«УТВЕРЖДАЮ»
Зам. главного санитарного врача
Союза ССР
П. П. Лярский
9 июня 1967 г.
№ 672—67

МЕТОДИЧЕСКИЕ УКАЗАНИЯ* ПО ИССЛЕДОВАНИЮ РАДИОАКТИВНЫХ АЭРОЗОЛЕЙ В СЛУЧАЕ ПРИСУТСТВИЯ В ИХ СОСТАВЕ ГОРЯЧИХ ЧАСТИЦ

1. Введение

Под горячими аэрозольными частицами понимают пылевые частицы с высокой удельной бета- и гамма-активностью, обуславливающей абсолютную активность витающей в воздухе частицы более 10^{-11} кюри. При такой активности в случае длительной фиксации в одном и том же участке биологической ткани уровень облучения прилегающих клеточных слоев может составить сотни и тысячи рад. Отдаленные последствия такого локального облучения еще не изучены, но некоторые исследователи не исключают возможности канцерогенного эффекта горячих частиц.

В настоящее время еще не разработаны нормативы содержания горячих аэрозольных частиц во вдыхаемом человеком воздухе и при нормировании учитывается только суммарная концентрация радиоактивных аэрозолей. Однако для оценки возможных эффектов действия аэрозолей с учетом наличия в их составе горячих частиц важно вести учет их поступления в организм работающих и населения. Кроме того, исследование концентрации и состава горячих частиц позволяет судить о происхождении, механизме образования и путях распространения радиоактивных аэрозолей. Это расширяет возможности осуществления эффективных мероприятий по профилактике поражений радиоактивными аэрозолями.

В основе методики исследования горячих частиц лежат следующие принципы:

1) отбор проб аэрозолей из больших объемов воздуха;
2) авторадиография проб;

* Настоящие Указания составлены А. В. Быховским (Институт медицинской радиологии АМН СССР) и О. М. Зараевым (Всесоюзный Центральный научно-исследовательский институт охраны труда ВЦСПС).

gost.e-ecolog.ru

3) микроскопия, возможность которой основана на обратимом проявлении ядерной эмульсии;

4) анализ изотопного состава активных компонент частиц;

5) анализ элементарного состава неактивных компонент частиц.

При исследовании горячих частиц используются в основном сравнительно простые методы оценки концентрации в воздухе и абсолютной активности отдельных частиц (п.п. 2, 3, 4, 5 настоящих Указаний), доступные в условиях работы радиологических групп СЭС. Методы анализа дисперсности и состава активных и стабильных компонент горячих частиц (п.п. 6, 7, 8), требующие использования сложной аппаратуры, должны осуществляться, как правило, в службах дозиметрии объектов, имеющих источники образования горячих частиц, или в специализированных научно-исследовательских лабораториях.

2. Отбор проб радиоактивных аэрозолей

Опыт систематических наблюдений свидетельствует о том, что концентрации горячих частиц, входящих в состав радиоактивных аэрозолей, весьма малы. Например, даже в период проведения ядерных взрывов одна аэрозольная частица с активностью более $1 \cdot 10^{-10}$ кюри приходится на 100—1000 м^3 приземного воздуха. Концентрация горячих частиц в рабочих помещениях предприятий, где ведутся работы с высокоактивными материалами, имеет тот же порядок величины (например: одна частица с активностью более $1 \cdot 10^{-10}$ кюри приходится на 250—500 м^3 воздуха рабочих камер мощных гамма-установок с загрязненными препаратами Co^{60} и примерно на 500 м^3 воздуха, удаляемого системами технологической вентиляции из исследовательского уран-графитового реактора мощностью 30 Мвт с водяным охлаждением).

Объем воздушной пробы, необходимый для измерения столь низких концентраций горячих частиц с достаточной для практических целей точностью, должен составлять, как правило, не менее сотен и тысяч м^3 (см. приложение 1 и 2). Стандартные переносные приборы для измерения концентрации радиоактивных аэрозолей типа РВ-4 не обеспечивают отбор столь больших объемов воздуха за приемлемое время (например, в течение рабочей смены). Поэтому для контроля радиоактивных аэрозолей в случае присутствия в их составе горячих частиц необходимо использовать нестандартные фильтрационные установки. Для такой установки необходимы:

1) фильтр, задерживающий аэрозольные частицы;

2) фильтродержатель;

3) измеритель расхода воздуха через фильтр;
4) воздухозаборное устройство.

В качестве фильтров для осаждения радиоактивных аэрозолей рекомендуется применять фильтрующий материал ФП. При скорости фильтрации 1см/сек этот материал имеет эффективность очистки 99,9% при сопротивлении 1,5—1,9 мм вод. ст. Для практических целей можно считать, что фильтры этого типа улавливают все радиоактивные частицы. Расход воздуха через фильтр не должен превышать 1 000 $м^3/м^2$ час. Для анализа горячих частиц допускается запыленность фильтрующего слоя порядка 0,5 $мг/см^2$, что соответствует сроку службы 60 часов по атмосферной пыли с концентрацией 0,25 $мг/м^3$ при скорости фильтрации 10 см/сек.

Для отбора проб атмосферных аэрозолей стандартное полотно ткани ФП можно натягивать на боковую поверхность специально для этой цели изготавливаемого сетчатого барабана, присоединяемого к воздуховоду приточной вентиляции здания. Диаметр барабана примерно 500 мм, высота — 650 мм. Объемная скорость прокачки в этом случае равна примерно нескольким сотням $м^3$/час. Для контроля загрязнения атмосферного воздуха радиоактивными аэрозолями рекомендуется применять также прокачные установки типа УАС-1, разработанные в Институте биофизики МЗ СССР, прокачную установку на основе электрического двигателя АД--41-2, разработанную в Институте атомной энергии, и некоторые другие.

Площадь фильтродержателей для аэрозольных фильтров, предназначенных для отбора проб в производственных помещениях, рекомендуется выбирать не менее 500 $см^2$. При этом максимальный расход воздуха не превышает 50 $м^3$/час. Типовые фильтродержатели таких размеров промышленностью не выпускаются. В виде исключения возможно применение фильтродержателя площадью $\approx$ 150 $см^2$ от прибора РВ-1.

Для измерения расхода воздуха через фильтр следует выбирать устройства, не требующие значительного перепада давления: анемометры и газовые счетчики (например, ГФК-25, РС-100), а также приборы, работающие по принципу эжекции, и трубки Пито. В качестве интегрирующих измерителей объема протянутого воздуха удобно использовать электроанемометры или анемометры ,соединенные с электромеханическим счетчиком, учитывающим число оборотов стрелки анемометра, т. е. величину, пропорциональную полному объему протянутого воздуха. Измерение проводится стандартными методами. Не рекомендуется пользоваться ротаметрами, индикаторами газового потока и дифференциальными манометрами.

В качестве воздуходувок рекомендуется выбирать устройства с приблизительно одинаковой объемной скоростью прокачки в диапазоне ожидаемых изменений сопротивления фильтра в процессе отбора пробы. По этой причине применение бытовых пылесосов нежелательно. В случае применения интегрирующего измерителя расхода воздуха допустимо использование центробежного вентилятора ВПП-4, предназначенного для подачи чистого воздуха в пневмокостюмы, производительностью 30 м³/час при напоре 450 мм вод. ст. Более пригодны для пробоотбора серийно выпускаемые ротационные воздуходувки типов ПРВ-1М, ГР-А5-4 и ГР-А5-5, рассчитанные на расход воздуха до 30 м³/час и обеспечивающие напор от 300 до 1 500 мм вод. ст., форвакуумные насосы и некоторые другие устройства.

При отборе проб в производственных помещениях в качестве воздухозаборных устройств могут применяться вакуумные системы. Установка полотен фильтрующей ткани на решетки отверстий вытяжной вентиляции в рабочих камерах мощных гамма-установок и вентиляционных камерах ядерных реакторов и т. п. обеспечивает необходимую объемную скорость пробоотбора (до 3 000 м³/час), однако при этом уменьшается кратность воздухообмена (на 10—500%). Поэтому такой простой способ отбора больших объемов воздуха рекомендуется применять лишь в тех случаях, когда снижение кратности воздухообмена либо незначительно (до 25%), либо может быть устранено увеличением производительности вентилятора (например, благодаря увеличению числа оборотов, подключению резервного вентилятора и т. п.).

В некоторых случаях для анализа радиоактивных частиц можно применять также рамочные фильтры типа ДК-0,11, ДК-0,24, ДК-06, ДК-1,4, ДК-45; В-0,4, В-1 и др. Кроме того при смене установленных в системах технологической вентиляции фильтров, необходимая часть фильтровальной ткани может быть использована для изучения радиоактивного загрязнения воздуха, который отсасывался из соответствующих камер, каньонов и т. п. объектов за период работы данного фильтра.

3. Первичное обнаружение и локализация горячих частиц в пробе радиоактивных аэрозолей

Фильтровальная ткань, на которой осаждены исследуемые радиоактивные аэрозоли, разрезается на участки примерно равной площади. Размер этих участков зависит от формата рентгеновской пленки, используемой для авторадиографирова-

ния пробы (см. ниже). Участки фильтра через чистый лист бумаги разглаживаются утюгом при температуре не выше 80°С. Благодаря этому уничтожаются морщины на фильтровальной ткани, могущие дать при авторадиографии «эффект клина», а также уменьшается ворсистость ткани, которая затрудняет извлечение из фильтра отдельных участков, содержащих горячие частицы, и которая может стать причиной электрических разрядов в процессе отделения фильтра от рентгеновской пленки.

Фильтры с радиоактивными аэрозолями не следует озолять, так как наряду с уничтожением пыли органического происхождения в процессе сжигания может произойти спекание отдельных радиоактивных частиц с неактивными, и это может привести к ошибкам при дальнейших исследованиях.

