

美国国家实验室钚气溶胶研究进展

谢波, 龙兴贵

中国工程物理研究院核物理与化学研究所, 绵阳 621999

摘要 钚气溶胶主要来源于核武器试验与核反应堆事故, 这两种方式产生的粒子直径差异较大。钚气溶胶研究在核试验数据分析、核武器扩散监督、核取证分析、核安全监测、核能源开发等方面意义重大。本文综述了洛斯-阿拉莫斯(LANL)、劳伦斯-利弗莫尔(LLNL)、桑迪亚(SNL)、太平洋西北(PNNL)、橡树岭(ORNL)、阿贡(ANL)、爱达荷(INL)等7个美国国家实验室对钚气溶胶物化性能的相关研究进展, 涉及气溶胶特性表征、动力学粒径分布、滞留时间、仪器分析、收集与取样、形成机理等内容。研究现状表明, 钚气溶胶在不同场景下的物化行为数据有限, 实验验证难度大, 仍然是一个充满挑战的难题。

关键词 钚气溶胶; 粒径; 源项; 美国国家实验室

钚气溶胶是钚元素的一种重要存在状态, 分布于整个生物圈中, 是核武器试验与核电站事故释放的一种毒性物质。钚气溶胶的具体来源有4种^[1]: 一是钚金属的氧化或挥发; 二是辐照后的铀或铀化合物中生成的钚(主要是²³⁹Pu)氧化或挥发; 三是含钚悬浮液或水溶液的飞沫分散; 四是被钚污染后的土壤或粉尘的再悬浮。由于钚气溶胶与核试验、核武器扩散、核取证分析、核安全事务、核能源等方面密切相关, 众多机构开展了大量研究, 涉及理论计算、物理、化学、生物、医学等, 形成了对钚气溶胶比较全面的认识。尤其值得重视的是, 美国的多个国家实验室对钚气溶胶的兴趣一直不减, 实验室之间的分工与侧重点也十分明确。本文综述了洛斯-阿拉莫斯(LANL)、劳伦斯-利弗莫尔(LLNL)、桑迪亚(SNL)、太平洋西北(PNNL)、橡树岭(ORNL)、阿贡(ANL)、爱达荷(INL)等7个美国国家实验室对钚气溶胶的研究进展, 期望对中国钚气溶胶研究有所参考。

1 洛斯-阿拉莫斯国家实验室(LANL)

LANL是美国能源部(DOE)3大武器实验室之一, 其主要任务是利用世界级科学技术维护美国核武库, 在不进行地下核试验的情况下认证库存核武器是否安全和可靠^[2]。LANL涉及钚气溶胶的部门包括现代化钚加工车间(PF-4)、钚工艺化学与冶金实验室(CMR)、放射化学与热室实验室(TA-48)和保健研究实验室(HRL)。

1.1 PF-4事故后的钚气溶胶表征

2000年3月16日, PF-4的一个手套箱系统发生事故, 未知量的²³⁸PuO₂气溶胶发生了泄漏^[3]。至少5名工人体内受到污染, 其中4人需要接受螯合促排治疗(chelation therapy)。医院首先启动的工作是测定所泄漏气溶胶的粒径分布和溶解度, 使用不同直径的玻纤空气过滤采样器和混合纤维素酯连续空气监测器对钚气溶胶取样, 采用 α 谱仪辨识²³⁸Pu同位素, 通过自动射线照相术确定过滤器上气溶胶粒子的空间分布, 还通过径迹测量自动照相术来消除测量中过滤器上个别钚粒子的 α 活性分布, Lovelace喷雾器用于分散乙醇中的再悬浮粒子, 多喷口级联撞击器用于空气动力学直径的表征。

上述实验中的亮点有4个: 1) 得到了空气动力学粒径分布曲线、空气动力学直径中间值(AMAD)和几何标准偏差, 其中所得粒径分布与 α 径迹探测结果一致(图1); 2) 通过钚气溶胶样品用于合成血清超滤液(SUF)的体外溶解度研究, 发现未溶解²³⁸Pu保留值呈指数函数关系, 大部分²³⁸Pu溶解1/2的周期是900 d, ²³⁸PuO₂粒子的溶解速率高于²³⁹PuO₂, 说明SUF溶剂可用于测定钚粒子的溶解速率^[4]。此外, 肺癌血清液体也被作为研究对象, 模拟粒子的溶解速率^[5]; 3) 在钚金属的空气氧化实验中, 发现氧化温度严重影响粒径分布, 产生的钚气溶胶是鳞状、易碎、氧化的粒子。温度越高, AMAD值越大, 小于1 μm 的粒子几乎没有, 当使用钚的 δ 合金时粒子粒径更大。改变实验条件(钚金属在氩气中加热)获得了不同

收稿日期: 2017-04-10; 修回日期: 2017-07-21

作者简介: 谢波, 副研究员, 研究方向为核燃料循环与材料, 电子邮箱: caepxiebo@163.com

引用格式: 谢波, 龙兴贵. 美国国家实验室钚气溶胶研究进展[J]. 科技导报, 2017, 35(21): 115-124; doi: 10.3981/j.issn.1000-7857.2017.21.014

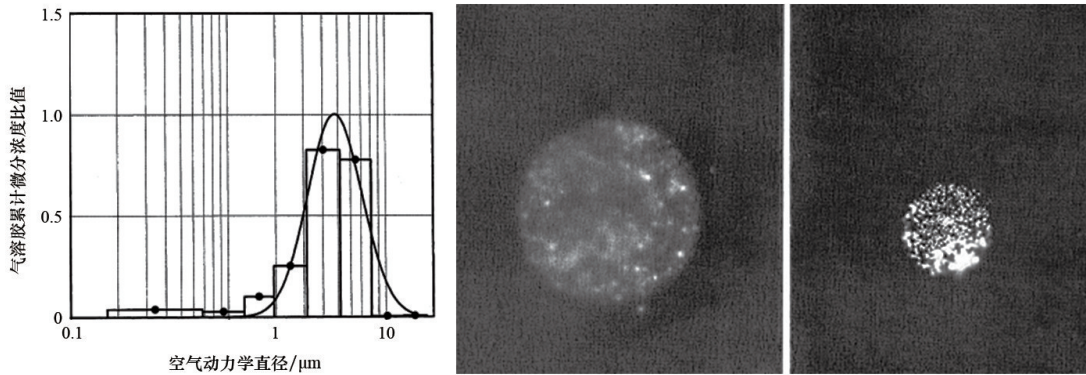


图1 PF-4事故后的钚气溶胶粒径分布与径迹相片
Fig. 1 Size distribution of Pu-aerosols and rail photos after the PF-4 accident

结果,在剧烈的氧化过程中,温度骤降则产生钚蒸汽的烟雾,压缩时粒子以约0.1 μm 的直径进行链式凝结;4) 钚丝(wire)电流熔爆和钚条(chips)在火上的燃烧也产生了烟雾气溶胶,针对火灾事故中钚释放动力学条件的限制因素,开展钚气溶胶化的源项数据评估^[6-8],推荐空中释放部分(ARF)的数值为33 g $\text{PuO}_2/\text{m}^2 \cdot \text{min}$,可吸入部分(RF)的数值为 1.0×10^{-4} 。

1960—2004年,PF-4多次利用安德森(Andersen)级联撞击器,在美国原子能委员会(USAEC)钚工厂收集通风管中的气溶胶,针对不同操作条件下所产生气溶胶测定了粒径分布,发现在切割和机械加工区域所产生的气溶胶粒径相对较大,超过50%的粒径在1~5 μm ;而在回收区域的气溶胶活度更高,超过70%为亚微米级粒子,给过滤车间的设计带来难题^[9]。针对这一问题,多级高效气溶胶粒子(high efficiency particulate aerosol, HEPA)过滤器的性能得到了Manuel等^[10]的证实。在 PuO_2 气溶胶活度和AMAD直径理想的条件下,对比了3套过滤器,发现每套过滤器的平均渗透率低于0.02%, PuO_2 的最大渗透在0.4~0.7 μm 。流量对HEPA过滤器的渗透影响很小^[11]。

