42. Стоит отметить, что с уменьшением толщины пробы биологического материала, угловое распределение становится более равномерным, в то время как при большой толщине биологического материала доминируют углы вылета меньше 60 градусов.

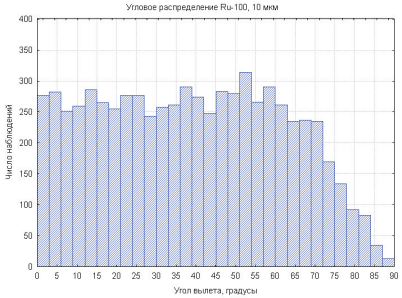


Рисунок 5.40 – Угловое распределение осколков деления с A=100, толщина пробы биологического материала 10 мкм

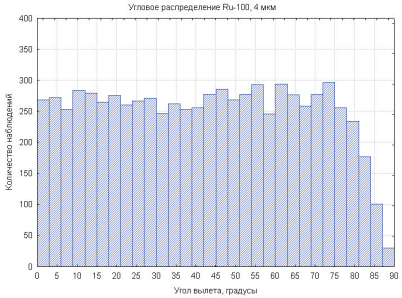


Рисунок 5.41 – Угловое распределение осколков деления с A=100, толщина пробы биологического материала 4 мкм

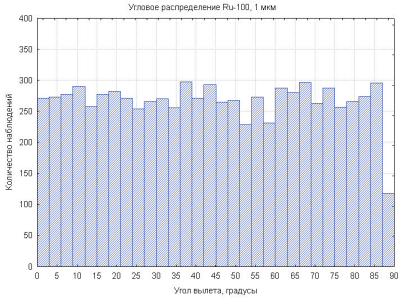


Рисунок 5.42 – Угловое распределение осколков деления с A=100, толщина пробы биологического материала 1 мкм

Для того чтобы проанализировать совокупный вылет осколков деления из мишени и, впоследствии, оценить эффективность регистрации трековым детектором, выходные данные были сведены в один общий файл для каждой толщины биологической ткани, и разделены по направлению вылета (прямое и обратное направления). Была сохранена пропорциональность вкладов ядер с различной атомной массой, соответствующая «двугорбой кривой». Вылет в прямом и обратном направлениях – равновероятные события, соответственно и распределения по энергиям и углам должны быть идентичны, поэтому для упрощения далее рассматривается прямое направление вылета осколков.

Наблюдается зависимость энергетического и углового распределений от толщины образца биологической ткани, то есть источника. При толщине пробы 10 мкм, то есть при толстом источнике, энергетическое распределение смещается в область малых энергий, в то время как при толщине 1 мкм энергетическое распределение соответствует двугорбой кривой и имеет два выраженных максимума в районе 65 и 95 МэВ. Данные энергетические распределения представлены на рисунках 5.43–5.46.

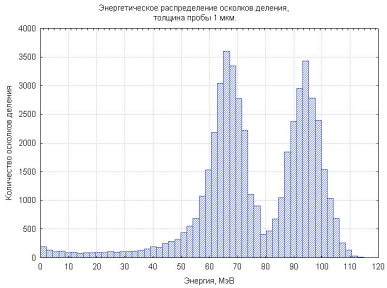


Рисунок 5.43 – Энергетическое распределение осколков деления, толщина пробы биологического материала 1 мкм

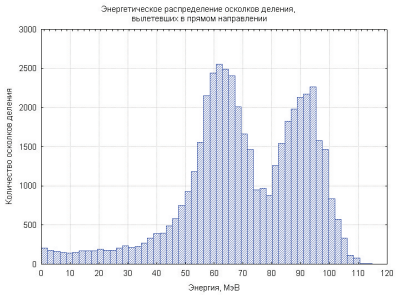


Рисунок 5.44 – Энергетическое распределение осколков деления, толщина пробы биологического материала 2 мкм

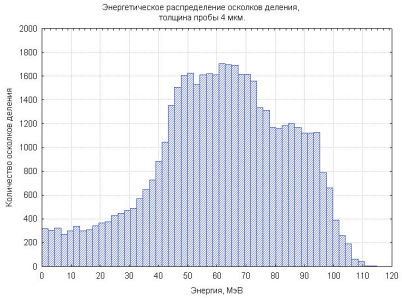


Рисунок 5.45 – Энергетическое распределение осколков деления, толщина пробы биологического материала 4 мкм

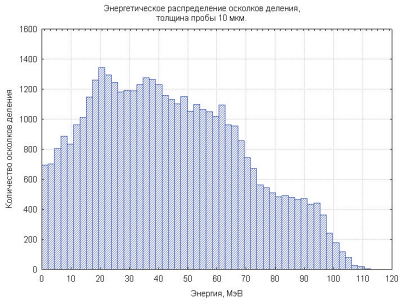


Рисунок 5.46 – Энергетическое распределение осколков деления, толщина пробы биологического материала 10 мкм

Угловое распределение также зависит от толщины образца – при малой толщине распределение равномерно, а при увеличении толщины мишени преобладают малые углы вылета осколков. Угловые распределения для разных толщин биологического материала представлены на рисунках 5.47–5.49.

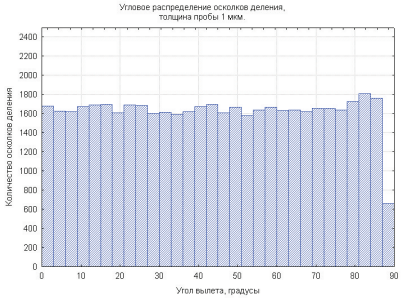


Рисунок 5.47 –Угловое распределение осколков деления, толщина пробы биологического материала 1 мкм

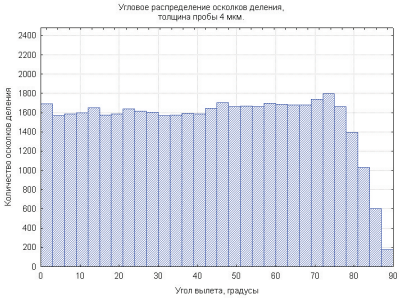


Рисунок 5.48 – Угловое распределение осколков деления, толщина пробы биологического материала 4 мкм

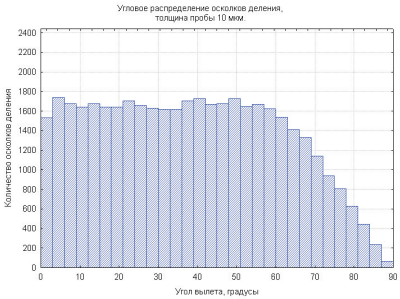


Рисунок 5.49 – Угловое распределение осколков деления, толщина пробы биологического материала 10 мкм

5.5.2. Моделирование взаимодействия осколков деления с материалом детектора

Для оценки эффективности регистрации осколков деления ^{239}Pu кварцевым трековым детектором, необходимо рассчитать потери энергии при прохождении осколка деления через вещество детектора и пробег осколков деления в кварце. Полные потери энергии складываются из ионизационных потерь (электронные взаимодействия) и потерь при ядерных соударениях. Для частиц с энергией свыше 1 МэВ потери энергии за счет ядерных соударений существенно меньше, чем при взаимодействии с электронами среды [15]. Удельные ионизационные потери энергии при прохождении заряженных частиц через вещество представляют собой отношение энергии dE частицы, теряемой на ионизацию среды при прохождении отрезка dx, к длине этого отрезка. Если пролетающая через вещество частица имеет энергию большую, чем энергия связи электрона в атоме, то удельные ионизационные потери рассчитываются по формуле Бете-Блоха:

$$-\frac{dE}{dx}=\frac{4\pi nZ^2e^4}{m_e v^2}\left[\ln\frac{2m_e c^2\beta^2}{\bar{I}}-\ln(1-\beta^2)-\beta^2\right], \qquad (5.90)$$

где m_e – масса электрона, c – скорость света, v – скорость частицы, $\beta=v/c$, Z – заряд частицы, n – плотность электронов в веществе, I – средний ионизационный потенциал атомов среды, с которой взаимодействует частица.

Потери энергии при ядерных соударениях можно вычислить по формуле [22]:

$$\frac{dE}{dx} = 4\pi a N Z_1 Z_2 e^2 \frac{M_1}{M_1 + M_2} S_n(\varepsilon), \tag{5.91}$$

где a – радиус экранирования, N – число атомов в единице объема вещества, Z_1 и Z_2 – заряды ядра, M_1 и M_2 – массовые числа, S_n – сечение ядерного торможения.

При постоянной скорости роль ядерных соударений растет с увеличением массы заряженной частицы и атомного номера вещества. Отношение $(dE/dx)_{ядер}/(dE/dx)_{ион}$ уменьшается с ростом скорости (энергии) частиц. Основным трекообразующим процессом являются именно ионизационные потери, обусловленные взаимодействием движущегося осколка деления с электронами атомов вещества детектора. При более малых энергиях преобладающим процессом становятся потери при ядерных соударениях.

В качестве грубой оценки можно привести распределение по глубинам проникновения осколков деления в материал детектора с учетом проективного пробега, характерного для каждого осколка, в зависимости от его энергии и угла вылета из биологического материала. Пробег в веществе детектора, с учетом указанных выше параметров, рассчитывается по формуле:

$$R=R_{пр}\cdot\cos(x), \tag{5.92}$$

где R – пробег в материале детектора, мкм, $R_{пр}$ – проективный пробег, мкм.

Данное распределение представлено на рисунках 5.50–5.52.

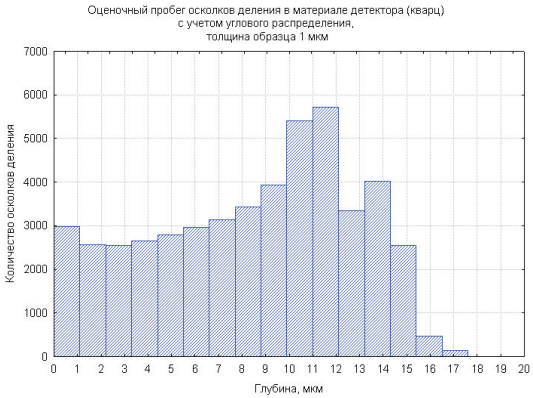


Рисунок 5.50 – Распределение по глубине проникновения осколков в детектор, толщина образца биологического материала 1 мкм

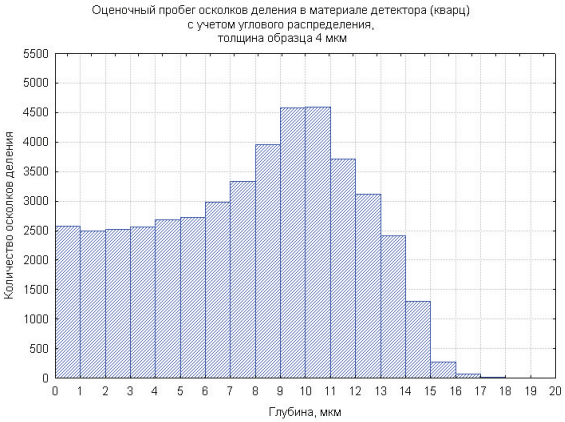


Рисунок 5.51 – Распределение по глубине проникновения осколков в детектор, толщина образца биологического материала 4 мкм

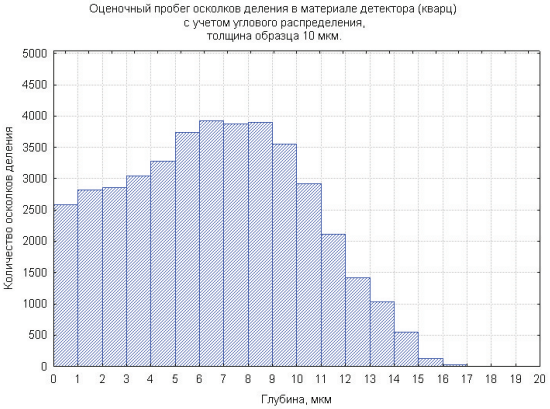


Рисунок 5.52 – Распределение по глубине проникновения осколков в детектор, толщина образца биологического материала 10 мкм

Ранее было отмечено, что в случае, если пробег частицы меньше, чем $\upsilon_G t$ (стравливаемая поверхность), трек не будет зарегистрирован. Для данного эксперимента $\upsilon_G t$ принят 0,7 мкм. Таким образом, грубая оценка показывает, что около 6% осколков не будет зарегистрировано детектором. Эффективность регистрации η определяется как отношение количества треков, выявленных травлением, к общему числу актов деления, произошедших в слое облучаемого нейтронами биологического материала. Часть телесного угла, в пределах которого треки не наблюдаются после травления, определяется выражением [19]:

$$\frac{1}{2\pi}\int_0^{\theta} 2\pi\cos\theta' d\theta' = \sin\theta. \quad (5.93)$$

Поэтому в случае облучения поверхности тонким источником осколков деления, а значит случайной ориентации треков от внешнего тонкого источника, эффективность травления определяется уравнением:

$$\eta = 1 - \sin\theta. \quad (5.94)$$

Приведенная формула справедлива только для бесконечно тонкого источника с изотропным выходом осколков деления. Как было показано выше, выход осколков деления из рассматриваемых источников биологических тканей не является изотропным. В связи с этим, необходим иной подход к оценке эффективности регистрации осколков деления при их выходе из образцов биологической ткани конечной толщины. Для оценки эффективности регистрации можно воспользоваться формулой:

$$\eta = \frac{N_T - N_{R<1мкм}}{N_0}, \quad (5.95)$$

где N_T – количество осколков деления, вылетевших в прямом направлении, $N_{R<1мкм}$ – количество осколков деления, пробег которых, с учетом угла вылета, меньше стравливаемого слоя, N_0 – общее число осколков деления.

Результаты вычислений по формуле (5.95) приведены в таблице 5.8:

Таблица 5.8 – Эффективность регистрации осколков деления в зависимости от толщины биологического материала

Толщина пробы, мкм	эффективности регистрации η
10	0,80
7	0,84
4	0,89
2	0,93
1	0,94

Значения эффективности регистрации, приведенные в таблице 5.5, хорошо согласуются со значением 82,49(3,26), полученным экспериментально для наночастиц, нанесенных непосредственно на мишень (глава «Уточнение величины критического угла» таблица 5.6).

5.5.3. Вычисление координаты наночастицы в толстом слое

Принимая во внимание, что линейные размеры наночастицы на три порядка меньше разрешения оптического микроскопа, коим пользуются для анализа и подсчета

треков, то с практической точки зрения случай $h = 0$ (рис. 5.53) является тривиальным: наночастица, ее проекция на плоскость мишени и все точки входа осколков деления в мишень совпадают. Глубина залегания $h \in [0, H]$ наночастицы в толстом слое в общем случае равновероятна:

$$P_h(h) = \frac{1}{H}, \tag{5.96}$$

где 0 – начало декартовых координат, совпадает с точкой проекции наночастицы на плоскость мишени, ось z направлена по нормали от плоскости мишени к центру масс наночастицы.

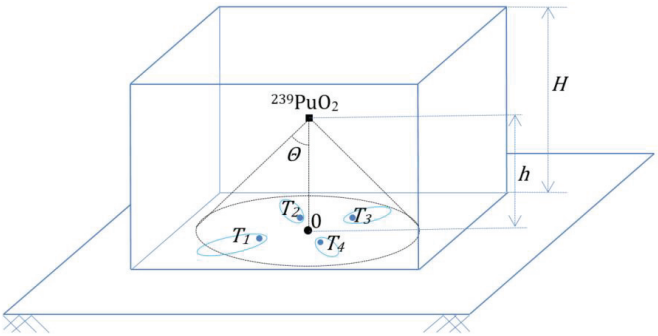


Рисунок 5.53 – Круглый прямой конус, вершина конуса в точке центра масс наночастицы $^{239}PuO_2$. Основание конуса на плоскости мишени. Угол Θ при вершине конуса равен критическому углу. Высота H – толщина толстого слоя. Высота h – глубина залегания наночастицы в толстом слое. T_1, T_2, T_3, T_4 – точки входа осколков деления в мишень

Проанализируем модельные данные, полученные в главе Моделирование поведения осколков деления ^{239}Pu в биологическом материале. По результатам моделирования построим зависимость f_H^h (формула 5.97) глубины залегания h наночастицы в толстом слое от R_{avg}. Где R_{avg} – есть среднее удаление от проекции наночастицы на мишень треков, отнесенных данной наночастице. Очевидно, что f_H^h зависит от толщины толстого слоя H. Для примера, построим для толстого слоя толщиной $H = 5 мкм$ и $H = 10 мкм$:

$$h = f_H^h\left(R_{avg}\right), \tag{5.97}$$

где h – глубина залегания наночастицы в толстом слое;

R_{avg} – среднее удаление от проекции наночастицы на мишень треков, отнесенных данной наночастице;

H – толщина толстого слоя.

Из результатов моделирования для каждого количества треков (2, 3, 4, 5, 6, 7) в звезде построим зависимость h от R_{avg}. Результаты построения для толстого слоя $H = 5 мкм$ приведены на рисунке 64. Результаты построения для толстого слоя $H = 10 мкм$ Аппроксимируем полученные результаты функцией:

$$h = a\left(1 - e^{-bR_{avg}}\right), \tag{5.98}$$

где h – глубина залегания наночастицы в толстом слое;

R_{avg} – среднее удаление от проекции наночастицы на мишень треков, отнесенных данной наночастице;

a – первый параметр аппроксимации (фиттирования);

b – второй параметр аппроксимации (фиттирования).

Функция аппроксимации выбрана в виде формулы 100, чтобы выполнялись граничные условия:

$$\begin{cases} R_{avg} \in [0, +\infty[\\ h \underset{R_{avg} \to 0}{\to} 0 \\ h \underset{R_{avg} \to +\infty}{\to} a \le H \end{cases} \tag{5.99}$$

Результаты аппроксимации $f^h_{H=5}$ функцией $h = a\left(1 - e^{-bR_{avg}}\right)$ приведены в таблице 5.9. Результаты аппроксимации $f^h_{H=10}$ функцией $h = a\left(1 - e^{-bR_{avg}}\right)$ приведены в таблице 5.10.

Таблица 5.9 – Результаты аппроксимации $f^h_{H=5}$ функцией $h = a\left(1 - e^{-bR_{avg}}\right)$

Количество треков в звезде	a, формула (5.15)	b, формула (5.15)	R^2
2	3,7567	0,4225	0,8845
3	3,9506	0,3787	0,9315
4	3,7666	0,4346	0,9990
5	3,8369	0,4413	0,9901
6	4,3514	0,2958	0,9937
7	3,9356	0,295	0,9671
Среднее ± СКО	3,93±0,15	0,378±0,055	

По полученным данным функция $f^h_{H=5}$ не зависит от количества треков в звезде, по крайней мере, для полученных значений (таблица 5.7). Аппроксимация функции $f^h_{H=5}$ для толстого слоя толщиной $H = 5 мкм$ имеет вид:

$$h = 3.93\left(1 - e^{-0.378 R_{avg}}\right), \tag{5.100}$$

где h – глубина залегания наночастицы в толстом слое;

R_{avg} – среднее удаление от проекции наночастицы на мишень треков, отнесенных данной наночастице.

Таблица 5.10 – Результаты аппроксимации $f^{h}_{H=10}$ функцией $h = a\left(1 - e^{-bR_{avg}}\right)$

Количество треков в звезде	a, формула (5.98)	b, формула (5.98)	R^2
2	6,4914	0,4155	0,9900
3	7,0019	0,2934	0,9933
4	8,0368	0,2107	0,9912
5	8,1937	0,1889	0,9916
6	8,9464	0,1595	0,9798
7	6,9319	0,2063	0,9310
Среднее ± СКО	7,60±0,79	0,246±0,072	

В отличие от функции $f^{h}_{H=5}$, которая предположительно не зависит от количества треков в звезде, в функции $f^{h}_{H=10}$ (таблица 5.8) виден возможный линейный тренд на возрастание для параметра a и возможный степенной тренд на убывание для параметра b в зависимости от количества треков в звезде.

Аппроксимация функции $f^{h}_{H=10}$ для толстого слоя толщиной $H = 10\,мкм$ имеет вид:

$$h = 7.60\left(1 - e^{-0.246 R_{avg}}\right), \tag{5.101}$$

где h – глубина залегания наночастицы в толстом слое;

R_{avg} – среднее удаление от проекции наночастицы на мишень треков, отнесенных данной наночастице.

Таким образом, измерив среднее удаление треков, отнесенных данной наночастице, от проекции наночастицы на мишень, мы получаем глубину залегания частицы в толстом слое. Эта функция зависит от толщины толстого слоя, поэтому необходимо рассчитать несколько функций для толщин, используемых в практике (конкретную функцию для конкретной толщины). Но так как мы вольны выбирать толщину толстого слоя, и в практике используется ограниченное количество толщин, то это вполне реализуемая задача.

По результатам моделирования построим плотность вероятности p^{N}_{H} числа актов деления наночастицы N_f при облучении тепловыми нейтронами в толстом слое,

от количества треков, отнесенных данной наночастице N. Плотность вероятности дискретная и, очевидно, что она зависит от толщины толстого слоя H. Плотность вероятности можно построить для любой толщины, для примера, построим плотность вероятности для толстого слоя толщиной $H = 5 мкм$ (рис. 5.54) и $H = 10 мкм$ (рис. 5.55).

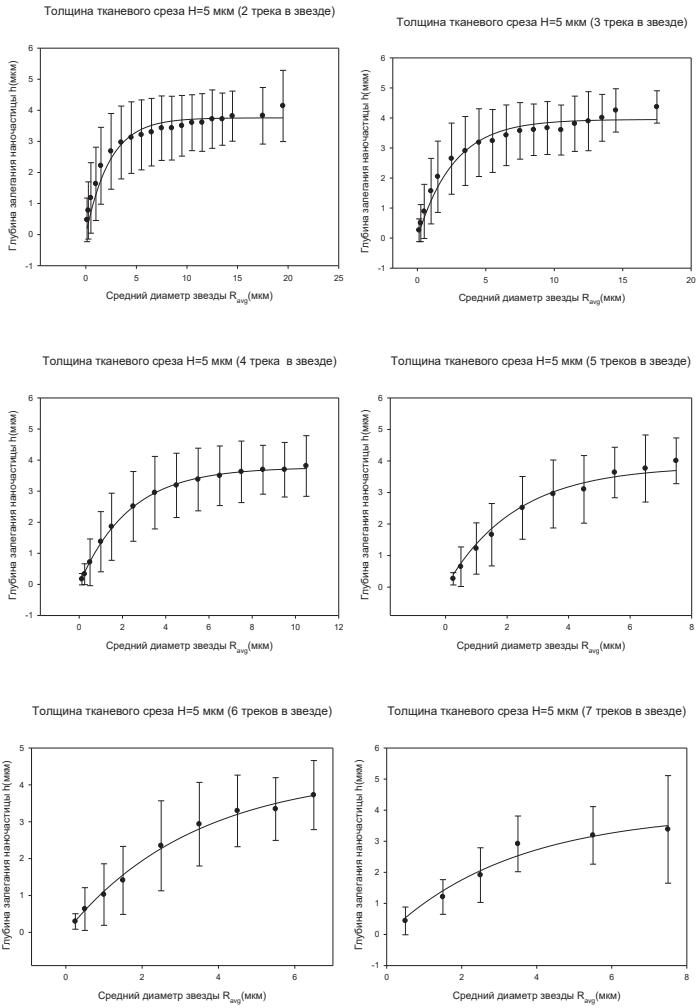


Рисунок 5.54 – Зависимость h от R_{avg} для толстого слоя толщиной $H = 5 мкм$ и аппроксимация зависимости функцией $h = a\left(1 - e^{-bR_{avg}}\right)$

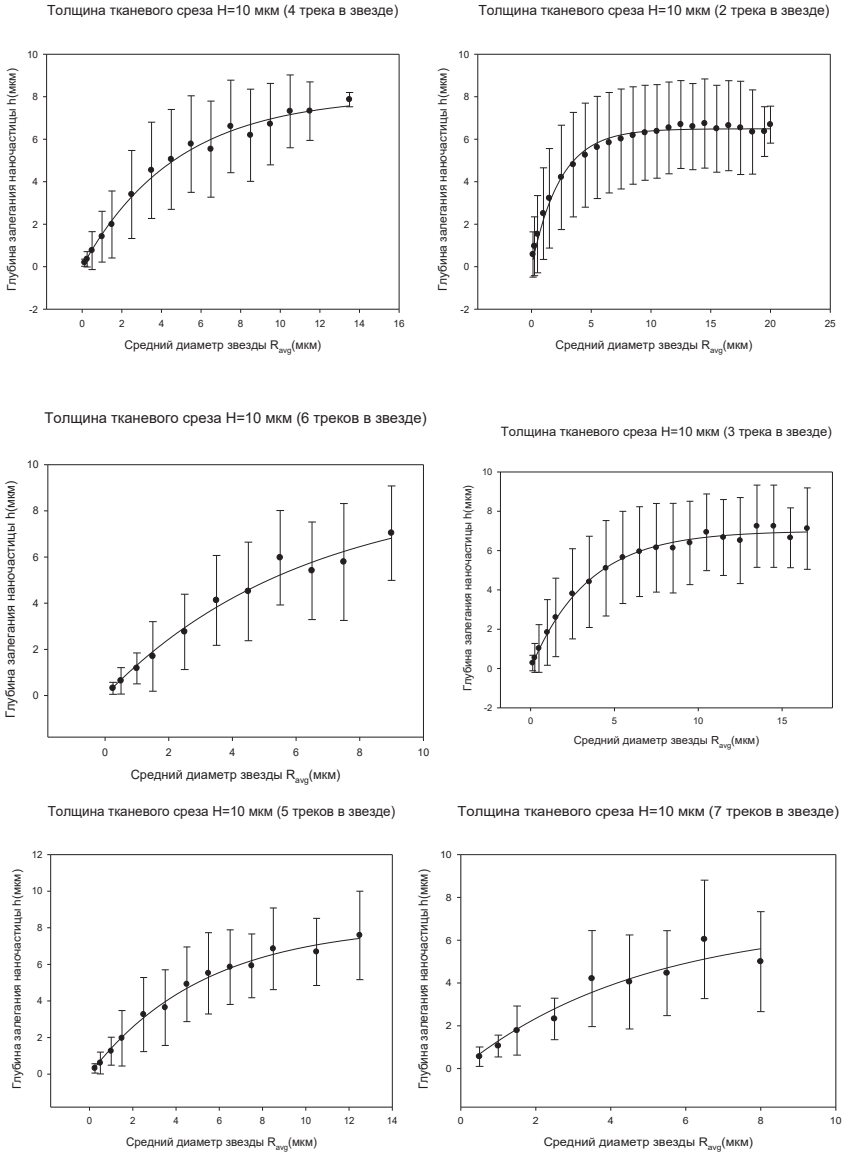


Рисунок 5.55 – Зависимость h от R_{avg} для толстого слоя толщиной $H = 10 мкм$ и аппроксимация зависимости функцией $h = a\left(1 - e^{-bR_{avg}}\right)$

Область определения по координате абсцисс не заканчивается на каком-то конкретном значении, как приведено на рисунках 5.56 и 5.57, но для получения «хвостов» необходимо много модельного времени, и мы получим очень маленькие вероятности, которыми, возможно, стоит пренебречь.

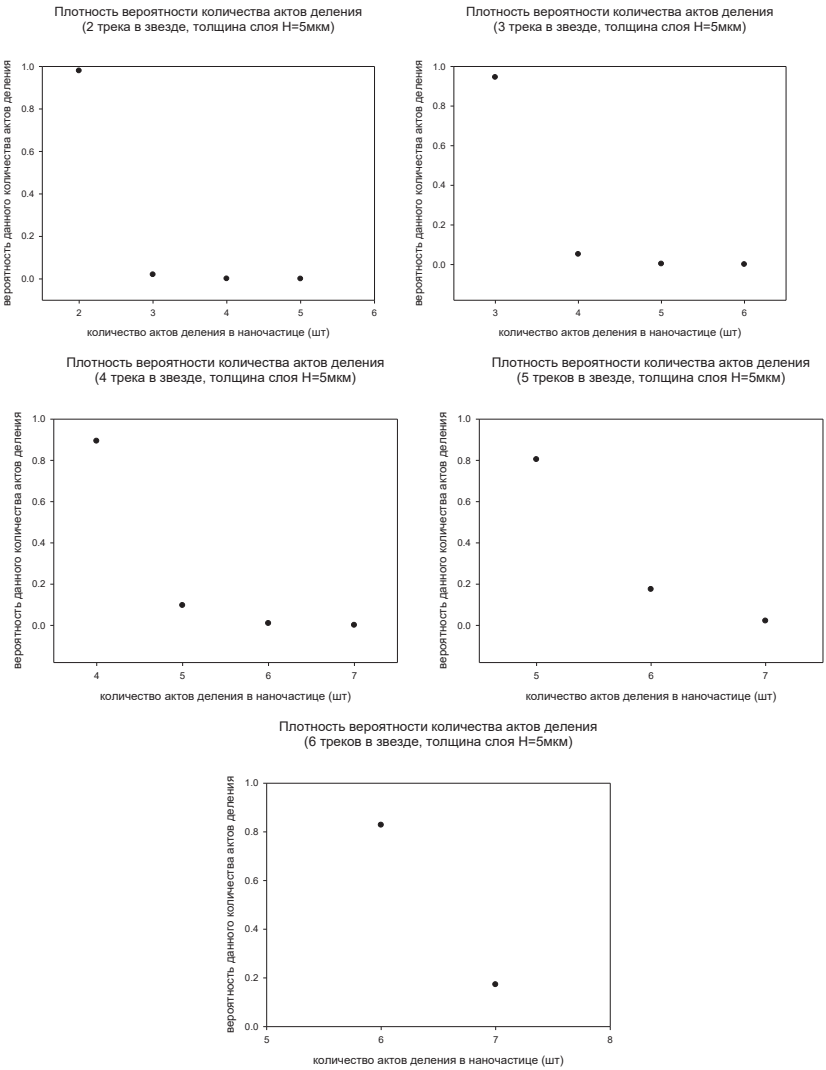


Рисунок 5.56 – Дискретная плотность вероятности $p^{N}_{H=5}$ числа актов деления наночастицы N_f при облучении тепловыми нейтронами в толстом слое в зависимости от количества треков, отнесенных данной наночастице N

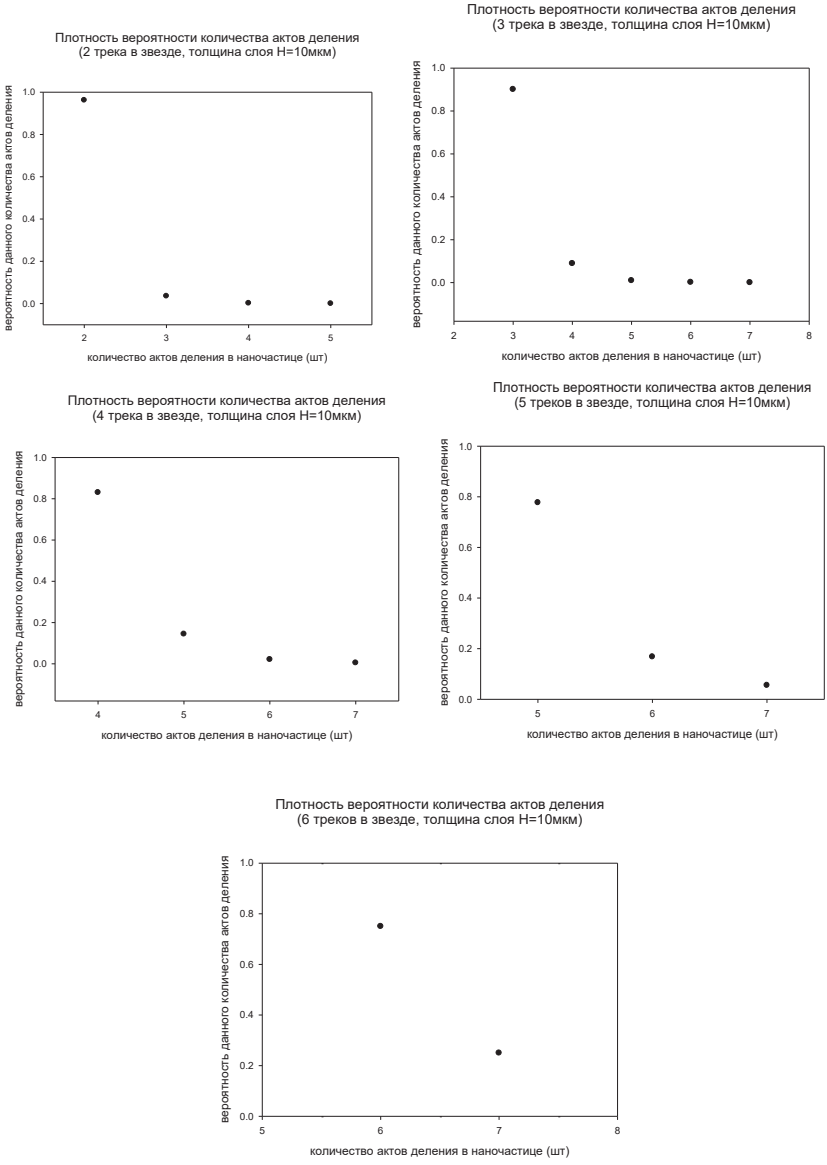


Рисунок 5.57 – Дискретная плотность вероятности $p^{N}_{H=10}$ числа актов деления наночастицы N_f при облучении тепловыми нейтронами в толстом слое в зависимости от количества треков, отнесенных данной наночастице N

Следовательно, используя плотности вероятности по количеству треков в звезде N, восстанавливаем числа актов деления наночастицы N_f при облучении тепловыми нейтронами. Затем по формуле (5.102) восстанавливаем $N_{ядер}$ в наночастице:

$$N_{\text{ядер}} = \frac{N_f}{\Phi \sigma_f 10^{-24}}, \tag{5.102}$$

где $N_{\text{ядер}}$ – число ядер плутония в наночастице;

N_f – число актов деления;

Φ – флюенс нейтронов, см$^{-2}$;

σ_f – сечение реакции деления, барн;

10^{-24} – коэффициент перехода от барн к см$^{-2}$.

