

Федеральное государственное автономное образовательное учреждение высшего образования «Уральский федеральный университет имени первого Президента России Б. Н. Ельцина»
Физико-технологический институт
Кафедра экспериментальной физики

На правах рукописи

ВАСЯНОВИЧ МАКСИМ ЕВГЕНЬЕВИЧ

**СОВЕРШЕНСТВОВАНИЕ МЕТОДОВ КОНТРОЛЯ
РАДИОАКТИВНЫХ ВЕЩЕСТВ В ГАЗОВОЗДУШНОЙ СРЕДЕ
ПРИ ЭКСПЛУАТАЦИИ ЯДЕРНЫХ РЕАКТОРОВ**

Специальность 01.04.01 – «Приборы и методы экспериментальной физики»

Диссертация на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

Научный руководитель:
профессор, д. т. н.
Жуковский М. В.

Екатеринбург – 2019

Оглавление

Введение	5
Глава 1. Формирование газоаэрозольных смесей на предприятиях ЯТЦ	11
1.1 Газообразные формы радиоактивных веществ в атмосфере.....	12
предприятий ЯТЦ.....	12
1.2 Существующие методы улавливания радиоактивного йода.....	15
из газовой фазы	15
1.2.1 Материалы для улавливания парогазовой фракции радиоактивного йода	15
1.2.2 Методы изучения соотношений различных форм радиоактивного йода	17
1.3 Подходы для оценки распределение аэрозольных частиц по размерам	22
1.4 Анализ результатов исследования распределения радиоактивных аэрозолей по размеру на предприятиях ЯТЦ.....	30
1.5 Задачи диссертационного исследования	35
Глава 2. Существующие методы и аппаратура для определения распределения радиоактивных аэрозолей по размерам частиц	37
и химических соединений изотопов йода в атмосфере.....	37
2.1 Устройства отбора газоаэрозольной смеси	37
2.1.1 Аналитические аэрозольные фильтры	37
2.1.2 Каскадные импакторные устройства	39
2.1.3 Диффузионные батареи	43

2.1.4 Сорбционно-фильтрующие материалы для оценки радиоактивного йода в атмосфере	52
2.2 Средства измерения параметров улавливающих элементов	55
2.2.1 Ионно-дрейфовый детектор КЕРБЕР-Т	55
2.2.2 Гамма-спектрометрическая установка Canberra	59
2.2.3 Бета-радиометр КРК-1	60
2.2.4 Альфа-радиометр БДПА-01	62
Глава 3. Предлагаемый метод определения вклада в суммарную объемную активность различных химических соединений йода, присутствующего в изучаемой атмосфере	64
3.1. Общее описание метода	64
3.2. Экспериментальные исследования по определению состава сорбционно-фильтрующих материалов и времени экспозиции.....	65
3.3 Оптимизация структуры сорбционного набора фильтров на основании экспериментальных данных	69
3.4 Результаты измерений	71
Глава 4. Метод оценки распределения активности по размерам аэрозольных частиц в воздухе рабочей зоны предприятия ядерного топливного цикла.....	79
4.1. Результаты оценки распределения радиоактивности по размерам аэрозольных частиц	79
4.2. Оценка ожидаемой эффективной дозы при ингаляционном поступлении на персонал реакторного зала ИВВ-2М	83

Глава 5. Метод оценки влияния радиоактивных аэрозолей с размером менее 10 нм на измерения, выполняемые при помощи устройств с инерционным механизмом осаждения.....	85
Заключение.....	96
Список сокращений и условных обозначений.....	98
Список литературы.....	99

Введение

Актуальность темы исследования

Эксплуатация ядерных установок сопровождается поступлением радиоактивных веществ в атмосферный воздух и воздух рабочей зоны. Радиоактивные газы и аэрозоли в воздухе могут быть источником облучения персонала и населения. В этом случае корректный расчет доз внешнего и внутреннего облучения является важным компонентом комплекса мер по обеспечению радиационной безопасности как персонала так и населения. Расчет дозы внутреннего облучения вследствие ингаляционного поступления радиоактивных веществ в организм сопровождается существенными неопределенностями в оценке формы и параметров распределения радиоактивных аэрозолей по размеру и типу транспортабельности радиоактивного вещества.

Особенностями оценки дозы внутреннего облучения при ингаляционном поступлении являются характеристики вдыхаемого воздуха: радионуклидный состав, дисперсность, фазовый состав и тип транспортабельности. Фазовый и дисперсный состав газоаэрозольной смеси радиоактивных веществ зависит от ряда факторов: источника образования, температуры, влажности окружающей среды, летучести вещества и т. д. Газоаэрозольная смесь может быть представлена различными фазовыми состояниями:

- аэрозоль (кобальт, стронций, марганец, цезий);
- инертные газы (аргон, криптон, ксенон);
- элементарные пары (йод, рутений, теллур и др.);
- более сложные органические и неорганические соединения.

Определение объемной активности для многокомпонентных газо-аэрозольных смесей необходимо выполнять отдельно. Отсутствие информации о фазовом составе приводит к ситуации консервативного подхода с использованием компонентов с наиболее высоким дозовым коэффициентом [1, 4]. Наличие в воздушной среде инертных радиоактивных газов не представляет опасности для внутренних органов персонала и населения. С точки зрения дозообразования

рассматриваются исключительно в качестве источника внешнего облучения [3, 4]. Тем не менее дочерние продукты распада техногенных радиоактивных газов должны учитываться при оценке доз за счет ингаляционного поступления для рабочих мест предприятий ЯТЦ. Для соблюдения требований по ограничению выбросов в атмосферный воздух и для обеспечения радиационной безопасности персонала большое значение имеет контроль объемной активности, дисперсного и фазового состава газо-аэрозольной смеси как в вентиляционной системе после очистки, так и в рабочих помещениях [5].

Таким образом, повышение точности и достоверности результатов определения радиоактивных веществ в атмосфере с учетом их физико-химических свойств путем экспериментального определения удельной активности газовой и аэрозольной составляющих и дисперсности аэрозольных частиц для оценки степени отложения радиоактивных веществ в респираторном тракте персонала и населения является *актуальной научно-технической задачей*.

Степень разработанности темы исследования

Существующие приборы и методы контроля различных параметров газо-аэрозольных смесей на рабочих местах и в вентиляционных системах, имея свои преимущества и недостатки, не дают четкого представления о характеристиках радиоактивных веществ при ингаляционном поступлении. Одним из ключевых факторов, определяющих поступление и осаждение радиоактивного аэрозоля в отделах респираторного тракта, является размер частиц. На сегодняшний день существует типовой подход для оценки распределения радиоактивных аэрозольных частиц по размерам в воздушной среде в выбросах и на рабочих местах: анализ дисперсного состава аэрозолей с использованием каскадных импакторов и пакетов многослойных фильтров [6–8]. Эти средства измерения имеют ограничения по размеру улавливаемых радиоактивных аэрозолей. Однако существуют рабочие места, на которых были обнаружены ультрадисперсные радиоактивные аэрозольные частицы ($<10\text{нм}$) [9]. Присутствие аэрозолей таких малых размеров в воздушной среде может создавать дополнительный вклад в

отклик, полученный от каждого улавливающего элемента типового устройства, на котором происходит осаждение аэрозолей. Ввиду этого, для корректной оценки распределения радиоактивных частиц необходимо учитывать долю ультрадисперсных аэрозольных частиц.

Помимо аэрозольной компоненты, оценка эффективной дозы облучения населения от выбросов радиоактивных веществ в атмосферный воздух требует анализа объемной активности газовой составляющей воздушной среды, например, для изотопов йода [10]. Однако на сегодняшний день доступного и простого способа отдельного определения объемной активности газоаэрозольной смеси радиоактивного йода на предприятиях ядерного топливного цикла нет [29]. Таким образом, разработка доступного метода определения объемной активности различных фракций радиоактивного йода в воздушной среде представляет важную задачу в области обеспечения радиационной безопасности населения в зоне ядерных объектов.

Объектом исследования является газоаэрозольная смесь, которая создается при эксплуатации ЯР и является негативным фактором для персонала и населения с точки зрения ингаляционного поступления в организм.

Предметом исследования являются методы радиационного контроля для определения физико-химических свойств радиоактивных веществ в газоаэрозольной смеси.

В соответствии с этим **целью диссертационной работы** является повышение достоверности информации о физико-химических свойствах радиоактивных веществ путем использования простых, доступных и серийно выпускаемых пробоотборных устройств, которые позволят с минимальными трудозатратами получить сведения о газоаэрозольной смеси при эксплуатации ЯР.

Для достижения этой цели в диссертационной работе решаются **следующие задачи:**

1. Разработать метод математической обработки экспериментальных

данных для определения вклада различных форм радиоактивного йода в атмосфере в суммарную объемную активность этого радионуклида.

2. Выполнить оценку эффективной дозы для населения, исходя из доли различных химических соединений радиоактивного йода в выбросах предприятий, эксплуатирующие разные ЯР.

3. Получить информацию о распределении активности дочерних продуктов распада техногенных инертных газов Хе-138 и Kr-88 по размерам аэрозольных частиц.

4. Выполнить оценку эффективной дозы за счет ингаляционного поступления в организм ультрадисперсных аэрозольных частиц с активностью дочерних продуктов распада техногенных инертных газов Хе-138 и Kr-88.

5. Определить степень влияния диффузионного осаждения ультрадисперсных частиц на каскадный импактор и разработать метод устранения данного эффекта.

Научная новизна

1. Метод контроля радиоактивного йода в газоаэрозольных выбросах ЯР, базирующийся на одновременном определении доли объемной активности аэрозольной и газовой компонент различных химических соединений радиоактивного йода.

2. Метод повышения точности определения эффективной дозы от ингаляционного поступления радиоактивных веществ в организм при эксплуатации ЯР, основанный на получении информации о распределении активности продуктов распада смеси инертных радиоактивных газов техногенного происхождения на ультрадисперсных аэрозольных частицах с активностным медианным термодинамическим диаметром (АМТД) в диапазоне от 0,5 до 50 нм.

3. Учет влияния ультрадисперсных аэрозолей на результаты измерений с помощью метода инерционного осаждения, основанный на отдельном осаждении частиц разных размеров.

Теоретическая и практическая значимость работы

Разработана и аттестована методика одновременного определения объемной активности аэрозольной и газовой компонентом различных химических соединений радиоактивного йода в газоаэрозольных выбросах ЯР. Методика позволяет определить вклад в суммарную объемную активность радиоактивного йода аэрозольной фракции и легкосорбируемых и трудносорбируемых газообразных соединений. Разработан и аттестован программный код, реализующий данную методику.

Результаты экспериментального определения распределения аэрозольных частиц по размерам, включая ультрадисперсную фракцию, позволяют снизить неопределенность и устранить излишний консерватизм при оценке доз облучения респираторного тракта человека на рабочих местах предприятия, эксплуатирующего ЯР.

Методы исследования

Для решения поставленных задач в работе использовались методы регрессионного анализа измеренных данных с использованием аппроксимирующей модели для оценки однородности экспериментальных данных и алгоритм для нахождения оценок максимального правдоподобия параметров аэрозольных частиц разных размеров. Активность улавливающих элементов пробоотборных устройств измерялась с помощью бета-радиометрии и гамма-спектрометрического анализа.

Положения, выносимые на защиту

Первое защищаемое положение. Метод отдельного определения объемной активности различных фракций радиоактивного йода в газовой смеси в виде аэрозолей, легко- и трудносорбируемых газообразных соединений, позволяющий уменьшить неопределенность оценки эффективной дозы в газоаэрозольных выбросах ядерного реактора.

