

ТРИЦИЈУМ – РАДИОАКТИВНЕ И РАДИОТОКСИЧНЕ КАРАКТЕРИСТИКЕ И СПЕЦИФИЧНОСТИ КОНТРОЛЕ И ЗАШТИТЕ

Марко М. Нинковић

Институт за нуклеарне науке – Винча

Лабораторија за заштиту од зрачења и заштиту животне средине

Садржај – Трицијум је један од неколико радионуклида чије се присуство у радној и животној средини код нуклеарних постројења, посебно тешководних, веома пажљиво прати. Производ радиоактивног распада трицијума су нискоенергетске бета честице које немогу да продру чак ни кроз мртви слој коже, тако да је трицијум опасан једино кад доспе у организам. У овом раду дати су подаци о нуклеарним и радијационим карактеристикама трицијума и његовој радиотоксичности. Посебно је наглашена зависност радиотоксичности од хемијске форме трицијумја. Исто тако указано је на специфичне проблеме откривања присуства трицијума у ваздуху и људским екстремима. Дати су подаци о садржају трицијума у расхладном медију реактора РА као и законитост прираста његове активности у зависности од времена рада реактора на номиналној снази. Коначно, анализирани су специфичности заштите при раду у атмосфери контаминираној трицијумом.

1. УВОД

Трицијум као нестабилни изотоп водоника налази се у природи у ваздуху и води. У природи трицијум настаје интеракцијом космичког зрачења са конституентима атмосфере путем следећих нуклеарних реакција: $n + {}^{14}\text{N} = {}^3\text{H} + {}^{12}\text{C}$ и ${}^2\text{H} + {}^2\text{H} = {}^3\text{H} + {}^1\text{H}$. Космичко зрачење интерагује са азотом (${}^{14}\text{N}$) или деутеријумом (${}^2\text{H}$) и при томе се стварају трицијум (${}^3\text{H}$) и угљеник (${}^{12}\text{C}$). Ово су примарне интеракције које се одигравају у горњим слојевима атмосфере и трицијум потом доспева на површину земље у форми кише. Овим путем се годишње произведе око 150 РВq трицијума и тиме се одржава равнотежна активност од око 2,6 ЕВq у атмосфери земље. Природна концентрација трицијума у језерима и морима је око пет трицијумских јединица (ТУ, Трицијумска јединица се дефинише као: $1 \text{ TU} = 1 \text{ atom } {}^3\text{H} / 10^{18} \text{ atoma H}$), што износи 0,12 Вq L^{-1} . Трицијум је такође, доспео у животну средину у значајним износима, у процесима фузије деутеријума при пробним експлозијама водородних бомби у атмосфери. Трицијум исто тако настаје и у процесима фисије – око 0,01% по фисији [1], тако да се у процесима прераде искоришћеног нуклеарног горива ослобађају значајне количине трицијума. Трицијум високе специфичне активности производи се излагањем ${}^6\text{Li}$ неутронима што се и користи у производњи трицијума за потребе фузионих система.

Веома значајне количине трицијума производе се у

тешководним нуклеарним реакторима путем нуклеарне реакције: $n + {}^2\text{H} = {}^3\text{H} + \gamma$. Овим путем у истраживачком

тешководном нуклеарном реактору, зависно од снаге, годишње се производи количина трицијума од неколико РВq [2], или око 1/10 укупне светске производње под дејством космичког зрачења. Ова чињеница сведочи о размерама проблема који је предмет овог рада, као и о значајној пажњи која се мора посвећивати трицијуму, како он у будућности неби постао један од значајнијих загађивача животне средине.

2. РАДИОАКТИВНЕ И РАДИОТОКСИЧНЕ КАРАКТЕРИСТИКЕ ТРИЦИЈУМА

Трицијум као изотоп водоника веома се слично понаша обичном водонику. Разлике се појављују само што атом трицијума при распаду може убрзати хемијске реакције нераспадног трицијума. Такође мале разлике у брзини хемијских реакције јављају се услед различитих маса изотопа. Основне радиоактивне и радиотоксичне карактеристике трицијума дате су у табели 1.

