Российская академия наук Уральское отделение ФГБУН Институт экологии растений и животных

> М.Я. Чеботина Р.П. Пономарева А.В. Трапезников

Дисперсность частиц плутония в производственных процессах и в окружающей среде

PU

ЕКАТЕРИНБУРГ Издательство «АкадемНаука» 2017 Российская академия наук Уральское отделение ФГБУН Институт экологии растений и животных

> М.Я. Чеботина Р.П. Пономарева А.В. Трапезников

Дисперсность частиц плутония в производственных процессах и в окружающей среде

> ЕКАТЕРИНБУРГ Издательство «АкадемНаука» 2017

#### М.Я. Чеботина, Р.П. Пономарева, А.В. Трапезников

Дисперсность частиц плутония в производственных процессах и в окружающей среде – Екатеринбург: Изд-во «Академ-Наука», 2017. – 112 с.

#### ISBN: 978-5-904900-31-1

В книге обсуждаются проблемы, связанные с загрязнением плутонием природной среды в результате функционирования предприятий ЯТЦ. Приводятся и анализируются литературные данные о дисперсности частиц плутония в воздухе рабочих помещений и выбросах предприятий атомной промышленности и энергетики, а также при ядерных взрывах в атмосфере и авариях. На примере аварийной зоны ЧАЭС проведен анализ влияния распределения нуклида по фракциям почвенных частиц на миграционные процессы в экологической системе почва-воздух. Проведенные расчеты позволили авторам предложить адекватный способ оценки опасности загрязненной территории с использованием почвенного коэффициента. Показана возможность прогнозирования концентраций плутония в воздухе с использованием связи активности воздушной пыли и удельной активности плутония в почве, а также коэффициента ресуспензии почвенных частиц с плотностью загрязнения нуклидом территории.

Книга представляет интерес для специалистоврадиоэкологов и гигиенистов, преподавателей и студентов экологических специальностей, а также для широкого круга читателей, которым не безразличны экологические проблемы Земли.

ISBN 978-5-904900-31-1



УДК 574.58; 577.346 ББК 28.08

 © М.Я. Чеботина, Р.П. Пономарева, Трапезников А.В., 2017
 © ФГБУН Институт экологии растений и животных УрО РАН, 2017

#### Посвящается

Розе Вадимовне Мелентьевой,

разработавшей оптикорадиографический метод и определившей мелкодисперсную фракцию аэрозолей плутония на отечественных предприятиях атомной промышленности

# СОДЕРЖАНИЕ

Введение.		. 6
<ol> <li>Характе образовани загрязните</li> </ol>	ристика первичных источников ия аэрозолей плутония как потенциальных елей воздушной среды	. 9
1.1. Ди е г э	сперсность радиоактивных аэрозолей в воздухе рабочих помещений и выбросах предприятий атомной промышленности и энергетики	10
1.2. Ди е с	сперсность аэрозолей при ядерных ззрывах в атмосфере и испытании ядерного ружия	38
1.3. Но е 2. Почва к воздушной	сители аэрозольных частиц в атмосферном зоздухе ак вторичный источник загрязнения и́ среды плутонием	43 52
2.1. Xa r B 3	рактеристика загрязнения плутонием ючвенных частиц разного размера в 15-км зоне ЧАЭС и оценка опасности вагрязненной территории	54
2.1.1. ( E	Относительное содержание плутония в разных по размеру почвенных частицах на разном расстоянии от Чернобыля	55
2.1.2. Y E	Удельная активность плутония зо фракциях почвенных частиц на разном расстоянии от Чернобыля	56
2.1.3. H	Исследование коэффициентов обогащения плутонием частиц «вдыхаемых» фракций относительно почвы	50

2.1.4. Оценка опасности загрязненной плутов территории	нием 62
2.2. Прогноз концентраций плутония в воздух над загрязненной территорией по удели	хе ьной
активности радионуклида в почве и с	
помощью коэффициентов ресуспензии	69
Заключение	88
Список литературы	

#### введение

Плутоний (Pu) – химический элемент с атомным номером 94 и атомным весом 244,064 – открыт в 1940 году группой американских ученых (Сиборгом, Кеннеди, Макмилланом и Уолхом) и назван в честь открытия новой планеты Плутон. Плутоний находится в III группе периодической системы элементов Менделеева и относится к семейству актиноидов. По химическим свойствам он представляет собой хрупкий тяжелый радиоактивный металл серебристо-белого цвета, его плотность составляет 19,84 г/см<sup>3</sup>. Плутоний не имеет стабильных изотопов. Из ста возможных его радиоактивных изотопов синтезированы двадцать пять, у пятнадцати из них с массовыми числами 232–246 изучены ядерные свойства. Наиболее долгоживущие изотопы – <sup>244</sup>Pu ( $T_{1/2}$  8,26·10<sup>7</sup> лет), <sup>242</sup>Pu ( $T_{1/2}$  3,76·10<sup>5</sup> лет), <sup>239</sup>Pu ( $T_{1/2}$  2,41·10<sup>4</sup> лет), <sup>238</sup>Ри ( $T_{1/2}$  87,74 года) – являются *а*-излучателями, а <sup>241</sup>Pu ( $T_{1/2}$  14 лет) –  $\beta$ -излучателем. В природе плутоний встречается в ничтожных количествах в урановых рудах (<sup>239</sup>Pu). Он образуется из урана под действием нейтронов, источниками которых являются реакции взаимодействия α-частиц с легкими элементами в составе руд, спонтанное деление ядер урана и космическое излучение.

Плутоний нашел широкое применение в атомной промышленности и технологиях. Он используется в военных целях при производстве ядерного оружия и служит в качестве ядерного топлива в энергетических реакторах на быстрых нейтронах. Плутоний служит исходным продуктом для получения трансплутониевых элементов в ядерных реакторах, применяется в малогабаритных ядерных источниках электрического тока при космических исследованиях. В медицине его используют для изготовления стимуляторов сердечной деятельности человека. Альфа-частицы плутония при попадании в организм представляют серьезную опасность для человека, повреждая окружающие элемент ткани. Разные изотопы плутония обладают разной токсичностью. Например, реакторный плутоний, в котором преобладает <sup>240</sup>Pu, в 8–10 раз токсичнее чистого <sup>239</sup>Pu. Химическая опасность плутония как любого тяжелого металла значительно слабее по сравнению с его радиоактивной токсичностью, которая является следствием *α*-излучения. Пробег *а*-частиц в воздухе составляет 3,7 см, а в мягкой биологической ткани – 43 мкм. Плутоний считается самым радиотоксичным элементом из всех актиноидов.

Опасность ингаляционного проникновения плутония состоит в том, что он склонен к образованию устойчивых в воздухе мелкодисперсных аэрозолей, способных переноситься на большие расстояния от мест первоначального загрязнения и поступать в органы и ткани людей при проживании на загрязненной территории. В организме плутоний оседает преимущественно в лёгких, часть его переходит в кровь, лимфу и костный мозг.

Плутоний обладает канцерогенными свойствами и при ингаляции способен вызвать рак лёгких. Так вдыхание 100 мг плутония в виде частиц 1–3 микрон ведет к смерти от отека легких за 1–10 дней. Доза в 20 мг приводит к смерти от фиброза легких примерно за месяц. Меньшие дозы приводят к хроническому канцерогенному отравлению.

На конец XX столетия запасы промышленного плутония в мире достигли ~ 950 т. Из них 650 т наработано в атомных реакторах на АЭС и 300 т произведено для военных целей. Значительная часть наработанного плутония находится в различного рода хранилищах, представляющих потенциальную опасность для окружающей среды. От 7 до 10 т радионуклида распылено по Земле ИЗ различных антропогенных источников. Это океанические острова и полигоны, на которых производились ядерные взрывы, территории вокруг ядерных производств, зоны аварий и атомных катастроф. Ядерная бомба, сброшенная США на Нагасаки в 1945 г., содержала в себе 6,2 кг плутония. Другой пример радиоактивного загрязнения окружающей среды – авария 24 января 1978 г. в результате неконтролируемого схода с орбиты советского космического аппарата «Космос-954» с ядерным источником энергии на борту, упавшего в Канаде. В результате аварии на территорию площадью около 124000 м<sup>2</sup> попало более килограмма <sup>238</sup>Pu. Самый страшный пример радиоактивного загрязнения планеты плутонием – авария на Чернобыльской АЭС 26 апреля 1986 года, в результате которой в окружающую среду было выброшено 190 тонн радиоактивных веществ, в том числе плутония; площадь отчуждения составила 2600 км<sup>2</sup>. Эти и другие примеры свидетельствуют об опасности атомных технологий, применяемых в мирных и военных целях. В результате ядерных взрывов, аварий на Земле и в космосе в настоящее время плутоний стал глобальным загрязнителем планеты.

Цель данной книги – привлечь внимание научного сообщества к наиболее экологически значимой на сегодняшний день проблеме загрязнения биосферы Земли плутонием, опаснейшим радиоактивным элементом для всего живого на планете.

### 1. ХАРАКТЕРИСТИКА ПЕРВИЧНЫХ ИСТОЧНИКОВ ОБРАЗОВАНИЯ АЭРОЗОЛЕЙ ПЛУТОНИЯ КАК ПОТЕНЦИАЛЬНЫХ ЗАГРЯЗНИТЕЛЕЙ ВОЗДУШНОЙ СРЕДЫ

Основными первичными источниками образования и поступления плутония в окружающую среду являются предприятия горнорудной, атомной промышленности и энергетики в штатном режиме работы и при авариях, воздушные, наземные, подводные и подземные ядерные взрывы, космические аппараты при их разрушении в атмосфере Земли (Плутоний, 2003).

В природной воздушной среде плутоний находится преимущественно в виде аэрозолей. Характеристика аэрозолей, их физико-химические свойства, особенности поведения в природных условиях зависят от источника образования и определяются производственными процессами на предприятиях ЯТЦ и условиями окружающей среды. При этом важными параметрами, определяющими миграцию и воздействие радиоактивных аэрозолей на объекты окружающей среды и человека, являются химическая форма соединений плутония, размер, плотность и удельная активность аэрозольных частиц, которые формируют \*АМАД (Трансурановые элементы..., 1985; Лызлов и др., 2001; Бондаренко и др., 2003; Raabe et al., 1978; International ..., 1994; Magnard, Baron, 2005).

Определяется по формуле: АМАД =  $\frac{3}{4}$  Д  $\sqrt{\rho}$ , где

Д – медианный диаметр, рассчитывается путем записи диаметров всех радиоактивных частиц в порядке возрастания и нахождения такого диаметра, который делит полученный ряд пополам;

 $\rho$  – средняя плотность промышленных радиоактивных аэрозолей (изменяется в пределах 2–13,5 г/см<sup>3</sup>) (Лызлов и др., 2001)

<sup>\*</sup>АМАД (активный медианный аэродинамический диаметр) – параметр дисперсности, учитывающий размер и плотность радиоактивных аэрозолей.

#### 1.1. Дисперсность радиоактивных аэрозолей в воздухе рабочих помещений и выбросах предприятий атомной промышленности и энергетики

Исторически первыми значимыми источниками поступления радиоактивных аэрозольных частиц, в том числе плутония, в окружающую среду явились горнорудные фабрики и предприятия атомной промышленности.

По результатам многолетней (1966-1996 гг.) мировой практики исследований аэрозолей с применением преимущественно инерционных методов отбора проб воздуха на различных предприятиях атомной промышленности установлена полидисперсность содержащихся в воздухе рабочих помещений радиоактивных аэрозольных частиц, значения АМАД которых изменялись в диапазоне от сотых долей до десятков микрон (Будыка и др., 1986; Лызлов и др., 2001; Аладова, 2002; Аладова, Хохряков, 2002; Серебряков, 2005; Бондаренко и др., 2003; Кириллович и др., 2003; Kotrappa et al., 1977; Bigu, 1990; Yu, 1993; Dorrian, Barley, 1995; Kelso, Wright, 1996). Наиболее полное обобщение результатов исследований аэрозолей, образующихся при производственных процессах на предприятиях атомной промышленности, содержится в работах (Dorrian, Barley, 1995; Kelso, Wraight, 1996).

Данные работы (Dorrian, Barley, 1995) основаны на результатах анализа значений АМАД радиоактивных аэрозолей в воздухе 109 рабочих мест на предприятиях горнорудной и энергетической промышленности. При анализе отобранных в помещениях проб воздуха использовали радиографический метод измерений, позволяющий определять наличие субмикронных аэрозолей (< 1 мкм). При всем разнообразии рабочих мест из 160

проведённых измерений в 9 % случаев значения АМАД аэрозолей были < 1 мкм, в 8 % случаев они были > 10 мкм и в 83 % – значения АМАД лежали в интервале от 1 до 10 мкм.

Результаты работы (Kelso, Wright, 1996) отражают дисперсность аэрозолей на 50 рабочих местах в производственных помещениях одного предприятия по переработке ядерного топлива. В работе при отборе проб воздуха использовали импакторы, не осаждающие частицы диаметром < 1,4 мкм. Результаты исследования двух вышеупомянутых опубликованных работ обобщены в табл. 1.

Таблица 1

### Значения параметров дисперсности α-, β-, γ- активных аэрозолей в рабочих помещениях предприятий атомной промышленности и энергетики

	Число об-	Разброс	Медиана	
Типы предприятия,	следован-	значений	величины	Q*
источник информации	ных рабо-	АМАД,	АМАД,	р.
	чих мест	МКМ	МКМ	
Урановые фабрики	13	0,5–16	6,8	2,4
(Dorrian, Barley, 1995)				
Ядерно-энергетические	39	0,28–7,2	3,9	1,4
установки (Dorrian,				
Barley, 1995)				
Заводы по обращению	57	0,34–16,5	3,8	1,8
с ядерным топливом				
(Dorrian, Barley, 1995)				
Комплекс по перера-	50	1,9–9,0**	3,7**	1,7–3,9
ботке ядерного топлива				
(Kelso, Wright, 1996)				

\*Здесь и далее – стандартное геометрическое отклонение

\*\* Средние значения АМАД в различных зданиях комплекса

Из данных таблицы следует, что для предприятий ядерно-энергетической промышленности и предприятий по переработке ядерного топлива медианы и средние значения величин АМАД аэрозолей близки между собой (3,7-3,9 мкм), а на урановых фабриках они почти в 2 раза выше (6,8 мкм). Это означает, что в воздухе рабочих помещений урановых фабрик содержится больше крупнодисперсных аэрозолей по сравнению с другими обследованными предприятиями, в воздухе которых наблюдались более мелкие фракции аэрозолей. По данным работы (Dorrian, Barley, 1995), в воздухе всех обследованных предприятий присутствуют частицы с АМАД субмикронного размера. Отсутствие этих частиц в комплексе по переработке ядерного топлива (Kelso, Wright, 1996) объясняется использованием для отбора проб импактора, не осаждающего частицы < 1,4 мкм.

Информация о дисперсности аэрозолей плутония в воздухе рабочих помещений разных производств по работе (Dorrian, Barley, 1995) приведена в табл. 2. Из таблицы видно, что значения АМАД аэрозолей плутония на рассмотренных производствах имеют микронные значения, за исключением установок по химическому восстановлению плутония и по производству <sup>238</sup>Pu, где аэрозоли имеют субмикронные значения.

На основании анализа результатов значений АМАД частиц, содержащих  $\alpha$ -,  $\beta$ - и  $\gamma$ -радионуклиды, авторы рекомендовали величину АМАД = 5 мкм при  $\beta$  = 2,5 в качестве ориентира при расчетах накопления радионуклида в организме и доз облучения работающего с ним персонала. В публикации МКРЗ (International..., 1994) утверждено использование указанных выше параметров для практического использования.

## Таблица 2

#### Дисперсность аэрозолей плутония в воздухе рабочих помещений на предприятиях атомной промышленности и энергетики в 1966–1989 гг.

Тип производства	АМАД, мкм	β	Метод измерения
Энергетическая установка	5,7–5,8	4,5–4,6	каскадный импак- тор
Исследовательский институт	5,0	_	пакет фильтров
Исследовательский институт	6,0		каскадный импактор и авторадиография
Установка производ- ства смешанного топлива	1,6–3,1	1,5–1,7	каскадный импак- тор
Завод по производству МОКС-топлива	1,9–2,3	1,6	преципитатор
Производство плуто- ния (инцидент)	9,0–16,5	-	авторадиография
Установка по перера- ботке топлива	5,2–7,5	_	циклон HASL
Установка по перера- ботке	1,3 -> 10	1,6–2,6	каскадный импак- тор
Установка по перера- ботке	5,6-8,9	_	циклон
Установка по произ- водству Ри	1,8–4,0	1,7–3,5	каскадный импак- тор
Установка химическо- го восстановления Ри	0,34	5,4	каскадный импак- тор
Установка по произ- водству <sup>238</sup> Ри	0,16	2,8	авторадиографии
Установка по дезакти- вации Ри	4,0	2,6	каскадный центрипитатор
Железнодорожные платформы с отрабо- танным топливом	6,8	2,8	каскадный импак- тор

Авторы работы (Dorrian, Barley, 1995) подчеркнули необходимость при проведении работ определять количественное содержание субмикронных частиц в воздухе рабочих помещений в каждом производственном процессе. В работе названы операции, при которых образуются субмикронные аэрозоли. Это в основном операции, связанные с применением высоких температур: сжигание окислов, горение урановых стружек, сварка горячих ячеек; технология плавления и испарения при фрезеровании ацетиленовыми и плазменными горелками, электрической дугой; резание стали горелками; резание электропилой и др. Авторы считают, что данные по содержанию субмикронных частиц в воздухе рабочих помещений необходимы для выработки специальных регламентов при проведении подобных работ. Они отмечают, что при расчете величин отложения нуклидов в дыхательном тракте человека использование только частиц с АМАД = 5 мкм приводит к занижению реальных доз облучения персонала на местах, где присутствуют субмикронные аэрозоли. На занижение доз облучения без учета субмикронных аэрозолей отмечается в более ранней монографии (Трансурановые элементы..., 1985), а в работе Л.М. Щербаковой (Щербакова, 2000) указано на необходимость, наряду с определением значений параметров дисперсности аэрозолей субмикронных фракций в воздухе рабочих помещений, оценивать вклад субмикронных частиц в активность плутония в воздухе.

Во многих зарубежных работах, проводимых в 1960–1990 гг., измерение размеров частиц проводили чаще всего на приборах с инерционным типом осаждения (импакторах, преципитаторах и т. д.) и лишь в отдельных случаях использовался радиографический метод. Импакторы имеют большие потери при улавливании частиц < 1 мкм, поэтому данные, полученные при их применении, как и данные гравитационного метода, недостаточно точно отражают истинное распределение аэрозолей по размерам (Огородников и др., 1972; Василенко и др., 1985; Heikkenen et al., 2005). Метод авторадиографии, используемый при определении АМАД (табл. 2), тоже фиксирует лишь часть субмикронных аэрозолей, как это доказано в исследованиях (Лызлов и др., 2001). Таким образом, перечисленные выше методы не позволяли достаточно точно определять вклад субмикронных частиц в многокомпонентную смесь аэрозолей в рабочих помещениях.

Авторы исследования (Лызлов и др., 2001) разработали новый оптикорадиографический метод определения размеров и количества аэрозолей в воздухе рабочих помещений.

Оптикорадиографический метод включает в себя отбор проб аэрозолей воздуха на фильтры (Афа-РМП-20), просветление фильтров в насыщенных парах ацетона, авторадиографии фильтров с ядерной эмульсией при различных временных экспозициях, просмотр на оптическом микроскопе, измерение размеров и активности аэрозольных частиц, обработку цифрового материала. С дополнительным использованием данных, полученных с помощью импактора и ультразвукового генератора стандартных аэрозолей, были измерены не только размеры и радиоактивность аэрозолей, но и их плотность – показатели, необходимые для расчета величин АМАД.

Широкий диапазон временных экспозиций при радиоавтографии фильтров, отобранных аспирационным методом, учет количества треков вокруг аэрозольной частицы, зависящее от ее активности и времени экспозиции, дали возможность расчетным путем по формулам, предложенным авторами метода, определить размеры и активность мелкодисперсной фракции промышленных аэрозолей. Результаты расчетов при оценке диаметров аэрозолей проверялись с помощью электронного микроскопа. Выявлено, что на точность метода определения дисперсного состава аэрозолей, кроме времени экспозиции фильтров на пленке, влияют наличие радиоактивного газа в воздухе, а также фоновой активности долгоживущих нуклидов цепочек урана и тория.

Было установлено, что на авторадиограмме аэрозоли выглядели в виде единичных треков, бесцентровых звёзд и редких мелких по размеру пятен (α-активные мелкодисперсные аэрозоли). Кроме того, были обнаружены центровые звёзды (звезды из α-треков, в центре которых просматривались аэрозоли-пылинки) и крупные тёмные пятна (аэрозоли средней и крупной фракций, которые ранее определяли как грубодисперсные аэрозоли). Авторы на большом статистическом материале

Авторы на большом статистическом материале определили величины вкладов субмикронных *а*активных аэрозолей, в том числе плутония, в суммарную активность воздуха и удельную активность разных фракций промышленных аэрозолей на нескольких отечественных предприятиях. В воздухе рабочих помещений плутониевого производства было обнаружено наличие высокоактивных грубодисперсных аэрозолей (> 10<sup>3</sup> мкБк/мкм<sup>3</sup>). Хотя они были в малом количестве, это либо нарушало закон логнормального распределения грубодисперсных частиц по активности, либо завышало основные параметры этого распределения.

