

超铀元素作业的 劳动卫生

〔苏〕Г. М. 帕尔霍缅科等著

原子能出版社

超铀元素作业的劳动卫生

[苏]Г. М. 帕尔霍缅科等著

阎效珊 译 吴德昌 校

原子能出版社

一九七九

内 容 简 介

本书阐述了从事超铀元素操作的辐射防护知识。书中扼要地介绍了有关超铀元素的理化性质和生物效应,着重论述了超铀元素内外照射的防护特点并论述了旨在改善劳动条件的防护技术和预防措施的依据。书中还列举了一些物理计算方法。

本书可供生产和操作超铀元素单位的医生、工程师、剂量监测人员、安全技术人员以及从事放射卫生学及放射毒理学的科研人员和实际工作者参考。

Гигиена труда при работе с трансп-
лутониевыми элементами

Пархоменко Г. М., Егорова М. С.,

Копеев В. В.

М., Атомиздат, 1974

超铀元素作业的劳动卫生

[苏] Г. М. 帕尔霍缅科等著

阎效珊 译 吴德昌 校

原子能出版社出版

(北京2108信箱)

北京印刷一厂印刷

新华书店北京发行所发行·新华书店经售

☆

开本 $787 \times 1092^{1/32}$ ·印张 $3\frac{7}{8}$ ·字数85千字

1979年9月北京第一版·1979年9月北京第一次印刷

印数001—3900·定价: 0.54元

统一书号: 15175·167

前 言

化学元素周期表中的所有超铀元素，都是在科学实验室中人工制造的，没有一个是天然存在的。

苏联已建成了多电荷离子加速器，在这种加速器中制造并研究了第102和104号元素，即人造元素和超铀元素中最末尾的一些。

超铀元素的获得以及对其性质的研究，对于核物理及化学的许多领域均产生了很大影响，并加深了对一些重核结构的了解。

近十年来，一系列超铀元素的生产和应用都有很大进展。制成了一些在国民经济中越来越需要的轻便的中子源和能源。

由于对超铀元素的广泛研究和实际应用，便产生了必须保证从事超铀元素作业人员的辐射安全的问题。

超铀元素所具有的特殊性质，决定了防护手段的特点。超铀元素大都是高强度的 α 辐射体，当它们进入人体后都具有放射性毒性作用。使用超铀元素时，内照射是最危险的因素。

这些元素的另一特点是能够通过自发裂变的方式衰变。即使在操作实际很纯的超铀元素时，也必须考虑到发生伴有中子辐射的 (α, n) 反应的可能性。在发生这种类型的衰变时，通常还发生 γ 量子辐射。由于这些元素具有各种类型的电离辐射，我们就必须把它们视为操作者的潜在外照射源。

在本书中，作者们试图就从事超铀元素工作的安全防护

手段的文献资料和自己的科研资料作一系统的概述。但是我们深知，要想在这本小册子里对超铀元素作业的辐射劳动卫生的各个方面进行全面的详细的描述，实际上是不可能的。对于可能有的批评意见，我们谨表谢忱。

目 录

前 言	i
第一章 超铀元素理化性质概述	1
第二章 超铀元素的生物学作用	7
第三章 辐射作用的主要因素	18
第四章 对工艺操作程序、平面配置设计和劳动组织上的 卫生学要求	25
第五章 外照射危险性的评价	48
第六章 对内照射危险性的评价	61
第七章 剂量监测和医学监督	88
附 录	98
参考文献	110

第一章 超铀元素理化性质概述

超铀元素是指原子序数 Z 大于94的那些放射性化学元素，有镅、锔、锿、铀、镎、钷、钍、钷，它们都是藉核反应人工制成的^[55]。

镅(Am) 是在原子能反应堆中长期照射Pu而获得的。1944年首先制成了 ^{241}Am 。已知镅还有另一些同位素，其中以 ^{243}Am 最稳定。 ^{241}Am 和 ^{243}Am 较其另一些同位素更适于进行其化学性质的研究。