Характер распределения радиоактивности в аэрозольной пробе изучается путем ее авторадиографии. Для авторадиографии радиоактивных аэрозольных частиц, содержащих бета- и гамма-излучатели, наиболее пригодна крупнозернистая рентгеновская пленка, имеющая эмульсию с размером зерен в несколько микрон. В настоящее время промышленностью выпускается несколько типов рентгеновской пленки. Основные характеристики отечественных рентгеновских пленок, включая и рентгеновскую пленку типа ХХ, снятую в настоящее время с производства, приводятся в табл. 1.

Основные требования к рентгеновской пленке, предназначенной для выявления пятен почернения от радиоактивных частиц,— высокая чувствительность и высокая контрастность. В связи с этим наиболее подходящей среди отечественных образцов является рентгеновская пленка типа РТ-1.

Для авторадиографирования аэрозольной пробы участок фильтра прижимают к рентгеновской пленке, помещенной на гладкую металлическую подложку. Местоположение фильтра на пленке отмечается твердым карандашом, канцелярскими кнопками и т. п. Эти операции рекомендуется проводить в абсолютной темноте, так как даже красный свет создает заметную вуаль. На пленку кладут чистый лист бумаги и кусок пористой резины толщиной около 1 см. Сверху помещается другая металлическая подложка с пленкой, фильтром и пористой резиной и т. д. Образованный таким образом «сэндвич» помещают на время экспозиции в светонепроницаемый ящик с прижимающим винтом. Давление можно регулировать с помощью пружины, установленной под головку винта. Давление не должно превышать 0,1 кг/см^2, так как более высокое давление вызывает добавочное вуалирование пленки. Время экспозиции выбирается в пределах от 3 до 14 суток в зависимости от поставленной задачи.

Таблица 1

Основные характеристики рентгеновских пленок (не ниже)

Тип пленки	Завод—изготовитель	Диаметр зерен галоидного серебра, мк	Толщина эмульсии с каждой стороны, мк	Фотографические свойства пленок (не ниже)			
				$S_{0,85}$ обр. рентген	$S_{g=1}$ обр. рентген	γ	D_o
РМ-1	Шосткинский	1,16	17—18	18	30	2,5	0,13
РМ-2		1,16	20—21	20	35	2,8	0,15
РМ-3		1,16	21—22	12	20	2,7	0,13
РТ-1	Шосткинский	0,77	20—21	50—60	80—100	3,5	0,1
РТ-2	и Казанский	1,38	18—19	25	40	3,0	0,15
РТ-3	Казанский	—	21—22	20—30	35—45	3,9	0,15
РТ-4		—	20—21	9—12	15—20	3,5	0,10
РТ-5		—	15—16	3—5	6—10	3,5	0,05
ХХ		—	15—17	—	25	3,0	0,13

1. Чувствительность $S_{0,85}$ — величина, обратная экспозиции, необходимой для того, чтобы оптическая плотность почернения на 0,85 превышала фон.

2. Чувствительность $Sg = I$ — величина, обратная экспозиции, для которой касательная к характеристической кривой образует угол 45° с осью абсцисс (градиент кратности равен 1).

3. γ — коэффициент контрастности.

4. D_o — плотность вуали эмульсионного слоя.

5. Для дозиметрических целей выпускаются пленки типа РМ-5. Пленка РМ-5-1 — это пленка типа РТ-1, а РМ-5-3 — типа РТ-5. Они отличаются только форматом и особой упаковкой.

Во избежание регрессии скрытого изображения промежуток времени между окончанием экспонирования и проявлением не должен превышать нескольких часов.

Проявление пленки типа РТ-1 проводится в метолгидрохиноновом проявителе по ТУ 1709:

Метол	2 г;
Сульфит натрия кристалл	180 г;
Гидрохинон	8 г;
Сода кристал.	118 г;
Бромистый калий	5 г;
Вода	до 1 л.

Температура проявляющего раствора 18°. Поскольку свежеприготовленный проявитель обладает повышенной вуалирующей способностью, то пользоваться им следует не ранее чем через 8 часов после приготовления.

Для проявления пленку помещают в кювету или специальный бак-танк. Проявлять в кюветах следует по одной пленке во избежание слипания пленок и неравномерного их проявления. В процессе проявления следует покачивать кювету и несколько раз перевернуть пленку. Для проявления в танке пленку навешивают на рамку и погружают в бак. При погружении следует 2—3 раза резко поднять рамку на несколько сантиметров и снова опустить, чтобы стряхнуть приставшие к пленке воздушные пузырьки. Проявление в танке обеспечивает, как правило, более высокое качество авторадиограмм, и кюветное проявление следует считать допустимым лишь при небольшом объеме работы (не более 5 рентгеновских пленок за рабочий день).

В табл. 2 показано, во сколько раз следует изменять время проявления при изменении температуры проявителя и по мере увеличения количества проявленной в нем рентгеновской пленки.

Таблица 2

Относительное изменение времени проявления при изменении температуры и по мере увеличения количества проявленной пленки (время проявления в свежем проявителе при температуре 18° принято за 1)

Количество пленки, м²*, проявленной в 1 л проявителя	Температура проявителя, °С				
	16	18	20	22	24
Свежий проявитель	1,3	1	0,8	0,7	0,6
0,6	1,6	1,2	1,0	0,9	0,8
0,9	1,8	1,4	1,2	1,1	1,0
1,2	2,0	1,6	1,3	1,2	1,1
1,4	Проявитель непригоден				

*) Площади рентгеновских пленок 24×30, 10×24 и 18×24 см равны соответственно 0,072, 0,024 и 0,043 м².

Обрабатывать пленки в обычном проявителе при температуре ниже 16 и выше 24°С не рекомендуется. Следует помнить, что при отклонении температуры проявителя от нормальной качество авторадиограммы несколько ухудшается, даже если время проявления скорректировано в соответствии с табл. 2.

По окончании процесса проявления пленки в течение 1—2 минут промываются проточной водой.

Фиксирование пленок проводится в течение 15—20 мин. в быстром кислом фиксаже БКФ-2:

Вода (60—70°С)	500 мл
Гипосульфит кристал.	260 г
Хлорист. аммоний	50 г
Метабисульфит натрия	18 г
Вода хол.	до 1 л

Продолжительность нормального фиксирования должна в два раза превышать время просветления пленок в фиксаже. Продолжительность окончательной промывки в проточной воде должна составлять не менее 20 минут.* Процесс сушки можно ускорить, применяя для этой цели специальные сушильные шкафы. В сушильный шкаф пленки помещаются в тех же рамках, в каких производилась фотообработка.

Просмотр авторадиограмм следует проводить на негатоскопе в полузатемненной комнате, т. к. свет, отраженный от пленки, уменьшает контрастность изображения. Если в исследуемой пробе радиоактивных аэрозолей присутствуют отдельные высокоактивные частицы, то на авторадиограмме они обнаруживаются по дискретным изолированным точкам и пятнам почернения, образованным в результате действия излучения этих частиц на фотослой. Совмещение полученной авторадиограммы с соответствующим фильтром по реперным отметкам позволяет с точностью ~ 0,5 мм определить положение горячей частицы на фильтре.

4. Выделение горячей аэрозольной частицы из пробы радиоактивных аэрозолей

Локализованные с помощью метода авторадиографии горячие частицы следует выделить из аэрозольной пробы. Выделение горячих частиц необходимо не только для их достоверной идентификации, но и для точного измерения бета-активности частиц, их микроскопического изучения, изучения их изотопного состава с помощью гамма- и бета-спектрометрии, а также состава их неактивного носителя.

* Режим обработки пленки может быть иным в соответствии с рекомендациями, которые даются заводом-изготовителем для используемой пленки.

Небольшие участки фильтра (диаметром не более 3 мм), которым на авторадиограмме соответствуют пятна почернения, вырезают (например, с помощью отточенной иглы шприца большого диаметра), отделяют от марлевой подложки и извлекают из фильтра.

Практика работы показала, что для исследования горячих аэрозольных частиц их удобно заключать в прочные прозрачные пленки, надежно фиксирующие положение аэрозольных частиц. Пленка образуется в результате растворения на предметном стекле участка ткани ФПП, содержащего исследуемую частицу, органическими растворителями.

а. **Заключение горячей частицы в пленку путем просветления фильтрующего слоя (при небольшой запыленности фильтра).** При небольшой запыленности ткани ФПП (объем протянутого воздуха не более 0,1—0,5 м³ через квадратный см площади фильтра) участок фильтра площадью 5—6 см², содержащий исследуемую радиоактивную частицу, помещается на предметное стекло лобовой стороной вниз, чтобы исследуемая пыль соприкасалась со стеклом. В центр участка фильтра с помощью медицинского шприца или пипетки наносят несколько капель дихлорэтана с добавкой в качестве пластификатора дибутилфталата в количестве 1%. В процессе просветления истинная картина распределения частиц на фильтре не изменяется. После высыхания растворителя в течение 30—40 мин. на стекле образуется тонкая прозрачная пленка толщиной 40 мк, надежно фиксирующая положение аэрозольных частиц.*

б. **Заключение горячей частицы в пленку путем деконцентрирования аэрозольной пробы (при значительной запыленности фильтра).** При значительной запыленности фильтра (при объемах воздуха более 0,5—1,0 м³/см²) радиоактивные частицы находятся на фильтре вместе с очень большим количеством неактивных пылинок, и для выделения горячей частицы аэрозольную пробу следует деконцентрировать. Для этого вырезанный из пробы участок фильтра площадью ~ 8 мм², содержащий горячую частицу, помещается на предметное стекло лобовой стороной вниз. В центр фильтра шприцом или пипеткой наносится 2 мл 1,5% раствора перхлорвиниловой смолы в дихлорэтане таким образом, чтобы обеспечить как можно более равномерное распределение пылевого осадка по поверхности предметного стекла. Так как при отборе пробы

*) Применение в качестве просветляющей жидкости раствора, состоящего из 94% ксилола + 6% дибутилфталата или трикрезилфосфата дает еще более гладкую и прозрачную пленку, однако вследствие более медленного испарения растворителя становится более вероятной коагуляция пыли, искажающая первоначальную дисперсность аэрозольной пробы.