1.2 TA-48采用内溅射描述钚气溶胶粒子

钚气溶胶在大气、生物介质和地下水中存在放射性的自发变化。TA-48采用内溅射(internal sputtering)描述放射性现象的转移,摒弃了过去聚集反冲(aggregate recoil)的说法,第一次报道了此现象中的气溶胶粒径特征^[12]。TA-48找到2个狭窄的、分离效果好的碎片,一个对应的粒子粒径在纳米以下,另一个小于10 nm。

气溶胶扩散与粒子粒径直接相关,内溅射引起气相成核现象。TA-48采用的钚源为直径6.25 mm的 $^{238}\text{PuO}_2$ 靶丸,表面活度200 MBq。2套装置分别为过滤取样装置和浸提器取样装置。过滤器取样是收集测量 ^{238}Pu 发射粒子的放射性产率,过滤后的空气作为粒子载体。为了取样测量 ^{238}Pu 反冲粒子,浸提器取样装置采用直径为38.1 mm的5级不锈钢丝网,用一个玻璃纤维过滤器收集所有穿透丝网的粒子。TA-48认为^[13],基于过滤行为的超细粒子的穿透,遵循屏浸提理论

(screen diffusion battery theory),从钚粒子产率与取样流量速率、收集时间的关系可知,气溶胶的形成率随取样流量速率和收集时间的增加而增加。将浸提器取样装置的计数数据输入模型后,得到了二次运行的钚粒子活性粒径分布图,呈现双峰特征,说明溅射理论适用于分散粒子群的源项分析。

1.3 CMR表征钚气溶胶粒径分布

气溶胶粒径分布决定粒子的传输、沉积与合并。1979年国际辐射防护委员会ICRP 30号文件将可能造成危害的放射性气溶胶粒径假定为1 μm ,在1994年的ICRP66号文件中提高至5 μm 。然而,归纳气溶胶的粒径和形状是相当复杂的,从钚加工车间中获取粒径分布数据也是罕见的,这是因为放射性气溶胶分布模式的变化十分复杂。CMR认为^[14],可吸入粒径范围的气溶胶粒子对人的健康与安全是一种危害,粒径分布有3种模式:对数正态分布(lognormal)、双峰分布(bimodal)和三峰分布(trimodal)。对数正态分布在拟合粒子分布方面十分有用,因为它允许的粒径跨度很大;双峰分布适用于2个区别明显的模式或两个分开的物理过程,通常由2个单独的对数正态分布组成;三峰分布用于3个独立的物理过程。不同的加工操作过程产生不同的粒子。如焊接等热处理操作,产生的烟雾含有非常细的颗粒。喷涂操作产生的液滴粒子粒径更大。研磨和切割等机械操作将产生粗粒子。

3种典型的钚处理过程(实验室研究、钚的化学回收、机械操作中的钚加工)都将产生大量的钚气溶胶。Harry等^[15]采用8级Anderson撞击器,在忽略气溶胶颗粒对 α 粒子自吸收的前提下,获得了样品在不同取样位置、不同取样方式下的钚气溶胶活度,包括最大值、最小值和平均值,计算了AMAD直径和几何标准偏差的最大值、最小值和平均值,撞击器内没有出现明显的粒子反弹。

1.4 HRL同位素分析六氟化钚(PuF_6)气溶胶

PuF_6 的在线钚同位素分析,对任何钚同位素分离流程中的过程控制与核材料安全都是非常重要的。很多研究致力于分析常规的钚样品, PuF_6 样品的分析较为罕见。Li等^[16]第一次利用高分辨率、低能的 γ -射线谱分析了 PuF_6 气溶胶,样

品压力的变化范围为 20~4130 Pa, 测量结果与 PuF_4 的质谱结果一致。1333 Pa 反应堆级纯的 PuF_6 在 10 min 测量下的精度, ^{238}Pu 达到 1.5%、 ^{239}Pu 达到 0.22%、 ^{240}Pu 达到 0.87%、 ^{241}Pu 达到 17.5%。尽管得到 PuF_6 样品的同位素重量分布、钚同位素测量精度与 PuF_4 分压、钚质量、计数时间的关系, 绘制了 PuF_6 样品与 PuF_4 样品的相对效率曲线, 但钚气溶胶中是否存在 PuF_6 或 PuF_4 还未得到实验证实。

1.5 爆轰钚气溶胶的物化行为

LANL 对炸药爆炸条件下的钚气溶胶源项和扩散进行了研究, 为钚气溶胶数值模拟的源项特征提供依据。对爆炸形成粒子的分析, 可了解爆炸过程中核材料的行为, 掌握核材料在形成粒子中的状态、成分含量以及小粒子相互的黏合情况, 完成对实验测试数据的不确定性评估。氧化钚中氦释放规律研究表明^[17-19], 氦气释放率随温度的升高而升高。

钚气溶胶中的气体释放研究, 不仅要研究不同大小粒子的释放率, 还须研究爆后粒子的分布规律, 需开展模拟爆轰条件下气溶胶生成量及粒径分布规律研究。LANL 联合德国卡尔斯鲁厄实验室 (FZK) 开发了三维流体动力学模型工具 Gasflow, 用于预测气溶胶的输运、分层、混合和燃烧行为, 获取组分和粒子时空分布^[20-21]。计算结果与早期 Peterson 等^[22] 的结论相符, 气相中 10 μm 以下气溶胶粒子粒径主要集中在 1.8 μm 左右, 且有凝并现象, 与贫铀弹爆炸气溶胶和焊接气溶胶相似, 自然沉降效率很低, 体积浓度基本不变, 数量浓度随时间增加而降低。

2 劳伦斯-利弗莫尔国家实验室 (LLNL)

LLNL 的主要职责是承担核武器改进、安全、可靠储存、防止核扩散、库存核武器管理方面的研究工作, 同时承担新能源环境保护和生物工程领域的军转民任务^[23]。LLNL 涉及钚气溶胶研究的大型设施有侦破科学中心 (FSC), 联合铜系元素冲击物理实验设施 (JASPER), 国家大气释放咨询中心 (NARA) 和辐射探测中心 Superblock, 进行了多次探索包括气溶胶在内的物理与材质属性的里程碑试验^[24-25]。

2.1 比基尼试验场钚气溶胶的再悬浮研究

比基尼 (Bikini) 试验场位于中太平洋马绍尔群岛共和国的比基尼环礁。1978 年 5 月, LLNL 健康和生态评价部对比基尼岛进行了钚气溶胶的再悬浮研究^[26], 使用各种空气取样装置确定粒径分布和质量负载, 微气象技术用于气溶胶流量的定量, 湿化学法分析收集气溶胶的核素和元素浓度。第一批收集使用了 4 个撞击器, 将含海水的气溶胶进行收集, 测量蒸馏后水中的 Na、K、Mg、Ca 和 Zn 元素含量。第二批收集采用了 14 个大容量空气取样器和 2 个级联撞击器, 使用化学方法确定 ^{238}Pu 、 $^{239,240}\text{Pu}$ 、 ^{90}Sr 、 ^{137}Cs 和 ^{241}Am 等同位素的浓度。对极低放射性水平的悬浮气溶胶进行测量, 正常流量 2550 m^3/h 。

最终获得的数据包括: 距海岸线不同距离的气溶胶浓度和海水浓度、比基尼岛上的钚气溶胶浓度和粒径特征、岛上气溶胶中的 Pu 活度与增强因子。1997 年 5 月至 1999 年 4 月,