Алгоритм идентификации наночастиц, расположенных в толстом слое, следующий. Сфотографировав на оптическом микроскопе видимые треки, используя алгоритм отнесения группы треков к звезде, восстанавливаем проекцию наночастицы на плоскость детектора и приписываем этой наночастице треки. Используя функциональную зависимость (формулы 5.101, 5.102), из проекции наночастицы на плоскость детектора и приписываемым этой наночастице трекам получаем глубину залегания наночастицы в толстом слое. Имея глубину залегания наночастицы и проекцию наночастицы на плоскость детектора, получаем координату нахождения наночастицы в толстом слое. По количеству треков, приписываемых наночастице, и плотности вероятностей получаем размер наночастицы, используя формулу (5.102). Это позволяет по трекам от осколков деления, протравленным на мишени, восстановить размер и координаты залегания наночастицы в тканевом срезе биологического материала.

5.6. Исследование статистических характеристик распределения звезд по числу треков на основе экспериментальных результатов

Классификация визуализированных треков деления на поверхности детектора от продуктов деления ^{239}Pu разработана в главе «Разработка метода интерпретации визуализированных изображений треков». Исходные данные и материалы и методы для данной главы описаны в [24]. В рассмотрение взяты 36 детекторов, из них 26 детекторов – это пробы наночастиц из отделения оксалатного осаждения, прокалки и получения диоксида плутония из отработавшего ядерного топлива завода регенерации топлива ПО «Маяк» и 10 детекторов фоновых. Построили распределение в виде ζ-распределения Римана. Вероятностное распределение имеет вид:

$$\Pr\left[X = x\right] = \frac{1}{\zeta\left(\rho+1\right)} x^{-(\rho+1)}, \quad \rho > 0, \tag{5.103}$$

где ζ – функция Римана:

$$\zeta\left(s\right) = \sum_{j=1}^{\infty} j^{-s}, \quad s > 0 \tag{5.104}$$

Построили ζ-распределение Римана двумя способами [25]: методом максимума правдоподобия (ММП) и методом взвешенных наименьших квадратов (МВНК).

Метод максимума правдоподобия:

$$\frac{\sum_{i=1}^{N} \ln\left(x_i\right)}{N} = \frac{-\zeta'\left(\hat{\rho}+1\right)}{\zeta\left(\hat{\rho}+1\right)}, \quad \hat{\rho} > 0,$$

где $\hat{\rho}$ – ММП оценка параметра ρ;

N – общее количество звезд, включая вырожденные звезды с одним треком;

x_i – количество треков в i-й звезде, $i = 1, 2, .., N$.

Метод взвешенных наименьших квадратов:

$$\sum_{j=1}^{\sum_{k=1}^{\infty}\left(1-\delta_{\left(\sum_{i=1}^{N}\delta_{x_i k}\right)0}\right)} \left[10^{j} \left(\frac{\sum_{i=1}^{N} \delta_{x_i j}}{N} - \frac{1}{\zeta\left(\breve{\rho}+1\right)} j^{-\left(\breve{\rho}+1\right)} \right)^2 \right] \underset{\breve{\rho}}{\rightarrow} min, \quad \breve{\rho} > 0,$$

где $\breve{\rho}$ – МВНК оценка параметра ρ;

N – общее количество звезд, включая вырожденные звезды с одним треком;

$\delta_{x_i j}$ – Символ Кронекера: $\delta_{x_i j} = \begin{cases} 1, & x_i = j \\ 0, & x_i \neq j \end{cases}$

Результаты построения приведены в таблице 5.11, где R^2 – коэффициент детерминации. Сравнивая коэффициент детерминации для метода ММП и метода МВНК, видно, что ζ-распределение Римана, построенное методом МВНК, в общем, более точно соответствует входным данным, поэтому далее будем рассматривать ζ-распределение Римана, построенное методом МВНК.

ζ-распределение Римана является однопараметрическим, поэтому проанализируем параметр $(\rho+1)$ по категориям (рисунки 5.58 и 5.59). Статистический тест U-тест Манна-Уитни и тест Уолда-Волфовитца подтверждают, что фон и сумма сигнал+фон статистически неразличимы.

Таблица 5.11 – Параметры ζ -распределения Римана

№ пп	Тип	МВНК			ММП		
		$\frac{1}{\zeta\left(\dot{\rho}+1\right)}$	$\left(\dot{\rho}+1\right)$	R^2	$\frac{1}{\zeta\left(\hat{\rho}+1\right)}$	$\left(\hat{\rho}+1\right)$	R^2
1	фон	0,985709	6,242661	0,751071	0,989824	6,712849	0,550449
2	сигнал+фон	0,928128	4,073373	0,936506	0,968358	5,158765	0,627548
3	сигнал+фон	0,999824	12,48066	0,352848	0,999533	11,07914	0,636326
4	сигнал+фон	0,887687	3,50	0,750323	0,971891	5,318498	0,653108
5	сигнал+фон	0,942585	4,366389	0,951318	0,971734	5,310947	0,804383
6	сигнал+фон	0,99011	6,752484	0,818335	0,990645	6,829874	0,799164
7	сигнал+фон	0,890886	3,538378	0,787839	0,974167	5,432795	0,636035
8	фон	0,898137	3,625553	0,93723	0,952164	4,606952	0,387052
9	сигнал+фон	0,974912	5,472497	0,901867	0,990733	6,843042	0,436604
10	сигнал+фон	0,991002	6,8841	0,794216	0,991401	6,947275	0,773538
11	фон	0,999031	10,03617	0,694651	0,998608	9,519176	0,287556
12	сигнал+фон	0,985582	6,230485	0,935582	0,986298	6,300789	0,92386
13	фон	0,998441	9,35765	1	0,998496	9,40881	0,999932
14	фон	0,996765	8,321234	0,994905	0,996827	8,348626	0,995497
15	фон	0,994559	7,588061	0,999486	0,994647	7,610859	0,999645
16	сигнал+фон	0,974754	5,463973	0,899617	0,981999	5,925315	0,78208
17	сигнал+фон	0,84248	3,079842	0,711496	0,953972	4,657999	0,394676
18	сигнал+фон	0,972325	5,339514	0,987241	0,97494	5,474023	0,976239
19	сигнал+фон	0,970509	5,253652	0,999616	0,972293	5,337968	0,99965
20	сигнал+фон	0,955927	4,715581	0,941219	0,974423	5,446336	0,854855
21	сигнал+фон	0,948375	4,506243	0,936558	0,972577	5,351893	0,733417
22	сигнал+фон	0,956223	4,724547	0,950746	0,972758	5,360871	0,833368
23	сигнал+фон	0,986886	6,361296	0,87471	0,987386	6,41509	0,861636
24	сигнал+фон	0,955481	4,702217	0,864552	0,983276	6,026277	0,605194
25	фон	0,787334	2,714419	0,550025	0,950265	4,555488	0,559165
26	фон	0,997299	8,576865	0,994629	0,997266	8,559271	0,99505
27	фон	0,948457	4,508329	0,896294	0,976176	5,542693	0,688379
28	фон	0,994693	7,623099	0,999998	0,995078	7,729031	0,999562
29	сигнал+фон	0,992844	7,203912	0,970445	0,992761	7,187656	0,971669
30	сигнал+фон	0,980005	5,781555	0,982852	0,981432	5,882807	0,972446
31	сигнал+фон	0,989018	6,607055	0,94426	0,989461	6,664172	0,935418
32	сигнал+фон	0,968696	5,173224	0,992692	0,961216	4,885875	0,977606
33	сигнал+фон	0,964313	4,997204	0,985988	0,973159	5,380967	0,946085
34	сигнал+фон	0,900728	3,658311	0,896767	0,959794	4,837805	0,527551
35	сигнал+фон	0,980272	5,799947	0,996201	0,981048	5,854806	0,994455
36	сигнал+фон	0,999943	14,10841	0,363558	0,9998	12,29573	0,665512

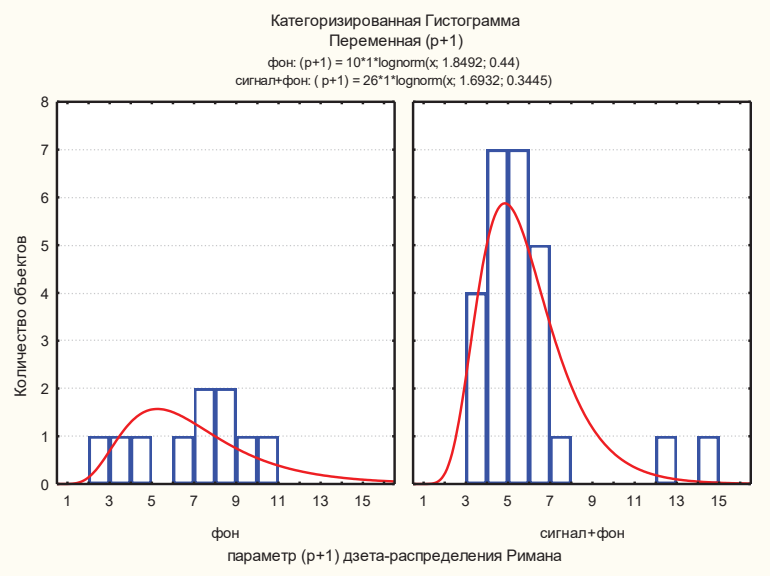


Рисунок 5.58 – Распределение параметра ($\rho+1$)

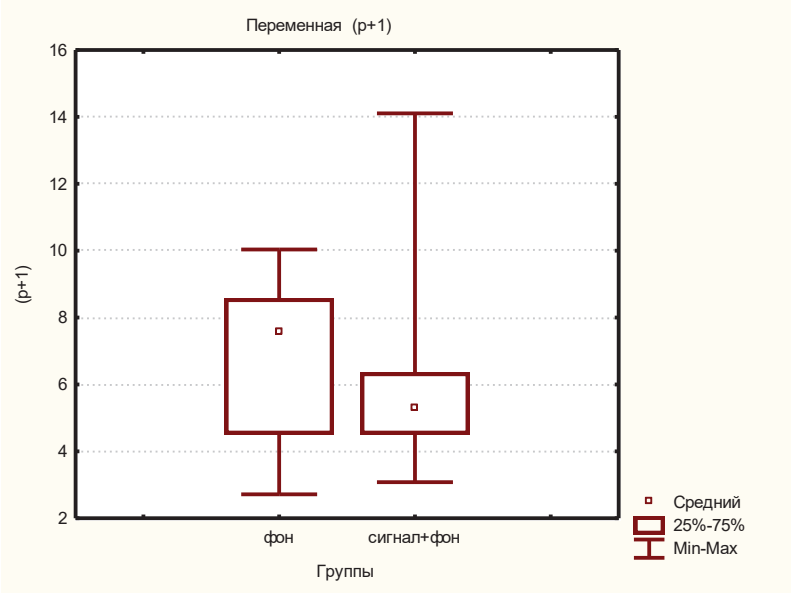


Рисунок 5.59 – Диаграмма размаха распределения параметра ($\rho+1$)

Проведены исследования статистических характеристик распределения размеров наночастиц $^{239}PuO_2$ воздуха отделения оксалатного осаждения завода регенерации топлива ПО «Маяк». Показано, что распределение звезд по числу треков от продуктов деления ^{239}Pu на мишенях из сверхчистого монокристаллического синтетического кварцевого стекла является дзета-распределением Римана (распределение Зипфа). Такое же распределение звезд по числу треков от продуктов деления ^{239}Pu на фоновых детекторах.

5.7. Определение диаметра и стандартной неопределенности частицы $^{239}PuO_2$

5.7.1. Способ определения количества ядер ^{239}Pu в частице

Количество актов деления ^{239}Pu под воздействием тепловых нейтронов и количество треков звезды, соответствующей данной частице (рис. 5.60), связано соотношением [15]:

$$N_b = N_f \frac{2\pi}{\Omega_{2\varphi}} = \frac{N_f}{\varepsilon} = \frac{N_f}{1-\cos\varphi}, \qquad (5.105)$$

где N_b – количество актов деления ^{239}Pu под воздействием тепловых нейтронов;

N_f – сосчитанное в процессе обработки изображения количество треков звезды, приписанных данной частице;

$\Omega_{2\varphi}$ – телесный угол при вершине прямого кругового конуса с углом раствора 2φ, вершина конуса совпадает с центром частицы, плоскость основания конуса лежит на плоскости детектора, ср;

ε – эффективность регистрации актов деления трековым детектором, доли;

φ – критический угол входа трека в мишень – это угол, при превышении которого осколок деления радиоактивного нуклида частицы не оставляет трека в мишени.

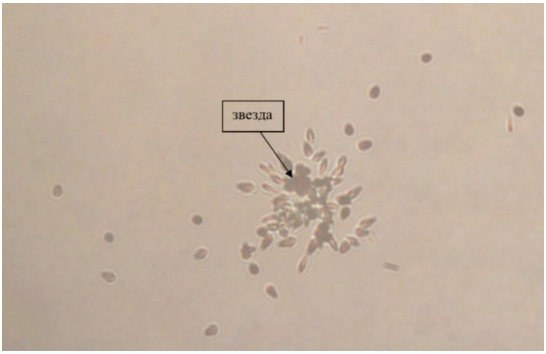


Рисунок 5.60 – Пример фотографии простой звезды

Количество ядер ^{239}Pu частицы, вычисляется следующим образом [23]:

$$N = \frac{N_b}{\Phi\sigma 10^{-24}}, \tag{5.106}$$

где N – количество ядер радиоактивного нуклида частицы;

N_b – количество актов деления ^{239}Pu под воздействием тепловых нейтронов;

Φ – флюенс тепловых нейтронов, нейтрон·см$^{-2}$;

σ – сечение деления ядра радиоактивного нуклида частицы в поле тепловых нейтронов, барн;

10^{-24} – коэффициент перехода от барн к см^2.

5.7.2. Оценка количества актов деления ^{239}Pu при использовании метода подсчета количества треков в сложной звезде

Необходимость подсчета всех треков звезды является явным недостатком, так как делает способ непригодным для случаев, когда часть треков визуально перекрываются друг с другом и не могут быть сосчитаны (рис. 5.61), или доступна лишь часть треков (рис. 5.62). Для улучшения восприятия дальнейшего текста, звезды, в которых невозможно непосредственно сосчитать количество треков назовем сложными звездами. Звезды, в которых можно непосредственно сосчитать все треки назовем простыми звездами.

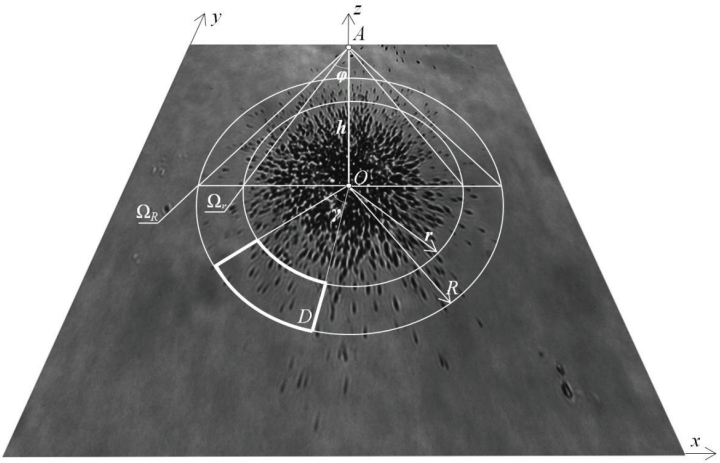


Рисунок 5.61 – Пример фотографии сложной звезды, в которой практически невозможно сосчитать все треки. Расчет количества треков в звезде производится по количеству треков в произвольно выбранном сегменте кольца *D* (выделен белым)

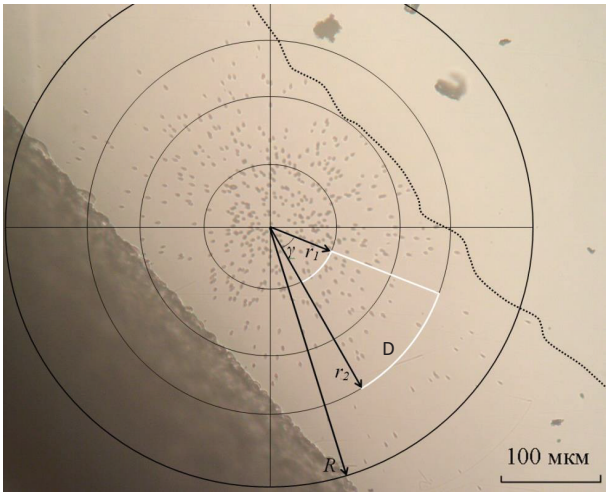


Рисунок 5.62 – Пример фотографии сложной звезды, в которой доступна для подсчета лишь часть треков (треки выше пунктирной линии и ниже границы темного и светлого фона недоступны). Расчет количества треков в звезде производится по количеству треков в произвольно выбранном сегменте кольца D (выделен белым)

Очертим окружность радиусом R вокруг сложной звезды по внешним трекам (рис. 5.61), геометрически определим центр окружности точку O. Почти всегда есть возможность прочертить окружность радиуса r $(0 \le r < R)$ с центром в точке O так, что треки, попавшие в кольцо rR, могут быть сосчитаны.

По количеству треков N_D, попавших в сектор кольца D, вычислим общее количество актов деления N_b:

$$N_b = N_D \frac{2\pi}{\Omega_D} \tag{5.107}$$

$$\Omega_D = \frac{\gamma}{2\pi}\left(\Omega_R - \Omega_r\right)$$

$$\Omega_R = 2\pi\left(1 - \frac{h}{\sqrt{R^2 + h^2}}\right)$$

$$\Omega_r = 2\pi\left(1 - \frac{h}{\sqrt{r^2 + h^2}}\right)$$

$$h = R{\cdot}ctg\left(\varphi\right),$$

где Ω_D – телесный угол сектора кольца D, видимый из точки A залегания частицы, ср;

Ω_R, Ω_r – телесные углы кругов радиусов R, r, видимые из точки A, ср;

h – высота точки A над поверхностью детектора, мкм;

γ – угол сектора кольца D, рад;

φ – критический угол входа трека в мишень, градусы;

R – радиус окружности, описанной вокруг внешних треков на мишени, принадлежащих одной частице, мкм;

r – окружность радиуса $0 \le r < R$ с центром в точке O, такая, что треки, попавшие в кольцо rR, могут быть сосчитаны, мкм.

В результате количество актов деления радиоактивного нуклида частицы выражается через величины, которые или измеряются непосредственно (N_d, R, r, γ), или известны (φ):

$$N_b = \frac{N_D 2\pi}{\gamma} \frac{1}{\frac{R \cdot ctg(\varphi)}{\sqrt{r^2 + R^2 ctg^2(\varphi)}} - cos(\varphi)} \qquad (5.108)$$

Возможно обобщение формулы (5.108) для сектора произвольного кольца $r_1 r_2$ $(0 \le r_1 < r_2 \le R)$. Подсчет количества треков N_D, производится в секторе кольца звезды D. D определяется тройкой (r_1, r_2, γ) и выбирается исключительно из соображений удобства подсчета количества треков (рис. 5.63), для варианта а) $r_1 \equiv 0, r_2 \equiv R$; б) $\gamma \equiv 2\pi$. Например, подсчет треков N_D производится в произвольно выбранном сегменте кольца D (выделен белым) на рисунке 5.62.

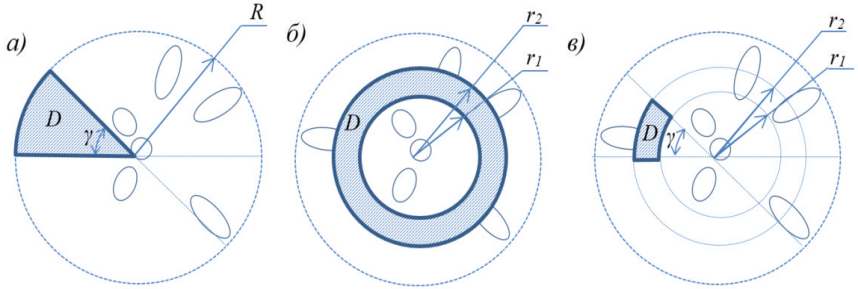


Рисунок 5.63 – Возможные варианты выбора сектора кольца звезды (схематично)

Зависимость количества актов деления радиоактивного нуклида частицы от подсчитанного количества треков N_D в произвольно выбранном сегменте кольца выражается формулой:

$$N_b = \frac{N_D 2\pi}{\gamma} \frac{1}{\frac{R \cdot ctg(\varphi)}{\sqrt{r_1^2 + \left(R \cdot ctg(\varphi)\right)^2}} - \frac{R \cdot ctg(\varphi)}{\sqrt{r_2^2 + \left(R \cdot ctg(\varphi)\right)^2}}}, \quad (5.109)$$

где D – сектор кольца r_1, r_2, γ, выбирается таким образом, что в этом секторе кольца возможен подсчет треков;

R – радиус окружности, описанной вокруг внешних треков на мишени, принадлежащих одной частице, мкм;

r_1, r_2 – два радиуса, определяющих кольцо с центром, совпадающим с центром окружности R и $0 \le r_1 < r_2 \le R$, мкм;

γ – угол сектора кольца D, определяемого радиусами r_1, r_2, рад;

N_D – количество треков на мишени, подсчитанных в процессе обработки изображений в секторе кольца D;

φ – критический угол входа трека в мишень.

Предложенный метод измерения диаметра частицы $^{239}PuO_2$ в сложной звезде был разработан впервые. Зарегистрировано изобретение «Способ определения количества ядер радиоактивного нуклида частицы, включающий облучение частицы в поле тепловых нейтронов при воздушной среде между частицей и мишенью» свидетельство RU 2733491 C2 [29].

5.7.3. Проверка правильности оценки количества актов деления в сложной звезде

Звезда на рисунке 5.64 не является сложной. Она была выбрана для проверки метода определения диаметра частицы. Непосредственно считаем количество треков и по формуле (5.105) получаем общее количество актов деления радиоактивного нуклида частицы. Далее нарезаем звезду на секторы и, используя алгоритм для сложной звезды, оцениваем количество актов деления по формуле (5.109). Затем сравниваем полученные результаты.

Материал мишени – монокристалл сверхчистого синтетического кварца $\varphi = 79{,}92(1{,}91)^0$ (глава «Уточнение величины критического угла»). Был произведен подсчет всех треков звезды (рис. 5.64) – $N_f = 453$ трека, и вычислено количество актов деления ^{239}Pu под воздействием тепловых нейтронов по формуле (5.105) $N_b = 549$. Затем разбили звезду на секторы с $\gamma = \pi/2$ в каждом и нарезали кольца (рис. 5.64). Вычислили

значения N_b по формуле (5.109). Результат поместили в таблицу 5.12 и представили в графическом виде на рисунке 5.64.

Таблица 5.12 – результат оценки количества актов деления ^{239}Pu по формуле (5.109) частицы, ассоциированной со звездой, представленной на рисунке 5.64

Сектор	Угол γ, рад	r_1, мкм	r_2, мкм	R, мкм	n	N_b, актов деления
A1	$\pi/2$	318	513	582	13	466
A2	$\pi/2$	318	513	582	11	394
A3	$\pi/2$	318	513	582	8	287
A4	$\pi/2$	318	513	582	12	430
среднее по A						394
СКО по A						77
A1+B1	$\pi/2$	196	513	582	28	416
A2+B2	$\pi/2$	196	513	582	37	550
A3+B3	$\pi/2$	196	513	582	26	386
A4+B4	$\pi/2$	196	513	582	40	595
среднее по A+B						487
СКО по A+B						101
A1+B1+C1	$\pi/2$	77	513	582	85	562
A2+B2+C2	$\pi/2$	77	513	582	97	642
A3+B3+C3	$\pi/2$	77	513	582	80	529
A4+B4+C4	$\pi/2$	77	513	582	96	635
среднее по A+B+C						592
СКО по A+B+C						55
A1+B1+C1+D1	$\pi/2$	0	513	582	110	548
A2+B2+C2+D2	$\pi/2$	0	513	582	121	603
A3+B3+C3+D3	$\pi/2$	0	513	582	107	533
A4+B4+C4+D4	$\pi/2$	0	513	582	115	573
среднее по A+B+C+D						564
СКО по A+B+C+D						31

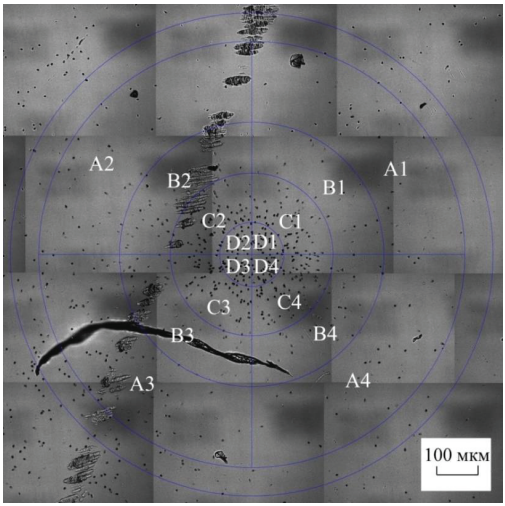


Рисунок 5.64 – Пример звезды с разметкой по секторам и кольцам для подсчета треков

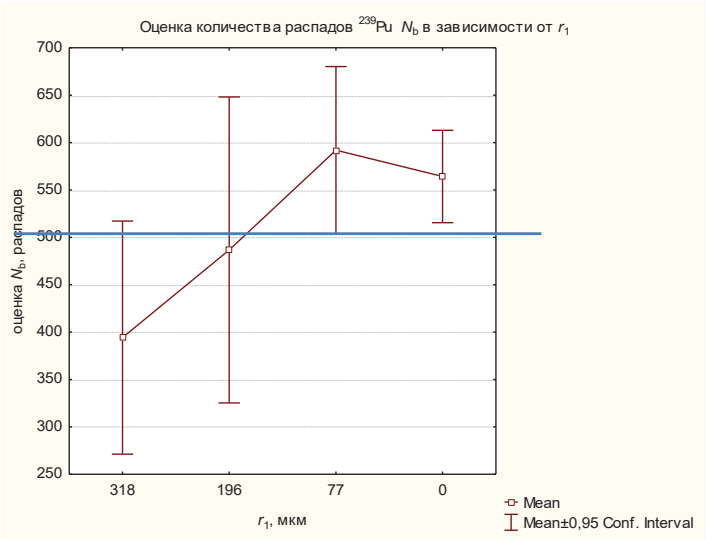


Рисунок 5.65 – Зависимость количества актов деления ^{239}Pu от радиуса r_1, полученная по формуле (5.109). Горизонтальная линия – это количество актов деления ^{239}Pu, полученное пересчетом всех треков звезды по формуле (5.105)

По построению, чем меньше r_1, тем больше площадь сектора. Как и следовало ожидать, при увеличении площади сектора кольца уменьшалась среднеквадратическая

ошибка и улучшалась точность оценки количества актов деления ^{239}Pu (рис. 5.64). Поэтому, при выборе сектора кольца для использования в формулах (5.108, 5.109) желательно выбирать сектор кольца с максимальной площадью.

5.7.4. Общий подход к определению диаметра частицы $^{239}PuO_2$ и стандартной неопределенности размера

Принцип расчета размеров частиц основан на подсчете визуализированных треков, образовавшихся в материале детектора в результате деления ядер ^{239}Pu, содержащихся в частице, в поле тепловых нейтронов, с учетом эффективности регистрации указанных треков [23]. На рисунке 5.66 приводится схема определения размера частицы и стандартной неопределенности размера. Описание соответствующих пунктов схемы приведено в последующих параграфах.

