

## $^{235}\text{U}$ 气溶胶粒度分布研究

黄宪果, 涂俊, 苏容波

(中国工程物理研究院 核物理与化学研究所, 四川 绵阳 621900)

**摘要:** 采用固体径迹探测技术测量了  $^{235}\text{U}$  气溶胶的粒度分布。将特定条件下产生的  $^{235}\text{U}$  气溶胶粒子收集在金属采样板上, 将固体径迹探测片覆盖在  $^{235}\text{U}$  气溶胶样品上辐照成像, 采用化学蚀刻技术使其显影成像并放大, 利用光学显微镜进行有关参量测量。在特定条件下,  $^{235}\text{U}$  气溶胶的粒度分布在  $1.6\sim 8.9\ \mu\text{m}$  范围内。

**关键词:** 气溶胶;  $\alpha$  径迹; 化学蚀刻; 粒度分布

中图分类号: TL815.7

文献标志码: A

文章编号: 1000-6931 (2010) S0-0476-04

## $^{235}\text{U}$ Aerosols Particle-Size Distribution

HUANG Xian-guo, TU Jun, SU Rong-bo

(Institute of Nuclear Physics and Chemistry, China Academy of Engineering Physics, Mianyang 621900, China)

**Abstract:** The particle-size distribution of  $^{235}\text{U}$  aerosols was measured by the solid tracks detective technique. The aerosols samples were gathered onto a metal plate by the static electricity dust sampler. The radiograph of any  $\alpha$  radioactive particles was carried out in the solid tracks detective sheet, which was imaged, developed and magnified with the chemical etched technique. The relative parameters were measured on the optical microscope. Finally,  $^{235}\text{U}$  aerosols particle-size distribution under specific condition is  $1.6\sim 8.9\ \mu\text{m}$ .

**Key words:** aerosols;  $\alpha$  track; chemical etch; particle-size distribution

随着核工业的不断发展, 人们逐渐对放射性气溶胶的辐射危害有了较全面的认识, 已开展了气溶胶科学的相关实验研究。在  $^{235}\text{U}$  材料生产和相关实验研究过程中, 均可能产生较小的微粒弥散于空气中而形成  $\alpha$  放射性气溶胶, 如果操作人员吸入或食入这些  $\alpha$  放射性气溶胶, 则会带来非常严重的辐射危害。为了正确评价  $^{235}\text{U}$  气溶胶对人体的辐射危害, 除需进行操作场所  $^{235}\text{U}$  气溶胶的活度浓度测量外, 还需了解  $^{235}\text{U}$  气溶胶的粒度分布。这是因为  $^{235}\text{U}$  气溶胶能否进入下呼吸道而到达肺部以及在肺中的沉积滞留, 与微粒的活性中值动力学直

径 (AMAD) 有关, 且它转入其它器官的份额也与粒度分布紧密相关<sup>[1]</sup>。因此, 本文利用固体径迹探测技术和射线显影技术, 分析特定条件下产生的  $^{235}\text{U}$  气溶胶的粒度分布, 试图探索一种测量  $\alpha$  放射性气溶胶粒度谱的方法。

### 1 原理与方法

为了测量  $^{235}\text{U}$  气溶胶的粒度分布, 利用化学蚀刻技术, 将  $^{235}\text{U}$  发射的  $\alpha$  粒子在固体径迹探测器上形成的  $\alpha$  潜伏径迹在一定条件下进行化学蚀刻处理, 将  $\alpha$  潜伏径迹放大到在普通光学显微镜下能观察到的由热粒子形成的各类形状的  $\alpha$

径迹。通过分析各类形状径迹的有关信息和径迹数,即可确定其粒径的粒数分布。

放射性气溶胶微粒发射的 $\alpha$ 粒子,在固体径迹探测片里形成的 $\alpha$ 径迹分布大致可分为4类:1)单个 $\alpha$ 径迹分布,主要由小粒度的放射性微粒形成;2)由圆形 $\alpha$ 径迹和几个瓜子状 $\alpha$ 径迹构成辐射状分布,主要由稍大一些粒度的放射性微粒形成;3)由中间多个圆形 $\alpha$ 径迹、周围多个瓜子状 $\alpha$ 径迹构成辐射状分布,形同一朵花的花蕊与花瓣,这是由多数气溶胶微粒凝并成较大粒度的放射性微粒;4)径迹互相叠堆呈星形分布,这是由大粒度的放射性微粒形成。这4类 $\alpha$ 径迹分布如图1所示。