С учётом приведенной выше информации вместо существовавшего в 1960–1970 гг. разделения аэрозолей на мелкодисперсную (< 0,3 мкм) и грубодисперсную (> 0,3 мкм) фракции авторами работы (Лызлов и др., 2001) была предложена следующая классификация размеров частиц по фракциям: мелкодисперсная (МДФ с АМАД < 1 мкм), среднедисперсная (СДФ с АМАД = 1–20 мкм) и крупнодисперсная (КДФ с АМАД > 20 мкм). Наиболее значимые результаты по изучению дисперсно-

сти промышленных аэрозолей в воздухе рабочих помещений получены на ПО «Маяк» (Василенко и др., 1985; Лызлов и др., 2001; Аладова, 2002; Аладова, Хохряков, 2002; Хохряков и др., 2007; Хохряков, Хохряков и др., 2008; Вострухов, Вострухов, 2011; Осовец и др., 2012).

В табл. 3 приведены результаты исследований параметров дисперсности аэрозолей плутония с применением оптикорадиографического метода на некоторых производствах ПО «Маяк». Видно, что величины АМАД мелкодисперсной фракции аэрозолей очень устойчивы, о чем свидетельствует узкий диапазон изменения величины β (1,4-1,5). Сравнительно узкий диапазон изменений АМАД мелкодисперсной фракции объясняется тем, что источником этих аэрозолей служит «чистый продукт» (изотоп плутония). При этом аэрозоли с величиной АМАД 0,14–0,22 мкм формировались при работе с <sup>238</sup>Pu, а с величиной АМАД 0,40 и 0,60 – при работе с <sup>239</sup>Pu и с гексафторидом урана соответственно. Значения АМАД аэрозолей СДФ и КДФ имеют больший диапазон изменений (от единиц до десятков микрон), и величины стандартного геометрического отклонения для этих фракций также изменяются в более широких пределах, чем для МДФ. Величины АМАД для аэрозолей СДФ и КДФ определяются особенностью производственных процессов и условиями воздушной среды в производственных помещениях.

#### Таблица 3

### Параметры дисперсности разных фракций аэрозолей плутония на некоторых производствах атомного предприятия (Лызлов и др., 2001)

Параметры	ΜДΦ	СДФ	КДФ
АМАД, мкм	0,14–0,60	2,6–20	> 20
β	1,4–1,5	1,5–3,4	2,6–4,0

В воздухе всех обследованных производств на данном предприятии суммарная α-активность воздуха формируется аэрозолями всех фракций дисперсности – МДФ, СДФ и КДФ, вклады которых изменяются во времени и в зависимости от производственных условий. В табл. 4 приведены вклады различных фракций аэрозолей плутония в суммарную α-активность воздуха рабочих помещений до начала 70-х годов. Максимальные вклады КДФ (до 58 %) приходились на производства по получению <sup>239</sup>Pu, на остальных производствах вклад КДФ не превышал 24 %. Для старого производства <sup>239</sup>Ри сумма вкладов СДФ и КДФ достигала 98 %, при этом на МДФ приходилось лишь 2 % от общей активности плутония. Это было обусловлено старыми технологиями, совмещением металлургического и химического отделений, а также операторской зоны с ремонтной. В этих условиях при проведении механических работ образуются аэрозоли КДФ и СДФ.

Из данных таблицы также видно, что при ремонтных работах на производствах по получению <sup>238</sup>Pu и гексафторида урана в воздухе рабочих помещений вклад МДФ в общую  $\alpha$ -активность аэрозолей снижается, а сумма вкладов СДФ и КДФ возрастает по сравнению с нормальной эксплуатацией производства. Такой характер изменения вкладов разных фракций аэрозолей может быть обусловлен тем, что на каждом производстве присутствуют различные по активности частицы плутония, образующиеся при разных процессах и операциях, инертная пыль, естественные  $\alpha$ -активные аэрозоли изотопов цепочек урана и тория, между которыми происходит взаимодействие. При этом частицы МДФ, имеющие наибольшую удельную активность и присутствующие повсеместно в воздухе при нормальной эксплуатации предприятия, осаждаются на инертные частицы либо на более крупные частицы с меньшей удельной активностью. В результате образуются аэрозоли, удельная активность которых снижается за счет «разбавления» этими более крупными носителями, образующимися при ремонте. Укрупнение аэрозолей МДФ при ремонтных работах приводит к увеличению скорости их осаждения или переходу в СДФ и таким образом уменьшает вклад МДФ в активность воздуха. Кроме того, при ремонтных работах существуют операции, приводящие к большему обогащению воздуха радиоактивными частицами МДФ, чем при нормальной эксплуатации. В таких случаях вклад МДФ может возрастать, а СДФ – снижаться.

Динамика изменения величин вкладов активности разных фракций дисперсности аэрозолей в суммарную активность воздуха в период 1971 по 1980 гг. на производстве плутониевого завода ПО «Маяк» приведена на рис. 1. Из данных рисунка следует, что до 1972 г. вклад СДФ превышал вклад МДФ как при нормальной эксплуатации, так и при ремонтных работах. После 1972 г. вклад МДФ и СДФ в активность воздуха при ремонтных работах был соизмерим (40-60 %), а после 1976 г. даже при ремонтных работах вклад МДФ превышал вклад СДФ. При нормальной эксплуатации в указанный период времени наблюдался рост вклада МДФ до 90 %. Вклад КДФ аэрозолей, начиная с 70-х годов, составлял < 2 %, что согласуется с данными работы (Аладова, Хохряков, 2002; Аладова, 2002). Следует подчеркнуть, что эту фракцию нужно определять на любом производстве <sup>239</sup>Pu, поскольку КДФ, как было показано ранее, может внести ошибки в определение параметров дисперсности аэрозолей (АМАД и β).

Таблица 4 воздуха рабочих помещений отечественных производств атомной промышленности до Вклады различных фракций промышленных аэрозолей в суммарную а-активность начала 70-х годов при разных условиях проведения работ (Лызлов и др., 2001)

-							
ĮΦ	ремонтные работы	58,0	54,6	22,4	20,4	24	18
Ń	нормаль- ная экс- плуатация	47,0	44,9	10,5	0,2	0	13,0
ΦĮ	ремонтные работы	39,6	33,7	38,1	39,3	30,0	34,0
C1	нормаль- ная экс- плуатация	51,2	39,2	37,0	3,8	4-47	20,0
ĮΦ	ремонтные работы	2,4	11,7	39,5	40,3	46,0	48,0
ťW	нормаль- ная экс- плуатация	1,8	15,9	52,5	96,0	39–96	67
Merro	orfoopa Inpo6	Металлургиче- ское и химиче- ское отлеления	Операторская, ремонтная зона	*	Монтажный зал	Участок фторирования	Участок кон- денсации
Caron Agained	продукта	<sup>239</sup> Р <sub>U</sub> (старое произ- волство)	<sup>239</sup> Ри (новое производ- ство)		<sup>238</sup> p,1	5	гексафторида урана ( <sup>239</sup> Ри – по- бочный продукт)



Рисунок 1. Динамика содержания различных фракций аэрозолей плутония (% от суммы фракций) на новом производстве плутониевого завода ПО «Маяк» при нормальной эксплуатации (А) и ремонтных работах (Б) (Лызлов и др., 2001)

Важную роль в формировании дисперсности промышленных аэрозолей (величин АМАД и  $\beta$ ) играет их удельная активность. Сведения о ней для разных производств отечественного предприятия ЯТЦ приводятся в табл. 5. Удельная активность МДФ аэрозолей плутония  $(n \cdot 10^4 - n \cdot 10^6 \text{ мкБк/мкм}^3)$  на несколько порядков величин выше, чем для средне- и крупнодисперсной фракций  $(0,35-19 \text{ мкБк/мкм}^3)$  и является величиной постоянной.

Таблица 5

### Среднегеометрические значения удельной активности промышленных аэрозолей и стандартные геометрические отклонения по активности для аэрозолей разных фракций дисперсности на отечественных предприятиях ЯТЦ (Лызлов и др., 2001)

Производ-	Удельная активность фракций				
ство по по-	ΜДΦ	C,	ДФ	КД	ĮΦ
лучению продукта	*мкБк/ мкм <sup>3</sup>	*мкБк/ мкм <sup>3</sup>	β	*мкБк/ мкм <sup>3</sup>	β
<sup>239</sup> Pu (старое и новое)	$2,1 \cdot 10^4$	4 - 10	4,3 – 5,9	1,0-2,8	4,3 - 5,9
<sup>238</sup> Pu	$5,6 \cdot 10^{6}$	1,6-8,3	3,6 - 14,3	7,3 – 11,5	3,6 - 14,3
Гексафто- рида урана ( <sup>239</sup> Ри – побочный продукт)	$2,2 \cdot 10^4$	2,0	5,4	0,18	1,7

Примечание. \*Среднегеометрическое значение удельной активности фракции

Удельная активность МДФ определяется получаемым продуктом (изотопом плутония) на каждом производстве, и поэтому она обеспечивает постоянство параметров дисперсности (АМАД и β) этой фракции. Большой разброс параметров дисперсности аэрозолей СДФ и КДФ, как это отмечено выше, зависит от производимых операций на рабочем месте и носителей – нерадиоактивной пыли и аэрозолей естественных α-нуклидов с широким диапазоном размеров частиц.

Усовершенствование технологий на предприятиях по производству плутония способствует увеличению вклада МДФ промышленных аэрозолей в активность воздуха и снижению вклада более крупных фракций. В частности, в работе (Аладова, Хохряков, 2002) на ПО «Маяк» при анализе воздушных фильтров вентиляционной системы в 1998-1999 гг. было получено, что в химическом и химико-металлургическом отделениях завода величина АМАД α-активных аэрозолей была равна 0,55 и 0,57 мкм при G < 1,28, что характерно для мелкодисперсной фракции аэрозолей (Лызлов и др., 2001). На литейно-металлургическом участке наблюдали частицы СДФ с величиной АМАД, близкой к МДФ (1,09 мкм). Эти данные свидетельствуют о том, что для всех трех отделений (химическое, завода химикометаллургическое и металлургический участок) в преобладающем количестве находится МДФ аэрозолей (до 87 %). Такой большой вклад мелкодисперсной фракции в активность аэрозолей в воздухе в 90-е годы авторы работы (Хохряков и др., 2007) объясняют усовершенствованием технологий и изменением изотопного состава аэрозолей на радиохимическом производстве ПО «Маяк» в результате изменения исходного продукта.

Однако монотонный рост вклада МДФ в общую активность плутония в воздухе с 1972 г. позволяет пред-

положить о наличии еще и другого механизма образования МДФ аэрозолей. По результатам теоретических и экспериментально подтвержденных исследований Флейшера с соавт. (Fleischer, 1975; Fleischer, Raabe, 1977, 1978) разработана модель растворения частиц PuO<sub>2</sub>, основанная на учете действия ядер отдачи (модель радиационного растворения). Согласно этой модели, в частице PuO<sub>2</sub> при распаде существенные структурные радиационные повреждения продуцируются не αчастицей, а тяжелым ядром отдачи <sup>235</sup>U. Причём, если αраспад происходит в поверхностном слое частицы плутония, то возникает определённая вероятность, что ядро отдачи будет выбито за пределы частицы вместе с некоторым количеством атомов Ри (агрегаты отдачи). В реэтого размер и масса исходной частицы зультате уменьшается. За счёт таких разрушений частица постепенно измельчается и, находясь в растворе, растворяется. Согласно модели Флейшера, в основе механизма появления МДФ при работе с плутонием и другими αрадионуклидами лежит образование ядер отдачи и агрегатов отдачи.

В работах (Осовец, Хохряков, 1983; Осовец и др., 2012) модель Флейшера была уточнена и значительно дополнена. При этом установлено, что константа растворения ядрами отдачи превалирует над константой химического растворения в 2 и 570 раз для  $^{239}$ Pu0<sub>2</sub> и  $^{238}$ Pu0<sub>2</sub> соответственно. При движении ядра отдачи в поверхностном слое частицы Pu0<sub>2</sub> в месте вылета агрегат отдачи образует локальное ее разрушение. При нахождении частицы в растворе вещество, находящееся в зоне таких разрушений, будет интенсивно растворяться, а из зоны радиационных повреждений будет переходить в раствор в среднем 300 атомов плутония на один *α*-распад. На примере микронной частицы  $^{239}$ Pu0<sub>2</sub> получе-

на оценка ее объемного разрушения ядрами отдачи, которое за 10 лет составит 80-90 %. Авторы делают вывод о том, что ведущим механизмом объемного разрушения частиц двуокиси плутония с последующим растворением будет механизм действия ядер отдачи. Фракция наночастиц, переходящих с поверхности частицы в раствор, содержит до 10<sup>4</sup> атомов плутония и распределяется по размерам по закону Парето. Агрегаты отдачи при одном а-распаде из поверхностного слоя частицы двуокиси плутония выбивают в воздушную среду примерно 10 атомов плутония. Авторы отмечают, что проблема формирования мелкодисперсной фракции и нанофракции из исходных частиц двуокиси плутония за счет действия ядер отдачи является довольно сложной, неоднозначной и поэтому требует проведения дальнейших детальных теоретических и практических исследований. Показана связь этого процесса с ростом МДФ производственных аэрозолей и высказано предположение о том, что процесс растворения ядрами отдачи целого ряда труднорастворимых трансурановых нуклидов, отложившихся в дыхательных путях работающего персонала, будет иметь ведущую роль в переходе радионуклидов из лёгких в кровь.

Действием механизма образования агрегатов отдачи объясняется появление аэрозолей МДФ плутония в технологических транспортных контейнерах, технологических камерах и бачках с отходами (Вострухов, Вострухов, 2011). В эксперименте с контейнером, в котором ранее хранился металлический Ри, т.е. был достаточно высокий уровень радиоактивного загрязнения, показано, что концентрация МДФ плутония в воздухе контейнера возрастала с увеличением продолжительности его нахождения в закрытом состоянии. За это время происходило накопление в воздухе контейнера аэрозолей плутония. При вскрытии крышки наблюдалось значительное уменьшение концентрации Ри на расстоянии от контейнера по ходу вентиляционного воздуха. Вскрытие контейнера при отключенной вентиляции не приводило к распространению аэрозолей в помещении. Авторы утверждают, что частицы мелкодисперсной фракции плутония в производственных помещениях имеют большую летучесть. Они представляют большую опасность для работающих с нуклидом, так как наночастицы плутония проникают через средства индивидуальной защиты, таких как лепесток «Лепесток-ШБ», и определяют накопление плутония в организме человека (Бондаренко и др., 2003).

В цитируемой выше работе (Вострухов, Вострухов, 2011) теоретически оцененная доля активности  $^{239}$ Pu, поступающая в воздух за счет дисперсии с загрязненной поверхности, не зависит от скорости потока воздуха, пока нет турбулентности. Рассчитано, что примерно за год практически весь  $^{239}$  Pu, находящийся на загрязненной поверхности и не закрытый защитной пленкой, перейдёт в воздух. Аналогичное «испарение»  $^{241}$ Am произойдёт за неделю,  $^{238}$ Pu – за день,  $^{210}$ Po – за несколько минут,  $^{235}$ U – за 30000 лет. Таким образом, в общем случае, скорость «испарения» обратно пропорциональна периоду полураспада конкретного трансуранового элемента. Приведенные данные позволяют заключить, что агрегаты отдачи являются одним их основных механизмов появления и роста с годами вклада аэрозолей МДФ плутония в воздухе производственных помещений на предприятиях атомной промышленности.

Несмотря на результаты исследований, доказавших повсеместное наличие в воздухе рабочих помещений радиоактивных аэрозолей МДФ, в том числе плутония (Лызлов и др., 2001; Аладова, Хохряков, 2002; Ала-

дова 2002; Dorrian, 1995), в работе (Плутоний ..., 2005) для воздуха предприятий отечественной атомной промышленности приведены экспериментально полученные величины АМАД аэрозолей плутония, образующихся при разных производственных процессах, только для СДФ. Значения АМАД не превышали величин, ранее рекомендованных МКРЗ, за исключением двух случаев – химической регенерации <sup>238</sup>Ри, дезактивации и профилактики боксов. На основании этих данных разработано нормативное обеспечение безопасных работ с открытыми источниками радиоактивного излучения (табл. 6). Из данных таблицы следует, что мелкодисперсные фракции аэрозолей нормируются только при обращении с чистым <sup>238</sup>Ри. Для всех остальных работ, в том числе со смесью <sup>238,239</sup>Ри, рекомендуется нормировать содержание в воздухе частиц СДФ, что соответствует рекомендациям МКРЗ. Последние, как отмечалось ранее, основаны на математической обработке результатов с наличием в воздухе аэрозолей преимущественно β- и γ-активных радионуклидов (Dorrian, Barley, 1995). С учетом приведенной выше информации о вкладе МДФ аэрозолей плутония в воздухе рабочих помещений предприятий атомной промышленности и роли механизма действия ядер отдачи в процессах образования наночастиц при работе с плутонием возникает необходимость пересмотра нормативов МКРЗ после изучения вклада МДФ в активность воздуха при проведении операций во всех рабочих помещениях. Это особенно необходимо в связи с внедрением современных технологий, при которых вклад аэрозолей СДФ и КДФ в загрязнение воздуха снижается, а МДФ – возрастает. К тому же все больше будут проводиться операции с отработанным ядерным топливом – источником агрегатов отдачи (Бондаренко и др., 2003).

## Таблица 6

Нормативное обеспечение безопасности ра	бот
с открытыми источниками (Плутоний, 2	2005)

Пренцилие	Технические процессы с	АМАД,	
предприятие	радионуклидами	МКМ	
	Замена перчаток в боксе, Ри	7,8	
	Дезактивация, Ри	1,7	
	Замена перчаток	17	
	внутри бокса	1,7	
	Разделка бокса	1210	
Пополоботко	кислородной горелкой	1,3–1,9	
	Литейные операции	4,5	
ядерного топлива	Механическая обработка,	3.5	
	Am, Pu	5,5	
	Контроль загруженности	> 10,0	
	Работа в лаборатории, Ри	5,6	
	Дезактивация	7,0	
	Профилактика	8.0	
	в лаборатории	0,9	
		18_23	
	HOBRA, I U	1,0-2,5	
Плутониевый за- вод	Пилотная установка, <sup>238</sup> Pu, <sup>239</sup> Pu	4,0–3,8	
	Химическая регенерация, <sup>238</sup> Ри	0,34	
	Система боксов, <sup>238</sup> Ри	0,16	

Особенностью производственных процессов на АЭС является образование преимущественно аэрозолей β- и γ-радионуклидов. Поскольку цель данной монографии заключается в выявлении роли МДФ аэрозолей в радиоактивном загрязнении природной среды, а также ввиду ограниченного количества данных о содержании плутония в этой фракции аэрозолей, мы посчитали целесообразным обсудить в ряде разделов имеющиеся в литературе данные о размерах содержащихся в воздухе производственных помещений и выбросах в атмосферу аэрозолей  $\beta$ - и  $\gamma$ -излучающих радионуклидов.

Как показано в работе (Yu, 1993), на АЭС Chin-Chan (Тайвань) в процессах испарения, конденсации, образования инертных газов и конверсии газ-частица генерируются преимущественно аэрозоли < 1 мкм, а операции размалывания, обдувания песочной струей, теплового дугового фрезерования сопровождаются образованием аэрозолей > 1 мкм. Исключение составляет <sup>137</sup>Cs, аэрозоли которого при тепловом дуговом фрезеровании имеют значения АМАД, различающиеся на порядки величин. Примерно 50 % из них составляет среднедисперсная фракция аэрозолей (АМАД = 3,2 мкм,  $\beta = 1,9$ ), которая образуется в результате деления <sup>137</sup>Cs. Другие 50 % аэрозолей образуются в результате коагуляции дочерних продуктов <sup>137</sup>Хе и относятся к мелкодисперсной фракции (АМАД = 0,29 и β = 2,2). По данным этих же авторов, в помещении АЭС воздушного эжектора паровой струи обнаружены высокие и устойчивые концентрации суммарной *β*-активности аэрозолей неизвестного состава. Из них 96 % частиц относилось к МДФ (АМАД = 0,44 мкм), остальные 4 % – к СДФ (АМАД = 6,2 мкм).

В помещении отстойника инертных газов (<sup>88</sup>Rb и  $^{138}$ Cs) и при проведении операции размола авторы изучили распределение аэрозолей по массе и активности и установили, что пик распределения аэрозольных частиц по массе соответствовал крупной моде (d = 4 мкм), а по активности – мелкой моде (d = 0,4 мкм). При этом 96 %

активности фильтра приходилось на частицы мелкой моды, остальные 4 % – на частицы крупной моды. Из результатов проведенных исследований следует, что источниками аэрозолей разных фракций являются производственные процессы в помещениях АЭС. При этом активность воздуха определяется активностью МДФ.