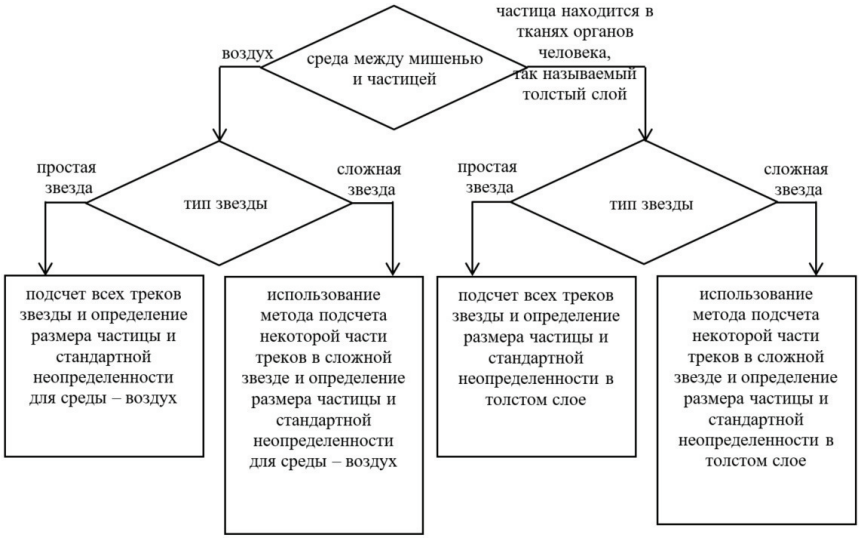


Рисунок 5.66 – Схема определения размера частицы и стандартной неопределенности размера

5.7.5. Определение диаметра частицы $^{239}PuO_2$, среда между мишенями – воздух

В главе «Исследование статистических характеристик распределения звезд по числу треков на основе экспериментальных результатов» было показано, что результаты подсчета звезд на мишенях из сверхчистого синтетического кварцевого стекла от продуктов деления радиоактивного изотопа $^{239}PuO_2$, полученных травлением, имеет ζ-распределения Римана. Данное распределение было использовано по причине того, что областью

определения являлись звезды, а количество треков в звездах по природе дискретно: звезда с одним треком, звезда с двумя треками и т.д. Но дискретность не является свойством самих частиц, а возникает из-за метода измерения. Распределение самих частиц по размерам можно считать непрерывным. Покажем, что можно перейти от одномерного дискретного ζ-распределения Римана звезд на мишенях к непрерывному распределению линейных размеров частиц, в предположении, что это частицы $^{239}PuO_2$.

Диаметр частицы рассчитывали в соответствии с формулой [26]:

$$l = kna \tag{5.110}$$

где a – шаг кристаллической решетки (0,54 нм для $^{239}PuO_2$);

k – коэффициент, зависящий от физических характеристик соединения и интерпретации размера частицы [26]. Например, для $^{239}PuO_2$: диаметр Мартина $k = 1$; диаметр Ферета $k = \sqrt{3}$;

n – число шагов кристаллической решетки.

Число шагов кристаллической решетки вычисляется по формуле:

$$n = \left[\frac{\sqrt[3]{2N-1}-1}{2} + 0,5 \right], \tag{5.111}$$

где N – количество ядер радиоактивного нуклида частицы;

$[\ ]$ – оператор, возвращающий целую часть числа.

Число атомов частицы N, облученных в поле тепловых нейтронов, рассчитывали на основе подсчета числа визуализированных треков в соответствии с выражением:

$$N = \frac{N_f}{\varepsilon \Phi \sigma_f 10^{-24}} \tag{5.112}$$

где N_f – число треков, приписанных данной частице в процессе обработки изображений;

ε – эффективность регистрации актов деления трековым детектором;

Φ – флюенс тепловых нейтронов, $4,06 \cdot 10^{17}$ нейтрон/см^2;

σ_f – сечение деления ядра ^{239}Pu в поле тепловых нейтронов, $750 \pm 1,82$ *барн*;

10^{-24} – коэффициент перехода от барн к см^2.

В соответствии с формулой (5.111), диаметр частицы является дискретным с шагом 0,54 нм для $^{239}PuO_2$. В дальнейших рассуждениях для упрощения будем предполагать диаметр частицы непрерывным в силу того, что при указанном флюенсе диаметр минимально детектируемой частицы примерно в 10 раз больше, чем шаг кристаллической решетки. Например, зависимость диаметра частицы по Мартину для $^{239}PuO_2$ приведена на рисунке 5.67. Несмотря на то, что метод не видит частицы менее 5,4 нм, разрешение метода,

начиная с 3 треков на звезду, менее 1 нм, а с 30 треков – менее 0,2 нм. Формулу (5.111) запишем в непрерывном виде, что не скажется на полученных результатах:

$$n = \frac{\sqrt[3]{2N-1}-1}{2} \tag{5.113}$$

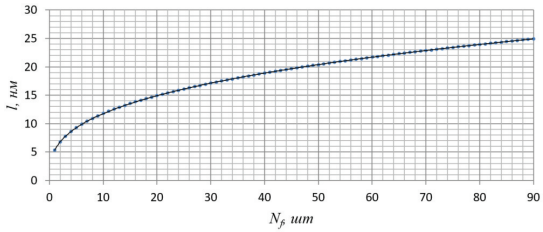


Рисунок 5.67 – Зависимость диаметра частицы l по Мартину для $^{239}PuO_2$ от количества треков в звезде N_f

Вероятностное распределение звезд по количеству треков имеет вид одномерного дискретного ζ-распределения Римана [25]:

$$\Pr[X = x] = \frac{1}{\zeta(\rho+1)} x^{-(\rho+1)}, \quad \rho > 0, \tag{5.114}$$

где для упрощения записи через x обозначим N_f, а ζ –функция Римана:

$$\zeta(s) = \sum_{j=1}^{\infty} j^{-s}, \quad s > 0 \tag{5.115}$$

Расширим область определения с дискретной до непрерывной так, чтобы в точках пересечения областей значения совпадали, для этого перейдем к непрерывному распределению Парето первого рода [27]:

$$P_X(x) = ak^a x^{-(a+1)}, \quad a > 0,\ k > 0,\ x \geq k \tag{5.116}$$

Математическое ожидание и дисперсия распределения Парето следующие:

$$\mathrm{E}[X] = \frac{ak}{a-1}, \quad a > 1 \tag{5.117}$$

$$\mathrm{Var}[X] = \frac{ak^2}{(a-1)^2(a-2)}, \quad a > 2 \tag{5.118}$$

Параметры a и k находим из соотношения:

$$\begin{cases} a \equiv \rho \\ k \equiv \sqrt[\rho]{\dfrac{1}{\rho \bullet \zeta(\rho+1)}} \end{cases} \tag{5.119}$$

Зависимость, диаметра частицы l по Мартину для $^{239}PuO_2$ от количества треков в звезде (рис. 5.67):

$$l = 5{,}1941 N_f^{\,0{,}3394} \tag{5.120}$$

В силу того, что суперпозиция степенных функций – есть функция степенная, перейдем от непрерывного распределения Парето количества треков в звездах к распределению Парето частиц по диаметрам:

$$P_L(l) = \acute{a}\acute{k}^{\acute{a}} l^{-(\acute{a}+1)}, \acute{a} > 0, \acute{k} > 0, l \geq \acute{k}, \tag{5.121}$$

где параметры распределения $\acute{a}$, $\acute{k}$ можно найти, решая систему уравнений:

$$\begin{cases} l = 5{,}1941 \mathrm{x}^{0{,}3394} \\ \acute{a}\acute{k}^{\acute{a}} l^{-(\acute{a}+1)} = a k^a x^{-(a+1)} \\ a > 0, k > 0, x \geq k,\ \acute{a} > 0,\ \acute{k} > 0,\ l \geq \acute{k} \end{cases} \tag{5.122}$$

Например, в таблице 5.11 мишень под номером 4 с фоном: $(\rho + 1) = 3{,}50$. Используя (5.119), получаем:

$$\begin{cases} a = 2{,}5 \\ k = 0{,}66 \end{cases} \tag{5.123}$$

Решая систему уравнений (5.122) с помощью надстройки Microsoft™ Excel™ «поиск решения», получаем (рис. 5.68):

$$\begin{cases} \acute{a} = 9{,}053 \\ \acute{k} = 4{,}960 \end{cases} \tag{5.124}$$

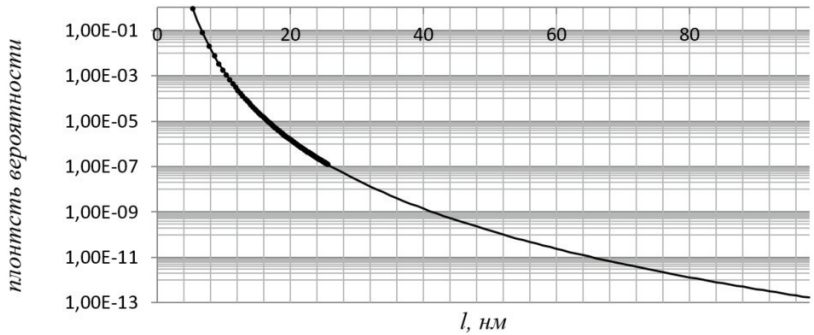


Рисунок 5.68 – Плотность вероятности одномерного непрерывного распределения Парето первого рода диаметров частиц l по Мартину для $^{239}PuO_2$ мишени под номером 4 с фоном. Кружочки слева-направо соответствуют звездам с одним треком, двумя и т.д.

Диаметр частицы по Мартину четвертой мишени с фоном $l = 5{,}57$ нм. Расчет неопределенности будет приведен в следующем параграфе.

Данное распределение предполагает размер частиц $l \geq 5$ *нм* , но это отражает лишь тот факт, что метод не видит частицы $^{239}PuO_2$ меньшего размера и, следовательно, никаких предположений по распределению частиц меньше 5 нм сделать невозможно. Увидеть более мелкие частицы можно увеличив флюенс нейтронного облучения (5.112).

Для примера на рисунке 5.69 приведено одномерное логнормальное распределение диаметров частиц l по Мартину для $^{239}PuO_2$ мишени под номером 4 с фоном.

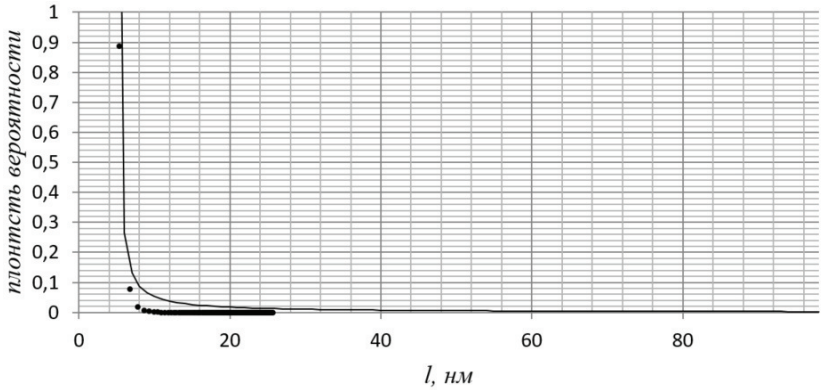


Рисунок 5.69 – Плотность вероятности одномерного непрерывного логнормального распределения диаметров частиц l по Мартину для $^{239}PuO_2$ мишени под номером 4 с фоном. Кружочки слева-направо соответствуют звездам с одним треком, двумя и т.д. Параметры логнормального распределения: $\theta = 5;\ \delta = 1{,}474 * 10^{-5}; \gamma = 4{,}629$

5.7.6. Стандартная неопределенность диаметра частицы $^{239}PuO_2$ в простой звезде, среда между мишенями – воздух

Размер частицы определяют путем вычисления по формулам (5.110)–(5.112) после подсчета треков в звезде, полученной на мишени из сверхчистого синтетического кварца после облучения пробы в поле тепловых нейтронов. Неопределенность вычисления размера частицы зависит от ряда факторов:

- статистического разброса определения числа атомов N частицы (5.112);
- дисперсии распределения, характеризующая вероятностное распределение звезд по количеству треков.

На первом этапе определим стандартную неопределенность подсчета количества числа атомов N частицы. Неопределенность подсчета количества атомов частицы зависит от:

- статистического разброса эффективности регистрации актов деления трековым детектором ε (5.112);
- статистического разброса определения флюенса тепловых нейтронов Ф (5.112);
- ошибок оператора при подсчете треков в звезде.

Расчет эффективности регистрации актов деления трековым детектором ε проводили с использованием ОРР ^{239}Pu по методике [17]. Стандартная неопределенность типа А эффективности регистрации актов деления трековым детектором $u(\varepsilon) = 3{,}26\%$ (глава «Уточнение величины критического угла» таблица 5.6).

В «Протокол облучения трековых детекторов с тканями человека по контракту № 11.305.16.0.» [28] приведена «статистическая ошибка погрешности измерений» набранного флюенса тепловых нейтронов $4{,}06 \cdot 10^{17}$ нейтрон/см^2 равная 6,0%. В «Протоколе…» не сказано о величине доверительного интервала и законе распределения, поэтому предположим стандартные значения: закон распределения нормальный и доверительный интервал равен 95%. Тогда стандартная неопределенность типа В $u(\Phi)$ вычисляется по формуле [16]:

$$u(\Phi) = \frac{\Phi \dfrac{e}{100}}{1{,}96} \tag{5.125}$$

где Φ – набранный флюенс тепловых нейтронов, см$^{-2}$;

e – статистическая ошибка погрешности измерений набранного флюенса тепловых нейтронов,%.

Полученное значение $u(\Phi) = 1{,}243 \cdot 10^{16}$.

Оценка стандартной неопределенности типа В подсчета количества треков в звезде N_f может быть только экспертной. Это связанно с тем, что подсчет треков в звездах производятся операторами вручную. По результатам многочисленных проверок, мы считаем, что ошибка оператора при подсчете количества треков в звезде не превышает 0,1% при нормальном законе распределения и доверительном интервале равным 95%. Тогда стандартная неопределенность типа В $u(N_f)$ вычисляется по формуле [16]:

$$u(N_f) = \frac{N_f \dfrac{0{,}1}{100}}{1{,}96} = 5{,}102 N_f \bullet 10^{-4} \tag{5.126}$$

Полученное значение $u(N_f) = 5{,}102 N_f \bullet 10^{-4}$.

Сечение деления ядра ^{239}Pu в поле тепловых нейтронов установлено международной группой по стандартам 2005 $\sigma_f = 750 \pm 1.82$ *барн*. Стандартная неопределенность сечение деления ядра ^{239}Pu в поле тепловых нейтронов [16]:

$$u(\sigma_f) = \frac{1,82}{1,96} = 0,93 \tag{5.127}$$

Стандартная неопределенность числа атомов N частицы $u(N)$ – есть квадратный корень из суммарной дисперсии [16]:

$$u(N) = u_{\text{сумм}}(N) = \sqrt{\sum_{i=1}^{4}\left(\frac{df_1}{dy_i}\right)^2 u^2(y_i)} \tag{5.128}$$

где $u(y_i)$ – стандартная неопределенность, оцененная по типу А или по типу В:

$y_i \in \{\varepsilon,\ \Phi,\ N_f,\ \sigma_f\}$; $u(y_i) \in \{u(\varepsilon),\ u(\Phi),\ u(N_f),\ u(\sigma_f)\}$;

f_1 – есть в точности (11):

$$N = f_1(\varepsilon,\ \Phi,\ N_f,\ \sigma_f) = \frac{N_f}{\varepsilon\Phi\sigma_f 10^{-24}} \tag{5.129}$$

После преобразования:

$$u(N) = \frac{N_f}{\varepsilon\Phi\sigma_f 10^{-24}}\sqrt{\left(5,102\bullet10^{-4}\right)^2 + \left(\frac{u(\varepsilon)}{\varepsilon}\right)^2 + \left(\frac{u(\Phi)}{\Phi}\right)^2 + \left(\frac{u(\sigma_f)}{\sigma_f}\right)^2}$$
$$u(N) = \frac{0.05N_f}{\varepsilon\Phi\sigma_f 10^{-24}} \tag{5.130}$$

Из (5.130) относительная стандартная неопределенность числа атомов N частицы равна 5%.

Получив стандартную неопределенность числа атомов N частицы, перейдем к стандартной неопределенности размера частицы.

Стандартная неопределенность диаметра частицы l по Мартину для $^{239}PuO_2$ $u(l)$ – есть квадратный корень из суммарной дисперсии, но так как стандартная неопределенность эффективности регистрации ε, стандартная неопределенность флюенса тепловых нейтронов Φ и стандартная неопределенность сечения деления ядра ^{239}Pu в поле тепловых нейтронов уже учтена при нахождении стандартной неопределенности числа атомов N частицы $u(N)$, поэтому [16]:

$$u(l) = \left(\frac{df_2}{dN}\right)u(N), \tag{5.131}$$

где l – диаметр частиц по Мартину для $^{239}PuO_2$, нм;

f_2 – функция $l = f_2(N)$.

Из (5.112), (5.120):

$$l = 5{,}1941\left(N\varepsilon\Phi\sigma_{\mathrm{f}}10^{-24}\right)^{0{,}3394} \tag{5.132}$$

Следовательно:

$$u(l) = \left(\frac{d}{dN}\left(5{,}1941\left(N\varepsilon\Phi\sigma_{\mathrm{f}}10^{-24}\right)^{0{,}3394}\right)\right)\frac{0{,}05N_f}{\varepsilon\Phi\sigma_{\mathrm{f}}10^{-24}} \tag{5.133}$$

Упрощаем:

$$u(l) = 0{,}09N_f{}^{0{,}3394} \tag{5.134}$$

Стандартная неопределенность диаметра частицы l по Мартину для $^{239}PuO_2$ зависит от количества треков, соответствующих данной частице, и составляет 1,67% от диаметра частицы l по Мартину. Например, для частицы, у которой 10 треков: l = 21,7; $u(l)$=0,4; 1000 треков: l =56, 7; $u(l)$=0,95.

5.7.7. Стандартная неопределенность подсчета количества треков в сложной звезде, среда между мишенями – воздух

Для среды между частицей и мишенью – воздух, для любых (r_1,r_2, γ): $0 \le r_1 < r_2 \le R$ общее количество распадов N_r вычисляется по формуле:

$$N_r = N_D\frac{2\pi}{\gamma}\left[\frac{1}{\frac{R\cdot tg\left(\frac{\pi}{2}-\varphi\right)}{\sqrt{r_1^2+\left(R\cdot tg\left(\frac{\pi}{2}-\varphi\right)\right)^2}}-\frac{R\cdot tg\left(\frac{\pi}{2}-\varphi\right)}{\sqrt{r_2^2+\left(R\cdot tg\left(\frac{\pi}{2}-\varphi\right)\right)^2}}}\right] \tag{5.135}$$

где φ – критический угол входа трека $79{,}92(1{,}91)^0$ (глава «Уточнение величины критического угла»);

R – радиус окружности, описанной вокруг звезды по внешним трекам;

N_D – количество треков, попавших в сектор кольца звезды D (рис. 5.63);

γ – угол сектора кольца D (рис. 5.63).

Выразим количество атомов частицы N через телесный угол Ω_D сектора кольца звезды D видимый из точки пространства, совпадающей с центром частицы, используя (5.112), (5.135):

$$N = \frac{N_D 2\pi}{\Omega_D}\frac{1}{\Phi\sigma_{\mathrm{f}}10^{-24}} \tag{5.136}$$

где Ω_D – телесный угол сектора кольца звезды D видимый из точки пространства, совпадающей с центром частицы;

Ф – флюенс нейтронов, $4{,}06 \cdot 10^{17} \pm 2{,}436 \cdot 10^{16}$ нейтрон/см^2;

σ_f – сечение деления ядра ^{239}Pu в поле тепловых нейтронов, $750 \pm 1{,}82$ барн;

10^{-24} – коэффициент перехода от барн к см^2.

Стандартная неопределенность телесного угла Ω_D сектора кольца звезды D частицы $u(\Omega_D)$ [16]:

$$u(\Omega_D) = u_{\text{сумм}}(\Omega_D) = \sqrt{\sum_{i=1}^{5} \left(\frac{df_3}{dy_i}\right)^2 u^2(y_i)} \tag{5.137}$$

где $u(y_i)$ – стандартная неопределенность, оцененная по типу А или по типу В:

$y_i \in \{R,\ r_1, r_2,\ \varphi, \gamma\}$; $u(y_i) \in \{u(R), u(r_1), u(r_2), u(\varphi), u(\gamma)\}$;

f_3 – есть:

$$\Omega_D(R,\ r_1, r_2,\ \varphi, \gamma) = \gamma \left[\frac{R \cdot tg\left(\frac{\pi}{2} - \varphi\right)}{\sqrt{r_1^2 + \left(R \cdot tg\left(\frac{\pi}{2} - \varphi\right)\right)^2}} - \frac{R \cdot tg\left(\frac{\pi}{2} - \varphi\right)}{\sqrt{r_2^2 + \left(R \cdot tg\left(\frac{\pi}{2} - \varphi\right)\right)^2}} \right] \tag{5.138}$$

Формула (5.137) примет вид:

$$u(\Omega_D) = \sqrt{\left(\frac{d\Omega_D}{dR}\right)^2 u^2(R) + \left(\frac{d\Omega_D}{dr_1}\right)^2 u^2(r_1) + \left(\frac{d\Omega_D}{dr_2}\right)^2 u^2(r_2) + \left(\frac{d\Omega_D}{d\varphi}\right)^2 u^2(\varphi) + \left(\frac{d\Omega_D}{d\gamma}\right)^2 u^2(\gamma)} \tag{5.139}$$

Определение радиуса окружности, описанной вокруг звезды по внешним трекам R, определение радиусов r_1, r_2 (рисунки 5.108, 5.109) производятся операторами вручную с использованием микроскопа, и длина замеряется по пропорции относительно объектамикрометра ОМ-ОДТ7.216.009ПС. Ошибка определения длины не более половины деления микрометра 2,5 мкм. Стандартная неопределенность типа В $u(R)$ вычисляется по формуле [16]:

$$u(R) \equiv u(r_1) \equiv u(r_2) = u(r) = \frac{2{,}5 \text{ мкм}}{1{,}96} = 1{,}28 \text{ мкм} \tag{5.140}$$

Определение угла γ сектора кольца звезды D (рис. 5.63) производится на фотографии звезды непосредственно на компьютере с неопределенностью порядка 10^{-3} рад и с учетом того, что $u(R) \ll R$, получим (отбросив малые величины более высокого порядка):

$$u(\Omega_D)=\sqrt{\gamma^2u(\varphi)^2\cdot\left(\frac{R\left(tg\left(\frac{\pi}{2}-\varphi\right)^2+1\right)}{\sqrt{R^2tg\left(\frac{\pi}{2}-\varphi\right)^2+r_1^2}}-\frac{R\left(tg\left(\frac{\pi}{2}-\varphi\right)^2+1\right)}{\sqrt{R^2tg\left(\frac{\pi}{2}-\varphi\right)^2+r_2^2}}-\frac{R^3tg\left(\frac{\pi}{2}-\varphi\right)^2\left(tg\left(\frac{\pi}{2}-\varphi\right)^2+1\right)}{\left(R^2tg\left(\frac{\pi}{2}-\varphi\right)^2+r_1^2\right)^{3/2}}+\frac{R^3tg\left(\frac{\pi}{2}-\varphi\right)^2\left(tg\left(\frac{\pi}{2}-\varphi\right)^2+1\right)}{\left(R^2tg\left(\frac{\pi}{2}-\varphi\right)^2+r_2^2\right)^{3/2}}\right)^2+\frac{\gamma^2R^2u(r)^2r_1^2tg\left(\frac{\pi}{2}-\varphi\right)^2}{\left(R^2tg\left(\frac{\pi}{2}-\varphi\right)^2+r_1^2\right)^3}+\frac{\gamma^2R^2u(r)^2r_2^2tg\left(\frac{\pi}{2}-\varphi\right)^2}{\left(R^2tg\left(\frac{\pi}{2}-\varphi\right)^2+r_2^2\right)^3}} \quad (5.141)$$

Стандартная неопределенность числа атомов N частицы $u(N)$ [16]:

$$u(N)=u_{\text{сумм}}(N)=\sqrt{\sum_{i=1}^{4}\left(\frac{df_4}{dy_i}\right)^2u^2(y_i)} \quad (5.142)$$

где $u(y_i)$ – стандартная неопределенность, оцененная по типу А или по типу В:

$y_i\in\{\Omega_D,\ \Phi,\ N_D,\ \sigma_f\}$; $u(y_i)\in\{u(\Omega_D),\ u(\Phi),\ u(N_D),\ u(\sigma_f)\}$;

f_4 – функция $N=f_4(\Omega_D,\ \Phi, N_D,\ \sigma_f)$ есть в точности (5.136).

Преобразовав и отбросив малые величины более высокого порядка, не вносящие изменения в значимые цифры:

$$u(N)=\frac{2\pi N_D}{\Omega_D\Phi\sigma_f10^{-24}}\sqrt{0.0009+\left(\frac{u(\Omega_D)}{\Omega_D}\right)^2} \quad (5.143)$$

Используя формулы (5.138, 5.141, 5.143), можно получить стандартную неопределенность вычисления количества атомов ^{239}Pu в частице, соответствующей сложной звезде, подсчитав количество треков в секторе кольца D (рис. 5.63).

При указании значений $\gamma=2\pi, r_1=0, r_2=R$, что соответствует совпадению сектора кольца D со всей звездой, полученное значение $\frac{u(N)}{N}=5\%$, в точности столько же, сколько относительная стандартная неопределенность числа атомов N частицы, при подсчете всех треков для простой звезды для среды – воздух (5.130).

5.7.8. Стандартная неопределенность размера частицы при использовании метода подсчета количества треков в сложной звезде, среда между мишенями – воздух

Получив стандартную неопределенность числа атомов N частицы, перейдем к стандартной неопределенности размера частицы.

Вычисления производятся аналогично, как для простой звезды, среда – воздух (5.133):

$$u(l)=\frac{3{,}08}{\Omega_D^{\ 0{,}3394}}\sqrt{0.0009+\left(\frac{u(\Omega_D)}{\Omega_D}\right)^2}N_D^{\ 0{,}3394} \quad (5.144)$$

Стандартная неопределенность диаметра частицы l по Мартину для $^{239}PuO_2$ в сложной звезде для среды – воздух, зависит от телесного угла Ω_D сектора кольца звезды

D (рис. 5.63), видимого из точки пространства, совпадающей с центром частицы, от стандартной неопределенности телесного угла Ω_D и количества треков N_D, попавших в область D. Для расчета стандартной неопределенности диаметра частицы l по Мартину для $^{239}PuO_2$ в сложной звезде для среды – воздух для выбранной области D и количеству треков N_D, попавших в область D, необходимо воспользоваться формулами (5.138), (5.141), (5.144).

5.7.9. Эффективность регистрации в простой звезде в толстом слое

Если между трековыми детекторами располагается ткань органов человека (далее – в толстом слое), то расчет эффективности регистрации актов деления трековым детектором ε непосредственно (с использованием ОРР ^{239}Pu) затруднен. Это выполнимая задача, но связана с огромными техническими сложностями.

Оценка количества распадов N_r частицы, соответствующей звезде в толстом слое:

$$N_r = N_f \left[\frac{1}{1 - \frac{h}{\sqrt{R^2 + h^2}}} \right] \tag{5.145}$$

где N_f – число треков, приписанных данной частице в процессе обработки изображений;

h – высота частицы над поверхностью детектора;

R – радиус окружности, описанной вокруг звезды по внешним трекам.

В отличие от воздуха, в толстом слое зависимость между h и R нелинейная. В главе «Вычисление координаты наночастицы в толстом слое» по результатам моделирования была построена зависимость f_H^h глубины залегания h наночастицы в толстом слое от R, где R – есть радиус окружности, описанной вокруг звезды по внешним трекам. Очевидно, что f_H^h зависит от толщины толстого слоя H. Практическое значение имеет толщина $H = 5мкм$ и $H = 10мкм$:

$$h = a\left(1 - e^{-bcR}\right), \tag{5.146}$$

где h – глубина залегания частицы в толстом слое;

R – радиус окружности, описанной вокруг звезды по внешним трекам;

H – толщина толстого слоя;

a, b – параметры, зависящие от Н;

c – константа, зависит от критического угла φ входа трека:

$$c = \frac{1}{tg(\varphi)(1-\cos(\varphi))}\left[\ln\left(\frac{1+\sin(\varphi)}{\cos(\varphi)}\right)-\sin(\varphi)\right] \tag{5.147}$$

Критический угол входа трека $\varphi = 79,92(1,91)^0$ (глава «Уточнение величины критического угла») зависит только от типа мишени и химического процесса проявления треков.

Функции глубины залегания частицы для толстого слоя толщиной $H = 5\,мкм$ имеет вид (глава «Вычисление координаты наночастицы в толстом слое» (5.100)):

$$h = 3,93\left(1-e^{-0,378cR}\right) \tag{5.148}$$

Функции глубины залегания частицы для толстого слоя толщиной $H = 10\,мкм$ имеет вид (глава «Вычисление координаты наночастицы в толстом слое» (5.101)):

$$h = 7,60\left(1-e^{-0,246cR}\right) \tag{5.149}$$

Имея глубину залегания в толстом слое (5.147), (5.148) подставив в формулу (5.145), получим оценку количества распадов N_r для данной частицы.

$$N_r = N_f\left[\frac{1}{1-\frac{a\left(1-e^{-bcR}\right)}{\sqrt{R^2+\left(a\left(1-e^{-bcR}\right)\right)^2}}}\right] \tag{5.150}$$

Число атомов частицы N, облученных в поле нейтронов:

$$N = \frac{N_f}{\Phi\sigma_f 10^{-24}}\left[\frac{1}{1-\frac{a\left(1-e^{-bcR}\right)}{\sqrt{R^2+\left(a\left(1-e^{-bcR}\right)\right)^2}}}\right] \tag{5.151}$$

Из (5.112) и (5.151) получаем эффективность регистрации в толстом слое:

$$\varepsilon = 1-\frac{a\left(1-e^{-bcR}\right)}{\sqrt{R^2+\left(a\left(1-e^{-bcR}\right)\right)^2}} \tag{5.152}$$

где R – радиус окружности, описанной вокруг звезды по внешним трекам;

a, b – параметры, зависящие от толщины толстого слоя H;

c – константа, зависит от критического угла входа трека (5.147).

5.7.10. Пример расчета эффективности регистрации для простой звезды в толстом слое

Произведем расчет эффективность регистрации ε частицы из ткани легкого (рис. 5.70). Толщина ткани 5 мкм. Для этого воспользуемся (5.147), (5.148), (5.151).