三价态的镅化学性质最稳定，已知镅还有四价、五价、六价的价态。金属镅是银白色有延展性的金属，密度为11.9克/厘米³。镅与气态氢极易反应，生成氢化物(AmH_3)。镅盐溶液在氨的作用下生成浅玫瑰色的镅的氢氧化物胶体 $[\text{Am}(\text{OH})_4]$ 。镅的氧化物有氧化镅(AmO)、二氧化镅(AmO_2)和三氧化镅(Am_2O_3)。由动力反应堆辐照核燃料制得的镅是 ^{241}Am 和 ^{243}Am 的混合物。

^{241}Am 适于制作中子源，它发射的能量为59千电子伏的 γ 射线可用以测定各种材料的密度和厚度。

锔(Cm) 于1944年初次制得，现在已知有13种锔的同位素。金属锔用Ba蒸气还原 CmF_3 而得，是银白色有光泽的金属，密度为7克/厘米³。锔的所有卤化物、高氯酸盐、硝酸盐、硫酸盐均为可溶性盐类。

锔用作热源的主要同位素是 ^{242}Cm 和 ^{244}Cm 。由于 ^{242}Cm 半衰期长、比放射性高(120瓦特/克)，所以是释热比度很高

的理想热源。 ^{242}Cm 、 ^{243}Cm 和 ^{244}Cm 还是高比放的 α 辐射体。 Cm 可用于宇宙技术,因为它提供的热量比相等量的化学燃料所能提供的热量大数百倍。

锔(Bk) 于1949年发现。1958年首次分离出微克量级的 ^{249}Bk 。现在已知 锔有九种同位素。1962年曾分离出三毫微克的纯化合物 $^{249}\text{BkCl}_3$ 。迄今锔化学尚无实质进展。

锿(Cf) 于1950年获得。仅发现锿有三价状态。已分离出的锿盐有硝酸盐、硫酸盐、卤化物、硫化物和高氯酸盐。现已获得原子量从244至254的锿的各种同位素,其中研究最多的是 ^{252}Cf 。 ^{252}Cf 是强中子源,其中子释放量较其它同位素高两三个数量级。1微克 ^{252}Cf 就可释放 2.3×10^{12} 中子/秒,也就是说,大约7微克 ^{252}Cf 就足以代替含1克镅当量的镅铀源。锿源体积很小,可用以直接插入肿瘤治疗癌症。在原子核裂变物理学的研究中, ^{252}Cf 可用于中子放射摄影和活化分析。

