

А.Г. Цовьянов¹, А.Е. Карев¹, С.М. Шинкарев¹, И.П. Коренков¹, А.С. Самойлов¹,
В.А. Стебельков², А.В. Жуков², К.М. Измestьев³, С.Г. Терентьев³

ДИСПЕРСНОСТЬ, МОРФОЛОГИЯ И ЭЛЕМЕНТНЫЙ СОСТАВ АЭРОЗОЛЬНЫХ ЧАСТИЦ НА ПРОИЗВОДСТВЕ СМЕШАННОГО НИТРИДНОГО УРАН-ПЛУТОНИЕВОВОГО ТОПЛИВА

¹ Федеральный медицинский биофизический центр им. А.И. Бурназяна ФМБА России, Москва, Россия

² НП «Лаборатория анализа микрочастиц», Москва

³ Акционерное общество «Сибирский химический комбинат», Томск

Контактное лицо: Цовьянов Александр Георгиевич, atsovyan@mail.ru

РЕФЕРАТ

Цель: Исследование физико-химических характеристик радиоактивных аэрозолей, образующихся при производстве смешанного нитридного уран-плутониевого (СНУП) топлива.

Материал и методы: Для исследования дисперсного состава применялись отечественные импакторы: АИП-2, ФРТЧ (ФМБЦ им. А.И. Бурназяна), а также зарубежные модели: каскадный импактор Андерсена (Copley Scientific, UK), индивидуальный импактор SKC Sioutas (SKC inc., США). При исследовании морфологических характеристик использовали растровый электронный микроскоп (РЭМ) LYRA-3 (Tescan), оснащенный рентгеновским микроанализатором (РМА) X-max 80 (Oxford Instruments). Для поиска содержащих уран и плутоний частиц в отдельных пробах применяли масс-спектрометр вторичных ионов IMS-1280 (Samcra) и трековый анализ.

Результаты: Значение медианного по активности (Σa) аэродинамического диаметра (АМАД) аэрозольных частиц варьирует от 12 до 33 мкм, для ²³⁹Pu – от 14 до 27 мкм. Наименьшие значения АМАД (0,4–2,5 мкм для ²³⁹Pu) обнаружены в ремонтной зоне у бокса синтеза и спекания. Элементный состав аэрозольных частиц определяется наличием U (63–86%), Pu (5–10%) и O (9–47%), Fe в отдельных пробах – до 32%, другие элементы Na, S, N, P содержатся в гораздо меньшем количестве, не превышающем 2–8%. В составе лишь одной частицы, содержащей уран и плутоний, присутствует азот (3%).

Заключение: В операторской зоне основной вклад в объемную активность вносит грубодисперсная фракция радиоактивных аэрозолей, вероятно, обусловленная операциями прессования и дробления. Аэрозольные частицы присутствуют в виде индивидуальных частиц или плотных агрегатов размером 0,2–2 мкм, а также в виде конгломератов размером от 0,5 до 4 мкм на основе оксидов кремния, железа, карбоната кальция и т.д., содержащих включения (от 200 до 400 нм) или индивидуальные частицы (20–200 нм) смешанного оксида урана-плутония, либо оксида урана как на поверхности конгломерата, так и в приповерхностных слоях внутри.

Ключевые слова: плутоний, радиоактивные аэрозоли, АМАД, импактор, смешанное нитридное уран-плутониевое топливо, растровый электронный микроскоп, масс-спектрометр

Для цитирования: Цовьянов А.Г., Карев А.Е., Шинкарев С.М., Коренков И.П., Самойлов А.С., Стебельков В.А., Жуков А.В., Измestьев К.М., Терентьев С.Г. Дисперсность, морфология и элементный состав аэрозольных частиц на производстве смешанного нитридного уран-плутониевого топлива. Медицинская радиология и радиационная безопасность. 2020;65(3):59-65.

DOI: 10.12737/1024-6177-2020-65-3-59-65

Введение

Важным фактором, влияющим на дозу внутреннего облучения при ингаляционном поступлении радиоактивных аэрозолей, является их дисперсный состав [1]. Дисперсный состав аэрозоля характеризуется распределением частиц по их размерам или распределением массы аэрозоля по частицам различных размеров. В случае радиоактивных аэрозолей существенное значение имеет распределение активности, в частности определенных радионуклидов, по частицам различных размеров [2].

Представлены результаты исследований дисперсности, морфологии и элементного состава радиоактивных аэрозольных частиц на участке по производству смешанного нитридного уран-плутониевого (СНУП) топлива КЭУ-1 на ХМЗ АО «СХК», проведенные в 2014 и 2017 гг.

Материалы и методы

Дисперсный состав

Импакторы – селективные пробоотборные устройства, состоящие из последовательно расположенных каскадов, на каждом из которых происходит осаждение заданной размерной фракции аэрозолей, причем в качестве заключительного каскада используют фильтр.

Минимальный размер частиц, которые могут быть разделены обыкновенным инерционным импактором, составил ~ 0,3 мкм. Более мелкие частицы задерживаются конечным (выходным) фильтром [3].

Отбирая пробы аэрозолей с помощью импактора, а затем измеряя активность радионуклидов на коллекторных пластинах, строят гистограммы распределения активности радионуклидов (р/н) по аэродинамическому диаметру (АД) частиц. Опыт и теоретические исследования показали, наиболее подходящей для аппроксимации результатов измерений является функция логнормального распределения [2]. Параметры, его определяющие, – медианный по активности аэродинамический диаметр (АМАД) и стандартное геометрическое отклонение σ_g (СГО) [4]. Величина σ_g характеризует разброс диаметров частиц относительно АМАД: 67 % активности аэрозоля ассоциировано с частицами в диапазоне диаметров от АМАД/ σ_g до АМАД· σ_g . Монодисперсный аэрозоль имеет $\sigma_g = 1$.