Наглядным примером влияния источника образования аэрозолей на АЭС являются данные работы (Бондаренко и др., 2003). На примере исследований на Чешской АЭС «Дуковане» и объекта «Укрытие» (ЧАЭС) авторами проведено сравнение величин АМАД аэрозолей радионуклидов <sup>90</sup>Sr, <sup>137</sup>Cs, плутония, америция и стандартных геометрических отклонений при идентичных методах измерений дисперсности аэрозольных частиц в воздухе помещений этих объектов (рис. 2). Видно, что параметры дисперсности аэрозолей, полученные на АЭС «Дуковане» (средние значения АМАД = 3,7 мкм,  $\beta$  = 2,9) близки к рекомендованным МКРЗ (АМАД = 5 мкм,  $\beta$  = 2,5). По данным исследований, вклад МДФ аэрозолей в общую активность воздуха не превышал 12 %. На объекте «Укрытие» для всей совокупности результатов измерений дисперсности аэрозолей характерно чрезвычайно высокое значение  $\beta = 5,8$  и низкое значение АМАД = 2 мкм. Авторы предположили, что существенное смещение параметров распределения частиц по размерам на этом объекте объясняется наличием двух независимых источников образования частиц с модами в субмикронном и микронном диапазонах. Им удалось выделить из всей совокупности данных по дисперсности аэрозолей две компоненты, характеризующиеся наличием двух логнормальных распределений (табл. 7).



Рисунок 2. Значения АМАД и β для аэрозолей в воздухе помещений АЭС «Дуковане» и объекта «Укрытие»

#### Таблица 7

#### Параметры дисперсности аэрозолей в воздухе объекта «Укрытие»

Показатели	Субмикронная	Микронная ком-
	компонента	понента
АМАД, мкм	0,17	2,9
β	1,72	2,5
Вклад, %	35	65

Микронная компонента (СДФ с АМАД = 2,9 мкм и  $\beta$  = 2,5) с вкладом 65 % двухмодального представления хорошо согласуется с регламентами МКРЗ (АМАД = 5 мкм,  $\beta$  = 2,5). Субмикронная компонента (МДФ) с вкладом 35 % имеет АМАД = 0,17 мкм и  $\beta$  = 1,72. Наличие субмикронной компоненты, скрытое при интерпретации данных измерений в виде одной моды, уменьшает

величину АМАД микронной моды с 2,9 до 2,0 мкм и увеличивает β с 2,5 до 5,8.

По результатам измерений дисперсного состава радиоактивных аэрозолей в помещениях объекта «Укрытие» с помощью пятиканального импактора показано, что в 60 % случаев наблюдалось многомодальное распределение аэрозолей в воздухе с наличием субмикронной компоненты (МДФ) (Бондаренко и др., 2003). В этой же работе обсуждаются возможные механизмы образования субмикронных аэрозолей. Один из них – самопроизвольное разрушение топливо содержащих масс с образованием тонкодисперсных частиц. Нижняя граница размеров этих частиц определяется на уровне 0,03 мкм при среднем геометрическом диаметре 0,08 мкм. Другим механизмом образования тонкодисперсных частиц является спонтанное пылеобразование с поверхности облученного топлива. Эти частицы не обнаруживаются с помощью оптического микроскопа. Анализ размеров аэрозолей электронно-микроскопическим методом не выявил наличие частиц крупнее 0,5 мкм. Распределение по геометрическому размеру этих частиц ограничено интервалом от 0,05 до 0,16 мкм (0,16 мкм соответствует размеру топливных частиц). Оба механизма скорее всего обязаны образованию ядер отдачи и агрегатов отдачи (Осовец и др., 2012). С учетом скорости спонтанного пылеобразования с поверхности облученного топлива в помещениях объекта «Укрытие» рассчитано, что за год несколько десятков килограмм облученного топлива разрушается до состояния высокодисперсной пыли. Все пылевые частицы обладают высокой удельной активностью. Вклад субмикронных аэрозолей в суммарную активность воздуха объекта «Укрытие» в отсутствие интенсивных работ составляет в среднем 30 %. По мнению (Бондаренко и др., 2003) субмикронная компонента трансурановых аэрозолей является критическим фактором формирования и критическим звеном внутреннего облучения персонала на атомном предприятии. При этом экспериментально доказано, что эффективность фильтрации субмикронных аэрозолей материалом ФПП в составе респиратора «Лепесток» оказывается ниже паспортных значений. Объяснением этого авторы считают повышенное содержание аэрозолей в воздухе объекта «Укрытие» и относительно высокую скорость воздушного потока через фильтрующий материал.

Доступная нам немногочисленная информация по дисперсности радиоактивных частиц в выбросах АЭС и ТЭС с эффективной системой защиты при штатном режиме работы приведена в табл. 8. Из таблицы видно, что от указанных предприятий в воздух попадают частицы размером от 0,6 до < 1 мкм, которые относятся к МДФ аэрозолей.

В случае аварийных выбросов (табл. 9) диапазон размеров аэрозольных частиц значительно больше, чем при нормальной работе предприятий. Так, в факеле Чернобыльского аварийного выброса с середины мая 1986 г., когда на ЧАЭС только начались измерения дисперсности аэрозолей, были обнаружены частицы размером от 0,3 до 200 мкм (Газиев и др., 1993). Образование этих частиц было обусловлено процессами высокотемпературного горения, испарения, конденсации, выделением газообразных продуктов (конденсационная составляющая), а также выделением в воздух при разрушении кладки реактора «горячих» частиц ядерного топлива (топливная компонента), относящихся к СДФ и КДФ с размерами частиц от 1 до 200 мкм (Лебедев и др., 1993). В этой же работе приведены данные о разном обогащении плутонием конденсационных компонентов выбросов АЭС, которые превосходили расчетные значения для топлива в 14 и 200 раз, и распространялись на расстоянии до 500 км, так как имели высокую летучесть.

# Таблица 8

Размеры частиц в выбросах АЭС и ТЭС	2
в штатном режиме работы	

Источники		Размер	
образования	Радионуклиды	частиц,	Литература
аэрозолей		МКМ	1 51
Несколько ТЭС на угле,	_	Две мо- ды –	Ионизирующие излучения, 1982
частицы в облаке дыма		0,04 и 0,25	
Белоярская АЭС, 1976– 1978 гг.	β- и γ- радионуклиды	< 1	Погодин и др., 1981
Белоярская АЭС, І, 2 блоки, 1979– 1981 гг.	β- и γ- радионуклиды, Ри	АМАД 0,5	Погодин и др., 1981; Водовозо- ва и др., 1984
Атомные станции	Ри и другие	< 1	Robertson et al., 1981
Атомная станция	<sup>239</sup> Pu	0,2–0,8	Двухимённый и др., 1987
ЧАЭС до аварии	<sup>131</sup> I, <sup>51</sup> Xe <sup>137</sup> Cs, <sup>134</sup> Cs, <sup>54</sup> Mn, <sup>58</sup> Co,	0,24– 0,30 0,50 –	Огородников, Скитович, 1983
	<sup>o5</sup> Zn	0,64	

Таблица 9 кой АЭС

$\smile$	
1.1	
2	
3	
- H	
Ě.	
<b>U</b>	
٩	
E	
3	
3	
5	
<u> </u>	
•	
Ξ	
<u> </u>	
, e	
~	
<u> </u>	
H	
_	
D	
3	
n i	
=	
5	
<b>d</b> )	
Ξ.	
5	
<b>U</b>	
0	
Ĕ.	
4)	
$\rightarrow$	
- í=r	
-	
2	
<u> </u>	
m	
<u>m</u>	
2	
Ċ.	
Ē.	
5	
0	
3	
0	
õ.	
_	
<u> </u>	
5	
-	
<b>H</b>	
Ŧ	
<b></b>	
<u> </u>	
2	
60	
Ξ	
e	
E	
_	
2	
5	
2	
0	
Ξ	
5	
ž	
<u> </u>	
Ð	
5	
Ĩ	
<u> </u>	

lara	Страна, место измерений	Условия измерений	Радионуклиды	АМАД, МКМ	Литература
1986	Украина, ЧАЭС	Факел выброса	Сумма радионукли-	2–200	Газиев и др.,
			дов	4-12	1993
				0, 3-1, 5	
впреля	Швеция, близ	Облако от аварий-	$^{131}$ J, $^{137}$ Cs, $^{103}$ Ru	< 2 (64–99 %) *	Огородников,
бг.	Стокгольма	ного выброса		> 2 (1-36 %)	1998
986 r.	Украина, ЧАЭС	На высоте 300 м над	Тугоплавкие изото-	0,7	Огородников и
		развалом 4-го энер- гоблока	пы <sup>95</sup> Zr, <sup>95</sup> Nb, <sup>140</sup> La, <sup>141,144</sup> Се		др., 1998; Бу- дыка, Огород-
			Летучие изотопы <sup>137</sup> Сs, <sup>106</sup> Ru, <sup>131</sup> J	0,3–0,4	ников, 2001
86 г.	Украина, ЧАЭС	Над развалом 4-го	Сумма радионукли-	<1	Будыка, Ого-
		энергоблока	дов		родников, 2001
86 г.	Япония, Tsuku-	Приземный воздух	$^{137}$ Cs, $^{103}$ Ru	0,3–0,8	Hirose et al.,
	ba	от выпадений	$^{90}$ Sr, <sup>239</sup> Pu	1, 3-4, 8	1990
		из атмосферы			
				т аплица у	(лилитанис)
---------------------	----------------------------	----------------------------------	---	----------------	-----------------------
май-июнь 1986 г.	Украина, ЧАЭС	Над развалом 4-го энергоблока	Тугоплавкие изото- пы + 50 % <sup>137</sup> Сs	>1	Газиев и др., 1993
			Летучие изотопы + 50 % <sup>137</sup> Сs	0,4–0,5	
май-сентябрь	Страны Цен-	Выпадения от ава-	<b>f</b> <sup>161</sup>	0,3-0,5	Огородников,
1986 r.	тральной Евро-	рийного выброса	Тугоплавкие и лету-	0,6-0,8	1998
	пы, Япония, США, Англия		чие изотопы		
май-сентябрь	Украина, ЧАЭС	Над развалом 4-го	<sup>137</sup> Cs	1,4 (50 %)	Огородников и
1986, 1987,		энергоблока		0,4–0,5 (50 %)	др., 1998
1988 IT.			Тугоплавкие	0,7	
			N30T0IIbI	1,4-4,0	
			$^{137}Cs$	3-7	
1996–2000 IT.	Украина, ЧАЭС	Выбросы объекта	$^{137}Cs$	2,9	Budyka, Ogo-
		«Укрытие» (из ще-	$^{241}Am$	1,4	rodnikov, 2005
		лей наружного по-	$^{90}\mathrm{Sr}$	4,0	
		крытия)	$^{239}$ Pu	7,0	
1990-е годы	Украина, ЧАЭС	Выбросы объекта	$^{241}$ Am	<1 (48 %)	Гаргер и др.,
		«Укрытие» (из ще-		> 1 (52 %)	1990
		лей наружного по-			
		крытия)			
	÷				

Таблица 9 (окончание)

\* МДФ не измерялась

В разных странах прослежена дисперсность аэрозольных частиц в воздухе от аварийного блока ЧАЭС с апреля 1986 г. по 90-е годы. В апреле 1986 г. в Швеции в облаке аварийного происхождения преобладали радиоактивные аэрозоли с АМАД < 2 мкм (МДФ не измерялась). С мая по июнь 1986 г. в пробах воздуха стран Центральной Европы, Англии, Японии и США были определены аэрозоли МДФ размером 0,3–0,8 мкм, содержащие <sup>131</sup>J, тугоплавкие и летучие изотопы. С середины мая по сентябрь 1988 г. различными организациями над развалом 4-го энергоблока и в факеле выброса были определены аэрозоли с АМАД 0,3–0,7 мкм (МДФ), 1,4–12 мкм (СДФ) и выше до 200 мкм (КДФ).

С появлением объекта «Укрытие» (1996–2000 гг.) из щелей наружного покрытия выделялись радиоактивные аэрозоли <sup>90</sup>Sr, <sup>137</sup>Cs, <sup>141</sup>Am, <sup>239</sup>Pu с размером частиц от 1,4 до 7 мкм, относящихся к СДФ. При этом АМАД аэрозолей, содержащих <sup>239</sup>Pu, был равен 7 мкм. <sup>141</sup>Am имел широкий спектр размеров частиц, относящихся к МДФ и СДФ (Budyka et al., 2005). Авторы работы (Огородников и др., 1998) объясняют рост количества частиц СДФ в воздухе увеличением вклада вторичных источников радиоактивного загрязнения вблизи 4-го энергоблока (загрязненная почва, поверхности строений, загрязненные частицами топливного происхождения).

В работе (Johnson, 1980) рассматриваются последствия аварии на плутониевом производстве Рокки-Флетс в 1957 году. Пожар и взрыв выдули 620 высокоактивных фильтров в главную выхлопную систему установки. Фильтры должны были предотвращать выбросы Ри и U в окружающую среду и не менялись 4 года. Кроме окиси, нитратов и урана с фильтрами сгорело 12–20 кг плутония, выделявшего субмикронные частицы, которые, по мнению авторов, являлись главным фактором опасности для жителей г. Денвер.

Таким образом, при эксплуатации АЭС и ТЭС в штатном режиме работы в окружающую среду поступает преимущественно мелкодисперсная фракция аэрозолей, содержащая  $\beta$ - и  $\gamma$ -радионуклиды. В аварийных ситуациях в воздух поступает более широкий спектр радионуклидов всех фракций, включая плутоний. При этом аэрозоли СДФ и КДФ приводят к местному радиоактивному загрязнению прилегающих территорий, тогда как аэрозоли МДФ переносятся на большие расстояния и способствуют радиоактивному загрязнению в глобальном масштабе.

# 1.2. Дисперсность аэрозолей при ядерных взрывах в атмосфере и испытании ядерного оружия

Ядерные взрывы и испытания ядерного оружия являются основными источниками поступления радионуклидов в окружающую среду. Часть продуктов взрывов вовлекается в стратосферу и затем медленно выпадает на поверхность Земли. Ядерные взрывы в военных и мирных целях образуют кратковременные и долговременные источники локального и глобального загрязнения. Наиболее полный анализ масштабов загрязнения атмосферы трансурановыми элементами, в том числе плутонием, и поведения этих элементов в окружающей среде приведен в монографии (Трансурановые ..., 1985). Установлено, что за период 1945–1976 гг. от испытаний ядерного оружия с продуктами деления в атмосферу поступило около 13 ПБк <sup>239,240</sup>Ри и в меньшем количестве других трансурановых элементов.

В результате ядерных взрывов в атмосфере образуются радиоактивные частицы размерами от нанометров до нескольких микрон. Высокоактивные субмикронные ча-

стицы сухих выпадений (горячие частицы) обнаруживаются в приземном воздухе в течение нескольких месяцев после прекращения ядерных взрывов. Частицы разной активности путём инерционного захвата относительно быстро вымываются дождём и снегом (Раевский, 1963).

В табл. 10 приведены размеры образующихся при разных типах ядерных взрывов частиц, содержащих смесь радионуклидов, в том числе плутония. При башенных, надводных и подводных ядерных взрывах образуются частицы от 1 до 10<sup>3</sup> мкм.

Таблица 10

Источник обра- зования частиц	Радионуклид	Размеры частиц, мкм	Литература
Горение и не- ядерные взрывы ядерных матери- алов в атмосфере	<sup>238, 239</sup> Pu	< 0,1	Krey, 1969; Aarkrog, 1971; Yoder, 1974
Взрыв атомной бомбы в атмо- сфере	<sup>238</sup> Pu	< 0,1	Storebo, 1974
Ядерные взрывы в атмосфере в 1961–1962 гг.	Сумма β- радионуклидов	1,0–5,5 * (горячие частицы)	Хербст, 1963; Раевский и др., 1963
Башенные, наземные и надводные ядер- ные взрывы	Смесь <sup>137</sup> Cs, <sup>241</sup> Am, <sup>239</sup> Pu в почвен- ных частицах, поднятых в воздух после взрыва	$1 \cdot 10^{3} - 3 \cdot 10^{3} * $	Гросс, 1963

Размеры частиц, образующихся при ядерных взрывах и при испытании ядерного оружия

Таблица 10 (окончание)

Ядерные взрывы 1958 г., через 12 дней после взры- ва, облако на вы- соте 13 км	Сумма <i>β</i> - радионукли- дов, возраст 120 дней	< 1 (30 %) 1,0–5,0 (70 %)	Сисефский, 1963
Глобальные вы- падения на Зем- лю продуктов ядерных взрывов в 1950–1980 гг.	Pu	0,1–3,0	Якоби, 1963; Bennett, 1976; Hartman et al., 1989
То же	Смесь радио- нуклидов	< 0,5	Огородников и др., 1972
Ядерные взрывы в атмосфере	Смесь радио- нуклидов	0,4–0,8	Кароль, 1972
Ракетное топливо	_	< 0,1	Штриплинг, 2003

\* Исследовано 12 «горячих частиц» с активностью >10<sup>10</sup> Ки/частицу (Хербст, 1963)

\*\* Почвенные частицы в эпицентре взрыва. На расстоянии 20 км в частицах обнаружены  $^{137}$ Cs (1–3)·10<sup>3</sup> мкм и  $^{241}$ Am (1–3)·10<sup>2</sup> мкм

При падении баллистических ракет и ядерных взрывах в атмосфере, а также при горении ядерных материалов образуются аэрозоли радионуклидов, в том числе <sup>238,239</sup>Pu, с диаметром частиц < 0,1 мкм, которые относятся к наночастицам и обладают высокой летучестью. Из таблицы видно, что  $\alpha$ -частицы, образующиеся при ядерных взрывах в атмосфере, как правило, меньше частиц  $\beta$ -активных продуктов деления. Высокоэнергетическое выделение  $\alpha$ -частиц и энергетическая отдача приводят в движение отдельные атомы и группы атомов с поверхности частиц. Эффектом этого является самопроизвольное деление, саморассеивание сверхмалых частиц Ри и других α-активных эмиттеров, неизмеримо увеличивающее количество частиц плутония диаметром < 0,1 мкм (Johnson, 1983). Эти нанометровые частицы быстро (в течение нескольких месяцев) коагулируют, а также осаждаются на частицах сульфата аммония (0,1-1,0 мкм) стратосферного происхождения и становятся субмикронными (Steward, 1974). Время осаждения таких частиц с высоты 2 км изменяется от нескольких дней для частиц диаметром 2–10<sup>3</sup> мкм до нескольких лет для частиц 0,02-1 мкм (Стокс, цит. по Райфершийд, 1963). За годы испытаний ядерного оружия они создали многолетний источник поступления нуклида в приземный слой воздуха глобального масштаба. Исследователями многих стран получены значения диаметров частиц плутония для глобальных выпадений < 0,5 мкм (Якоби, 1963; Трансурановые ..., 1985; Bennett, 1976; Guidance ..., 1978;). Наличие в глобальных выпадениях частиц плутония размером > 0,1 мкм авторы работ объясняют возможным повышением роли вторичного (почвенного) источника загрязнения воздуха плутонием.

В ряде исследований указано на наличие «горячих частиц» в воздухе в местах проведения ядерных взрывов (Раевский и др., 1963; Гросс, 1963). Поскольку количество «горячих частиц» было несоизмеримо меньше по сравнению с частицами более слабой активности, они не внесли существенного вклада в общую активность аэрозолей воздуха (Альтфатер, 1963).

В работах (Родзинский, Штокман, цит. по Раевскому и др., 1963; Сисевский, 1963; Красилов и др., 1971; Лызлов и др., 2001; Теверовский и др., 2003) была исследована активность аэрозолей в зависимости от их размеров. Для относительно свежих продуктов ядерных взрывов (возраст до 4-х месяцев) при недолгом их присутствии в приземном воздухе установлена прямая кубическая зависимость активности частиц от их диаметра, которой подчиняется 60 % исследованных частиц. Аналогичная зависимость обнаружена для продуктов деления на территории Восточно-Уральского радиоактивного следа через два года после его образования. Для частиц грунта, поднимающихся в воздух при наземных ядерных взрывах, наблюдается обратная зависимость активности аэрозолей от их диаметра. В работе (Лызлов и др., 2001) для производственных условий методом авторадиографии показана прямая кубическая зависимость активности аэрозолей плутония от диаметра частиц, времени экспозиции на авторадиограмме и самопоглощения излучения в аэрозольных частицах, а также физико-химических особенностей частиц.

В работе (Hartman et al., 1989) приведены обобщенные данные о времени нахождения плутония в стратосфере при проведении ядерных испытаний. Для периода 1962-1975 гг. оно составляет 1,2 года. В период с 1972 по 1982 гг. (измерения проводились в обоих случаях в Японии) время нахождения нуклида в стратосфере увеличилось за счет инжектирования наночастиц в стратосферу в результате проведения ядерных испытаний в Китае. В 1983-1985 гг. в Германии время нахождения плутония в стратосфере было меньше, чем в период 1962-1975 гг. При этом максимальный вклад (55 %) в активность плутония в воздухе вносили аэрозоли диаметром 1-3 мкм. Аналогичные результаты по укрупнению аэрозолей плутония субмикронных размеров до микронных в стратосферных выпадениях получены в работе (Robertson et al., 1981). Авторы цитируемых выше работ объясняют этот феномен повышением значения почвенного источника поступления нуклида в воздух на фоне снижения его концентрации в стратосферных выпадениях. Вероятно, в укрупнении частиц определенную роль играли нерадиоактивные аэрозоли промышленного происхождения, так как исследования проводили в городах с развитой промышленностью – Дармштадте (Германия) и Токио (Япония).

# 1.3. Носители аэрозольных частиц в атмосферном воздухе

В ионизированном воздухе, который характерен для атмосферы и источников выброса радиоактивных веществ, происходят сложные процессы взаимодействия аэрозолей плутония с другими частицами, присутствующими в воздухе. При этом образуются новые соединения, которые могут отличаться от исходных аэрозолей по диаметрам частиц, их свойствам и миграционным путям (Химия ..., 1982; Назаров, Газиев, 1986).