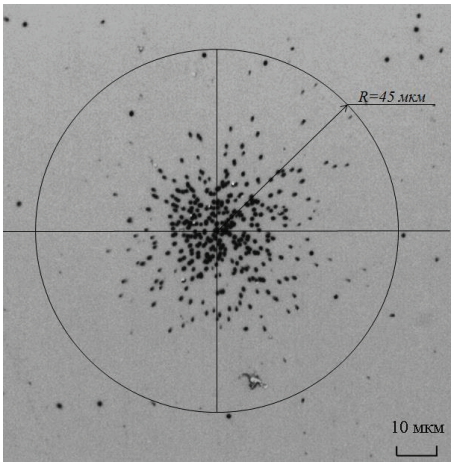


Рисунок 5.70 – Звезда от частицы в толстом слое 5 мкм: ткань легкого. Детектор 1004 низ

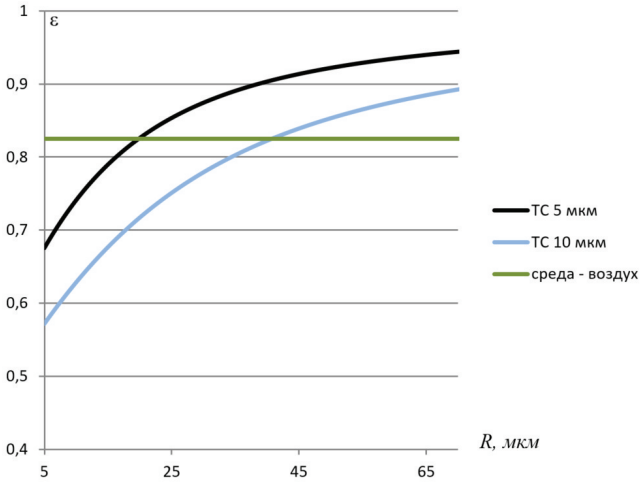


Рисунок 5.71 – Эффективность регистрации для толстого слоя 5 мкм и 10 мкм и для среды – воздух. Критический угол $\varphi = 79{,}92(1{,}91)^0$

Для критического угла $\varphi = 79,92\left(1,91\right)^{0}$, используя (5.147), получаем c=0,303951, и эффективность регистрации ε_{TC}^{5} (5.152):

$$\varepsilon_{\text{TC}}^{5} = 1 - \frac{3,93\left(1 - e^{-0,378 \cdot 0,304 \cdot 45}\right)}{\sqrt{45^{2} + \left(3,93\left(1 - e^{-0,378 \cdot 0,304 \cdot 45}\right)\right)^{2}}} = 0,913 \tag{5.153}$$

Несмотря на то, что эффективность регистрации $\varepsilon_{\text{TC}}^{5}$ для толстого слоя 5 мкм для звезды с рисунка 5.71 получилась лучше, чем для воздуха $\varepsilon_{\text{B}} = 0,825$, этот факт не должен вводить в заблуждение, так как эффективность регистрации в среде воздух $\varepsilon_{\text{B}} \equiv const$, а эффективность регистрации для толстого слоя есть функция от R. Построим зависимость эффективности регистрации от R для толстого слоя 5 мкм и 10 мкм (рис. 5.71).

5.7.11. Стандартная неопределенность эффективности регистрации в толстом слое для простой звезды

Стандартная неопределенность эффективности регистрации $u(\varepsilon_{\text{TC}}^{H})$, также, как и эффективность регистрации $\varepsilon_{\text{TC}}^{H}$, будет зависеть от толщины толстого слоя H. Запишем эффективность регистрации в общем виде:

$$\varepsilon_{\text{TC}}^{H} = 1 - \frac{a\left(1 - e^{-b\frac{1}{tg(\varphi)(1-\cos(\varphi))}\left[\ln\left(\frac{1+\sin(\varphi)}{\cos(\varphi)}\right) - \sin(\varphi)\right]R}\right)}{\sqrt{R^{2} + \left(a\left(1 - e^{-b\frac{1}{tg(\varphi)(1-\cos(\varphi))}\left[\ln\left(\frac{1+\sin(\varphi)}{\cos(\varphi)}\right) - \sin(\varphi)\right]R}\right)\right)^{2}}}. \tag{5.154}$$

Стандартная неопределенность эффективности регистрации зависит от стандартной неопределенности:

критического угла φ;

радиуса звезды R;

параметров a, b, зависящих от толщины толстого слоя H.

Стандартная неопределенность $u(\varphi) = 0,03$ рад (получено в параграфе «Уточнение критического угла»); $u(R) = 1,28$ мкм (5.140). a, b из (5.154) для толщины толстого слоя $H = 5$ мкм и $H = 10$ мкм приведены в таблице 5.13, 5.14 (соответствуют таблицам 5.9, 5.10 из главы «Вычисление координаты наночастицы в толстом слое»).

Стандартная неопределенность параметров $u\left(a_{5}\right) = 0,090$; $u\left(b_{5}\right) = 0,028$; $u\left(a_{10}\right) = 0,382$; $u\left(b_{10}\right) = 0,039$.

Таблица 5.13 – Результаты аппроксимации $h = a(1 - e^{-bR_{avg}})$, $H = 5$ мкм

Количество треков в звезде	a	b	R^2
2	3,7567	0,4225	0,8845
3	3,9506	0,3787	0,9315
4	3,7666	0,4346	0,9990
5	3,8369	0,4413	0,9901
6	4,3514	0,2958	0,9937
7	3,9356	0,295	0,9671
Среднее	3,933(0,090)	0,378(0,028)	

Таблица 5.14 – Результаты аппроксимации $h = a(1 - e^{-bR_{avg}})$, $H = 10$ мкм

Количество треков в звезде	a	b	R^2
2	6,4914	0,4155	0,9900
3	7,0019	0,2934	0,9933
4	8,0368	0,2107	0,9912
5	8,1937	0,1889	0,9916
6	8,9464	0,1595	0,9798
7	6,9319	0,2063	0,9310
Среднее	7,600(0,382)	0,246(0,039)	

Стандартная неопределенность эффективности регистрации $u\left(\varepsilon_{TC}^{H}\right)$ по типу B [16]:

$$u\left(\varepsilon_{\text{TC}}^{H}\right) = u_{\text{сумм}}\left(\varepsilon_{\text{TC}}^{H}\right) = \sqrt{\sum_{i=1}^{4}\left(\frac{df_3}{dy_i}\right)^2 u^2\left(y_i\right)} \tag{5.155}$$

где $u(y_i)$ – стандартная неопределенность, оцененная по типу A или по типу B:

$y_i \in \{R,\ \varphi,\ a,\ b\}$; $u(y_i) \in \{u(R),\ u(\varphi),\ u(a),\ u(b)\}$;

f_3 – функция $\varepsilon_{TC}^{H} = f(R,\ \varphi,\ a,\ b)$; f_3 – есть в точности (5.154).

На рисунке 5.72 приведена стандартная неопределенность эффективности регистрации $u\left(\varepsilon_{TC}^{H}\right)$ по типу B. Несмотря на то, что $u\left(\varepsilon_{TC}^{H}\right)$ функционально зависит от радиуса звезды R и толщины толстого слоя H, для практического применения удобно взять максимальное значение $u(\varepsilon) = \max\limits_{R,H} u\left(\varepsilon_{TC}^{H}\right)$, и использовать для всех случаев, при условии $H = 5$ мкм или $H = 10$ мкм:

$$u\left(\varepsilon_{\text{TC}}\right) = \max_{R,H} u\left(\varepsilon_{\text{TC}}^{H}\right) = 0.06\,. \tag{5.156}$$

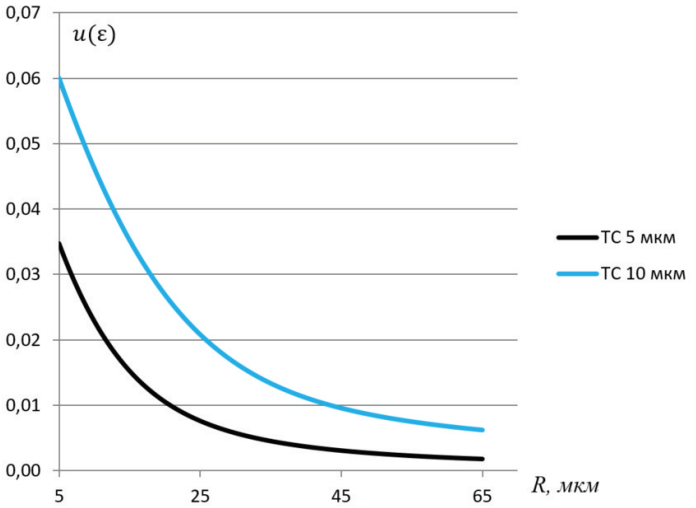


Рисунок 5.72 – Стандартная неопределенность эффективности регистрации для толстого слоя 5 мкм и 10 мкм

5.7.12. Определение диаметра частицы $^{239}PuO_2$ в толстом слое для простой звезды

Определение размера частицы в толстом слое несущественно отличается от определения размера частицы в среде воздух. Формулы (5.110, 5.111, 5.112) будут верны и для толстого слоя. Различие состоит в том, что вместо эффективности регистрации $\varepsilon \equiv const$ для среды воздух, используется ε из (5.152) или (5.154). Диаметр частицы l в толстом слое рассчитывается по формуле (5.157).

В ней введены следующие обозначения:

a – шаг кристаллической решетки, 0,54 нм для $^{239}PuO_2$;

N_f – число треков, приписанных данной частице в процессе обработки изображений;

Φ – флюенс нейтронов, $4,06 \cdot 10^{17} \pm 2,436 \cdot 10^{16}$ нейтрон/см^2;

k – коэффициент, зависящий от физических характеристик соединения и интерпретации размера частицы [26]. Например, для $^{239}PuO_2$: диаметр Мартина $k = 1$; диаметр Ферета $k = \sqrt{3}$;

σ_f – сечение деления ядра ^{239}Pu в поле тепловых нейтронов, 750 ± 1.82 *барн*;

10^{-24} – коэффициент перехода от барн к см^2;

R – радиус окружности, описанной вокруг звезды по внешним трекам;

a, b – параметры, зависящие от толщины толстого слоя H;

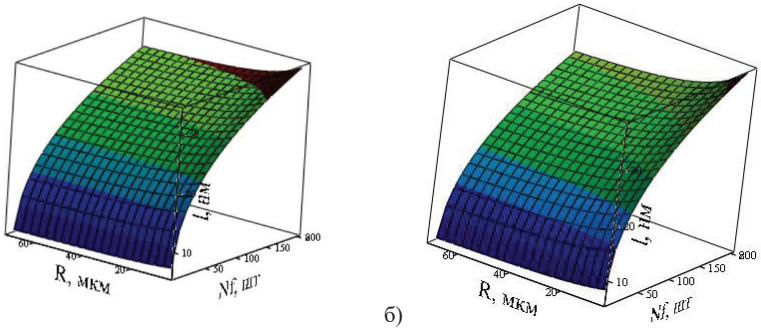
φ – критический угол входа трека равен $79,92(1,91)^0$.

$$l_{\text{ТС}} = ka \bullet \left(0.5 \left[\sqrt[3]{2 \frac{N_f}{\left(1 - \frac{a\left(1 - e^{-b\frac{1}{tg(\varphi)(1-\cos(\varphi))}\left[\ln\left(\frac{1+\sin(\varphi)}{\cos(\varphi)}\right)-\sin(\varphi)\right]R}\right)}{\sqrt{R^2 + \left(a\left(1 - e^{-b\frac{1}{tg(\varphi)(1-\cos(\varphi))}\left[\ln\left(\frac{1+\sin(\varphi)}{\cos(\varphi)}\right)-\sin(\varphi)\right]R}\right)\right)^2}} \right) \Phi\sigma_f 10^{-24}} - 1 - 1} \right] \right) \quad (5.157)$$

Диаметр частицы в толстом слое – это функция от двух переменных: количества треков в звезде N_f и радиуса окружности, описанной вокруг звезды по внешним трекам R. Коэффициент интерпретации размера частицы k и толщина толстого слоя H являются параметрами:

$$l_{\text{ТС}} = f_4^{k,H}\left(N_f,\, R\right) \quad (5.158)$$

Диаметр частицы по Мартину для $^{239}PuO_2$ в толстом слое приведен на рисунке 5.73.



а) б)

Рисунок 5.73 – Зависимость диаметра частицы l_{TC} по Мартину для $^{239}PuO_2$ от количества треков в звезде N_f и радиуса окружности, описанной вокруг звезды по внешним трекам R: а) H =5 мкм; б) H =10 мкм

Предположим, по каким-либо причинам неизвестен радиус окружности, описанной вокруг звезды по внешним трекам R. Очевидно следующее: в силу того, что глубина

залегания частицы в толстом слое равновероятна, следовательно, математическое ожидание R выражается как:

$$E[R] = \frac{H}{2}\mathrm{tg}\varphi, \tag{5.159}$$

где H – толщина толстого слоя;

φ – критический угол входа трека равен $79{,}92(1{,}91)^0$. Вычислим эффективность регистрации (5.154) вместо радиуса окружности, описанной вокруг звезды по внешним трекам R используем его математическое ожидание:

$$\begin{aligned} \widetilde{\varepsilon_{\mathrm{TC}}^{5}} &= 0{,}719 \\ \widetilde{\varepsilon_{\mathrm{TC}}^{10}} &= 0{,}688 \end{aligned} \tag{5.160}$$

Эффективностью из (5.160) следует пользоваться в случае отсутствия информации о радиусе окружности, описанной вокруг звезды по внешним трекам R. За счет неизвестности R стандартная неопределенность $u(\widetilde{\varepsilon_{TC}})$ будет существенно больше, чем $u(\varepsilon_{TC})$ (5.160), $u(\widetilde{\varepsilon_{TC}})$ можно оценить таким же способом, как была ранее оценена $u(\varepsilon_{TC})$.

5.7.13. Стандартная неопределенность диаметра частицы $^{239}PuO_2$ в толстом слое для простой звезды

Стандартная неопределенность диаметра частицы l_{TC} по Мартину для $^{239}PuO_2$ в толстом слое $u(l_{\mathrm{TC}})$ – есть квадратный корень из суммарной дисперсии, но стандартная неопределенность радиуса окружности описанной вокруг звезды по внешним трекам R, критического угла φ, параметров a, b, зависящих от толщины толстого слоя, уже учтены в стандартной неопределенности эффективности регистрации $\varepsilon_{\mathrm{TC}}^{H}$. Следовательно, для определения стандартной неопределенности размера частиц в толстом слое необходимо учесть стандартную неопределенность эффективности регистрации $\varepsilon_{\mathrm{TC}}^{H}$, стандартную неопределенность флюенса тепловых нейтронов Ф, стандартную неопределенность сечения деления ядра ^{239}Pu в поле тепловых нейтронов и стандартную неопределенность подсчета количества треков в звезде.

Стандартная неопределенность эффективности регистрации $u(\varepsilon_{\mathrm{TC}}) = 0{,}06$ (5.156). Стандартная неопределенность флюенса тепловых нейтронов $u(\Phi) = 1{,}243 \cdot 10^{16}$ (5.125). Стандартная неопределенность подсчета количества треков в звезде (5.126).

$u(N_f) = 5{,}102N_f * 10^{-4}$. Стандартная неопределенность сечения деления ядра ^{239}Pu в поле тепловых нейтронов $u(\sigma_{\mathrm{f}}) = 0{,}93$ (5.127). Стандартная неопределенность диаметра частицы l_{TC} по Мартину для $^{239}PuO_2$ в толстом слое [16]:

$$u\left(l_{\text{ТС}}\right)=u_{\text{сумм}}\left(l_{\text{ТС}}\right)=\sqrt{\sum_{i=1}^{4}\left(\frac{df_5}{dy_i}\right)^2 u^2\left(y_i\right)} \tag{5.161}$$

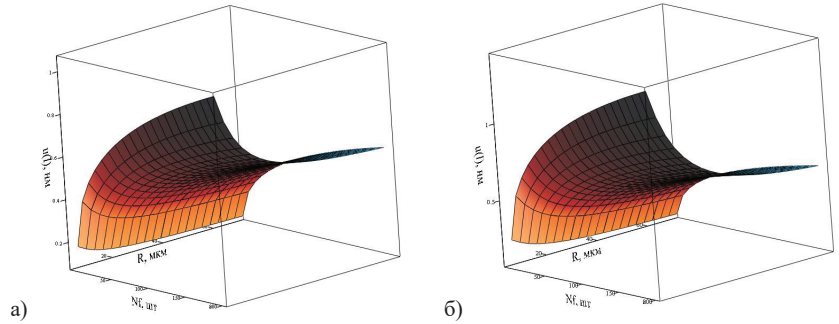
где $u(y_i)$ – стандартная неопределенность, оцененная по типу А или по типу В:

$y_i \in \left\{\varepsilon_{TC},\ \Phi,\ N_f,\ \sigma_{\text{f}}\right\}$; $u\left(y_i\right)\in\left\{u\left(\varepsilon_{TC}\right),\ u\left(\Phi\right),\ u\left(N_f\right), u\left(\sigma_{\text{f}}\right)\right\}$;

f_5 – функция $l_{\text{ТС}}=f_5\left(\varepsilon_{\text{ТС}},\Phi,N_f,\ \sigma_{\text{f}}\right)$:

$$l_{\text{ТС}}=ka\frac{\sqrt[3]{2\left(\dfrac{N_f}{\varepsilon_{\text{ТС}}\Phi\sigma_{\text{f}}10^{-24}}\right)-1}-1}{2} \tag{5.162}$$

Решение (5.161) аналитически тривиально, но получаемый результат является громоздким и не приводится в данной работе, также для решения (5.161) подойдет численный метод. Стандартная неопределенность размера частиц по Мартину для $^{239}PuO_2$ в толстом слое для простой звезды приведена на рисунке 5.74.



а) б)

Рисунок 5.74 – Стандартная неопределенность диаметра частицы l_{TC} по Мартину для $^{239}PuO_2$ от количества треков в простой звезде N_f и радиуса окружности, описанной вокруг звезды по внешним трекам R для толстого слоя: а) H =5 мкм; б) H =10 мкм

Как и размер частицы в толстом слое, стандартная неопределенность размера частиц в толстом слое есть функция от двух переменных: количества треков в звезде N_f и радиуса окружности, описанной вокруг звезды по внешним трекам R. Коэффициент интерпретации размера частицы k и толщина толстого слоя H являются параметрами.

5.7.14 Стандартная неопределенность подсчета количества треков в сложной звезде в толстом слое

Оценка количества распадов N_r частицы в сложной звезде в толстом слое формула (5.135) может быть записана в виде:

$$N_r = N_D \frac{2\pi}{\gamma}\left[\frac{1}{\frac{h}{\sqrt{r_1^2+h^2}}-\frac{h}{\sqrt{r_2^2+h^2}}}\right] \tag{5.163}$$

где N_D – количество треков, попавших в сектор кольца звезды D (рис. 5.63);

h – глубина залегания в толстом слое (5.146);

$(r1, r2, \gamma)$ – область $D: 0 \le r_1 < r_2 \le R$ (рис. 5.63);

R – радиус окружности, описанной вокруг звезды по внешним трекам.

Имея глубину залегания в толстом слое (5.146), (5.146) подставив в формулу (5.163), получим оценку количества распадов N_r для данной частицы.

$$N_r = N_D \frac{2\pi}{\gamma}\left[\frac{1}{\frac{a\left(1-e^{-bcR}\right)}{\sqrt{r_1^2+\left(a\left(1-e^{-bcR}\right)\right)^2}}-\frac{a\left(1-e^{-bcR}\right)}{\sqrt{r_2^2+\left(a\left(1-e^{-bcR}\right)\right)^2}}}\right] \tag{5.164}$$

Число атомов частицы N, облученных в поле нейтронов:

$$N = \frac{N_D 2\pi}{\gamma \Phi \sigma_f 10^{-24}}\left[\frac{1}{\frac{a\left(1-e^{-bcR}\right)}{\sqrt{r_1^2+\left(a\left(1-e^{-bcR}\right)\right)^2}}-\frac{a\left(1-e^{-bcR}\right)}{\sqrt{r_2^2+\left(a\left(1-e^{-bcR}\right)\right)^2}}}\right] \tag{5.165}$$

Из (5.112) и (5.165) получаем эффективность регистрации в сложной звезде в толстом слое:

$$\varepsilon = \frac{\gamma}{2\pi}\left(\frac{a\left(1-e^{-bcR}\right)}{\sqrt{r_1^2+\left(a\left(1-e^{-bcR}\right)\right)^2}}-\frac{a\left(1-e^{-bcR}\right)}{\sqrt{r_2^2+\left(a\left(1-e^{-bcR}\right)\right)^2}}\right) \tag{5.166}$$

где $(r1, r2, \gamma)$ – область $D: 0 \le r_1 < r_2 \le R$;

R – радиус окружности, описанной вокруг звезды по внешним трекам;

a, b – параметры, зависящие от толщины толстого слоя H;

c – константа, зависит от критического угла входа трека (5.147).

Стандартная неопределенность эффективности регистрации $u\left(\varepsilon_{СЗТС}^{H}\right)$, так же как и эффективность регистрации $\varepsilon_{ТС}^{H}$, будет зависеть от толщины толстого слоя H. Запишем эффективность регистрации в общем виде:

$$\varepsilon_{\text{СЗТС}}^{H}=\frac{\gamma}{2\pi}\left(\frac{a\left(1-e^{-b\frac{1}{tg(\varphi)(1-\cos(\varphi))}\left[\ln\left(\frac{1+\sin(\varphi)}{\cos(\varphi)}\right)-\sin(\varphi)\right]R}\right)}{\sqrt{r_1^2+\left(a\left(1-e^{-b\frac{1}{tg(\varphi)(1-\cos(\varphi))}\left[\ln\left(\frac{1+\sin(\varphi)}{\cos(\varphi)}\right)-\sin(\varphi)\right]R}\right)\right)^2}}-\frac{a\left(1-e^{-b\frac{1}{tg(\varphi)(1-\cos(\varphi))}\left[\ln\left(\frac{1+\sin(\varphi)}{\cos(\varphi)}\right)-\sin(\varphi)\right]R}\right)}{\sqrt{r_2^2+\left(a\left(1-e^{-b\frac{1}{tg(\varphi)(1-\cos(\varphi))}\left[\ln\left(\frac{1+\sin(\varphi)}{\cos(\varphi)}\right)-\sin(\varphi)\right]R}\right)\right)^2}}\right) \tag{5.167}$$

Стандартная неопределенность эффективности регистрации зависит от стандартной неопределенности:

критического угла φ;

(r_1, r_2, γ), определяющих область D;

параметров a, b, зависящих от толщины толстого слоя H.

Стандартная неопределенность $u(\varphi)=0,03$ рад; $u(r)=1,28$ мкм (5.140); $u(a_5)=0,090$; $u(b_5)=0,028$; $u(a_{10})=0,382$; $u(b_{10})=0,039$ (таблицы 5.9, 5.10).

Стандартная неопределенность эффективности регистрации $u\left(\varepsilon_{СЗТС}^{H}\right)$ по типу В [16]:

$$u(\varepsilon_{\text{СЗТС}}^{H})=u_{\text{сумм}}(\varepsilon_{\text{СЗТС}}^{H})=\sqrt{\sum_{i=1}^{6}\left(\frac{df_5}{dy_i}\right)^2 u^2(y_i)}, \tag{5.168}$$

где $u(y_i)$ – стандартная неопределенность, оцененная по типу А или по типу В:

$y_i \in \{R,\ r1,\ r2,\ \gamma,\ \varphi,\ a,\ b\}$; $u(y_i)\in\{u(R), u(r_1), u(r_2), u(\gamma), u(\varphi), u(a), u(b)\}$;

f_5 – функция $\varepsilon_{\text{СЗТС}}^{H}=f_5(R,\ r1,\ r2,\ \gamma,\ \varphi,\ a,\ b)$; f_5 – есть в точности (5.167).

Решение (5.168) аналитически тривиально, но получаемый результат является громоздким и не приводится в данной работе, также для решения (5.168) подойдет численный метод. Стандартная неопределенность эффективности регистрации $u\left(\varepsilon_{СЗТС}^{H}\right)$ функционально зависит от радиуса звезды R, толщины толстого слоя H и области $D(r1, r2, \gamma)$ (рис. 5.75).

5.7.15 Определение диаметра частицы $^{239}PuO_2$ в толстом слое для сложной звезды

Определение размера частицы в толстом слое для сложной звезды несущественно отличается от определения размера частицы в толстом слое для простой звезды (5.157). Диаметр частицы l в толстом слое для сложной звезды:

$$l_{\text{СЗТС}} = ka \cdot \left(0.5 \left[\sqrt[3]{2 \left(\frac{N_D}{\frac{\gamma}{2\pi} \left(\frac{a\left(1 - e^{-b\frac{1}{tg(\varphi)(1-\cos(\varphi))}\left[\ln\left(\frac{1+\sin(\varphi)}{\cos(\varphi)}\right)-\sin(\varphi)\right]R}\right)}{\sqrt{r_1^2 + \left(a\left(1 - e^{-b\frac{1}{tg(\varphi)(1-\cos(\varphi))}\left[\ln\left(\frac{1+\sin(\varphi)}{\cos(\varphi)}\right)-\sin(\varphi)\right]R}\right)\right)^2}} - \frac{a\left(1 - e^{-b\frac{1}{tg(\varphi)(1-\cos(\varphi))}\left[\ln\left(\frac{1+\sin(\varphi)}{\cos(\varphi)}\right)-\sin(\varphi)\right]R}\right)}{\sqrt{r_2^2 + \left(a\left(1 - e^{-b\frac{1}{tg(\varphi)(1-\cos(\varphi))}\left[\ln\left(\frac{1+\sin(\varphi)}{\cos(\varphi)}\right)-\sin(\varphi)\right]R}\right)\right)^2}} \right) \Phi\sigma_f 10^{-24}} \right)} - 1 - 1 \right] \right), \quad (5.169)$$

где a – шаг кристаллической решетки, 0,54 нм для $^{239}PuO_2$;

k – коэффициент, зависящий от физических характеристик соединения и интерпретации размера частицы [26]. Например, для $^{239}PuO_2$: диаметр Мартина $k = 1$; диаметр Ферета $k = \sqrt{3}$;

N_D – количество треков, попавших в сектор кольца звезды D (рис. 5.63);

Φ – флюенс нейтронов, $4,06 \cdot 10^{17} \pm 2,436 \cdot 10^{16}$ нейтрон/см^2;

σ_f – сечение деления ядра ^{239}Pu в поле тепловых нейтронов, $750 \pm 1,82$ *барн*;

10^{-24} – коэффициент перехода от барн к см^2;

R – радиус окружности, описанной вокруг звезды по внешним трекам;

(r_1, r_2, γ) – область $D: 0 \le r_1 < r_2 \le R$ (рис. 5.63);

a, b – параметры, зависящие от толщины толстого слоя H;

φ – критический угол входа трека равен $79,92\,(1,91)^0$.

Диаметр частицы в толстом слое для сложной звезды – это функция от нескольких переменных: количества треков N_D, попавших в сектор кольца звезды D и радиуса окружности, описанной вокруг звезды по внешним трекам R. Коэффициент интерпретации размера частицы k и толщина толстого слоя H являются параметрами:

$$l_{\text{СЗТС}} = f_6^{k,H}(N_D, R, D) \tag{5.170}$$

Несмотря на то, что N_D и D входят в (5.170) как отдельные аргументы, они являются связанными переменными. Очевидно, что N_D, R, D определяют количество N ядер ^{239}Pu в исследуемой частице.

5.7.16 Стандартная неопределенность размера частиц в толстом слое для сложной звезды

Стандартная неопределенность диаметра частицы $l_{\text{СЗТС}}$ по Мартину для $^{239}PuO_2$ в толстом слое для сложной звезды $u(l_{\text{СЗТС}})$ [16]:

$$u(l_{\text{СЗТС}}) = u_{\text{сумм}}(l_{\text{СЗТС}}) = \sqrt{\sum_{i=1}^{4}\left(\frac{df_7}{dy_i}\right)^2 u^2(y_i)}, \tag{5.171}$$

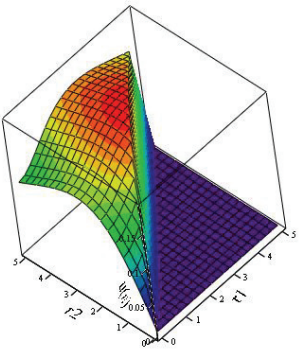
где $u(y_i)$ – стандартная неопределенность, оцененная по типу А или по типу В:

$y_i \in \{\varepsilon_{СЗТС},\ \Phi,\ N_D,\ \sigma_f\}$; $u(y_i) \in \{u(\varepsilon_{СЗТС}),\ u(\Phi),\ u(N_D), u(\sigma_f)\}$;

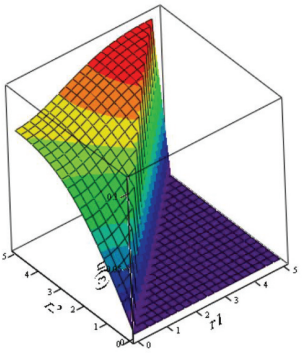
f_7 – функция $l_{СЗТС} = f_7(\varepsilon_{СЗТС}, \Phi, N_f, \sigma_f)$:

$$l_{TC} = ka\frac{\sqrt[3]{2\left(\frac{N_D}{\varepsilon_{СЗТС}\Phi\sigma_f 10^{-24}}\right)-1}-1}{2} \tag{5.172}$$

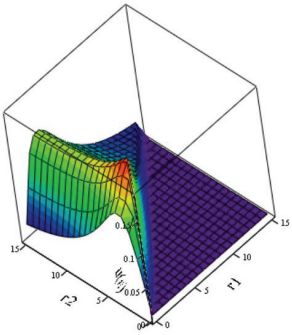
Решение (5.171) аналитически тривиально, но получаемый результат является громоздким и не приводится в данной работе, также для решения (5.171) подойдет и любой численный метод. Стандартная неопределенность размера частиц по Мартину для $^{239}PuO_2$ в сложной звезда в толстом слое на рисунке 5.76 для $N_D = 10000$ и радиуса окружности, описанной вокруг звезды по внешним трекам $R = 25$. Область определения $0 \le r_1 < r_2 \le R$, а на прямой $r_1 = r_2$ – точки разрыва.



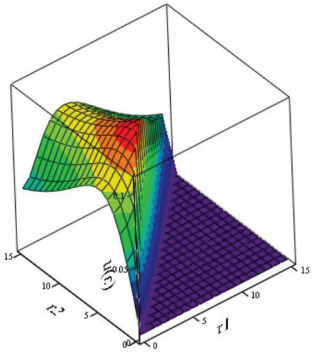
а)



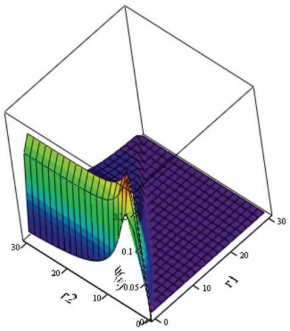
б)



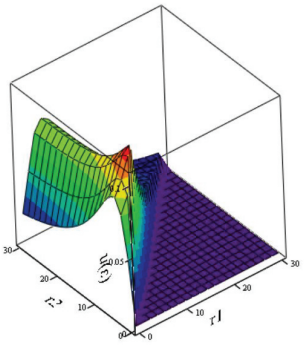
в)



г)

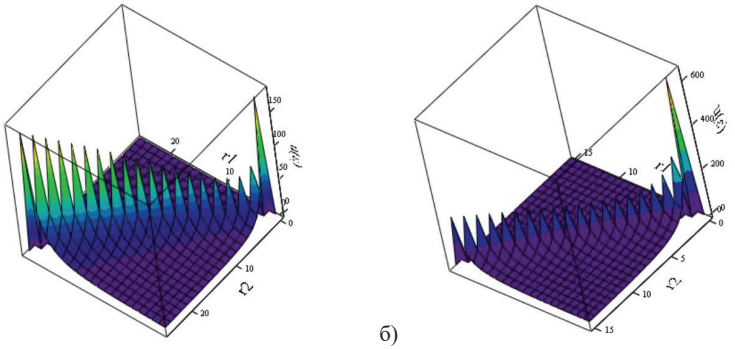


д)



е)

Рисунок 5.75 – Стандартная неопределенность эффективности регистрации $u\left(\varepsilon_{C3TC}^{H}\right)$ в зависимости от $D\left(r1,\, r2, \gamma \equiv 2\pi\right)$ (область определения $0 \le r_1 < r_2 \le R$): а) H=5, R=5; б) H=10, R=5; в) H=5, R=15; г) H=10, R=15; д) H=5, R=30; е) H=10, R=30



а) б)

Рисунок 5.76 – Стандартная неопределенность диаметра частицы l_{TC} по Мартину для $^{239}PuO_2$ от в зависимости от $D(r1,\ r2,\gamma \equiv 2\pi)$ (область определения $0 \le r_1 < r_2 \le R$) в сложной звезде $N_D = 10000$ и радиуса окружности, описанной вокруг звезды по внешним трекам $R = 25$ для толстого слоя: а) H =5 мкм; б) H =10 мкм

Заключение

1. Впервые разработана классификация полученных изображений треков путем их группировки в отдельные звезды, образованные в результате деления ядер ^{239}Pu, содержащихся в одной наночастице. На основе классификации полученных изображений треков путем их группировки в отдельные звезды разработано два алгоритма автоматического отнесения группы треков к звезде, что в дальнейшем позволит создать программное обеспечение для автоматического измерения диаметра и вычисление координаты наночастицы $^{239}PuO_2$ и оценке метрологических характеристик диаметра наночастицы.