возможна конгломерация частиц на волокнах фильтра, а коагуляция пылинок может произойти и в растворе, то с целью наиболее полной дезагрегации аэрозоля можно применить звуковые колебания с основной частотой 50 гц, в качестве генератора которых может служить телефон ТА-4, включенный через автотрансформатор ЛАТР-1 в сеть переменного тока. Хорошие результаты по дезагрегации достигаются при интенсивности звукового поля, соответствующей напряжению на ТА-4 около 60 в. Предметное стекло с нанесенным на его поверхность участком фильтра при помощи уровня устанавливают в горизонтальное положение на мембрану, связанную с наушниками телефона ТА-4, и закрывают стеклянным колпаком, оставляя между ним и мембраной зазор примерно в 1 см. Растворение фильтра и образование пленки происходит в звуковом поле. Сушку проводят при комнатной температуре в течение 30—40 минут. Должна быть обеспечена равномерность сушки во избежание деформации пленки и нарушения равномерности распределения частиц по поверхности предметного стекла. После высыхания растворителя образуется тонкая прозрачная пленка толщиной 15—20 мк.

Приготовленный одним из вышеописанных способов препарат помещается на рентгеновскую пленку РТ-1. Авторадиограммы отличаются друг от друга по меткам на эмульсии, сделанным твердым карандашом. После двухдневной экспозиции пленка обрабатывается по стандартной методике, описанной в п. 3. Затем авторадиограмма помещается лицевой стороной вверх на стекло негатоскопа, а сверху по реперным отметкам помещается предметное стекло, на котором отмечается место — положение проекции наиболее интенсивного пятна почернения. Соответствующий участок пленки размером 2×2 мм подрезают лезвием, смачивают водой и отделяют от стекла. Воду с поверхности пленки удаляют фильтровальной бумагой.

При необходимости можно провести вторичное деконцентрирование аэрозольной пробы путем растворения вышеописанным способом этого участка пленки.

Опыт выделения горячих частиц описанным способом показывает, что активность одной и той же частицы оказывается — с учетом процессов распада — на различных этапах деконцентрации пробы одинаковой; это свидетельствует о том, что перехода активности за короткий период контакта с органическим растворителем практически не происходит.

Растворитель может быть выбран другим (смеси дихлорэтана со спиртом, эфиры, кетоны), однако наряду с отсутствием агрессивного действия на исследуемые частицы он должен вполне хорошо смачивать их поверхность, т. к. в противном случае суспендированные частицы слипаются друг с другом,

образуя хлопья. Точно также ведут себя частицы и в присутствии ничтожных плохорастворимых примесей. По этим причинам использование в качестве растворителя фильтровальной ткани ацетона недопустимо. Добавление к растворителю пептизирующих средств с целью предотвращения коагуляции аэрозольного осадка, несмотря на внешнюю простоту и заманчивость, в большинстве практических случаев не может применяться. Более надежными практическими способами стабилизации суспензий аэрозольных частиц являются 1) тщательная очистка растворителя от веществ, оказывающих коагулирующее действие на частицы, и 2) уменьшение концентрации частиц в растворяемой пробе до возможно малой величины. Подбор подходящего растворителя и концентрации суспензии в каждом реальном случае не сложен и не требует большого опыта.

В результате описанных процедур исследуемая частица оказывается заключенной в прочную прозрачную пленку. Это позволяет, не опасаясь потери частицы: 1) измерять ее бета-активность на радиометрических приборах, 2) изучать ее изотопный состав с помощью гамма- и бета-спектрометрии, 3) с помощью методики обратимого проявления жидкой ядерной эмульсии проводить ее микроскопическое изучение и 4) с помощью метода рентгеноспектрального микроанализа исследовать состав ее неактивного носителя.

в. **Извлечение горячих частиц из пробы с помощью микроманипулятора.** С целью достоверной идентификации и изучения некоторых физико-химических свойств радиоактивных частиц (например, растворимости в различных биологических субстратах) применяется извлечение задержанных на аэрозольном фильтре горячих частиц с помощью микроманипулятора ММ-1, установленном на микроскопе МБИ-2 или МБИ-3. Предварительно участок фильтра, содержащий горячую частицу, выявленный по расположению пятна почернения на авторадиограмме, уменьшается до возможно меньших размеров, причем присутствие горячей частицы при каждом делении кусочка фильтра контролируется путем измерения его бета-активности на торцовом счетчике (см. п. 5). Далее непосредственно под микроскопом с волокон фильтра острием иглы манипулятора снимается 3—4 частицы и переносится на поверхность предметного стекла; каждый раз определяется бета-активность выделенной группы частиц и оставшейся части аэрозольной пробы. Если извлеченная группа пылинок содержит горячую частицу, то, как правило, путем последовательных манипуляций ее удается выделить. Выделенная горячая частица помещается в заранее отмеченную точку полимерной пленки (например, вблизи окончания ее прореза) и подвергается дальнейшему исследованию.

5. Оценка радиоактивности горячих аэрозольных частиц

а. Измерение активности горячих частиц радиометрическими приборами. Радиоактивность отдельных высокоактивных частиц, выделенных из аэрозольной пробы, может быть измерена с помощью стандартной радиометрической аппаратуры. Результатом измерения является относительная активность частицы в импульсах в минуту. Горячая частица для относительного счета активности может быть заключена в прозрачную пленку (п. 4 настоящих Указаний), находиться на кусочке фильтра или на полимерной (лавсановой) пленке. Для перехода к ее абсолютной активности (в расп/мин или кюри) проводится калибровка радиометрической установки, цель которой — найти эффективность регистрации E излучения данного изотопа. Прежде чем приступать к калибровке необходимо выяснить изотопный состав горячей частицы согласно п. 7 настоящих указаний. При измерении активности горячих частиц, содержащих смесь продуктов деления (например, радиоактивных частиц от испытательных ядерных взрывов) при возрасте смеси от 10 до 200 дней в качестве эталонного излучателя следует использовать изотоп Tl^{204} и при возрасте от 2 до 10 лет — изотоп K^{40}. Если в распоряжении нет эталона с изотопным составом, идентичным изотопному составу горячей частицы, то калибровку можно провести с помощью одной из исследуемых частиц, активность которой измерена при помощи счетчика с геометрией 4π (см. ниже). При проведении калибровки необходимо вводить поправку на разницу телесных углов регистрации излучения частицы и неточечного эталона.

Минимальная радиоактивность N_0, которая может быть измерена с заданной точностью δ при фиксированном времени измерения T на радиометрической установке с эффективностью регистрации ε выражается формулой:

$$N_0 = \sqrt{\frac{4N_\phi}{\varepsilon^2\delta^2 T} + \frac{1}{\varepsilon\delta^2 T}} \qquad (1)$$

Радиометрические установки для измерения радиоактивности отдельных аэрозольных частиц должны обладать высокой эффективностью регистрации и низким фоном. Нижний предел измеряемых активностей (по эталону $Sr^{90}+Y^{90}$), которые могут быть определены с точностью $\delta = \pm 10\%$ за различные промежутки времени * на радиометрических приборах, поставляемых Всесоюзным объединением «Изотоп», приведены в табл. 3.

---

*) Измерения в течение более 30—60 мин. следует проводить лишь на установках, обладающих хорошей стабильностью.

Таблица 3

Вид счетчика бета-частиц	Нижний предел измеряемый бета-активности, кюри, при времени измерения Т			
	30 мин	1 час	3 час	6 час
Торцовый счетчик Т-25-БФЛ	$0{,}8.10^{-10}$	$5{,}4.10^{-11}$	3.10^{-11}	$2{,}2.10^{-11}$
Установка с малым фоном УМФ-1500	$2{,}2.10^{-11}$	$1{,}35.10^{-11}$	$6{,}5.10^{-12}$	$4{,}3.10^{-12}$
Счетчик с открытым окном для измерения малых активностей СОТ-25-БФЛ	$2{,}2.10^{-11}$	$1{,}4.10^{-11}$	$6{,}8.10^{-12}$	$4{,}5.10^{-12}$
Проточный 4π— счетчик «Протока»	$1{,}0.10^{-11}$	$6{,}6.10^{-12}$	$3{,}7.10^{-12}$	$2{,}5.10^{-12}$

Из табл. 3 следует, что доступный в условиях радиологических групп СЭС метод абсолютного измерения бета-активности с помощью торцового счетчика Т-25-БФЛ и стандартных установок типа Б-2, ПС-1000, ДП-100 может быть использован при измерении радиоактивности отдельных аэрозольных частиц с активностью более $(2—10).10^{-11}$ кюри. Методика применения торцовых счетчиков для абсолютных измерений радиоактивности с введением комплекса взаимосвязанных поправок на эффективность, величину телесного угла, поглощение, обратное рассеяние, самопоглощение и на схему распада изотопа описана в «Сборнике дозиметрических и радиометрических методик», М., Атомиздат, 1966 г.

Применение более сложных измерительных приборов позволяет измерять еще менее активные аэрозольные частицы. Методики измерения радиоактивности образцов на этих приборах приводятся в их описаниях и инструкциях по использованию. В условиях обычной лаборатории может быть изготовлен простой в изготовлении и эксплуатации 4π-счетчик, работающий на метане, который можно брать из газовой сети. Конструкция и достаточно подробное описание такого 4π-счетчика приводится в «Вестнике Московского Университета», № 2 ,30 (1963). Для измерения гамма-активности можно использовать сцинтилляционный гамма-спектрометр (см. п. 7), работающий в режиме интегрального счета. Легко осуществим в условиях обычной лаборатории и сцинтилляционный 4π-счетчик, позволяющий измерять абсолютную бета-активность «невесомых» излучателей в интервале энергий 0,15—3,5 Мэв. В этом счетчике источник помещается между двумя близко расположенными — 0,5 мм — кристаллами стильбена («Всесоюзная конференция по применению изотопов и ядерных излучений», М., Изд. АН СССР, 1958, стр. 284).

При вычислении чувствительности по формуле (1) предполагалось оптимальное соотношение между временем измерения собственно фона и фона + образец при фиксированном суммарном времени измерения. С точки зрения экономии полного времени измерения рациональный выбор времени измерения фона и фона + образец при заданной ошибке особенно важен при определении низких уровней активности.