Различия радиоактивных частиц и инертной пыли заключаются в том, что массовые концентрации инертных частиц гораздо выше, чем радиоактивных (Трансурановые..., 1985; Ruser et al., 2005). Вследствие низких массовых концентраций (мкг/м<sup>3</sup>) искусственные радионуклиды, попадающие в окружающую среду независимо от источника образования, могут включаться в соединения неизотопных носителей или оседать на их частицы, в результате чего плотность и размеры этих частицы, в результате чего плотность и размеры этих частиц могут сильно отличаться от таковых исходного аэрозоля. Дальнейшая судьба радиоактивных частиц (осаждение, вымывание, поведение в почве, перенос ветром) будут определяться веществом носителя, его физическими и химическими свойствами (Павлоцкая, 1984; Щербакова и др., 2007; Hirose et al., 1990).

К веществам, обладающим повышенной адсорбционной способностью по отношению к плутонию, относятся оксиды железа, урана, графит и аморфные вещества. Показано, что углеродистые соединения являются наиболее сильными сорбентами плутония, обусловливая его миграцию в воде, воздухе, почве (Химия ..., 1982; Павлоцкая, Горяченкова, 1987; Степанец, 1994; Самсонов, 1997; Hartmann et al., 1989). Углеродистые вещества наиболее распространены в атмосфере в виде сложных газообразных многоцепочных соединений – углеводородов. Последние вдвое превышают нагрузку по массе остальных составляющих органического углерода (Андрюков, 1984), которые в сумме дают основную нагрузку по массе среди всех загрязнителей воздуха (Аэрозоли Сибири, 2006; Gundel, Sextro, 2005). Даже в фоновых районах углеводороды покрывают поверхностный слой аэрозолей воздуха (Иванов и др., 2005). Их можно считать основным носителем МДФ и СДФ аэрозолей плутония, покрывающим частицы любой природы.

Выхлопы дизельных моторов выделяют частицы от ядерной моды (< 0,1 мкм) до субмикронных. Наибольшая часть массы частиц обнаружена в моде 0,03–0,5 мкм, которая состоит из карбонатов и других адсорбирующих материалов. Крупная мода включает частицы диамером > 1 мкм и составляет 5–20 % массы. Установлено наличие корреляционной связи между числом машин с высокой скоростью движения и счетной концентрацией состоящих из углеводородов наночастиц, выделяемых от сгорания топлива дизельных и газолиновых двигателей. В то же время корреляция между числом наночастиц и нагрузкой по массе не обнаружена (Kittelson et al., 2005).

В приземном слое воздуха находятся аэрозоли почвенного происхождения, содержащие Са и Ті. Эти элементы являются сильными фотокатализаторами разложения углеродистых соединений до состояния углеводородов (Аэрозоли Сибири, 2006). Микронные и субмикронные частицы Са и Ті, «окутанные» углеводородами, могут быть носителями находящихся в воздухе субмикронных аэрозолей плутония. В работе (Hartmann et al., 1989) на примере промышленного города Дармштадт, где источником плутония являются глобальные выпадения, накопившиеся в почве, установлена корреляционная связь концентраций плутония, с одной стороны, и элементов группы Са и Ті, с другой, по вертикальному профилю воздуха и в зависимости от времени года. Этот факт послужил основанием для утверждения, что плутоний в воздухе до высоты 1 м почвенного происхождения. Вероятно, такой механизм укрупнения субмикронных аэрозолей плутония работает в любом промышленном городе и в районах атомных предприятий при наличии техногенных источников инертной пыли.

Укрупнение аэрозолей плутония в приземном воздухе также может быть следствием движения автотранспорта, особенно по грунтовым дорогам, механического вмешательства в почву, выброса аэрозолей техногенного и биологического происхождения, имеющих преимущественно микронные размеры (Щербакова, Мелентьева, 1998; Helkkenen, 2005), а также ветрового переноса аэрозолей с других, более загряненных территорий, в том числе крупных гигроскопических частиц над загрязненными водоемами (Теверовский, Дмитриев, 1988; Щербакова, Мелентьева, 1998). Примером источника таких морских аэрозолей служит береговая полоса моря, куда сливались радиоактивные отходы на промплощадке Уиндскейла (Knight et al., 1980). Укрупнение аэрозолей плутония в воздухе за счет частиц почвенного происхождения отмечено в послеаварийный период для районов расположения некоторых предприятиях ЯТЦ – Роки-Флэтс, SRS и ЧАЭС (Старцев, Попова, 1994; Volchok et al., 1972; Johnson et al., 1976; Knight, 1980; Adriano et al., 1981). Вероятно, такой механизм укрупнения субмикронных аэрозолей плутония работает в любом промышленном городе и в районах атомных предприятий при наличии техногенных источников инертной пыли.

В ряде работ в качестве возможных носителей плутония рассматриваются продукты деления <sup>222</sup>Rn и <sup>220</sup>Tn – основных фоновых загрязнителей воздушной среды естественными  $\alpha$ -активными нуклидами. Радон находится в воздухе в виде отдельных атомов и не связан с аэрозолями, однако 60–85 % дочерних продуктов деления <sup>222</sup>Rn и <sup>220</sup>Th связаны с аэрозолями, имеющими диаметр частиц  $10^{-2} - 10^{-3}$  мкм. К таким аэрозолям относятся пар и природный газ в помещениях, «неприкрепленная фракция» радона и торона от любого источника образования (Хербст, 1963; Harley, 2005; Ruser et al., 2005).

Реально измеренные параметры дисперсности ча-стиц <sup>222</sup>Rn и <sup>220</sup>Tn с их дочерними продуктами деления приведены в табл. 11. Согласно данным таблицы, для фоновых почв, где нет источников повышенного поступления дочерних продуктов распада и аномалий их выделения, диаметры частиц дочерних продуктов деления радона (дпр) и торона (дпт) составляют от сотых до тысячных долей мкм. В помещениях из относительно чистых стройматериалов диаметры частиц не превышали 0,1 мкм. Техногенное вмешательство в большинстве случаев способствовало укрупнению частиц. Для ЧАЭС после аварии характерны более высокие значения диаметров частиц. Для помещений объекта «Укрытие» наблюдается большой разброс размеров частиц (0,08-0,8 мкм), что можно объяснить наличием в помещениях высоких у-полей и высоких концентраций дочерних продуктов распада радона в воздухе и в воде (Хербст, 1969; Тяжелые ..., 1990; Арефина и др., 2004; Archer, 1980).

Таблица 11

Параметры дисперсности частиц дочерних продуктов деления радона и торона

Š	Источник об-		Радио-	Параметит *	Dame deviced	Питемети
П.П.	разования	иссто измерения	нуклид	тарамстры	I asmep, mrm	JINICPATYPA
1	Фоновые	Ι	тпд + дпд	$d_{cpe_{\mathrm{H}}}$	0,001-0,01	Хербст, 1969
	эманации			I		Ruser et al., 2005
						Harley, 2005
2	Почва	У поверхности	duir	>>	0,1	Огородников, 1993
		IIO4BbI				Якоби, 1963
3	*	Район Ленин-	<sup>212</sup> Рb (дпт)		0,16-0,18	Огородников, Ски-
		градской АЭС				тович, 1983
4	*	Урбанизирован-	dutr	gb	0,15	Harley, 2005
		ный штат Нью		1		
		Джерси				
5	Жилые по-	Зальцбург	>>	ЦАМАД	0,08	Steinhausler, Gof-
	мещения					mann, 1983
9	*	Урбанизирован-	dutr	gb	0,15-0,20	Harley, 2005
		ный штат Нью				
		Джерси				

					Таблин	(а 11 (продолжение)
7	Подвалы ломов	*	*	>>	0,25	Harley, 2005
$\infty$	Помещение	<b>HA</b> JC	*	ДАМАД	0,08–0,8	Budyka, Ogorodni-
	объекта					kov, 2005
	«Укрытие»,					
	1988–1991 rr.					
6	Вентиляци-	>>	тпд + дпд	>>	0,14-0,42	Огородников и др.,
	онная систе-					2005
	ма в помеще-					
	нии объекта					
	«Укрытие»,					
	2005 г.					
10	Почва пром-	ЧАЭС у поверх-	$^{212,214}$ Pb	$d_{ae}$	0, 6-0, 9	Огородников, Ски-
	площадки	ности почвы				тович, Будыка, 1998
11	Шахта без	Ι	dшт	ДАМАД	0,3	Steinhausler, Gof-
	дыма дизеля					mann, 1983
12	Шахта, дым	Ι	>>	ЦАМАД	0,17	>>
	дизеля					

Таблица 11 (окончание)

дизелси иобилей	- Граница	« <sup>212</sup> Ph ( الللا	d <sub>ae</sub> «	< 0,3 < 7 5 (87–94 %)	Samed, 2005 Iensen et al 1984
_ )5	установки	(	;	2,5-15 (6-13 %)	
ки	Место	*	*	< 2,5 (64 %)	Jensen et al., 1984
	проживания			2,5-15 (36 %)	

ний в виде среднегеометрического, эквивалентного аэродинамического и активного медиан-\*  $d_{cpe_{\rm A}}-cpe_{\rm A}$ ние диаметры частиц;  $d_{\rm g}$  ,  $d_{\rm ac}$  , АМАД – параметры логнормальных распределеного аэродинамического диаметров соответственно В вентиляционной системе этого объекта смесь воздуха из различных помещений укрупнила диаметры частиц и разброс их уменьшился в 3 раза. Максимальные значения диаметров получены для частиц дочерних продуктов торона (от 2,5 до 15 мкм) на отходах ториевой установки, где мелкодисперсная фракция не измерялась. Повидимому, они химически связаны с аэрозолями редкоземельных элементов, которые экстрагировались на установке вместе с <sup>228</sup>Th, родоначальником <sup>212</sup>Pb. Микронные аэрозоли этих металлов либо сам торий и сорбировали <sup>212</sup>Pb.

Приведенная информация позволяет заключить, что дочерние продукты распада радона и торона могут служить носителями аэрозолей плутония, о чем свидетельствует укрупнение их в зонах повышенных концентраций плутония в воздухе, связанных с работой предприятий ЯТЦ и других техногенных воздействиях.

В аварийных зонах атомных предприятий носителями аэрозолей плутония может быть  $^{232}$ U (T<sub>1/2</sub> = 72 года), который накопился в реакторах за время облучения топлива и имеет очень высокую удельную активность. Ввиду разнообразия типов реакторов и режимов их работы содержание регенерированного <sup>232</sup>U может изменяться в широких пределах (Матвеев, Центер, 1985). Исследованием с применением спектрометрического и авторадиографического методов воздушных фильтров в 5 км зоне ЧАЭС в 1987-2000 гг. зарегистрировано наличие частиц размером > 5 мкм из неактивного материала с вкраплением облученного диоксида урана со средним аэродинамическим диаметром  $d_{ae} = 0.9$  мкм (Будыка, Огородников, 2001). Диоксид урана – активный адсорбент плутония (Самсонов и др., 1997) – как носитель может формировать частицы плутония размером 5-10 мкм, которые обнаружены в почве и воздухе 30 км зоны ЧАЭС даже в

равновесных условиях (Старцев, Попова, 1994; Будыка, Огородников, 2001; Berezhnoi et al., 1991).

Долгоживущие *а*-активные естественные радионуклиды техногенного происхождения, в частности <sup>234</sup> Th, могут влиять на размеры аэрозолей плутония. Торий накапливается в отработанных твэлах. Из-за близости значений энергий распада при дозиметрическом контроле тория его можно принять за плутоний. По результатам работы (Аладова, 1998) содержание тория в воздухе г. Озерска превышало концентрацию Ри до 4 раз.

Носителями частиц, близких по размеру к нанометровым, также могут быть аэрозоли <sup>7</sup>Ве космического происхождения. Их АМАД близок к 0,6–0,9 мкм, в том числе и на территории ЧАЭС, где в воздухе присутствуют аэрозоли бериллия и плутония (Огородников и др., 1998; Lange, 1994; Papastefanou, Joannidou, 1995).

Таким образом, присутствие в воздухе других неконтролируемых элементов и радионуклидов может изменять дисперсность и реальные концентрации аэрозолей плутония и быть причиной их некорректных оценок.

## 2. ПОЧВА КАК ВТОРИЧНЫЙ ИСТОЧНИК ЗАГРЯЗНЕНИЯ ВОЗДУШНОЙ СРЕДЫ ПЛУТОНИЕМ

Почва является основным депо нахождения плутония в природной среде, в ней сосредоточено более 90 % радионуклида (Трансурановые ..., 1985). Почва служит источником вторичного загрязнения воздуха и источником поступления радионуклида в растения.

В ряде работ показано, что основными механизмами миграции плутония в почве являются: капиллярный подток влаги к ее поверхности в результате испарения, диффузия свободных и адсорбированных ионов, конвективный перенос нуклида коллоидными частицами в слоях почвы под воздействием градиента температур (Павлоцкая, Горяченкова, 1987; Сельскохозяйственная ..., 1991; Калмыков, 2003).

Размер почвенных частиц – важный фактор миграции плутония в природной среде, определяющий его подвижность в почвенно-растительном покрове, способность подниматься в воздух, перемещаться с воздушными потоками из мест первичного загрязнения и, в конечном итоге, он определяет ингаляционное и пероральное поступление плутония в организм человека (Щербакова и др., 2007; Healy, 1977).

Считается, что формирование концентрации радионуклида в воздухе над загрязненной территорией происходит в основном за счет ветрового подъема в воздух частиц почвы, загрязненных плутонием. С помощью ветра в воздух поднимаются частицы от 50 до 500 мкм, а в вертикальный поток увлекаются преимущественно частицы < 50 мкм. Именно эти частицы будут создавать концентрацию плутония над загрязненными территориями (Трансурановые...,1985).

Имеющаяся в литературе информация о размерах частиц почвы, загрязненных плутонием, немногочисленна и разнородна. Показано, что в почвах «ближних зон», загрязненных аварийными выбросами ЧАЭС (Украина, Белоруссия) и выбросами при взрывах ядерных боеголовок на Невадском испытательном полигоне (США), размеры почвенных частиц, содержащих этот радионуклид, варьировали от < 0,1 мкм до тысяч мкм (Трансурановые ..., 1985; Старцев, Попова, 1994; Berezhnoi et al., 1991). Отмечено возрастание удельной активности плутония (Роки-Флэтс, США) и вклада в активность почвы β- и γ-частиц (Полесье, Белоруссия) во фракциях почв ≤ 5 мкм с увеличением расстояния до источников загрязнения (Савкин, 1993; Johnson et al., 1976). Установлено, что в районе завода по переработке ядерного топлива (Карлсруэ, Австрия) удельная активность загрязненных плутонием частиц во фракциях 50-125 мкм была в 5 раз выше, чем частиц диаметром < 2 мкм, т.е. мелкие частицы были обеднены плутонием по сравнению с крупными (Yamamoto et al., 1982). В 30-км зоне ЧАЭС удельная активность плутония во фракциях частиц < 30 мкм была выше по сравнению с частицами > 30 мкм (Старцев, Попова, 1994). Обеднение и обогащение до 4-х порядков величин удельной активности самых мелких частиц относительно самых крупных наблюдалось в 15 км зоне ЧАЭС для нескольких аактивных нуклидов (Berezhnoi et al., 1991). В целом, литературные данные свидетельствуют о том, что плутоний, поступающий в окружающую среду от разных источников загрязнения, фиксируется на различных по размеру почвенных частицах, при этом частицы малых размеров (глинистые и коллоидные) в расчете на их массу могут быть как обогащены, так и обеднены плутонием по отношению к крупным и иметь разные по величине удельные активности радионуклида. Роль частиц разных размеров в миграции плутония в природных экосистемах остается до конца не изученной.

## 2.1. Характеристика загрязнения плутонием почвенных частиц разного размера в 15-км зоне ЧАЭС и оценка опасности загрязненной территории

Наиболее полная информация по содержанию изотопов плутония в почве и в разных по размерам фракциях почвенных частиц представлена в работе В.И. Бережного с сотр. для аварийной зоны ЧАЭС (Berezhnoi et al., 1991). Авторами определено содержание <sup>238,239,240</sup>Ри во фракциях частиц почвы, отобранной на расстояниях 1,5, 3, 6, 8 и 15 км в северо-западном направлении от г. Чернобыль в июле 1987 г. Пробы почвы отбирали с площади 1 м<sup>2</sup> на глубину 0–1,0 см. Аликвоты проб разделяли на фракции 0,005-0,05, 0,05-2, 2-5, 5-10, 10-50, 50-160 мкм и три фракции от 160 до 2000 мкм. Для каждой фракции определяли массу, активность и удельную активность, процентный вклад по массе и активности в массу и активность пробы. Приведенный в работе цифровой материал по содержанию <sup>239,240</sup>Ри в почве подвергнут авторами настоящей книги дополнительному анализу для получения информации, которая не прозвучала в статье. В частности, на основе этих данных был проведен анализ влияния распределения плутония в почвенных частицах разных размеров на формирование плотности загрязнения и удельной активности почвы, а также концентрации нуклида в приземном слое воздуха над загрязненной территорией вокруг ЧАЭС. Полученные результаты анализа использованы для определения критериев опасности проживания населения на загрязненной территории (Чеботина и др., 2016). В процессе анализа данных была исключена из рассмотрения точка наблюдений, расположенная в 3 км от Чернобыля, поскольку в этом районе было произведено химическое и механическое вмешательство с целью дезактивации почвы, что могло повлиять на результаты исследований.

## 2.1.1. Относительное содержание плутония в разных по размеру почвенных частицах на разном расстоянии от Чернобыля

Данные табл. 12 позволяют заключить, что основное количество Pu (58–94 % от содержания в почве) сосредоточено в крупных фракциях почвенных частиц (10–50 и 50–160 мкм). Суммарное содержание Pu в этих фракциях самое высокое на расстоянии 1,5 км от Чернобыля по сравнению с более удаленными территориями. В каждой из мелких фракций (0,05–10 мкм) на всех расстояниях от Чернобыля содержание нуклида не превышало 6 %, за исключением территории на расстоянии 8 км, где во фракции частиц 5–10 мкм зарегистрировано ~ 30 % от всего содержания его в пробе почвы. В пределах 15-км зоны в большинстве случаев отмечено возрастание относительного содержания Pu в мелких фракциях частиц почвы по мере их укрупнения: 0,05–2,00 < 2–5 < 5–10 мкм.

Для всех фракций почвенных частиц четкой зависимости изменения относительного содержания плутония в каждой из них с увеличением расстояния от Чернобыля не обнаружено. Однако если сравнить изменение относительных вкладов разных фракций в общую активность плутония в пробе почвы попарно на расстояниях 1,5 и 15 км, 6 и 8 км, то можно заметить тенденцию к увеличению значений этих вкладов с увеличением расстояния для фракций 0,05–2,00 < 2–5 < 5–10 мкм и к снижению для фракций 50–160 мкм.

Относительное содержание плутония в различных фракциях почвенных частиц (в процентах от суммарного содержания во фракциях 0,05–2000 мкм) на разном расстоянии от Чернобыля

Размеры		Расстоя	ние, км	
частиц, мкм	1,5	6	8	15
0,05–2,00	0,6	0,3	3,8	2,5
2–5	1,2	1,4	2,0	4,7
5-10	4,1	3,9	29,7	5,8
10–50	53,1	50,5	46,6	56,5
50-160	40,7	23,7	11,4	11,4
Сумма	99,7	79,8	93,5	80,0

Расчет показал, что масса частиц < 10 мкм составляет всего лишь 0,4–2,8 %, а 10–160 мкм – 32–49 % от массы частиц почвы (Чеботина, Пономарева, Щербакова, 2012). Поскольку основная часть активности Ри на всех расстояниях от Чернобыля (от 58 до 93 %) сосредоточена во фракциях частиц от 10 до 160 мкм, составляющих значительную часть массы почвы, можно заключить, что именно эти частицы определяют величину плотности загрязнения почвы, которая рассчитывается как количество радионуклида на единицу площади (Бк/м<sup>2</sup>).

## 2.1.2. Удельная активность плутония во фракциях почвенных частиц на разном расстоянии от Чернобыля

Результаты анализа показателей удельной активности плутония в разных фракциях частиц почвы от 0,05 до 160 мкм на разном расстоянии от Чернобыля приведены в табл. 13.

По данным работы (Berezhnoi et al., 1991), удельная активность исследуемого радионуклида в разных по размеру почвенных частицах различается на расстояниях 1,5 и 15 км, с одной стороны, и 6 и 8 км – с другой. В частности, на расстоянии 1,5 км наиболее высокая удельная активность плутония отмечена для частиц диаметром от 2 до 50 мкм (104-326 Бк/г), а на расстоянии 15 км – для частиц диаметром от 0,05 до 50 мкм (105-319 Бк/г). На расстоянии 15 км от Чернобыля, по сравнению с расстоянием 1,5 км, удельная активность плутония во фракциях мелких частиц 0,05-10 мкм имеет более высокие значения, а наиболее крупные частицы (50-160 мкм) имеют наиболее низкую удельную активность. Для промежуточных расстояний (6 и 8 км) исследуемый показатель для всех фракций почвы до двух порядков величин меньше по сравнению с расстояниями 1,5 и 15 км, хотя и на этих расстояниях максимальная удельная активность радионуклида отмечается преимущественно для частиц размером от 2 до 50 мкм.