Второе защищаемое положение. Метод исследования радиоактивных аэрозолей в реакторном зале ядерной установки, состоящий в отдельном

измерении активности фракций аэрозольных частиц по размерам, включая высокодисперсные фракции, определяемые с использованием диффузионной батареи экранного типа, позволяющий повысить точность оценки ожидаемой эффективной дозы персонала при ингаляционном поступлении по сравнению со стандартным подходом.

Третье защищаемое положение. Метод учета вклада ультрадисперсных частиц размером менее 10 нм в отклик улавливающих элементов инерционных устройств, с использованием сетчатых экранов, устанавливаемых перед улавливающими элементами импактора, позволяющий уменьшить неопределённость оценки распределения объемной активности по размерам аэрозольных частиц.

Достоверность полученных результатов Достоверность полученных результатов обеспечивается научной обоснованностью исходных положений, лежащих в основе методов контроля радиоактивных веществ, их соответствием законам радиоактивного распада, использованием прецизионных средств измерений, и хорошей воспроизводимостью данных измерений и использованием современных методов статистической обработки результатов экспериментальных исследований.

Апробация работы Основные положения и результаты диссертационной работы докладывались и обсуждались на следующих научных конференциях: XXXIII Урало-Сибирский междисциплинарный семинар (Заречный, 2016), Четвертая международная конференция RAD 2016 (Ниш, Сербия 2016), Восьмая Международная конференция по защите от радона (Прага, 2016), Всероссийская конференция «Биосферная совместимость атомной энергетики» (Екатеринбург, 2017), XI Петряновские и II Фуксовские чтения (Москва, 2017).

Публикации По материалам диссертационной работы опубликовано 11 научных работ, в том числе 7 статей в научных журналах из перечня ВАК, из них 6 статей индексируются в системе Web of Science, 4 статьи в трудах международных конференций и других изданиях.

Глава 1. Формирование газоаэрозольных смесей на предприятиях ЯТЦ

Для оценки дозы при ингаляционном поступлении радиоактивных аэрозолей в человеческий организм широко применяются косвенные методы. Подобные методы основаны на отборе проб аэрозольных частиц, оценке поступления в организм и последующем расчете дозы. При этом корректность дозовых оценок во многом зависит от наличия информации о физических характеристиках и химических формах радиоактивных веществ в воздухе. Распределение частиц по размерам и тип химического соединения радиоактивных веществ определяют долю активности аэрозольных частиц, которая задерживается в различных отделах дыхательного тракта [11, 12].

Радиоактивные вещества в выбросах предприятия ЯТЦ представлены газоаэрозольной системой. Газ и частицы постоянно и непрерывно оказывают друг на друга существенное влияние. Частицы вследствие гравитации и диффузии смещаются с линий потока газа, сталкиваются и слипаются между собой, испаряются и тут же конденсируются на других частицах. Свойства и поведение аэрозоля существенно зависят от давления, вязкости, температуры и влажности газообразной среды.

В отличие от аэрозоля газ однороден и изотропен. При наличии термодинамического равновесия с жидкой или твердой фазой того же вещества газ называют паром. Подобный термин употребляют, когда фазовое равновесие существует при температурах и давлениях в обычных природных условиях (например, пары воды, органические соединения спирта, йода, ртути, бензола и т. д.). Для многих физических задач понятия «пар» и «газ» эквивалентны. Пары нельзя уловить методами механического отсеивания, предназначенными для аэрозольных частиц. Для их улавливания используются другие методы, некоторые из которых будут рассмотрены в последующих разделах.

1.1 Газообразные формы радиоактивных веществ в атмосфере предприятий ЯТЦ

Многие аэрозоли могут сопровождаться газообразными веществами, которые находятся в определенном равновесии с веществами из состава аэрозольных частиц. При этом их количество зависит в основном от летучести вещества и температуры окружающей среды.

Среди альфа-активных аэрозольных систем следует выделить частицы, содержащие гексафториды урана, а также полоний [6]. Гексафторид урана один из наиболее химически активных соединений урана, который является сильным окислителем [13].

При производстве препаратов Po-210 и при эксплуатации облученных свинцово-висмутовых и свинцово-литиевых сплавов могут образовываться аэрозоли в сопровождении с газообразной фазой полония [14]. Также было отмечено, что аэрозоли из препаратов металлического Po-210, высаженного на медном порошке в атмосфере с большой влажностью также могут быть представлены газообразной фракцией Po-210. Эта фракция по своим физико-химическим свойствам напоминает гидрид полония [15, 16].

Список аэрозольных систем с β -излучающими нуклидами гораздо шире, поскольку большое значение имеют органические соединения, обладающие высокой летучестью. К таким аэрозолям относятся те, которые содержат радиоактивный йод, рутений, ртуть, теллур и другие радионуклиды.

Радионуклиды рутения (Ru-103, Ru-106) способны проникать через защитные оболочки ядерно-энергетических установок, в выбросах они находятся преимущественно в газообразном состоянии. Помимо радиоактивных аэрозолей рутений в атмосфере может быть представлен в газообразном состоянии в виде RuO₄. Атмосферный воздух в районе Чернобыльской аварии был представлен газообразными продуктами Ru-103, Ru-106, а также изотопом теллура Te-132. Тем не менее доля летучего соединения рутения была значительно меньше, чем у йода [16].

С точки зрения дозообразования радионуклиды йода являются одними из основных компонентов, которые содержатся в выбросах ядерных реакторов и на предприятиях радиохимической переработки в качестве продуктов деления ядерного топлива.

Соединения радиоактивного йода могут находиться в воздухе одновременно в дисперсном и газообразном состоянии. Они требуют особого внимания, связанного со сложностью улавливания и определения их содержания.

Газообразные соединения йода могут находиться в воздухе в виде паров молекулярного йода (I_2), йодистого водорода (HI), гипойодной (йодоводородной) кислоты (HOI) и органических соединений, таких как CH_3I и другие [18]. Характер взаимодействия между газообразной и дисперсной фазами в системе определяется законами молекулярной диффузии отдельных атомов и молекул и силами Ван-дер-Ваальса, удерживающими их на аэрозольных частицах.

Газообразные соединения йода обладают различными сорбционными свойствами. Такие соединения, как I_2 , HI, хорошо сорбируются, а CH_3I и HOI [18] относятся к трудносорбируемым соединениям, которые затрудняют улавливание и очистку воздуха от радионуклидов йода. Соотношение между этими компонентами зависит от технологического процесса попадания в атмосферу радионуклидов йода и наличия в них микропримесей химически активных веществ [19]. Если в воздушных выбросах имеются аэрозоли, часть йода может конденсироваться на них [20]. В результате процессов сорбции и десорбции между аэрозольной и газовой формами йода устанавливается динамическое равновесие.

В качестве основного источника появления радиоактивного йода в вентиляционных системах АЭС является облученное ядерное топливо с различной степенью выгорания. В зазорах под оболочкой тепловыделяющих элементов накапливаются изотопы йода и цезия, которые могут попадать в теплоноситель 1-го контура через различные микротрещины [21–25].

Поскольку легкосорбируемые соединения и аэрозольная фракция йода хорошо оседают на сорбционно-фильтрующих элементах, то в выбросах АЭС,

эксплуатирующих кипящие реакторы и РБМК-1000, преобладают органические соединения йода, доля которых составляет 60–80 %. В выбросах АЭС с реакторами ВВЭР содержание CH_3I в большинстве случаев не превышает 30 % [26].

Образование йодоорганических соединений также не является исключением для радиохимических предприятий [27]. Результаты газохроматографического анализа демонстрируют, что основной формой органических соединений йода в выбросах являются йодиды метила (45–50 %), этила (~8 %), пропила (~7 %) и бутила (от 8 до 25 %) [16, 28]. Значительный выброс органических соединений радиоактивного йода может объясняться различными периодами топливной кампании и трудностью улавливания этих форм.

1.2 Существующие методы улавливания радиоактивного йода из газовой фазы

В аналитической практике для улавливания парогазовой фракции летучих веществ применяют главным образом твердые сорбенты и поглотительные растворы. В отличие от улавливания аэрозолей поглощение газов и паров происходит за счет процессов сорбции, протекающих на атомно-молекулярном уровне. В зависимости от физико-химического состава радиоактивного йода его сорбция может быть представлена двумя основными процессами: адсорбция и хемосорбция. Оба механизма зависят от большого числа различных факторов, включая время протекания процесса и температуру. Подробно механизмы улавливания радиоактивного йода представлены в работе [6].

1.2.1 Материалы для улавливания парогазовой фракции радиоактивного йода

Все методы улавливания парогазовой фракции радиоактивного йода, как правило, связаны с фильтрацией определенных объемов воздуха через системы фильтров, скрубберов, сорбционных колон, цеолитов, силикагелей и специальных сорбентов. Наиболее широкое применение находят методы аспирационного контроля и очистки воздуха при прокачке его через ткань Петрянова, а также через системы, состоящие из комбинации различных фильтров, содержащих активированный уголь, сорбенты неорганического и органического происхождения, пропитанные импрегнантами (третичные и циклические амины, аминспирты, соли тяжелых металлов, например, ТЭДА, ГМТА, BaI_2 , $AgNO_3$), способными к изотопному обмену с йодом или образованию с ним прочных химических связей. Более подробное описание различных методов локализации радиоактивного йода из газовой фазы представлены в работе [29].

На предприятиях атомной отрасли для улавливания и концентрирования газообразных веществ, а также для совместного улавливания аэрозолей и парогазовой фракции вредных веществ, которые могут одновременно находиться

в воздухе, были разработаны специальные комплексные улавливающие средства, в частности, сорбционно-фильтрующие материалы и на их базе –аналитические фильтры аэрозольные сорбирующие и сорбционно-фильтрующие ленты.

Первые образцы фильтрующих материалов ФП с внесенными в них сорбентами были изготовлены в НИФХИ им. Л. Я. Карпова еще в конце 50-х гг. для улавливания радиоактивного йода и испытаны совместно с Институтом биофизики МЗ СССР [30]. Испытания проводили по газообразному I-131, выделяющемуся в воздушную среду из водного раствора с поглощенным в нем радиоактивным йодом. В качестве фильтрующего материала использовали аналитические фильтры типа АФА, а для хемосорбции использовались йодные аналитические фильтры аэрозольные и сорбирующие (АФАС-И) из материала СФМ [31].

Сорбционно-фильтрующие материалы созданы на основе тонковолокнистых фильтрующих материалов ФП и мелкоизмельченных сорбентов, которые вводятся во внутренние слои материала. Благодаря такой структуре СФМ сохраняют высокие фильтрующие свойства по отношению к аэрозолям и одновременно обеспечивают сорбцию газообразных веществ.

Заметим, что прямое применение волокнистого материала для сорбции хотя и перспективно, однако требует специальной обработки полимерных волокон для придания им сорбционных свойств [32]. Введение же сорбента в волокнистый слой явилось более простым и универсальным средством изготовления сорбционно-фильтрующих материалов.

В качестве сорбентов в сорбционно-фильтрующих материалах применяются различные угли, силикагель, алюмогель, иониты, а также щелочные и кислые соли в измельченном виде с частицами размером меньше 4 мкм.

Более дорогой и энергоемкий способ отбора радиоактивных изотопов йода из газовой воздушной среды основан на применении в качестве сорбирующего материала аналитического фильтра «МАЙ» (материал аналитический йодный), который содержит стекловолокно, хлопковую

целлюлозу, асбест и дроблёный силикагель. Его пропитывают в растворе AgNO_3 и AgI в соотношениях 60:1 [33, 34].