При заданном значении ошибки в измерении активности образца для выбора оптимального соотношения между числом импульсов собственно фона и фона + образец, при котором полное время измерения минимально, используется номограмма Лоевингера и Бермана.*

Пример. Требуется определить с точностью до 10% активность образца, скорость счета от которого составляет приблизительно 0,25 от скорости счета фона. Тогда отношение скорости счета фон + образец к скорости счета фона (r) будет равно 1,25. Из номограммы видно, что линия, соответствующая ошибке 10% пересекает косую линию для отношения r=1,25 при общем счете 4800 импульсов. Точка пересечения лежит приблизительно на одной пятой расстояния между кривыми фонового счета 3000 и 5000 импульсов. Следовательно, необходимое число импульсов фона равно приблизительно 3400 импульсов при суммарном числе импульсов 4800.

6. **Измерение радиоактивности горячих частиц с помощью метода авторадиографии.** Как видно из табл. 3, для радиометрического определения низкой бета-активности требуется значительное время. Например, при измерении бета-активности частицы $\sim 5.10^{-12}$ кюри для достижения точности счета $\pm 10\%$ необходимо ~ 6 часов. Поэтому наряду с выделением и измерением активности отдельных горячих частиц на радиометрических установках, для оценки активности многочисленных радиоактивных частиц в пробе применяется метод авторадиографии. Этот способ измерения активности отдельных частиц основан на том, что размер пятна почернения на рентгеновской пленке, образованного в результате действия излучения частицы на фотослой, однозначно связан с количеством бета-распадов, произошедших в частице за время экспозиции. Поэтому радиоактивность частицы может быть оценена по диаметру пятна почернения при заданном времени экспозиции. Авторадиография проб, содержащих радиоактивные частицы, проводится, как описано в п. 3. Следует обратить особое внимание на тщательную стандартизацию процессов экспонирования и обработки рентгеновской пленки.

---

* «Радиационная дозиметрия», под ред. Дж. Хайна и Г. Браунелла. М., ИЛ, 1958, стр. 190; В. П. Баранов и Л. В Горбушина, «Вопросы безопасности в урановых рудниках», Атомиздат, 1962, стр. 90.

После проявления, закрепления, промывки и сушки авторадиограммы поступают на визуальную обработку, которая проводится с помощью негатоскопа и бинокулярной лупы (типа М-24 с окуляром ×12, имеющим микрометрическую шкалу, и и объективом ×2,65) или микроскопа (МБИ-2, МБИ-3 и др.) со слабым объективом. Так как пятна почернения имеют диффузную границу, то размер пятен выбирается по краю, где почернение примерно вдвое больше вуали.

Для уменьшения субъективных ошибок в измерении диаметров наиболее мелких пятен почернения и улучшения воспроизводимости результатов рекомендуется поручать работу по регистрации и измерению размеров пятен одному и тому же сотруднику.

Радиоактивность частицы A связана с диаметром пятна почернения d на авторадиограмме соотношением:

$$A = kd^n \qquad (2),$$

где $2 \leqslant n < 3$, а k — нормирующий множитель, зависящий от типа пленки, режима ее обработки и времени экспозиции данной пробы радиоактивных аэрозолей.

Например, для 14-дневной экспозиции проб атмосферных аэрозолей на рентгеновской пленке типа РТ-1, обработанной в соответствии с настоящими указаниями, зависимость (2) имеет вид:

$$A(10^{-10}\ \text{кюри}) = 0{,}5d^{2{,}4}\ (\text{мм}) \qquad (2а),$$

т. е. пятно почернения на авторадиограмме диаметром 1 мм соответствует аэрозольной частице с активностью 5.10^{-11} кюри, диаметром 2 мм — $2{,}6.10^{-10}$кюри, диаметром 3 мм — $6{,}6.10^{-10}$ кюри и т. д. Нижний предел регистрируемой активности частицы на 14-дневной экспозиции на рентгеновской пленке типа РТ-1 равен $(2—3).10^{-13}$ кюри, для 7-дневной экспозиции — $(4—6).10^{-13}$ кюри, для 2-дневной экспозиции — $(3—4).10^{-12}$ кюри.

Зависимость типа (2) следует определять для каждой пробы радиоактивных аэрозолей. Для этого по методике, описанной в п. 3, из пробы выделяется 5—10 наиболее активных частиц, размеры пятен почернения которых предварительно определены. Активность извлеченных частиц измеряется на радиометрической установке. Результаты измерения активности частиц и соответствующих пятен почернения наносятся на график, по оси абсцисс которого отлагаются логарифмы диаметров пятен почернения, а по оси ординат — логарифмы активности. Через экспериментальные точки проводится прямая линия. Тангенс угла наклона этой прямой к оси абсцисс $\operatorname{tg}\alpha = n$, а ордината точки пересечения прямой с вертикалью $d = 1$ равна k.

Пример. Из пробы радиоактивных аэрозолей, отобранной из атмосферного воздуха в период проведения ядерных испытаний, извлечена 21 радиоактивная частица. У всех частиц на малофоновой установке измерена бета-активность и с помощью бинокулярной лупы определены размеры соответствующих пятен почернения на авторадиограмме. Полученные результаты приведены в табл. 4 и показаны на рис. 1. Линия на рис. 1, наилучшим образом проходящая через экспериментальные точки, образует с осью абсцисс угол, тангенс которого равен 2,4. Ордината точки пересечения прямой с вертикалью d=1 равна 5.10^{-11}. Следовательно, зависимость радиоактивности частицы от диаметра пятна почернения имеет вид:

$$A(\text{кюри}) = 5.10^{-11}\, d^{2,4}\ (\text{мм}) \qquad (2б).$$

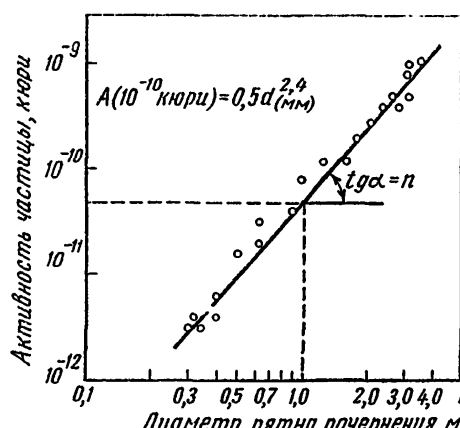

Рис. 1. Зависимость радиоактивности аэрозольной частицы от размера пятна почернения на авторадиограмме

Радиоактивности извлеченных из пробы атмосферных аэрозолей частиц и соответствующие им пятна почернения на авторадиограмме.

Таблица 4

№№ п/п	Диаметр пятна почернения, мм	lg d	Активность частицы А, 10^{-10} кюри	lg A
1.	0,30	$\bar{1}$,48	3.10^{-2}	2,48
2.	0,32	$\bar{1}$,5	4.10^{-2}	$\bar{2}$,6
3.	0,36	$\bar{1}$,53	$3{,}2.10^{-2}$	$\bar{2}$,5
4.	0,40	1,6	4.10^{-2}	$\bar{2}$,6
5.	0,41	$\bar{1}$,61	6.10^{-2}	$\bar{2}$,78
6.	0,50	$\bar{1}$,7	0,16	$\bar{1}$,2
7.	0,63	$\bar{1}$,8	0,2	$\bar{1}$,3
8.	0,63	$\bar{1}$,8	0,32	$\bar{1}$,5
9.	0,89	$\bar{1}$,95	0,4	$\bar{1}$,6
10.	1,0	0	0,8	$\bar{1}$,9
11.	1,26	0,1	1,2	0,08
12.	1,58	0,2	1,2	0,08
13.	1,8	0,255	2,0	0,3
14.	2,1	0,32	2,8	0,45
15.	2,4	0,38	4,0	0,6
16.	2,82	0,45	4,0	0,6
17.	2,64	0,42	5,0	0,7
18.	3,16	0,5	5,0	0,7
19.	3,08	0,49	8,0	0,9
20.	3,16	0,5	10	1,0
21.	3,6	0,555	11	1,04

6. Измерение размеров горячих аэрозольных частиц и определение их удельной активности

Данные о размерах горячих аэрозольных частиц и об их удельной активности необходимы для характеристики степени их возможной биологической опасности и выяснения источника или механизма возникновения радиоактивных аэрозолей.

Так как радиоактивные частицы присутствуют в исследуемом воздухе вместе с большим количеством неактивных частиц, то методика определения размеров горячих аэрозольных частиц должна обеспечивать выделение радиоактивных частиц из множества неактивных.

Наиболее доступной в условиях радиологической группы СЭС является методика микроскопического изучения радиоактивных частиц в пылевом препарате, приготовленном согласно п. 4 настоящих Указаний, с помощью обратимого проявления ядерной эмульсии типа «Р», изготавливаемой Всесоюзным научно-исследовательским кино-фотоинститутом. Методика включает в себя:

а) покрытие препарата жидкой ядерной эмульсией и ее экспонирование;

б) обратимое проявление ядерной эмульсии;

в) микроскопическое исследование радиоактивных частиц и обработку результатов.

а. Покрытие поверхности пленки, фиксирующей аэрозольные частицы на предметном стекле, состоит из трех этапов: покрытия желатиновым подслоем, подготовки эмульсии и покрытия жидкой эмульсией.

Покрытие желатиновым подслоем предметного стекла с просветленным фильтром требуется для лучшего сцепления и более однородного распределения наносимой в дальнейшем эмульсии по поверхности препарата. Подслой имеет состав:

1. Вода (35—40°) 90 мл
2. Желатина 0,33 г
3. 3% раствор хромовых квасцов 2,5 мл
4. 3% раствор тимола в этиловом спирте 10 мл

Порядок приготовления подслоя: сначала взвешенная желатина в течение часа промывается в холодной воде и разминается. Затем при 35—40° желатину растворяют и медленно при перемешивании вводят квасцы, а затем раствор тимола. Приготовленный подслой фильтруют через бумажный фильтр. Подслой готовят непосредственно перед работой, так как при длительном хранении он плесневеет .