国际原子能机构 (IAEA) 派出了一支环境监测队对比基尼环礁实施了环境测量和取样, 目的是验证以前采集资料的准确性, 结果认为调查期间的测量结果与 LLNL 的报告评估一致。

2.2 约翰斯顿 (Johnston) 试验场土壤清理现场的钚气溶胶

约翰斯顿试验场位于北太平洋中部的波利尼西亚群岛, 1962 年美国在此进行了 7 次导弹发射试验, 4 次失败, 造成约翰斯顿环礁严重污染, 污染物以不可溶性的氧化钚形式存在, 弥散直径约 10 μm 、活度约 10 Bq 的超铀元素粒子在土壤中移动, 并随降雨、潮汐或地下水的运动而发生。直径 < 45 μm 、活度 > 1 kBq 的热粒子则相对稳定, 只有在受到侵蚀、挖掘或物理扰动的情况下才会迁移。1992 年 10 月至 1995 年 2 月, 在美国国防部核武器局 (DNA) 和新墨西哥州科特兰空军基地的资助下, LLNL 对约翰斯顿环礁土壤清理现场的钚气溶胶进行了测量^[27]。该测量分为 4 个阶段, 即 1992 年 10 月 14 日至 11 月 14 日, 1993 年 10 月 20 日至 11 月 15 日, 1994 年 8 月 16 日至 11 月 3 日和 1995 年 2 月 17 日至 27 日。在 4 个监控地点 (弃土堆、植被区、干净堆、超大尺寸土壤区) 各使用了 2 台大容量空气取样器 (HVAS), 纤维素纤维过滤器对 0.3 μm 液体气溶胶的过滤效率为 70%, 对固体气溶胶的过滤效率为 92%~94%, 对较大粒子的过滤效率超过 98%^[28]。

放射分析方法用于纤维素纤维基片上粒子中 ^{238}Pu 、 $^{239,240}\text{Pu}$ 和 ^{241}Am 的定量, 这些超铀同位素的检测极限为每个样品 < 0.01 Bq, 测量流程^[29] 为样品酸法的完全溶解、离子交换分离、电解法沉积及回收、内化学产额示踪剂 (internal chemical yield tracers) ^{242}Pu 和 ^{243}Am 进行 α 光谱分析^[30]。根据监测期间土壤清理现场悬浮气溶胶的 Pu 活度和质量负载数据, 得到了 $^{239,240}\text{Pu}$ 气溶胶活度, 从而判断工人受照有高风险。钚的 AMAD 为 3.4 μm , 位于“可吸入”范围中间^[31]。辐射防护对工人暴露给 $^{239,240}\text{Pu}$ (肺保留等级 Y) 的浓度要求是 2220 $\mu\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$, 这个数值由 DOE 设定^[32], 符合美国联邦法规条款。此外, 在 2001 年还给出了 1999 年 5 月至 2000 年 1 月间约翰斯顿环礁空气中钚浓度的变化情况。

2.3 事故后钚气溶胶物化特性的预测

真实和模拟的核事故下, 包括核武器的燃烧^[33]、核裂变前的爆炸、近距离的核反应堆事故现场, 都关心钚气溶胶粒子的摄入。从健康风险评估的角度, 需要预测两个过程: (1) 空气中产生“可吸入”钚浓度的第一次过程; (2) 引起钚量向空气扩散的第二次过程 (钚气溶胶的散发速率) 及随后的再分配。“可吸入”的定义是粒子的空气动力学直径 < 10 μm , 再悬浮钚粒子在 2~5 μm 的粒径正态分布中有峰值。

在第一次过程中, 可以返回事故现场, 原因是, 在 20~30 d 的时间内放射性核素活度可能下降 5 个数量级。Shinn 等^[34] 假设这种现象的原因有两个: (1) 下降粒子最初是黏附在任何可利用的表面上, 随着时间流失和黏着力越来越大, 粒子转移位置; (2) 粒子下降过程远快于迁移进入土壤的过程。但是, 依赖时间的经验模型过于保守, 极有可能过高估计了空气中的钚浓度。预测空气中钚浓度的一个简单模型是再

悬浮因子概念,在这个模型中,消除了风和天气条件的变化,对一段时期内的铯浓度进行整合与区分。另一个模型是质量负载概念,即预测铯气溶胶的活度和总悬浮颗粒物的质量负载。有研究表明^[35]:在非裂变类型事故和距离裂变事故很远的地方,增强因子为 0.7;在交通繁忙路段、推土机平整路面、野火、制冷—融化循环等情况下,增强因子可升至 2.5~6.5;而在核裂变事故现场,增强因子仅为 0.01,此时再悬浮因子下降至 $10^{-13} \sim 10^{-11} \text{ m}^{-1}$ 。

在第二次过程中,为了预测铯气溶胶散发速率,定义流量与湍流扩散系数的关系,空气中悬浮粒子质量随高度的增加而减小,铯气溶胶再悬浮速率在一般情况下介于 $10^{-11} \sim 10^{-12} \text{ s}^{-1}$ ^[36],但在特殊场合,例如易受侵蚀的沙地土壤或扰动剧烈的土壤,其值 $>3 \times 10^{-11} \text{ s}^{-1}$ 。

3 桑迪亚国家实验室(SNL)

SNL的主要任务是核武器管理、军备控制、能源与环保研究,与多国相关机构在边界及导弹监视、核查技术、防扩散等方面保持合作。SNL包括铯气溶胶在内的研究特色是仿效贝尔实验室的经营模式,具备聚焦科学式的即时响应,其代表性的案例有 2 个,一是为洛克希德-马丁公司(LMC)提供了卡西尼任务(Cassini Mission)最终安全分析报告的背景信息,即火星爆炸后的铯气溶胶分布与粒子质量^[37-38];二是进行了一系列的大规模火灾测试实验,目的是在不同场景的容器中,模拟、观察含铯固体废物材料的燃烧行为^[39-41]。

3.1 核燃料气溶胶泄漏的源项分析

核事故或人为活动造成放射性材料的泄漏,对公众和环境造成风险,开展风险评估是非常重要的。Durbin 等^[42]利用数学与假设模型,对恶毒攻击事件造成的核燃料气溶胶泄漏的源项,包括新旧源项模型的对比,对每个模型参数的说明和估算,完成了由于事故或人为活动造成的气溶胶泄漏中放射性核素的源项计算,与植物和反应堆安全协会(Society for Plant and Reactor Safety, GRS)的测试^[43]比较后发现,最大误差为 36%。

DOE 在《非反应堆核设施空中释放成分/速率和可吸入成分手册》中,提出一个通用公式估算释放材料的源项

$$\text{源项 } ST = MAR \cdot DR \cdot ARF \cdot RF \cdot LPF \quad (1)$$

式中, MAR 为处于风险的材料; DR 为损坏比率,即被攻击损坏的体积与风险材料的总体积之比; ARF 为空中释放部分; RF 为在 ARF 中可吸入的部分; LPF 为泄漏路径因子。

在辐射防护与核安全机构(IRSNI)中的源项公式为

$$\text{源项 } ST = MAR \cdot FDAM \cdot FSUS \cdot FRES \cdot FEXP \cdot FRED \quad (2)$$

式中, $FDAM$ 为损坏部分; $FSUS$ 为材料悬浮或气溶胶形式存在的部分; $FRES$ 为 $FSUS$ 中可吸入的部分; $FEXP$ 为增压作用下从容器体积源项中排出的部分; $FRED$ 为包括在容器体积内的沉积过程和化学反应、沿逸出通道沉积的降低因子。与 DOE 不同之处在于,该公式考虑了容器内的增压气体作为动