В настоящей работе применялись импакторы, разработанные в ФМБЦ:

- АИП-2, патент RU 2239815 [5], номер в Госреестре СИ № 28021-04;
- ФРТЧ, патент RU 2509375 [6, 7];

а также зарубежные импакторы:

- каскадный импактор Андерсена (Copley Scientific, Великобритания);
- индивидуальный импактор SKC Sioutas (SKC Inc., США).

Расчет АМАД проводился в соответствии с методиками [9, 10].

В качестве побудителей расхода применялись переносные воздухоподдувки либо штатная вакуумная система предприятия. Отбор проб проводился на высоте ~ 1,6–2,0 м в точках, согласованных со службой РБ. Для исследования динамики счетной концентрации аэрозолей применялись шестиканальные оптические счетчики Handheld 3016 (Госреестр № 48014-11). Измерения активности проб проводили после обязательной выдержки не менее 3 сут для распада естественных короткоживущих радионуклидов. Суммарная активность альфа-излучающих р/н измерялась на радиометрах УМФ-2000 (№ 16297-08 Госреестра).

Измерение активности гамма-излучающих радионуклидов (²⁴¹Am) проводили на полупроводниковом гамма-спектрометре, состоящем из широкополосного детектора Canberra BE3830 и анализатора InSpector-2000 (№ 18509-10 Госреестра), измерения проводили в соответствии с методикой [11]. Радиохимическую пробоподготовку и приготовление счетных образцов для альфа-спектрометрии проводили в соответствии с методиками [12–14], измерения проводили на альфа-спектрометре Alpha Duo (ORTEC) (№ 46163-10 Госреестра).

Морфология и элементный состав

Автоматический поиск частиц методом МСВИ (масс-спектрометрия вторичных ионов) проводили на масс-спектрометре IMS-1280 (Самеса, Франция) (№47061-11 Госреестра). Поиск частиц осуществляли на подложках из монокристаллического кремния, на которые частицы были перенесены методом вакуумной импакции. Область сканирования составляла 900 мм².

Автоматический поиск, получение изображения и проведение элементного анализа осуществляли на растровом электронном микроскопе Lyra 3 (Tescan,

Чехия) (№ 53938-13 Госреестра), оснащенным рентгеновским микроанализатором X-max 80 (Oxford Instruments, Великобритания). Автоматический поиск частиц методом РЭМ-РМА проводили на подложке из монокристаллического кремния. Площадь сканирования препаратов составляла 25–40 мм².

Условия сканирования: ускоряющее напряжение 25–30 кВ, сила тока 0,5–1,5 нА, размер поля 100×100 мкм, размер изображения 2048×2048 пикселов, скорость сканирования 4 мкм на пиксел, скорость счета детектора 10⁵ с⁻¹, длительность анализа микрочастицы 3 с. При таком режиме сканирования удается обнаружить частицы размером от 100 нм и более.

Для предварительной количественной оценки присутствия радионуклидов в пробах использовали метод альфа-авторадиографии.

Результаты и обсуждение

Дисперсный состав

Результаты исследования дисперсного состава радиоактивных аэрозолей КЭУ-1 представлены в табл. 1–2. В операторской зоне основной вклад в объемную активность (ОА) вносит грубодисперсная фракция радиоактивных аэрозолей, вероятно, обусловленная операциями прессования и дробления. Значение АМАД (Σа) варьируется от 12 до 33 мкм, для ²³⁹Pu – от 14 до 27 мкм. Наименьшие значения АМАД (0,4–2,5 мкм для ²³⁹Pu) обнаружены в ремонтной зоне у бокса синтеза и спекания (табл. 1).

На рис. 1–2 представлено распределение активности ²³⁹Pu по АД в ремонтной зоне у бокса синтеза и спекания в период 29.09–5.10.2017. Данное распределение носит бимодальный характер. Значение АМАД субмикронной фракции – 400 нм с вкладом в ОА 37%. Значение АМАД грубодисперсной фракции составило более 9 мкм. Результат оценки вклада в ожидаемую эффективную дозу (ОЭД) внутреннего облучения каждой из фракций представлен в табл. 3.

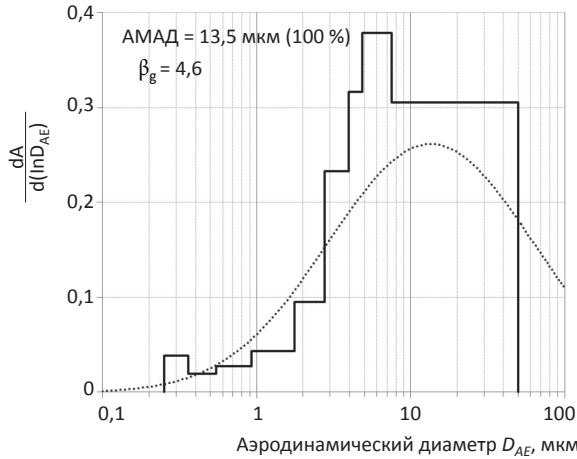
При расчете вклада в ОЭД в случае субмикронной фракции использовали дозовый коэффициент из базы данных МКРЗ [15] для значения АМАД 0,3 мкм, для

Таблица 1

Дисперсный состав радиоактивных аэрозолей КЭУ-1
Dispersed composition of radioactive aerosols KEU-1