Нанесение подслоя производится методом окунания предметных стекол. Сушатся предметные стекла в вертикальном положении при температуре 25—27°С. Операция нанесения подслоя производится дважды. После подсыхания подслой имеет толщину 1—2 мк.

Подготовка эмульсии проводится для предотвращения набухания фотоэмульсионного слоя при его обработке. С этой целью ядерную эмульсию типа «Р» необходимо предварительно задубить, что обеспечивается введением соответствующих добавок: смеси этилового спирта с глицерином (3 : 1) и дубителя – смеси хромацетата с раствором соды. Дубитель готовится следующим образом. Готовятся запасные растворы: а) 4% раствор Na_2CO_3 и б) 10% раствор хромацетата. Перед

введением в эмульсию приготовляется смесь растворов «а» и «б» (в отношении 1 : 1), которая в 6 раз разбавляется дистиллированной водой.

Все операции с ядерной эмульсией типа «Р» проводят при неактиничном желто-зеленом освещении со светофильтрами № 117 и 118 при лампочке мощностью 25 вт.

Ядерная эмульсия плавится на водяной бане (37–40°С) при медленном перемешивании. На 100 мл расплавленной эмульсии берется 4 мл смеси спирта с глицерином и 6,5 мл дубителя. Добавки вводятся в определенной последовательности — сначала смесь спирта с глицерином, а затем по каплям при непрерывном перемешивании — дубитель. После введения добавок эмульсия разбавляется в отношении 1 : 1 дистиллированной водой комнатной температуры (в 100 мл воды предварительно вводится 2 мл 1% раствора бромистого калия).

Покрытие жидкой эмульсией осуществляется следующим образом. Требуемое количество ядерной эмульсии стеклянным или керамическим шпателем переносят в пробирку, которую помещают на водяную баню. Не размешивая эмульсии, дают ей полностью расплавиться при температуре 40°С (15 мин). Одновременно следует также подогреть предметные стекла. Теплое предметное стекло помещают на строго горизонтальную поверхность и с помощью стеклянной палочки наносят на его поверхность несколько капель жидкой эмульсии (1 капля на 1—2 см^2). Далее стеклянной палочкой быстро разравнивают эмульсию по поверхности предметного стекла таким образом, чтобы обеспечить как можно более равномерный слой. Затем помещают предметное стекло на 30—60 сек. на водяную баню для обеспечения равномерной толщины эмульсионного слоя. После этого предметное стекло кладут на горизонтальную поверхность и оставляют на 20–30 мин. для студенения. Далее эмульсионный слой сушится в течение 2—3 часов при температуре 18—20° в потоке обеспыленного воздуха. Высохшие препараты прижимаются затем к рентгеновской пленке, как это описано в п. 3, и помещаются в светонепроницаемый ящик для экспозиции. В дальнейшем авторадиография с применением обычной рентгеновской пленки позволяет определить активность частиц, а также исключить возможные артефакты, возникновение которых может быть связано, например, с пузырьками воздуха в эмульсии или с ее химическим взаимодействием с частицами исследуемой пыли.

б. Проявление эмульсии с обращением негативного радиографического изображения в позитивное (обратимое проявление) проводится после экспонирования в течение 2—14 суток (в зависимости от минимальной активности частиц, размеры

которых нужно измерить). Благодаря обратимому проявлению эмульсии радиоактивная частица не затемняется непрозрачным пятном, образованным в результате действия излучения этой частицы на фотослой, как это бывает при обычной его обработке, а оказывается в центре бесцветного прозрачного круга, что позволяет проводить ее микроскопическое изучение.

Последовательность и режим операций обратимого проявления ядерной эмульсии типа «Р»

Наименование операций и среда	Температура растворов	Время	Примечание
1	2	3	4
1. *Уксусная ванна.* 2% раствор уксусной кислоты	17—18°С	3 мин.	Чтобы избежать чрезмерного размягчения желатинового слоя и, следовательно, опасности его повреждения, промывки вплоть до фиксирования проводятся в уксусной ванне. С этой же целью температура обрабатывающих растворов поддерживается постоянной.
2. *Первое проявление.* Вода дистил. (35—40°) — 500 мл Метол 2 г Гидрохинон 14 г Сульфат натрия безводный 25 г Бромистый калий 2 г Роданистый калий 2,5 г Едкий натр 2 г Углекисл. калий (поташ) 40 г Вода дистил. хол. до 1 л	17—18°	12 мин.	Раствор нестоек и поэтому готовится непосредственно перед использованием.
3. *Первая промывка.* 2% раствор уксусной кислоты	17—18°	30 сек.	
4. *Первое обращение.* Двухромовокислый калий 10 г Серная кислота концентрированная 10 мл Вода дистил. до 1 л	17—18°	6 мин.	
5. *Вторая промывка.* 2% раствор уксусной кислоты	17—18°	30 сек.	

1	2	3	4
6. *Первое осветление.* Сульфит натрия безводный 100 г Вода дистил. до 1 л	17—18°	6 мин.	
7. *Третья промывка.*	17—18°	10 мин.	После промывки с поверхности препаратов мокрой ватой целесообразно удалить остатки воды. Удаление капель необходимо проводить тщательно и аккуратно, чтобы не повредить эмульсионный слой.
8. *Засветка.*	—	1—2 мин.	(при использовании электрической лампы 75 вт, расположенной на расстоянии 1—2 м от эмульсионного слоя.
9. *Второе проявление.* Вода дистил (35—40°) — 500 мл Метол 1 г Сульфит натрия безводный 37,5 г Гидрохинон 4 г Сода безводн. 20 г Бромистый калий 2,5 г Вода дистил хол. до 1 л	17—18°	6 мин.	
10. *Четвертая промывка.* 2% раствор уксусной кислоты Вода дистил. (60—	17—18°	30 сек.	
11. *Фиксирование.* Вода дистил. 60—70°) — 500 мл Гипосульфит 200 г Хлористый аммоний 50 г Метабисульфит калия 20 г Вода дистил. до 1 л	17—18°	10—15 мин.	
12. *Пятая промывка.* Вода дистил.	17—18°	10 мин.	
13. *Второе обращение.* Двухромовокислый калий 20 г Серная кислота концентрированная 20 мл Вода дистил. до 1 л	17—18°	5 мин.	
14. *Шестая промывка.* Вода дистил.	17—18°	2 мин.	

1	2	3	4
15. *Второе осветление.* Сульфит натрия безводный 200 г Вода дистил. до 1 л	17—18°	5 мин.	
16. *Окончательная промывка.* Вода дистил.	17—18°	10—15 мин.	

Сушатся препараты в обычных условиях в вертикальном положении. После такой обработки фотослой становится коричневым и прозрачным. На этом коричневом фоне присутствуют маленькие светлые пятна, легко обнаруживаемые при предварительном просмотре препарата под микроскопом при малом увеличении. В центре бесцветного прозрачного круга при большом увеличении видна радиоактивная частица.

Можно пользоваться также и другой методикой обратимого проявления, использующей более ценные реактивы, но дающей существенную экономию времени.

Последовательность и режим операций обратимого проявления ядерной эмульсии типа «Р»

Наименование операций и среда	Температура растворов	Время	Примечание
1	2	3	4
1. *Проявление.* Вода дистил. (35—40°) — 500 мл Метол 2 г Гидрохинон 14 г Сульфит натрия безводный 25 г Бромистый калий 2 г Роданистый калий 2,5 г Едкий натр 2 г Поташ 40 г Вода дистил. до 1 л	17—18°С	12 мин.	Раствор готовится непосредственно перед проявлением.
2. *Первая промывка.* 2% раствор уксусной кислоты	17—18°	5 мин.	
3. *Обращение.* Запасной раствор А. Вода дистил. 400 мл Марганцовокислый калий 4 г Запасной раствор Б Вода дистил. хол.	17—18°	6 мин.	Запасные растворы в отдельности могут хорошо сохраняться в течение долгого времени. Смешение обоих запасных растворов нужно производить непосредственно пе-

1	2	3	4
600 мл Серная кислота концентр. 5 мл			ред использованием обращающего раствора. Смешанный обращающий раствор быстро портится.
4. *Вторая промывка.* Вода дистил.	17—18°	5 мин.	
5. *Осветление.* Метабисульфит калия 50 г Вода дистил. до 1 л	17—18°	5 мин.	
6. *Третья промывка.* Вода дистил.	17—18°	5 мин.	
7. *Фиксирование.* Запасной раствор А. Вода дистил. (60—70°) — 200 мл Гипосульфит 200 г Хлористый аммоний 50 г Метабисульфит калия 20 г Вода дистил. до 1 л Запасной раствор Б. Глицерин 1,3 л	17—18°	10—15 мин.	Рабочий раствор составляется из 3 частей запасного раствора А и 4 частей запасного раствора Б.
8. *Окончательная промывка.* Вода дистил.	17—18°	10—15 мин.	

в. Определение размера радиоактивных частиц проводится путем их непосредственного визуального измерения микроскопом МБИ-1, МБИ-3, МБИ-6 и т. п. При предварительном просмотре препарата с целью обнаружения светлых пятен с радиоактивными частицами рекомендуется работать с окуляром ×7 и объективом ×10 (диаметр поля зрения около 1,7 мм). Измерения размеров радиоактивных частиц лучше вести с бóльшим увеличением — окуляр ×7 и объектив ×40 (диаметр поля зрения — 400 мк). Большее увеличение требуется лишь для измерения размеров частиц менее 1 мк, которые встречаются сравнительно редко.

Измерение размеров частиц производится с помощью шкалы окуляра ×7. Предварительно определяется цена деления этой шкалы с помощью объект-микрометра, цена деления которого равна 0,01 мм. Цена деления окуляра ×7 при объективе ×40 равна около 3,4 мк.