2. Разработан метод вычисления диаметра частицы $^{239}PuO_2$, среда между мишенями – воздух или ткани человека.

3. Впервые разработан метод измерения диаметра частицы $^{239}PuO_2$ в сложной звезде. Зарегистрировано изобретение «Способ определения количества ядер радиоактивного нуклида частицы, включающий облучение частицы в поле тепловых нейтронов при воздушной среде между частицей и мишенью» свидетельство RU 2733491 C2 автор Введенский В.Э. [29].

4. Впервые оценены метрологические характеристики метода измерения диаметра частицы $^{239}PuO_2$, в том числе в сложной звезде.

5. Впервые показано, что распределение звезд по числу треков от продуктов деления ^{239}Pu на мишенях из сверхчистого монокристаллического синтетического кварцевого

стекла является дзета-распределением Римана (распределение Зипфа). Такое же распределение звезд по числу треков от продуктов деления ^{239}Pu на фоновых детекторах.

6. Одной из основополагающих констант нейтронно-индуцированного метода измерения является величина критического угла (зависит от материала мишени). Величина критического угла участвует: в расчете эффективности; в расчете размеров частиц; в оценке оптимального режима облучения трековых детекторов. Значение величины критического угла, полученное для используемого материала мишени, а не взятое из справочника, повышает точность вычислений. Получен критический угол для монокристаллического кварца $\varphi = 79,92(1,91)^0$.

7. Полученный критический угол использовался для оценки оптимального режима облучения трековых детекторов в виде границ флюенса «сверху» и «снизу», что позволит точнее задать флюенс облучения трековых детекторов в зависимости от предполагаемых характеристик наночастиц и обеспечит увеличение эффективности использования материальных средств.

8. Проведенные исследования динамики травления латентных треков деления позволили точнее понять механизмы нейтронно-индуцированного метода измерения. Была выдвинута и проверена гипотеза о том, что горизонтальная скорость травления (вдоль поверхности детектора) больше скорости травления по нормали к поверхности детектора в 2,05 раза, а скорость травления материала детектора вдоль латентного трека больше скорости травления по нормали к поверхности детектора в 9,59 раза.

Список литературы к главе 5

1. Лысцов В.Н., Мурзин Н.В. Проблемы безопасности нанотехнологий / М. – МИФИ, 2007. – 70 с.

2. Donaldson, K. and V. Stone, Current hypotheses on the mechanisms of toxicity of ultrafine particle / Ann Ist Super Sanita. – 2003. –39(3). –Pp. 405–410.

3. Oberdorster G, Oberdorster E, Oberdorster J. Nanotoxicology: an emerging discipline evolving from studies of ultrafine particles // Environ.Health Perspect. – 2005. – 113. – Pp. 823–39.

4. Oberdorster G., Stone V., Donaldson K. Toxicology of nanoparticles: A historical perspective / Nanotoxicology. – V.1. –№ 1б. – 2007. – Pp.2–25.

5. Elder A.C.P. The Toxicology of Nanomaterials // Univ.of Rochester, DEM. –2007. – 37p.

6. Плутоний. Справочник под ред. О.Вика – Москва. Атомиздат, 1978. – 327 с.

7. Biological Response and Mechanisms of Toxicology after Exposure to Nanoparticles. D.Rothen-Rutishauer. In “In-vitro Exposure Studies for Toxicity of Engineered Nanoparticles” 5–6. – September 2009. – Karlsruhe, Germany.

8. Nananoparticles-cell Interactions: Mechanisms and Cellular Responses. D.Rothen-Rutishauer, Ch. Brandenberger et. al. In “In-vitro Exposure Studies for Toxicity of Engineered Nanoparticles” 5–6. – September 2009. – Karlsruhe, Germany.

9. Oxidative Stress-induced by Fe_2O_3 Nanoparticles in MRC5 Lung Fibroblasts. M. Radu, M.C. Munteanu, et al., In “In-vitro Exposure Studies for Toxicity of Engineered Nanoparticles” 5–6. – September 2009. – Karlsruhe, Germany.

10. Diel J.H., Mewhinney J.A. Fragmentation of Inhaled $^{238}PuO_2$ Particles in Lung // Health Physics. – 1983. –Vol. 44. – No. (February). –Pp. 135–143.

11. Аладова Е.Е. Исследование дисперсности альфа-активных промышленных аэрозолей методом авторадиографии // Вопросы радиационной безопасности. – 2002. – № 4. – С.17–21.

12. Дьяков А.А., Менькин Л.И., Карпечко С.Г. Определение концентрации ^{235}U в водном теплоносителе первого контура ядерного реактора // Атомная энергия. –1986. – Т. 61. – вып. 5. – С. 334–338.

13. Гангрский Ю.П., Марков И.Г., Перелыгин В.П. Регистрация и спектрометрия осколков деления. – М.: Энергоатомиздат, 1979. –224 с.

14. Флейшер Р. Л., Прайс П. Б., Уокер Р. М. Треки заряженных частиц в твердых телах: Принципы и приложения. В 3-х ч. Ч. 1. Методы исследования треков. / Пер. с англ. Под общ. ред. Ю. А. Шуколюкова. – М.: Энергоатомиздат, 1981. – 152 с.

15. Дюррани С., Балл Р. Твердотельные ядерные детекторы. М.: Энергоатомиздат, 1990 – 264 с.

16. ГОСТ 34100.3–2017/ISO/IEC Guide 98–3:2008 Неопределенность измерения, часть 3, Руководство по выражению неопределенности измерения/

17. Исследования промышленных альфа-излучающих частиц нанометрового диапазона в воздухе рабочих помещений. Заключительный отчет о НИР, шифр «Наночастицы-3». Озерск, 2011. – 141 с.

18. Тот Л.Ф. Расположения на плоскости, на сфере и в пространстве. Пер. с нем. – М.: ФМЛ, 1958. – 364 с.

19. Василенко И.Я., Василенко О.И. Плутоний. // Энергия: экономика, техника, экология. 2004. – № 1. С. 60–63.

20. Бекман И.Н. Плутоний. Учебное пособие. [Электронный ресурс]. – 2009. – URL: http://profbeckman.narod.ru/PlutonSS.htm (дата обращения 29.07.2020).

21. James F. Ziegler, Jochen P. Biersack, Matthias D. Ziegler. SRIM. The Stopping and Range of Ions in Matter. [Электронный ресурс]. – URL: http://www.srim.org (дата обращения 29.07.2020).

22. Фелдман Л., Майер Д. Основы анализа поверхности и тонких пленок. Пер. с англ. – М.: Мир, 1989. – 344 с.

23. Методика выполнения измерений плутония-239, содержащегося в промышленных альфа-излучающих наночастицах. Свидетельство об аттестации методики радиационного контроля № 4390.2.П397 от 27.09.2012. ФР.1.38.2015.13346

24. Сыпко С. А., Введенский В. Э., Бобов Г. Н. Исследования статистических характеристик распределения размеров наночастиц $^{239}PuO_2$ в воздухе отделения оксалатного осаждения завода регенерации топлива ПО «Маяк» с использованием нейтронно-индуцированного метода измерения // Вопросы радиационной безопасности. – 2019. – № 2. – С. 71–79.

25. Джонсон Н. Л. Одномерные дискретные распределения / Н. Л. Джонсон, С. Коц, А. У. Кемп ; пер. 2-го англ. изд. – М.: БИНОМ. Лаборатория знаний, 2010. – 559 с.

26. Райст П. Аэрозоли, введение в теорию. – М.: Мир, 1987. – 278 с.

27. Джонсон Н.Л., Коц С., Балакришнан Н. Одномерные непрерывные распределения: в 2 ч. – М.: БИНОМ. Лаборатория знаний, Ч. 1. – 2010. – 703 с.

28. Протокол облучения трековых детекторов с тканями человека по контракту № 11.305.16.0. – Озерск, 2016. – 4 с.

29. Патент RU 2733491 C2. Способ определения количества ядер радиоактивного нуклида частицы, включающий облучение частицы в поле тепловых нейтронов при воздушной среде между частицей и мишенью / В.Э. Введенский.

6. РАЗРАБОТКА МЕТОДА ВЫПОЛНЕНИЯ ИЗМЕРЕНИЙ РАЗМЕРОВ ПРОМЫШЛЕННЫХ НАНОЧАСТИЦ ^{239}Pu В ТКАНЯХ ЧЕЛОВЕКА

С. А. Сыпко, В. В. Введенский, Г. Н. Бобов, А. Н. Жданов

Анализ литературных данных показывает, что для исследований свойств наночастиц приемлемыми могут оказаться следующие методы измерения:

- авторадиографический метод;
- метод нейтронно-индуцированной трековой дозиметрии;
- метод электронной микроскопии.

Метод авторадиографии успешно применяется для изучения дисперсного состава промышленных альфа-излучающих аэрозолей, а также в исследованиях микрораспределения актинидов в органах и тканях подопытных животных и человека [1]. Однако применимость данного метода в исследованиях свойств наночастиц весьма ограничена. Нетрудно оценить число альфа-распадов ^{239}Pu, составляющих наночастицу размером в 10^4 атомов (максимальный размер фрагментов, образующихся при альфа-распаде этого радионуклида в микронных частицах) за один год наблюдения. Оно составляет ≈0,3. Иначе говоря, за период в 3 года каждый фрагмент диоксида Pu указанного размера в среднем даст приблизительно один альфа-распад. Учитывая то, что эффективность регистрации альфа-распадов авторадиографического метода составляет приблизительно 0,3 [2], можно с уверенностью оценить, что приблизительно за 10 лет наблюдений в среднем будет образовываться один альфа-трек. Исключение составляют актиниды, имеющие сравнительно короткий период полураспада. К таким альфа-излучающим радионуклидам относится ^{238}Pu. Неслучайно при исследовании фрагментации диоксида ^{238}Pu был применен рассматриваемый метод выполнения измерений. Однако производственных участков, в воздухе рабочих помещений которых присутствует диоксид ^{238}Pu без примеси ^{239}Pu, крайне мало. В подавляющем большинстве производственных помещений в состав промышленных альфа-излучающих аэрозолей входит ^{239}Pu. Причем массовая доля этого нуклида значительно превалирует. Таким образом, можно сделать вывод о том, что авторадиографический метод неприменим в исследованиях свойств нанометровых промышленных аэрозолей ^{239}Pu.

Сущность метода нейтронно-индуцированной трековой дозиметрии заключается в следующем. Анализируемый образец с наночастицами помещают между двумя треко-

выми детекторами. Полученную сборку подвергают облучению в поле нейтронов. В результате деления ядер ^{238}Pu возникают осколки. В среднем суммарная кинетическая энергия осколков, образующихся при делении ядер ^{235}U и ^{239}Pu, составляет величину, приблизительно равную 203 МэВ. Осколки, взаимодействуя с материалом трекового детектора, оставляют в нем след разрушения. После облучения трековый детектор подвергают специальной обработке для визуализации образовавшихся треков. В качестве материала трековых детекторов в зависимости от характера исследований используют поликарбонат (CR-39), лавсан, слюду, стекло, кварц. Несложно оценить флюенс нейтронов, который необходимо создать для получения, например, десяти треков деления ядер ^{239}Pu в наночастице, имеющей размер 10^4 атомов. Он составляет приблизительно 10^{18}см$^{-2}$. Учитывая то, что плотность потока тепловых нейтронов исследовательских реакторов составляет величину приблизительно $(2\div3)10^{14}$ с$^{-1}$см$^{-2}$, оценка времени необходимого для получения 10 треков деления будет лежать в пределах $(2\div3)10^3$ с или несколько часов. Оценка проведена с учетом того, что эффективность регистрации нейтронно-индуцированного трекового метода составляет величину приблизительно равную 0,9 [3, 4]. Таким образом, можно считать, что метод трековой дозиметрии является пригодным для проведения исследований свойств наночастиц ^{239}Pu. Недостатком данного метода является то, что с его помощью не представляется возможным определить морфологические характеристики ни самих наночастиц, ни микронных частиц, которые генерируют свободные фрагменты.

Наиболее эффективным методом исследований является метод электронной микроскопии. Современные электронные микроскопы способны разрешать объекты, размер которых не превышает 2÷3 нм. Метод электронной микроскопии (как сканирующей, так и «на просвет») позволяет определить элементный состав микроскопических и нанометровых объектов. Данный метод открывает возможности для изучения морфологических характеристик микронных аэрозольных частиц и частиц нанометрового размера.

6.1. Разработка модели взаимодействия осколков деления с материалом трекового детектора и определения оптимального флюенса нейтронов

Как указывалось выше сущность метода нейтронно-индуцированной трековой дозиметрии заключается в облучении нейтронами наночастиц делящихся материалов ^{235}U, ^{239}Pu, ^{238}Pu и ^{241}Am, предварительно нанесенных на трековый детектор. В результате деления ядер указанных материалов возникают осколки деления. В среднем энергия, выделяющаяся при делении ядер ^{235}U и ^{239}Pu составляет величину в пределах 203 МэВ. Осколки деления, взаимодействуя с материалом трекового детектора, производят разрушение его

структуры. Указанные выше разрушения визуализируют путем травления самого детектора. Визуализированные треки затем подсчитываются.

В первом приближении число делений ядер ^{239}Pu, составляющих кластер может быть рассчитано по следующей формуле:

$$N_d^{(k)} = n^{(k)} \times \int_0^T \int_0^{E_f} \sigma_f(E) \cdot \phi(E) dE dt, \qquad (6.1)$$

где: N_d – число делений ядер плутония, составляющих данный кластер;

$n^{(k)}$ – число ядер ^{239}Pu в кластере;

$\sigma_f(E)$ – зависимость сечения реакции деления ядра ^{239}Pu от энергии нейтронов;

$\phi(E)$ – энергетическая зависимость плотности потока нейтронов поля, в которое помещен кластер;

E_f – энергия нейтронов деления;

E – энергия нейтронов;

t – время;

T – продолжительность облучения образца

Число треков, зарегистрированных трековым детектором при делении ядер ^{239}Pu, составляющих кластер, может быть выражено следующим образом:

$$N_d^{(k)} = n^{(k)} \varepsilon \times \int_0^T \int_0^{Ef} \sigma_f(E) \cdot \phi(E) dE dt + N_f, \qquad (6.2)$$

где: ε – эффективность регистрации актов деления данным типом трекового детектора;

N_f – число фоновых треков, образование которых обусловлено загрязнением поверхности детектора делящимися ядрами или их присутствием в материале самого детектора.

Очевидный недостаток прямого метода выполнения измерений числа ядер ^{239}Pu, образующих данный кластер заключается в отсутствии точной информации об энергетическом распределении плотности потока нейтронов в месте размещения детектора. Дополнительным недостатком метода является и то, что даже в неизменной точке расположения детектора само энергетическое распределение плотности потока нейтронов может претерпевать изменения с течением времени.

Указанных недостатков лишен т.н. сравнительный метод измерения. Сущность его состоит в следующем. В одну и туже точку нейтронного поля помещают три детектора. Под категорией «в одну и туже точку» подразумевается район нейтронного поля (например, активная зона реактора) в котором параметры поля нейтронов (энергетическая зависимость плотности потока) остаются неизменными в данный момент времени.

На первом детекторе располагают исследуемые кластеры. На второй детектор наносят заранее известное количество ядер ^{239}Pu. При этом можно использовать образцовые радиоактивные растворы ^{239}Pu. Третий детектор является фоновым и служит для определения числа фоновых треков. Очевидно, что каждый из детекторов должен быть изолирован друг от друга для того, чтобы не допустить их взаимного загрязнения. В этом случае число треков зарегистрированных первым детектором будет выражаться формулой:

$$N_d^{(k)} = n^{(k)} \varepsilon \times \int_0^T \int_0^{E_f} \sigma_f(E) \cdot \phi(E) dE dt + N_f \,. \tag{6.3}$$

Число треков, зарегистрированных вторым (образцовым) детектором может быть рассчитано в соответствии со следующим выражением:

$$N_d^{(o)} = n^{(o)} \varepsilon \times \int_0^T \int_0^{E_f} \sigma_f(E) \cdot \phi(E) dE dt + N_f \,, \tag{6.4}$$

где: $N_d^{(o)}$ – число треков, зарегистрированных образцовым детектором, на который нанесено заранее известное количество ^{239}Pu;

$n^{(o)}$ – заранее известное число ядер ^{239}Pu, нанесенных на образцовый детектор.

Из выражений (6.3) и (6.4) можно рассчитать число ядер ^{239}Pu, которое сосредоточено в исследуемом кластере в соответствие с формулой:

$$n^{(k)} = \frac{N_d^{(k)} - N_f}{N_d^{(0)} - N_f} \times n^{(0)} \,. \tag{6.5}$$

Здесь уместно сделать ряд замечаний, касающихся нуклидного состава промышленных альфа-излучающих аэрозолей. Исследования изотопного состава аэрозолей воздуха рабочих помещений ПО «Маяк» показали, что их альфа-активность далеко не всегда определяется присутствием только ^{239}Pu. В целом ряде помещений суммарная альфа-активность аэрозолей была обусловлена присутствием в них ^{238}Pu и ^{241}Am. Указанный факт иллюстрируется данными, приведенными в таблице 6.1.

В связи с этим возникает вопрос о том, в какой степени присутствие ^{238}Pu и ^{241}Am может искажать результаты измерения $n^{(k)}$ методом трековой дозиметрии.

Учитывая нуклидный состав (долю ^{238}Pu и ^{241}Am в суммарной активности промышленных альфа-излучающих аэрозолей), а также удельную активность ^{239}Pu; ^{238}Pu и ^{241}Am можно смело утверждать, что львиная доля ядер, составляющих промышленные альфа-излучающие аэрозоли, принадлежит ^{239}Pu. В дополнение к этому следует указать, что значение сечений деления ^{238}Pu и ^{241}Am на тепловых нейтронах, составляющих основную массу нейтронов поля, существенно в 20-30 раз ниже данного показателя для ^{239}Pu.

Таблица 6.1 – Изотопный состав альфа-излучающих аэрозолей, отобранных в 2007 - 2008 гг. в воздухе рабочих помещений радиохимического производства ПО «Маяк»

№ п/п	Дата отбора проб	Альфа-спектрометрия проб				Доля изотопов,%		
		Активность изотопов, Бк						
		^{241}Am	^{239}Pu	^{238}Pu	сумма	^{241}Am	^{239}Pu	^{238}Pu
Отделение по получению диоксида PuO_2								
1	2008	3,23	3,04	8,62	14,89	21,69	20,42	57,89
2	тот же	3,90	11,30	36,92	52,12	7,48	21,68	70,84
3	тот же	122,80	124,23	358,00	605,03	20,30	20,53	59,17
4	тот же	92,53	99,85	280,65	473,03	19,56	21,11	59,33
Среднее ± СКО						17,26 ± 6,58	20,94 ± 0,58	61,81 ± 6,06
Радиоизотопное производство (3 цех)								
5	2007	0,82	0,50	1,36	2,68	31,81	20,27	47,92
6	тот же	0,73	0,39	2,95	4,07	17,98	9,59	72,43
Среднее ± СКО						24,22 ± 8,83	14,09 ± 6,36	61,69 ± 15,19
Среднее арифметическое значение для двух участков ± СКО						20,74 ± 4,92	17,52 ± 4,84	61,75 ± 0,08

Таким образом практически все треки деления кластеров будут обусловлены актами деления ^{239}Pu в поле тепловых нейтронов при условии, что нуклидный состав кластеров будет повторять нуклидный состав микронных аэрозолей. Иначе говоря, твердая фаза промышленных альфа-излучающих аэрозолей представляет собой гомогенную смесь изотопов ^{239}Pu; ^{238}Pu и ^{241}Am.

Это утверждение представляется обоснованным. В настоящее время отсутствуют экспериментальные данные, которые свидетельствовали бы об обратном (радионуклидной гетерогенности твердой формы). Исследования дисперсного состава промышленных альфа-излучающих аэрозолей с использованием альфа-спектрометрического метода измерений активности рассматриваемых изотопов показали, что нуклидный состав аэрозолей не претерпевает изменений в зависимости от размера частиц [5]. Так, была зафиксирована строгая корреляция между активностью ^{241}Am и суммы изотопов плутония в зависимости от АМАД аэрозолей [5]. Более того, эксперименты по изучению транспортабельности альфа-излучающих аэрозолей также не выявили статистически значимых различий в кинетике диализа ^{239}Pu; ^{238}Pu и ^{241}Am. Исключение может составлять незначительное число помещений, где эти радиоизотопы специально производятся в качестве изделий.

Из приведенных выше данных следует, что метод трековой дозиметрии обладает рядом несомненных достоинств, а именно:

сравнительная простота метода;

его относительная доступность в случае наличия соответствующего реактора;

сравнительно высокая чувствительность.

В экспериментах, описанных в работе [6] авторам удалось провести измерения кластеров диоксида плутония численностью атомов на уровне 50 штук. Учитывая тот факт, что шаг кристаллической решетки диоксида плутония составляет ~5,4Å [7], минимально детектируемый размер кластера можно оценить $\sqrt[3]{50} \times 5.4$ Å.

Явным недостатком метода трековой дозиметрии является то, что он не позволяет определить форму аэрозольной частицы и тем более кластера. Как будет показано ниже, плотность потока кластеров с поверхности частиц микронного размера в существенной мере зависит от морфологии микронных частиц.

В рамках настоящего исследования необходимо было смоделировать работу трековых детекторов, а именно процесс облучения трековых детекторов, содержащих частицы плутония-239, потоком тепловых нейтронов. Целью данного моделирования являлось нахождение такого флюенса, с одной стороны треки деления можно было бы приписать к данной наночастице, а с другой – они были бы хорошо различимы друг от друга.

Очевидно, что для детектирования наночастиц и определения их размеров необходимо, чтобы в результате деления ядер ^{239}Pu в наночастице образовалось как минимум 2 трека деления в твердотельном детекторе. Рассчитаем значение флюенса, соответствующее данному условию, в зависимости от числа атомов ^{239}Pu в наночастице по формуле:

$$\Phi = \frac{2}{N_{239}\sigma_{239}\varepsilon}, \qquad (6.6)$$

где: Φ – флюенс нейтронов;

2 – число треков деления, необходимое для идентификации наночастиц;

N_{239} – число атомов ^{239}Pu в наночастице;

σ_{239} – сечение реакции деления ядер ^{239}Pu, равное приблизительно 735 барн;

ε – эффективность регистрации актов деления трековым детектором (0,9).

Ниже приведены результаты расчетов минимальных значений флюенса:

10^4 атомов в частице $\Phi = 1{,}5\ 10^{17}$ см$^{-2}$;

10^3 атомов в частице $\Phi = 1{,}5\ 10^{18}$ см$^{-2}$;

10^2 атомов в частице $\Phi = 1{,}5\ 10^{19}$ см$^{-2}$.

Для оценки верхней границы флюенса, определяемой числом взаимных перекрытий треков деления проводили модельные статистические испытания.

Первой стадией моделирования является размещение частиц плутония на поверхности детектора. Частицы расположены равномерно во всей поверхности детектора и имеют случайные координаты. При этом каждая частица содержит от 1 до 10000 ядер. Таким образом, частицы разбиты на группы по количеству содержащихся в них ядер. Пример распределения представлен на рисунке 6.1.

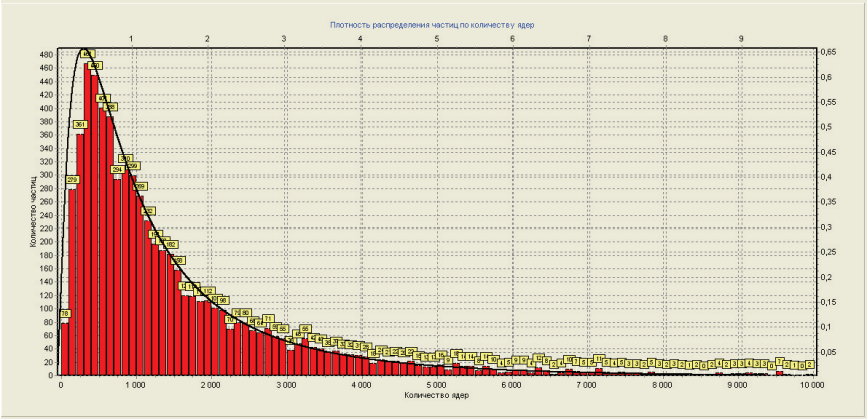


Рисунок 6.1 – Плотность распределения частиц по количеству ядер (для 10^8 ядер)

Вторым шагом является непосредственно реализация процесса облучения, которая состоит из двух этапов: процесса деления частицы, расчета углов осколков деления.

Моделирование процесса деления осуществляется методом Монте-Карло. Деление произойдет в том случае, когда случайное число с равномерным распределением от 0 до 1 в момент времени dt меньше величины $dW = \sigma \cdot n \cdot dt$.

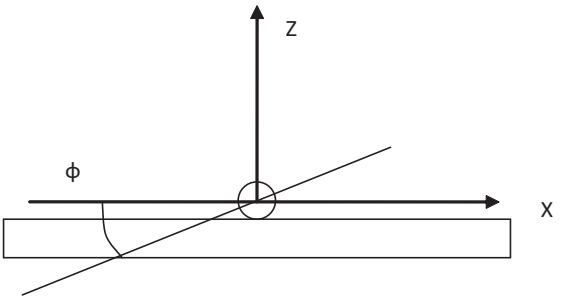


Рисунок 6.2 – Угол φ между траекторией трека и плоскостью детектора

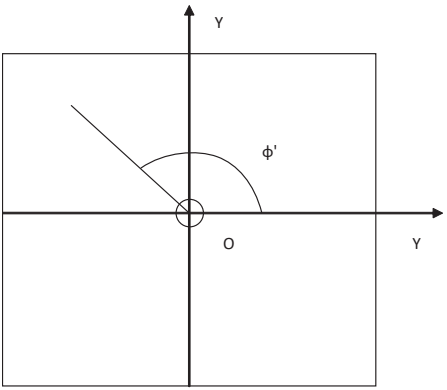


Рисунок 6.3 – Угол φ' проекции трека в плоскости детектора

В результате деления образуются осколки, которые оставляют следы в детекторе - треки. Считаем, что осколки разлетаются симметрично в противоположные стороны. Так как направление движения осколка равновероятно во все стороны, то для определения расположения трека в пространстве детектора необходимо вычислить углы φ (рис. 6.2) и φ' (рис. 6.3) как $2 \cdot \pi \cdot \gamma$, где γ – случайное число с равномерным распределением от 0 до 1.

В результате моделирования мы получим изображение детектора с треками осколков деления. Пример изображения представлен на рисунке 6.4.

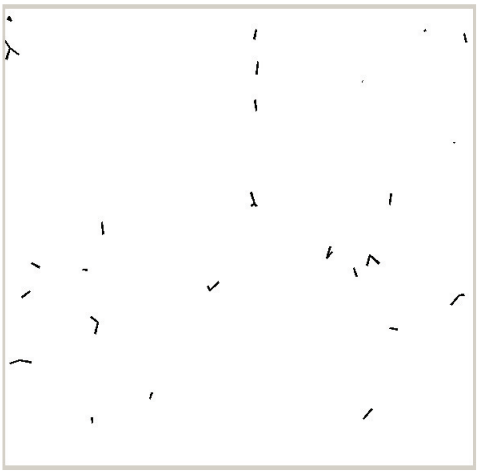


Рисунок 6.4 – Треки осколков деления, образованные в результате моделирования облучения 100000 ядер плутония потоком тепловых нейтронов с плотностью $\varphi = 3 \cdot 10^{15}$ см$^{-2}$ с$^{-1}$ в течение времени t = 180 с

Анализ результатов моделирования показывает, что при высоких значениях флюенса частицы, содержащие большое количество ядер, образуют скопления треков в виде “звезд”, как показано на рисунке 6.5. В таких случаях процесс подсчета и наблюдения треков осложняется вследствие их перекрытия.

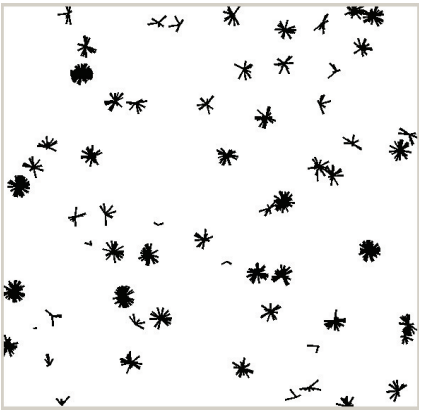


Рисунок 6.5 – Скопления треков осколков деления в виде «звезд», образованные в результате моделирования облучения 100000 ядер плутония потоком тепловых нейтронов с плотностью $\varphi = 10^{17}$ см$^{-2}$ с$^{-1}$ в течение времени t = 180 с

В таблице 6.2 представлены данные о количестве треков, полученных в результате моделирования облучения 100000 ядер плутония потоками разной плотности в течение времени t = 180 с.

Таблица 6.2 – Число треков, при облучении 10^4 ядер

φ, см$^{-2}$ с$^{-1}$ / N опыта	10^{14}	$3{,}5\cdot10^{14}$	$7\cdot10^{14}$	10^{15}
1	2	8	8	14
2	2	6	7	15
3	2	8	9	10
4	0	4	12	11
5	1	3	15	17
6	0	10	8	11
7	3	8	10	13
8	1	5	8	15
9	3	5	8	12
10	1	9	14	12
Ср. кол-во треков	1,5	6,6	9,9	13
Ср. флюенс, см$^{-2}$	$1{,}99\cdot10^{16}$	$8{,}75\cdot10^{16}$	$1{,}31\cdot10^{17}$	$1{,}72\cdot10^{17}$

Из таблицы следует, что число треков возрастает пропорционально флюенсу. И если предположить, что максимальное количество хорошо различимых визуально треков равно n, то облучение необходимо продолжать до флюенса $\Phi = \frac{n}{N \cdot \sigma}$.

Пример моделирования.

Проведем эксперимент. Будем облучать 100000 ядер плутония потоком тепловых нейтронов с плотностью $3{,}5 \cdot 10^{14}$ см$^{-2}$ с$^{-1}$ в течение времени t=1200с (20 мин.). На рисунке 6.6 представлена гистограмма распределения числа частиц по количеству содержащихся в них ядер ^{239}Pu.