Дата	Зона	Место отбора	Σа			²³⁹ Pu			²⁴¹ Am		
			АМАД, мкм	σ _g , мкм	Вклад в ОА, %	АМАД, мкм	σ _g , мкм	Вклад в ОА, %	АМАД, мкм	σ _g , мкм	Вклад в ОА, %
29.09-4.10.17	Операторская	Бокс измельчения и смешения исходных компонентов и нитридов	2,6	2,0	2	2,7	2,4	3	1,1	1,4	9
			29	1,9	98	27	1,4	97	23	1,5	91
29.09-5.10.17		Бокс прессования шашек и таблеток	3,0	2,1	3	3,6	3,0	1	1,6	2,6	1
			22	2,1	97	26	1,7	99	31	2,0	99
29.09-5.10.17		Бокс синтеза и спекания	9,3	2,6	29	-	-	-	0,7	5,4	15
			> 22	-	71	-	-	-	33	2,0	85
29.09-4.10.17	Ремонтная	Бокс синтеза, спекания	1,4	3,8	71	0,4	3,6	37	0,6	3,4	92
			> 9,0	-	29	> 9,0	-	63	> 9,0	-	8
4-5.10.17		Бокс синтеза, спекания	2,9	2,3	76	2,5	2,8	64	1,7	2,5	86
			> 19	-	24	> 19	-	36	> 19	-	14
29.09-4.10.17		Бокс измельчения и смешения исходных компонентов и нитридов	-	-	-	14	4,6	100	4,8	2,4	100
4-5.10.17			9,1	4,0	21	9,0	3,4	19	0,8	5,4	8
	> 20		-	79	> 20	-	81	27	1,7	92	

(а) Бокс измельчения и смешения исходных компонентов и нитридов



(б) Бокс синтеза и спекания

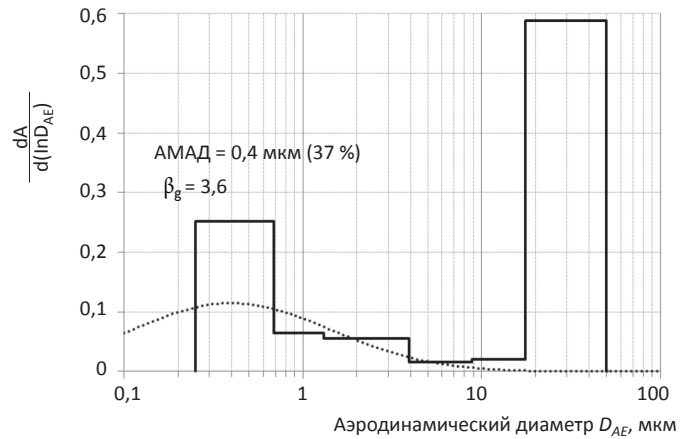
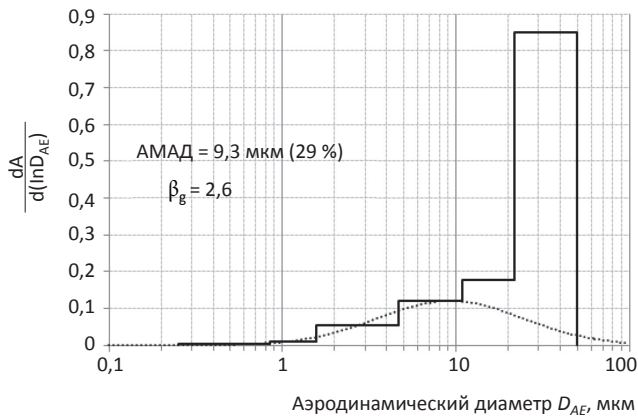


Рис. 1. Распределение активности ²³⁹Pu по АД в ремонтной зоне 29.09-4.10.17
 Fig. 1. Distribution of ²³⁹Pu activity by AD in the repair zone 29.09-4.10.17

(а) Бокс измельчения и смешения исходных компонентов и нитридов



(б) Бокс синтеза и спекания

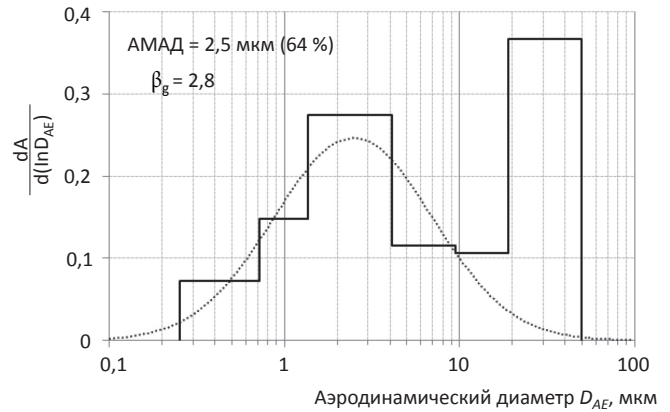


Рис. 2. Распределение активности ²³⁹Pu по АД в ремонтной зоне 4-5.10.2017
 Fig. 2. Distribution of the activity of ²³⁹Pu by AD in the in the repair zone 4-5.10.2017

Таблица 2

Дисперсный состав радиоактивных аэрозолей КЭУ-1 (альфа-радиометрия)
Dispersed composition of radioactive aerosols KEU-1 (alpha-radiometry)

Дата отбора	Зона	Место отбора	Σa			
			АМАД, мкм	σ _g , мкм	Вклад в ОА, %	ОА, ДОА*
25.06 - 2.07.14	Операторская	Место хранения оборотов	8,5	3,7	22	1,3
			> 22	-	78	
03.10.2017		Бокс прессования шашек и таблеток	33	3,2	100	27
2-3.10.17		Бокс контроля содержания примеси углерода в синтезированном нитриде	18	3,5	100	5,0
2-5.10.17		Загрузка-выгрузка оборотов и оснастки	18	3,4	100	6,3
3-5.10.17		Бокс хранения готовой продукции	12	3,4	100	0,5
25 - 30.06.14	Ремонтная	Бокс измельчения, смешения исходных компонентов и нитридов	22	4,4	100	9,4

Примечание: * - 1 ДОА = 0,032 Бк/м³

грубодисперсной фракции – дозовый коэффициент для значения АМАД 10 мкм, тип соединения при ингаляции – П для обеих фракций. Как видно из табл. 3, несмотря на меньший вклад в ОА, вклад субмикронной фракции в ОЭД выше в 2 раза по сравнению с вкладом грубодисперсной фракции.