关于同位素镭(Bk)、镱(Es)、钔(Md)、镥(Lr),目前尚未找到足够的资料。

超铀元素放射性衰变的类型有四种: α 衰变、电子俘获、 β 衰变和自发裂变。

超铀元素一旦进入体内大都排出极慢,于50年中它们在体内也达不到平衡状态。超铀元素的放射特性及其由体内排出的半排期列于表1。

超铀元素的特征就是它们的 α 比放射性高以及在自发裂变和 (α, n) 反应时均产生中子辐射。

超铀元素的比放射性是它们具有辐射危险性的一个重要标志(表2)。超铀元素的比放射性高,因而从事超铀元素的各种工艺作业中形成气溶胶热粒子的可能性很大,在传送

和设备间的转运中暴露时也有可能形成气溶胶。超铀元素比放射性高所带来的一个特点,就是它们在人体内的最大容许含量(表3)不同于其它元素。

表 1 超铀元素的放射特性及其半排期

核素	衰变类型	半衰期 ² 日	50年内达到 平衡的部分 所占比例, %	半排期, 日	
				生物的(T_b)	有效的(T_{eff})
^{241}Am	α, γ	1.7×10^5	22	7.3×10^4	5.1×10^4
^{242}Am	α, β^-, γ	0.67	33	7.3×10^4	0.67
^{243}Am	α, β^-, γ	2.9×10^5	16	7.3×10^4	7.1×10^4
^{241}Am	α, β^-, γ	0.0181	109	7.3×10^4	0.013
^{242}Cm	α, γ	162.5	100	7.3×10^4	162.5
^{243}Cm	α, γ	1.2×10^4	69	7.3×10^4	1.1×10^4
^{244}Cm	α, γ	6.4×10^3	87	7.3×10^4	5.8×10^3
^{245}Cm	α, β^-, γ	3.4×10^6	16	7.3×10^4	7.2×10^4
^{246}Cm	α	2.0×10^6	16	7.3×10^4	7.1×10^4
^{247}Cm	α, β^-, γ	6×10^9	16	7.3×10^4	7.3×10^4
^{248}Cm	α (89%), 自发裂变 (11%)	1.7×10^8	16	7.3×10^4	7.3×10^4
^{249}Bk	α, β^-, γ	314	100	7.3×10^4	314
^{250}Bk	α, β^-, γ	0.134	100	7.3×10^4	0.134
^{249}Cf	α, γ	1.3×10^5	22	7.3×10^4	4.7×10^4
^{250}Cf	α	4×10^3	97	7.3×10^4	3.8×10^3
^{251}Cf	α, γ	2.9×10^5	20	7.3×10^4	5.8×10^4
^{252}Cf	α, γ , 自发裂变 (α)	803	100	7.3×10^4	794
^{253}Cf	α, β^-, γ	20	100	7.3×10^4	20.0
^{254}Cf	自发裂变	61	100	7.3×10^4	61.0
^{253}Es	α, β^-, γ	20	100	7.3×10^4	20.0
^{254m}Es	α, β^-, γ	1.60	100	7.3×10^4	1.6
^{254}Es	α, β^-, γ	250	130	7.3×10^4	250.0
^{255}Es	α, β^-, γ	40	100	7.3×10^4	40.0
^{254}Fm	α, γ (99, 94, 48%) 自发裂变 (α) ($5.52 \times 10^{-2}\%$)	0.135	100	7.3×10^4	0.135
^{255}Fm	α, γ	0.92	100	7.3×10^4	0.92
^{256}Fm	自发裂变 (96%), α (4%)	0.111	100	7.3×10^4	0.111

表 2 超铀元素的比放射性及其相对生物效应(以 ^{239}Pu 为准)

核 素	比放射性, 居里/克	相对生物效应	核 素	比放射性, 居里/克	相对生物效应
^{239}Pu	0.063	1	^{247}Cm	1.62×10^5	0.00257
^{241}Am	3.3	52.4	^{248}Cm	3.08×10^{-3}	0.05
^{243}Am	0.15	2.4	^{249}Cf	4	63.5
^{242}Cm	3.4×10^3	54000	^{250}Cf	130	2063
^{244}Cm	86	1370	^{251}Cf	6.95	110
^{243}Cm	43.1	684	^{252}Cf	537	8524
^{245}Cm	0.10	1.63	^{253}Cf	2.87×10^4	4556000
^{246}Cm	0.365	6			

表 3 超铀元素在体内的容许含量

核 素	容 许 含 量		核 素	容 许 含 量	
	微 居 里	微 克		微 居 里	微 克
^{239}Pu	0.04	0.64	^{249}Bk	0.7	0.00042
^{243}Am	0.05	0.27	^{252}Cf	0.01	0.000018
^{241}Am	0.05	0.015	^{242}Cm	0.05	0.000015
^{244}Cm	0.1	0.0012	^{254}Es	0.02	0.000011

超铀元素有自发裂变现象,自发裂变时释放出很大能量,每一次裂变大约释放200兆电子伏。人造同位素的原子量越大,其自发裂变的几率越高。这一点对超铀元素而言,尤其有重要意义(表4)。

表 4 自发裂变的中子释放量

核 素	$T_{\text{自发}},^*$ 年	中子释放量,中子/秒·克
^{241}Am	2.1×10^{14}	10
^{242}Cm	7.2×10^5	1.96×10^7
^{244}Cm	1.4×10^7	1.1×10^7
^{249}Bk	6×10^8	3.3×10^5
^{252}Cf	85.5	2.3×10^{12}

* $T_{\text{自发}}$ 为自发裂变部分的半衰期。——译注

中子比放射性，在有30%吸收的情况下，可以下式表示：

$$N \text{ 中子/秒} \cdot \text{克} = 1.7 \times 10^4 / T_{\text{自发}}$$

式中：N——1克同位素每秒的中子释放量，

$T_{\text{自发}}$ ——自发裂变部分的半衰期，年。

同位素的半衰期若小于 10^6 年，则它自发裂变所释放的中子数比其 (α, n) 反应时所释放的为多^[71]。

超铀元素也是中子源，其中子是由 α 粒子与轻核的 (α, n) 反应而产生的。各种原子核的 (α, n) 反应截面差别极大。有些同位素(O, F, Be)具有较大的 (α, n) 反应截面(表5)。