力将气溶胶驱赶至外部环境中。

SNL的源项模型是基于 DOE 和 IRSNI 的双重概念,并融入了与实际尺寸相当的沸水堆(BWR)和压水堆(PWR)的测试数据。在过去的模型中,事故受损材料量 m_{Dam} 可分别表示为 $MAR \cdot DR$ 和 $MAR \cdot FDAM$, 仅仅是乏燃料中第一包壳受影响燃料的量,在考虑测试数据后,这个量的材料气溶胶化后,在可吸入的范围内可以定义 2 个独立的源项 ST_{Prompt} 和 $ST_{Delayed}$

$$ST_{Prompt} = (m_{Dam} \text{ 或 } A_{Dam}) \cdot RF_{SNL} \cdot SFR \cdot (EF) \quad (3)$$

$$ST_{Delayed} = (m_{Dam} \text{ 或 } A_{Dam}) \cdot SFR \cdot (EF)(RF_{HED} - RF_{SNL}) \cdot$$

$$(1 - f_{Dep,Cask}) \cdot (1 - f_{Dep,E.sc}) \cdot \left[1 - \frac{V_{Free}}{V_{Free} + V_{Cask} + V_{Rods}} \right]$$

$$ST_{Tot} = ST_{Prompt} + ST_{Delayed} \quad (4)$$

式中, m_{Dam} 为第一包壳受损燃料的质量; A_{Dam} 为第一包壳受损燃料的活度; SFR 为乏燃料比率($RF_{Spent Fuel}/RF_{Surrogate}$),可能范围在 $1 \sim 12$ ^[44]; EF 为挥发性同位素的富集因子,与粒径相关; ST_{Tot} 为从容器中释放的可吸入气溶胶总量; ST_{Prompt} 为瞬发释放的部分可吸入气溶胶; $ST_{Delayed}$ 为气体吹扫容器后可吸入气溶胶的逸出部分; RF_{SNL} 为在 SNL 实际测试中的可吸入气溶胶部分^[45]; RF_{HED} 为高能装置(HED)产生的可吸入气溶胶部分; $f_{Dep,Cask}$ 为可吸入气溶胶沉积在室里的部分^[46]; $f_{Dep,E.sc}$ 为可吸入气溶胶沉积逃逸的部分^[47]; V_{Free} 为室自由体积; V_{Rods} 为标准状态下(STP)受损燃料棒充满衰变气体的体积。完成破坏后受损燃料质量估算后,通过源项模型输入,得到气溶胶粒径分布。

3.2 替代物/乏燃料破坏下的气溶胶测试

即使面对严重事故,包壳可有效阻止核燃料物质向公众区域的释放。但是,在一些破坏性的攻击场景下,来源于分裂燃料靶件的气溶胶粒子可能发生释放。假设的破坏性场景是,恐怖分子携带穿甲武器进入包含乏燃料组件的包壳,意图使含放射性燃料成分的气溶胶迅速扩散^[48]。为了预测这种辐射影响的后果,必须证实释放的确切量、核素成分和释放物质的粒径分布。考虑到安全、费用、废物处理、可行性等因素,SNL 采用高能密度装置(HEDD),例如穿甲武器、锥形装药器(CSC)等集中高爆炸性装置直接作用于燃料^[49]。这是一个多国、多方合作的工程计划,由 SNL 主持实施^[50]。该工程的最初目标是分析与测量 HEDD 对燃料棒破坏或包壳损坏后产生的气溶胶粒子的综合特征,欲获取的关键数据包括: (1)乏燃料比值(SFR),即乏燃料气溶胶粒子质量与替代气溶胶粒子质量的比值; (2)挥发性裂变产物核素(例如铯、钡)的富集、分馏与分级行为。

该工程分为 4 个阶段:第一阶段在 2002 年 1 月至 8 月,使用玻璃靶丸作为易碎材料,第一阶段的 HEDD 撞击气溶胶测试装置如图 2 所示^[51];第二阶段从 2002 年 9 月至 2004 年 7 月,使用非放射性材料, CeO_2 烧结陶瓷靶丸装在铝合金包覆管中,实验装置如图 3 所示^[51];第三阶段从 2004 年 9 月至 2005 年 3 月,采用弱放射性材料贫化铀氧化物 DUO_2 ;第四阶段从 2005 年 9 月至 2008 年 9 月,采用放射性的真实乏燃料靶丸。



图2 第一阶段替代材料为玻璃/铅玻璃的气溶胶测试装置
Fig. 2 Aerosols testing device with glass/leaded glass in the first phase



图3 第二阶段替代材料为CeO₂的气溶胶测试装置
Fig. 3 Aerosols testing device with CeO₂ in the second phase

值得一提的是,在第二阶段中选择CeO₂的原因是:1) 化学性质与铀氧化物相似;2) 非放射性材料;3) 通过挤压和烧结可制成陶瓷丸,类似于铀氧化物燃料丸;4) 具有易碎性和陶瓷特点,喷射撞击下易形成气溶胶,类似于DUO₂和UO₂陶瓷丸;5) Ce是锕系元素U和Pu的最佳替代物和同系物;6) Ce有多个氧化态(+3, +4),类似于U和Pu的价态(+3, +4, +5, +6),CeO₂和UO₂有相同的萤石型离子晶体结构^[52];7) CeO₂商品相对低廉,危害识别评级较低;8) 铈氧化物是一种难熔氧化物,熔点约为2600℃,UO₂为2878℃,两者有相似的物理性质(弹性模量和泊松比)、热性质和机械性质(断裂韧性和强度)。

铈氧化物丸的制备工艺比较复杂,丸件被紧密安装到锆-4合金包覆管上,如图4^[29]所示。为研究可吸入粒子中挥发性裂变产物核素的富集,掺杂铯与钷到替代丸件中。选择CsI、RuO₂、Eu₂O₃作为掺杂剂并不是因为在实际的乏燃料中存在这样的物质形式。¹²⁹I是一种代表性的挥发性裂变产物,⁹⁰Sr也是主要的裂变产物,但它不容易挥发,加入SrO是为了与铯、钷、碘等挥发性元素的分布进行比较。

非挥发性的气溶胶收集盒的特点是简单持久,因为没有气体层流通过,只有空气中的粒子被收集与分级。SNL采用的气溶胶粒子取样器有3种类型,分别为Respicon™ 3级真实粒子撞击器、Berner 9级粒子撞击器和Marple 8级级联撞击器(收集范围0.4~21 μm,流量2 L/min),如图5所示。Marple撞击器可收集3类粒径范围的粒子:顶部收集可吸入粒子部分(0~4 μm);中部收集(4~10 μm)部分;底部收集不可吸入部分(10~100 μm)。Respicon粒子取样器装有节流阀的真空泵,Berner粒子撞击器的体积流量为30 L/min,粒径收集范围为0.08~16 μm。

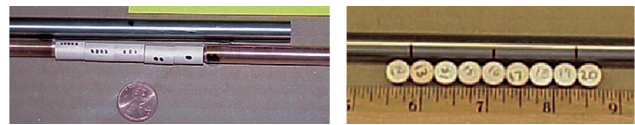


图4 锆-4合金管中的CeO₂丸件
Fig. 4 CeO₂ pellets in Zircaloy-4 cladding tube

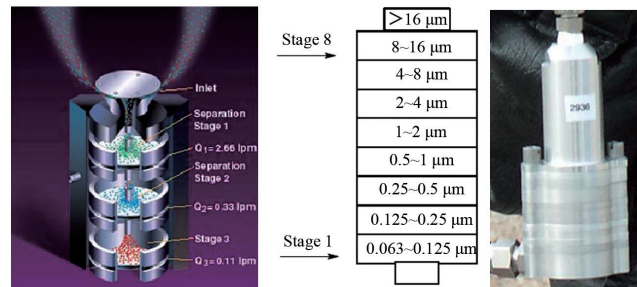


图5 气溶胶粒子撞击器
Fig. 5 Aerosols particles impactors

4 太平洋西北国家实验室(PNNL)