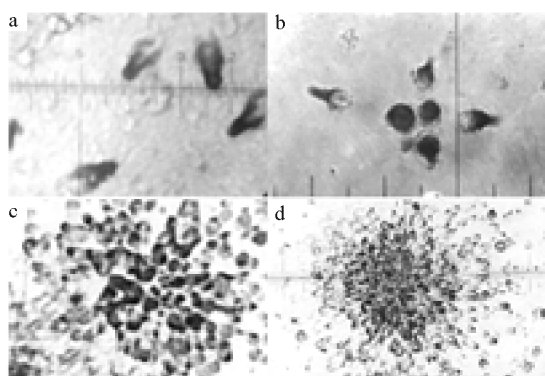


图1 4类 $\alpha$ 径迹分布

Fig. 1 Four kinds of  $\alpha$  tracks distribution

a——单个 $\alpha$ 径迹分布; b——1颗粒子典型的 $\alpha$ 径迹分布;

c——花蕊状 $\alpha$ 径迹分布; d——径迹相叠堆呈星形分布

在分析第1、2类 $\alpha$ 径迹分布形状的微粒粒度时,将其视为是由不同直径的球形粒子所组成。通过在光学显微镜中观察探测片上的 $\alpha$ 径迹数求得这类粒子的直径。对于 $^{235}\text{U}$ 气溶胶,若1颗粒子在探测片上形成对应粒径的 $\alpha$ 径迹数为 $n$ ,则其粒径由下式给出:

$$D_{\text{en}} = [n / (5 \times 10^{-13} N_A t \rho \eta \sum_i \lambda_i f_i / M_i)]^{1/3} \quad (1)$$

式中:  $D_{\text{en}}$  为由 $\alpha$ 径迹计数求得的微粒直径,  $\mu\text{m}$ ;  $n$  为1颗热粒子所形成的可观察到的 $\alpha$ 径迹计数;  $N_A$  为阿伏加德罗常数;  $t$  为辐照时间,  $\text{min}$ ;  $\rho$  为  $\text{U}_3\text{O}_8$  的密度,  $\rho = 8.35 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ ;  $\eta$  为固体径迹探测片的  $4\pi$  探测效率, %;  $\lambda_i$  分别表示  $^{234}\text{U}$ 、 $^{235}\text{U}$ 、 $^{238}\text{U}$  的衰变常数,  $\text{min}^{-1}$ ;  $f_i$  分别表示  $^{234}\text{U}$ 、 $^{235}\text{U}$ 、 $^{238}\text{U}$  的丰度, %;  $M_i$  分别表

示  $^{234}\text{U}$ 、 $^{235}\text{U}$ 、 $^{238}\text{U}$  氧化物 ( $\text{U}_3\text{O}_8$ ) 的相对分子质量。

将有关参数代入式(1)可得到:

$$D_{\text{en}} = 17.88 (n/t)^{1/3} \quad (2)$$

式中:  $n$  为1颗粒径为  $D_{\text{en}}$  的微粒形成的可观察到的 $\alpha$ 径迹计数;  $t$  为辐照时间,  $\text{min}$ 。

对第3类 $\alpha$ 径迹分布形状的微粒,其心蕊部为圆形 $\alpha$ 径迹,实际上是由这种微粒发射的 $\alpha$ 粒子在探测片上的垂直投影。用显微镜标尺或带有螺旋测微器的目镜直接测量心蕊部的最大线度即为该微粒的粒度,而在几个方向上线度的算术平均值作为它的直径,用 $D_i$ 表示。也可摄制成照片,在照片上直接进行分析测量。