### Таблица 13

## Удельная активность плутония в почвенных частицах разных фракций на разном расстоянии от Чернобыля (Бк/г)

Размер		Рассто	яние, км	
частиц, мкм	1,5	6	8	15
0,05–2,00	21	0,7	1,3	105
2–5	104	3,0	0,8	132
5-10	150	3,9	5,5	235
10–50	326	6,0	1,5	319
50-160	18	0,5	0,1	1,5

Приведенные результаты позволяют предположить, что на разных группах расстояний действовали различные источники чернобыльских выбросов плутония, как это показано в работе (Лебедев и др., 1992). Такими источниками являются само топливо и компоненты долговременного выброса, образовавшиеся при изменении температурных и химических условий горения реактора. Последние из них обогащаются плутонием относительно топлива от 2 до 200 раз. Авторами установлено, что при различном соотношении топлива и компонентов долговременного выброса содержание кислотнорастворимого плутония возрастало от 4 до 88 %. В цитируемой работе также показано, что все эти компоненты выброса присутствуют в почве вплоть до 60-км зоны, но в разных соотношениях. Одной из причин (и возможно главной) соответствия увеличения удельной активности плутония и возрастания процента кислотнорастворимой формы нуклида может быть уменьшение размеров частиц при увеличении степени загрязнения компонентами долговременного выброса относительно топлива. Подтверждением тому служат данные об увеличении удельной активности частиц плутония с уменьшением их диаметра у промышленных аэрозолей (Лызлов и др., 2001), а также обнаруженная обратная связь размеров и растворимости частиц плутония (Аладова, Хохряков, 2002). Вероятно также, что увеличение числа сверхмалых частиц при высоких температурах горения содержимого аварийного блока происходило как при ядерных взрывах, за счет высокоэнергетического выделения α-частиц плутония, сопровождающегося самопроизвольным делением и саморассеиванием приведенных в движение отдельных атомов и групп атомов с поверхности частиц (Johnson, 1983).

Согласно фактическим данным (Чеботина и др., 2012; Berezhnoi et al., 1991), удельная активность плутония в пробах почвы на разных расстояниях от Чернобыля варьировала от 0,3 до 13 Бк/г (1,5 км - 13 Бк/г; 6 км -0,7 Бк/г; 8 км – 0,3 Бк/г; 15 км – 4,5 Бк/г), а во фракциях почвенных частиц разных размеров – от 0,1 до 326 Бк/г (табл. 13). Эти результаты подтверждают тот факт, что разные фракции почвенных частиц по удельной активности могут быть как обеднены, так и обогащены плутонием по отношению к почве. В случае ингаляционного поступления плутония в организм человека наиболее опасны частицы < 10 мкм (Пределы..., 1982; Fisenne, 2005; Hopke, 2005), которые поднимаются в воздух в результате процессов ресуспензии. Поэтому почвенные частицы такого размера условно назовем «вдыхаемыми» частицами почвы. При определении опасности загрязненных плутонием территорий с использованием параметра удельная активность почвы частицы с более высокой удельной активностью (> 10 мкм) не учитываются.

«Вдыхаемые» фракции частиц плутония на разных расстояниях от Чернобыля вносят от 6 до 13 % от общего вклада почвенных частиц в активность пробы (исключение составляет расстояние 8 км, где доля этих фракций составляет 35 % от общей активности). Как было показано выше, вклад «вдыхаемых» фракций частиц по массе и активности в общую массу и активность почвенных частиц диаметром 0,05–2000 мкм в аварийной зоне ЧАЭС значительно ниже по сравнению с более крупными частицами. При этом никакого соответствия в изменении величин вкладов частиц по массе и активности в зависимости от расстояния нет. Так, вклад частиц < 50 мкм в общую массу пробы составляет от 1,5 до 21 %, а количество плутония в этих частицах не зависимо от величины массы – от 55 до 82 % от общей активности всех фракций почвенных частиц.

Однако важно отметить, что для пары расстояний 1,5 и 15 км за счет изменения удельной активности плутония во фракциях почвенных частиц вклад в суммарную активность радионуклида в почве частиц размером 50-160 мкм, формирующих плотность загрязнения почвы, снижается (~ от 41 до 11 %), а вклад «вдыхаемых» фракций частиц 0,05-10 мкм увеличивается (от 6 до 13 %). Это обстоятельство для указанных расстояний определяет обратную зависимость между значениями удельной активности «вдыхаемых» фракций почвенных частиц, с одной стороны, и значениями удельной активности и плотности загрязнения почвы, с другой. Таким образом, наблюдается обогащение плутонием фракций 0,05-10 мкм по отношению к почве в целом. Данный факт необходимо учитывать при расчете концентраций плутония в воздухе.

## 2.1.3. Исследование коэффициентов обогащения плутонием частиц «вдыхаемых» фракций относительно почвы

Для оценки относительного распределения плутония в почвенных фракциях частиц разного размера относительно его содержания в почве предлагается использовать коэффициент обогащения (*KO*), который для фракций почвенных частиц определяется по формуле:

$$KO = C_i / C_n, [1]$$

где *КО* – коэффициент обогащения плутонием каждой из «вдыхаемых» фракций почвенных частиц; *C<sub>i</sub>* – удельная активность плутония в отдельно взятой

фракции почвенных частиц;  $C_n$  – удельная активность плутония в слое почвы 0–5 см

В табл. 14 приведены значения коэффициентов обогащения плутонием почвенных частиц разных размеров на расстояниях 1,5 ( $KO^{1,5}$ ) и 15 ( $KO^{15}$ ) км от Чернобыля.

#### Таблица 14

## Коэффициенты обогащения плутонием «вдыхаемых» фракций почвенных частиц на разном расстоянии от Чернобыля

Размер	Расстоян	ие, км	$UO^{15} / UO^{1,5}$
частиц, мкм	1,5	15	KU /KU
0,05–2,00	1,6	23	14,3
2–5	7,9	29	3,7
5-10	11,5	52	4,7

Для каждого из расстояний от Чернобыля величины коэффициентов обогащения увеличиваются по мере увеличения диаметра частиц от 0,05 до 10 мкм. На расстоянии 15 км коэффициент обогащения для всех фракций частиц, загрязненных плутонием, выше, чем на расстоянии 1,5 км. Наблюдаемый рост величин коэффициентов обогащения «вдыхаемых» фракций почвенных частиц с увеличением расстояния и уменьшением степени загрязнения почвы плутонием позволяет предположить о существовании обратной зависимости указанных выше параметров. Такой результат теоретических исследований имеет основополагающее значение для корректной оценки опасности загрязненных плутонием территорий. Он позволяет предположить, что с удалением от источника загрязнения соотношение коэффициентов обогащения на расстояниях > 15 км от Чернобыля для наиболее мелких частиц будет возрастать. При этом в пределах 30 км зоны ЧАЭС появляется вероятность большего вклада в загрязнение воздуха субмикронных аэрозолей по сравнению с микронными.

Таким образом, по результатам анализа особенностей распределения плутония по фракциям почвенных частиц разных размеров следует вывод о том, что частицы размером 10–160 мкм преимущественно определяют плотность загрязнения почвы, а частицы  $\leq 10$  мкм, удельная активность которых значительно превышает таковую в почве, могут влиять на формирование величины концентрации плутония в воздухе над загрязненными территориями. На них следует обратить особое внимание, поскольку мелкие частицы по сравнению с относительно более крупными частицами подвержены конвективному подъему и характеризуются большим временем пребывания в воздухе из-за малых скоростей осаждения, а потому – и ветровому переносу на большие расстояния с охватом гораздо более обширных территорий (Куценогий и др., 1995; Koutsenogii, Jaenicke, 1994; Koutsenogii, 1997; Gundel, Sextro, 2005).

## 2.1.4. Оценка опасности загрязненной плутонием территории

Как указано выше, опасность загрязненной территории для человека в значительной степени определяется концентрацией и размером аэрозолей, поступающих в воздух в процессе ресуспензии. В настоящее время известны следующие параметры оценки радиационной опасности территорий по фактору внутреннего облучения человека плутонием: *a*) плотность загрязнения (Бк/м<sup>2</sup>) и удельная активность (Бк/г или Бк/кг) почвы, не учитывающие активность различных фракций почвенных частиц;

 $\delta$ ) почвенный индекс, учитывающий частицы почвы размером 0,5–125 мкм и отношение долей активности фракций плутония к их массе, а также долю отложения частиц этих размеров в пульмонарном отделе легких. Считается, что вся активность этих фракций поднимается в воздух в результате ветрового подъема (Трансурановые..., 1985; Савкин, 1993; White, Dunawaj, 1976).

в) коэффициент Джонсона по работе (Johnson et al., 1976). Авторы предлагают оценку опасности загрязненной плутонием территории проводить по величине произведения удельной активности радионуклида в частицах почвы < 5 мкм на их долю по массе ( $f^m$ ) от всей массы пробы, которую принимали за единицу.

В вышеперечисленных параметрах оценки не учитывается связь удельной активности плутония в указанных фракциях почвы с суммарной активностью радионуклида в почве.

Использование в расчетах параметров б и в не позволяет корректно оценить концентрацию плутония в воздухе (Старцев, Попова, 1994; Чеботина, и др., 2016), поэтому они применяются крайне редко, особенно в отечественной литературе. В связи с этим в данной работе они не рассматриваются.

С учетом недостатков этих методов мы предлагаем вместо величины доли по массе  $(f^m)$  в методе Джонсона использовать долю по активности  $(f^A)$ . При наличии нескольких вдыхаемых фракций следует учитывать каждую из них. Полученную в результате расчетов величину назовем почвенным коэффициентом  $(N_{\Pi})$ , который

для всех фракций вдыхаемых частиц (от 0,05 до 10 мкм) можно вычислить по формуле:

 $N_{\Pi} = \sum N_i = \sum (C_i \times f_i^A), [2]$ 

где  $N_{\Pi}$  – почвенный коэффициент для суммы вдыхаемых фракций, Бк/г;

*N<sub>i</sub>* – почвенный коэффициент для каждой вдыхаемой фракции, Бк/г;

 $C_i$  – удельная активность каждой из вдыхаемых фракций, Бк/г;

 $f_i^{A}$  – доля по активности частиц плутония каждой из вдыхаемых фракций от полной активности почвы, принятой за единицу.

Более опасной следует считать территорию, где показатель  $N_{\Pi}$  имеет наиболее высокое значение.

Таблица 15

## Почвенные коэффициенты для вдыхаемых фракций частиц плутония (*n*·10<sup>-3</sup> Бк/г) на разных расстояниях от Чернобыля и процентный вклад (\*) вдыхаемых фракций в общее значение *N*<sub>П</sub>

Диаметр			Pa	сстоя	ние, к	М		
частиц,	1,	5	6		8	3	15	
МКМ	$N_{\Pi}$	% *	$N_{\Pi}$	%*	$N_{\Pi}$	%*	$N_{\Pi}$	%*
0,05–2	116	1	2	1	48	3	2670	12
2–5	1260	17	41	21	16	1	6190	28
5–10	6140	82	152	78	1620	96	13510	60
Σ (0,05–10)	7516	100	195	100	1684	100	22370	100

По формуле [2] были рассчитаны почвенные коэффициенты для трех вдыхаемых фракций почвы на разном расстоянии от Чернобыля (табл. 15). Видно, что величины  $N_{\Pi}$  имеют более высокие значения на расстоянии 15 км, что указывает на большую опасность этой территории. При этом фракция частиц диаметром 5-10 мкм на всех расстояниях вносит наибольший вклад в общее значение почвенного коэффициента (от 60 до 96 %), что подтверждает необходимость учета активности плутония вдыхаемых фракций до 10 мкм включительно.

Более точную оценку опасности территории по плутонию можно сделать лишь по фактически измеренным концентрациям радионуклида в воздухе. Поскольку в работе (Berezhnoi et al., 1991) такие данные отсутствуют, адекватность оценки опасности загрязненной территории с использованием критериев плотности загрязнения почвы, удельной активности почвы и почвенного коэффициента была проверена на независимом материале (Старцев, Попова, 1994), в котором представлены результаты исследований в отселенных пунктах Борщовка и Крюки (Белоруссия). В цитируемой работе приведены плотности загрязнения почвы, удельная активность <sup>239,240</sup>Ри в почвенных частицах диаметром от < 1 до 50 мкм, доли частиц по массе  $(f_i^M)$  и активности  $(f_i^A)$  от суммарной массы и активности пробы, а также фактически измеренные концентрации плутония в воздухе ( $C_{e}^{\phi}$ ) и пыли (НМ). К сожалению, в указанной выше работе все необходимые данные приведены только для двух фракций (< 1 и 1-5 мкм).

Значения  $C_1^T$  и  $C_2^T$  определяли по формулам:

$$C_{I_{-}}^{T} = C \cdot HM[3]$$

 $C_2^T = N_{\Pi} \cdot HM = \sum (C_i \cdot f_i^A) \cdot HM$  [4], где  $C_l^T$  – концентрация плутония в воздухе, рассчитанная с использованием параметра удельная активность почвы;  $C_2^T$  – концентрация плутония в воздухе, рассчитанная с использованием почвенного коэффициента; С – удельная активность почвы; С<sub>i</sub> – удельная активность фракций почвы.

## Таблица 16

	Плот-	Удель-		Фактиноски	Расч	етная
	ность за-	ная	Поч-	Фактически измеренная	кон	цен-
Пушит	грязне-	актив-	венный	концентра-	тра	ция
пупкт	ния поч-	ность	коэф-	концентра-	плут	ония
наолю-	вы по	плуто-	фици-	ция плуто-	B BO3	духе,
дения	плуто-	ния	ент,	ния в возпухе	мкЕ	бк/м <sup>3</sup>
	нию,	в почве,	Бк/г	$C^{\phi}$	$C^T$	$C^T$
	$Бк/м^2$	Бк/г		$C_{6}^{-}$ , MKDK/M	$C_I$	$C_2$
Бор-	11200	0.15	2.61	77	2 1	54.0
щовка	11800	0,15	2,01	//	5,1	54,9
Крюки	13690	0,20	1,10	23	1,9	10,3

Показатели загрязнения плутонием почвы и воздуха в двух пунктах наблюдений зоны отселения ЧАЭС

Из табл. 16 видно, что хотя плотность загрязнения плутонием почвы в указанных пунктах наблюдений примерно одинакова, а удельная активность радионуклида в почве п. Крюки больше, чем в п. Борщовка, фактически измеренные концентрации плутония в воздухе п. Борщовка выше, чем в п. Крюки, что указывает на большую опасность вдыхания плутония в п. Борщовка. На большую опасность последнего пункта наблюдений указывает также и почвенный коэффициент, численное значение которого для этого пункта выше, чем для п. Крюки. В случае использования для вычисления концентрации нуклида в воздухе параметра удельной активности плутония в почве (формула [3]) теоретическое значение  $C_{I}^{T}$  в воздухе в обоих пунктах наблюдений получается заниженным по сравнению с фактически измеренным  $C_{6}^{\phi}$ : для п. Борщовка оно ниже в 25 раз, а для п. Крюки – в 12 раз. При использовании для расчетов почвенного коэффициента (формула [4]) значение  $C_2^T$  меньше фактически измеренного для п. Борщовка всего в 1,4 раза, а для п. Крюки – в 2,2 раза. Таким образом, предложенная модификация метода определения концентрации плутония в приземном слое воздуха с использованием почвенного коэффициента для вдыхаемых фракций почвенных частиц позволяет более адекватно оценить концентрацию плутония в воздухе и относительную опасность загрязненной им территории.

Поскольку конечным этапом оценки опасности плутония для человека от вдыхания радионуклида являются дозы облучения, были рассчитаны их величины для жителей п. Крюки при ингаляционном поступлении в организм частиц плутония с АМАД 0,1 и 1–5 мкм (табл. 17).

## Таблица 17

## Потенциально возможные дозы облучения критических органов для жителей п. Крюки

АМАД частиц, мкм	С <sup>Т</sup> <sub>в,</sub> мкБк/м <sup>3</sup>	Р <sup>л</sup> <sub>70</sub> , мЗв/год	Р <sup>к</sup> <sub>70</sub> , мЗв/год	Р <sup>л</sup> 70/ПД <sup>л</sup>	Р <sup>к</sup> 70/ПД <sup>к</sup>
0,1	4,6	0,012	0,266	0,08	0,89
1–5	5,9	0,002	0,010	0,01	0,03

Примечание.  $C_{6}^{r}$  – теоретические значения концентрации плутония в воздухе, создаваемые частицами 0,1 и 1–5 мкм соответственно;  $P_{70}^{n}$  и  $P_{70}^{k}$  – соответственно мощности годовых доз облучения легких и кости человека от хронического 70-летнего вдыхания частиц плутония 0,1 и 1–5 мкм соответственно; ПД<sup>*n*</sup> и ПД<sup>*k*</sup> – предел дозы, или мощность поглощенной дозы облучения от хронического 70-летнего вдыхания плутония при допустимой концентрации радионуклида в воздухе для населения категории БК<sub>Б</sub> на легкие (15 Зв/год) и кость (30 Зв/год) (НРБ-76/87). Из таблицы следует, что при близких теоретических значениях концентраций плутония в двух исследуемых фракциях частиц в воздухе п. Крюки мощность дозы при хроническом облучении легких частицами 0,1 мкм примерно в 6 раз больше, чем частицами 1–5 мкм. В то же время соответствующие значения дозовой нагрузки на кость в первом случае примерно в 20 раз выше, чем во втором.

В процентном отношении к пределам доз, установленным нормативными документами для хронического поступления радионуклида при их допустимой концентрации в воздухе для категории населения БК<sub>Б</sub>, рассчитанные мощности годовых доз облучения от частиц 0,1 мкм в 8 и 30 раз соответственно для легких и кости больше по сравнению с частицами 1-5 мкм. Из таблицы также видно, что по величине процентных отношений  $P_{70}^{n}/\Pi Д^{n}$  и  $P_{70}^{\kappa}/\Pi Д^{\kappa}$  значения мощностей доз облучения кости на порядок величин больше, чем при облучении легких. Это позволяет сделать вывод о том, что критическим органом при облучении накопленным в организме плутонием является кость, а не легкие. Последнее согласуется с выводом работы (Milham et al., 1975), в которой доказано, что при сельскохозяйственных работах на загрязненной территории (Саванна Ривер, США) с ресуспензированным плутонием в воздухе наибольшая доза облучения от поступавших за 70 лет в организм тракториста частиц плутония размером от 0,01 до 10 мкм была на кость по сравнению с лёгкими и печенью. На основании этого авторами сделан вывод о том, что при хроническом поступлении плутония в организм человека критическим органом является кость. По нашему мнению, наиболее показательным критерием опасности облучения от хронического поступления плутония является процент от предела дозы на кость.

## 2.2. Прогноз концентраций плутония в воздухе над загрязненной территорией по удельной активности радионуклида в почве и с помощью коэффициентов ресуспензии

Важной проблемой при оценке радиоэкологической обстановки на территориях, загрязненных плутонием, является получение корректной информации о концентрации радионуклида в приземном слое воздуха. Определение концентраций плутония в воздухе весьма трудоемко, дорогостояще и требует сложной аппаратуры как для отбора проб воздуха, так и для измерения содержания в них радионуклида.

Концентрация плутония в воздухе над загрязненной территорией в большинстве случаев определяется содержанием радионуклида в воздушной пыли, которое формируется за счет частиц почвы, поднимающейся в воздух под действием ветра (Трансурановые ..., 1985). Считается, что ведущим фактором подъема почвенных является скорость ветра (> 6 м/сек), при этом концентрацию радионуклида в воздухе определяют частицы < 5 - 125 мкм. Другим фактором, формирующим концентрацию плутония над загрязненной территорией, являются процессы ресуспензии (Щербакова, 2000; Чеботина и др., 2007). В условиях равновесия вклад ветрового подъема в загрязнение радионуклидом воздуха над локальной территорией не превышает 1 %. Ресуспензия (конвективный подъем почвенных частиц за счет теплообмена между почвой и воздухом) происходит даже при отсутствии ветра, при этом частицы, содержащие плутоний, поднимаются и удерживаются в воздухе долгое время. Показано, что в 30-км зоне ЧАЭС максимальные уровни концентраций радионуклидов в воздухе наблюдались в штиль, особенно ночью (Романов и др., 1993).

Авторы работы объясняют это наличием в воздушной среде взвешенных субмикронных частиц – от 0,1 до 1 мкм. Вклад ресуспензии в формирование концентраций Ри в воздушной пыли достигает 99 % от общего вклада почвенных частиц в загрязнение воздуха (Щербакова, 1996). При этом, как показано выше, удельная активность плутония в субмикронных частицах почвы выше, чем в почвенном слое 0–5 см.

В сообщении (Щербакова и др., 2004 б) проведен анализ наиболее распространенных в научной литературе методов расчета концентраций плутония в атмосферном воздухе над загрязненной территорией. Использование на практике этих методов приводит к получению заниженных значений расчетных концентраций плутония до 120 раз по сравнению с фактически измеренными. Одной из причин является отсутствие равенства в величинах активности плутония в воздушной пыли и почве. Это объясняется тем, что при ресуспензии поднимаются в воздух почвенные частицы мелких фракций, которые обогащены или обеднены плутонием по сравнению с почвой.

В работе (Sehmel, 1983) при обобщении данных по фактическим величинам удельной активности плутония в почве и воздушной пыли районов Хендфорда, Роки-Флэтс и о-ва Бикини, где проводились ядерные взрывы, получено уравнение связи удельной активности плутония в почве и воздушной пыли. Однако с помощью этого уравнения не удалось получить расчетное значение концентрации плутония в воздухе, аналогичное фактическому. По данным Л.М. Щербаковой с соавт. (Щербакова и др., 2004 б), причиной этого расхождения явилось применение при расчетах рекомендованного НКДАР значения нагрузки по массе  $HM = 100 \text{ мкг/m}^3$  и неучет глубины отбора проб Использование почвы.