PNNL原为DOE的汉福特基地工程实验室,是专为汉福特基地服务的研发机构^[53]。PNNL对铈气溶胶的研究集中于生物效应、沉降分布、废物燃烧和同位素标准等方面。

4.1 铈气溶胶的生物效应

PNNL对铈气溶胶的生物效应研究集中于三方面:一是生理因素;二是铈气溶胶的毒性;三是体内照射危险的评估^[54]。

生理因素研究的对象是核试验地区的当地动物和严重污染地区长期饲养的实验动物,发现这些动物对铈气溶胶的摄入量小得令人惊奇,铈的沉积是直接吸入而不是通过食物链引起的。化学形态对吸入铈气溶胶的最终去向起决定作用,大量的小白鼠、狗、猪、兔的器官滞留、吸收、转移和排泄实验表明,PuO₂相当牢固地滞留于肺中,吸收进入血液的PuO₂不超过5%,与静脉注射Pu(NO₃)₄的分布显著不同,铈转移的程度与吸入气溶胶中可过滤的铈组成分成正比关系。被吸收的铈有两种分布方式:一是骨骼和肝脏中大量沉积离子铈;二是极微小颗粒自肺部转移后均匀地分布于全身^[55-57]。

钚气溶胶毒性研究在 Hanford 实验室^[58]进行,通过动物吸入和气管内插入,在不同剂量、不同化学和物理状态下着重研究与吸入钚颗粒大小的关系和代谢数据,结果表明^[59],动物吸入平均粒径为 0.2 μm 的 PuO₂ 烟雾,摄入量相当于 3.7×10⁴~1.8×10⁵ Bq/kg 的剂量,在 4~6 周内死亡的动物出现包括毛细血管在内的肺泡壁坏死和高蛋白质流体累积。存活时间较长的动物的纤维化增大,许多肺泡完全闭塞,出现恶性肿瘤和上皮增生。

体内照射危险的评估是为了认识吸入而留在肺和相关淋巴结内的钚的危险。目前对吸入钚的危险性评估能力无法像评估食入钚那样令人满意,不仅缺乏有效实验数据,而且现有数据差异极大^[60]。狗和人的实验证明^[61],大部分沉积在肺中的 PuO₂ 微粒随后转移至肺淋巴结,其钚浓度远远超过体内任何其他器官。

4.2 钚气溶胶尘降的全球分布

Kelley 等^[62]采用二元混合模型(two end-member model)评估和实验相结合,分析了钚气溶胶与 ²³⁷Np 的全球分布情况,认为南半球尘降物的 ²³⁷Np/²³⁹Pu 原子比率(0.35)比北半球(0.47)的低。²³⁷Np/²³⁹Pu 原子比率比对应的 ²⁴⁰Pu/²³⁹Pu 原子比率更依赖于设备相关性,可变性更多。钚尘降同位素的特征用混合数值表示,而不是过去的平均值,可以更好地反映出平流层尘降量相对于对流层尘降量的地区性差异。

4.3 核潜艇空气净化

PNNL 联合美国海军研发出新型核潜艇空气净化系统,即“自组织单分子层改性介孔”(SAMMS),将纳米技术与介孔材料相结合,直接从密闭环境中迅速捕捉微粒污染物。该项技术获得美国 2012 年实验室联盟内部合作奖。目前已有针对不同微粒物的 4 种吸附材料(硫醇-SAMMS、螯合物-SAMMS、阴离子-SAMMS 和高定向石墨-SAMMS),其中高定向石墨可用于核潜艇内部钚气溶胶的高效吸附^[63]。

4.4 钚气溶胶的同位素标准

当钚来自于多个源项时,质谱分析过程可能覆盖一些细节信息。对于微粒分析而言,为了保证分析结果的准确性,质谱需要用微粒同位素标准(particulate isotopic standards)来检定。这个标准的特点是球形的、微米粒径的硅酸盐粒子负载少量已标定了浓度的钚,母体和钚浓度与真实环境粒子的情形是相似的。标准粒子的产生涉及 2 个步骤^[64],标准钚的熔合黏土气溶胶发生和粒径分级。

为形成一个同位素微量标准(microstandard),进入黏土的负载钚是同位素标准材料 CRM 138,以 Pu(SO₄)₂·4H₂O 形式存在。化学实验工作包括 4 部分,1) 形貌表征。如图 6 所示,凝聚了 11 个钚-黏土微粒,粒径校准长度为 0.94 μm,粒子几乎是球形的,形成原因是 500℃ 时,水合作用的消失导致黏土晶体结构的崩溃;2) 元素分析。采用波长分散 X 射线谱仪分析了 3 个单独的钚-黏土粒子,得到钚的浓度和单个粒子中钚的定量信息;3) 同位素分析。采用热电离质谱测量了 6 个单

独的钚-黏土微粒,每个微粒固定在一根钨丝上,在 1600℃ 下渗碳,得到微粒中钚测量的总质谱效率为 2%~9%,这与树脂玻璃球中钚测量的效率值 3%~5% 相吻合,测量中未发现镅对 ²⁴¹Pu 的干扰;4) 微粒载片(mounting)。将钚同位素标准粒子分散在聚碳酸酯的显微镜片上,1.75 μm 直径的粒子呈现一个直径 1 mm 的衍射环,单个粒子很容易分辨。

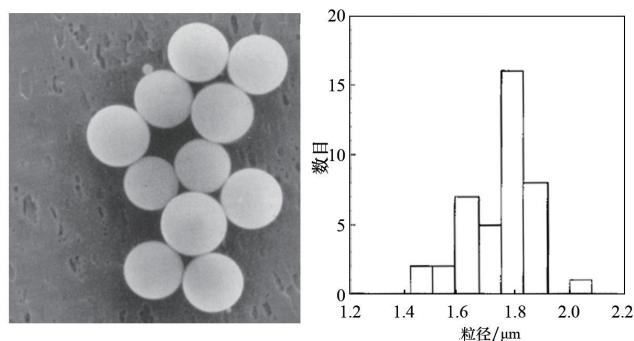


图 6 钚-黏土粒子的形貌与粒径分布
Fig. 6 The morphology and size distribution of Pu-clay particles

4.5 事故火灾中的钚气溶胶释放

在 20 世纪 60 年代至 90 年代, PNNL 对核设施事故火灾中,受钚污染的固体废物、液体废物、钚金属及其合金的燃烧与氧化过程,产生的气溶胶源项行为进行了系统研究^[65-77],给出了不同场景下的含钚气溶胶源项分析结果,包括空中释放部分(ARF)、空中释放速率(ARR)和可吸入部分(RF)的推荐值。含钚固体废物的研究对象涵盖氯丁橡胶、有机玻璃、聚苯乙烯、纤维素、粗布与纸板、削片与刨花、金属粉末等,研究过程包括辐射热解、燃烧与爆炸。含钚液体废物的研究对象主要是各种有机溶液、煤油和硝酸盐水溶液,研究过程包括加热挥发、沸腾与燃烧。钚金属的氧化过程包括了三类研究:一是低于燃点的钚氧化;二是低于沸点的钚燃烧;三是高能事件下的钚气溶胶化。

5 其他国家实验室

5.1 橡树岭国家实验室(ORNL)

ORNL 是二战时期曼哈顿计划的一部分,其最初任务是化学分离出第一批克量级的钚,其开发出的普雷克斯流程(purex)至今仍然是钚气溶胶放化处理的主流程^[78]。