表 5 (α, n) 反应时的中子释放量(中子/秒·克)

α 辐射体	α 粒子能量, 兆电子伏	Be	B	O	C
^{239}Pu	5.15	1.2×10^6	4×10^5	1×10^4	2.3×10^3
^{241}Am	5.48	7.9×10^6	2.7×10^6	6.1×10^3	1.6×10^4
^{242}Cm	6.11	1.2×10^{10}	3.8×10^9	8.2×10^5	2.5×10^7
^{243}Cm	5.8	1.3×10^8	4.2×10^7	8.8×10^4	2.4×10^5
^{244}Cm	5.8	2.5×10^8	8.3×10^7	1.8×10^5	4.8×10^5
^{252}Cf	6.11	1.7×10^9	5.6×10^8	1.2×10^6	3.7×10^6
α 辐射体	α 粒子能量, 兆电子伏	F	Cl	NO_3	Al
^{239}Pu	5.15	2.8×10^5	3.5×10^3	1.6×10^3	5.1×10^4
^{241}Am	5.48	1.6×10^6	2.4×10^4	9.3×10^3	3.9×10^5
^{242}Cm	6.11	2.3×10^9	3.8×10^7	1.6×10^7	6.3×10^8
^{243}Cm	5.8	2.5×10^7	3.8×10^6	1.6×10^5	6.4×10^6
^{244}Cm	5.8	4.9×10^7	7.6×10^5	3.2×10^7	1.3×10^7
^{252}Cf	6.11	3.3×10^8	5.6×10^6	2.2×10^6	9.3×10^7

由表1可见，超铀元素衰变时均伴有 γ 辐射。当把超铀元素视为 γ 辐射源，可利用该核素每一衰变的 γ 量子发射量、

γ 辐射分枝比和 γ 当量值, 估计该超铀核素的强度^[71]。

^{241}Am , ^{242}Cm , ^{243}Cm 和 ^{244}Cm 是 γ 放射性最强的辐射体。

就 γ 射线的能谱而论, 这些伴随 α 和 β 衰变而射出的 γ 射线都是软射线。但是应该看到, 从事某些同位素(其中包括 Cm) 的操作时, 可能存在来自这些核素自发裂变以及其裂变产物的硬 γ 射线。与 γ 射线相伴随的还有 (α, n) 反应所产生的中子辐射。

第二章 超铀元素的生物学作用

近十年来,有关超铀元素对机体各方面作用的新的报道,大大丰富了这一领域的科学知识。其中值得注意的是,已经获得了能够阐明超铀元素代谢动力学和生物学作用的某些问题的实验资料。

例如,已证明超铀元素通常都是很快地离开血管。静脉注射 ^{241}Am 和 ^{242}Cm 后经过一昼夜,它们在血液中的残留量仅为注入量的千分之几^[19, 39, 73]。

作者们认为,在血液中超铀元素水解并形成胶状颗粒或与蛋白质形成络合物,进而被网状内皮系统细胞所吞噬。根据图尔纳(Turner L.A.)等的资料^[100], ^{241}Am 和 ^{244}Cm 的硝酸盐和枸橼酸盐在血清各种蛋白质中分布均匀,注入后经过24小时,血浆蛋白中的放射性强度占血液放射性强度的90—100%。

杜尔宾(Durbin P.W.)^[73]查明,超铀元素在肝中蓄积量可达60%,在骨中可达30%,它们牢固地固着在这些脏器中并长期地滞留。

超铀元素从胃肠道吸收入血液的量很少。摄入后的吸收率仅0.05—0.1%。

已观察到超铀元素有致骨肉瘤作用。那些证明亲骨性同位素具有不同分布和作用的大量文献资料促使马尔沙尔(Маршалл)^[38]建议对亲骨元素作如下分类:

^{239}Pu , ^{232}Th , ^{241}Am 为选择性地沉积于骨表面的同位

素，它们在水中溶解度低，在体液的 pH 值情况下形成放射性胶体。

^{45}Ca 、 ^{90}Sr 、 ^{140}Ba 、 ^{226}Ra 为碱土族元素同位素，它们均易溶，通过与骨组织的磷灰石晶体结构发生离子交换而均匀地分布于整个骨骼。

已经发现，“表面沉积型”亲骨性元素（包括 ^{241}Am ）的毒性比“全骨分布型”元素（如 ^{226}Ra ）的大。马尔沙尔对前一组同位素毒性较大的解释是，它们的能量有一半被骨骼的疏松结构所吸收，而 ^{226}Ra 的仅有 1/20。业已查明，就致骨肉瘤的作用而论， ^{241}Am 低于 ^{239}Pu 和 ^{237}Np 。看来， ^{237}Np 的致骨肉瘤作用不仅由于辐射作用，并且还由于其化学作用（表 6）。

超铀元素从体内的排出发生于不同时期。呈三价状态且载体含量甚微的那些元素（ ^{241}Am 、 ^{242}Am ）排出最快。在吸入情况下， ^{242}Cm 和 ^{241}Am 的排出速度比 ^{239}Pu ，尤其是比 ^{238}Pu 快得多。

表 6 ^{237}Np 、 ^{239}Pu 和 ^{241}Am 的硝酸盐化合物
注入体内后致骨肉瘤效应的相对特征

核 素	注入量， 微居里/公斤	骨肉瘤发生率， %	骨吸收剂量， 拉德	大鼠平均寿命， 天
^{237}Np	2.0	57.5	520	568 ± 28
^{239}Pu	1.89	30.6	710	522 ± 19
^{241}Am	2.66	7.9	1862	504 ± 51

在大多数情况下，组织中病理学变化的严重程度与同位素的注入量及组织吸收剂量有关。

那些在体液的 pH 情况下易于水解的超铀元素化合物会被肺所固定，并在肺内形成最大的吸收剂量，而那些可溶性

化合物则很快地从肺吸收并沉积于其它器官（骨骼、骨髓、肝），引起这些器官的损伤。

鉴于超铀元素的不同同位素在代谢动力学和生物效应上都有某些特点，我们仅就当前研究得最多的超铀元素 ^{241}Am 、 ^{244}Cm 和 ^{252}Cf 简要地论述一下这些问题。

镅-241

在论及 ^{241}Am 毒理学的最早的著作中就已判定它在骨骼和肝脏中滞留较多^[67, 74]。据本斯台德 (Bensted S.P.) 等人的资料^[67]， ^{241}Am 的枸橼酸络合物静脉注射后，其 57% 蓄积于肝，约 30% 蓄积于骨。另一些著作^[85]也有类似报道。

汉迈斯顿 (Hammarstrom L.) 和尼尔森 (Nilsson A.)^[76]给成年小鼠静脉注射 ^{241}Am 研究其分布，他们证实 ^{241}Am 主要沉积于肝和骨，肾上腺、卵巢和骨髓中也有明显的沉积。

扎里金 (Заликин Г.А.) 等^[19]研究了镅-241 经不同途径（静脉内和气管内）注入大鼠体内后的分布和生物学作用。

在静脉注入的情况下， ^{241}Am 很快离开血管，主要沉积于肝（57%）和骨（18%）。尔后肝中镅含量逐渐降低，到 64 天时降至 2.7%，而骨中的 ^{241}Am 实际并无排出。 ^{241}Am 的分布与动物的性别和内分泌状况无关。

^{241}Am 经气管注入后，缓慢地从肺廓清，其廓清率可用四项指数式描述，各项的半廓清期依次为 10 分钟（占 21.4%）、47.5 小时（占 22.7%）、2.5 天（占 39.3%）和 66 天（占 17.6%）。到第 16 天时， ^{241}Am 在肝中的含量（14.5%）和在骨中含量（12.1%）与静脉注射者的含量（14.2% 和 15.7%）相当。

对职业性条件而言,吸入 ^{241}Am 的分布资料最有意义。托马斯 (Thomas R.L.)等^[99]研究了狗吸入 ^{241}Am 后的代谢。体内 ^{241}Am 含量为20—60微居里时,肺中含量为20—40微居里。