Фильтр «МАЙ» используется для отбора проб из линий газоочистки, в которых технологический газ, как правило, имеет высокие температуру и относительную влажность, содержит пары кислот, оксиды азота, аэрозоли, ИРГ, органические соединения йода и т. д. Пробоотбор осуществляется при достижении рабочей температуры фильтродержателя в диапазоне от 150 до 200 °С. Недостаток данного метода – высокая стоимость и узкоспециализированное назначение.

Высокоэффективные фильтрующие системы для комплексного исследования физико-химических форм радиоактивного йода в виде фильтров Майпак позволяют получить информацию не только об аэрозольной и паровых формах, но и определить доли органических и неорганических форм [16]. Однако такие системы очень дорогостоящие и не могут быть использованы при рутинном мониторинге штатных выбросов на предприятиях ЯТЦ.

Также существуют и другие устройства, позволяющие определять долю газообразного радиоактивного йода [35, 36]. Однако они не позволяют оценить соотношения между молекулярной и органической составляющими, поскольку метод предусматривает преобразование газообразной составляющей в аэрозольную фракцию посредством ввода паров реагента в газовый поток.

1.2.2 Методы изучения соотношений различных форм радиоактивного йода

Динамику процесса сорбции принято описывать системой уравнений [37]. Для фронтальной динамики сорбции в одномерном приближении такая система записывается в следующем виде:

$$\frac{\partial a}{\partial t} + \frac{\partial c}{\partial t} + v \frac{\partial c}{\partial x} = D \frac{\partial^2 c}{\partial x^2} \quad (1.1)$$

$$\frac{\partial a}{\partial t} = \beta \cdot (C - C_p) \quad (1.2)$$

$$\alpha = f_m(C_p) \quad (1.3)$$

где α – концентрация сорбирующего вещества в сорбционном слое;

C – концентрация вещества в газовом потоке;

v – линейная скорость потока;

D – коэффициент продольного переноса;

β – кинетический коэффициент;

C_p – равновесная концентрация паров веществ над сорбентом;

x – длина сорбционного слоя вдоль потока;

t – время сорбции.

Уравнение (1.1) определяет баланс сорбируемых веществ, уравнение (1.2) – кинетику сорбции, уравнение (1.3) – изотерму сорбции.

Полное аналитическое решение системы из уравнений (1.1–1.3) отсутствует, однако имеются частные решения для отдельных случаев с определенными граничными условиями сорбции. Для идеального случая равновесной кинетики сорбции ничтожно малых количеств веществ при неограниченной емкости сорбента решением системы является выражение:

$$C_x = C_0 e^{-(\beta_i \cdot q_i)} \quad (1.4)$$

где C_0 – концентрации газообразного радиоактивного йода перед слоем СФМ;

C_x – концентрации газообразного радиоактивного йода за последним слоем СФМ;

q_i – толщина слоя сорбента, в котором происходит улавливание легкосорбируемых ($i = 1$) и трудносорбируемых ($i = 2$) соединений йода;

β_i – коэффициенты сорбции легкосорбируемых и трудносорбируемых соединений йода.

Сорбцию газообразного радиоактивного йода изучали с помощью сорбционно-фильтрующих материалов с различными хемосорбентами, среди которых сорбент из угля марки ОУ-А с добавкой из азотнокислого серебра (с 25 % AgNO_3) оказался наиболее эффективным поглотителем [38].

В другой работе исследовались различные активированные угли, импрегнированные различными добавками. Исследования проводили в

лабораторных условиях с эталонными источниками газообразного I-131 в виде I₂ и CH₃I (температура 30°C, отн. влажность. 90% и линейной скоростью 0,25см/с), а также в реальных условиях газовых выбросов АЭС, содержащих радиоактивные изотопы йода [39].

Отличительной особенностью улавливания радиоактивного йода, как правило, является сорбция его нескольких форм. Это особенно четко проявляется при улавливании относительно низких концентраций радиоизотопов йода.

Для анализа газоаэрозольных форм радиоактивного йода используют набор аналитических фильтров, состоящий из последовательно расположенных фильтров:

- одного-двух аэрозольных фильтров АФА-РМП;
- пяти сорбирующих фильтров типа АФАС-И;
- защитного фильтра АФАС-И.

Число фильтров может меняться в зависимости от содержания и фракционного состава радионуклидов йода. Фильтры АФАС-И наполнены активированным углем ОУ-А, импрегнированным 25 % масс. AgNO₃, с поверхностной плотностью 10 мг/см². Количество фильтров подбирают так, чтобы эффективность поглощения всех летучих форм радиоактивного йода составляла не менее 99,9 %.

Характерное распределение уловленного газообразного ¹³¹I по длине сорбционного слоя представлено на рисунке 1.1. По оси ординат отложен логарифм активности уловленного I-131, отнесенной к количеству сорбента в слое материала, а по оси абсцисс – длина сорбирующего слоя, выраженная в единицах количества сорбента в слое материала (мг/см²) [31].

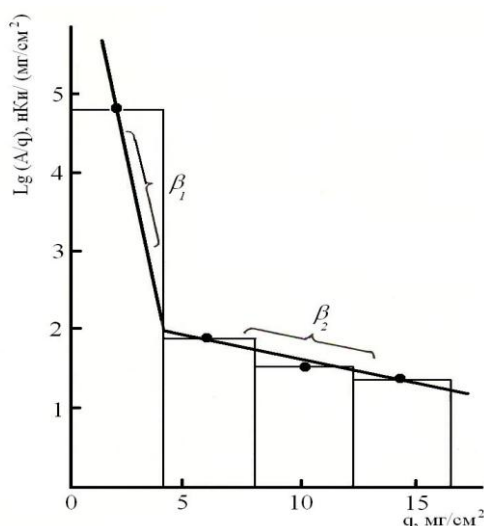


Рисунок 1.1 – Распределение уловленного газообразного радиоактивного йода (две фракции) вдоль слоя сорбента в сорбционно-фильтрующем материале с углем ОУ-А, импрегнированным 25 % масс. AgNO_3

На рисунке 1.1 отчетливо видны два прямолинейных участка сорбционного фронта с различными углами наклона к оси абсцисс, которые характеризуют сорбцию, не менее двух летучих соединений радиоактивного йода. В лобовом слое материала наблюдается крутой наклон сорбционного фронта легкосорбируемых соединений уловленного радиоактивного йода с коэффициентом β_1 , а за ним, в последующих слоях материала, происходит сорбция трудносорбируемых соединений, и наклон прямой с коэффициентом β_2 заметно уменьшается. Недостатком данного метода является большая неопределенность в коэффициенте наклона прямой, проведенной через одну точку, характеризующую сорбционный фронт легкосорбируемых соединений. Подобный подход выделения легкосорбируемых соединений йода из общего потока крайне затруднителен по причине большого значения коэффициента эффективности улавливания.

Решением данной проблемы может быть модернизация метода анализа результатов измерения активности на каждом сорбционном слое путем интерпретации полученных данных одной экспоненциальной кривой. Такой подход позволит снизить общую неопределенность метода и упростить процедуру определения химических соединений радиоактивного йода. Набор одинаковых по

составу и характеристикам сорбционных слоев позволит применять данный метод для лабораторного контроля объемной активности радиоактивного йода в выбросах объекта, использующего атомную энергию. Для подтверждения однородности сорбируемого химического соединения йода может быть выполнена оценка по критерию, полученному на основе регрессионного анализа измеренных данных с использованием аппроксимирующей модели.

1.3 Подходы для оценки распределение аэрозольных частиц по размерам

Аэрозольная среда может представлять собой двухфазную среду, в которой газ относится к несущей фазе, а аэрозольные частицы – к жидкой или твердой дисперсной фазе. Теоретические основы механики аэрозолей развиты в книгах таких авторов, как Фукс Н. А. [40], Райст П. [41], Hinds W. C. [42].

В зависимости от размера частиц аэрозоли условно подразделяют на высокодисперсные (менее 0,1 мкм), с промежуточной дисперсностью (0,1–10 мкм) и грубодисперсные (более 10 мкм).

Монодисперсные аэрозоли, которые обычно представлены частицами одинакового размера, встречаются в природе довольно редко, и существование таких частиц характеризуется короткими промежутками времени.

В зависимости от формы, размеров частиц, концентрации, их фазового состояния и других характеристик в настоящее время используется целый ряд методов анализа дисперсного состава нерадиоактивных аэрозолей. Все эти методы можно разделить на следующие группы [43]:

- методы определения удельной поверхности частиц;
- механическое разделение частиц (ситовой анализ);
- измерение размеров индивидуальных частиц (микроскопический анализ);
- измерение подвижности частиц в электрическом поле [66];
- методы седиментации (седиментометрия), основанные на осаждении частиц под действием силы тяжести или в поле центробежных сил;
- фотоэлектрические методы, основанные на регистрации излучения, отраженного от частицы [67].

Такие методы достаточно трудоемки и сложны, несмотря на свою высокую точность. Главный недостаток таких методов – сложность при отдельных измерениях интересующих радиоактивных частиц и неактивного аэрозольного фона.

Для определения дисперсности радиоактивных аэрозолей используют

улавливающие устройства, принцип действия которых основан на диффузионном (диффузионные батареи) и аэродинамическом разделении частиц вследствие их седиментации или инерционного осаждения на препятствии (каскадные импакторы). Методом многослойных фильтров реализована комбинация этих принципов.

Однако информация об активности на улавливающих элементах не дает возможности непосредственного определения размера аэрозольных частиц. Для этого применяют косвенные методы, основанные на измерении зависящих от размера частиц оптических, электрических, активностных и других характеристик аэрозольных систем. В основе таких методов лежит решение интегрального уравнения Фредгольма I рода [6]:

$$n(\vec{x}) = \int K(\vec{x}, r) \cdot f(r) dr, \quad (1.5)$$

где $f(r)$ – плотность распределения частиц по размерам (неизвестная функция);

$K(\vec{x}, r)$ – функция отклика прибора (ядро уравнения);

$n(\vec{x})$ – измеряемая с некоторой погрешностью величина;

\vec{x} – совокупность параметров;

r – радиус частиц.

Общим для всех методов является зависимость функции отклика прибора от размера частиц: чем сильнее зависимость, тем лучше метод может быть реализован на практике.

Атмосфера, которая представлена аэрозольными частицами различных размеров, называется полидисперсной. Как правило, в природе и в промышленности встречаются именно полидисперсные системы. Ввиду того, что физико-химические свойства аэрозоля существенно зависят от размера частиц, нахождение функции распределения частиц по размерам является важнейшей задачей науки об аэрозолях [6].

Наиболее простая характеристика группы частиц с различными диаметрами это сумма радиусов всех частиц, деленная на их полное число [43]:

$$\bar{r} = \frac{\sum n_i r_i}{\sum n_i}, \quad (1.6)$$

где \bar{r} – средний радиус частиц;

r_i – средний радиус i -й группы частиц;

n_i – число частиц с радиусом r_i .

Распределение аэрозольных частиц по размерам можно представить в виде гистограммы – зависимости количества частиц в i -м интервале n_i , отнесенного к длине этого интервала Δx_i , от аэродинамического диаметра частиц. Гистограмма может быть представлена совокупностью смежных прямоугольников (рис 1.2). Площадь каждого прямоугольника пропорциональна числу частиц, размеры которых попадают в данный интервал.