HM = 50 мкг/м<sup>3</sup> и перерасчет удельной активности плутония в почве на слой 0–5 см позволило уточнить предложенный метод расчета.

Выявление связи между реальными (фактическими) значениями удельной активности почвы и воздушной пыли проведено с использованием литературных данных, в которых приведены фактические концентрации плутония в воздухе и почве различных регионов мира (табл. 18). В качестве источников загрязнения служили глобальные выпадения из атмосферы, испытательные ядерные и неядерные взрывы на полигонах; выбросы атомных предприятий в штатном режиме работы и аварийных ситуациях с диспергированием ядерного материала, захоронения радиоактивных отходов. Загрязненные территории располагались в различных климатических зонах и имели различные почвы. В таблице приведены исходные фактические данные по плотности загрязнения почвы, удельной активности почвы и воздушной пыли из использованной научной литературы. В тех случаях, когда в литературе вместо фактических величин удельной активности радионуклида в воздушной пыли ( $C_{en}^{\phi}$ ) приводились фактические концентрации его в воздухе (С<sup>ф</sup><sub>в</sub>), проводили соответствующий пересчет по формуле  $C_{en}^{\phi} = C_{e}^{\phi} / HM$ .
Таблица 18

## Фактические данные и результаты прогноза концентраций плутония в воздухе над загрязненными территориями

	$C^{\phi}_{e}/C^{e}_{e}$	0,6	1,6	0,7
ские данные	Концентрация в воздухе, $C^{T}_{s}$ мкБк/ $M^{3}$	1,23	1,83	2,17
Теоретич	Удельная активность воздушной пыли, $C^{T}_{em}$	24,5	36,6	43,4
Hble	Концентра- ция в возду- с <sup>6</sup> , мкБк/м <sup>3</sup>	0,70	3,00	1,49
Фактические дан	Удельная актив- ность воз- душной пыли, С <sup>ф</sup> Бк/кг	14	09	33,4
	Удельная актив- ность почвы $(0-5 \text{ cm}), C_{n \ 0-5}^{\phi}, E_{KKr}^{\phi}$	0,10	0,40	080
	Плотность загрязне- ния почвы 6, Бк/м <sup>2</sup>	7,4	30,3	60,0
	Литературный источник	Jya, Mirtry, 1970 Plutoni- um,1979	Bennett, 1976	Corey et al., 1982
	Место исследо- вания	Г. Денвер	Г. Нью- Йорк	Р-н Са- ванна- Ривер

сение)	1,3	1,2	1,2	1,7	0,9	0,9	0,6	0,5	1,2	4,1	2,9	0,8	1,5
жпододи) 81	2,22	2,53	2,54	2,56	2,57	2,58	2,58	3,00	3,38	3,67	5,11	5,46	6,96
Таблица	44,8	50,6	50,8	51,2	51,3	51,5	51,7	60,0	67,5	73,4	102	109	139
	2,80	2,98	2,95	4,41	2,22	2,22	1,48	1,50	4,12	15,2	14,8	4,4	10,3
	56,0	59,6	59,0	88,2	44,4	44,4	29,6	30,0	82,4	304	296	88	204
	0,79	1,22	1,23	1,27	1,28	1,30	1,31	2,44	3,67	4,44	13,8	17,3	40,0
	59,2	91,4	92,9	95,1	96,2	97,3	98,1	183	275	333	1038	1300	3000
	Jyas, Mirtry, 1970 Plutoni- 1100	Bennett, 1976	*	*	×	×	*	Corey et al., 1982	*	Дубасов и др., 1993	¥	Guidance, 1978 Johnson, 1980	Газиев и др., 1989 Лебедев и др., 1992
	Г. Денвер 							Р-н Са- ванна-	Ривер	Р-н Семи- палатин-	ского по- лигона	Р-н Роки- Флэтс	Г. Черно- быль

Таблица 18 (окончание)

3,1	0,7	0,5	1,6	1,3	1,3	0,8	0,6	
7,21	9,79	5,00	6,00	6,9	19,1	19,1	37,2	
144	196	250	301	343	382	382	744	
22,0	6,7	2,4	9,8	8,9	25,6	14,5	21,3	
440	134	120	490	445	512	290	426	
45,9	133,3	293,3	573,3	206	1333	1333	13330	
3440	10000	22000	43000	68000	100000	100000	100000	
Дубасов и др., 1993	Iranżo et al., 1987	Shinn et al., 1997	*	Shinn et al., 1997	Iranżo et al., 1987	*	*	
Р-н Семи- палатин- ского по-	лигона Г. Пала- морес	Бикини <sup>*</sup>		Эвениток	Г. Пала-	mopec		Ц

Примечания:

1. Г. Денвер, р-ны Саванна-Ривер, Роки-Флетс расположены в США; г. Паламорес – в Испании; Бикини и Эвениток – атоллы в океане, где США проводили испытания ядерного оружия. Для районов, обозначенных звездочкой (\*), концентрация плутония в воздухе рассчитана с применением HM = 20 мкг/m<sup>2</sup>, измеренной на атоллах.

3. При расчетах использовали среднегодовые значения концентраций

При переходе от плотности загрязнения почвы ( $\sigma$ ) к удельной активности плутония в слое 0–5 см ( $C_n \ 0.5$ ) предполагали, что плотность почвы равна 1,5 г/см<sup>3</sup>, а вес слоя почвы мощностью 5 см с площади 1 м<sup>2</sup> равен 75 кг. Тогда  $C_n \ 0.5 = \sigma / 75$  Бк/кг. Если мощность исследуемого слоя почвы превышала 5 см в *n* раз, то удельную активность радионуклида для слоя 0–5 см получали умножением удельной активности таких образцов на *n*. При этом предполагали, что концентрация плутония убывает пропорционально глубине почвы. Для всех дальнейших расчетов значение нагрузки по массе принято равным 50 мкг/м<sup>3</sup>.

Использование в расчетах нагрузки по массе 50 мкг/м<sup>3</sup> требует дополнительного пояснения. Согласно литературным данным, эта величина может варьировать для разных территорий от 35 до 100 мкг/м<sup>3</sup>. В частности, НКДАР рекомендует использовать значе-ние 100 мкг/м<sup>3</sup> (International ..., 1994). По мнению других авторов (Старцев, Попова, 1994), среднегодовые значения НМ за пределами крупных городов в равновесных условиях составляют 15 мкг/м<sup>3</sup>. По данным (Shinn et al., 1989) НМ определяется равной 38 мкг/м<sup>3</sup>. В специально проведенных в 1986 г. исследованиях ежемесячных значений НМ и фактической концентрации плутония в воздухе в районе ВУРСа (Метлино) для жилой территории в равновесных условиях получена величина НМ равная 50 ±6 мкг/м<sup>3</sup>. При этом увеличение нагрузки по массе от 35 до 65 мкг/м<sup>3</sup> не приводило к ожидаемому росту концентраций плутония в воздухе. Статистическая обработка результатов не выявила корреляционной связи между указанными выше параметрами (Щербакова и др., 2004 а). Таким образом, исследованиями доказано, что значение  $HM = 50 \text{ мкг/m}^3$  достаточно корректно

характеризует содержание пыли в приземном слое воздуха. Колебания этой величины до 2-х раз не оказывают значимого влияния на формирование концентрации плутония в воздухе над территорией, расположенной вдали от промышленных центров, но влияют на точность расчета прогнозных значений этих концентраций.

Приведенные в табл. 18 исходные данные, характеризующие величины фактических значений плотности загрязнения почвы, удельных активностей почвы и воздушной пыли, были подвергнуты регрессионному анализу. С помощью полученного уравнения регрессии для всей совокупности почв определяли теоретические значения удельной активности плутония в воздушной пыли ( $C_{en}^{T}$ ), которые использовали для определения теоретических значений концентраций плутония в воздухе ( $C^{T} = C_{en}^{T} \cdot HM$ ). Затем сравнивали фактические и теоретические концентрации, тем самым проверяя правильность прогноза (Чеботина и др., 1994).

Из приведенной таблицы видно, что фактическая плотность загрязнения исследованных почв плутонием варьирует в широких пределах – от 7 до 10<sup>6</sup> Бк/м<sup>2</sup>, а удельная активность слоя почвы 0–5 см – от 0,1 до 13300 Бк/кг. При этом удельная активность воздушной пыли изменяется всего лишь в 35 раз – от 14 до 490 Бк/кг. Регрессионный анализ позволил выявить наличие степенной зависимости между параметрами удельной активности почвы и воздушной пыли:

 $C_{gn}^{T} = \exp \left\{3,87 + 0,29 \ln C_{n\,0-5}^{\phi}\right\} [5]$ 

при коэффициенте корреляции  $R \pm r = 0.85 \pm 0.11$ . Теоретические значения удельной активности воздушной пыли ( $C_{en}^{T}$ ), рассчитанные по этому уравнению для различных значений удельной активности почвы, приведены во второй части таблицы. Для наглядности зависимость между удельной активностью почвы, с одной стороны, фактическими и теоретическими значениями удельной активности воздушной пыли, с другой, приведены на рисунке 3. Видно, что для всей совокупности исследованных данных как фактические, так и теоретические значения удельной активности воздушной пыли возрастают с увеличением удельной активности слоя почвы 0–5 см.

Установленную связь между параметрами  $C_{an}^{\phi}$  и  $C_{an}^{T}$  можно использовать для прогноза концентрации плутония в воздушной пыли над территориями, где загрязнение обусловлено только почвенной компонентой (Щербакова и др., 2001). Предложено рассчитывать удельную активность воздушной пыли ( $C_{an}^{T}$ ) по величине удельной активности верхнего 5-сантиметрового слоя почвы  $C_{n0-5}^{\phi}$ , используя уравнение регрессии [5]. Последующий пересчет на концентрацию нуклида в воздухе следует производить с учетом содержания частиц пыли в определенном объеме воздуха по формуле:

 $C_{e}^{T} = \exp \left\{3,87 + 0,29 \ln C_{n}^{\phi}\right\} \cdot 50 [6]$ 

Для оценки правильности прогноза сравнили фактические ( $C^{\phi}_{\theta}$ ) и теоретические ( $C^{T}_{\theta}$ ) значения концентраций плутония в воздухе для всех исследованных точек наблюдений. Данные табл. 18 свидетельствуют об удовлетворительной сходимости измеренных и теоретических значений: отношение  $C^{\phi}_{\theta}/C^{T}_{\theta}$  лежит в пределах от 0,5 до 4,1. Обработка результатов по методу хиквадрат показала отсутствие достоверных различий между рядами фактических и теоретических значений. Это подтверждает правомерность полученных зависимостей и уравнения регрессии даже для широкого разброса условий и ситуаций загрязнения, имевших место в различных странах и даже на разных континентах.



Рис. 3. Фактические и теоретические значения концентрации плутония в воздушной пыли (Бк/кг) в зависимости от удельной активности радионуклида в почве (Бк/кг)

Причинами расхождений величин  $C^{\phi}$  и  $C^{T}$  в каждой точке исследований могут быть наличие ветров со стороны территорий, в большей или меньшей степени загрязненных плутонием, чем использованные для прогноза, их частота и направление, в силу чего прогнозированные концентрации могут увеличиваться или уменьшаться; плотность почвы, отличная от 1,5 г/см<sup>3</sup>, влияющая на расчетную величину удельной активности при переходе от  $\sigma$  к  $C_{n0-5}$ ; свежие выпадения нуклида; выпадения частиц любых других загрязнителей в результате работы близлежащих промышленных предприятий, не связанных с выбросами плутония. Таковыми могут быть выпадения гигроскопических частиц серной кислоты, служащих ядрами конденсации для аэрозолей. Такие частицы могут укрупнять фоновые аэрозоли, образовавшиеся в результате вторичного подъема, особенно их мелкодисперсные фракции. Укрупнение аэрозолей до диаметров >1 мкм приводит к их большему вымыванию, а следовательно и к изменению величины  $C_{e}^{\phi}$  (Окислы ..., 1982; Щербакова, 1996; Jyas, Mirtry, 1970).

В научной литературе также существует метод приближенной оценки концентрации радионуклида в воздухе через коэффициент ресуспензии (Трансурановые ..., 1985), который характеризует величину вторичного подъема радионуклида с поверхности загрязненной почвы и определяется по формуле:  $K_p = C_e / \sigma$  [7], где  $K_p$  – коэффициент ресуспензии (м<sup>-1</sup>);  $C_e$  – концентрация радионуклида в воздухе (Бк/м<sup>3</sup>);  $\sigma$  – плотность загрязнения почвы (Бк/м<sup>2</sup>).

Для разных территорий, почв и климатических зон коэффициенты ресуспензии различаются даже в равновесных условиях (последние характеризуются отсутствием свежих выпадений, шквальных ветров, сильного техногенного вмешательства и т.д.). В частности, глобальные выпадения плутония в районе Нью-Йорка в годы мораториев характеризовались наиболее высокими значениями коэффициента ресуспензии – до 10<sup>-7</sup> м<sup>-1</sup>. Для старых выпадений долгоживущих радионуклидов в условиях пустынной местности средние коэффициенты ресуспензии были близки к 10<sup>-10</sup> м<sup>-1</sup>, а в нормальных климатических условиях – к 10<sup>-9</sup> м<sup>-1</sup>. Примерно такие же значения имели коэффициенты ресуспензии в 30 км зоне ЧАЭС. На территориях Невадского полигона, Саванна-Риверского производства и Восточно-Уральского радиоактивного следа  $K_p$  составляли соответственно  $10^{-12}$ – $10^{-13}$ ,  $(0,8-2,5)\cdot 10^{-8}$  и  $(0,3-7,7)\cdot 10^{-8}$  м<sup>-1</sup> (Савкин, 1993; Старцев, Попова, 1994; Щербакова, 1996; Апsphaught et al., 1975; Bennett, 1976; Corey et al., 1982; Gilbert et al., 1988). Во многих случаях коэффициенты ресуспензии возрастали с увеличением расстояния от

источника. Последнее можно объяснить большим вкладом по количеству и радиоактивности мелкодисперсной фракции радионуклида в воздушной пыли на дальнем расстоянии по сравнению с таковыми на ближнем расстоянии от источника. Следует подчеркнуть, что использование для расчета концентраций плутония в воздухе над конкретной территорией коэффициентов ресуспензии, полученных для других мест исследований или по литературным данным, не корректно, т.к. это может снизить точность прогноза. В частности, по работам (Романов, Бакуров, 1996; Corey et al., 1982) обнаружена обратно пропорциональная зависимость между коэффициентами распределения и плотностями загрязнения почв плутонием для двух районов размещения предприятий ЯТЦ. При плотности загрязнения почвы от 60 до 183 Бк/м<sup>2</sup> в районе SRS коэффициенты распределения снижаются от  $4,7\cdot10^{-8}$  до  $2,1\cdot10^{-8}$  м<sup>-1</sup>, а в районе ПО «Маяк» при возрастании плотности загрязнения почвы от 560 до 3600 Бк/м<sup>2</sup> указанные коэффициенты уменьшаются от  $7 \cdot 10^{-9}$  до  $4 \cdot 10^{-9}$  м<sup>-1</sup>.

Возможность использования коэффициентов ресуспензии для прогноза концентраций плутония в воздухе над загрязненными территориями проверена для разных районов мира с использование мирового банка данных, которые были использованы для выявления связи между удельной активностью почвы и воздушной пыли. Для каждой рассматриваемой территории фактические коэффициенты ресуспензии расчитывали по формуле [7], подставляя в нее фактические значения концентраций плутония в воздухе ( $C^{\phi}_{s}$ , Бк/м<sup>3</sup>) и плотности загрязнения почвы ( $\sigma^{\phi}$ , Бк/м<sup>2</sup>), приведенные в цитируемых источниках (табл. 18).

Совокупность показателей фактических коэффициентов ресуспензии и соответствующих им плотностей загрязнения почвы плутонием ( $\sigma^{\phi}$ ) были подвергнуты регрессионному анализу, в результате которого было получено уравнение регрессии:

 $K_p^{T} = 955 \sigma^{-0.76}$  (коэффициент корреляции = - 0,97;  $R^2 = 94 \%$ ) [8]

При помощи этого уравнения были рассчитаны теоретические значения коэффициентов ресуспензии для всех рассмотренных территорий (табл. 19). На рис. 4 показана установленная связь фактических значений и теоретически рассчитанных коэффициентов ресуспензии с плотностью загрязнения почвы плутонием. Видно, что для всей совокупности использованных литературных данных коэффициенты ресуспензии снижаются с увеличением плотности загрязнения почвы. При этом увеличение плотности загрязнения почвы плутонием на пять порядков величин приводит к снижению коэффициентов ресуспензии до 3-х порядков величин.

В табл. 19 приведены теоретические концентрации плутония в воздухе ( $C_{s}^{T}$ ), рассчитанные с использованием теоретических коэффициентов ресуспензии ( $K_{p}^{T}$ ) по формуле:

$$C_{e}^{T} = \sigma^{\phi} \cdot K_{p}^{T} = \sigma^{\phi} \cdot 955 \sigma^{-0.76}$$
 [9].

Результаты оценок свидетельствуют об удовлетворительной сходимости фактических и теоретических значений коэффициентов ресуспензии и концентраций плутония в воздухе ( $K_p^{\phi} / K_p^T = C_{e}^{\phi} / C_e^T = 0,27 - 4,34$ ). Обработка результатов по методу хи-квадрат показала отсутствие достоверных различий между фактическими и теоретическими величинами коэффициентов ресуспензии, а также между фактическими и теоретическими значениями концентраций плутония в воздухе. Приведенные на рис. 5 результаты показывают, что концентрация плутония в воздухе над исследованными территориями мира, в общем случае, возрастает с увеличением плотности загрязнения почвы.

Для прогноза концентрации плутония в воздухе по плотности загрязнения почвы предлагается расчетный метод с помощью коэффициента ресуспензии. Для этого с помощью уравнения регрессии [8] для данной плотности загрязнения почвы плутонием рассчитывается теоретический коэффициент ресуспензии, после чего по формуле [9] определяется искомое значение концентрации радионуклида в воздухе.



Рис. 4. Зависимость фактических и теоретических коэффициентов ресуспензии (n · 10<sup>-9</sup> м<sup>-1</sup>) от плотности загрязнения почвы плутонием (Бк/м<sup>2</sup>)

Таблица 19

## Фактические данные и результаты прогноза коэффициентов ресуспензии на загрязненных территориях

	$\begin{array}{c} K_p^{\ \phi}/K_p^{\ T}=\\ C^{\phi}_{\ \phi}/C^{T}_{\ e} \end{array}$	0,5	1,4	0,6
неские Ые	$C^{T_{_{\mathscr{B}}}}$ mk $\mathrm{Bk/M}^3$	1,54	2,09	2,43
Теоретич данн	$K_p^T, n \cdot 10^{-9}, \mathbf{M}_{-1}$	208	69	40
Hble	Коэффици- ент ресус- пензии $R_p^{\phi}$ , $n \cdot 10^{-9}  { m m}^{-1}$	95	66	25
тические дані	Концентра- ция плуто- ния в возду- хе $C_{e_3}^{\phi}$ мкБк/ $M^3$	0,7	3,0	1,49
Фак	Плотность загрязнения почвы <i>о</i> , Бк/м <sup>2</sup>	7,4	30,3	60,0
	Литературный источник	Jyas, Mirtry, 1981; Plutoni- um, 1979	Bennett, 1976	Corey et al, 1982
	Место исследо- вания	Г. Денвер	Г. Нью- Йорк	Р-н Са- ванна- Ривер

Таблица 19 (продолжение)

Г. Дэнвер	Jyas, Mirtry,	59,2	2.8	47	41	2,42	1,1
	1981; Plutoni-						
	um, 1979						
	>>	91,4	2,98	33	29	2,66	1,1
	*	92,9	2,95	32	29	2,68	1,1
Г. Нью-	Bennett, 1976	95,1	4,41	46	28	2,69	1,6
Йорк	*	96,2	2,22	23	28	2,69	0,8
	*	97,3	2,22	23	28	2,70	0,8
	*	98,1	1,48	15	28	2,71	0,5
Р-н Са-	Corey et al,	183	1,5	8,2	17	3,09	0,5
ванна-	1982						
Ривер							
	>>	275	4,12	15	12	3,88	1,2
P-H Ce-	Дубасов и др.,	333	15,2	46	11	3,52	4,3
мипала-	1991	1038	14,8	14	4,4	4,57	3,2
тинского							
полигона							

кончание)	0,9		1,8			3,1				0,9	0,3	1,0	1,0	0,8		2,2	1,2	1,0
ца 19 (о	4,81		6,7			7,2				7,40	8,80	68'6	9,89	10,9		12,0	12,0	20,0
Табли	3,7		1,9			2,1				0,74	0,40	0,28	0,28	0,16		0,12	0,12	0,02
	3,4		3,4			6,4				$29^{\circ}0$	0,1	0,23	0,23	0,13		0,26	0,15	0,02
	4,4		10,3			22				6,7	2,4	9,8	9,8	8,9		25,6	14,5	21,3
	1300		3000			3440				10000	22000	43000	43000	68000		100000	100000	1000000
	Guidance,	Johnson, 1980	Газиев и др.,	1993; Лебедев	и др., 1992	Дубасов и др.,	1991			Iranżo et al,	1987	Shinn et al.,	1997	Plutonium,	1979	Iranżo et al,	1987	
	Р-н Роки- Физто	ALEIGA	Г. Черно-	быль		Р-н Се-	мипала-	тинского	полигона	Г. Пала-	морес	Бикини		Эниветок		P-H	г. Пала-	мореса



Рис. 5. Фактические и теоретические значения концентраций плутония в воздухе (мкБк/м<sup>3</sup>) в зависимости от фактической плотности загрязнения почвы (Бк/м<sup>2</sup>)

Выявление для этой цели связи активности плутония в воздушной пыли и почве, а также использование большого количества данных из известных литературных источников поступления плутония в окружающую среду, полученных для широкого спектра климатических и почвеннорастительных условий, позволило нивелировать множество факторов, определяющих величину коэффициента ресуспензии и формирование концентрации плутония в приземном слое воздуха за счет ресуспензии. В результате теоретические значения концентрации плутония в воздухе, полученные с использованием выявленных связей концентрации плутония в воздушной пыли и почве и величины коэффициента ресуспензии с плотностью загрязнения почвы плутонием, оказались адекватными фактически измеренным значениям. Представленные выше расчетные методы дают возможность определять среднегодовые концентрации плутония в воздухе, обусловленные только почвенной компонентой загрязнения в равновесных условиях. Это относится к ситуации с преобладанием одного источника (или суммы источников одинакового характера) существенного загрязнения почвы радионуклидом воздушным путем и отсутствием реабилитационных мероприятий в случаях старых глобальных выпадений, аварий с пожаром, ядерных взрывов, выбросов при нормальной эксплуатации и авариях на предприятиях атомной промышленности и энергетики.