Анализ динамики счетной концентрации и ОА (рис. 3) указывает на то, что ингаляционное посту-

пление радиоактивных аэрозолей носит импульсный характер, обусловленный кратковременными выбросами.

Данный вывод подтверждается при анализе значений ОА ²³⁹Pu в ремонтной зоне (табл. 4). Суточные значения ОА превышают значения ОА за 5 суток в 3–6 раз.

Более крупные значения АМАД в ремонтной зоне у бокса смешения и измельчения (14 мкм и более)

Таблица 3

Оценка вклада в ОЭД фракций частиц распределения на рис. 2б

Estimation of the contribution to the EED of fractions is shown in Fig. 2b

Фракция	АМАД, мкм	Дозовый коэффициент, Зв/Бк	Вклад в ОА, %	Вклад в ОЭД, %
Субмикронная	0,3	$2,0 \cdot 10^{-5}$	37	67
Грубодисперсная	10	$5,9 \cdot 10^{-6}$	63	33

(табл. 1) указывают на близость к источнику аэрозолей. По-видимому, дисперсный состав у бокса синтеза и спекания обусловлен данным источником: доля грубодисперсной фракции исходного выброса при распространении аэрозоля снижается за счет седиментации, доля торакальной фракции возрастает (рис. 1–2). Однако нельзя исключить влияние высокотемпературных процессов, которые, как известно, являются потенциальными источниками образования наноаэрозолей в производственной среде [16].

Морфология и элементный состав

Обнаруженные методом МСВИ в режиме автоматического сканирования частицы исследованы методом РЭМ-РМА. При оценке элементного состава содержание кремния и углерода не учитывали, поскольку частицы в препаратах помещали на кремниевую подложку и закрепляли их органическим связующим.

В препарате пробы SH-SKC4 методом МСВИ обнаружено двенадцать урансодержащих частиц, в состав пяти из которых входит плутоний. Элементный состав частиц представлен в табл. 5.

Морфология частиц, в состав которых входит плутоний, различается:

- 1) плотная индивидуальная частица смешанного оксида урана-плутония, содержащая в своем составе 3 % азота, размером 1,1 мкм неправильной формы (рис. 4а);
- 2) конгломерат размером 1,3 мкм, содержащим плотную угловатую частицу (0,4 мкм) смешанного оксида урана-плутония с острыми краями;

Таблица 4

ОА ^{239}Pu в ремонтной зоне (по результатам измерений активности ^{239}Pu на каскадах импакторов)

Volumetric activity ^{239}Pu in the repair zone (based on the results of measurements of ^{239}Pu activity on impactor cascades)

Точка	Дата	ОА ^{239}Pu , ДОА
Бокс измельчения и смешения исходных компонентов и нитридов	29.09–4.10.17	$3,8 \pm 0,8$
	4–5.10.17	24 ± 5
Бокс синтеза и спекания	29.09–4.10.17	$5,6 \pm 1,1$
	4–5.10.17	18 ± 4

Примечание: * – 1 ДОА = 0,032 Бк/м³

3) конгломераты размером 0,9 мкм, содержащие в своем составе сферические частицы смешанного оксида урана-плутония диаметром 0,25–0,35 мкм (рис. 4б).

4) конгломерат (1 мкм), который состоит из скопления уран- и плутоний-содержащих частиц размером 20–50 нм (рис. 4в). В конгломерате присутствуют области, в которых обнаружен только уран, без плутония, и области, в которых уран и плутоний присутствуют совместно.

Частицы, содержащие уран без плутония, также можно разделить три группы:

- 1) агрегат оксида урана неправильной формы размером 2 мкм, образовавшийся, по-видимому, в результате взаимодействия (химическое, термическое) сферических и округлых частиц размером 200–250 нм;
- 2) конгломераты (0,5–2 мкм), содержащие скопления (200–250 нм) урансодержащих частиц размером 50–100 нм;
- 3) конгломераты (0,6–1,5 мкм), содержащие рыхлые включения урана на поверхности и в приповерхностных слоях.

Представленные данные находятся в согласии с результатами исследований НП «Лаборатория анализа микрочастиц» 2014 г., когда в пробах воздушной среды из ремонтной зоны были обнаружены субмикронная частица оксида плутония, а также конгломерат урановых частиц субмикронных размеров (рис. 5 а, б) [18].