对第4类 $\alpha$ 径迹分布形状的粒子,由于径迹互相叠堆呈星族分布,无法用上述两种方法进行测量,可测量星族径迹中心到最外层径迹的距离 $r$ ,根据 $r$ 和蚀刻参量,用下面的半经验公式来估算粒子的最大线度 $L_r$ :

$$L_r = (0.5 + r) \tan \theta_c - v_s t \quad (3)$$

式中:  $L_r$  为用半经验公式确定的微粒线度,  $\mu\text{m}$ ;  $r$  为星族径迹中心到最外层径迹的距离,  $\mu\text{m}$ ;  $\theta_c$  为固体径迹探测片的临界角,取  $19^\circ$ ;  $v_s$  为固体径迹探测片总体蚀刻速率,取  $7.9 \mu\text{m}\cdot\text{h}^{-1}$ ;  $t$  为样品的蚀刻时间,  $\text{min}$ ;  $0.5 \mu\text{m}$  为显微镜的分辨率。

## 2 实验

### 2.1 气溶胶样品采样

在存在 $^{235}\text{U}$ 放射性气溶胶的特定环境中,利用静电采样器收集 $^{235}\text{U}$ 放射性气溶胶样品,各种粒径的气溶胶微粒同时被收集在不锈钢截留样品板上。

### 2.2 化学蚀刻

在采集的气溶胶样品中选择放射性活度适中的1个样品,分别用固体径迹探测片辐照60、300、1 860和6 960  $\text{min}$ 。将辐照后的固体径迹探测片放在温度为  $40^\circ\text{C}$ 、浓度为  $6.5 \text{ mol}\cdot\text{L}^{-1}$  的  $\text{KOH}$  溶液里蚀刻70  $\text{min}$ 。蚀刻、漂洗、凉干后探测片的表面有1层白色层,会严重影响显微镜的观察效果,可用脱脂棉或毛笔在稀的酸溶液里洗刷探测片的两面,然后用清水漂洗,凉干后进行径迹测量与分析。

3 结果与讨论

3.1 测量结果

在辐照时间分别为 6 960、1 860、300 和

60 min 的探测片上, 分析了 369、246、294 和 30 颗这种微粒形成的  $\alpha$  径迹图像, 表 1 列出了这些气溶胶微粒的粒径分布测量结果。

表 1  $^{235}\text{U}$  气溶胶粒径分布测量结果

Table 1 Measured result of  $^{235}\text{U}$  aerosols particle-size distribution

每颗微粒 的径迹数	不同辐照时间下的微粒直径/ $\mu\text{m}$				不同辐照时间下的微粒数			
	6 960 min	1 860 min	300 min	60 min	6 960 min	1 860 min	300 min	60 min
2	1.2	1.8	3.4	5.8	—	—	—	—
3	1.4	2.1	3.8	6.6	—	—	—	16
4	1.5	2.3	4.2	7.3	—	23	—	5
5	1.6	2.5	4.6	7.9	42	19	51	3
6	1.7	2.7	4.8	8.4	34	24	57	3
7	1.8	2.8	5.1	8.9	23	15	38	3
8	1.9	2.9	5.3	9.2	33	19	31	—
9	2.0	3.0	5.6	—	35	13	19	—
10	2.0	3.1	5.8	—	30	16	13	—
11	2.1	3.3	5.9	—	22	14	9	—
12	2.2	3.3	6.1	—	15	12	22	—
13	2.2	3.4	6.3	—	21	14	5	—
14	2.3	3.5	6.4	—	10	13	4	—
15	2.3	3.6	6.6	—	25	10	12	—
16	2.4	3.7	6.7	—	15	7	3	—
17	2.4	3.8	6.9	—	10	7	6	—
18	2.5	3.8	7.0	—	8	6	3	—
19	2.5	3.9	7.1	—	10	9	2	—
20	2.6	4.0	7.2	—	8	5	3	—
21	2.6	4.0	7.4	—	4	2	2	—
22	2.7	4.1	7.5	—	7	3	4	—
23	2.7	4.2	7.6	—	3	3	0	—
24	2.7	4.2	7.7	—	6	1	4	—
25	2.8	4.3	7.8	—	2	1	1	—
26	2.8	4.3	7.9	—	2	1	1	—
27	2.8	4.4	8.0	—	2	5	1	—
28	2.9	4.4	8.1	—	1	1	1	—
29	2.9	4.5	8.2	—	0	2	1	—
30	2.9	4.5	8.3	—	1	1	1	—