ORNL 环境科学部^[79]研究了对流层气溶胶中放射性核素的滞留时间。气溶胶粒子的滞留时间是多变的迁移过程函数,干沉积时与撞击、扩散、沉积核再悬浮相关,湿沉积时与雨水降落、清洗相关。气溶胶平均滞留时间的估算是基于放射性活度或活度比率的测量。ORNL 发现,两个不同地理位置的 ⁷Be 粒子和氦衰变产物在对流层气溶胶中的平均滞留时

间为8 d。更早的时候,ORNL曾联合阿肯色大学化学系^[80],通过测定雨水样品中²¹⁰Bi与²¹⁰Pb的放射性活度比率,提出了微粒回降常数概念,测定了核爆后对流层气溶胶中²¹⁰Pb的滞留时间约为6 d,说明精细粒子形式,例如大气中的氢解体形成的²¹⁰Pb,能被雨水有效的捕获和从大气中移走。这种结论对铯气溶胶的沉积形成了借鉴。

5.2 阿贡国家实验室(ANL)

ANL是美国的第一个国家实验室,拥有多种大型用户装置,在核动力、基础科学、生物医学与环境科学技术领域成果显著。ANL下属的气溶胶实验室利用瞬态反应堆试验装置TREAT,模拟严重核事故下对燃料、材料和组件的影响,放射性气溶胶逸出的形式与数量,实验结果用于修正商业核电站的安全标准^[81]。20世纪60年代,ANL辐照了装有PuC和UC-PuC混合物的原型燃料元件^[82],辐照后发现铸造样品有尺寸和密度的变化,孔隙较多的烧结样品有气溶胶释放,气溶胶颗粒吸附了氙、氪气体成分^[83]。辐照样品的自射线照相表明^[84],部分样品中可能形成了中心空隙,混合的UC-PuC粉末不均匀,数据显示,亚化学计量的、振动密实的PuC和UC-PuC燃料的气溶胶释放分数比超化学计量的材料大一个数量级。2002年,ANL为退役的4座反应堆中受铯污染的手套箱、热室和回旋加速器在拆除过程中产生的气溶胶进行测试时,发现同样有被气溶胶颗粒吸附的氙、氪气体^[85]。

5.3 爱达荷国家实验室(INL)

2011年11月8日,INL发生人员辐射照射事故,多达17人受到了铯气溶胶的照射。这些人员是巴特勒能源联盟公司(Battelle Energy Alliance)的雇员,当时正在开展零功率物理反应堆(ZPPR)的退役工作,当打开一个容器时受到了铯气溶胶的照射。鉴于此次事故,当DOE 2013年提出使用INL的先进试验堆(ATR)和ORNL的高通量同位素生产堆(HFIR)恢复²³⁸Pu的生产时,更加严格的包括铯气溶胶监测在内的安全对策也同步实施^[86]。

6 总结与展望

美国国家实验室对铯气溶胶的重视程度、研发能力和优势互补有目共睹。LANL自20世纪40年代从事铯武器和铯燃料系统开发以来,对铯车间事故或制造过程中产生的气溶胶进行了物化特性表征,首次研究清楚了铯气溶胶的粒径特征与分布。LLNL针对核试验场地开展铯气溶胶的再悬浮行为研究,从核退役和环境风险评估的角度关心铯气溶胶粒子的摄入。SNL开展了核事故或人为活动破坏造成核燃料气溶胶泄漏的源项分析,不仅有完善的计算模型,而且主持实施了铯-铯气溶胶比率测试计划。ORNL的研究注重核爆后对流层/平流层气溶胶中放射性核素的滞留行为。PNL开展了大量的铯气溶胶生物效应研究和火灾中铯气溶胶释放的源项研究,建立了气溶胶铯同位素的微量标准。ANL开展了辐照含铯燃料元件后气溶胶释放特征的研究。

除此之外,美国国家实验室之间还联合开展了不同场景下,铯气溶胶的形成机理、扩散机理和沉积机理研究,但多集中于铯氧化和铯燃烧的条件下。由于铯气溶胶物化行为数据与核武器研究紧密相关,陆续公开的原始文献有限,尤其是炸药爆炸爆轰条件下的铯气溶胶化过程相对较少。通过目前掌握的资料来说,包括物化特性分析与表征、再悬浮行为、滞留行为、释放规律、溶解度特征等在内的铯气溶胶物化行为研究仍然是一个充满挑战的热点。

参考文献(References)

- [1] Constantin P. Radioactive aerosols[M]. The ssaloniki: Aristotle University of Thessaloniki Press, 2008: 27-30.
- [2] 哈琳. 美国洛斯阿拉莫斯国家实验室[J]. 国外核武器动态, 2005(1): 16-20.
Ha Lin. Los Alamos National Laboratory in the USA[J]. Development of Nuclear Weapons Abroad, 2005(1): 16-20.
- [3] Cheng Y S, Guilmette R A, Zhou Y, et al. Characterization of plutonium aerosol collected during an accident[J]. Health Physics, 2004, 87(6): 596-605.
- [4] Cheng Y S, Dahl A R, Jow H N. Dissolution of metal tritide in a simulated body fluid[J]. Health Physics, 1997, 73(4): 633-638.
- [5] Kanapilly G M, Raabe O G, Boyd B. A method for determining the dissolution characteristics of accidentally released radioactive aerosols[C]// Third International Congress of the International Radiation Protection Association. Oak Ridge: Atomic Energy Commission, 1974: 1237-1242.
- [6] Mahoney L A, Mishima J. Assessment of the basis for modeling release from plutonium oxidation[R]. Seattle: Pacific Northwest Laboratory, 1990.
- [7] Durante M, Manti L. Estimates of radiological risk from a terrorist attack using plutonium[J]. Radiation and Environmental Biophysics, 2002, 41(2): 125-130.
- [8] Haschke J M. Evaluation of source-term data for plutonium aerosolization[R]. Los Alamos: Los Alamos National Laboratory, 1992.
- [9] Neimark L A, Kittel J H, Crothers C C. Irradiations of PuC and (UPu)C [M]. London: Carbides in Nuclear Energy Press, 1964: 864-877.
- [10] Gonzales M, Elder J C, Tillerv M I. Performance of multiple HEPA filters against plutonium aerosols[R]. Los Alamos: Los Alamos Scientific Laboratory, 1976.
- [11] Neimark L A. Argonne National Laboratories[Z]. Personal Communication, 1964.
- [12] Yung S C, Holmes T D, George T G. Size measurement of plutonium particles from internal sputtering into air[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B, 2005, 234(3): 219-225.
- [13] Whicker J J, Yang Y M, Rodgers J C. Experimental characterization and computational modeling of indoor aerosol transport and their applications in optimization of continuous air monitor placement[EB/OL]. (1996-01-01)[1996-03-20]. <http://www.ei.com/reader>.
- [14] Plionis A A, Peterson D S, Tandon L. Alpha spectrometric characterization of process-related particle size distributions from active particle sampling at the Los Alamos National Laboratory uranium foundry [J]. Material Science and Engineering, 2010(9): 12-41.
- [15] Harry J E, John C E, Manuel G. Size characteristics of plutonium aerosols[C]//Proceedings of the 12th AEC Air Cleaning Conference, Oak Ridge: USA Atomic Energy Commission, 1973: 720823-13.