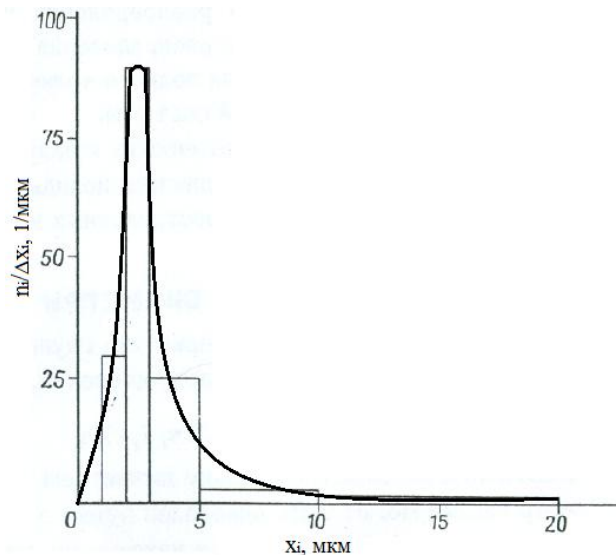


Рисунок 1.2 – Гистограмма распределения аэрозольных частиц по размерам

В случае если интервалы размеров частиц Δx_i очень малы, то гистограмма может быть представлена в виде плавной кривой, которая может быть аппроксимирована некоторой функциональной зависимостью.

Нормальное распределение (распределение Гаусса) аэрозольных частиц по размерам встречается в природе редко (например, аэрозоль, состоящий из спор некоторых растений). Распределением Гаусса хорошо аппроксимируется распределение размеров частиц, образующихся в некоторых генераторах монодисперсных аэрозолей, которые используют для калибровки аэрозольных приборов и при испытаниях фильтров. Понятие «монодисперсные аэрозоли»

весьма условно: размеры таких частиц подчинены нормальному распределению с малым стандартным отклонением [6].

Нормальное распределение имеет вид:

$$f(r) = \int_{-\infty}^r \frac{1}{\sqrt{2\pi}\cdot\sigma} \cdot e^{-\frac{(r-\bar{r})^2}{2\cdot\sigma^2}} dr, \quad (1.7)$$

где \bar{r} – средний арифметический радиус частиц;

r – текущее значение радиуса;

σ^2 – дисперсия.

Более подходящее распределение для описания распределения размеров частиц является логарифмически-нормальное распределение (ЛНР), которое чаще используют при описании распределения размеров частиц как дисперсионного, так и конденсационного происхождения. А. Н. Колмогоров показал, что из простых гипотез о характере процесса дробления твердых частиц, можно доказать, что распределение размеров частиц асимптотически стремится по мере хода измельчения к логарифмически-нормальному [44].

Плотность ЛНР имеет вид:

$$f(r) = \frac{1}{\sqrt{2\pi} \ln \sigma \cdot r} \cdot e^{-\frac{(\ln r - \ln r_g)^2}{2 \ln^2 \sigma}}, \quad (1.8)$$

где r_g – средний геометрический радиус частиц;

r – текущее значение радиуса;

σ – стандартное геометрическое отклонение.

Значения этих величин можно найти из анализа данных эксперимента, представленных в виде гистограммы распределения по размерам [6]:

$$\ln r_g = \frac{\sum_i n_i \cdot \ln r_i}{\sum_i n_i}, \quad (1.9)$$

$$\ln \sigma = \left(\frac{\sum_i n_i \cdot (\ln r_g - \ln r_i)^2}{\sum_i n_i - 1} \right)^{1/2}. \quad (1.10)$$

Типичный график плотности распределения ЛНР представлен на рисунке 1.3. В отличие от распределения Гаусса график плотности логарифмически нормального распределения ассиметричен. Отложив по оси абсцисс не значения радиусов, а их логарифмы, можно получить симметричный «колокол»,

аналогичный плотности нормального распределения. Полуширина такого «колокола» равна $ln\sigma$. Это означает, что размеры примерно 66,7 % всех частиц попадают в интервал от r_g/σ до $r_g \cdot \sigma$.

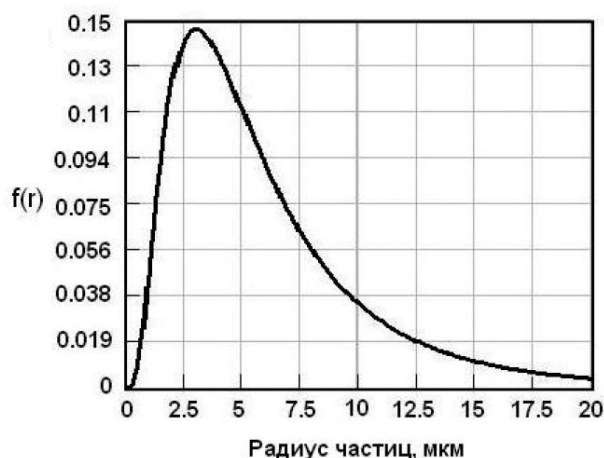


Рисунок 1.3 – Плотность логарифмически-нормального распределения (медианный радиус r_m равен 5 мкм, стандартное геометрическое отклонение σ равно 2,0)

Однако, несмотря на применимость логарифмически-нормального распределения к различным аэрозолям, оно выполняется не всегда. Результат Колмогорова справедлив при строгих ограничениях: в рамках модели Колмогорова для логнормального распределения частиц при дроблении необходимо, чтобы скорость дробления (уменьшения размеров частиц) была постоянной, т. е. не зависела от размеров дробящихся частиц. С другой стороны, с уменьшением размера частицы интенсивность ее соударений с другими частицами или деталями дробильного агрегата может изменяться – уменьшаться в силу того, что вероятность столкновения с другими частицами пропорциональна размерам частицы, и чем частица меньше, тем меньше и эта вероятность [45]. На данное обстоятельство обратил внимание и сам Колмогоров [44]. Кроме того, из-за сложности аналитического выражения ЛНР использование его не во всех случаях удобно в теоретических расчетах [40].

Существует достаточно много эмпирических и полуэмпирических распределений, описывающих как природные, так и искусственные аэродисперсные системы [46].

Для изучения аэрозолей в свободной атмосфере часто используют эмпирическое распределение Юнге [47].

Плотность распределения Юнге равна:

$$f(r) = -C_0 \cdot r^{-\nu}, \quad (1.11)$$

где C_0 – постоянный коэффициент, определяемый из условий нормировки распределения и зависящий от средней концентрации частиц, а ν – показатель степени, изменяющийся, как правило, от 3 до 6 для различных условий измерения и размерных диапазонов. Распределение Юнге не учитывает наличие максимума плотности распределения, всегда имеющегося у распределений реальных аэрозолей. Его используют для аппроксимации спада $f(r)$ в области больших размеров частиц.

В атмосфере предприятий ЯТЦ могут содержаться не только радиоактивные аэрозоли с АМАД 0,1 – 2,5 мкм, но и ультрадисперсные частицы с АМТД менее 10 нм. Подобные атомарные радиоактивные кластеры впервые были изучены на примере дочерних продуктов распада радона [48 – 50]. Генезис подобных аэрозольных частиц схематично представлен на рисунке 1.4.

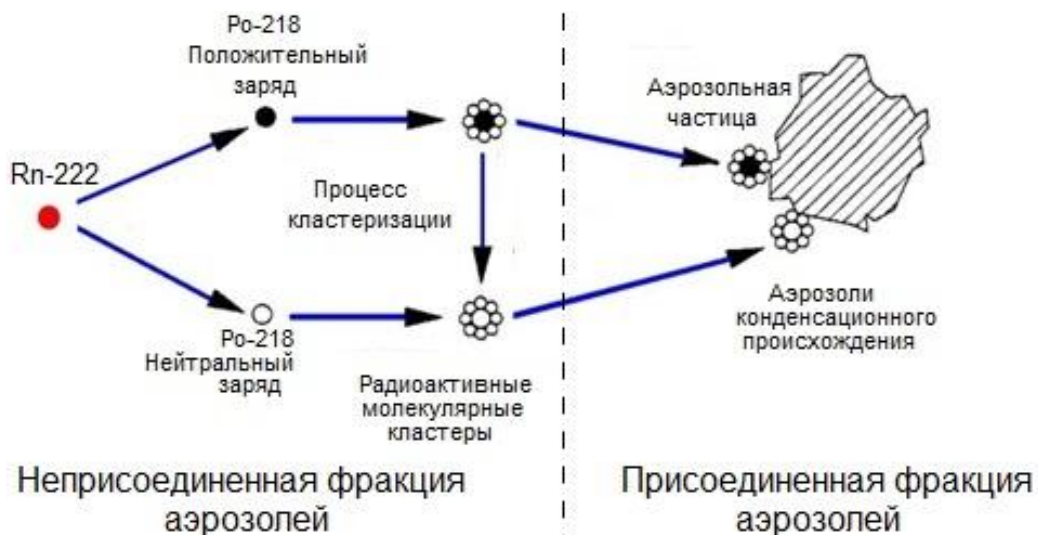
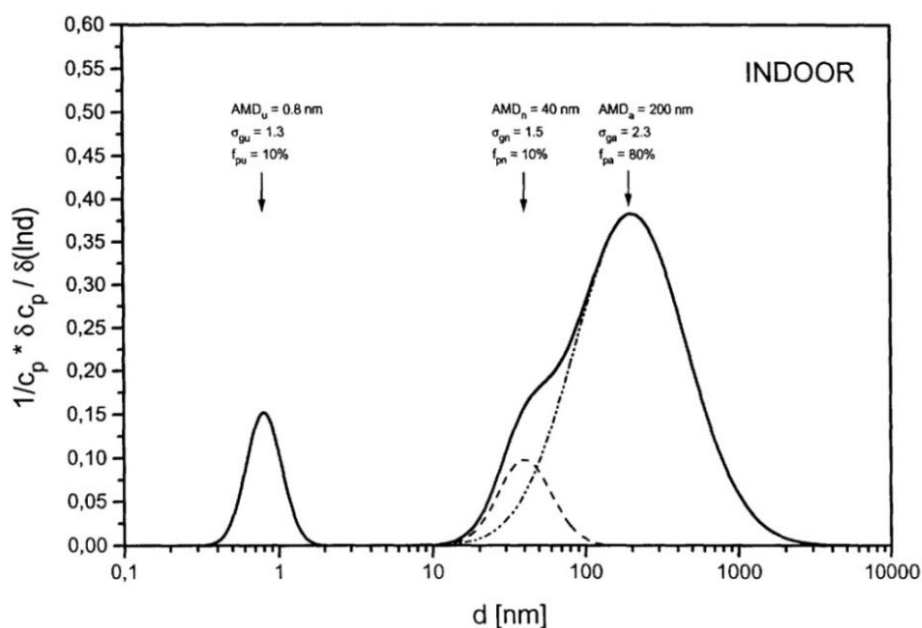


Рисунок 1.4 – Образование радиоактивных молекулярных кластеров на примере ДПР радона

Типовое распределение дочерних продуктов распада радона по размеру аэрозольных частиц представлено на рисунке 1.5 и имеет три основных моды,

характеризуемые как атомные кластеры: мода нуклеации и мода аккумуляции. При ближайшем рассмотрении предполагается, что кластерная мода состоит из трех пиков (рисунок 1.6), различие которых авторы [51, 52] связывают с различной концентрацией водяных паров, газовых примесей и распределением заряда по атомам ДПР радона.