Табела 1. Радиоактивне и радиотоксичне Карактеристикетрицијума

Време полураспада [3]	12,32 a
Биол. време полуизлучивања[4]	9,4 d /просечно/
Врста распада	β
Максимална енергија β чест.	18,6 keV
Средња енергија β чест. [3]	5,690 keV
Максимални домет β чест.	
- у ваздуху	0,45 cm
- у води и меком ткиву	5,2 μm
Домет β -чест. Енергије 5,7 keV	
- у ваздуху	0,036 cm
- у води и меком ткиву	0,42 μm
- у челику	60 nm
ДАС* (за ${}^3\text{H}$ у форми мол. воде)	$5 \cdot 10^5 \text{ Bq m}^{-3}$
АЛI** (за ${}^3\text{H}$ у форми мол. воде)	$1,2 \cdot 10^9 \text{ Bq}$
Дозни конверзиони фактор за меко ткиво [5]	$1,8 \cdot 10^{-11} \text{ Sv Bq}^{-1}$

* - Изведена гранична концентрација за ваздух;

** - Гранична вредност годишњег уношења;

Као што се у табели 1, може видети, трицијум је чист бета емитер чији се распад може претставити на следећи начин: ${}^3\text{H} \rightarrow {}^3\text{He} + \beta + \text{енергија распада}$. Енергија распада износи 18,6 keV и она се расподељује између β -честице и антинеутрина, који се такође емитује у процесу

рспада, тако да средња енергија емитованих β -честица износи 5,690 keV. Са једним безначајним изузетком трицијум је најслабији познати β -емитер. Домети бета честица трицијума максималне енергије износе нешто мање од 5 mm у ваздуху односно, мање од 0,005 mm у води и меком ткиву. Тако мали домети чине да је трицијум безопасан изван организма, док истовремено претставља озбиљан проблем при његовом откривању. Док се већина осталих радионуклида детектује на основу продорног зрачења које емитују, трицијум мора бити уведен директно у активну запремину детектора да би био откривен и измерен.

3. ХЕМИЈСКЕ ФОРМЕ ТРИЦИЈУМА

Трицијум се јавља у две основне хемијске форме односно, у облику молекула гаса: ${}^3\text{H}_2$, ${}^3\text{H}^1\text{H}$ или ${}^3\text{H}^1\text{H}$, и молекула водене паре: ${}^3\text{H}_2\text{O}$, ${}^3\text{H}^1\text{HO}$ или ${}^3\text{H}^1\text{HO}$. У присуству молекула водене паре долази до реакција *измене*: ${}^3\text{H}_2 + {}^1\text{H}_2\text{O} \rightarrow {}^1\text{H}^3\text{H} + {}^1\text{H}^3\text{HO}$ односно, у присуству кисеоника до реакција *оксидације*: $2{}^3\text{H}_2 + \text{O}_2 \rightarrow 2{}^3\text{H}_2\text{O}$ или $2{}^1\text{H}^3\text{H} + \text{O}_2 \rightarrow 2{}^1\text{H}^3\text{HO}$. Наведене конверзије молекула гасног трицијума у молекуле трициране водене паре врло су значајне, јер је трицијум у форми молекула водене паре за око четири реда величине опаснији када доспе у плућа, него у гасној форми. Искуство показује да је у контаминираној атмосфери код тешководних нуклеарних реактора однос гасне и водене хемијске форме трицијума приближно 50% : 50%.

4. БИОЛОШКЕ ОСОБИНЕ ТРИЦИЈУМА

Метаболизам гасовитог трицијума

При удисању гасовитог трицијума, само мањи део се задржава и преко плућа доспева у крвоток. При томе се он конвертује у молекуле трициране воде. Искуство показује да само 0,003% до 0,005% удахнутог гасовитог трицијума се конвертује у молекуле воде [6]. Доза која потиче од гасовитог трицијума може се разложити на две компоненте: а) доза којој су изложена плућа од удахнутог гасовитог трицијума и б) доза за цело тело од гасовитог трицијума, који се конвертовао у трицирану воду и путем крвотока доспео у остале телесне течности и све делове тела. Укупна доза од гасовитог трицијума унетог у плућа износи само око 10^{-4} од дозе која потиче од исте активности трицијума у форми водене паре удахнутог из ваздуха. Гасовити трицијум доспева у организм практично, искључиво путем удисање. Уношење кроз кожу (транскутано) је занемарљиво за разлику од молекула трициране водене паре који доспевају у организм путем удисања и преко коже приближно у једнаким износима.