从表 1 可看到, 在辐照时间分别为 6 960、1 860、300、60 min 的固体径迹探测片上, 可探测到的气溶胶微粒的粒径范围分别为 1.6~2.9、2.3~4.5、4.6~8.3 和 6.6~8.9  $\mu\text{m}$ 。

由于样品的不均匀性和大颗粒气溶胶微粒形成的  $\alpha$  径迹覆盖了部分小颗粒形成的  $\alpha$  径迹, 所以, 不可能用单位面积内平均微粒数将各粒径段的粒度谱连接起来。本文采用相邻对应谱段的重叠部分搭接的方法, 图 2 示出了连接后, 静电采集这种气溶胶的粒数粒度谱。

3.2 讨论

可吸入气溶胶的空气动力学直径  $D_s$  范围的上截点为 10  $\mu\text{m}$  (在考虑单分散相时, 认作为 MMAD 或 AMAD)。按照静电采集非球形导电性气溶胶, 其动力变形系数  $K_e$  为  $3/8\pi = D_{en}'^2/D_s'^2$ , 不难得到这种  $^{235}\text{U}$  气溶胶可吸入的截点由质量粒度分布  $g(D_{en}')$ , 其  $D_{en}'=3.5 \mu\text{m}$ ,  $D_{en}=3.1 \mu\text{m}$ 。因此, 根据图 2 及其静电取样在收集效率均等的条件下, 可提供有意义的剂量估算所需谱和相应的 AMAD 值。

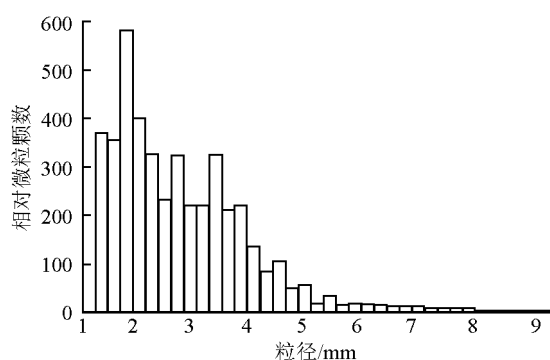


图2  $^{235}\text{U}$  气溶胶的粒子谱分布  
Fig. 2 Particle-size spectrum of  $^{235}\text{U}$  aerosols

利用空气动力学原理来收集气溶胶样品时,希望能确定以质量(或活度)中位空气动力学直径范围为 $0.5\sim 10\text{ }\mu\text{m}$ 的粒度谱。依本工作的方法和条件,当1颗粒径为 $0.35\text{ }\mu\text{m}$ 的 $^{235}\text{U}$ 气溶胶微粒产生3条可观察的 $\alpha$ 径迹所需的辐照时间约278 d;而对1颗粒径为 $0.15\text{ }\mu\text{m}$ 的 $\text{PuO}_2$ 气溶胶微粒产生3条可观察的 $\alpha$ 径迹所需的辐照时间只需3 d。所以,这种方法更适于用来研究 $\alpha$ 放射性比活度大的核素的气溶胶粒度谱。

本文采用的气溶胶样品,是1次特定事故后以 $\text{U}_3\text{O}_8$ 成分的高浓 $^{235}\text{U}$ 气溶胶为对象,通过取样管道用静电采样器采集的样品,大粒径的 $^{235}\text{U}$ 气溶胶微粒较多。当采用1个 $\alpha$ 放射性气溶胶样品来分析气溶胶微粒的粒度谱时,由于大粒径产生的 $\alpha$ 径迹对小粒径的覆盖,使得在显微镜下测量小微粒的粒径、区分和分割微粒以及数据处理和谱段的连接这几段程序上,均会遇到一些困难。文献[2]利用撞击取样方法获取气溶胶样品,分析、研究了两个后处理工厂释放到环境中的 $^{235}\text{U}$ 元素气溶胶的微粒谱。

#### 参考文献:

- [1] 卢正永. 气溶胶科学引论[M]. 北京: 原子能出版社, 2000.
- [2] CENTER B, RUDDY F H. Detector and characterization of aerosols containing transuranic elements with nuclear track techniques[J]. Anal Chem, 1976, 48: 2 135.