Рисунке 1.5 – Типовое распределение ДПР радона по размерам аэрозольных частиц в закрытом помещении

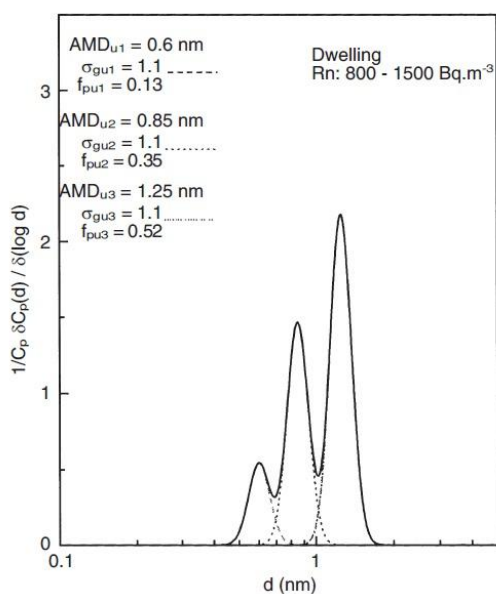


Рисунок 1.6 – Распределение ДПР радона по размерам кластеров в помещении

Другими источниками подобных ультрадисперсных аэрозолей может быть образование активационных радионуклидов в нейтронных полях реакторного пространства, радиоактивный распад инертных газов техногенного происхождения или ядра отдачи при работе с диоксидом плутония [53].

1.4 Анализ результатов исследования распределения радиоактивных аэрозолей по размеру на предприятиях ЯТЦ

Согласно требованиям СП 2.6.1.2612-10 («Основные санитарные правила обеспечения радиационной безопасности») контроль над радиационной обстановкой в зависимости от характера выполняемых работ на объектах использования атомной энергии является необходимой процедурой для оценки дозовых нагрузок на персонал.

При ингаляционном поступлении радионуклидов в организм персонала необходимо иметь информацию об объемной активности каждого радионуклида, их дисперсный состав и тип транспортабельности, который определяет их свойства и поведение. При отсутствии такой информации оценка дозовых нагрузок может быть как завышена, так и занижена.

В зависимости от распределения аэрозольных частиц по размерам и типу их транспортабельности рассчитываются дозовые коэффициенты внутреннего облучения при ингаляции ϵ , представляющие собой константы с размерностью Зв/Бк, т. е. дозы от поступления единичной объемной активности.

При отсутствии подобной информации отечественная и международная практика в области оценки поступления радионуклидов через дыхательные пути предлагает использовать дозовые коэффициенты для аэрозольных частиц с размерами АМАД 1 и 5 мкм [1, 11]. Согласно данным, приведенным в Публикации 68 МКРЗ [11], коэффициент дозового перехода может существенно изменяться в зависимости от значения АМАД радиоактивного аэрозоля.

В разное время проводились экспериментальные работы по оценке распределения радиоактивных аэрозолей по размерам в выбросах различных атомных станций. В таблице 1.1 приведены экспериментально определенные величины медианного радиуса и дисперсии для радиоактивных аэрозолей, образующихся на АЭС при нормальных режимах работы [24].

На реакторе типа РБМК Ленинградской АЭС подробно исследовали дисперсность аэрозолей как в вентиляционной системе, так и в приземном слое атмосферы вблизи станции [56].

Таблица 1.1 Экспериментально наблюдаемые параметры функций ЛНР по размерам частиц радиоактивных аэрозолей, образующихся на АЭС при нормальных режимах эксплуатации [24, 58, 59]

Место отбора	Медианный диаметр, мкм	СГО
Нововоронежская АЭС с реакторами ВВЭР		
Системы вентиляции	0,3–1,9	1,7–2,6
Высотная труба	1,2–1,9	1,7–2,1
Ровенская АЭС с реакторами ВВЭР		
Вентсистемы	0,2–0,5	2,5–6,0
Высотная труба	0,8–0,9	1,6–3,0
Ленинградская АЭС с реакторами РБМК		
Вентсистемы	0,3–0,7	1,7–2,6
Высотная труба	0,4	2,0
АЭС Темелин с реакторами ВВЭР		
Высотная труба	2,2	2,3
АЭС Дукованы с реакторами ВВЭР		
Высотная труба	3,8	2,4
АЭС Богунце с реакторами ВВЭР		
Высотная труба	3,3	2,5
АЭС Мюлеберг с кипящими реакторами		
Труба машинного зала	2,2	2,3

В воздуховодах системы вентиляции были определены размеры радиоактивных аэрозолей как осколочного, так и активационного происхождения. Наименьшими значениями АМАД (0,2 мкм) обладал I-131, а также Sr-51 (0,3 мкм). Остальные радионуклиды (марганец, кобальт, железо, цинк, цирконий, ниобий и цезий) были связаны с частицами, значения АМАД которых лежали в пределах 0,5 – 0,8 мкм.

Аэрозоли, отобранные в окрестности Ленинградской АЭС, имели тот же радионуклидный состав, что и в вентиляционной системе. Однако, размеры аэрозолей в этих пробах оказались несколько большими: значениями АМАД (0,3–

0,6 мкм) были представлены такими радионуклидами как Cr-51 и I-131, Zn-65 и Cs-134. В приземном слое воздуха в районе Чернобыльской АЭС после аварии 1986 г. для аэрозолей альфа- и бета-излучающих радионуклидов наблюдалась существенная вариация для значений АМАД (от 0,2 до 8 мкм) [57].

Для оценки эффективной дозы на персонал на предприятиях ЯТЦ были выполнены работы с целью изучения распределения радиоактивных аэрозолей по размерам на рабочих местах. Б.И. Огородников в своей работе показал, что дисперсный состав радиоактивных аэрозолей в воздухе на рабочих местах персонала предприятий, связанных с переработкой радиоактивных материалов, характеризуется в основном значением АМАД, равным 5 мкм [54]. В ряде исследований на плутониевых предприятиях были получены бимодальные распределения аэрозольных частиц по размерам [60, 61]. В обзоре [55] проведен анализ 160 измерений АМАД, выполненных в течение более 30 лет на урановых рудниках, на предприятиях по обогащению топлива, по изготовлению тепловыделяющих элементов, по переработке и хранению радиоактивных отходов. Результаты исследований представлены в таблице 1.2.

Таблица 1.2 Размер радиоактивных аэрозолей в различных отраслях атомной промышленности [55]

Тип предприятия	Количество измерений	Диапазон АМАД, мкм	Медиана распределения АМАД, мкм	СГО
Все рабочие места	160	0,1–25,0	4,4	1,8
АЭС	39	0,3–7,2	3,9	1,4
Урановая промышленность	13	0,5–16,0	6,8	2,4
Производство ядерного топлива	57	0,3–16,5	3,8	1,8

Следует отметить, что на предприятиях атомной энергетики среднее значение АМАД составляло около 4 мкм, а на урановых предприятиях оно может быть и больше.

Дисперсный состав радиоактивных аэрозолей в технологической вентиляции исследовательских реакторов ИРТ и ВВР-М исследован в работе [62].

Наиболее мелкие частицы с активностью радионуклидов рубидия, цезия, бария имели газовых предшественников в изобарных цепочках распада: значения АМАД находятся в диапазоне 0,16–0,46 мкм, при значениях СГО в диапазоне 1,4–2,1. Радионуклиды циркония, ниобия, стронция, церия, молибдена и теллура были связаны с частицами, значения АМАД которых лежали в диапазоне 0,46–0,82 мкм при значении СГО 2,1. Активационные нуклиды (натрий, хром, марганец) обнаруживали на аэрозолях с АМАД от 0,2–0,9 мкм. АМАД аэрозолей йода составлял 0,5–0,7 мкм.

Большой набор экспериментальных данных по оценке распределения активности по аэрозольным частицам лишь для субмикронного (более 0,1 мкм) и микронного диапазонов говорит о наличии метода и аппаратуры для определения размера аэрозольных частиц. Отсутствие научных работ по оценке размеров аэрозольных частиц радионуклидов в диапазоне менее 100 нм может быть обусловлено ограничением рабочего диапазона аппаратуры, с помощью которой проводился анализ дисперсности аэрозольных частиц.

Как показывает практика, образование единичных атомов за счет радиоактивного распада инертных газов является уникальным процессом, и если для дочерних продуктов распада радона и торона этот процесс прослеживается и известен, то для других возможных случаев он не изучен. Эксплуатация реакторных установок на предприятиях ЯТЦ приводит к формированию большого количества осколков деления в виде инертных радиоактивных газов. Анализ схем радиоактивного распада показывает, что существуют дочерние продукты распада в виде тяжелых металлов. В таблице 1.3 представлены часто встречающиеся на предприятиях ЯТЦ инертные радиоактивные газы и их продукты распада. Такие щелочные металлы, как цезий и рубидий, могут образовывать единичные радиоактивные атомы в результате радиоактивного распада техногенных ИРГ – ксенона и криптона, которые могут вести себя аналогично ДПР радона и торона. Поэтому правильность оценки размеров аэрозольных частиц с аэродинамическим диаметром менее 100 нм существующими методами требует экспериментального подтверждения.

Таблица 1.3 – Список инертных радиоактивных газов и их ДПР при эксплуатации ядерного реактора

Инертный радиоактивный газ	Дочерние продукты распада		
Ar-41 (1,8 ч)	K-41 (стабильный)		
Kr-85m(4,5 ч)	Kr-85(10,7 г)	Rb-85 (стабильный)	
Kr-87(76,3 мин)	Rb-87 ($4,7 \cdot 10^{10}$ г)	Sr-87 (стабильный)	
Kr-88 (2,84 ч)	Rb-88(17,8 мин)	Sr-88 (стабильный)	
Kr-89 (3,2 мин)	Rb-89(15,2 мин)	Sr-89 (стабильный)	
Xe-131m (11,9 сут)	Xe-131 (стабильный)		
Xe-133m (2,2 сут)	Xe-133 (5,3 д)	Cs-133 (стабильный)	
Xe-135m (15,3 м)	Xe-135 (9,1 ч)	Cs-135 ($2,3 \cdot 10^6$ г)	Ba-135 (стабильный)
Xe-137 (3,8 мин)	Cs-137 (30,2 г)	Ba-137m (2,6 мин)	Ba-137 (стабильный)
Xe-138 (14,2 мин)	Cs-138 (32,2 мин)	Ba-138 (стабильный)	

Наличие ультрадисперсной фракции в воздухе рабочей зоны предприятия ЯТЦ характеризуется высокой диффузионной подвижностью. Конструкция стандартных средств определения размеров аэрозольных частиц (см. главу 2) может приводить к неверной оценке размеров частиц и искажать реальную картину распределения аэрозолей по размеру. Поэтому изучение вклада ультрадисперсных аэрозолей в отклик улавливающих элементов стандартных средств определения размеров аэрозольных частиц имеет важное значение и требует экспериментального подтверждения.

1.5 Задачи диссертационного исследования

Из анализа химических соединений газоаэрозольных смесей следует, что к данным соединениям относятся летучие соединения радиоактивных изотопов различных химических элементов, в первую очередь радиоактивного йода, который представляет наибольшую радиологическую опасность и чаще всего встречается на предприятиях ЯТЦ. Разработка простого и доступного метода определения химических соединений изотопов радиоактивного йода является исследовательской задачей, имеющей самостоятельное значение в области радиационной безопасности.

Используемые на практике методы определения размеров радиоактивных аэрозолей на рабочих местах при штатной эксплуатации предприятий ЯТЦ позволяли анализировать лишь аэрозоли средней и крупной дисперсности. Потенциальное наличие ультрадисперсных аэрозолей не рассматривалось даже теоретически. Контроль радиоактивных аэрозолей с наличием ультрадисперсной фракции существующими методами может привести к существенным неопределенностям в части интерпретации полученных данных и определении дозы.