Метаболизам трициране воде

Доспевање трицијума у организм у форми молекула трициранер водене паре присутне у ваздуху врло је ефикасно. Наиме, око 99% удахнуте водене паре разноси се путем крвотока по целом организму. Унета количина трициране воде у облику пића и хране скоро у потпуности

бива апсорбована у гастроинтестицијалном тракту и врло брзо доспева у крвоток. У току од само неколико минута од уношења трицијум се појављује у различитим концентрацијама у органима, течностима и ткивима организма у целини. Апсорпција трициране водене паре из ваздуха путем коже такође, је значајна посебно при вишим температурама. За уобичајену температуру коже између 30 и 40 $^{\circ}\text{C}$, апсорпција кроз кожу достиже 50% уношења инхалацијом. Без обзира како је апсорбован трицијум се униформно распоређује по свим телесним течностима током један до два сата по уношењу.

5. ДОЗИМЕТРИЈА ТРИЦИЈУМА

После уношења молекула трициране воде у организм она врло брзо бива разнета путем крвног система по целом телу односно води у њему. Када се успостави равнотежа, што траје 1-2 сата, концентрација трицијума се изједначава у свим телесним течностима (крв, испљувак, урин). Зато је у пракси, за одређивање садржаја трицијума у организму, довољно користити узорак урина.

Укупна интерна доза од трицијума

Активност трицијум оксида, $A(t)$, унетог у организм путем инхалације, ингестије или сорпцијом кроз кожу, у било ком тренутку, t , може се претставити једноставним експоненцијалним законом:

$$A(t) = A_0 \exp(-\lambda_B t) \quad (1)$$

где је A_0 активност унета у организм, одређена на основу мерења садржаја трицијума у урину, а λ_B , константа само биолошког излучивања, пошто је време биолошког полуизлучивања неупоредиво краће од времена радиоактивног полураспада. Да би се одредила укупна односно комитментна еквивалентна доза, H_{50} , од јединичне унете активности, једначина (1) се интеграла у временском интервалу од 0 до 50 а (сагласно дефиницији комитментне дозе), тј.:

$$H_{50} = \int_0^{50} H_0 \exp(-\lambda_B t) \quad (2)$$

где је H_0 почетна јачина еквивалентне дозе од трицијума.

С обзиром на релативно кратко време полуизлучивања трицијума из организма, највећи износ комитментне дозе генерише током првог месеца по уношењу трицијума.

Смањење интерне дозе од трицијума

Укупна (комитментна) доза, која се генерише уношењем извесне количине трицијума у организм директно је пропорционална биолошком времену полуизлучивања из организма, Ово време варира зависно од параметара околине (температуре, влажности, интензитета рада) као и од количине течности коју особа уноси. Мада је просечно време полуизлучивања, као што је дато у табели 1, око 10 дана, оно се може скратити једноставним повећањем количине унетих течних

напитака као што су: вода, сокови, кафа, чај, пиво и вино. Могу се користити и хемијски диуретици, али само уз лекарску контролу, јер они изазивају губитак калијума и других електролита, што може изазвати озбиљне последице по здравље ако се не надокнаде. У посебним случајевима може се применити и поступак хемодијализе крви, којим се време полуизлучивања може скратити на испод 10 сати. Међутим, овако екстремни поступци су оправдани само у случају када је количина трицијума унета у организам радника опасна по његов живот.

5. ДЕТЕКЦИЈА ТРИЦИЈУМА

Пошто трицијум при распаду емитује само нискоенергетско бета зрачење, које не може да продре кроз зидове обичних детектора, да би био детектован трицијум се мора увести директно у активну запремину детектора, било ког типа. Ако се користе јонизационе коморе, оне морају бити проточног типа. У случају коришћења сцинтилационе методе мерења, одговарајући детектор је течни сцинтилатор итд..

Детекција трицијума у ваздуху

За ову врсту детекције најчешће се користе проточне јонизационе коморе. Имајући у виду да овакав тип инструмента региструје све јоне који доспеју у активну запремину, мерење се мора тако реализовати да се од стране доприноси свих јона који не потичу од трицијум оксида. То се постиже филтрацијом и на друге начине. Користе се јонски филтар, за одстрањивање јона и аеросолни филтар, за спречавање уласка радиоактивних аеросола природног и вештачког порекла у јонизациону комору. Корекција за допринос директног гама зрачења решава се коришћењем две јонизационе коморе од којих је једна затворена и служи за мерење само фона гама зрачења. Остаје још решавање проблема доприноса радиоактивних гасова (радона и других) као и гасовитог трицијума. То се постиже коришћењем две независне проточне јонизационе коморе, од којих се кроз једну просисава осушен ваздух (екстракцијом водене паре). Концентрација трицијум оксида се одређује потом на основу разлике њихових показивања.