Таким образом, как показывают исследования морфологии и элементного состава частиц аэрозолей на производстве СНУП топлива, аэрозольные части-

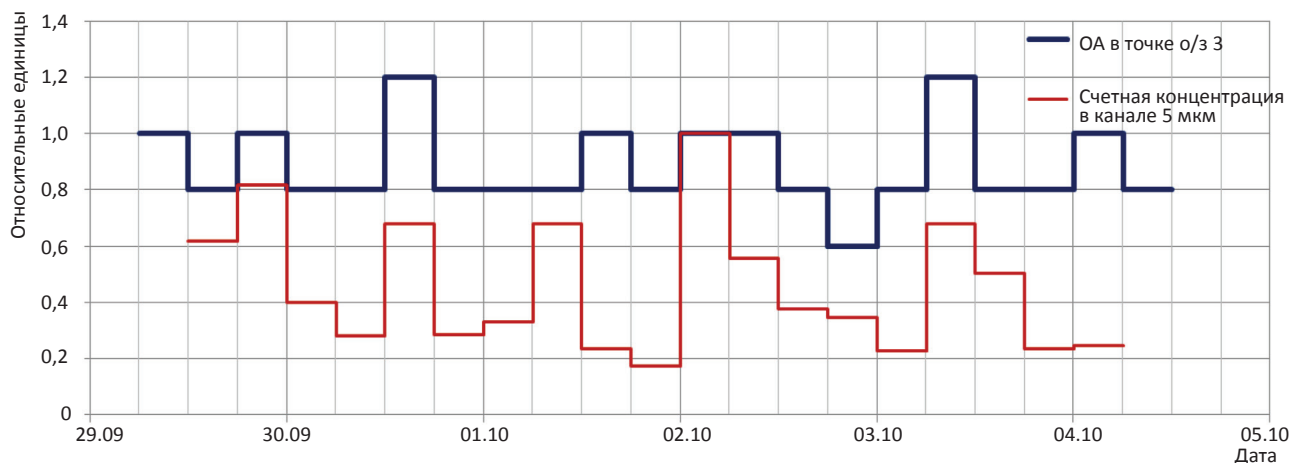


Рис. 3. ОА (в единицах ДОА) у бокса измельчения и смешения исходных компонентов и нитридов в операторской зоне и нормированная счетная концентрация (измеренная счетчиком HandHeld 3016)

Fig. 3. Volumetric activity (in permissible volumetric activity units) at the grinding and mixing box of initial components and nitrides in the operator’s zone and the normalized counting concentration (measured by the HandHeld 3016 counter)

Таблица 5

Элементный состав урановых микрочастиц пробы SH-SKC-4
Elemental composition of SH-SKC-4 uranium microparticles

№ частицы	Содержание, %										
	U	Pu	O	Fe	N	S	Na	P	K	Ca	Mn
1	64 ± 29	-	28 ± 12	5 ± 2	-	-	1 ± 0,5	-	-	-	3 ± 1
2	78 ± 14	10 ± 2	9 ± 2	-	3 ± 1	-	-	-	-	-	-
3	82 ± 22	-	18 ± 5	-	-	-	-	-	-	-	-
4	86 ± 15	-	14 ± 3	-	-	-	-	-	-	-	-
5	74 ± 17	7 ± 2	19 ± 5	-	-	-	-	-	-	-	-
6	42 ± 13	-	37 ± 12	6 ± 2	-	< 1	1 ± 0,5	8 ± 3	-	6 ± 2	-
7	76 ± 20	9 ± 2	15 ± 4	-	-	-	-	-	-	-	-
8	63 ± 13	-	25 ± 6	-	-	6 ± 2	3 ± 1	-	3 ± 1	-	-
9	71 ± 23	9 ± 3	20 ± 7	-	-	-	-	-	-	-	-
10	73 ± 13	5 ± 1	22 ± 4	-	-	-	-	-	-	-	-
11	84 ± 10	-	16 ± 2	-	-	-	-	-	-	-	-
12	62 ± 12	-	32 ± 6	2 ± 1	-	4 ± 1	2 ± 1	-	-	-	-

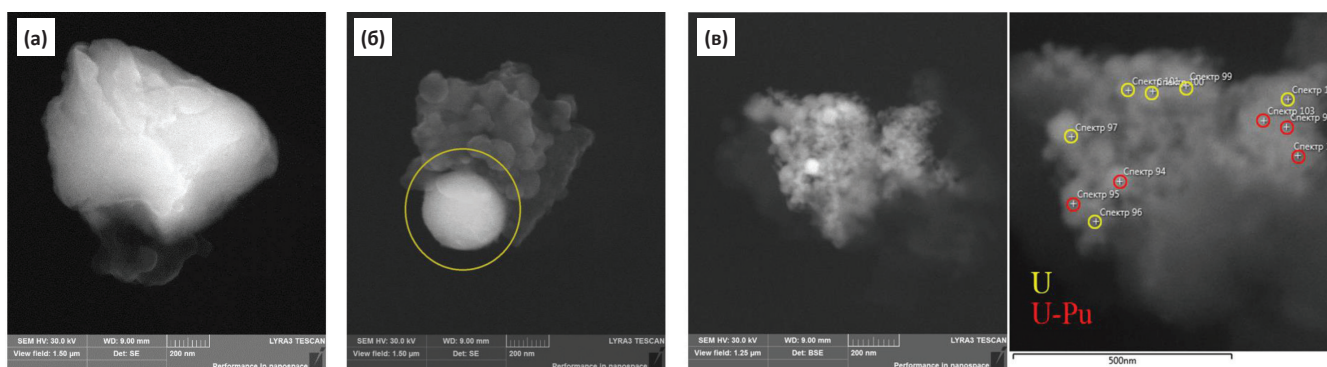


Рис. 4. Проба SH-SKC-4, частицы, содержащие Pu: (а) — частица 2; (б) — частица 7; (в) — частица 10
 Fig. 4. Sample SH-SKC-4, particles containing Pu: (a) — particle 2; (б) — particle 7; (в) — particle 10

цы присутствуют в виде индивидуальных частиц или плотных агрегатов размером 0,2–2 мкм, а также в виде конгломератов размером от 0,5 до 4 мкм на основе оксидов кремния, железа, кальция и т.д., содержащих включения (от 200 до 400 нм) или индивидуальные частицы (20–200 нм) смешанного оксида урана-плутония, либо оксида урана как на поверхности конгломерата, так и в приповерхностных слоях внутри.