Рисунок 6.6 – Плотность распределения частиц по количеству ядер

В результате моделирования процесса облучения получено изображение, показанное на рисунке 6.7.



Рисунок 6.7 – Изображение трекового детектора после облучения потоком тепловых нейтронов с плотностью $3{,}5 \cdot 10^{14}$ см$^{-2}$ с$^{-1}$ в течение 1200с (20 мин)

Количество треков оказалось равным 31, флюенс составил $4{,}11 \cdot 10^{17}$ см$^{-2}$. В таблице 6.3 приводятся номера частиц, которые образовали треки.

Таблица 6.3 – Результаты моделирования

Номер частицы	Кол-во треков	Количество ядер
1	2	1018
3	1	230
6	2	2523
7	1	3526
13	2	2832
14	2	4319
22	2	7050
30	2	5355
31	2	948
34	1	562
37	1	4322
38	1	1276
44	2	1573
45	5	8660
50	1	1236
56	1	816
57	2	2001
61	1	224

Визуально оцененное число частиц, образовавших минимум 2 трека, равно 5. Однако по результатам компьютерного моделирования их число составляет 9. Это означает, что часть треков перекрывает друг друга. Также очевидно, что, чем больше частица, тем больше треков она образует (частица 45 – 5 треков).

Таким образом, для точного определения верхнего значения флюенса в зависимости от числа атомов ^{239}Pu, в наночастице необходимо провести сравнительный эксперимент исследования на реальных пробах.

6.2. Разработка и изготовление контейнера для облучения трековых детекторов

Как указывалось выше, для детектирования и определения размеров наночастиц диоксида плутония необходимо достичь флюенса порядка $10^{17} \div 10^{19}$ см$^{-2}$. Практически этих значений флюенса можно добиться в условиях экспериментальных ядерных реакторов. Энергетические или промышленные реакторы, имея значительную плотность потока

нейтронов, тем не менее, не обладают техническими возможностями для облучения трековых детекторов. Наиболее подходящим с точки зрения проведения облучения является экспериментальный ядерный реактор ИР ИВВ-2М, находящийся в Институте реакторных материалов (г. Заречный Свердловской обл.).

ИР ИВВ-2М – исследовательский водо-водяной ядерный реактор бассейнового типа с номинальной мощностью 15 МВт. Он характеризуется следующими показателями плотности потока нейтронов:

тепловых – $5 \cdot 10^{14}$ $см^{-2} \cdot с^{-1}$;

быстрых (E>0,1 МэВ) - $2 \cdot 10^{14}$ $см^{-2} \cdot с^{-1}$ [3, 4].

Топливом реактора является диоксид урана в алюминиевой матрице, отражателем – бериллий, теплоносителем – химически обессоленная вода. Активная зона реактора набирается из ТВС типа ИВВ-2М, содержащих по пять трубчатых твэлов шестигранного сечения, коаксиально расположенных между внутренним и наружным чехлами и формируется в виде шести топливных секций, размещаемых по кольцу в бериллиевом отражателе. В центре каждой секции имеется полость для размещения экспериментальных устройств диаметром 60 мм, а в центре активной зоны создается экспериментальный объем до 130 мм.

Исходя из характера процесса облучения трековых детекторов в ядерном реакторе, можно сформулировать следующий ряд требований, предъявляемых к контейнеру.

Контейнер должен быть герметичным с тем, чтобы в процессе облучения на материал трековых детекторов исключить попадание делящихся материалов.

Материал контейнера не должен содержать ядер, которые в поле нейтронов активируются и становятся радиоактивными, что усложняет работу с контейнером после облучения.

Материал контейнера должен обладать достаточной радиационной стойкостью, которая определяется охрупчиванием материала контейнера под воздействием гамма-излучения и облучения нейтронами.

Облучение проб в ядерном реакторе с помещенными в них детекторами обычно проводят в полиэтиленовых, полипропиленовых и кварцевых капсулах. С точки зрения требований к материалу контейнера в наибольшей степени подходит кварц. Однако изготовление контейнера из этого материала сопряжено с большими технологическими сложностями. В связи с этим в качестве материала для контейнера был выбран полиэтилен.

Контейнер представляет собой стакан, выполненный из полиэтилена низкого давления. Крышка контейнера позволяет без резьбового соединения достичь достаточной

герметичности, чтобы исключить попадане на поверхность трековых детекторов делящихся материалов из окружающей контейнер среды.

Для исключения возможности переноса делящихся материалов с одного трекового детектора на другой в комплект контейнера входя разделительные кольца. Эти кольца также выполнены из полиэтилена низкого давления.

6.3. Нанесение срезов биологических тканей на кварцевые трековые детекторы

Перед нанесением срезов тканей детекторы были очищены от возможных загрязнений. Для этого они были выдержаны в концентрированной азотной кислоте в течение десяти минут. После этого кислота была слита, детекторы были залиты одномолярной азотной кислотой. Далее детекторы были ополоснуты одномолярной азотной кислотой и помещены в дистиллированную воду. Затем детекторы были ополоснуты в дистиллированной воде и помещены в стакан с дистиллированной водой, в которой они оставались до нанесения.

Также были подготовлены предметные стекла, необходимые для нанесения биоматериала на детекторы (использовались как подложка для детекторов для минимизации возможности загрязнения нижних сторон детекторов). Предметные стекла сначала были вымыты с применением препарата «Защита», после чего были промыты в кислотах. Процедура промывки предметных стекол в кислотах совпадала с процедурой очищения детекторов.

Нанесение биоматериала на детекторы проводили следующим образом. При помощи ножа микротома от парафинированного образца ткани срезался слой толщиной 5 мкм. Полученный срез при помощи препаровальной иглы переносился на каплю воды, находящуюся на детекторе, расправлялся и затем высушивался в течение 16 часов. Всего было подготовлено 28 препаратов тканей. Высушенный препарат проводили последовательно через три порции толуола для удаления из него парафина. При переносе детектора из одной порции толуола в другую детектор ополаскивался толуолом. Выдержка в каждой порции толуола составляла от 5 до 10 минут. После вынимания детектора из третьей порции толуола он ополаскивался толуолом и укладывался на чистое предметное стекло для высыхания толуола. Высушенные детекторы укладывались во вкладку, помещаемую в контейнер от фотопленки (далее контейнер), с использованием лавсановых прокладок толщиной 150 мкм, размещаемых в количестве трех штук на детекторах вне срезов ткани. Прокладки использовались для исключения касания срезом детектора, располагаемого над ним, и, таким образом, прилипания среза к детектору, располагаемому выше. В каждую вкладку помещалось 14 детекторов с нанесенной тканью, после чего сверху (также

через прокладки) помещался детектор с нанесенными аэрозолями. После этого вкладка вместе с детекторами обматывалась по кругу скотчем для фиксации детекторов во вкладке и в таком виде помещалась в контейнер.

После нанесения материалов на кварцевые трековые детекторы была произведена сборка в контейнеры и транспортировка к месту облучения.

6.4. Облучение и дальнейшее травление трековых детекторов

Облучения трековых детекторов с нанесенными образцами тканей проводилось сотрудниками ИРМ согласно протоколу облучения [8]. В указанном «Протоколе…» приводится описание всех необходимых ядерно-физических параметров, требующихся для проведения облучений с заданными целями, а также порядок проведения опытного облучения, обращение с облученными образцами и иные действия, регламентированные эксплуатационными документами.

Облучение трековых детекторов проведено в «сухом» канале АК-1, ячейка 12-16 активной зоны ИЯР ИВВ-2М согласно Программе-методике проведения экспериментального облучения трековых детекторов Пр-10.351/09 от 02.04.2012 г. Облучение проведено в два этапа:

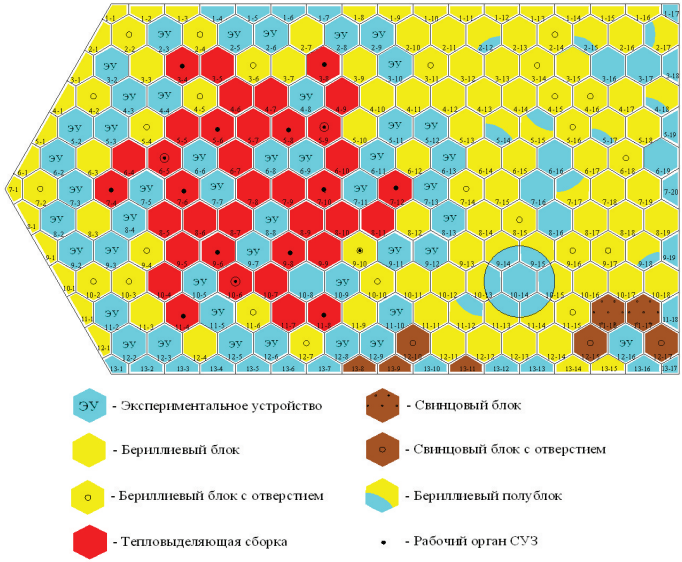
в течение 278,7 часов с 22.01.2016 г. по 03.02.2016 г. при компоновке активной зоны, соответствующей картограмме, представленной на рисунке 6.8;

в течение 120,1 часов с 04.02.2016 г. по 09.02.2016 г. при компоновке активной зоны, соответствующей картограмме, представленной на рисунке 6.9.

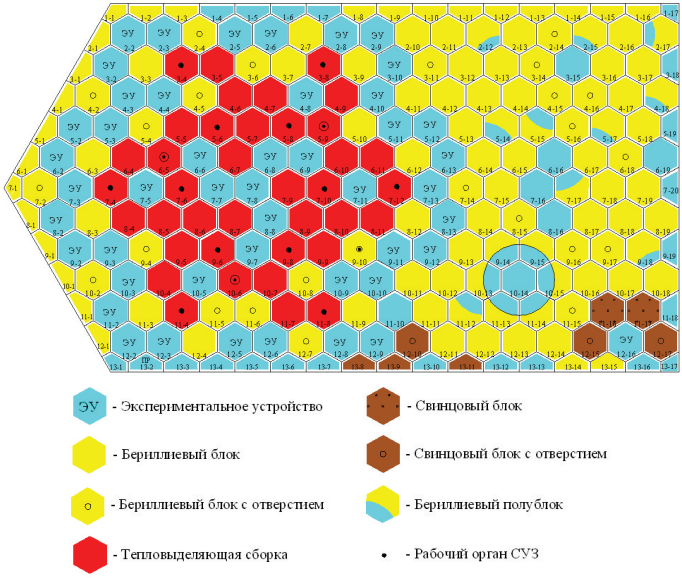
Перерыв в облучении трековых детекторов обусловлен вынужденной остановкой реактора для перекомпоновки активной зоны и догрузки свежего топлива.

Перед загрузкой трековых детекторов в «сухом» канале АК-1 выполнено измерение плотности потока тепловых нейтронов активационным методом. Для этого использован активационный детектор из кобальта. Нейтронно-активационный детектор входит в состав аттестованного специализированного набора СН-71/15, паспорт № 450.15-071. Длительность облучения активационного детектора в канале АК-1 составила 31,5 минут. Характеристики нейтронно-активационного детектора представлены в таблице 6.4.

После облучения кобальтового детектора проведены измерения активности образовавшегося Co-60 и рассчитано значение плотности потока тепловых нейтронов. Результаты измерений представлены в таблице 6.5.



а)



б)

Рисунок 6.8 а) – Компоновка активной зоны реактора ИВВ-2М на момент облучения пластиковой упаковки с трековыми детекторами с 22.01.2016 г. по 03.02.2016 г.; б) – компоновка активной зоны реактора ИВВ-2М на момент облучения пластиковой упаковки с трековыми детекторами с 04.02.2016 г. по 09.02.2016 г.

Таблица 6.4 – Характеристики нейтронно-активационного детектора

Нуклид-мишень, материал, размер	Маркировка детектора	Масса, мг	Число ядер изотопа мишени 197Au	Погрешность,%
Co-59 металлический Ø 10мм	15Co005	15,46	1,58.1020	0,5

Таблица 6.5 – Результаты измерения активности кобальтового детектора и значения плотности потока тепловых нейтронов в «сухом» канале АК-1

Маркировка детектора	Активность детектора, Бк	Статистическая ошибка погрешности измерений,%	Плотность потока, нейтр./(см^2·с)
15Co005	$1{,}16 \cdot 10^4$	6,0	$2{,}86 \cdot 10^{11}$

Для γ-спектрометрических измерений использовался радиометрический эталонный комплекс КРЭНА-ИВВ, предназначенный для измерения нейтронно-активационных детекторов и включающий в себя коаксиальный германиевый детектор типа GC 1019, многоканальный анализатор импульсов типа GammaFast и программное обеспечение Genie-2000 (Canberra).

Результаты измерения активности кобальтового детектора и значения плотности потока тепловых нейтронов представлены в таблице 6.5.

В результате проведенной работы облучены трековые детекторы в «сухом» канале АК-1 при плотности потока тепловых нейтронов $2{,}86 \cdot 10^{11}$ нейтрон/(см^2·с). Набранный флюенс тепловых нейтронов составил $4{,}06 \cdot 10^{17}$ нейтрон/см^2.

При достижении заданного значения флюенса тепловых нейтронов контейнер с трековыми детекторами подтягивался на 3–4 м над активной зоной и выдерживался для распада короткоживущих нуклидов. После выдержки облученных трековых детекторов в «сухом» канале АК-1 контейнеры с трековыми детекторами передавались ФГУП ЮУрИБФ для дальнейшего исследования

В дальнейшем треки на детекторах протравливали до размеров 5-10 мкм, обеспечивая оптимальные условия поиска и идентификации, что позволяло проводить анализ с использованием обычных оптических микроскопов с увеличением не более 100-150. Травление стекол проводили 10% плавиковой кислотой в течение 24 минут при комнатной температуре во фторопластовых стаканах с использованием специальных ячеек (рис. 6.9).

По окончании процедуры травления детекторы подвергались промывке в дистиллированной воде и высушивались на фильтровальной бумаге. Протравленные и высушенные детекторы просматривались с помощью оптического микроскопа

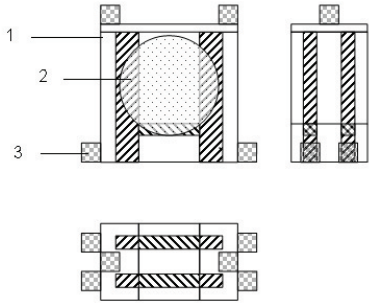


Рисунок 6.9 – Ячейка для травления трековых детекторов: 1 – тефлоновой корпус; 2 – кварцевый детектор; 3 – крепления из тефлона

6.5. Удаление клеевой основы скотча из срезов биологических тканей

При разборке контейнера с детекторами, облученного в поле тепловых нейтронов, было обнаружено, что из скотча, использованного для переноса аэрозолей, вытекла клеевая основа и залила срезы биологических тканей (рис. 6.10, А, Б). При этом в предыдущие случаи облучения скотча совместно с биологическими тканями подобного не происходило (рис.6.10, В).

По-видимому, различия обусловлены не зависящими от нас изменениями в условиях облучения. Таким образом, возникла необходимость удаления клеевой основы скотча (далее – клей) из срезов биологических тканей. Для решения этой задачи были проведены следующие мероприятия:

Был произведен выбор растворителей, способных воздействовать на клей. Для анализа были выбраны следующие растворители: спирт этиловый 96%, ацетон, толуол, масло персиковое, масло растительное. Ватной палочкой, смоченной одним из растворителей, терли капельки клея, находящиеся вне среза. Было обнаружено, что клей с поверхности детектора способны удалить: спирт этиловый 96%, ацетон, толуол, масло персиковое.

Были произведены пробные замачивания облученных детекторов со срезами, после которых производилось окрашивание срезов.

Первым был испытан спирт. Детектор со срезом выдерживался в спирте в течение 30 минут. Капельки клея, находящиеся на детекторе, растворялись, однако цвет самого

среза ткани не изменялся: очевидно, клей не удалялся из среза ткани. Последующая окраска подтвердила наличие клея в ткани: структуры ткани были плохо различимы. Был проведен эксперимент по длительной выдержке среза в спирте (на ночь) при комнатной температуре. Был проведен эксперимент по длительной выдержке среза в спирте при повышенной температуре (50°С, 8 часов) с последующим медленным остыванием вместе с водяной баней и выдержке при комнатной температуре до утра. Окраска срезов после обоих экспериментов не показала различий в качестве окрашивания ткани.

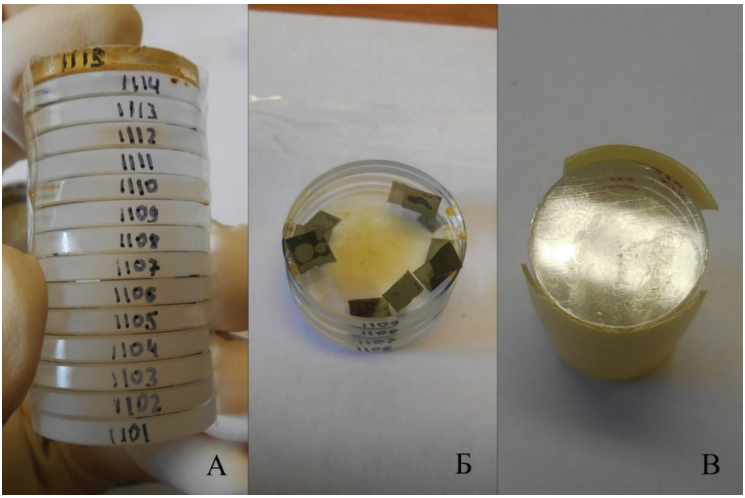


Рисунок 6.10 – Облученные детекторы. А – все детекторы из контейнера № 11, скотч присутствовал на верхнем детекторе; Б – часть детекторов из контейнера № 11, видны прокладки между детекторами, около левой и правой границы детектора видны капельки клея; В – детекторы из контейнера № 9, на верхнем детекторе видны полосы-трещины скотча, возникшие в результате облучения

Выдержка в толуоле, равно как и выдержка в персиковом масле, не привела к растворению капель клея, находящихся вне срезов ткани. По-видимому, успешность удаления капелек клея с детекторов на этапе 1 была обусловлена механическим воздействием ватной палочки на капельки клея. Соответственно, вымывание клея из срезов тоже не происходило. Перед покраской использованные в этих экспериментах детекторы выдерживались в спирте в течение 30 минут. Различий в качестве окраски по сравнению со срезами, вымачиваемыми только в спирте, не обнаружили.

Ацетон не использовали, т.к. при консультации со специалистами РХТЧ ФГУП ЮУрИБФ выяснилось, что использование ацетона может привести к сморщиванию среза ткани и/или его смыванию с детектора, что является недопустимым для наших исследований.

По итогам проведенных мероприятий был сделан вывод о недопустимости наличия скотча в облучаемых контейнерах с детекторами с нанесенными срезами тканей. Оставшиеся детекторы было решено отмывать от клея выдерживанием в 96% спирте в течение 30 минут. Таким образом, достигается сохранение ткани на детекторе, при этом трудности в определении гистологических структур преодолеваются сравнением окрашенных облученного и необлученного срезов.

6.6. Окрашивание срезов

Окраска срезов ткани, нанесенных на предметные стекла, состоит из последовательного перемещения кассеты с закрепленными стеклами по набору жидкостей с выдержкой в них. На первом этапе стекла проводятся через три порции толуола для растворения и вымывания парафина, присутствующего в срезах. Далее происходит смена среды с органической на водную, поскольку именно в водной среде происходит окраска срезов – для этого стекла проводятся по спиртам понижающейся концентрации, начиная с двух порций 100% спирта. Далее производится непосредственно окраска срезов: окраска гематоксилином, улучшение качества окраски при помощи соляной кислоты, затем воды, содержащей аммиак, окраска эозином. Между стадиями непосредственно окраски осуществляется промывка в воде. Далее производится смена среды с водной на органическую, поскольку срезы заключаются в смолы, для этого стекла проводятся по спиртам повышающейся концентрации, начиная с двух порций 96% спирта. После этого срезы выдерживаются в карбол-ксилоле для просветления (придания срезу прозрачности). После этого стекла проводятся через пять порций толуола, после чего производится заключение срезов под покровные стекла.

Стандартная методика окраски срезов ткани гематоксилин-эозином состоит из следующих операций:

1) Толуол, 20 минут;
2) Толуол, 20 минут;
3) Толуол, 20 минут;
4) Фильтр (промакивание стекла фильтровальной бумагой для удаления избытка жидкости);
5) Спирт 100%, 1 минута;
6) Спирт 100%, 1 минута;
7) Спирт 96%, 1 минута;
8) Спирт 70%, 1 минута;

9) Фильтр;

10) Гематоксилин, 10–20 минут;

11) Вода водопроводная, промывка;

12) Вода водопроводная, 7–8 минут;

13) Вода дистиллированная, 2–3 минуты;

14) Фильтр;

15) Соляная кислота 1%, 1–2 секунды;

16) Вода водопроводная, промывка и выдержка 5 минут;

17) Вода водопроводная, 5 минут;

18) Вода водопроводная, содержащая несколько капель NH_3, 10 минут;

19) Вода водопроводная, промывка и выдержка 7,5 минут;

20) Вода водопроводная, 7,5 минут;

21) Вода дистиллированная, 15 минут;

22) Фильтр;

23) Эозин, 5 минут;

24) Вода дистиллированная, промывка;

25) Спирт 96%, 1 минута;

26) Спирт 96%, 1 минута;

27) Спирт 100%, 1,5 минуты;

28) Фильтр;

29) Карбол-ксилол, 10 минут;

30) Фильтр;

31) Толуол, 5 минут;

32) Толуол, 15 минут;

33) Толуол, 20 минут;

34) Толуол, 20 минут;

35) Толуол, 20 минут;

36) Заключение среза под покровное стекло с использованием заключающей среды.

В ходе проведения серии пробных окрасок облученных срезов тканей, находящихся на трековых детекторах, и сопутствующего наблюдения за поведением срезов были обнаружены следующие особенности окраски облученных срезов тканей:

Поскольку срезы на детекторы наносятся без применения адгезивной жидкости («белка») [9], то адгезия таких срезов с поверхностью детектора уступает адгезии срезов,

нанесенных с использованием «белка». Намеренное неиспользование «белка» обусловлено необходимостью минимизации возможного загрязнения детекторов и срезов, находящихся на них, в процессе подготовки срезов к облучению. Движение в жидкостях детекторов со срезами, нанесенными без «белка», например, при промывке, должны быть более плавными и неспешными по сравнению со срезами, нанесенными с использованием «белка». В противном случае возможен частичный или полный смыв ткани с детекторов.

Из срезов ткани, находящихся на детекторах, парафин удаляется еще до облучения в реакторе, поэтому необходимость проводки срезов через толуол, затем перед гематоксилином по спиртам понижающейся концентрации отсутствует. Можно сразу опускать детекторы со срезами в 70% спирт, при этом желательно выдерживать их в спирте от 2 до 5 минут.

От момента удаления парафина из срезов до момента окраски может пройти несколько месяцев, поэтому окрашивание гематоксилином необходимо производить более длительное время – до 20–30 минут.

Помещение детекторов со срезами в солянокислый раствор может привести к «отскакиванию» ткани с детектора за счет ее сморщивания. В связи с этим, необходимо либо не использовать солянокислый раствор совсем, либо использовать раствор, содержащий всего несколько капель соляной кислоты на стакан. Соляная кислота используется для того, чтобы структуры ядра клетки были более четкими. Поскольку производится микрофотосъемка окрашенных срезов, а не непосредственный визуальный анализ с применением микроскопа, а также микрофотосъемка среза ткани производится с малым увеличением, отказ от использования соляной кислоты не приведет к заметным различиям в окраске.

На одном из этапов детектор с нанесенным срезом перекладывается из дистиллированной воды в спиртовой раствор эозина. Поскольку вязкость растворов различается существенно, перенос из одного раствора в другой может привести к потере среза. Во избежание этого необходимо заменить дистиллированную воду смесью дистиллированной воды и 96% спирта в соотношении 5:1. По этой же причине необходимо после эозина промыть детектор не в дистиллированной воде, а в смеси дистиллированной воды и 96% спирта в соотношении 1:1, при этом желательна выдержка в течение нескольких минут.

На одном из следующих этапов детектор с нанесенным срезом перекладывается из 100% спирта в карбол-ксилол. Поскольку вязкость растворов различается существенно, перенос из одного раствора в другой может привести к потере среза. Во избежание этого необходимо использовать промежуточный раствор из спирта и карбол-ксилола в соотношении 1:1–2:1, в котором выдерживать срез в течение 5 минут.

Длительное хранение окрашенного и заключенного среза не подразумевается: детектор со срезом фотографируется после высыхания заключающей среды, после чего с детектора удаляется покровное стекло и срез, и проводится химическое травление детектора. По этой причине перед заключением среза под покровное стекло возможно использовать три порции толуола вместо пяти с выдержкой 5, 10 и 15 минут.

С учетом всех особенностей, алгоритм окраски облученных срезов биологических тканей, нанесенных на трековые детекторы, выглядит следующим образом:

1) Спирт 70%, 2–5 минут;
2) Фильтр (промакивание стекла фильтровальной бумагой для удаления избытка жидкости);
3) Гематоксилин, 20–30 минут;
4) Вода водопроводная, промывка;
5) Вода водопроводная, 7–8 минут;
6) Вода водопроводная, содержащая несколько капель NH_3 на стакан, 10 минут;
7) Вода водопроводная, промывка и выдержка 5 минут;
8) Вода водопроводная, 5 минут;
9) Смесь воды водопроводной и спирта 96% в соотношении 5:1, 5 минут;
10) Фильтр;
11) Эозин, 20 минут;
12) Смесь воды водопроводной и спирта 96% в соотношении 1:1, 5 минут;
13) Спирт 96%, 1 минута;
14) Спирт 96%, 1 минута;
15) Спирт 100% 1,5, минуты;
16) Смесь 100% спирта и карбол-ксилола в соотношении 1:1–2:1, 5 минут;
17) Фильтр;
18) Карбол-ксилол, 10 минут;
19) Фильтр;
20) Толуол, 5 минут;
21) Толуол, 10 минут;
22) Толуол, 15 минут;
23) Заключение среза под покровное стекло с использованием заключающей среды.

Разработанный алгоритм окраски облученных срезов ткани, находящихся на трековых детекторах, был успешно применен на нескольких детекторах. Планируется использовать его в дальнейшем.

6.7. Модернизация микроскопа Leica для работы в проходящем свете

При начале работ с трековыми детекторами на инвертированном материаловедческом микроскопе Leica DMI5000 M, работающего в отраженном свете, было обнаружено, что представляется возможным получать разборчивые фотографии поверхности детекторов на увеличениях 50х, 100х, 200х. На увеличениях 500х и 1000х, необходимых для получения фотографий скоплений треков, получаются очень тёмные фотографии. Стало очевидным, что для получения фотографий при увеличениях 500х и 1000х необходимо использовать проходящий свет. В качестве источника проходящего света длительное время использовали светодиодный фонарь повышенной яркости. Основными недостатками были неудобство регулирования освещенности скопления треков и необходимость регулярного заряда аккумуляторов фонаря.

Поскольку микроскоп Leica DMI5000 M может быть оснащен источником проходящего света, был изготовлен и установлен источник проходящего света по аналогии с заводским исполнением (рис. 6.11).



Рисунок 6.11 – Микроскоп Leica DMI5000 M с источником проходящего света. Слева – с источником заводского изготовления, справа – собственного изготовления

Для изготовления использовались, в том числе, детали микроскопа «ЛОМО». Главным отличием от заводского варианта является невозможность использовать кнопку переключения между отраженным и проходящим светом, расположенную на микроскопе. Для переключения используется внешний тумблер, при этом переключать источник света желательно при нулевой яркости во избежание повреждения ламп освещения или/и электронного блока управления

микроскопом из-за коммутационного скачка тока. В дальнейшем планируется проанализировать возможность модернизации электронного блока управления микроскопом, что в случае успеха позволит переключать источник света при помощи кнопки, расположенной на микроскопе, без опасности воздействия коммутационного скачка тока.

6.8. Модернизация подложки для фотографирования детекторов

При начале работ с трековыми детекторами на микроскопе Leica DMI5000 M была изготовлена специальная подложка для детекторов (рис. 6.12), вставляющаяся в предметный столик микроскопа.



Рисунок 6.12 – Подложка для фотографирования детекторов

Подложка состояла из двух частей, скрепленных между собой при помощи винтового соединения. В частях подложки имелось по три коаксиальных отверстия. Диаметр отверстия в нижней части подложки меньше диаметра детектора, диаметр отверстия в верхней части подложки больше диаметра детектора. Вскоре после начала работы было обнаружено, что при просмотре на увеличениях 500х и 1000х детекторов, находящихся в левом и правом положении, возможно касание объективом соединительных винтов. По

этой причине использовали только центральное отверстие. В процессе использования подложки были обнаружены следующие недостатки:

1) диаметр отверстия верхней части подложки больше диаметра детектора на несколько миллиметров, поэтому возможно смещение детектора при работе;

2) нижняя часть подложки в районе отверстий не является плоской, поэтому для выставления горизонтального положения детектора необходим длительный поиск подходящего расположения детектора в отверстии в верхней части подложки;

3) диаметр отверстия в нижней части подложки меньше диаметра детектора, поэтому периферические области детектора недоступны для съемки (рис. 6.13).

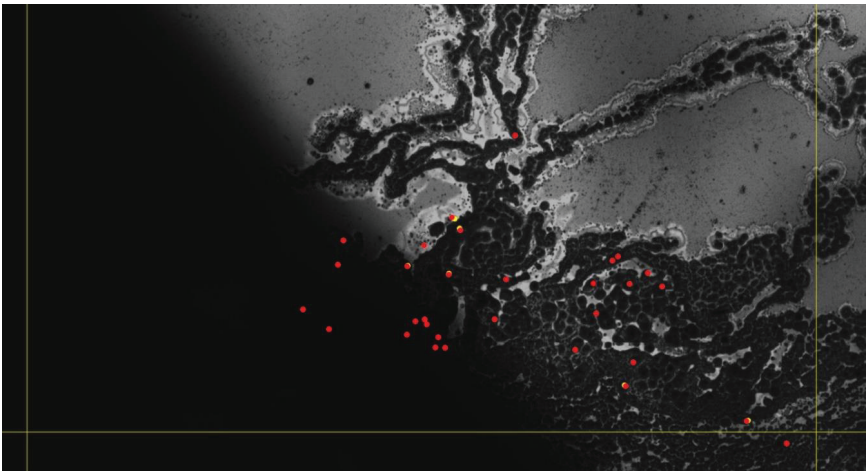


Рисунок 6.13 – фрагмент совмещенного изображения неокрашенного среза ткани и звезд из треков (обозначены точками). Область детектора была недоступна для съемки при фотографировании среза ткани (на рисунке – левый угол) и доступна при фотографировании треков

Для преодоления указанных недостатков было решено изготовить вставку в заводскую подложку микроскопа (рис. 6.14).

Вставка представляла собой диск из оргстекла, в центральной части которого было сделано отверстие чуть большим диаметром, чем диаметр детектора (25 мм), и выемками для вынимания детектора из вставки при помощи пинцета (рис. 6.15).