- [16] Li T K. A study of in-line plutonium isotopic analysis for gaseous plutonium hexafluoride[R]. Los Alamos: Los Alamos National Laboratory, 1987.
- [17] Haschke J M. Evaluation of source-term data for plutonium aerosolization[R]. Los Alamos: Los Alamos National Laboratory, 1999.
- [18] Hanson W C, Elder J C, Ettinger H J. Particle size distribution of fragments from depleted uranium penetrators fired against armor plate targets[R]. Los Alamos: Los Alamos National Laboratory, 1974.
- [19] Mulford R N R, Mueller B A. Measurements of helium release from materials containing $^{238}\text{PuO}_2$ [R]. Los Alamos: Los Alamos National Laboratory, 1973.
- [20] Nichols B D, Mueller C, Necker G A, et al. Gasflow: A computational fluid dynamics code for gases, aerosols, and combustion, Volume 1: theory and computational mode[R]. Los Alamos: Los Alamos National Laboratory, 1998.
- [21] Arend Meijer, Betty A Strietelmeier, Drew Tait C, et al. Summary and synthesis report on radionuclide retardation for the Yucca Mountain Site Characterization Project—Yucca Mountain Site Characterization Program Milestone 3784M[EB/OL]. (1999-01-01)[1999-05-01]. <http://international.nuclearinformation.org/>.
- [22] Peterson D E, Starzynski J S. Reentry thermal testing of light-weight radioisotope heater units[R]. Los Alamos: Los Alamos National Laboratory, 1982.
- [23] 黄钟. 劳伦斯-利弗莫尔国家实验室的科研任务及其主要设施[J]. 国外核武器动态, 2007(1): 20-23.
Huang Zhong. Research missions and major facilities in LLNL[J]. Development of Nuclear Weapons Abroad, 2007(1): 20-23.
- [24] 戴艳丽, 董露. 美国核武库技术保障计划实施概况—劳伦斯-利弗莫尔国家实验室年度报告[J]. 国外核武器动态, 2005(4): 34-41.
Dai Yanli, Dong Lu. Overview of the implementation of the U.S. nuclear Arsenal technical support program—The LLNL annual report[J]. Development of Nuclear Weapons Abroad, 2005(4): 34-41.
- [25] Stephens D R. Source terms for plutonium aerosolization from nuclear weapon accidents[R]. Livermore: Lawrence Livermore National Laboratory, 1995.
- [26] 喻名德, 杨春才. 核试验场及其治理[M]. 北京: 国防工业出版社, 2007: 161-165.
Yu Mingde, Yang Chuncai. The nuclear test sites and its governance [M]. Beijing: National Defense Industry Press, 2007: 161-165.
- [27] Shinn J H, Fry C O, Johnson J S. Monitored plutonium aerosols at a soil cleanup site on Johnston Atoll[R]. Livermore: Lawrence Livermore National Laboratory, 1996.
- [28] Shinn J H. Protocols of radiocontaminant air monitoring for inhalation exposure estimates[R]. Livermore: Lawrence Livermore National Laboratory, 1995.
- [29] Shinn J H. The technical basis for air pathway assessment of resuspended radioactive aerosols: LLNL experiences at seven sites around the world[R]. Livermore: Lawrence Livermore National Laboratory, 1993.
- [30] Wong K M, Jokela T A, Noshkin V E. Radiochemical procedures for analysis of Pu, Am, Cs and Sr in water, soil, sediments and biota samples[R]. Livermore: Lawrence Livermore National Laboratory, 1995.
- [31] Shinn J H, Fry C O, Johnson J S. Suspended plutonium aerosols near a soil cleanup site on Johnston Atoll in 1992[R]. Livermore: Lawrence Livermore National Laboratory, 1994.
- [32] Kehl S R, Mount M E, Robison W L. The Northern Marshall Islands radiological survey: A quality control program for radiochemical and gamma spectroscopy analysis[R]. Livermore: Lawrence Livermore National Laboratory, 1995.
- [33] Balleureau P. Formation of aerosols by oxidation and combustion of plutonium and its compounds[R]. Livermore: Lawrence Livermore National Laboratory, 1991.
- [34] Shinn J H. Post-accident inhalation exposure and experience with plutonium[R]. Livermore: Lawrence Livermore National Laboratory Technical Report, 1998.
- [35] Shinn J H. Enhancement factors for resuspended aerosol radioactivity: effects of topsoil disturbance[C]//Proceedings of the Fifth International Conference on Precipitation Scavenging and Atmosphere Surface Exchange Processes. Paris, French: Atomic Energy Commission, 1992: 1183-1193.
- [36] Shinn J H, Homan D N, Robison W L. Resuspension studies in the Marshall Islands[J]. Health Physics, 1997, 73(1): 248-257.
- [37] Durbin S G, Luna R E. A methodology to quantify the release of spent nuclear fuel from dry casks during security-related scenarios [R]. New Mexico: Sandia National Laboratories, 2013.
- [38] Sagartz M J. Violent reaction source term study[R]. New Mexico: Sandia National Laboratories, 1995.
- [39] Julie J G, Frederick T H. Investigation of mass distributions in a stabilized plume for various lofting energies and meteorological conditions [R]. New Mexico: Sandia National Laboratories, 2001.
- [40] Hunter T O. Summary of research and development activities in support of waste acceptance criteria for the Waste Isolation Pilot Plant (WIPP)[R]. New Mexico: Sandia National Laboratories, 1979.
- [41] Carson D M. Airborne release fraction-ARF- and respirable fraction-RF- for foot pack cans in fires[R]. Washington: US Department of Energy, 2002.
- [42] Laul J C, Foppe Terry L, Mishima Jofu. Applicability of airborne release fraction and respirable fraction values to particulate toxic chemical material releases at DOE sites[J]. Journal of Chemical Health & Safety, 2006, 13(6): 7-11.
- [43] Lange F, Pretzsch J. Experimental determination for UO_2 release from a spent fuel transport cask after shaped charge attack[C]// Proceedings of INMM 35th Meeting, Naples, Florida: 1994.
- [44] Luna R E, Neuhauser K S, Vigil M G. Projected source terms for potential sabotage events related to spent fuel shipments[R]. New Mexico: Sandia National Laboratories, 1999.
- [45] Loiseau O, Autrusson B, Funk P. Assessing consequences of nuclear materials: Transport sabotage per use of armor piercing weapon[J]. Packaging, Transport, Storage and Security of Radioactive Material, 2009, 20(20): 93-97.
- [46] Molecke M A. Spent fuel sabotage aerosol test program: FY2005-06 testing and aerosol data summary[R]. New Mexico: Sandia National Laboratories, 2006.
- [47] Sprung J L. Re-examination of spent fuel shipment risk estimates[R]. New Mexico: Sandia National Laboratories, 2000.
- [48] Martin A M, Ken B S. Surrogate/Spent Fuel Sabotage: Aerosol ratio test program and phase 2 test results[R]. New Mexico: Sandia National Laboratories, 2004.
- [49] Martin A M, Brockmann J E, Lucero D A, et al. Spent fuel sabotage test program, surrogate and fission product aerosol results[R]. New Mexico: Sandia National Laboratories, 2006.
- [50] Martin A M, Michael W G, Ken B S. Initiation of depleted uranium ox-