用计数器定期测定体内 ^{241}Am 含量表明,经过30天,肺内含量降至最初含量的50—60%。 ^{241}Am 的分布与注入量有关。与小剂量(0.005微居里/克)相比,注入大剂量(0.2微居里/克)时,骨中 ^{241}Am 含量降低6%,而肝中含量升高11%。

布尔达科夫 (Булдаков Л.А.)等^[9]给50条狗吸入硝酸镅-241气溶胶的实验表明,在动物体内含有0.08—0.4微居里/公斤的情况下,于8个月期间仅观察到呼吸和心跳加快,吸入后经过8—12个月观察到动脉压轻度减低,外周血液白细胞数减少。狗肺内 ^{241}Am 的进入量为上述量的5—10倍时,曾观察到肺炎和红细胞的显著变化。

^{241}Am 沉积于骨中,对骨髓造成照射,从而引起血液改变。就血液学指标而论, ^{241}Am 的作用与 ^{210}Po 相似^[10]。动物外周血液中出现多染红细胞、有核红细胞、胞浆幼稚的嗜中性细胞,这些变化证明骨髓造血功能受到严重破坏。

泰勒 (Taylor D.M.)等^[97]用狗作实验表明, ^{241}Am 2.8微居里/克接近于 LD_{100} (绝对致死剂量——译注),狗注射此剂量后的活存时间为400—500日。狗体内蓄积少量 ^{241}Am (0.01—0.05微居里/克)就有急性毒性效应;而对大鼠的急性毒性剂量为0.15—0.2微居里/克^[97]。大鼠的平均寿命取决于 ^{241}Am 的注入剂量:注入剂量为0.2微居里/克者 (肝所受剂量为5000拉德,骨为1600拉德)为9.3天;而当注入剂量*是0.0025微居里/克者 (肝所受剂量为155拉德、

* 原文为排出量,疑误。——校者注。

骨为1000拉德)平均寿命为480天。

本斯台德等人^[67]曾提出 ^{241}Am 和 ^{239}Pu 对大鼠的相对致癌作用资料。注入 ^{239}Pu 3微居里/公斤后经过50—88周,曾出现骨瘤、白血球组织增生和肾癌,而注入 ^{241}Am 2.5和7微居里/公斤后经过57—75周也出现了骨肿瘤,个别的出现了白血病和肾上腺癌。

据扎里金等^[20]报道,大鼠体内 ^{241}Am 蓄积量达0.0025—0.025微居里/克的情况下,远期(300天或更久)曾出现骨肉瘤(几率为6.1%)。

职业性工作条件下,胃肠道是 ^{241}Am 进入机体的可能途径。因此有关 ^{241}Am 从胃肠道吸收入血液的资料就有一定意义。动物实验证明,其吸收率不大。据本斯台德报道^[67], ^{241}Am 从胃肠道的吸收率约为0.05%;扎里金等人的推算^[19],约为0.03%。

^{241}Am 排出动态资料具有很大的实际意义。根据国际放射防护委员会的资料, ^{241}Am 从体内随尿排出的规律呈指数模式。一昼夜内其排出量占排出时刻体内含量的份额(λ_b)为 $0.693/T_b$, ^{241}Am 和 ^{239}Pu 都如此。假若体内 ^{241}Am 含量为容许含量(即0.054微居里),则一昼夜内 ^{241}Am 的排出量为 $0.054\text{微居里} \times 0.693/(7.3 \times 10^4\text{天}) \approx 0.5\text{微微居里}$ 。在国际放射防护委员会建议书中没有 ^{241}Am 随尿排出速率的资料。

哈蒙德(Hammond, S. E.)等^[77]对于钷-239生产事故中吸入了 ^{239}Pu 和 ^{241}Am 的工人进行了吸入后六个月期间 ^{241}Am 和 ^{239}Pu 经尿排出量研究。根据他们的资料, ^{241}Am 随尿排出很慢,每昼夜的排出量几乎是全身含量的一个固定份额。

用计数器进行测量的结果表明,吸入 ^{239}Pu 和 ^{241}Am 后,