С помощью препаратоводителя микроскопа подводят одну сторону частицы к любому делению шкалы и определяют, сколько делений шкалы занимает эта частица. Поскольку исследуемые частицы часто имеют неправильную форму, то следует измерять максимальный D_{max} и минимальный размер D_{min} видимой плоской проекции частицы.

Объем частицы вычисляют по формуле:

$$V = \frac{\pi}{6} D_{max} D^2_{min} \quad (3),$$

поскольку большинство частиц, как тела трех измерений, ложатся на плоскую поверхность своей большей проекцией. В этой формуле объем V выражен в см^3, если D_{min} и D_{max} выражены в см.

Удельная активность a (кюри/г) находится по формуле:

$$a = \frac{\Lambda}{V \cdot \rho} \quad (4),$$

где Λ — радиоактивность частицы, кюри; V — ее объем, вычисленный по формуле (3), см^3, ρ — предполагаемая плотность материала частиц, г/см^3.

Пример. Частица радиоактивных аэрозолей, выбрасываемых из каналов облучателя гамма-установки с негерметичными препаратами Co^{60} в оболочках из нержавеющей стали, под микроскопом МБИ-6 с окуляром ×7 и объективом ×40 имеет максимальный и минимальный размер видимой проекции 2 и 1,2 деления соответственно. Ее активность, измеренная на малофоновой установке, равна 4, 1.10^{-9} кюри. Цена деления микроскопа МБИ-6 при окуляре ×7 и объективе ×40 равна 3,4 мк. Следовательно, максимальный и минимальный диаметры частицы равны 6,8 и 4,1 мк соответственно. Примем плотность материала частицы ρ=7,8 г/см^3. Тогда удельная активность материала частицы равна

$$a = \frac{6.4{,}1.10^{-9}}{3{,}14.6{,}8(4{,}1)^2.10^{-12}.7{,}8} = 9{,}2 \text{ кюри/г}$$

7. Определение гамма-излучающих изотопов в горячих частицах с помощью сцинтилляционного гамма-спектрометра

Сложный спектр гамма-лучей, испускаемых горячими частицами, может быть проанализирован с помощью сцинтилляционного гамма-спектрометра. Для спектрометрии гамма-излучения горячих аэрозольных частиц используется сцинтилляционный датчик, к которому в качестве регистрирующего прибора присоединяется многоканальный амплитудный анализатор импульсов (например, типа АИ-100). Импульсы от датчика поступают на дифференциальный анализатор импульсов, при помощи которого производится сортировка импульсов: импульсы с равными амплитудами собираются и регистрируются в соответствующих каналах. Распределение числа импульсов за некоторый период измерения по каналам дает гамма-спектрограмму пробы.

Для измерения высокоактивных частиц можно применять серийно выпускаемый отечественной промышленностью универсальный сцинтилляционный датчик типа УСД-1. Для спектрометрических целей в датчике УСД-1 могут быть использованы кристалл NaI(Tl) диаметром 40 и высотой 50 мм и кристалл NaI(Tl) тех же размеров с «колодцем». Размеры «колодца» — 12×36 мм. Датчик с кристаллом помещается в свинцовый кожух УСД-1-2 с толщиной стенки 33 мм. Нижние пределы измеряемой активности на установке УСД-1 при относительной ошибке ±10% и времени измерения 3 часа приведены в табл. 5.

Таблица 5

Изотоп	$Zr^{95}+Nb^{95}$	Cs^{137}	Ce^{144}
Нижний предел измеряемой активности	$3{,}6.10^{-10}$	$3{,}9.10^{-10}$	$2{,}2.10^{-9}$

Для измерения чаще встречающихся малоактивных частиц необходимо использовать специальные спектрометрические установки с повышенной чувствительностью. С целью увеличения фотоэффективности рекомендуется применять спектрометрические кристаллы NaI(Tl) размерами: 60×60, 70×50, 80×80 мм в сочетании с фотоумножителями типа ФЭУ-43 (ФЭУ-1Б), имеющих диаметр фотокатода 75 мм. Для снижения гамма-фона датчик гамма-спектрометра помещают в стальной или свинцовый кожух толщиной до 10 см. Благодаря увеличению фотоэффективности и снижению фона такая установка позволяет измерять спектры гамма-излучающих частиц с активностью 10^{-11}—10^{-10} кюри.

Дальнейшее снижение гамма-фона и повышение чувствительности может быть достигнуто окружением детектора счетчиками, включенными в режим антисовпадений с детектором, а также применением метода 4π —β, γ-совпадений («Радиоактивные загрязнения внешней среды, Госатомиздат, 1962, стр. 111).

Снятие спектров гамма-излучения горячих частиц проводится в следующей последовательности.

а. **Градуировка гамма-спектрометра.** Энергия гамма-излучения определяется по положению фотопика на энергетической шкале гамма-спектрометра. Градуировку энергетической шкалы спектрометра производят с помощью изотопов, энергия гамма-линий которых хорошо известна (Ce^{144}, Hg^{203}, Au^{198}, Cs^{137}, Zr^{95}, Co^{60} и др.). По данным измерений на гамма-спект-

рометре ряда изотопов с известной активностью и энергией гамма-линий строится градуировочный график (т. е. график зависимости энергии гамма-излучения от номера канала амплитудного анализатора, соответствующего положению фотопика). Необходимым условием для точного определения энергии неизвестной гамма-линии является линейность градуировочного графика не хуже 5—10%.

Поскольку снятие гамма-спектров излучения горячих частиц требует до 12 часов непрерывной работы установки, то нестабильность положения фотопиков на спектрограмме за время измерения не должна превышать 2—3%. Так как практически невозможно избежать дрейфа электронной аппаратуры, то при измерении горячих частиц следует чаще контролировать неизменность градуировки спектрометра, по крайней мере перед началом и в конце измерений.

Для перехода к абсолютной активности гамма-излучающего изотопа необходимо знать фотоэффективность спектрометра для гамма-линий различных энергий, т. е. отношение площади фотопика к абсолютной активности в распадах в минуту. Фотоэффективность гамма-спектрометра определяется с помощью измерений источников гамма-излучения с известной абсолютной активностью (0,1—10 мкюри). Такие источники могут быть изготовлены из изотопов типа Hg^{203}, Cs^{137}, Mn^{54}, Co^{60}, Na^{24} и др. с известными схемами распада и точно определенными энергиями гамма-линий. Кроме того, на основе этих же измерений определяется соотношение между высотой фотопика и остальными частями спектра — комптоновским распределением и пиком обратного рассеяния — для каждой гамма-линии. Такие измерения необходимы для анализа сложных гамма-спектров (см. ниже).

б. **Идентификация изотопов по спектрограмме.** Определение изотопного состава радиоактивности горячих частиц производится по энергии линий на спектрограмме и по скорости спада интенсивности этих линий со временем. Идентификация изотопов по гамма-спектру производится следующим образом. Определяется положение отдельных пиков на спектрограмме. Затем в соответствии с энергетической градуировкой гамма-спектрометра определяется энергия гамма-излучателей, соответствующих этим фотопикам. Если определения энергии гамма-излучателя недостаточно для идентификации изотопа (например, гамма-излучение Ru^{103} и $Ru^{106}+Rh^{106}$ регистрируется кристаллом как одна линия), то необходимо проследить изменение соответствующего фотопика во времени. По данным минимум двух измерений определяется период полураспада изотопа. По известным энергиям гамма-линий и периоду полураспада однозначно определяется изотоп.

В случае, если гамма-спектр состоит из линий, принадлежащих различным изотопам, необходимо разложить спектр гамма-лучей на отдельные компоненты. Разложение проводится графическим путем последовательно, начиная с самой жесткой линии спектра. Гамма-спектр жесткой компоненты, нормированный на высоту фотопика, вписывается в общий спектр. Форма каждого вписываемого спектра должна быть заранее известна из измерений в тех же условиях гамма-спектра изотопа, которому принадлежит эта линия. После вычитания вписанного спектра выделяется следующий фотопик и таким же способом проводится вычитание гамма-спектра следующей по жесткости линии и т. д. Правильность такого разложения можно проконтролировать либо по соотношению отдельных гамма-линий одного и того же изотопа, либо по полуширинам выделяемых в результате вычитания фотопиков. Подобный анализ смеси осколков деления в глобальных выпадениях продуктов ядерных взрывов описан, например в сборнике «Техника измерений радиоактивных препаратов», М., Атомиздат, 1962.

в. **Определение активности изотопов.** Если фотопик выделен, то абсолютная активность изотопа $A(E_0)$ определяется по площади соответствующего фотопика $S(E_0)$:

$$A(E_0) = \frac{S(E_0)}{\varepsilon_\phi(E_0)} \qquad (5),$$

где $E(E_0)$ – фотоэффективность отградуированного гамма-спектрометра для данной энергии. Величина площади фотопика может быть вычислена по формуле:

$$S(E_0) = 1{,}064\ H.a \qquad (6)$$

где: H — максимальная ордината фотопика;

a — ширина фотопика на половине высоты.

Если разрешение гамма-спектрометра не меняется, то задача количественного определения гамма-излучателя сводится при данной градуировке спектрометра к измерению высоты соответствующих фотопиков. Для описания вершины фотопика следует пользоваться 6—8 соседними каналами. Точность определения площади фотопика по формуле (6) превосходит точность метода графического измерения площади фотопика.

Точность определения активности изотопов, излучающих гамма-кванты более высоких энергий, выше, так как в этом случае при выделении фотопика не вычитаются импульсы комптоновских распределений, которые соответствуют более жестким гамма-линиям.