Као што се види детекција трицијума у ваздуху, помоћу проточних јонизационих комора, нимало није једноставна али се у пракси ипак примењује, за оперативно праћење концентрације трицијума у реалном времену и простору. Провера квалитета ових мерења односно, њихове тачности, врши се истовременим узимањем узорака влаге из ваздуха и мерењем садржаја трицијума у лабораторији, обично на течном сцинтилационом детектору [7].

Контрола унете количине трицијума у организам

На основу претходних мерења могуће је само проценити очекивани ниво излагања трицијуму. Стварни ниво излагања ангажованих добија се узимањем узорака урина и мерењем концентрације трицијума у њима на течном сцинтилационом детектору у лабораторији.

Концентрација трицијума у тешкој води реактора РА

У лето 1981. године извршено је мерење концентрације трицијума у три расположива узорка тешке воде, који су узети директно из тешководног система реактора РА, у различитим временским периодима, као што се то може видети у табели 2.

Мерења су вршена на течном сцинтилационом детектору. Као течни сцинтилатор коришћен је Aquasol – 2, производ енглеске фирме New England Nuclear. Због високе концентрације трицијума у оригиналним узорцима било је неопходно извршити разблажење узорака са дестилисаном водом за фактор $5 \cdot 10^4$, да би се добиле концентрације оптималних вредности за мерење. Измерене концентрације приказане су у задњој колони табеле 2. У овој табели приказана је и процењена концентрација трицијума реферисана на март 1979. године. То је тренутак кад је реактор престао са радом на номиналној снази, због појаве значајних наслага алуминијум оксида на горивним елементима [8]. Тај податак претставља практично, максималну концентрацију трицијума која је достигнута у тешкој води реактора РА у условима рада на номиналној снази, у временском периоду од маја 1963. до марта 1979. године односно, практично до престанка рада реактора. Генерисање трицијума у тешкој води у периоду рада реактора пре маја 1963. и после марта 1979. године је занемарено, јер су и генерисане интегралне снаге реактора, у тим периодима, релативно занемарљиве.

Табела 2. Садржај трицијума у тешкој води реактора РА. [9]

Узорак	Време узимања узорка	Време рада реактора, а/	Садржај ^3H /GBq L ⁻¹ /
1	јули 1967	4,3	55,5
2	јули 1973	9,5	155
(3	март 1979	15,25	311)*
4	јули 1981	15,25	274

* Ова вредност није мерена већ израчуната коришћењем релације (3)

Концентрација трицијума у расхладном медију тешководног нуклеарног реактора расте приближно линеарно са временом рада реактора. На пример, за тешководне нуклеарне реакторе класе DIDO у британском нуклеарном центру у Harwell-у, ова зависност се изражава релацијом: $A = 14,7 t^{1,22}$ [10], где је А–активност у GBq L⁻¹, а t – време рада реактора, у годинама. На основу података датих у табели 2, изведена је одговарајућа зависност концентрације трицијума и времена рада реактора РА на номиналној снази, која гласи:

$$A = 9,73 t^{1,22} \quad (3)$$

Релација (3) искоришћена је за процену максималне концентрације трицијума у тренутку престанка рада реактора на номиналној снази крајем марта 1979, пошто се стицајем околности није располагало са узорком воде узетим у том тренутку.

6. ЗАШТИТА ОД ТРИЦИЈУМА

При раду у атмосфери контаминираној трицијумом неопходно је користити заштитну опрему, да би се спречила значајнија интерна контаминација. Пошто трицијум продире у организам како кроз дисајни тракт тако и кожу, нису довољне само заштитне маске већ комплетна изолујућа заштитна одећа.

Заштитна одећа се прави од флексибилних пластичних материјала, који претстављају полупропустљиве мембране за трицијум како у форми оксида тако и гаса. Међутим при дифузији молекуларног трицијума кроз ове материјале постоји велика вероватноћа да дође до његове оксидације. Тако молекуларни трицијум доспева у унутрашњост одела као молекул трициране воде, који је много опаснији, као што је речено, од гасне форме. Другим речима у овом случају пластични материјал се понаша као катализатор подстичући трансформацију гасног у оксид трицијума. Тај ефеката значајно смањује заштитни фактор одеће, о чему се мора посебно водити рачуна у пракси.

Заштитни фактор одела од PVC-фолије, зависи од њене дебљине и износи око 50, за фолију дебљине 0,1mm односно око 100, за фолију дебљине 0,18 mm [2].