Предлагаемые методы могут быть некорректными и требуют доработки в ситуациях с наличием совокупности различных по характеру источников поступления радионуклида в почву и в других случаях, обсуждение которых выходит за рамки данной работы.

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В природной воздушной среде плутоний находится преимущественно в виде аэрозолей. Основными первичными источниками их образования и поступления в окружающую среду служат предприятия горнорудной, атомной промышленности и энергетики в штатном режиме работы и при авариях, все типы ядерных взрывов, разрушение космических аппаратов в атмосфере Земли.

Многолетняя мировая практика исследований аэрозолей на различных предприятиях атомной промышленности показала полидисперсность аэрозольных частиц в воздухе рабочих помещений, которая определяется источником их образования, производственными процессами и условиями окружающей среды.

Разработанный сотрудниками ПО «Маяк» оптикорадиографический метод определения размеров частиц позволил получить наиболее значимые результаты по изучению дисперсности аэрозолей в воздухе рабочих помещений на плутониевом производстве атомного предприятия и разработать классификацию распределения размеров частиц по фракциям: мелкодисперсная (МДФ с АМАД < 1 мкм), среднедисперсная (СДФ с АМАД 1-20 мкм) и крупнодисперсная (КДФ с АМАД > 20 мкм). Показано, что на ПО «Маяк» суммарная α-активность воздуха формируется аэрозолями всех фракций, однако вклады каждой фракции изменяются во времени и в зависимости от производственных условий. На старом производстве <sup>239</sup>Ри сумма вкладов СДФ и КДФ достигала 98 %, а МДФ составляла всего ~ 2 % от общей активности плутония. Это было обусловлено старыми технологиями, совмещением металлургического и химического отделений, а также операторской зоны с ремонтной. На новом плутониевом производстве в связи с введением более прогрессивных технологий вклад СДФ и КДФ снизился, а МДФ увеличился, достигнув в 1977–1980 гг. 90 % от суммы фракций. Кроме того установлено, что удельная активность МДФ аэрозолей плутония ( $n \cdot 10^4 - n \cdot 10^6$  мкБк/мкм<sup>3</sup>) на несколько порядков величин выше, чем этот показатель для СДФ и КДФ (0,35–19 мкБк/мкм<sup>3</sup>). Увеличение количества МДФ на ПО «Маяк» в 90-е годы наряду с более высокой активностью этой фракции свидетельствует о преобладающей роли мелкодисперсных аэрозолей в загрязнении воздуха рабочих помещений данного предприятия.

В качестве дополнительного (а возможно и основного) механизма появления МДФ аэрозолей при работе с плутонием рассматривается механизм образования ядер отдачи и агрегатов отдачи по модели Флейшера (модель радиационного растворения). Согласно этой модели, в частице <sup>239</sup>PuO<sub>2</sub> при распаде существенные структурные радиационные повреждения продуцируются не  $\alpha$ -частицей, а тяжелым ядром отдачи <sup>235</sup>U. При этом возникает определенная вероятность того, что ядро отдачи будет выбито за пределы частицы вместе с некоторым количеством атомов плутония (агрегаты отдачи). При нахождении частицы в растворе вещество, находящееся в зоне таких разрушений, будет постепенно измельчаться («растворяться»). Экспериментально показано, что из зоны радиационных повреждений в раствор переходит в среднем 300 атомов плутония на один  $\alpha$ -распад. На примере микронной частицы <sup>239</sup>PuO<sub>2</sub> получена оценка ее объемного разрушения ядрами отдачи, которое за 10 лет составит 80–90 %.

Повсеместное присутствие в воздухе рабочих помещений радиоактивных аэрозолей МДФ, в том числе плутония, свидетельствует о необходимости количественного определения этой фракции на любом производстве плутония и нормирования ее в воздухе рабочих помещений. Однако до настоящего времени МДФ аэрозолей нормируется только при обращении с чистым плутонием  $^{238}$ Pu (Плутоний ..., 2005). Для всех остальных работ, в том числе со смесью  $^{238,239}$ Pu, рекомендуется нормировать содержание в воздухе частиц СДФ, что соответствует принятым МКРЗ значениям (АМАД = 5 мкм). Учитывая преобладающий вклад МДФ аэрозолей в воздухе рабочих помещений предприятий атомной промышленности и роли механизма действия ядер отдачи в процессе образования наночастиц, возникает необходимость пересмотра нормативов МКРЗ после изучения вклада этих частиц в активность воздуха во всех рабочих помещениях при проведении операций с плутонием.

С выбросами АЭС и ТЭС с эффективной системой защиты при штатном режиме работы в окружающую среду поступает преимущественно мелкодисперсная фракция аэрозолей. В аварийных ситуациях в воздух поступает более широкий спектр радионуклидов всех фракций, включая плутоний. При этом аэрозоли СДФ и КДФ приводят к местному радиоактивному загрязнению прилегающих территорий, тогда как аэрозоли МДФ переносятся на большие расстояния и способствуют радиоактивному загрязнению в глобальном масштабе.

При разных типах ядерных взрывов в атмосфере образуется широкий спектр частиц, содержащих смесь радионуклидов, в том числе плутония, с размером от нанометров до нескольких микрон. Наночастицы коагулируют и осаждаются на носителях стратосферного происхождения. За годы испытаний ядерного оружия они создали многолетний источник поступления нуклида в приземный слой воздуха глобального масштаба. Для многих стран мира получены значения диаметров частиц плутония глобальных выпадений < 0,5 мкм. После 1983 г. источником поступления нуклида в приземный слой воздуха является ресуспензия с поверхности почв, на которых нуклид накопился за

годы проведения ядерных взрывов, аварийных ситуаций на предприятиях атомной промышленности и в космосе.

Поступившие в атмосферу аэрозоли, независимо от источника образования, могут включаться в соединения неизотопных носителей, в результате чего их размеры и свойства могут сильно измениться по сравнению с исходными аэрозолями. Дальнейшая судьба вновь образовавшихся соединений будет определяться веществом носите-ля. Наиболее сильной сорбционной способностью по отношению к плутонию обладают углеродистые соединения, широко распространенные в атмосфере в виде многоцепо-чечных соединений – углеводородов. Укрупнение аэрозолей плутония в приземном воздухе может быть следствием движения автотранспорта, особенно в крупных промышленных городах, при взаимодействии аэрозолей с компонентами пылевых выбросов промышленных предприятий. В качестве возможных носителей плутония можно рассматривать также продукты деления радона и торона – сматривать также продукты деления радона и торона – основных фоновых загрязнителей воздушной среды  $\alpha$ -активными нуклидами. В аварийных зонах атомных предприятий носителем аэрозолей плутония может быть <sup>232</sup> U, что показано для зоны ЧАЭС. Аэрозоли <sup>7</sup>Ве космиче-ского происхождения, близкие по размеру к нанометровым, а также другие неконтролируемые элементы, присутствующие в воздухе, могут сорбировать на себе плутоний, изменяя его дисперсность и судьбу аэрозолей, поступающих в воздух от выбросов атомных предприятий.

Почва является основным депо нахождения плутония в природной среде и служит источником вторичного загрязнения радионуклидом воздуха и растений. Размеры почвенных частиц, содержащих плутоний, влияют на подвижность плутония в почвенно-растительном покрове, способность подниматься в воздух, перемещаться с воздушными потоками из мест первичного загрязнения и,

91

в конечном итоге, определяют его ингаляционное поступление в организм человека.

На примере аварийной зоны ЧАЭС с использованием литературных данных и собственных расчетов выявлено влияние особенностей распределения нуклида по фракциям почвенных частиц в зависимости от их размера и расстояния от Чернобыля на поведение плутония в экологических цепочках. Результаты анализа позволили заключить, что показатели плотности загрязнения почвы и удельной активности плутония в ней формируются преимущественно за счет активности радионуклида в крупных частицах диаметром 10-160 мкм, составляющих основную массу почвенных частиц по сравнению с «вдыхаемыми» фракциями почв (< 10 мкм), ответственными за формирование концентрации плутония в приземном слое воздуха и за ингаляционное поступление радионуклида в организм. Отмечено увеличение коэффициентов обогащения плутонием «вдыхаемых» фракций почвы с увеличением расстояния от Чернобыля. Учет этих особенностей позволил предложить более точный критерий оценки относительной опасности загрязненных плутонием территорий (почвенный коэффициент) по сравнению с традиционными критериями (плотность загрязнения и удельная активность почвы).

Согласно проведенным расчетам, на примере одного из пунктов наблюдений в аварийной зоне ЧАЭС показано, что субмикронные фракции аэрозолей при 70-летнем ингаляционном хроническом поступлении плутония в организм человека создают большую мощность дозы облучения по сравнению с более крупными фракциями.

На основании анализа мирового банка данных по фактическим значениям удельной активности плутония в почве, плотности загрязнения почвы от различных источников поступления нуклида определены зависимости от этих показателей коэффициентов ресуспензии, концентрации плутония в воздушной пыли и в воздухе. Предложены оперативные методы прогноза загрязнения воздуха радионуклидом от почвенной компоненты в условиях равновесного его состояния в системе почва–воздух. Методы являются универсальными по сравнению с используемыми в настоящее время традиционными методами, однако имеют определенные ограничения, описанные выше.

При оценке опасности поступления радионуклида в организм человека предлагается уделять особое внимание изучению нахождения в воздухе частиц плутония размерами < 1 мкм, характеризующихся большим временем пребывания в воздухе из-за малых скоростей осаждения и ветровым переносом на большие расстояния с охватом обширных территорий.

Авторы приносят глубокую благодарность Людмиле Михайловне Щербаковой за ценные консультации при написании рукописи и постоянную помощь в работе.

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- 1. Аладова Е.Е. Исследование дисперсности альфаактивных промышленных аэрозолей методом авторадиографии // Вопросы радиационной безопасности. 2002. № 4. С. 14–21.
- 2. Аладова Е.Е., Хохряков В.Ф. Исследование радиоактивных аэрозолей в парковой зоне г. Озерска // Вопросы радиационной безопасности. 1998. № 2. С. 42–45.
- 3. Аладова Е.Е., Хохряков В.Ф. Исследование физикохимических свойств альфа-активных промышленных аэрозолей методом авторадиографии // Вопросы радиационной безопасности. 2002. № 3. С. 20–27.
- Альтфатер В. Результаты наблюдения за частицами в г. Дуйсбурге / Радиоактивные частицы в атмосфере. Сборник под ред. А.В. Быховского и др. М., 1963. С. 19–20.
- Андрюков В.П. Состав органического аэрозоля / Мониторинг фонового загрязнения природных сред. Ленинград: Гидрометеоиздат. 1984. Вып. 2. С. 97–105.
- Аэрозоли Сибири. Интеграционные проекты СО РАН. Под ред. К.П. Куценогого. Новосибирск, 2006. Вып. 9. 547 с.
- Арефина Л.Г., Болотова М.В., Воеводина Е.А. и др. Уникальная радоновая аномалия в с. Атаманово Красноярского края / Материалы II Международной конференции «Радиоактивность и радиоактивные элементы в среде обитания человека». Томск, 2004. С. 52–55.
- Будыка А.К., Огородников Б.И. Влияние некоторых природных процессов на образование и характеристики аэрозолей в районах, загрязненных радионуклидами // Радиационная биология. Радиоэкология. 2001. Т. 41. № 6. С. 695–699.

- 9. Бондаренко О.А., Арясов П.Б., Медведев С.Ю. и др. Анализ факторов формирования внутреннего облучения персонала объекта «Укрытие» // Медицинская радиология. 2003. № 2. С. 18–26.
- 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 <sup>239</sup> Pu / Гигиена труда и окружающей среды в атомной промышленности. М., 1985. С. 140–185.
- 11. Вострухов В.Е., Вострухов Е.И. О радиационной опасности мелкодисперсных аэрозолей на плутониевом производстве // Вопросы радиационной безопасности. 2011. № 1. С. 66–70.
- Водовозова И.Г., Диденко Л.Г., Колтик И.И. и др. Характеристика газоаэрозольных выбросов Белоярской АЭС // Вопросы защиты и безопасности АЭС. 1984. Вып. 8. С. 188–189.
- 13. Гаргер Е.К., Кашпаров В.А., Кутьков В.А., Тер-Сааков А.А. Ингаляционное поступление «горячих» частиц аварии на ЧАЭС в условиях процессов миграции радиоактивных продуктов биосферы / Тез. IV научного совета при ГЕОХИ «Геохимические пути миграции искусственных радионуклидов в биосфере». Гомель, 1990. С. 67.
- 14. Газиев Я.И., Назаров Л.Е., Лачихин А.В. и др. Исследование физических характеристик радиоактивных газоаэрозольных продуктов аварии на ЧАЭС и оценки мощности источников техногенного поступления этих продуктов в атмосферу / Труды I Всесоюзной конференции «Радиационные аспекты Чернобыльской аварии». Т. I. С.-П., Гидрометеоиздат, 1993. С. 98–103.
- 15. Газиев Я.И., Петренко Г.И., Чумичев В.В. и др. Методы и результаты исследования загрязнения атмосферы альфа-активными аэрозолями плутония – первичными

и вторичными продуктами аварии на ЧАЭС / Стэндовый доклад на Международной конференции «Actinides-89». Ташкент, 1989.

- Гросс Е. Возникновение, состав и структура горячих частиц / Сборник статей под ред. А.В. Быховского и др. М., 1963. С. 5–11.
- 17. Двухименный В.А., Столяров Т.И., Черный и др. Системы очистки воздуха от аэрозольных частиц на АЭС. М.: Энергоиздат, 1987. 87 с.
- 18. Дубасов Ю.В., Кривохатский С.В., Филонов Н.П. и др. Радиационная обстановка за пределами Семипалатинского полигона // Бюллетень центра общественной информации по атомной энергии. 1993. № 9. С. 5–10.
- Иванов В.П., Трухан С.Н., Кочубей Д.И. Химический состав поверхностных слоев частиц атмосферного аэрозоля (Новосибирская и Иркутская области) // Химия в интересах устойчивого развития. 2005. Т. 13. №1. С. 51–63.
- Ионизирующие излучения: источники и биологические эффекты. Доклад НКДАР за 1982 г. Т. 1. ООН. 881 с.
- 21. Кароль И.Л. Радиоактивные изотопы и глобальный перенос в атмосфере. Л.: Гидрометеоиздат, 1972. 366 с.
- 22. Киррилович А.П., Кочетков В.А., Лавринович Ю.Г., Чернышев В.А. Исследование радиационной обстановки на основных стадиях топливного цикла реакторов БН при использовании регенерированного плутония / Рефераты Научно-технической конференции Ядерного общества, ч. 1. Нижний Новгород, 2003. С. 123–125.
- 23. Калмыков С.М., Новиков А.П., Хасанова А.Б. и др. Сорбция Ри и Np на Fe и Mn-содержащих минералах // Тез. докладов 4-й Российской конференции по радиохимии. Г. Озерск, 2003. С. 262–263.

- 24. Куценогий П.К., Буфетов Н.С., Киров Е.И. и др. Динамика суточных и сезонных циклов аэрозолеобразоапния в атмосфере по измерениям Новосибирской области // Оптика атмосферы и океана. 1995. Т. 8. № 9. С. 1355–1365.
- 25. Красилов Г.А., Тер-Сааков А.А. Молекулярнокинетическая модель формирования радиоактивности частиц при наземных ядерных взрывах // Атомная энергия. 1971. Т. 31. Вып. 6. С. 581–84.
- 26. Лызлов В.Ф., Мелентьева Р.В., Щербакова Л.М. Применение оптикорадиографического метода для исследования дисперсности альфа-активных аэрозолей // Вопросы радиационной безопасности. 2001. № 3. С. 63–78.
- Лебедев И.А., Мясоедов Б.Ф., Павлоцкая Ф.И., Френкель В.А. Содержание плутония в почвах Европейской части страны после аварии на ЧАЭС // Атомная энергия. 1992. Т. 72. Вып. 6. С. 593–599.
- 28. Лебедев И.А., Павлоцкая Ф.И., Мясоедов Б.Ф. Исследование корреляционных соотношений для оценки содержания плутония в почвах / Труды I Всесоюзной конференции «Радиационные аспекты Чернобыльской аварии». С.-П. : Гидрометеоиздат, 1993. С. 211–213.
- Матвеев Л.В., Центер Э.М. Уран-232 и его влияние на радиационную обстановку в ядерно-топливном цикле. М.: Энергоиздат, 1985. 70 с.
- Назаров Л.С., Газиев Я.И. Дисперсность радирактивных аэрозолей в приземном слое атмосферы как индикатор процесса укрупнения аэрозольных частиц атмосферных загрязнений в зимний период / Труды ИЭМ, М., 1986. Вып. 16. С. 3–19.
- Огородников Б.И., Скотникова О.Г., Скитович В.И., Салдатова Л.С. Исследование дисперсного состава радиоактивных изотопов в приземном слое воздуха // Атомная энергия. 1972. Т. 32. Вып. 6. С. 488–489.

- 32. Огородников Б.И. Радиоактивные продукты над развалом IV блока перед завершением строительства объекта «Укрытие» / I Всесоюзная конференция 1988 г. «Радиационные аспекты Чернобыльской аварии». С.-П., 1993. С. 122–131.
- 33. Огородников Б.И., Скитович В.И. Контроль дисперсности радиоактивных аэрозолей с помощью трехслойных материалов / Актуальные вопросы радиационной гигиены. Тезисы докладов всесоюзной конференции. Обнинск, 1983. С. 196–197.
- 34. Огородников Б.И., Скотникова О.Б., Скитович В.И., Солдаева Л.Е. Исследование дисперсного состава радиоактивных аэрозолей в приземном слое воздуха // Атомная энергия. 1972. Т. 32. Вып. 6. С. 488–489.
- 35. Огородников Б.И. Исследование физико-химических характеристик радиойода при Чернобыльской аварии / Обзорная информация «Проблемы окружающей среды и природных ресурсов». 1998. № 4. С. 53–117.
- 36. Огородников Б.И., Скитович В.И., Будыка А.К. Дисперсный состав искусственных и естественных радиоактивных аэрозолей в 30-километровой зоне ЧАЭС в 1986–1996 гг. // Радиационная биология. Радиоэкология. 1998. Т. 38. Вып. 6. С. 889–892.
- 37. Огородников Б.И., Будыка А.К., Павлюченко Н.И. Выброс радиоактивных аэрозолей из объекта «Укрытие» при сильных ветрах // Радиационная биология. Радиоэкология. 2005. Т. 45. № 2. С. 227–235.
- Окислы серы и взвешенные частицы. ВОЗ. Женева. 1982. 131 с.
- 39. Осовец С.В., Хохряков В.Ф., Хохряков В.В. Аналитическая и численная оценка процессов нарушения и растворения частиц двуокиси плутония ядрами отдачи / Источники и эффекты облучения работников ПО «Маяк» и населения, проживающего в зоне влияния

предприятия. Часть IV. Челябинский дом печати, 2012. С. 42-55.

- Осовец С.В., Хохряков И.Ф. К растворимости частиц двуокиси плутония ядрами отдачи / I Всерос. конф. по радиационной гигиене. М.: МИФИ, ИБФ, 1983. С. 92–93.
- 41. Павлоцкая Ф.И., Горяченкова Т.А. Распределение плутония по компонентам органических веществ и их роль в его миграции в почвах // Радиохимия. 1987. Т. 29. № 1. С. 99–106.
- 42. Павлоцкая Ф.И., Горяченкова и др. Методика определения плутония в почве // Радиохимия. 1984. № 4. С. 460–467.
- 43. Плутоний, Радиационная безопасность (Под ред. Л.А. Ильина). М., Изд-во АТ, 2005. 416 с.
- 44. Плутоний. Фундаментальные проблемы. Т. 1, 2 (Перевод с английского под ред. Б.А. Надыкто и Л.Ф. Тимофеевой сделан по изданию Los Alamos Science, 2000, № 2). ФГУП «РФЯЦ-ВНИИЭФ», Саров, 2003. Т.1. 304 с. Т. 2. 212 с.
- 45. Пределы поступления радионуклидов для работающих с радиоактивными веществами. Публикация 30 МКРЗ, ч. 1. 1982. 133 с.
- 46. Погодин Р.И., Диденко Л.Г., Водовозова И.Г. и др. Исследование Белоярской АЭС в 1976–1978 гг. // Атомная энергия. 1981. Т. 51. № 4. С. 262–263.
- 47. Раевский Б., Франке Е., Гросс Е. и др. Исследование радиоактивных частиц в 1961 г. (горячие частицы) / Радиоактивные частицы в атмосфере. Сборник статей под ред. А.В. Быховского и др. М., 1963. С. 167–209.
- Райфершийд Г. Проблемы распространения радиоактивных примесей в атмосфере / Радиоактивные частицы в атмосфере. Сб. статей под ред. А.В. Быковского и др. 1963. С. 104–115.