8. Определение состава неактивных компонент горячих аэрозольных частиц

Содержание различных неактивных элементов в горячих аэрозольных частицах может быть определено методом рентгеноспектрального микроанализа. Подготовка частицы для рентгеномикроанализа проводится следующим образом. Из препарата, подвергнутого обратимому проявлению, вырезают участок органической пленки размером 0,5×0,5 мм, содержащий горячую частицу, вместе с примыкающим к нему участком фотослоя. На подложку из металла, присутствие которого в частице не ожидается размером 5×5 мм наносится маленькая капля раствора перхлорвиниловой смолы в дихлорэтане. Далее, с помощью иглы микроманипулятора вырезанный участок органической пленки с горячей частицей помещается в центр капли. После высыхания растворителя радиоактивная частица оказывается прикрепленной к поверхности подложки. Далее подложку вставляют в обойму и помещают в вакуумную объектную камеру микроанализатора. Частица наблюдается в центре светлого пятна в ядерной эмульсии в оптический микроскоп, использующий отраженный свет, и может перемещаться с помощью микроподач без нарушения вакуума. Специальная электронно-оптическая система, состоящая из электронной пушки и электромагнитных линз, создает пучок электронов диаметром около 1 мк. Наведение пучка на частицу осуществляется с помощью микроскопа, оптическая ось которого совмещена с осью электронного пучка.

Электроны с энергией до 50 кэв возбуждают характеристическое рентгеновское излучение атомов в объеме нескольких кубических микронов. Излучение разлагается в спектр с помощью рентгеновских спектрометров с изогнутыми монокристаллами. Интенсивность спектральных линий измеряется счетчиками Гейгера, сцинтилляционными счетчиками коротковолнового излучения и пропорциональными счетчиками длинноволнового излучения.

Рентгеноспектральные микроанализаторы типа РСАШ-2, РСАШ-3ДС и РАМС-2К, действующие в Институте геохимии и аналитической химии им. В. И. Вернадского АН СССР, типа jXA-3A в Институте кристаллографии АН СССР и др. снимают спектр характеристического излучения в интервале длин волн от 0,7 до 10 А, что обеспечивает регистрацию всех элементов от Mg_{12} до U_{92}.

Вместе с частицей в объектную камеру могут быть установлены эталоны, по которым производится настройка спектрометра на регистрацию определенных линий элементов и изме-

рение интенсивности характеристических линий от частицы и эталона. Отношение интенсивностей линий (за вычетом фона) равно весовой концентрации элемента в частице.

Пример. На рис. 2 показан спектр характеристического рентгеновского излучения радиоактивной частицы, снятый на рентгеномикроанализаторе типа jXA-3A. Частица уловлена в аспирационной системе мощной гамма-установки с негерметичными препаратами Co^{60} в алюминиевых оболочках и имеет активность $5 \cdot 10^{-9}$ кюри и размеры 64×42 мк. Эта частица содержит Fe, Mn, Si, Cr и Co, т. е. состоит в основном из продуктов износа нержавеющей стали — конструкционного материала деталей установок (пружинных кассет и внутренних поверхностей рабочих каналов). Присутствие кремния объясняется, по-видимому, попаданием пыли в каналы вместе с охлаждающим воздухом. Интересно, что материал герметизирующей оболочки — алюминий — в составе этой частицы не обнаружен.

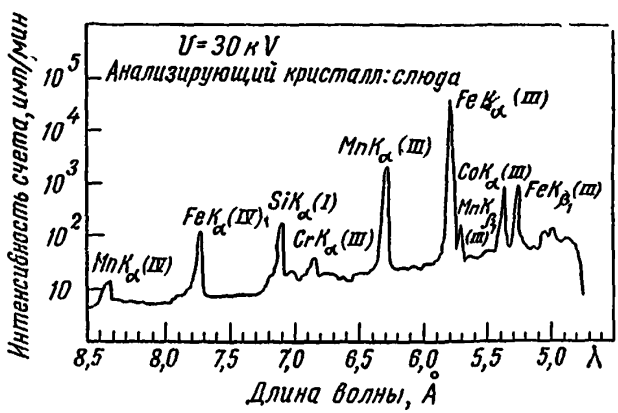

Рис. 2. Спектр характеристического рентгеновского излучения аэрозольной частицы в диапазоне длин волн 4,7—8,5 Å.

Выбор объема воздушной пробы

Если ν-концентрация радиоактивных частиц, то при протягивании через фильтр объема воздуха V, на нем осаждается в среднем νV частиц. Относительная флуктуация концентрации радиоактивных частиц равна:

$$\delta \approx \frac{1}{\sqrt{V\nu}} \qquad (7).$$

Зависимость относительной флуктуации концентрации радиоактивных частиц от количества частиц, осажденных на фильтре, показана на рис. 3.

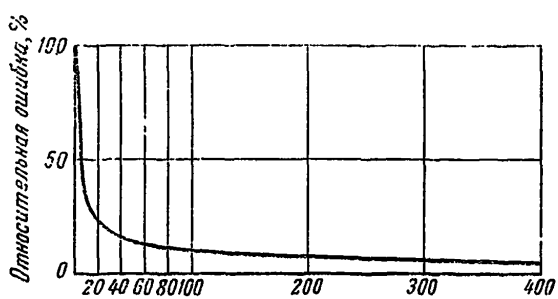

Рис. 3. Относительная флуктуация концентрации горячих частиц в зависимости от количества частиц, осажденных на фильтре

Пример. На фильтре, через который протянуто 2 400 м³ воздуха, методом авторадиографии обнаружено 32 частицы с активностью более $1 \cdot 10^{-10}$ кюри. Следовательно, концентрация в исследуемом воздухе горячих частиц с активностью более $1 \cdot 10^{-10}$ кюри равна $M = \frac{32}{2400} = 0{,}0133$ м$^{-3}$, или одна частица на 75 м³ воздуха. Относительная ошибка измерения концентрации горячих частиц, определенная по рис. 3, равна 18%.

Для того, чтобы концентрация горячих частиц была измерена с точностью не хуже ±10%, объем воздушной пробы

должен быть выбран таким, чтобы на фильтре было осаждено не менее 100 таких частиц, т. е., например, при содержании 1 частица в 100 м³ объем пробы должен составлять 100× ×100=10 000м³ воздуха.

Если при протягивании объема воздуха V_1 концентрация горячих частиц определена с точностью δ_1, то для достижения точности δ_0 необходимо протягивание через фильтр объема воздуха

$$V_0 = V_1 \frac{\delta_1^2}{\delta_0^2} \qquad (8).$$

Пример. Авторадиограмма фильтра, на котором осаждены радиоактивные аэрозоли из объема 14 м³, свидетельствует о наличии в пробе 2 горячих частиц. Тогда относительная ошибка измерения концентрации горячих частиц δ_1 согласно рис. 3 равна 71%. Объем воздушной пробы, необходимый для измерения концентрации горячих частиц с точностью $\delta = 20\%$, равен

$$\delta = \frac{71^2}{20^2} \cdot 14 = 177 \text{ м}^3$$

Приложение 2

Оценка точности измерения концентрации радиоактивных аэрозолей в случае присутствия в их составе горячих частиц

Если в единице объема исследуемого воздуха содержится ν_i аэрозольных частиц, активность которых заключена в интервале $A_i : A_i + \Delta A_i$, то относительная флуктуация средней концентрации радиоактивных аэрозолей $\delta(\bar{A})$, соответствующая измерению активности фильтра, через который был протянут объем воздуха V, равна

$$\delta(\bar{A}) = \sqrt{\delta_0^2 + \delta_{пр}^2} \qquad (9),$$

где $\delta_0 = \dfrac{\sqrt{\dfrac{\bar{n}_0 + \bar{n}_ф}{t} + \dfrac{\bar{n}_ф}{t_ф}}}{\bar{n}_0}$ — относительная флуктуация

результата измерения накопленной на фильтре радиоактивности на радиометрическом приборе;

$\delta_{пр} = \frac{\sqrt{\sum_i A_i^2 \nu_i}}{\bar{A} \cdot \sqrt{V}}$ — относительная флуктуация величины осажденной на фильтре радиоактивности. Таким образом, относительная флуктуация измеряемой концентрации радиоактивных аэрозолей

$$\delta(\bar{A}) = \sqrt{\frac{\frac{\bar{n}_0 + \bar{n}_\phi}{t} + \frac{n_\phi}{t_\phi}}{\bar{n}_0^2} + \frac{\sum_i A_i^2 \nu_i}{\bar{A}^2 \cdot V}} \qquad (10)$$

Пример. В рабочей камере мощной гамма-установки отобрана проба радиоактивных аэрозолей объемом 10 м³. Активность фильтра в течение $t = 1\,000$ сек измерялась на радиометре ПС-5М со счетчиком СИ-2Б. Скорость счета излучения фильтра + фон $\bar{n}_0 + \bar{n}_\phi = 72$ имп/мин; скорость счета фона 40 имп/мин. Эффективность регистрации излучения Co^{60}—5%.

Средняя концентрация радиоактивных аэрозолей в воздухе рабочей камеры равна

$$\bar{A} = \frac{(\bar{n}_0 + \bar{n}_\phi) - \bar{n}_\phi}{\varepsilon \cdot V \cdot 2{,}2 \cdot 10^{12}} = \frac{72 - 40}{0{,}05 \cdot 10^4 \cdot 2{,}2 \cdot 10^{12}} = 3 \cdot 10^{-14} \frac{\text{кюри}}{\text{литр}}.$$

По авторадиограмме фильтра обнаружено, что радиоактивность фильтра обусловлена несколькими частицами с активностью: $2 \cdot 10^{-12}$; 5.10^{-12}; 4.10^{-11}; 6.10^{-11} и $1{,}1.10^{-10}$ кюри/частица. Концентрация частиц с такой активностью в воздухе рабочей камеры $\nu_i = \frac{M_i}{V} = 0{,}11/\text{м}^3$ (M_i — число частиц i-ой фракции активности на фильтре). Следовательно, относительная флуктуация концентрации радиоактивных аэрозолей по формуле (10) равна:

$$\delta(\bar{A}) = \sqrt{\frac{\frac{72}{16{,}7} + \frac{40}{16{,}7}}{40^2} + \frac{0{,}1\,(2.10^{-12})^2 + (5.10^{-12})^2 + (4.10^{-11})^2}{(3.10^{-11})^2 \cdot 10} + \frac{(6.10^{-11})^2 + (1{,}1.10^{-10})^2}{(3.10^{-11})^2 \cdot 10}} =$$

$$= \sqrt{0{,}0036 + 0{,}194} \approx 0{,}45 = 45\%.$$

Ошибка радиометрического измерения накопленной на фильтре активности составила

$$\delta_0 = \frac{\sqrt{\frac{n_0 + n_\phi}{t} + \frac{n_\phi}{t_\phi}}}{n_0} = 6\%,$$ т. е.