При ингаляционном поступлении и последующем взаимодействии с жидкостями тела, можно предположить, что обнаруженные наноструктурированные частицы будут распадаться на индивидуальные частицы. В этом случае, несмотря на присутствие в воздухе рабочей зоны грубодисперсных аэрозолей (что подтверждается исследованиями с помощью каскадных импакторов), внутреннее облучение при ингаляцион-

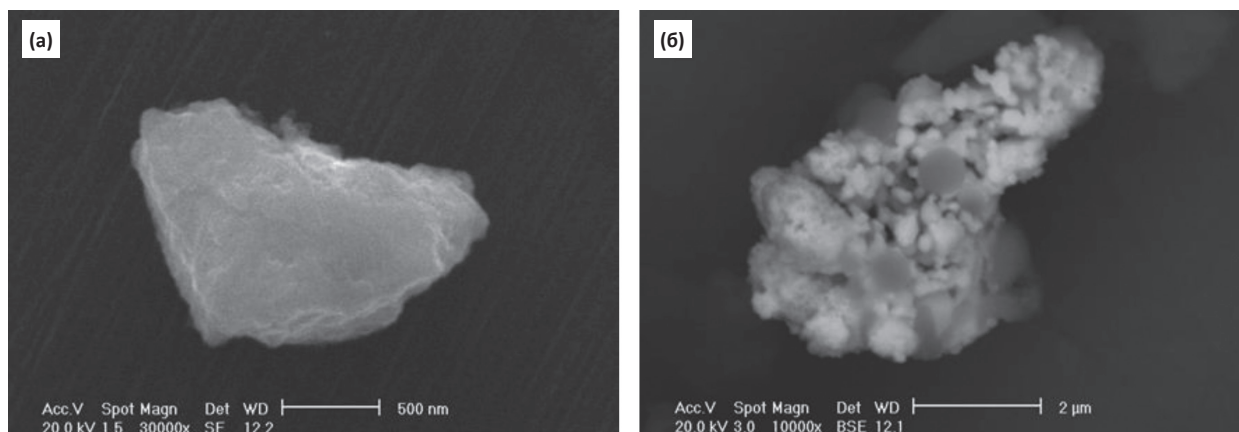


Рис. 5. Проба Н-1 (ремонтная зона): (а) — частица, состоящая из оксида плутония; (б) — конгломерат урановых частиц субмикронных размеров (данные 2014 г.)
 Fig. 5. Test H-1 (repair area): (a) — a particle consisting of plutonium oxide; (б) — a conglomerate of submicron-sized uranium particles (2014 data)

ном поступлении будет определяться частицами субмикронного и, возможно, нанометрового диапазона.

Выводы

1. В операторской зоне основной вклад в объемную активность вносит грубодисперсная фракция радиоактивных аэрозолей, вероятно, обусловленная операциями прессования и дробления. Значение АМАД (Σa) варьирует от 12 до 33 мкм, для ^{239}Pu – от 14 до 27 мкм. Наименьшие значения АМАД (0,4–2,5 мкм для ^{239}Pu) обнаружены у частиц в ремонтной зоне у бокса синтеза и спекания.

2. В ремонтной зоне у бокса синтеза и спекания обнаружено бимодальное распределение активности ^{239}Pu по АД, состоящее из субмикронной (АМАД 400 нм) и грубодисперсной (АМАД более 9 мкм) фракций. При этом, несмотря на меньший вклад в ОА (37 %), вклад субмикронной фракции в ОЭД в 2 раза выше по сравнению с вкладом грубодисперсной фракции, составляя 67 %.

3. Анализ динамики счетной концентрации и объемной активности указывает, что ингаляционное поступление радиоактивных аэрозолей носит импульс-

ный характер, обусловленный кратковременными выбросами.

4. Аэрозольные частицы присутствуют в виде индивидуальных частиц или плотных агрегатов размером 0,2–2 мкм, а также в виде конгломератов размером от 0,5 до 4 мкм на основе оксидов кремния, железа, кальция и т.д., содержащих включения (от 200 до 400 нм) или индивидуальные частицы (20–200 нм) смешанного оксида урана-плутония, либо оксида урана как на поверхности конгломерата, так и в приповерхностных слоях внутри.

5. В пробах обнаружено гораздо большее число ураносодержащих частиц. Так, например, в пробе SH-SKC4 (ремонтная зона) обнаружено 12 ураносодержащих частиц, только в 5 из них выявлен плутоний. Данный результат, по-видимому, обусловлен большей массовой долей оксида урана по сравнению с диоксидом плутония в исходной смеси реагентов. Элементный состав аэрозольных частиц определяется наличием U (63–86 %), Pu (5–10 %) и O (9–47 %), Fe в отдельных пробах до 32 %, другие элементы (Na, S, N, P) содержатся в гораздо меньшем количестве, не превышающем 2–8 %. В составе лишь одной частицы, содержащей уран и плутоний, присутствует азот (3 %).