Закрепление детектора во вставке изначально подразумевалось при помощи покровного стекла, заклеивающего снизу отверстие во вставке целиком. При пробном фотографировании детектора выяснилось, что получить четкие фотографии через покровное стекло невозможно (рис. 6.16).

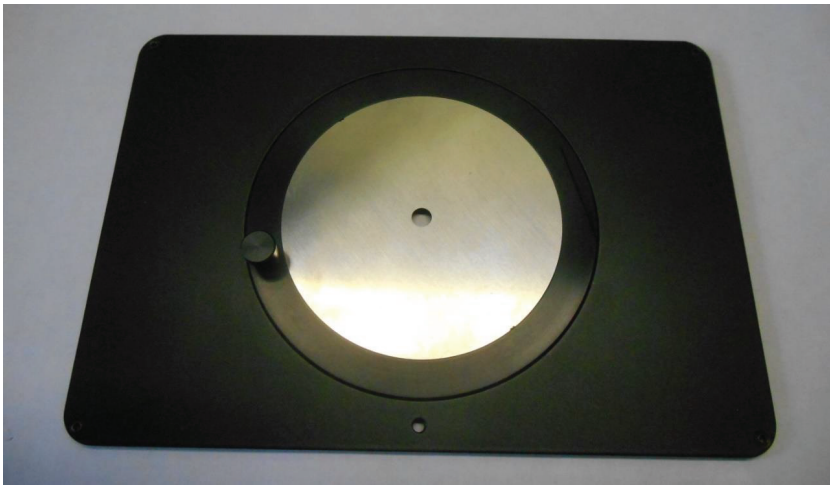


Рисунок 6.14 – Заводская подложка микроскопа.
В центральной части поворотная вставка с отверстием

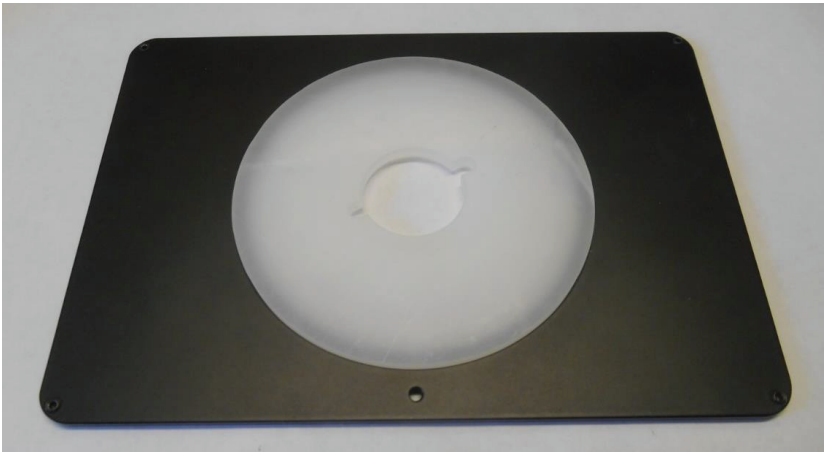


Рисунок 6.15 – Заводская подложка микроскопа со вставкой
для фотографирования детекторов

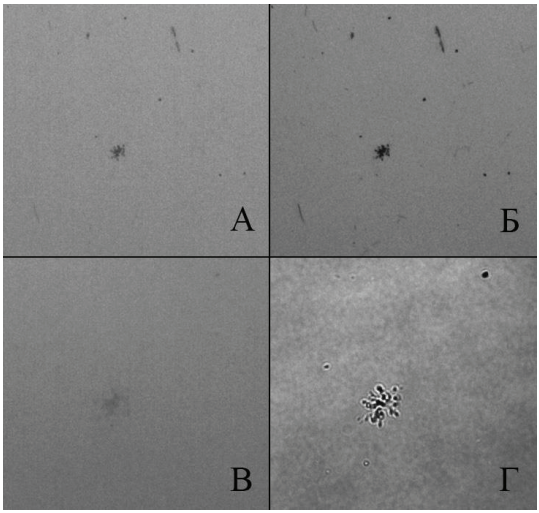


Рисунок 6.16 – Фотографирование скопления через покровное стекло (А, В) и без него (с использованием старой подложки) (Б, Г). А, Б – увеличение 200х, В, Г – увеличение 500х

Покровное стекло было удалено с нижней части вставки, после чего при помощи трех покровных стекол, приклеенных на нижнюю часть вставки, были сделаны уступы для размещения детектора во вставке. Ограничение видимой области детектора уступами незначительно (рис. 6.17).

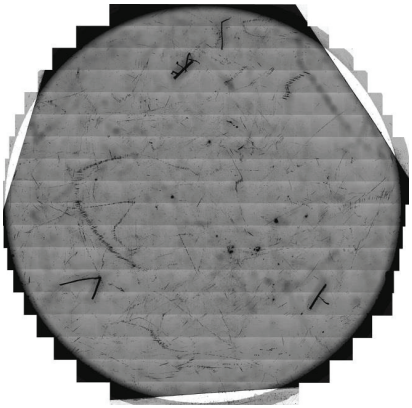


Рисунок 6.17 – Панорамное изображение детектора с визуализированными треками, полученное с использованием вставки в заводскую подложку для микроскопа. Сверху (слева и справа) и снизу видны уступы из покровного стекла

Достоинствами новой подложки являются:

1. Возможность фиксации детектора во вставке.

2. Возможность поворота вставки с детектором в подложке, что удобно при получении панорамных изображений одного и того же детектора после совершения над ним манипуляций (окрашивание среза, травление).

3. Возможность фиксации вставки в подложке.

4. Возможность регулировки угла наклона подложки в предметном столике при помощи четырех регулировочных винтов, расположенных в углах подложки.

Заключение

Произведены теоретические и практические изыскания для разработки метода выполнения измерений размеров промышленных наночастиц ^{239}Pu в тканях человека. Разработана модель взаимодействия осколков деления с материалом трекового детектора и определения оптимального флюенса нейтронов с использование метода Монте-Карло. Разработаны контейнеры для облучения трековых детекторов. Разработана технология нанесения срезов биологических тканей на кварцевые трековые детекторы, дальнейшее облучение кварцевых детекторов и последующее окрашивание биологических тканей. Травление кварцевых детекторов и подсчет треков. Описан процесс поэтапной модернизации микроскопа Leica DMI5000 M и заводской подложки для фотографирования кварцевых трековых детекторов.

Список литературы к главе 6

1. Diel J.H., Mewhinney J.A. Fragmentation of Inhaled $^{238}PuO_2$ Particles in Lung // Health Physics. – 1983. –Vol. 44. – No. (February). –Pp. 135-143.

2. Аладова Е.Е. Исследование дисперсности альфа-активных промышленных аэрозолей методом авторадиографии // Вопросы радиационной безопасности. – 2002. – № 4. – С.17-21.

3. Дьяков А.А., Менькин Л.И., Карпечко С.Г. Определение концентрации ^{235}U в водном теплоносителе первого контура ядерного реактора // Атомная энергия. –1986. – Т. 61. – вып. 5. – С. 334-338.

4. Гангрский Ю.П., Марков И.Г., Перелыгин В.П. Регистрация и спектрометрия осколков деления. – М.: Энергоатомиздат, 1979. – 224 с.

5. Метаболизм и дозиметрия америция-241. Промежуточный отчет о НИР, шифр «Метаболизм» / Руководитель В.В. Хохряков. – Контракт № 11.303.06.0.– Озерск, 2006. – 29 с.

6. Fleischer R.L. and Raabe O.G. On the Mechanism of "Dissolution " in Liquids of PuO_2 by Alpha Decay // Health Physics. – October 1978. – Vol. 35. –Pp. 545–548.

7. Плутоний. Справочник под ред. О.Вика – Москва. Атомиздат, 1978. – 327 с.

8. Протокол облучения трековых детекторов с тканями человека по контракту № 11.302.16.0. Озерск, 2016. – 4 с.

9. Разработка научной базы для изучения микрораспределения промышленных альфа-излучающих наночастиц в легких профессиональных работников предприятий ЯТЦ. Заключительный отчет о НИР, шифр «Микродозиметрия-16». Озерск, 2016. – 90 с.

7. ИССЛЕДОВАНИЕ РАЗМЕРОВ ПРОМЫШЛЕННЫХ НАНОЧАСТИЦ ^{239}Pu И ИХ РАСПРЕДЕЛЕНИЯ В ЛЕГКИХ ПРОФЕССИОНАЛЬНЫХ РАБОТНИКОВ, ИМЕВШИХ КОНТАКТ С ОТКРЫТЫМИ ИСТОЧНИКАМИ АЛЬФА-ИЗЛУЧЕНИЯ

С. А. Сыпко, В. Э. Введенский, Г. Н. Бобов

Микродозиметрия описывает картину распределения энергии ионизирующего излучения между микромишенями, например, отдельными клетками, чувствительными объемами клеток или даже участками биомолекул. Из-за дискретного характера передачи энергии ионизирующими частицами или волнами в некоторых мишенях может выделяться очень большая энергия, в то время как другие микромишени вообще могут не претерпеть ни одного попадания [1].

Развитие атомной энергетики приводит к накоплению долгоживущих α излучающих актинидов в органах основного депонирования, представляющих значительную опасность для здоровья человека. В результате α-распада актинидов возникают ядра отдачи, взаимодействие которых с атомами кристаллической решетки твердой фазы радиоактивного вещества приводит к образованию свободных наночастиц или кластеров [2]. Характерный размер указанных фрагментов колеблется в пределах от единиц до десятков нанометров. Собственные исследования ЮУрИБФ дисперсного состава промышленных α-излучающих аэрозолей воздуха рабочих помещений плутониевого и радиохимического заводов ПО «Маяк» показали наличие т.н. мелкодисперсной фракции радиоактивных аэрозолей [3]. Исследования статистических характеристик распределения размеров наночастиц диоксида плутония в воздухе отделения оксалатного осаждения радиохимического завода ПО «Маяк» показали, что в суммарную удельную активность промышленных α-излучающих аэрозолей наночастицы вносят значимый вклад [4]. Принимая во внимание различия в распределении по отделам дыхательного тракта частиц микронных и нанометровых размеров [5], необходимо учитывать вклад последних в общую активность аэрозолей для корректных дозовых оценок, что необходимо для корректной оценки риска возникновения стохастических и детерминированных эффектов в респираторном тракте человека, а также для разработки стандартов, регламентирующих внутреннее облучение от инкорпорированного плутония. В настоящее время в эпидемиологических исследованиях используется доза, усредненная на всю массу легкого. Эта доза не подходит для случаев со значительной неравномерностью облучения органа, характерной для инкорпорированного плутония в легких. Совершенствование модели дыхательного тракта является актуальной научно-практической задачей.

7.1. Материалы и методы

Для детектирования наночастиц ^{239}Pu использовался нейтронно-индуцированный метод. Описание метода приведено в работах [6, 7], но в этих работах отсутствует подробное описание метода выполнения измерений и его метрологические характеристики. В ЮУрИБФ данный метод был усовершенствован и оптимизирован [8, 9, 10, 11].

Для исследований были использованы парафинированные образцы легкого работников плутониевого производства ПО «Маяк»: случай 4118 (содержание плутония в легких – 12,5 Бк) и случай 153 (содержание плутония в легких – 2,4 Бк). И два фоновых случая персон, никогда не работавших на ПО «Маяк»: 762 и 4097.

От каждого образца в виде парафинированного кусочка легкого отбиралось два последовательных среза толщиной 5 мкм (далее образца). Первый образец исследовали методом нейтронно-индуцированного трекового анализа с дополнительной фазой – приготовлением гистологического микропрепарата, из второго – только приготавливали гистологический микропрепарат. Второй образец являлся дополнительным на случай плохой окраски или потери ткани первого образца. Первый образец тканей легкого помещали на поверхность трекового детектора из сверхчистого синтетического кварца в форме диска диаметром 25 мм. Сборка из нескольких детекторов подвергали облучению в поле тепловых нейтронов. Суммарный флюенс составил $4 \cdot 10^{17}$ нейтрон/см^2. В результате деления ядер ^{239}Pu возникают осколки, которые, взаимодействуя с материалом трекового детектора, оставляют в нем латентные треки деления. После облучения и выдержки, необходимой для распада короткоживущих продуктов деления ^{239}Pu, на детекторы вне области срезов наносили метки-царапины, после чего производили микрофотосъемку среза с получением панорамного изображения. Затем окрашивали срезы гематоксилином и эозином, заключали окрашенный срез под покровное стекло и повторно производили его микрофотосъемку с получением панорамного изображения. На следующем этапе срез ткани с детектора удаляли, детектор подвергали травлению в плавиковой кислоте для визуализации латентных треков и повторно производили его микрофотосъемку с получением панорамного изображения. В результате получили три панорамных изображения одного и того же образца: 1) панорама детекторов с неокрашенной тканью; 2) панорама детекторов с окрашенной тканью; 3) панорама детекторов с визуализированными треками. Затем подсчитали одиночные треки и звезды (звезда – группа треков, исходящих из одного центра [9]). Звезды с большой плотностью треков подсчитывали в соответствии с методом подсчета треков в сложной звезде [11]. Затем на панорамном изображении детектора с визуализированными треками отмечались звезды. Полученное изображение совмещалось с панорамными изображениями детектора с неокрашенной тканью и детектора с окрашенной тканью. Совмещение производили

по меткам-царапинам, нанесенным ранее. Подсчет треков проводился вручную. Определяли локализацию каждой частицы в соответствии с классификацией анатомических отделов легкого [12]. Для фоновых случаев производился обсчет без соотнесения звезд с анатомическими отделами легкого. Гистологическая характеристика анатомических отделов легкого приведена в таблице 7.1.

Таблица 7.1 – Гистологическая характеристика анатомических отделов легкого [12]

№	Анатомич. отдел	Гистологическая характеристика
1	Плевра	Включает относящуюся к ней соединительную ткань и лимфатические сосуды
2	Бронховаскулярная соединительная ткань бронхов	Включает стенки бронхов, перибронхиальную и периваскулярную соединительную ткань и относящиеся к ней стенки сосудов, а также просветы лимфатических сосудов, но не кровеносных сосудов (частицы в просветах кровеносных сосудов не учитывают) и рыхлую соединительную ткань легочных вен, артерий и междольковой перегородки (вокруг бронхов)
3	Соединительная ткань проводящих бронхиол	Включает стенки проводящих (не респираторных) бронхиол и периваскулярную соединительную ткань около бронхиол
4	Интерстиций паренхимы	Включает соединительную ткань респираторных бронхиол (стенки респираторных бронхиол, периваскулярную соединительную ткань около бронхиол и относящиеся к ней стенки сосудов). Включает междольковую, межсегментарную и периваскулярную соединительную ткань. Включает межальвеолярные перегородки и перегородки альвеолярных ходов
5	Лимфоидная ткань	Включает всю организованную лимфоидную ткань, т.е. внутрилегочные лимфатические узлы
6	Просвет проводящих воздухоносных путей и паренхимы	Включает просветы проводящих воздухоносных путей, респираторных бронхиол, альвеолярных ходов и альвеол
7	Интерстициальный склероз респираторного отдела	Склерозированная соединительная ткань, местами гиалинизированная, с искажением строения паренхимы в такой мере, что трудно распознать лежащую в основе структуру. Этот фиброз может быть септальным, периваскулярным или включать респираторные бронхиолы
8	Интерстициальный склероз бронхососудистого дерева	Склерозированная соединительная ткань, местами гиалинизированная, не связанная с паренхимой легкого. Этот склероз представлен очаговыми повреждениями, находящимися в рыхлой соединительной ткани и относящимися к ближайшему бронхососудистому дереву. Их локализация и внешний вид наводят на мысль, что зачастую это склерозированные внутрилегочные лимфатические узлы

После определения локализации частиц для всех фрагментов совмещенного изображения были получены статистические данные двух видов. Первые данные отражали распределение частиц по количеству треков. Вторые данные были получены после группировки данных по анатомическим отделам и отражали распределение частиц по количеству треков в каждом анатомическом отделе.

Гистологическое описание микропрепарата 153 № 4. Детектор 1206

На большей площади среза лёгочная ткань безвоздушная: просветы альвеол заполнены воспалительным экссудатом, наблюдается очаг альвеолярного отека. Межальвеолярные перегородки утолщены, разорваны. На всем поле зрения в просветах альвеол наблюдается большое количество гемосидерофагов. В отдельных альвеолах наблюдаются скопления бактерий. Бронхи в срезах не прослеживаются.

Наблюдается застойное полнокровие капилляров межальвеолярных перегородок и сосудов интерстиция. Атеросклероз крупных и мелких кровеносных сосудов. Периваскулярный склероз, небольшой периваскулярный антракоз.

На данном микропрепарате выявлены 3 анатомических отдела легкого [12]: интерстиций паренхимы, просвет проводящих воздухоносных путей паренхимы, интерстициальный склероз респираторного отдела.

На рисунке 7.1 представлены совмещенные изображения, полученные для данного среза ткани.

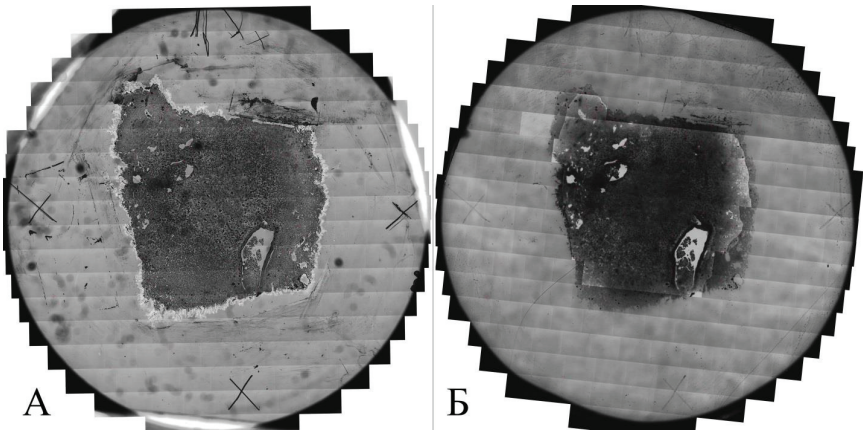


Рисунок 7.1 – А – совмещенное изображение детектора с неокрашенной тканью и детектора с визуализированными треками деления; Б – совмещенное изображение детектора с окрашенной тканью и детектора с визуализированными треками деления

Распределение треков на детекторе 1206

Распределение треков на детекторе было относительно равномерным. Повышенная плотность треков была отмечена в районе стенок кровеносных сосудов. Отсутствовали участки повышенной плотности расположения звезд. Причиной такого распределения одиночных треков и звезд, очевидно, явилась гистологическая структура среза – бóльшая часть среза представляла собой «кашу» из слущенных клеток. Ниже представлен участок ткани легкого с кровеносным сосудом со склерозированной стенкой (рис. 7.2, А). На соответствующем участке детектора с визуализированными треками (рис. 7.2, Б) видно увеличение плотности треков на участке, соответствующем стенке кровеносного сосуда (2). Плотность треков на участке с кровью (3) немного меньше, чем на участке со слущенными клетками (1).

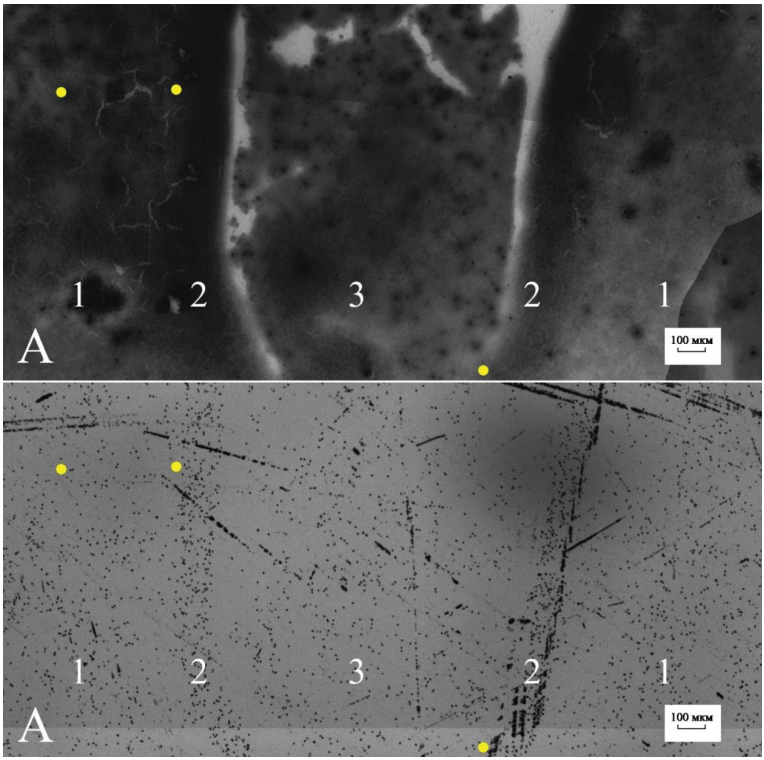


Рисунок 7.2 – А – участок окрашенной ткани легкого с кровеносным сосудом, Б – соответствующий участок детектора с визуализированными треками. 1 – участки слущенных клеток, 2 – стенки кровеносного сосуда, 3 – кровь в сосуде. Точками обозначены звезды

Гистологическое описание микропрепарата 153 № 2. Детектор 1208

Участки альвеолярной эмфиземы с деформацией межальвеолярных перегородок чередуются с участками безвоздушной легочной ткани: альвеолы склерозированы, заполнены слущенным эпителием, лейкоцитами. На всем поле зрения в просветах альвеол наблюдается большое количество гемосидерофагов. Диффузный склероз легочной паренхимы.

Наблюдается застойное полнокровие капилляров межальвеолярных перегородок и сосудов интерстиция. Атеросклероз крупных и мелких кровеносных сосудов. Периваскулярный склероз.

В срезах представлены бронхи среднего калибра с субтотальной и тотальной десквамацией мерцательного эпителия. Во всей строме стенки наблюдается лимфоцитарная инфильтрация, эпителий концевых отделов желез частично слущен. Перибронхиальный склероз. Мелкие бронхи без признаков склероза, с тотальной десквамацией мерцательного эпителия, просветы заполнены гнойным экссудатом. Периваскулярный и перибронхиальный антракоз.

На данном микропрепарате выявлены 4 анатомических отдела легкого [12]: интерстиций паренхимы, просвет проводящих воздухоносных путей паренхимы, бронховаскулярная соединительная ткань бронхов, интерстициальный склероз респираторного отдела.

На рисунке 7.3 представлены совмещенные изображения, полученные для данного среза ткани.

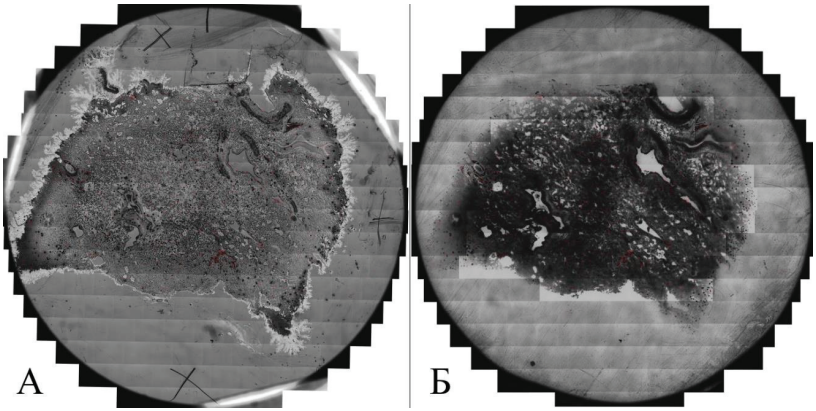


Рисунок 7.3 – А – совмещенное изображение детектора с неокрашенной тканью и детектора с визуализированными треками деления; Б – совмещенное изображение детектора с окрашенной тканью и детектора с визуализированными треками деления

Распределение треков на детекторе 1208

Распределение треков на детекторе было неравномерным. На некоторых участках отмечалось визуальное изменение плотности распределения треков, совпадавшее с определенными тканевыми структурами. Увеличенная плотность треков отмечалась на участках детектора, соответствовавших стенкам кровеносного сосуда, стенке бронха, антракозу и хрящам. Ниже представлен участок среза (рис. 7.4 А). На соответствующем участке детектора с визуализированными треками (рис. 7.4 Б) видно увеличение плотности треков на участках, соответствующих указанным выше структурам. На рисунке 7.4 также видно, что плотность звезд в антракозе выше, чем в прилегающей к нему ткани.

Антракоз был обнаружен в интерстициальном склерозе респираторного отдела (ИСРО), интерстициальном склерозе бронхососудистого дерева и в участках, определить анатомический отдел которых было невозможно. Звезды располагались преимущественно вне антракоза. Соотношение количества звезд и количества треков звезд в антракозе и вне его представлены в таблице 7.2.

Таблица 7.2 – Соотношение количества звезд и треков в звездах для антракоза

	ИСРО		ИСБД		Не определяется	
	Без антракоза	Антракоз	Без антракоза	Антракоз	Без антракоза	Антракоз
Кол-во звезд	189	39	79	5	354	26
Доля	0,83	0,17	0,94	0,06	0,93	0,07
Кол-во треков	1316	710	248	486	8730	1177
Доля	0,65	0,35	0,34	0,66	0,88	0,12

Гистологическое описание микропрепарата 4118 № 2. Детектор 1102

Ткань легкого с выраженной эмфиземой, наблюдается альвеолярный отек, диффузный пневмосклероз. Межальвеолярные перегородки утолщены, обнаруживаются участки с альвеолами, заполненными слущенным эпителием, лейкоцитами и макрофагами. Застойное полнокровие капилляров межальвеолярных перегородок и сосудов интерстиция. Периваскулярный склероз. Атеросклероз крупных и мелких кровеносных сосудов. Периваскулярный антракоз.

В срезе представлены бронхи среднего калибра. Бронхи с тотальной десквамацией мерцательного эпителия, просветы бронхов заполнены массой слущенного эпителия.

Стенки бронхов склерозированы, с лимфоцитарной инфильтрацией. Во всей стенке бронха наблюдаются очаги жировой дистрофии, дистрофия эпителия концевых отделов желез и склероз средних кровеносных сосудов. Небольшой антракоз перибронхиальной ткани.

В срезе наблюдаются небольшие лимфатические узлы с выраженным антракозом, участками склероза и застойным полнокровием кровеносных сосудов.

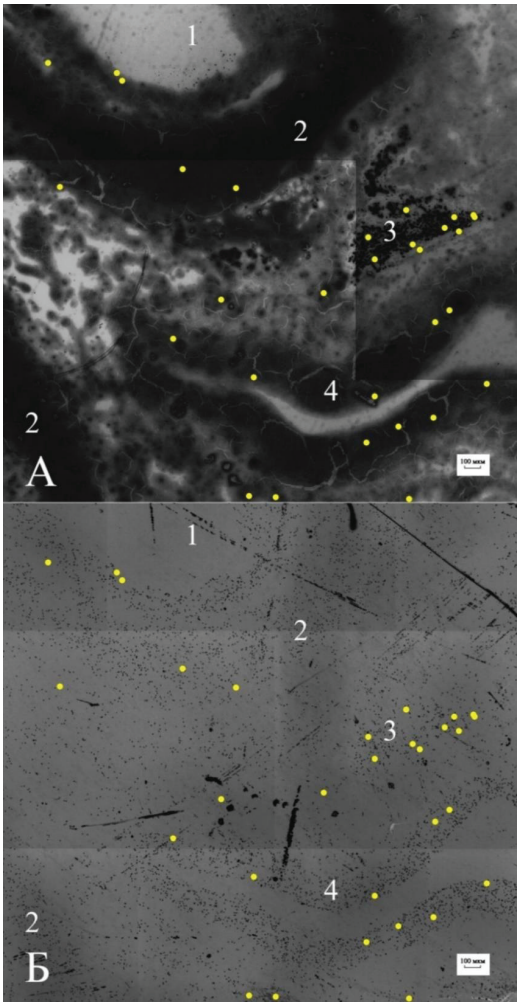


Рисунок 7.4 – А – участок стенки бронха. Б – соответствующий участок детектора с визуализированными треками. 1 – просвет бронха, 2 – хрящи, 3 – антракоз, 4 – стенка кровеносного сосуда. Точками обозначены звезды

На данном микропрепарате выявлены три анатомических отдела легкого [12]: интерстициальный склероз респираторного отдела, интерстициальный склероз бронхососудистого дерева, лимфоидная ткань.

На рисунке 7.5 представлены совмещенные изображения, полученные для данного среза ткани. Видны потери ткани, произошедшие при окрашивании среза.

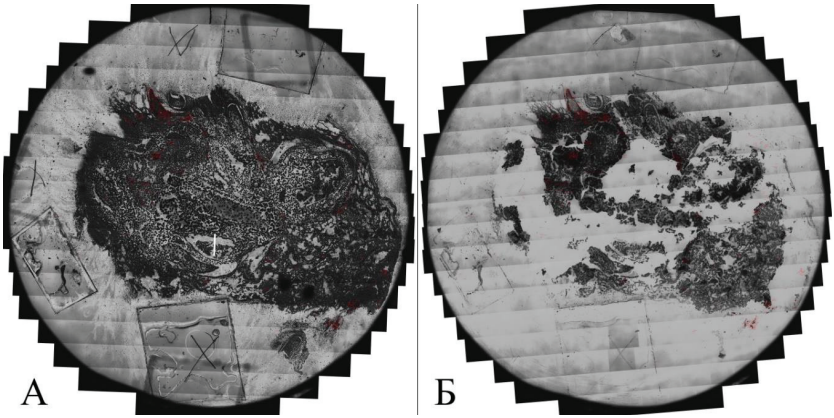


Рисунок 7.5 – А – совмещенное изображение детектора с неокрашенной тканью и детектора с визуализированными треками деления; Б – совмещенное изображение детектора с окрашенной тканью и детектора с визуализированными треками деления

Распределение треков на детекторе 1102

Распределение треков на детекторе было неравномерным. Отмечалось визуальное изменение плотности распределения треков, совпадавшее с определенными тканевыми структурами. Распределение звезд также было неравномерным. Участки с антракозом характеризовались повышенной плотностью звезд. Ниже представлен участок ткани легкого с лимфоидной тканью 6 А. На соответствующем участке детектора с визуализированными треками рисунок 7.6 Б видно увеличение плотности единичных треков и звезд в антракозе.

Антракоз был обнаружен в трех анатомических отделах легкого: лимфоидной ткани, интерстициальном склерозе респираторного отдела (ИСРО) и интерстициальном склерозе бронхососудистого дерева (ИСБД). Для первых двух отделов звезды в антракозе несколько преобладали. Соотношение количества звезд и количества треков звезд в антракозе и вне его представлены в таблице 7.3.