Таким образом, цель данной работы заключается в повышение достоверности информации о физико-химических свойствах радиоактивных веществ путем использования простых, доступных и серийно выпускаемых пробоотборных устройств, которые позволят с минимальными трудозатратами получить сведения о газоаэрозольной смеси при эксплуатации ЯР:

- газовой фракции с применением новых подходов к интерпретации полученных данных;
- аэрозольной фракции с учетом высокодисперсных аэрозольных частиц в атмосфере.

Для достижения поставленной цели необходимо решить следующие задачи:

1. Разработка метода определения вклада различных форм радиоактивного йода в атмосфере в суммарную объемную активность этого радионуклида.
2. Выполнить оценку эффективной дозы на население, исходя из доли различных химических соединений радиоактивного йода в выбросах предприятий, эксплуатирующие разные ядерные реакторы.
3. Получить основные результаты с информацией о распределении активности дочерних продуктов распада техногенных инертных газов Xe-138 и Kr-88 по размерам аэрозольных частиц.
4. Выполнить оценку эффективной дозы за счет ингаляционного поступления ультрадисперсных аэрозольных частиц с активностью дочерних продуктов распада техногенных инертных газов Xe-138 и Kr-88.
5. Определить степень влияния диффузионного осаждения ультрадисперсных частиц на каскадный импактор и разработать метод устранения данного эффекта.

Глава 2. Существующие методы и аппаратура для определения распределения радиоактивных аэрозолей по размерам частиц и химических соединений изотопов йода в атмосфере

2.1 Устройства отбора газоаэрозольной смеси

Для анализа состава и параметров газоаэрозольной смеси используют различные улавливающие элементы. Распределение радиоактивных аэрозолей по размерам оценивают с помощью диффузионной батареи, каскадного импакторного устройства или аэрозольных фильтров. Тот или иной подход зависит от диапазона размера исследуемых частиц. Для анализа химических соединений радиоактивного йода используют сорбционно-фильтрующие материалы на основе активированного угля, пропитанные различными импрегантами.

2.1.1 Аналитические аэрозольные фильтры

Для оценки распределения радиоактивности по размерам аэрозольных частиц в России был разработан метод многослойных фильтров [76]. Данный подход позволяет определить дисперсный состав радиоактивных и неактивных аэрозолей различного генезиса [77, 78], в частности, на исследовательских ядерных реакторах и АЭС.

Метод определения дисперсности аэрозолей с помощью многослойного пакета аналитических фильтров основан на селективности улавливания частиц с помощью волокнистых фильтрующих материалов при таких скоростях пробоотбора, когда основным механизмом фильтрации является инерционное осаждение аэрозольных частиц на волокнах [6]. Сущность метода состоит в формировании пробы аэрозоля путем осаждения аэрозольных частиц из потока на нескольких последовательно соединенных фильтрах разной плотности (разделение частиц на фракции по аэродинамическим диаметрам), определении активности радионуклида (радионуклидов) на каждом фильтре (A_i) и обработке результатов измерений.

Для определения АМАД в диапазоне размеров частиц от 0,1 до 2 мкм достаточно использовать 3 фильтра, которые расположены по ходу воздушного потока в порядке возрастания их аэродинамического сопротивления, Δr [79, 80]. Последний фильтр должен улавливать все частицы, прошедшие через два первых слоя, чтобы определить количество задержанных 1-м и 2-м фильтрами частиц в долях от суммарной активности осажденной дисперсной фракции аэрозоля. Для достижения более низкого уровня неопределенности необходимо добиться наиболее равномерное распределение частиц по всем каскадам.

Типовые материалы пакета фильтров представлены в таблице 2.1. Измерение активности радионуклидов в пробе проводят обычным способом с использованием спектрометрической или радиометрической аппаратуры.

Таблица 2.1 – Типовые материалы пакета многослойных фильтров

Композиции пакета фильтров			
1 слой пакета	ФПП-70-0,1	ФПП-100-0,1	ФПС-70-0,08
2 слой пакета	ФПП-70-0,22	ФПП-15-0,75	ФПП-70-0,35
3 слой пакета	АФА-РСП-20	АФА-РСП-20	АФА-РСП-20
Диапазон измерения дисперсности АД от 0,1 до 2 мкм			
Линейная скорость 1,2–1,5 м/с			

Метод многослойных фильтров (ММФ) существенно упростил проведение комплексного мониторинга газоаэрозольных продуктов Чернобыльской аварии. Несомненными достоинствами метода являются: простота использования, низкое аэродинамическое сопротивление пакета фильтров по сравнению с импакторными устройствами и возможность эффективно осаждавать частицы тонкодисперсного диапазона (менее 1 мкм).

К недостаткам ММФ можно отнести то, что при высоких концентрациях аэрозольных частиц аэродинамическое сопротивление фильтра будет увеличиваться в процессе пробоотбора, что приведет к неконтролируемому изменению параметров фильтрации.

Отбор аэрозолей для мониторинга выполняется при линейных скоростях фильтрации 1,0-1,5 м/с. Закономерности высокоскоростного улавливания частиц имеют первостепенное значение для дисперсного анализа аэрозолей, так как именно они определяют распределение уловленного осадка по фильтрующим слоям, а следовательно, позволяют найти неизвестную функцию $f(r)$ для формулы 1.5.

Несмотря на простоту и доступность подготовки счетного образца, данный метод не получил широкого распространения из-за сложности интерпретации полученных данных.

2.1.2 Каскадные импакторные устройства

Импакторы состоят из последовательно расположенных каскадов (общее их число составляет обычно 5–7), на каждом из которых происходит осаждение аэрозольных частиц с определенным размером. В качестве препятствия каждого каскада используется плоская поверхность, а в заключительном каскаде устанавливается аналитический аэрозольный фильтр [68]. Принцип действия аэрозольного каскадного импактора изображен на рисунке 2.1. Типовой импактор представляет собой устройство, в корпусе которого последовательно расположены сопла с установленными напротив них плоскими поверхностями – коллекторными пластинами. Частицы, обладающие инерцией, сепарируются за счет соударения (импакции) с поверхностью коллекторной пластины. Уменьшающийся диаметр сопел по ходу потока аэрозоля, позволяет увеличивать линейную скорость струи, в результате чего на каждой следующей ступени повышается вероятность оседания более мелкие частицы [41].

Вероятность улавливания аэрозольных частиц в теории импакторов характеризуется важнейшим параметром – числом Стокса:

$$Stk = \frac{u \cdot \tau}{W}, \quad (2.1)$$

где W – радиус сопла отдельного каскада;

u – линейная скорость потока воздуха;

τ – коэффициент, характеризующий релаксацию аэрозольной частицы и зависящий от диаметра и плотности аэрозольной частицы, а также от плотности и вязкости среды.

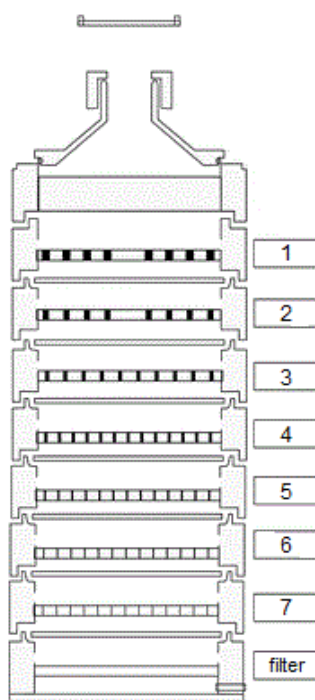


Рисунок 2.1 – Принцип действия каскадного аэрозольного импактора

Каждый каскад импактора представлен величиной эффективного каскадного аэродинамического диаметра разделения d_{50} (ECAD), определяющего диаметр частиц, оседающих на коллекторные пластины при определенной скорости с вероятностью 50%. Для импакторов с круглым соплом данная величина рассчитывается:

$$d_{50\%} = \sqrt{Stk} \cdot \sqrt{\frac{9\pi\mu a^3}{4C_c\rho_p Q}}, \quad (2.2)$$

где Stk – число Стокса;

μ – вязкость среды;

a – диаметр сопла;

Q – объемный расход воздуха;

ρ_p – плотность среды;

C_c – поправка Каннингема (коэффициент сопротивления Милликена).

Результатом оседания аэрозольных частиц на каждой коллекторной пластине импактора могут быть значения измеренной массы или активности. Используя полученную информацию, можно построить гистограммы и восстановить соответствующие кривые распределения аэрозольных частиц по размерам [69]. Анализ информации о распределении активности по каскадам импактора позволяет оценить размер частиц дисперсной фазы аэрозоля в виде логарифмически-нормального распределения с двумя основными параметрами: АМАД и СГО. АМАД – это числовое значение аэродинамического диаметра частиц дисперсной фазы радиоактивного аэрозоля, указывающее, что 50 % активности указанного аэрозоля приходится на частицы, имеющие аэродинамический диаметр меньше, чем АМАД, а остальное – частицы, имеющие аэродинамический диаметр больше, чем АМАД. СГО – мера разброса значений АМАД относительно среднего значения. Полученные значения позволяют оценить распределение осевших аэрозольных частиц в отделах респираторного тракта человека (и, соответственно, провести оценку распределения дозы внутреннего облучения по органам и тканям). Однако если распределение активности по размерам аэрозольных частиц не является логарифмически-нормальным или представлено несколькими модами, то для оценки распределения дозы по органам и тканям возникает необходимость применения устройства, которое позволяет моделировать фракционное осаждение аэрозолей в каждом из отделов респираторного тракта [70]. В противном случае оценка значений АМАД и СГО будет выполнена с большими погрешностями.

Описания различных типов импакторов и основы их расчета приведены в работах Н. А. Фукса [71] и В. А. Марпла [72]. Каскадные импакторы эффективны для исследований в размерном диапазоне от 1 до 10 мкм, но некоторые конструктивные доработки позволяют снизить минимальный размер до 0,4 мкм. В импакторах низкого давления возможен анализ размеров частиц в диапазоне 0,03–0,7 мкм [73, 74]. В современных персональных импакторах возможно измерение дисперсного состава аэрозолей в диапазоне от 0,5 до 20 мкм [75].

В данном исследовании использовались три различных каскадных импактора:

- импактор АИП-2, производства ООО «НПП «Доза», г. Зеленоград;
- импактор, разработанный в Южно-Уральском институте биофизики (ЮУрИБФ), г. Озерск;
- импактор, разработанный в Гриффитском университете, г. Брисбен, Австралия (аналог каскадного импактора Марк-3).

Внешний вид каскадных импакторов, применяемых в данной работе представлен на рисунке 2.2.



Рисунок – 2.2. Каскадные импакторные устройства

Импактор АИП-2 аттестован во ФГУП «ВНИИФТРИ» и внесен в Государственный реестр средств измерений. Основные параметры импакторов ЮУрИБФ и Марк-3 представлены производителем.

В таблице 2.2 представлены значения ЕСАД каскадных импакторов, используемых в данном исследовании при расходе воздуха 30 л/мин.