Size Distribution, Morphology and Elemental Composition of Aerosol Particles on the Fabrication of Mixed Nitride Uranium-Plutonium Fuel

A.G. Tsovyanov¹, A.E. Karev¹, S.M. Shinkarev¹, I.P. Korenkov¹, A.S. Samoylov¹,
V.A. Stebelkov, A.V. Zhukov², K.M. Izmestyev³, S.G. Terentiev³

¹ A.I. Burnasyan Medical Biophysical Center, Moscow, Russia

² Laboratory for Microparticle Analysis, Moscow, Russia

³ Joint Stock Company "Siberian Chemical Combine", Tomsk, Russia

ABSTRACT

Purpose: Study of physical and chemical properties of radioactive aerosols formed on the fabrication of mixed nitride uranium-plutonium (MNUP) fuel.

Material and methods: The following impactors were utilized for activity particle-size distribution analysis: AIP-2, PHRT, IRAM-2-4I (SRC FMBC), Andersen cascade impactor (Copley Scientific, UK), SKC Sioutas (SKC inc., USA). Scanning electron microscope (SEM) Tescan LYRA-3 equipped the X-ray microanalyzer X-max 80 (Oxford Instruments) was used for study of morphological characteristics of aerosol particles. Secondary ion-mass spectrometer Cameca IMS-1280 and track analysis were used for search of particles containing the uranium and plutonium radionuclides.

Results: Values of AMAD (Σa) vary from 12 μm till 30 μm , for ^{239}Pu – from 14 till 27 μm . Lowest AMAD values (0.4–2.5 μm for ^{239}Pu) were found in the repair area near the glove box of synthesis and sintering. The samples contain a much larger number of uranium-containing particles, which is likely due to a larger mass fraction of uranium oxide compared with plutonium dioxide in the initial mixture of reagents. Elemental composition of aerosol particles includes U (63–86 %), Pu (5–10 %) and O (9–47 %), Fe – in some samples till 32 %. Other elements like Na, S, N, P are contained in rather lowest amounts not exceeding 1–8 %. Only one nitrogen-containing particle was found (3 % of N).

Conclusion: Coarse fraction of radioactive aerosols makes a major contribution in activity concentration in air of the operator zone which is driven by such operations as pressing and crushing. Aerosol particles are presented as individual particles or dense aggregates by size of 0,2–2 μm and also as conglomerates by size 0,5–4 μm consisting of oxides (or carbides) of silicon, iron, calcium, etc. containing inclusions (200–400 nm) or individual particles (20–200 nm) of mixed U-Pu oxide or uranium oxide on the surface of conglomerate as well as located in the near-surface layers inside.

Key words: plutonium, radioactive aerosol, AMAD, impactor, mixed nitride uranium-plutonium fuel, scanning electron microscope

For citation: Tsovyanov AG, Karev AE, Shinkarev SM, Korenkov IP, Samoylov AS, Stebelkov VA, Zhukov AV, Izmestyev KM, Terentiev SG. Size Distribution, Morphology and Elemental Composition of Aerosol Particles on the Fabrication of Mixed Nitride Uranium-Plutonium Fuel. Medical Radiology and Radiation Safety. 2020;65(3):59-65. (In Russ.).