в данном случае относительная флуктуация радиоактивности аэрозолей связана в основном со статистическими колебаниями количества радиоактивных частиц в объеме отобранного воздуха.

Часто распределение частиц по радиоактивности может быть представлено степенной функцией вида:

$$\nu_i = K \cdot A_i^{-\gamma} \Delta A_i, \text{ где}$$

ν_i — число частиц с активностью $A_i + A_i + \Delta A_i$,

γ — параметр распределения,

k — константа.

Относительная флуктуация δ концентрации радиоактивных аэрозолей в зависимости от максимальной абсолютной активности аэрозольных частиц A_{max} и параметра γ приведены на рис. 4. При этом минимальная радиоактивность частицы равна 5.10^{-13} кюри, накопленная на фильтре радиоактивность равна 10^{-9} кюри, а относительная ошибка ее радиометрического определения δ_0 составляет $\pm 5\%$. Если осажденная на фильтре радиоактивность $\overline{A}.V$ отличается от 10^{-9} кюри, то относительная флуктуация изменяется обратно пропорционально корню квадратному из величины 10^9 $A.\overline{V}$.

Пример. В результате измерения гамма-активности на сцинтилляционном гамма-счетчике и обработки авторадиограммы фильтра, через который в период проведения ядерных испытаний было прокачено $V = 18\,000$ м^3 воздуха, было установлено, что $\nu_i = 150 A_i^{-2} \Delta A_i$; $A_{max} = 2{,}5.10^{-9}$ кюри/частица, а $\overline{A}.V = 1{,}26.10^{-7}$ кюри. Тогда $\overline{A} = \frac{1{,}26.10^{-7}}{18.10^3.10^3} = 0{,}7.10^{-14}$ кюри/л. При использовании объема воздуха $V_1 = 140$ м^3 осажденная на фильтре активность равна $0{,}7.10^{-14}.140.10^3 = 10^{-9}$ кюри и по рис. 4 для $\gamma = 2$ и $A_{max} = 2{,}5.10^{-9}$ относительная флуктуация измеренной концентрации радиоактивных аэрозолей составляет $\delta_1 = 60\%$. Относительная ошибка δ при указанном объеме пробы равна:

$$\delta = \frac{\delta_1}{\sqrt{10^9 \cdot \overline{A}V}} = \frac{60}{\sqrt{10^9 \cdot 1{,}26 \cdot 10^{-7}}} =$$

$$= \frac{60}{\sqrt{12{,}6}} = \frac{60}{11{,}4} = 5{,}3\%.$$

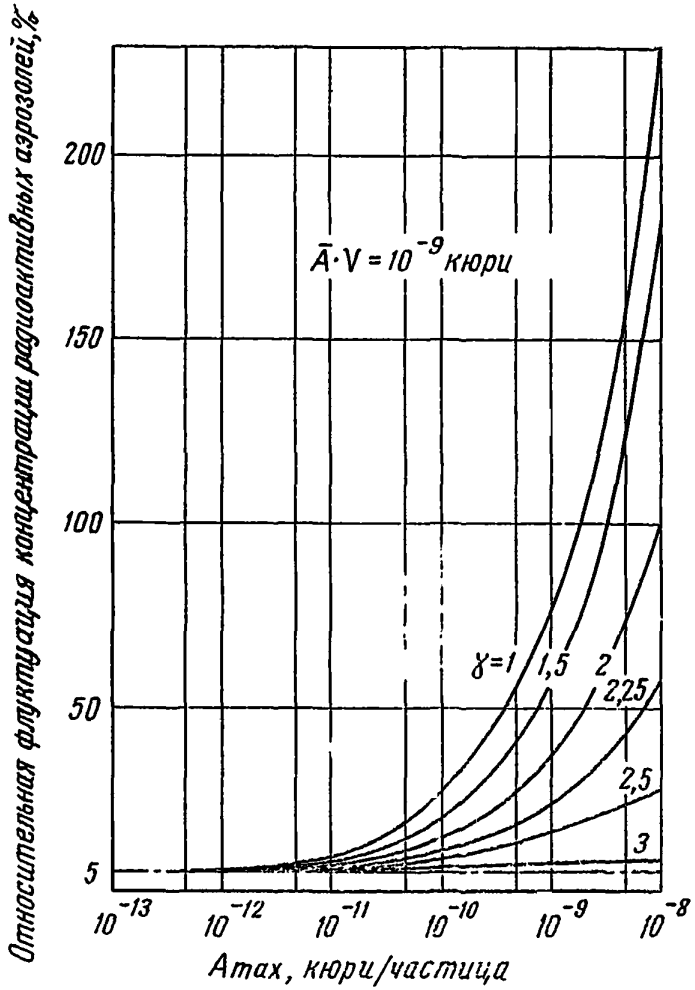

Рис. 4. Относительная флуктуация концентрации радиоактивных аэрозолей в зависимости от максимальной активности частиц при различных значениях параметра степенного распределения

Приложение 3.

Примерный перечень реактивов, оборудования и спецодежды

I. Реактивы

1. Аммоний персульфат
2. Аммоний хлористый
3. Ацетон
4. Гидрохинон
5. Глицерин
6. Дибутилфталат
7. Дихлорэтан
8. Желатина
9. Калий бромистый
10. Калий двухромовокислый
11. Калий едкий
12. Калий марганцовокислый
13. Калий метабисульфит
14. Калий роданистый
15. Калий углекислый
16. Квасцы хромовые
17. Кислота серная концентрированная
18. Кислота уксусная ледяная
19. Ксилол
20. Натр едкий
21. Натрий сернистокислый
22. Натрий серноватистокислый
23. Натрий углекислый
24. Спирт этиловый
25. Тимол
26. Трикрезилфосфат
27. Хромацетат.

II. Оборудование

1. Автотрансформатор
2. Амплитудный анализатор АИ-100-1
3. Бак-танк
4. Бани водяные
5. Бинокулярная лупа
6. Бумага фильтровальная
7. Весы аналитические с разновесом
8. Весы технические с разновесом
9. Воздуходувка ПРВ-1М, ГР-А5-4, ГР-А5-5

10. Газовый счетчик ГКФ-25, РС-100
11. Дистиллятор
12. Жидкая ядерная эмульсия типа «Р»
13. Капельницы
14. Кюветы эмалированные
15. Мензурки разных размеров
16. Микроманипулятор
17. Микроскоп МБИ-3
18. Микроскоп МБИ-6
19. Негатоскоп
20. Ножи микротомные
21. Ножницы
22. Палочки стеклянные
23. Пинцеты
24. Пленка полиэтиленовая
25. Пластинки для ядерных исследований типа МК, МР и А-2
26. Подложки.
27. Предметные стекла
28. Проточный 4 π-счетчик «Протока»
29. Рентгеновская пленка типа РТ-1 и др.
30. Светонепроницаемый ящик
31. Светофильтры № 117 и 118
32. Скальпели
33. Склянки реактивные с пробками
34. Спектрометрические кристаллы NaI (Tl)
    40×50 (с колодцем)
    70×50 мм
    80×80 мм
35. Сцинтилляционный датчик УСД-1
36. Телефон ТА-4
37. Трубка Пито
38. Установки ПС-10 000, ПС-5М, Б-2, ДП-100
39. Фильтровальная ткань ФПП-15-1,5, ФПА-15-2,0
40. Фильтродержатели больших размеров
41. Фильтры АФА РМП-20, АФА-РМА-20, АФА В-18, АФА-Д-3, АФА-РГ-3
42. Фонарь для фоторабот
43. ФЭУ-43 (ФЭУ-1Б)
44. Холодильник
45. Цилиндры разных размеров
46. Чашки Петри
47. Шпатели стеклянные и керамические
48. Шприцы медицинские
49. Эксикаторы
50. Эталонные препараты.

III. Спецодежда

1. Нарукавники полиэтиленовые
2. Перчатки резиновые
3. Полотенца
4. Респираторы ШБ-1 «Лепесток»
5. Фартуки полиэтиленовые
6. Халаты белые.

ЛИТЕРАТУРА

1. «Радиоактивные частицы в атмосфере», М., Атомиздат, 1963.

2. Дж. Бойд «Авторадиография в биологии и медицине», М., изд-во иностранной литературы, 1957.

3. Н. А. Вартанов, П. С. Самойлов. «Практические методы сцинтилляционной гамма-спектрометрии». М., Атомиздат, 1964.

4. «Материалы I научно-практической конференции по радиационной безопасности», М., Профиздат, 1967.

5. «Научные работы институтов охраны труда ВЦСПС», вып. 3(35), 5(37) (1965), 40, 41 (1966), 45, 46, 47 (1967).

СОДЕРЖАНИЕ

Стр.

1. Введение 1
2. Отбор проб радиоактивных аэрозолей 2
3. Первичное обнаружение и локализация горячих частиц в пробе радиоактивных аэрозолей 4
4. Выделение горячей аэрозольной частицы из пробы радиоактивных аэрозолей 8
5. Оценка радиоактивности горячих аэрозольных частиц . . 12
6. Измерение размеров горячих аэрозольных частиц и определение их удельной активности 17
7. *Определение гамма-излучающих изотопов в горячих частицах с помощью сцинтилляционного гамма-спектрометра* . . . 24
8. Определение состава неактивных компонент горячих аэрозольных частиц 28

Приложение 1. Выбор объема воздушной пробы . . . 30

Приложение 2. Оценка точности измерения концентрации радиоактивных аэрозолей в случае присутствия в их составе горячих частиц 31

Приложение 3. Примерный перечень реактивов, оборудования и спецодежды 35

Литература 38

Л 75589 7.V.68 г. Заказ 1074 Объем 2,5 п. л. Тираж 500

Типография Министерства здравоохранения СССР

gost.e-ecolog.ru