- 49. Романов Г.Н., Воронов А.С., Бакуров А.С. Динамика ветрового подъема радиоактивных веществ и роль этого процесса в проблеме трансурановых элементов / Труды П Всесоюэной конференции. С.-П.: Гидрометеоиздат, 1993. Т. 1. С. 265–268.
- 50. Романов Г.Н., Бакуров А.С. Плутоний в окружающей среде производственного объединения «Маяк» // Вопросы радиационной безопасности. 1996. № 2. С. 11–21.
- 51. Савкин М.Н. Особенности эколого-гигиенической обстановки в 30-км зоне ЧАЭС в отдаленные сроки после аварии / Радиация и риск. 1993. Вып. 3. С. 94–121.
- 52. Самсонов Б.Г., Малышев В.И., Базур А.Е. и др. Вещество задержки растворенных компонентов при прохождении радиохимических промстоков в геологическом массиве // Вопросы радиационной безопасности. 1997. № 4. С. 28–34.
- 53. Сельскохозяйственная радиоэкология. Под ред. Р.М. Алексахина, Н.А. Корнеева. М., 1991. 163 с.
- 54. Серебряков И.В. Изучение параметров радиационной обстановки в процессе переработки тетрафторида урана // Вопросы радиационной безопасности. 2005. № 2. С. 3–14.
- 55. Степанец О.В., Лигаев А.Н., Соловьева Г.Ю. и др. Исследование роли взвешенного материала и растворенных органических веществ в поведении и миграции антропогенных радионуклидов в водной системе река-море / Радиация. Экология. Здоровье. Часть 2. 1994. С. 271–272.
- Сисевский Ж. Продукты деления в результате исследований атомных бомб / Радиоактивные частицы в атмосфере. Сб. статей под ред. А.В. Быковского и др. М., 1963. С. 210–219.

- 57. Старцев Н.В., Попова И.Я. Возможность оценки ингаляционного поступления в организм плутония методом нагрузки по массе // Медицина труда и промышленная экология. 1994. № 8. С. 37–40.
- 58. Теверовский Е.Н., Дмитриев Е.С. Перенос аэрозольных частиц турбулентными потоками. М.: Атомэнергоиздат, 1988. 160 с.
- 59. Теверовский Е.Н., Махонько К.П., Беляев С.П., Федоров Е.А. Исследование характера связи между радиоактивностью частиц аэрозолей, образующихся на следе, и их размерами. Предварительное сообщение / Опытная научно-исследовательская станция ПО «Маяк». Рефераты научных трудов из архивов ПО «Маяк». Озерск, 2003. С. 10.
- 60. Трансурановые элементы в окружающей среде / Под. Ред. У.С. Хенсона. М.: Энергоиздат, 1985. 342 с.
- 61. Тяжелые естественные радионуклиды в биосфере (Под ред. Р.М. Алексахина) М.: Наука, 1990. 367 с.
- 62. Хербст В. Обнаружение и измерение радиоактивных частиц / Радиоактивные частицы в атмосфере (Под ред. А.В Быховского) Госкомитет по атомной энергии СССР. М., 1963. с. 88–104.
- 63. Химия окружающей среды (перевод с англ. под ред. С.М. Бокриса). Москва: Химия. 1982. 672 с.
- 64. Хохряков В.В., Хохряков В.Ф., Суслова К.Г., Соколова А.Б. Анализ динамики изотопного состава актинидов, поступивших в организм работников ПО «Маяк» в период с 1949 по 2002 гг. // Вопросы радиационной безопасности. 2007. № 3. С. 63–65.
- 65. Хохряков В.В., Хохряков В.Ф. Физико-химические механизмы растворения аэрозолей диоксида плутония // Вопросы радиационной безопасности. 2008. № 3. С. 47–59.

- 66. Чеботина М.Я., Щербакова Л.М., Пономарева Р.П. Содержание плутония в почвенных частицах разного размера и оценка опасности зоны ЧАЭС // Радиационная биология. Радиоэкология. 2016. Т. 56. № 4. С. 426–432.
- 67. Чеботина М.Я., Пономарева Р.П., Щербакова Л.М. Оценка опасности территорий, загрязненных плутонием от аварийных выпадений Чернобыльской АЭС / Уральский геофизический вестник. 2012. № 1 (19). С. 60–64.
- 68. Чеботина М.Я., Щербакова Л.М., Пономарева Р.П., Аксенова Г.М. Прогноз концентрации плутония в воздухе с помощью коэффициента ресуспензии. Сообщение 3 / Материалы 2-й Международной конференции «Радиоактивность и радиоактивные элементы в среде обитания человека». Томск, 11–22 октября 2004 г. Изд-во «Тендем–Урт», 2004. С. 683–685.
- 69. Чеботина М.Я., Щербакова Л.М., Пономарева Р.П. Роль дисперсности аэрозольных частиц в формировании радиоактивного загрязнения природной среды / Уральский геофизический вестник. Екатеринбург, 2007. № 2–3 (11–12). С. 109–119.
- Штриплинг Л.О. Снижение последствий экологического ущерба в районах падения баллистических ракет / Международная научно-практическая конференция «Современные проблемы атомной науки и техники». Снежинск, 2003. С. 451–452.
- Щербакова Л.М. Роль мелкодисперсной фракции аэрозолей в прогнозировании облучения экстрапульмональным плутонием (Аналитический обзор) / Проблемы радиоэкологии и пограничных дисциплин. Заречный, 2000. Вып. 3. С. 278–295.
- 72. Щербакова Л.М., Чеботина М.Я., Пономарева Р.П., Лемберг Т.В. Прогноз концентраций плутония в воз-

духе по удельной активности почвы. Сообщение 2 / Радиоактивность и радиоактивные элементы в среде обитания человека. Материалы Ш Международной конференции. Томск, 11–22 октября 2004 г. Изд-во «Тендем–Урт», 2004. Томск, 2004а. С. 680–682.

- 73. Щербакова Л.М., Чеботина М.Я., Пономарева Р.П., <u>Лемберг Т.В.</u> Оценка существующих моделей для расчета концентрации плутония в воздухе над загрязненными территориями. Сообщение 1 / Радиоактивность и радиоактивные элементы в среде обитания человека. Материалы Ш Международной конференции. Томск, 11-22 октября 2004 г. Томск: STT, 2004 б. С. 676–679.
- 74. Щербакова Л.М. Вторичный подъем и ветровой перенос аэрозолей над загрязненной территорией (Аналитический обзор) // Тез. докл. IV Международной конф. «Урал атомный. Урал промышленный». ИПЭ УрО РАН, 1996. С. 93.
- 75. Щербакова Л.М., Пономарева Р.П., Чеботина М.Я. Особенности формирования загрязнения природной среды радиоактивными аэрозолями разных размеров / Проблемы радиоэкологии пограничных дисциплин. Екатеринбург, 2007. Вып. 11. С. 393–412.
- 76. Щербакова Л.М., Мелентьева Р.В. Дисперсность аэрозолей в профессиональных условиях и окружающей среде (Аналитический обзор) / Тезисы VI Межд. симп. «Урал атомный. Урал промышленный». Екатеринбург, 1998. С. 72–73.
- 77. Щербакова Л.М., Пономарева Р.П., Кошелева Е.В. Способ оценки концентраций плутония в воздухе над загрязненной почвой при условии равновесного его содержания в почвенно-воздушной среде / Патент на изобретение № 2176801. 2001.

- 78. Якоби В. Соотношения между размерами аэрозольных частиц и их осаждением из атмосферы и в дыхательном тракте / Радиоактивные частицы в атмосфере. Сб. статей под ред. А.В. Быховского и др. М., 1963. С. 129–140.
- Aarkrog A. Radiological investigation of plutonium in arctic marine environment // Health Phys. 1971. Vol. 20. P. 31–39.
- Adriano D.S., Hoyt G.D., Pinder J.E. Fallout of <sup>137</sup>Cs on a forest ecosystem in the vicinity of a nuclear fuel reprocessing plant // Health Phys. 1981. Vol. 40. № 3. P. 369–376.
- Ansphaugh L.G., Shinn L.H., Phellps P.L., Kennedy N.S. Resuspension and redistribution of plutonium in soils // Health Phys. 1975. Vol. 23. № 3. P. 571–582.
- 82. Archer V.E. Effects of low-level radiation: critical revive // Nuclear Safety. 1980. Vol. 21(1). P. 68–72.
- Bereznoi V.I., Valetiva N.K., Dunaev J.E. et al. Some data on transuranium element distribution in particle size actions of Chernobyl soils // J. Radioanalyt. Nucl. Chem. 1991. V. 150. № 2. P. 445–454.
- 84. Bennett B.G. Transuranic element patways in man / Proc. of symposium San Francisco. Vienna, 1976. P. 367–384.
- Bigu I. Electrical change characteristics on long-lived radioactive dust // Healts Phys. 1990. V. 58. № 3. P. 341–350.
- Budyka A.K., Ogorodnikov B.I. Radioactive aerosols of the Chernobyl accident / Mat. VII Int. Symp. «Change and continuity in radiation protection». Cardiff U.K. 2005. P. 517–540.
- 87. Corey J.C., Pinder J.E. et al. Stack-released Pu in the terrestrial environmental of a chemical separation facility // Nuclear Safety. 1982. V. 23. № 3. P. 310–319.

- 88. Dorrian M.D., Barley M.R. Particle size distributions of radioactive aerosols measured in workplaces // Radiation Protection Dosimetry. 1995. V. 60. № 8. P. 119–133.
- Fisenne J.M. Risk from inhalation of the long-lived radionuclides uranium, thorium and fallout plutonium in the atmosphere // Mat. VII Int. Symp. «Change and continuity in radiation protection». Cardiff U.K. 2005. P. 585–595.
- Fleisher R.L., Price P.B., Walker R.M. Nuclear Tracks in silids University of California Press. Berkeli-Los Angeles-London. 1975. 567 p.
- 91. Fleisher R.L. On the «dissolution» in liquids of PuO<sub>2</sub> particles // Health Phys. 1975. Vol. 29. № 1. P. 69–73.
- 92. Fleisher R.L., Raabe O.G. Fragmentation of respirable PuO<sub>2</sub> particles in water by alpha decay a mode of «dissolution» // Health Phys. 1977. Vol. 32. № 4. P. 253–257.
- 93. Fleisher R.L., Raabe O.G. On the mechanism of «dissolution» in liquids of PuO<sub>2</sub> by alpha decay // Health Phys. 1978. Vol. 35. № 4. P. 545–548.
- 94. Gilbert R.O., Shinn L.H., Essington E.H. et al. Radionuclide transport from soil to air, nature vegetation, kangaroo rats and grazing cattle on the Nevada test site // Health Phys. 1988. Vol. 5. № 6. P. 868–887.
- Gundel L.A., Sextro R.G. Aerosol Chemistry and physics: Indoor perspective / VII Intern. Symp. «Change and continuity in Radiation Protection». Cardiff. U.K., 2005. P. 190–224.
- Guidance on dose limits for persons exposed to transuranium elements in the general environment. Technical report EPA 520/4-78-010. 1978. P. 221–266.
- 97. Hartmann G., Thom C., Bachann K. Sources of Pu in near surface air // Health Phys. 1989. Vol. 56. № 1. P. 55–69.
- Harley N.H. Radon and thoron in environment. Concentrations and lung cancer risk / Material International Symposium «Change and continuity in Radiation Protection». Cardiff. U.K. 2005. P. 101–113.

- 99. Helkkenen S.A., Hjemroos-Koski M.K., Haggblom M.M. et al. Bioaerosols / Mater. VII Intern. Symp. «Change and continuity in Radiation Protection». 2005. P. 225–265.
- 100. Hirose K., Aojama M., Sigimura Y. Short and long term effects of Chernobyl radioactivity on deposition and air concentrations in Japan / Proc. of an Intern. Symp. on environmental contamination following and major nuclear accident. Vienna, 1990. V. 1. P. 141–149.
- 101. Hopke P.K. Advances in monitoring methods for airborne particles // Mat. VII Int. Symp. «Change and continuity in radiation protection». 2005. P. 35–45.
- 102. Healy J.W. An examination of the pathway from soil to man for plutonium. Informal report, Apr. 1977. Los Alamos Scientific Laboratory of the University of California, Los Alamos, Nev Mexico 87545. US. Contract-7405. 1977. P. 1–96.
- 103. International Commission on Radiological Protection. Human Respiratory Tract Model for Radiological Protection ICRP. Publication 66. Oxford: Pergamon Press // Ann. ICRP. 1994. 24(13).
- 104. Iranżo E., Salvador S., Iranżo C. Concentrations of <sup>239</sup>Pu and <sup>240</sup>Pu and potential radiation doses to persons living near Pu-contaminated areas in Palamores Spain // Health Physics. 1987. V. 52. № 4. P. 453–461.
- 105. Jyas B.N., Mirtry K.B. Studies on transformation of <sup>239</sup>Pu and <sup>241</sup>Am in three major Indian soils / Sci. Total Environ., 1970. V. 32. № 2. P. 183–185.
- 106. Jensen L., Regan G., Goranson S. et al. Ambient monitoring of airborne radioactivity near a former thorium processing plant // Health Phys. 1984. Vol. 46. P. 1021–1035.
- 107. Johnson C.J. Evaluation of cancer incidence for angles in the period 1969–1971 in areas of census tracts with measured concentrations of plutonium soil contamination down wind from the Rocky Flats Plant in the Denver standard

metropolitan statistical area / 5<sup>th</sup> Intern. Congress of the Radiation Protection Association. V. 2, Jerusalem. 1980. P. 156–168.

- 108. Johnson C.J. Epidemiologic investigation of cancer incidence in people living near nuclear installations // Health Phys., 1983. Vol. 45. № 3. P. 809–813.
- 109. Johnson C.J., Tidball R.R., Siverson R.S. Plutonium hazard in respirable dust on the surface of soil // Science. 1976. № 193. P. 488–490.
- 110. Jaenicke R. Number concentration and size distribution of atmospheric aerosol in Siberia // Aerosol Sci. 1994. Vol. 25. P. 377–383.
- 111. Yamamoto M., Komura K., Sakanoue M. Distributionand characteristics of Pu and Am in soil // Proc. Int. Symp. in Knoxuille «Migration in terrestial ervironment of longlived radionucliles». Vienna: IAEA, 1982. P. 395–413.
- 112. Kelso S.M., Wraight J.S. The measurement of aerosol size distributions (AMAD) in building of BNFL's Sellafield site // Rad. Prac. Dosim. 1996. Vol. 63. № 2. P. 127–131.
- 113. Knight A., Creen B., O'Riordon M., Lunsley G. An air monitoring programs in the environment of a major nuclear establishment operation and results / Proc. 5<sup>th</sup> IRPA congr. Ierusalem. 1980. Vol. 1. P. 87.
- 114. Krey P.W. Atmospheric burnup of plutonium-238 generator // Science. 1969. Vol. 158. P. 769–778.
- 115. Kotrappa P., Bhatt I.S., Washi W. Particle size and solubility characteristics of aerosols in Pu Processing areas and in BWR type power reactors // Rec. commun. 4<sup>e</sup> cong. AIRP, Paris, 1977. № 3. P. 771–774.
- 116. Kittelson L.B., Watts W.F., Johnson J. Ultra fine and nanoparticl emissions: A new challenge for internal combustion engine designers / Mater. of Intern. Symp. «Change and continuity in radiation protection». Cardiff U.K. 2005. P. 47–58.
- 117. Koutsenogii P.K. Aerosol measurement in Siberia // Atmospheric Research. 1997. № 4. P. 167–178.
- 118. Koutsenogii P.K., Jaenicke R. Number concentration and size distribution of atmospheric aerosol in Siberica // J. Aerosol Sci. 1994. V. 25. № 2. P. 337–383.
- 119. Lange C. Size distribution of atmospheric particles containing <sup>7</sup>Be // J. Aerozol Sci. Suppl. 1. 1994. P. 55–56.
- 120. Magnard A.D., Baron P.A. Aerosols in industrial environment / Materials VII Inttrn. Symp. «Change and continuity in Radiation Protection». 2005. P. 225–265.
- 121. Milham R. C., Schubert J. F., Watts J. R. et al. Measured plutonium resuspension and resulting dose from agricultural operations on an old fieat at the Savannah River Plant in the southeastern United States / International Symposium on Transuranium Nuclides in the Enviroronent. San Francisco, California on November 17–21, 1975. P. 1–17.
- 122. Plutonium in Airborne Particulates / Radiation Data and Report. 1979. № 11. P. 552.
- 123. Papastefanou S., Joannidou A. Aerodynamic side association of <sup>7</sup>Be in ambient aerosols // J. Environ. Radioact. 1995. № 26. P. 273–282.
- 124. Raabe O.G., Teague S.V., Richardson N.J., Nelson J.S. Aerodynamic and dissolution behavior of fume aerosols produced during the combust of laser ignited plutonium droplets in air // Health Phys. 1978. V. 35. P. 663–672.
- 125. Ruser L.S., Apte M.G., Sextro R.G. Aerosol dose / Mater. Intern. Symp. «Change and continuity in Radiation Protection». Cardiff. UK. 2005. P. 101–113.
- 126. Robenson D.E., Thomas C.W., Parkins R.W., Thomas V.W. Transuranium and other long-liver radionuclides in the terrestrial environs nuclear power plants ERPI-EA-2045. Richland, 1981. 181 p.

- 127. Samet J.M. Disel exhaust / Mater. of Intern. Symp. «Change and continuity in radiation protection». Cardiff U.K. 2005. P. 601–607.
- 128. Shinn J.H., Homann D.N., Robinson W.L. Resuspension studies in the Marshall Island // Health Physics. 1997. V. 73. № 2. P. 248–257.
- 129. Shinn J.H., Essington E.H., Miller F.L. et al. Results of cleanup and treatment test at the Nevada Test Site: elevation of vacuum removal of Pu-contaminated soils // Health Phys. 1989. V. 57. № 5. P. 771–779.
- 130. Sehmel G.A. A relationship between plutonium activity densities of airborne and surface soils // Health Phys. 1983. V. 45. № 6. P. 1047–1050.
- 131. Stewart K. Altitudes atmosphere / Proc. of a symposium «Physical behaviors of radioactive contaminants in the atmosphere». IAEA, Vienna, 1974. P. 465–470.
- Storebo P.B. Formation of radioactivity size distributions in nuclear bomb debris // J. Aerosol Sci. 1974. Vol. 5. P. 557–568.
- 133. Steinhäusler F., Hofmann W, Pohl E. et al. Radiation exposure of the respiratory tract and associated carcinogenic risk due to inhaled radon daughters // Health Phys. 1983. Vol. 45. № 2. P. 331–337.
- 134. Volchok M., Knuth R., Kleiman M. Respirable dust of Pu near plant Rocky Flats // Health Phys. 1972. Vol. 23. № 4. P. 395.
- White M.G., Dunawaj P.B. Plutonium association in soils and transuranics elements in natural environments / Proc. Symp. 1976. Goitlinburg, ERDA. Report NVO-178. 1976. P. 97–114.
- 136. Yu C.C., Tung C.J. Hung J.F., Tseng C.L. Analyses of radioactive aerosols to support accurate internal doses assessments at Chin-Shan nuclear power plant // Health Phys. 1993. Vol. 65. № 2. P. 147–152.

137. Yoder R.E. Potential source terms and control measures / Plutonium and other transuranium elements: Scince. Environmental. Distribution and Biomedical effects. Wash., 1974. № 1359. P. 13–88. Научное издание

Маргарита Яковлевна Чеботина Роза Петровна Пономарева Александр Викторович Трапезников

## Дисперсность частиц плутония в производственных процессах и в окружающей среде

Подписано в печать: 31.10.2017 г. Усл. печ. л. 7. Бумага «Гознак» Формат 60х84 1/16 Тираж 310 экз.

Издательство «АкадемНаука» 624250, Свердловская обл., г. Заречный, ул. Ленинградская, 24 Б Тел.: (34377) 7-11-53

Переплет выполнен в ООО «Издательство «АсПУр» 620075, г. Екатеринбург, ул. Пушкина, 12 Тел.: (343) 371-12-06



## ЧЕБОТИНА Маргарита Яковлевна

Доктор технических наук, ведущий научный сотрудник Института экологии растений и животных УрО РАН



## ПОНОМАРЕВА Роза Петровна

Кандидат биологических наук, научный сотрудник Института экологии растений и животных УрО РАН Pu Pu



## ТРАПЕЗНИКОВ Александр Викторович

Доктор биологических наук, Заслуженный эколог РФ, Зав. Отделом континентальной радиоэкологии и Биофизической станцией Института экологии растений и животных УрО РАН