Таблица 2.2 – Эффективный каскадный аэродинамический диаметр $d_{50\%}$, мкм

№ каскада	АИП-2	Марк-3	ЮУрИБФ
1	23,3	26,4	9,9
2	8,3	12,2	6,5
3	5,0	4,6	3,1
4	1,6	2,4	1,8
5	0,8	1,4	0,9
6	–	0,8	0,3
7	–	0,4	–

2.1.3 Диффузионные батареи

Для улавливания аэрозолей с термодинамическим диаметров $< 0,1$ мкм, как правило используют диффузионные батареи. Эти устройства можно использовать для измерения размерного распределения ультрадисперсных аэрозольных частиц, так как диапазон их применения покрывает до трех порядков величины размеров – от десятых долей до нескольких сотен нанометров. В основе принципа, как следует из названия, лежат диффузионные свойства частиц, которые посредством броуновского движения сталкиваются с окружающими молекулами газа и связываются с любой поверхностью, с которой происходит столкновение. История использования диффузионной батареи в качестве устройства осаждения ультрадисперсных частиц насчитывает более 100 лет. Вся история развития диффузионной батареи подробно описана в работе [81].

Диффузионные батареи представляют собой некоторый набор улавливающих элементов, которые могут быть расположены последовательно или параллельно. Частицы различного диаметра, характеризующиеся различными коэффициентами диффузии, разделяются на каскадах (если батарея имеет последовательное расположение элементов) или каналах (при параллельном расположении) батареи [82]:

$$D = \frac{C_c kT}{3\pi\mu d}, \quad (2.3)$$

где C_c – поправка Каннингема (коэффициент сопротивления Милликена);

T – абсолютная температура;

k – постоянная Больцмана;

d – диаметр частиц;

μ – вязкость среды.

В результате диффузионного осаждения аэрозолей формируется некий сигнал, связанный с числом уловленных частиц на каждом элементе. Вид сигнала зависит от исследуемой характеристики частиц (геометрический размер, масса, объем, активность). Степень прохождения частиц оценивается с помощью такого параметра, как проникаемость [83]:

$$P_i = \frac{C_i}{C_0}, \quad (2.4)$$

где C_i – число частиц после i -того улавливающего элемента;

C_0 – общее число частиц в оцениваемой атмосфере.

Формирование функционалов, представленных на рисунке 2.3, позволяет восстанавливать искомое размерное распределение аэрозольных частиц.

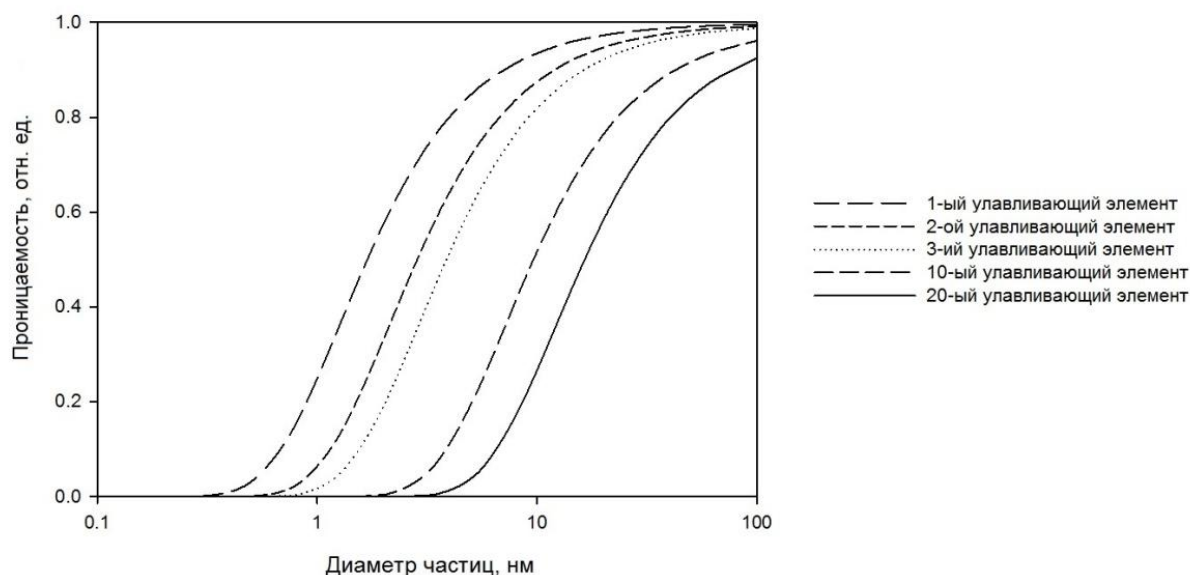


Рисунок 2.3 – Функции проникаемости улавливающих элементов диффузионной батареи с последовательным расположением

Существует несколько видов диффузионных батарей, которые можно характеризовать различным набором и расположением отбирающих элементов.

Интегральная параллельная конструкция. Диффузионная батарея такого типа представляет собой несколько каналов, в которых расположено разное количество улавливающих элементов. Пробоотбор осуществляется одновременно через все каналы с помощью одного или нескольких пробоотборных устройств. В конце каналов располагаются аэрозольные фильтры, на которых измеряется активность адсорбированных аэрозолей несколькими приборами одновременно (радиометрированием или спектрометрированием). Примерная конструкция представлена на рисунке 2.4. Интегральность конструкции заключается в том, что оценка производится на основании оседания частиц на фильтре после прохождения потоком воздуха совокупности сетчатых экранов. При этом сами сетки измерению не подвергаются, а проницаемость рассчитывается отдельно для каждого канала, для всей совокупности составляющих его элементов. Такие конструкции громоздки, требуют наличия нескольких приборов для измерения активности, использования расходомеров для контроля скорости потока в каждом канале. Все это приводит к повышению стоимости батареи и дополнительным неопределенностям [84–86].

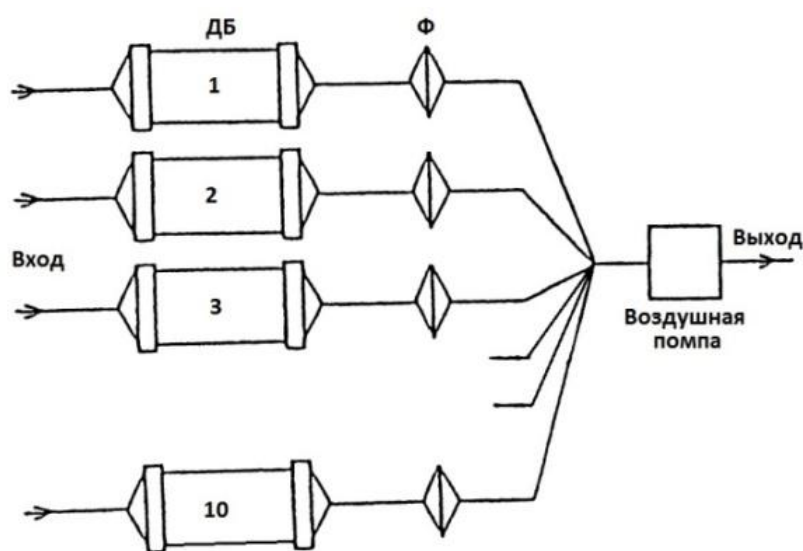


Рисунок 2.4 – Диффузионная батарея экранного типа с интегральной параллельной конструкцией

Интегральная последовательная конструкция. Диффузионная батарея такого типа состоит из одного канала и нескольких ступеней. В каждой ступени располагается различный набор улавливающих элементов, которые подвергаются контролю с помощью отдельного порта с подключенным детектором, определяющим концентрацию частиц. Первый порт оценивает концентрацию частиц в неизменной атмосфере. Финишный порт служит для оценки остаточной концентрации частиц в исследуемой пробе. Примером такой конструкции является батарея фирмы TSI, модель 3040/3041, часто используемая исследователями. Конструкция представлена на рисунке 2.5.

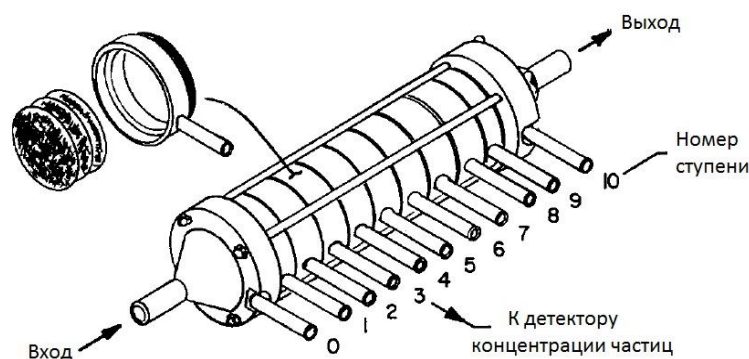


Рисунок 2.5 – Диффузионная батарея экранного типа фирмы TSI, модель 3040/3041, с интегральной последовательной конструкцией

Интегральность этой конструкции, как и предыдущей, состоит в оценке атмосферы после прохождения совокупности экранов, оседание на которых не оценивается. К недостаткам прибора можно отнести потери частиц при отборе через порт, предполагающий резкий изгиб профиля потока воздуха и оседание частиц в самом порте, являющимся, по сути, канальной диффузионной батареей [87–89].

Дифференциальная конструкция. Диффузионная батарея данного типа осуществляет оценку оседания аэрозолей на каждом из улавливающих элементов. При этом погрешность определения распределения частиц снижается по сравнению с интегральными конструкциями ввиду оперирования данными, зависящими друг от друга и отличающимися на меньшую величину, а разрешение распределения значительно повышается [49]. Другим преимуществом метода

является использование единственного канала и единственного пробоотборного устройства [90–93]. Пример такой конструкции представлен на рисунке 2.6.

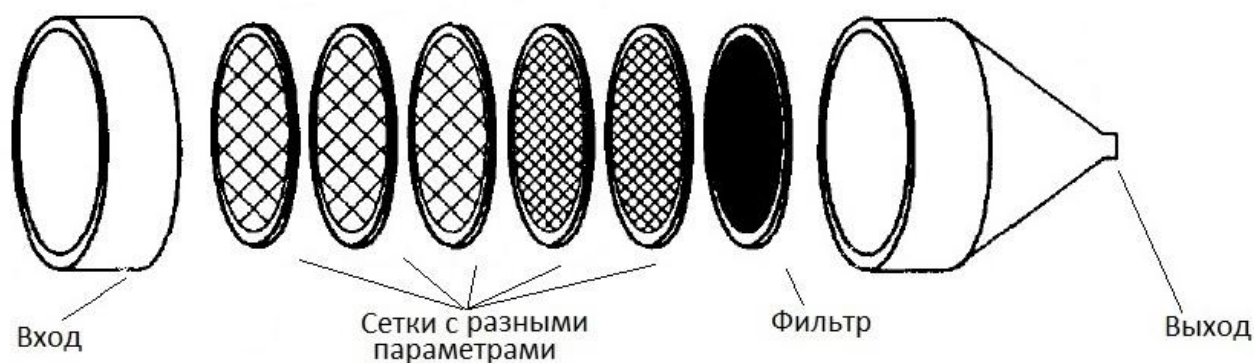


Рисунок 2.6 – Диффузионная батарея каскадного типа дифференциальной конструкции

Подобные диффузионные батареи исторически именуется Graded Screen Array (GSA) [81]. Данный термин описывает систему, состоящую из улавливающих элементов в виде проволочных сеток с фиксированными геометрическими параметрами, расположенными последовательно или параллельно. Основная цель такой системы – измерение количества оседающих на элементах частиц [94].

Для отбора воздушной пробы к выходу канала диффузионной батареи подключается побудитель воздуха, который обеспечивает равномерный поток без пульсаций. После отбора улавливающие элементы батареи подвергаются одновременному анализу. Дифференциальная конструкция диффузионной батареи более предпочтительна для изучения уловленных радиоактивных частиц, которые впоследствии удобно фиксировать методами радиометрии и спектрометрии [95].