- ide and spent fuel testing for the spent fuel sabotage aerosol ratio program[C]/14th International Symposium on the Packaging and Transportation of Radioactive Materials (PATRAM 2004), Berlin, Germany: 2004.
- [51] Martin A M, Yoshimura H R, Longley S W, et al. Spent fuel/surrogate aerosol ratio test program and preliminary results[R]. New Mexico: Sandia National Laboratories, 2003.
- [52] Van D A, Melgaard D, Molecke M A, et al. Final report—optimization of thermo-chemical, kinetic, and electrochemical factors governing partitioning of radionuclides during melt decontamination of radioactively contaminated stainless steel[R]. New Mexico: Sandia National Laboratories, 2003.
- [53] Papastefanou C. Residence time of tropospheric aerosols in association with radioactive nuclides[J]. Applied Radiation and Isotopes, 2006, 64: 93–100.
- [54] Carson D M. Airborne release fraction (ARF) and respirable fraction (RF) for food pack cansin fires[R]. Seattle: Hanford Washington, 2000.
- [55] Fryl M, Menon K K. Determination of the tropospheric residence time of Lead-210[J]. Science, 1962, 137(3534): 994–995.
- [56] Wick O J. 钚手册技术指南第二卷[M]. 《钚手册》编译组译. 北京: 中国原子能出版社, 2015: 967–1006.
- Wick O J. Plutonium handbook, Part II[M]. Plutonium Handbook team translation. Beijing: China Atomic Energy Press, 2015: 967–1006.
- [57] Bair W J, McClanahan B J. Plutonium inhalation studies I: Excretion and translocation of inhaled $^{239}\text{PuO}_2$ dust[J]. Archives of Environmental Health, 1961, 2(6): 648.
- [58] Bair W J, Willard D H, Herring J P, et al. Plutonium inhalation studies II: Retention, translocation and excretion of inhaled $^{239}\text{PuO}_2$ dust [J]. Health Physics, 1962, 8(6): 639.
- [59] Bair W J, Willard D H. Plutonium inhalation studies III: Effect of particle size and total dose on deposition, retention and translocation[J]. Health Physics, 1963, 9(9): 253.
- [60] Bair W J, Wiggins A D, Temple L A. The effect of inhaled $^{239}\text{PuO}_2$ on the life span of mice[J]. Health Physics, 1962, 8: 659.
- [61] Temple L A, Marks S, Bair W J. Tumors in mice after pulmonary deposition of radioactive particles[J]. International Journal of Radiation Biology, 1960(2): 143.
- [62] Bair W J, Willard D H. Plutonium inhalation studies IV: Mortality in dogs after inhalation of $^{239}\text{PuO}_2$ [J]. Radiation Research, 1962, 16(6): 811.
- [63] Park J F, Willard D H, Marks S, et al. Acute and chronic toxicity of inhaled plutonium in dogs[J]. Health Physics, 1962, 8(6): 651.
- [64] Kelley J M, Bond L A, Beasley T M. Global distribution of Pu isotope and Np[J]. Science of the Total Environment, 1999(237/238): 483–500.
- [65] Stoffel J J, Cannon W C, Robertson D M. A particulate isotopic standard of plutonium in an aluminosilicate matrix[J]. Journal of the American Society for Mass Spectrometry, 1991(2): 81–84.
- [66] Kittel J H, Neimark L A, Carlander R. Preliminary irradiations of PuC and UC–PuC[R]. Chicago: Argonne National Laboratories, 1963.
- [67] Moore M E, Reeves K P. Filter measurement system for nuclear material storage canisters[EB/OL]. (2014–01–01)[2014–05–05]. <http://www.InternationalNuclearInformationSystem/>.
- [68] Suilou Huang, Stephen D Schery, John C Rodger. Investigations of techniques to improve continuous air monitors under conditions of high dust loading in environmental settings[R]. Washington: Department of Energy in the USA, 2002.
- [69] Dick J L, Shreve J D. Roller coaster interim summary report[R]. Albuquerque: Sandia Corporation, 1963.
- [70] 尹忠红. 美国橡树岭国家实验室概况[J]. 核科技信息, 2005(2): 10–17.
- Yin Zhonghong. Overview of American oak ridge national laboratory [J]. Nuclear Science and Technology Information, 2005(2): 10–17.
- [71] 宋杨. 纳米介孔材料潜艇空气净化技术[J]. 中国船舶重工集团公司情报收集与分析, 2013: 5–7.
- Song Yang. The air purification technology of nano-mesoporous materials for the submarine[J]. Information collection and analysis of China shipbuilding industry corporation, 2013: 5–7.
- [72] 夏芸. 美国阿贡实验室概况[J]. 核科技信息, 2010(3): 43–49.
- Xia Yun. Overview of ANL[J]. Nuclear Science and Technology Information, 2010(3): 43–49.
- [73] Bhattacharyya S K, Yule T J, Fellhauer C R. Experience with decommissioning of research and test reactors at Argonne National Laboratory[C]/Proceedings of the First World TRIGA Users Conference, Pavia, Italy: Science Press, 2002: 42–45.
- [74] Kogan V, Schumacher P M. Recommended plutonium release fractions from postulated fires[R]. Washington: US. National Technical Information Service, 1993.
- [75] Mishima J, Schwendiman L C. Fractional airborne release of uranium representing plutonium during the burning of contaminated wastes[R]. Seattle: Pacific Northwest Laboratory, 1973.
- [76] Halverson M A, Ballinger M Y, Dennis G W. Combustion aerosols formed during burning of radioactively contaminated materials—Experimental results[R]. Seattle: Pacific Northwest Laboratory, 1987.
- [77] Mishima J, Pinkston D. Airborne release fractions/rates and respirable fractions for nonreactor nuclear facilities[R]. Washington: US Department of Energy, 1994.
- [78] Mishima J, Schwendiman L C, Radasch C A. Plutonium release studies IV: Fractional release from heating plutonium nitrate solutions in flowing air stream[R]. Seattle: Pacific Northwest Laboratory, 1968.
- [79] Mishima J, Schwendiman L C. Interim report: The fractional airborne release of dissolved radioactive materials during the burning of 30 percent normal tributyl-phosphate in a kerosene-type diluent[R]. Seattle: Pacific Northwest Laboratory, 1973.
- [80] Sutter S L, Mishima J, Schwendiman L C. Fractional airborne release of strontium during of 30 percent normal tributyl-phosphate in a kerosene-type diluent[R]. Seattle: Pacific Northwest Laboratory, 1974.
- [81] Mishima J. Plutonium release studies I: Release from the ignited metal [R]. Seattle: Pacific Northwest Laboratory, 1965.
- [82] Mishima J. Plutonium release studies II: Release from the ignited bulk metallic pieces[R]. Seattle: Pacific Northwest Laboratory, 1966.
- [83] Mishima J. A review of research on plutonium releases during overheating incidents[R]. Seattle: Hanford Atomic Products Operations, 1964.
- [84] Sutter S L, Mishima J, Ballinger M Y, et al. Emergency preparedness source term development for the office of nuclear material safety and safeguards—licensed facilities[R]. Seattle: Pacific Northwest Laboratory, 1984.
- [85] Buijs K, Chavane de Dalmassy B, Schmidt H E. The characterization of radioactive aerosols from fires[R]. Los Alamos: Los Alamos National Laboratory, 1983.
- [86] Malet J C, Duverger de Cuy G, Gateiger R, et al. Solvent pool fire testing[R]. Los Alamos: Los Alamos National Laboratory, 1983.

A review of plutonium aerosol research in some American national laboratories

XIE Bo, LONG Xinggui

Institute of Nuclear Physics and Chemistry, China Academy of Engineering Physics, Mianyang 621999, China

Abstract Plutonium aerosols might be generated in nuclear weapon testing and nuclear reactor accidents. The particle size of Pu-aerosols varies greatly, depending on the mode of formation. The plutonium aerosol chemistry plays an important role in the nuclear trial data treatment, the nuclear weapon spreading, the nuclear forensic analysis, the nuclear safeguards, and the nuclear power demands. This paper reviews the physico-chemical behavior development of plutonium aerosols at Los Alamos National Laboratory (LANL), Lawrence Livermore National Laboratory (LLNL), Sandia National Laboratories (SNL), Oak Ridge National Laboratory (ORNL), Pacific Northwest National Laboratory (PNNL), Argonne National Laboratories (ANL) and Idaho National Laboratories (INL). The development includes the aerosol characterization, the aerodynamic size distribution, the residence time, the instrumentation analysis, the aerosol collection and sampling, and the formation mechanism. It is shown that we have only limited data of plutonium aerosols in different situations, and the experimental verification is still a challenging problem.

Keywords plutonium aerosols; particle size; source term; American national laboratories

(责任编辑 傅雪)