7. ЗАКЉУЧАК

На основу свега изложеног може се исказати неколико тврдњи. Трицијум, иако је један од најмање токсичних радионуклида ипак претставља незанемарљиву опасност посебно, у пракси рада на тешководним нуклеарним постројењима. Показано је да садржај трицијума у тешкој води реактора зависи од времена рада. Изведена је емпиријска формула за прираштај садржаја трицијума у зависности од рада реактора РА на номиналној снази и на основу ње одређена је вредност од 311 GBq L^{-1} , као максимално достигнута концентрација у тренутку престанка рада реактора на номиналној снази. Показано је да контрола присуства трицијума у ваздуху радних просторија, као једна од основних превентивних заштитних мера, нимало није једноставна, јер као чист нискоенергетски бета емитер тешко се открива и мери. Указано је на чињеницу да коришћење заштитне одеће од пластичних материјала има недостак, који се не сме занемарити, јер трицијум дифундује кроз пластику и шта више при томе се трансформише у радиотоксичније молекуле воде, ако је претходно био у гасној фази.

ЛИТЕРАТУРА

- [1] E.L.Albenesius and R.S.Ondrejcin, Nuclear fission produces tritium, *Nucleonics*, **18**, 9. 100, 1960.
- [2] W.R.Bush, Assessing and controlling the hazard from tritiated water, AECL – 4150, Atomic Energy of Canada Limited, Chalk River, Ontario, April 1972
- [3] NNDC (National Nuclear Data Center) located at BNL (Brookhaven National Laboratory) Upton, N.Y., USA,

ENSDF Decay Data in the M IRD (Medical Internal Radiation Dose) Format for ^3H , Database Version of Jan.26.2005. /<http://www.nndc.bnl.gov/>

- [4] R.L.Hill, J.R.Johnson, Metabolism and dosimetry of tritium, *Health Physics*, **65**, 628-647, 1993.
- [5] IAEA (International Atomic Energy Agency), International basic safety standards for protection against ionizing radiation and for the safety of radiation sources, Safety Series No. 115, International Atomic Energy Agency, Vienna, 1996.
- [6] DOE HANDBOOK, Primer of tritium safe handling practices, DOE-HNDBK-1079-94, December 1994, U.S. Department of Energy, FSC-6910, Washington, D.C. 20585, 1994.
- [7] M.M.Ninković, Dosage de tritium, *Compte rendu commun du colloque Franco-Yougoslave sur la radioprotection*, Herceg-Novi, Yugoslavie, du 10 au 12 octobre 1966.
- [8] M.M.Ninković, Radiation protection experience in RA heavy water research reactor important for decommissioning, *Proceedings of the 9th International Conference on Radioactive waste Management and Environmental Remediation*, Available at: <http://www.x-cd.com/icem03/finalpapers/4617.doc>, Examination School, Oxford, England, September 21-25, 2003.
- [9] M.M.Ninković, Kontrola sadržaja tricijuma u teškoj vodi reaktora RA, Dokumentacija Odeljenja za reaktorsku dozimetriju i tehničku zaštitu Laboratorije za zaštitu od zračenja, Interna ZZ-IBK-dokumentacija, juli 1981.
- [10] B.T.James, E.M.Flew, The control of tritium in heavy water in DIDO class reactors, in *Publication: Health Physics control of A.E.R.E. Research Reactors* (eds.: W.B.Woollen, E.M.Flew, J.E.Cook, R.L.Gardiner, B.T.James, A.Martin), AERE – R 4528, Atomic Energy Establishment, Harwell, Berkshire, UK, 1964.

Abstract – Tritium is one of a few radionuclides which has to be monitored in the environment of the heavy water nuclear reactors, especially. Radioactive decay product of tritium is non-penetrating beta particles with a maximum energy of 18.6 keV and an average of 5.7 keV. This is low energy beta compared to most radioactive beta emitters and it can be easily shielded. The outer layer of dead skin is enough to stop all of the beta external of the body. Only if tritium is taken into the body can produce a significant hazard. In this paper radioactive and radiotoxic properties of tritium are given. It was especially emphasized dependence of tritium radiotoxicity of its chemical form. The difficulties of tritium monitoring in the air and human samples are discussed also. Tritium concentration in RA reactor cooling water and the empirical low of its dependence of integral reactor power are presented. Finally, specific problems of protection against tritium during the work in contaminated atmosphere are analyzed.

TRITIUM – RADIOACTIVE AND RADIOTOXIC PROPERTIES, MONITORING AND PROTECTION AGAINST
M. M. Ninković