DOI: 10.12737/1024-6177-2020-65-3-59-65

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ / REFERENCES

- Карев А.Е., Цовьянов А.Г., Кухта Б.А., Шинкарев С.М., Припачкин Д.А. Метод оценки осаждения частиц радиоактивных аэрозолей в дыхательном тракте человека. Проблемы безопасности и чрезвычайных ситуаций. 2016;5:23-31. [Karev AE, Tsovyanov AG, Kukhta BA, Shinkarev SM, Pripachkin DA. Method to estimate a radioactive aerosol particle deposition in the human respiratory tract. Safety and Emergency Issues 2016;5:23-31. (In Russ.).]
- Огородников Б.И., Сухоручкин А.К., Будыка А.К. и др. Радиоактивные аэрозоли объекта «Укрытие» (обзор). Часть 3. Дисперсность радиоактивных аэрозолей – Чернобыль, 2004. Препр. НАН Украины. Институт проблем безопасности АЭС; 04-4). 60 с. [Ogorodnikov BI, Suhoruchkin AK, Budyka AK, et al. Radioactive aerosols of object “Shelter” (review). Part 3. Particle-size distribution of radioactive aerosols. Chernobyl (In Russ.).]
- Происхождение субмикронной фракции в результатах измерений дисперсного состава аэрозолей объекта «Укрытие»: Отчет ГСП ЧАЭС, инв. ТО ОУ № 364 от 20.12.2002 г. Исп. А.К. Сухоручкин. Славутич, 2002. 22 с. [The origin of the submicron fraction in the results of measurements of the dispersed composition of aerosols of the object “Shelter”: Report GSPChernobyl NPS, inv. TO OY № 364 of 20.12.2002. A.K. Suhoruchkin. Slavutich, 2002. 22 p. (In Russ.).]
- МУ 2.6.1.065-2014. Дозиметрический контроль профессионального внутреннего облучения. Общие требования. [Guidelines 2.6.1.065-2014. Dosimetric control of occupational internal exposure. General requirements (In Russ.).]
- Патент RU 2239815 «Каскадный импактор» от 10.11.2004. Авторы: Цовьянов А.Г., Бадьин В.И., Молоканов А.А., Припачкин Д.А., Ризин А.И., Фертман Д.Е. [Patent RU 2239815 «Cascadeimpactor» from 10.11.2004. Authors: Tsovyanov AG, Badin VI, Molokanov AA, Pripachkin DA, Rizin AI, Fertman DE. (In Russ.).]
- Патент RU 2509375 «Импактор-фантом респираторного тракта человека» от 10.03.2014. Авторы: Цовьянов А.Г., Кухта Б.А., Карев А.Е. [Patent RU 2509375 «Impactor-phantom of the human respiratory tract» of 10.03.2014. Authors: Tsovyanov AG, Kukhta BA, Karev AE. (In Russ.).]
- Цовьянов А.Г., Крамер-Агеев Е.А., Фертман Д.Е. и др. Моделирование и разработка импактора-фантома респираторного тракта человека. АНРИ. 2013(74)52-60. [Tsovyanov AG, Kramer-Ageev EA, Fertman DE, et al. Impactor-Phantom of Human Respiratory Tract: Numerical Simulation and Design. ANRI 2013(74)52-60. (In Russ.).]
- Карев А.Е., Шинкарев С.М., Цовьянов А.Г. Применение соглашения о вдыхаемой, торакальной и респиральной фракциях (ГОСТ Р ИСО 7708-2006) для стационарного и индивидуального контроля объемной активности радиоактивных аэрозолей на предприятиях атомной отрасли. АНРИ. 2015 (83):43-50. [Karev AE, Shinkarev SM, Tsovyanov AG. Application of Sampling Conventions for Inhalable, Thoracic and Respirable Fractions (GOST R ISO 7708-2006) for Stationary and Individual Control of Volumetric activity of Radioactive Aerosols at the Enterprises of Atomic Industry. ANRI. (In Russ.).]
- МУК 2.6.1.08-2004. Определение характеристик распределения радиоактивного аэрозоля по размерам. [Guidelines on control methods 2.6.1.08-2004. Determination of the size distribution characteristics of a radioactive aerosol. (In Russ.).]
- Определение характеристик распределения радиоактивного аэрозоля по размерам с помощью импактора-фантома респираторного тракта человека. Свидетельство об аттестации № 7-4/25.01.00087-2015 от 07.10.2015. ФР.1.31.2016.23130. [Determination of the size distribution characteristics of a radioactive aerosol using the impactor-phantom of a human respiratory tract (certification certificate № 7-4/25.01.00087-2015 of 07.10.2015. FR.1.31.2016.23130) (In Russ.).]
- Методика выполнения измерений активности гамма-излучающих радионуклидов в счетных образцах с применением системы гамма-спектрометрической LabSOCS. Свидетельство об аттестации № 770/07 от 25.06.2007 г. [Method for measuring the activity of gamma-emitting radionuclides in counting samples using the gamma-spectrometry system LabSOCS. Certificate of Attestation № 770/07 of 25.06.2007 (In Russ.).]
- ФР.1.40.2013.15390. Методика измерений удельной активности изотопов урана (^{238}U , ^{234}U , ^{235}U) в пробах почв, грунтов, донных отложений, горных пород и строительных материалов на их основе альфа-спектрометрическим методом с радиохимической подготовкой. Москва. ФГУП «ВИМС». 2013. [FR.1.40.2013.15390. Method of measuring the specific activity of uranium isotopes (^{238}U , ^{234}U , ^{235}U) in samples of soil, bottom sediments, rocks and building materials based on the alpha-spectrometric method with radiochemical preparation. Moscow. 2013 (In Russ.).]
- ФР.1.40.2013.15395. Методика измерений удельной активности изотопов плутония (^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$) в пробах почв, грунтов, донных отложений и горных пород альфа-спектрометрическим методом с радиохимической подготовкой. Москва. ФГУП «ВИМС». 2013. [FR.1.40.2013.15395. Method for measuring the specific activity of plutonium isotopes (^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$) in samples of soil, bottom sediments, rocks and building materials based on the alpha-spectrometric method with radiochemical preparation, Moscow. 2013 (In Russ.).]
- ФР.1.40.2013.15396. Методика измерений удельной активности америция-241 (^{241}Am) в пробах почв, грунтов, донных отложений и горных пород альфа-спектрометрическим методом с радиохимической подготовкой. Москва. ФГУП «ВИМС». 2013. [FR.1.40.2013.15396 Method for measuring the specific activity of americium-241 (^{241}Am) in samples of soil, bottom sediments, rocks and building materials based on the alpha-spectrometric method with radiochemical preparation. Moscow. 2013 (In Russ.).]
- ICRP Database of Dose Coefficients: Worker and Members of the Public. Elsevier. 2001.
- ГОСТ Р 54597-2011. Воздух рабочей зоны. Ультрадисперсные аэрозоли, аэрозоли наночастиц и наноструктурированных частиц. Определение характеристик и оценка воздействия при вдыхании. [GOST R 54597-2011. Air working area. Ultrafine aerosols, aerosols of nanoparticles and nanostructured particles. Characterization and evaluation of exposure by inhalation (In Russ.).]
- <https://www.skinc.com/catalog/pdf/instructions/1690.pdf>
- Отчет о выполнении работ по комплексному обследованию радиоактивных аэрозолей производств ХМЗ «СХК». Договор № 27/02-0399 от 28.03.2014. [Report on the accomplishment of work a «Comprehensive survey of radioactive aerosols of CMP production «SCC» Contact № 27/02-0399 of 28.03.2014. (In Russ.).]
- ICRP Publication 66. Human Respiratory Tract Model for Radiological Protection. Ann. ICRP. 1994;24(1-3).

Конфликт интересов. Авторы заявляют об отсутствии конфликта интересов.

Conflict of interest. The authors declare no conflict of interest.

Финансирование. Исследование не имело спонсорской поддержки.
Financing. The study had no sponsorship.

Участие авторов. Статья подготовлена с равным участием авторов.
Contribution. Article was prepared with equal participation of the authors.

Поступила: 24.11.2019. **Принята к публикации:** 24.06.2020.
Article received: 24.11.2019. **Accepted for publication:** 24.06.2020.