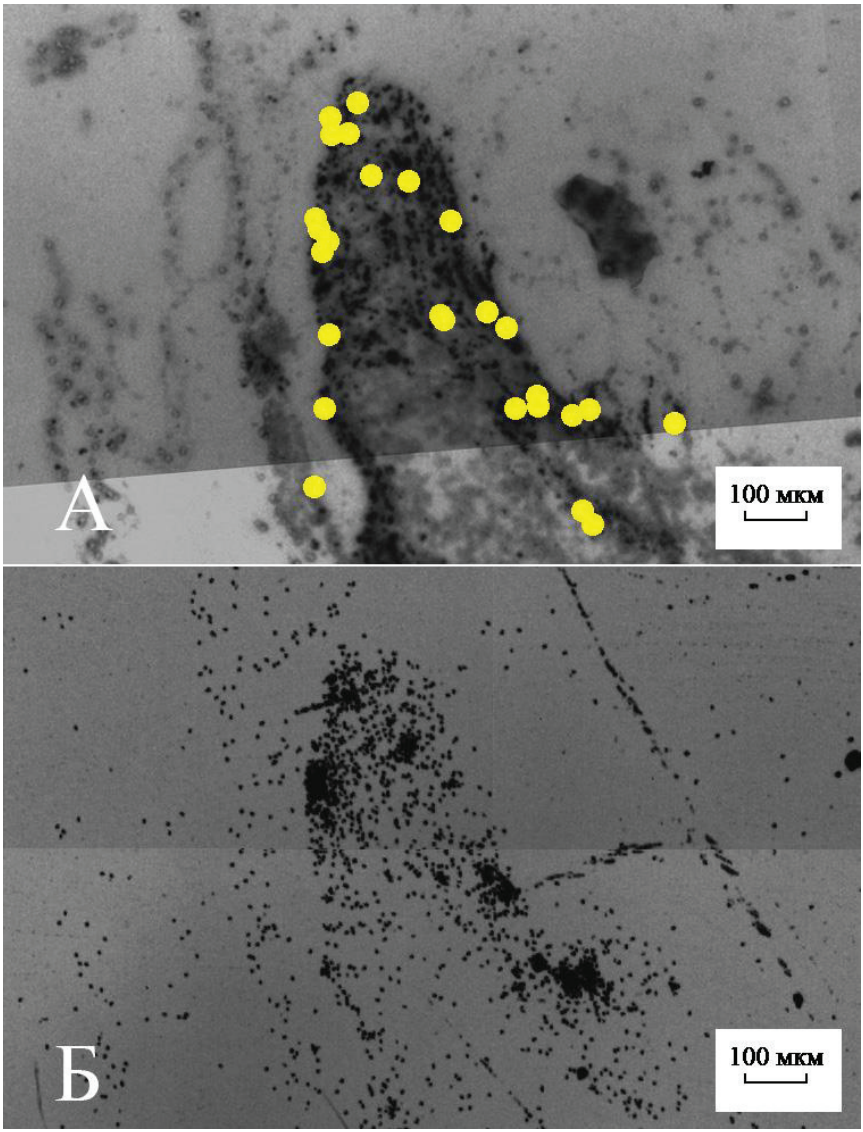


Рисунок 7.6 – А – участок окрашенной ткани легкого, содержащий лимфоидную ткань с выраженным антракозом (темные вкрапления), Б – соответствующий участок детектора с визуализированными треками. Точками обозначены звезды

Таблица 7.3 – Соотношение количества звезд и треков в звездах для антракоза

	Лимфоидная ткань		ИСРО		ИСБД	
	Без антракоза	Антракоз	Без антракоза	Антракоз	Без антракоза	Антракоз
Кол-во звезд	23	28	145	172	62	29
Доля	0,45	0,55	0,46	0,54	0,68	0,32
Кол-во треков в звездах	1722	1779	12020	19434	6692	1827
Доля	0,49	0,51	0,38	0,62	0,79	0,21

Гистологическое описание микропрепарата 4118 № 14. Детектор 914

На срезе представлен участок стенки трахеи. Большая часть среза занята хрящом, обнаруживается дистрофия эпителия концевых отделов желез, липоматоз, очаги лейкоцитарной инфильтрации.

Наблюдается застойное полнокровие и склероз мелких и средних кровеносных сосудов.

На рисунке 7.7 представлены совмещенные изображения, полученные для данного среза ткани. Видны потери ткани, произошедшие при окрашивании среза.

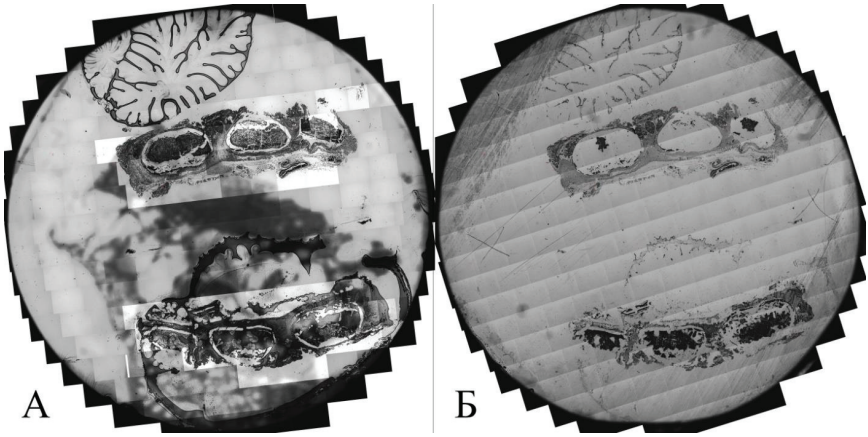


Рисунок 7.7 – А – совмещенное изображение детектора с неокрашенной тканью и детектора с визуализированными треками деления; Б – совмещенное изображение детектора с окрашенной тканью и детектора с визуализированными треками деления

На рисунке 7.7 (выше и ниже верхнего среза трахеи) видны следы клея, использовавшегося для фиксации детекторов между собой. На рисунке 7.7 А просматривается срез

ткани легкого, находившегося на детекторе 913 под детектором 914. На рисунке 7.7, Б видны произошедшие при окрашивании потери ткани.

Распределение треков на детекторе 914

Распределение треков на детекторе было неравномерным. Самая большая плотность треков была отмечена на участках, соответствовавших кровеносным сосудам. Схожая картина наблюдалась на аналогичных участках детекторов с облученными легкими. На рисунке 7.8 можно увидеть различия в плотности треков между гистологическими структурами трахеи. Из рисунка видно, что плотность треков на участках, соответствовавших соединительной ткани 2, ниже, чем на участках, соответствовавших железам 1. Распределение треков в хряще 3 отличается неравномерностью. Так, на участках, соответствовавших центральной области хряща, треков почти нет – они сосредоточены на участках, соответствовавших наружной области хряща. При этом плотность треков на участке, соответствовавшем поверхности хряща, обращенной к просвету трахеи 5, выше, чем на участке, соответствовавшем его противоположной стороне. Распределение треков в хряще связано, очевидно, с особенностями формирования хрящевой ткани трахеи. Распределение звезд по гистологическим структурам трахеи представлено в таблице 7.4.

Таблица 7.4 – Распределение звезд по гистологическим структурам трахеи (детектор 914)

		Доля треков
Железы		0,16
Кол-во треков	Частота	
2	2	
5	1	
Жир		0,38
Кол-во треков	Частота	
2	3	
15	1	
Склероз сосуда		0,04
Кол-во треков	Частота	
2	1	
Соединительная ткань		0,29
Кол-во треков	Частота	
2	8	
Хрящ		0,14
Кол-во треков	Частота	
2	1	
6	1	

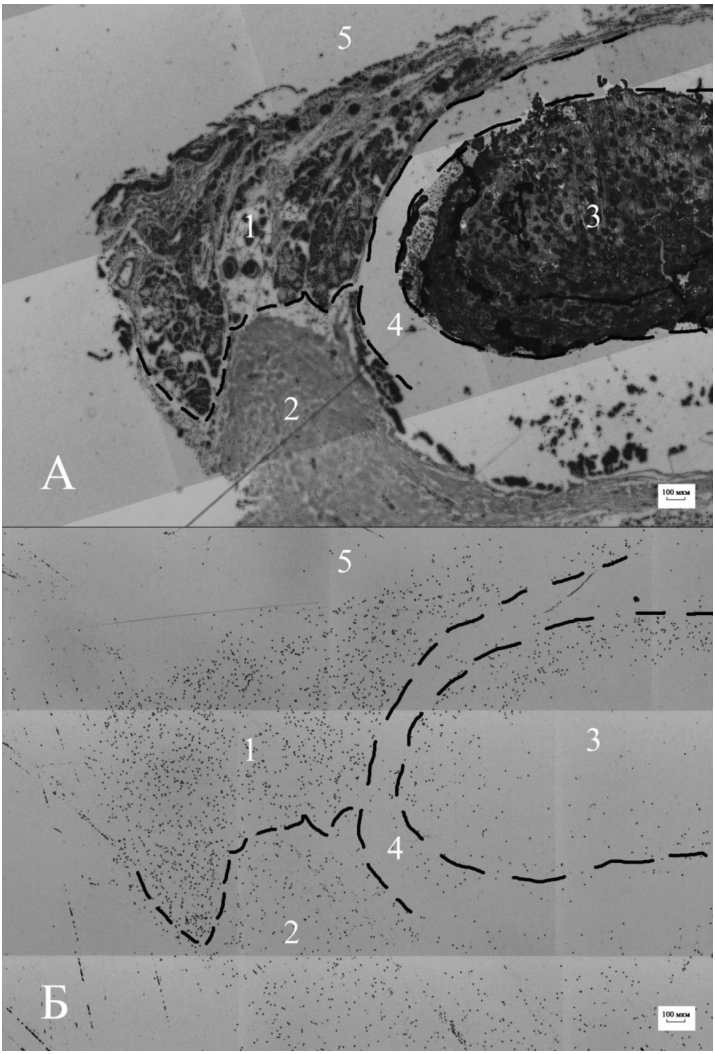


Рисунок 7.8 – А – участок окрашенной ткани трахеи, Б – соответствующий участок детектора с визуализированными треками. 1 – железы, 2 – соединительная ткань, 3 – хрящ, 4 – просвет между хрящом и надхрящницей, 5 – просвет трахеи

Обработка фоновых детекторов

Гистологическое описание микропрепарата 4097 № 5. Детектор 1106

На большей площади среза лёгочная ткань безвоздушная: межальвеолярные перегородки утолщены, склерозированы, местами разорваны. Лейкоцитарная инфильтрация межальвеолярных перегородок. На всем поле зрения в просветах альвеол наблюдается большое количество гемосидерофагов и макрофагов. Диффузный склероз легочной паренхимы.

Бронхи в срезах не прослеживаются.

Наблюдается застойное полнокровие капилляров межальвеолярных перегородок и сосудов интерстиция. Атеросклероз крупных и мелких кровеносных сосудов. Периваскулярный склероз, периваскулярный антракоз.

Гистологическое описание микропрепарата 762 № 2. Детектор 1112

На большей площади среза лёгочная ткань безвоздушная: наблюдается очаги альвеолярного отека, диффузного пневмосклероза, кровоизлияний. Межальвеолярные перегородки местами утолщены, разорваны.

В срезе представлен бронх среднего калибра с тотальной десквамацией мерцательного эпителия. Во всей строме стенки наблюдается лимфоцитарная инфильтрация, дистрофия эпителия концевых отделов желез, периваскулярный антракоз мелких кровеносных сосудов, склероз и полнокровие сосудов.

В срезе наблюдаются лимфоузлы с выраженным антракозом, полнокровием кровеносных сосудов и очагами кровоизлияний.

Наблюдается застойное полнокровие капилляров межальвеолярных перегородок и сосудов интерстиция. Атеросклероз крупных и мелких кровеносных сосудов. Периваскулярный склероз, периваскулярный антракоз, периваскулярная лейкоцитарная инфильтрация.

7.2. Результаты и обсуждение

Распределение плутония по различным анатомическим отделам легкого от общей активности в легких для случая 080 [12] и для среднего по случаям 4181 и 153

В таблице 7.5 представлены сводные данные о детекторах. В таблице 7.6 представлены процентные соотношения распределения треков в звездах по анатомическим отделам легкого.

Таблица 7.5 – Сводные данные о детекторах

Детектор	Блок	Информация о ткани	Площадь среза, мм^2	Кол-во треков	Доля единичных треков	Доля треков в звездах	Плотность треков, мм$^{-2}$	Плотность единичных треков, мм$^{-2}$
1102	4118-2	Долевой бронх (средняя доля)	207	179239	0,75	0,25	866	651
1101	4118-3	Бронхи (нижняя доля)	164	106227	0,86	0,14	647	556
1213	4118-5	Бронхиолы (верхняя доля)	142	265500	0,32	0,68	1870	601
1212	4118-6	Ткань легкого (средняя доля)	250	419102	0,31	0,69	1675	513
914	4118-14	Трахея	91	22753	0,998	0,002	250	250
1209	153-1	Предполож-но, долевой бронх (средняя доля)	85	40301	0,98	0,02	472	463
1207	153-3	Долевой бронх	162	103128	0,92	0,08	636	587
1206	153-4	Ткань легкого	120	83417	0,97	0,03	696	677
1208	153-2	Долевой бронх	212	154581	0,92	0,08	729	667
1106	4097-5 (фон)	Ткань легкого (нижняя доля)	100	24958	0,99	0,01	250	247
1112	762-2 (фон)	Ткань легкого	132	10827	0,94	0,06	82	77

Таблица 7.6 – Процентные соотношения распределения треков в звездах по анатомическим отделам легкого

	Анатомический отдел легкого								
Детектор	Плевра	Бронховас-кулярная со-единии-тельная ткань бронхов	Соединительная ткань проводящих бронхиол	Интерстиций паренхимы	Лимфоидная ткань	Просвет проводящих воздухоносных путей и паренхимы	Интерстициальный склероз респираторного отдела	Интерстициальный склероз бронхососудистого дерева	Не определяется
1101	-	-	-	21,28	-	0,22	37,20	41,24	0,06
1102	-	-	-	-	8,05	-	72,35	19,6	-

	Анатомический отдел легкого								
Детектор	Плевра	Бронховас-кулярная со-единии-тельная ткань бронхов	Соединительная ткань проводящих бронхиол	Интерстиций паренхимы	Лимфоидная ткань	Просвет проводящих воздухоносных путей и паренхимы	Интерстициальный склероз респираторного отдела	Интерстициальный склероз бронхососудистого дерева	Не определяется
1213	-	-	-	57,76	-	18,22	11,55	-	12,47
1212	1,02	-	-	44,51	-	10,38	28,28	10,33	5,48
1209	-	-	-	-	-	-	96,65	-	3,35
1207	-	-	-	2,53	-	0,20	53,43	43,84	-
1206	-	-	-	0	-	0	0	-	100
1208	-	-	-	-	-	0,02	15,99	5,79	78,20

В работе [12] приведено распределение плутония по различным анатомическим отделам легкого работника плутониевого завода ПО «Маяк» (регистрант 080 таблица 7.7).

Таблица 7.7 – Основные сведения о регистранте 080 [12]

Код	Пол	Возраст, лет на момент смерти	Период контакта с Pu на ПО «Маяк»	История курения, пачек/день	Содержа-ние Pu в организме, Бк	Содержа-ние Pu в легких, Бк	Доза внешнего облуче-ния, сГр	Патологоанатомический диагноз
080	М	56	1951-59	2/3	740	270	1.7	ИБС, ОКН

Работник контактировал с труднорастворимыми оксидом и металлическим плутонием. С момента прекращения ингаляционного поступления до смерти прошло около 20 лет. В [12] были проанализированы авторадиограммы с 90-дневной экспозицией. Частицы на всех срезах на стеклах были посчитаны и распределены по восьми различным анатомическим отделам легкого. Распределение плутония по различным анатомическим отделам представлено в таблице 7.8.

Сравнение распределения плутония по различным анатомическим отделам легкого от общей активности в легких для случая 080 [12] и для среднего по случаям 4181 и 153

приведено на рисунке 7.9. Стоит отметить, что активность в легких у регистранта 080 более чем в 20 раз больше, чем у регистранта 4118, и более чем в 112 раз больше, чем у регистранта 153.

Таблица 7.8 – Распределение плутония по различным анатомическим отделам легкого для регистранта 080 [12]

	Анатомический отдел легкого								
Случай	Плевра	Бронховаскулярный интерстиций	Проводящие бронхиолы	Паренхима	Лимфоидная ткань	Просветы воздухоносных путей	Интерстициальный склероз респираторного отдела	Интерстициальный склероз бронхо-сосудистого дерева	Не определяется
080	4,2	3,9	10,9	21,0	0,5	5,2	49,9	4,4	-

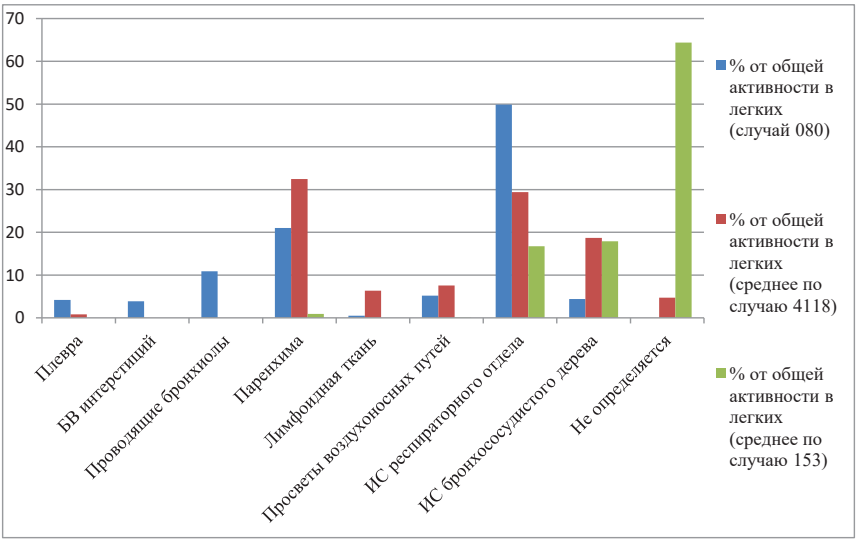


Рисунок 7.9 – Распределение плутония по различным анатомическим отделам легкого от общей активности в легких для случая 080 [12] и для среднего по случаям 4181 и 153

В настоящем исследовании бронховаскулярный интерстиций и проводящие бронхиолы не попали в исследование. У регистранта 153 достаточно большой процент активности не отнесен к анатомическим отделам. У регистранта 4118 активность содержится в

интерстиции паренхимы легкого и лимфоидной ткани. Настоящее исследование, как и исследование [12], показало, что большая активность содержится в отделах интерстициального склероза. Так же видны различия между результатами этих исследований. В отличие от [12], в настоящем исследовании не найдено значимой активности в плевре.

Исследование размеров альфа-излучающих наночастиц в тканях легкого работников «ПО «Маяк» без привязки к морфологическим структурам

По результатам исследований, проведенных ранее, известно, что треки от продуктов деления наночастиц ^{239}Pu воздуха рабочих помещений в звездах имеют ζ – распределение Римана [4].

Вероятностное ζ -распределения Римана имеет вид:

$$\Pr\left[X = x\right] = \frac{1}{\zeta\left(\rho+1\right)} x^{-(\rho+1)},\ \rho > 0, \tag{7.1}$$

где x – число треков, приписанных данной частице в процессе обработки изображений;

ζ –функция Римана:

$$\zeta\left(s\right) = \sum_{j=1}^{\infty} j^{-s},\ s > 0. \tag{7.2}$$

Там же было показано, что оценка параметров ζ -распределения Римана, построенная методом взвешенных наименьших квадратов (МВНК) в общем более точно соответствует входным данным, чем метод максимального правдоподобия (ММП) [4]. Метод МВНК [13]:

$$\sum_{j=1}^{\left(\sum_{k=1}^{\infty}\left(1-\delta_{\left(\sum_{i=1}^{N}\delta_{x_i,k}\right),0}\right)\right)} \left[10^{j}\left(\frac{\sum_{i=1}^{N}\delta_{x_i,j}}{N} - \frac{1}{\zeta\left(\hat{\rho}+1\right)} j^{-\left(\hat{\rho}+1\right)}\right)^{2}\right] \underset{\rho}{\rightarrow} min, \hat{\rho} > 0, \tag{7.3}$$

где $\hat{\rho}$ – МВНК оценка параметра ρ;

N – общее количество звёзд, включая вырожденные звезды с одним треком;

$\delta_{x_i,j}$ – Символ Кронекера: $\delta_{x_i,j} = \begin{cases} 1, & x_i = j \\ 0, & x_i \neq j \end{cases}$.

Параметры ζ-распределения Римана треков звезд от наночастиц ^{239}Pu в тканях легкого приведены в таблице 7.9, где R^2 – коэффициент детерминации.

ζ-распределение Римана является однопараметрическим. Параметр $\left(\dot{\rho}+1\right)$ ζ -распределения Римана для частиц в тканях легкого распределен логнормально $LN\left(0,7028;0,3542\right)$. Параметр $\left(\dot{\rho}+1\right)$ ζ -распределения Римана для аэрозолей воздуха рабочих помещений распределен логнормально $LN\left(1,6932;0,3445\right)$ [4] (таблица 7.10).

Таблица 7.9 – Параметры ζ-распределения Римана звезд от наночастиц ^{239}Pu в тканях легкого

№	Код детектора	Номер регистранта	Информация о ткани	$\frac{1}{\zeta(\check{\rho}+1)}$	$(\check{\rho}+1)$	R^2
1	1101 верх	4118	Бронхи (нижняя доля)	0,491	1,709	0,940
2	1212 верх		Ткань легкого (средняя доля)	0,883	3,447	0,846
3	1213 верх		Бронхиолы (верхняя доля)	0,241	1,279	0,763
4	1102 верх		Долевой бронх (средняя доля)	0,194	1,215	0,683
5	914 верх		Трахея	0,681	2,236	0,913
6	1207 верх	153	Долевой бронх	0,542	1,826	0,922
7	1209 верх		Предположительно, долевой бронх (средняя доля)	0,847	3,118	0,913
8	1206 верх		Ткань легкого	0,680	2,234	0,940
9	1208 верх		Долевой бронх	0,655	2,145	0,955

Таблица 7.10 – Параметры ζ -распределения Римана звезд от наночастиц ^{239}Pu воздуха отделения оксалатного осаждения завода регенерации топлива ПО «Маяк» [4]

№ пп	МВНК		
	$\frac{1}{\zeta(\check{\rho}+1)}$	$(\check{\rho}+1)$	R^2
1	0,928128	4,073373	0,936506
2	0,999824	12,48066	0,352848
3	0,887687	3,50	0,750323
4	0,942585	4,366389	0,951318
5	0,99011	6,752484	0,818335
6	0,890886	3,538378	0,787839

№ пп	МВНК		
	$\frac{1}{\zeta(\check{\rho}+1)}$	$(\check{\rho}+1)$	R^2
7	0,974912	5,472497	0,901867
8	0,991002	6,8841	0,794216
9	0,985582	6,230485	0,935582
10	0,974754	5,463973	0,899617
11	0,84248	3,079842	0,711496
12	0,972325	5,339514	0,987241
13	0,970509	5,253652	0,999616
14	0,955927	4,715581	0,941219
15	0,948375	4,506243	0,936558
16	0,956223	4,724547	0,950746
17	0,986886	6,361296	0,87471
18	0,955481	4,702217	0,864552
19	0,992844	7,203912	0,970445
20	0,980005	5,781555	0,982852
21	0,989018	6,607055	0,94426
22	0,968696	5,173224	0,992692
23	0,964313	4,997204	0,985988
24	0,900728	3,658311	0,896767
25	0,980272	5,799947	0,996201
26	0,999943	14,10841	0,363558

Перейдем к непрерывному распределению Парето первого рода [13]:

$$P_X(x) = ak^a x^{-(a+1)},\ a>0, k>0, x \geq k \tag{7.4}$$

Математическое ожидание и дисперсия распределения случайных величин, подчиняющихся закону распределения Парето, следующие:

$$\mathrm{E}[X] = \frac{ak}{a-1},\ \ a>1 \tag{7.5}$$

$$\mathrm{Var}[X] = \frac{ak^2}{(a-1)^2(a-2)},\ \ a>2 \tag{7.6}$$

Параметры a и k находим из соотношения [4]:

$$\begin{cases} a \equiv \rho \\ k \equiv \sqrt[\rho]{\frac{1}{\rho \bullet \zeta(\rho+1)}} \end{cases} \tag{7.7}$$

Зависимость диаметра частицы l по Мартину для $^{239}PuO_2$ от количества треков в «звезде» [4]:

$$l = 5{,}1941 N_f^{\,0{,}3394} \tag{7.8}$$

В силу того, что суперпозиция степенных функций – есть функция степенная, перейдем от непрерывного распределения Парето количества треков в «звездах» к распределению Парето частиц по диаметрам:

$$P_L(l) = a' k'^{a'} l^{-(a'+1)},\ a' > 0,\ k' > 0,\ l \geq k', \tag{7.9}$$

где параметры распределения a', k' можно найти, решая систему уравнений, например, с помощью надстройки Microsoft™ Excel™ «поиск решения»:

$$\begin{cases} l = 5{,}1941 \mathrm{x}^{0{,}3394} \\ a' k'^{a'} l^{-(a'+1)} = a k^a x^{-(a+1)} \\ a > 0, k > 0, x \geq k, a' > 0, k' > 0, l \geq k' \end{cases} \tag{7.10}$$

Математическое ожидание и дисперсия распределения Парето среднегеометрического размеров частиц $^{239}PuO_2$ в тканях легкого $\mathrm{E}[X] =$ 5,95 нм, $\mathrm{Var}[X] =$ 2,43 нм^2. Математическое ожидание и дисперсия распределения Парето среднегеометрического размеров частиц $^{239}PuO_2$ воздуха рабочих помещений $\mathrm{E}[X] =$ 5,18 нм, $\mathrm{Var}[X] =$ 0,14 нм^2 по данным исследования [4].

Заключение

Проведена количественная оценка микрораспределения плутония в легких у 2-х бывших работников ПО «Маяк», контактировавших с соединениями плутония и 2-х человек, никогда не работавших на ПО «Маяк». Оценена доля плутония в различных анатомических отделах легкого. Данные в таблицах 5, 6 указывают на неравномерность распределения наночастиц диоксида плутония в легких. Плотность единичных треков для фоновых срезов легкого заметно ниже (77–247 мм$^{-2}$), чем плотность единичных треков срезов легкого профессиональных работников (463–677 мм$^{-2}$). Частицы в тканях легких работников ПО «Маяк» по размерам имеют распределение Парето, как и частицы в воздухе рабочих помещений ПО «Маяк» [4]. При этом математическое ожидание диаметра по Мартину $^{239}PuO_2$ как в тканях легких работников ПО «Маяк», так и в воздухе рабочих помещений ПО «Маяк» находится в пределах 5-6 нм. Необходимо отметить, что 5 нм – это нижняя граница измерения диаметра по Мартину $^{239}PuO_2$ при использованном в исследовании флюенсе тепловых нейтронов $4 \cdot 10^{17}$ нейтрон/см^2.

Произведено сравнение с результатами аналогичного исследования [12]. Настоящее исследование, как и исследование [12], показало, что большая часть активности плутония содержится в отделах интерстициального склероза. В [12] использовался менее чувствительный метод, поэтому активность в легких у регистранта 080 из исследования [12] более чем в 20 раз больше, чем у регистранта 4118, и более чем в 112 раз больше, чем у регистранта 153. Вполне возможно, что именно это повлияло на получение несколько различных результатов (рис. 7.9).

Список литературы к главе 7

1. Рябухин Ю. С. Низкие уровни ионизирующего облучения и здоровье: Системный подход (Аналитический обзор) // Медицинская радиология. – 2000. – № 4. – С. 5-45.

2. Хохряков В. В., Некрасов К. А. О механизме образования наночастиц диоксида плутония // Вопросы радиационной безопасности. – 2015. – № 1. – С. 55-68.

3. Хохряков В. В., Сыпко С. А. Исследования дисперсного состава альфа-излучающих аэрозолей в воздухе рабочих помещений ПО «Маяк» // Вопросы радиационной безопасности. – 2019. – № 4. – С. 73-80.

4. Сыпко С.А., Введенский В.Э., Бобов Г.Н. Исследования статистических характеристик распределения размеров наночастиц $^{239}PuO_2$ в воздухе отделения оксалатного осаждения завода регенерации топлива ПО «Маяк» с использованием нейтронно-индуцированного метода измерения // Вопросы радиационной безопасности. – 2019. – № 2. – С. 71-79.

5. Sturm R. Radioactivity and lung cancer-mathematical models of radionuclide deposition in the human lungs. J Thorac Dis 2011;3:231-243. DOI: 10.3978/j.issn.2072-1439.2011.04.01.

6. Fleischer R.L. and Raabe O.G. On the Mechanism of "Dissolution " in Liquids of PuO2 by Alpha Decay // Health Physics. – October 1978. – Vol. 35. – Pp. 545–548.

7. Fleischer R.L. and Raabe O.G. Fragmentation of respirable PuO2 particles in Water by Alpha Decay-a Mode of "Dissolution" // Health Physics. – April 1977. – Vol. 32. – Pp. 253–257.

8. Методика выполнения измерений плутония-239, содержащегося в промышленных альфа-излучающих наночастицах. Свидетельство об аттестации методики радиационного контроля № 4390.2.П397 от 27.09.2012. ФР.1.38.2012.13346.

9. Хохряков В. В., Введенский В. Э., Сыпко С. А., Бобов Г. Н., Корпачев А. В., Хохряков И. В. Результаты исследований по разработке нейтронно-индуцированного метода измерения размеров наночастиц диоксида ^{239}Pu // Вопросы радиационной безопасности. – 2014. – № 3. – С. 69-81.

10. Введенский В. Э., Сыпко С. А., Бобов Г. Н. Совершенствование нейтронно-индуцированного метода измерений размеров наночастиц диоксида ^{239}Pu // АНРИ. – 2019. – № 2. – С. 79-90.

11. Введенский В.Э., Сыпко С. А., Бобов Г. Н. Определение диаметра наночастицы $^{239}PuO_2$ с использованием нейтронно-индуцированного метода и расчет стандартной неопределенности диаметра наночастицы // АНРИ. – 2019. – № 4. – С. 38-50.

12. Романов С. А. Микрораспределение плутония в легких как основа коррекции дозиметрических моделей. М.: Дис. канд. биол. наук, 2003. – 113 с.

13. Джонсон Н. Л., Коц С., Балакришнан Н. Одномерные непрерывные распределения: в 2 ч. // М.: БИНОМ. Лаборатория знаний, Ч. 1. – 2010. – 703 с.

Научное издание

Аладова Елена Евгеньевна
Бобов Георгий Николаевич
Введенский Владимир Эдуардович
Жданов Алексей Николаевич
Мелентьева Роза Вадимовна
Сыпко Сергей Алексеевич
Хохряков Виктор Валентинович

Физико-химические свойства промышленных альфа-излучающих аэрозолей: данные многолетних исследований

Монография

Компьютерная верстка: Ю. Н. Сафонкина,
А. В. Самусенков

Издательство «Наукоемкие технологии»
ООО «Корпорация «Интел Групп»
https://publishing.intelgr.com
e-mail: publishing@intelgr.com
Тел.: +7 (812) 945-50-63

Подписано в печать 28.07.2023.
Формат 60×84/16.
Бумага офсетная. Печать офсетная.
Объем 23,5 печ.л. Тираж 500 экз.

ISBN 978-5-907618-58-9