Однако самым главным ограничением распространенного применения диффузионных батарей является сложность интерпретации данных. Как понятно из описания действия прибора, распределение полидисперсных аэрозольных частиц по размерам не может быть измерено напрямую и, следовательно, должно быть получено из ограниченного набора измерений.

В данном исследовании для получения информации о распределении радиоактивных аэрозольных частиц по размерам была использована одноканальная диффузионная батарея экранного типа с последовательным расположением съемных улавливающих элементов. Данная конструкция диффузионной батареи разработана в радиационной лаборатории Института промышленной экологии УрО РАН [100, 101]. Схематично прибор представлен на рисунке 2.7.

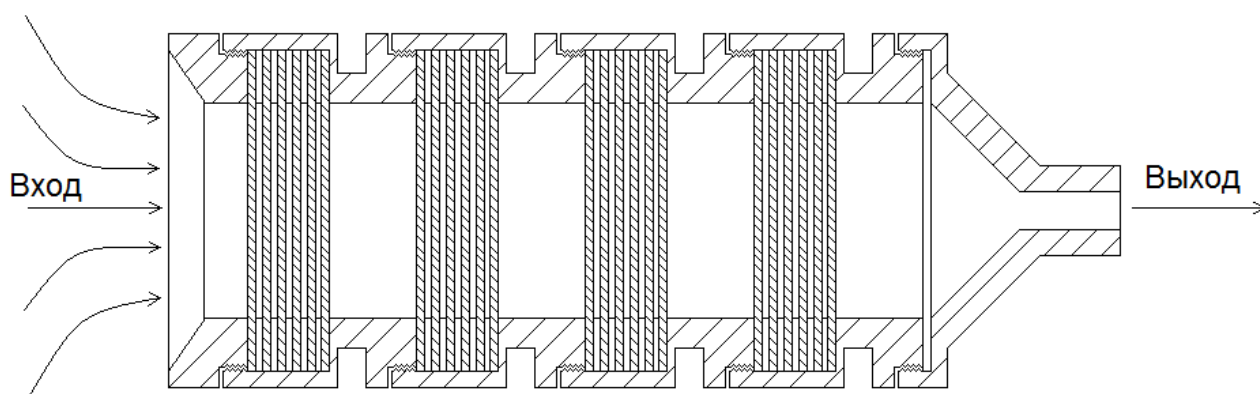


Рисунок 2.7 – Схема диффузионной батареи

Диффузионная батарея представляет собой горизонтальный канал, состоящий из пяти алюминиевых секций, соединенных резьбовым соединением между собой. В каждой секции устанавливается набор улавливающих элементов, состоящий из четырех одинаковых сетчатых экранов. Все улавливающие элементы разделяются между собой специальными резиновыми кольцами для герметизации зазоров.

Принцип действия батареи основан на осаждении радиоактивных аэрозолей на улавливающих элементах при помощи броуновского движения. Для этого в диффузионной батарее устанавливали набор из 20 одинаковых латунных сетчатых элементов, позволяющих определять размер аэрозольных частиц с активностным медианным термодинамическим диаметром в диапазоне 0,1–100 нм.

Улавливающими элементами, используемыми в этой работе, являются сетчатые экраны с диаметром рабочей поверхности 5 см. За сетками

устанавливается финишный фильтр для улавливания частиц, прошедших ступени диффузионной батареи. Внешний вид используемых сеток в увеличенном масштабе представлены на рисунке 2.8, а их параметры – в таблице 2.3.

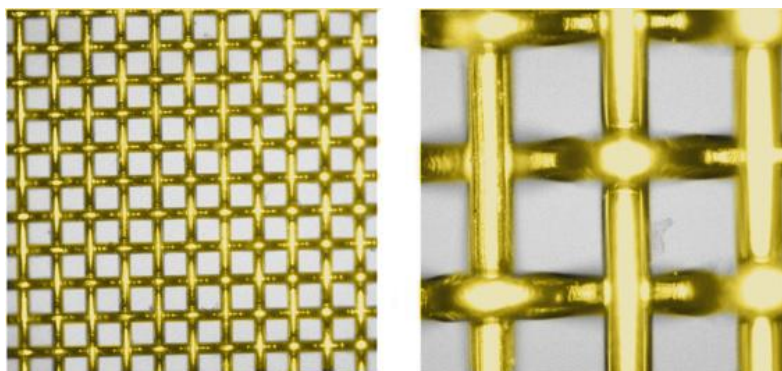


Рисунок 2.8 – Сетчатый экран (под микроскопом) из латуни, толщина проволоки 65 мкм, ширина раскрытия ячейки 100 мкм

Таблица 2.3 – Параметры используемых сетчатых экранов

Материал сетки	Плотность, г/см ³	Толщина проволоки, мкм	Ширина раскрытия ячейки, мкм	Толщина сетки, мкм	Значение d50 % набора из 20 сеток, нм
Латунь (Cu-Zn)	8,5	65	100	130	18,0

Для анализа значений объемной активности на улавливающих элементах диффузионной батареи рассчитывалась эффективность осаждения аэрозольных частиц, исходя из параметров сеток, представленных в таблице 2.3. Аддитивная эффективность улавливания одной сеткой аэрозольной частицы определенного диаметра:

$$\varepsilon(d) = \varepsilon_D(d) + \varepsilon_{IN}(d) + \varepsilon_{IM}(d) + \varepsilon_{ID}(d), \quad (2.5)$$

где 1-й компонент – эффективность улавливания за счет механизмов диффузии;

2-й компонент – эффективность улавливания за счет механизмов зацепления;

3-й компонент – эффективность улавливания за счет механизмов инерции;

4-й компонент – эффективность улавливания за счет сочетанного действия механизмов диффузии и зацепления;

d – диаметр частицы, м.

$$\varepsilon_D(d) = 2,7 \cdot Pe^{-2/3}, \quad (2.6)$$

$$\varepsilon_{IN}(d) = (2 \cdot \kappa)^{-1} \cdot f(R), \quad (2.7)$$

$$\varepsilon_{IM}(d) = (2 \cdot \kappa)^{-2} \cdot I \cdot St, \quad (2.8)$$

$$\varepsilon_{ID}(d) = 1,24 \cdot (\kappa \cdot Pe)^{-1/2} \cdot R^{2/3}, \quad (2.9)$$

где $Pe = \frac{d_f \cdot v_0}{D}$ – число Пекле, б/р;

$\kappa = -0,5 \cdot \ln\left(\frac{2\alpha}{d}\right) + \frac{2\alpha}{d} - 0,75 - \left(\frac{\alpha}{\pi}\right)^2$ – гидродинамический фактор, б/р;

$R = \frac{d}{d_f}$ – параметр захвата, б/р;

$I = (29,6 - 28 \cdot \alpha^{0,62}) \cdot R^2 - 2,75 \cdot R^{2,8}$ – индекс, характеризующий улавливающую способность сетчатого экрана, б/р;

$St = \frac{\rho_p \cdot d^2 \cdot v_0 \cdot C}{9 \cdot \mu \cdot d_f}$ – число Стокса, б/р;

d_f – диаметр проволоки, м;

D – коэффициент диффузии, см²/с;

v_0 – линейная скорость потока воздуха, м/с;

C – поправка Каннингема, учитывающая переход от вязкого течения к молекулярному, б/р;

μ – динамическая вязкость воздуха, $1,83 \cdot 10^{-2}$ г/м·с;

α – доля твердого объема;

ρ_p – плотность частиц, 1 г/см³.

С учетом рассчитанной эффективности определялась кумулятивная проницаемость для аэрозольной частицы определенного диаметра через весь набор улавливающих элементов диффузионной батареи:

$$CP(d, k) = \prod_{q=0}^k P(d, q) \quad (2.10)$$

где P – проницаемость одной сетки для аэрозольной частицы определенного диаметра;

CP – кумулятивная проницаемость всего набора улавливающих элементов;

k – номер каскада, с набором улавливающих элементов от первого (относительно входного потока воздуха) до элемента с порядковым номером, совпадающим с номером каскада улавливающего элемента;

q – номер улавливающего элемента в диффузионной батарее;

d – аэрозольная частица определенного диаметра.

Функция индивидуального удержания конкретного каскада диффузионной батареи для аэрозольной частицы определенного диаметра имеет вид:

$$IR(d, k) = CR(d, k) \cdot \prod_{q=0}^{k-1} (1 - CR(d, q)) \quad (2.11)$$

где CR – кумулятивное удержание: доля частиц, удержанных на k -ом каскаде (отношение числа частиц, осевших на каскаде, к исходному числу частиц) для аэрозольной частицы определенного диаметра через отдельный каскад;

d – размер частицы;

IR – индивидуальное удержание k -го каскада: отношение числа частиц, удержанных на k -ом каскаде, к исходному числу частиц.

Для анализа экспериментальных данных используют параметр, описывающий эффективность улавливания аэрозольных частиц для всего набора сетчатых экранов: аэрозольные частицы с диаметром более $d_{50} \%$ с вероятностью 50 % будут уловлены диффузионной батареей с данным набором сетчатых экранов. Для 20 латунных сетчатых экранов с характеристиками, представленными в таблице 2.2, диаметр $d_{50} \%$ получен расчетным путем и составляет 18 нм [83]. Данные расчетные значения были подтверждены с помощью генератора стабильного монодисперсного аэрозоля TSI 3480. В качестве аэрозольных частиц использовался хлорид натрия и диоктилфталат. Экспериментальные данные были получены при линейной скорости 0,25 см/с в диапазоне монодисперсного аэрозоля с размерами от 10 до 100 нм. Диаметр $d_{50} \%$ для набора из 20 латунных сеток с использованием аэрозоля хлорида натрия составлял 20 нм, а для диоктилфталата – 17 нм.

После определения функционала, характеризующего осаждение аэрозольных частиц через улавливающие элементы диффузионной батареи, задается рабочий диапазон диффузионной батареи в логарифмическом масштабе. Для визуализации распределения аэрозольных частиц по размерам задается число

интервалов для восстановления, которое должно быть равно количеству улавливающих элементов в диффузионной батарее.

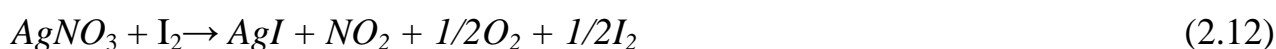
Интерпретация данных скорости счета с каждого улавливающего элемента диффузионной батареи выполняется при помощи инверсии измерений посредством итерационного и математического методов, представленных в работах [102, 103].

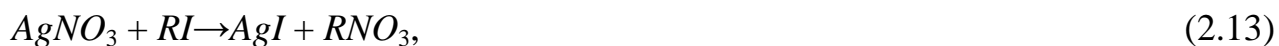
2.1.4 Сорбционно-фильтрующие материалы для оценки радиоактивного йода в атмосфере

Для определения химических соединений радиоактивного йода широко используют аналитические сорбционные фильтры из композиционного волокнистого полимерного материала, который содержит слои нановолокон и сорбент в виде активного угля ОУ-А, импрегнированного комплексом $AgNO_3$ /ТЭДА/ BaI_2 . Подобные материалы позволяют одновременно улавливать газовую смесь, компоненты которой различаются по скорости гетерогенной химической реакции: легкосорбируемые (I_2 , HI и др.) и трудносорбируемые (HIО, CH_3I и др.) соединения йода.

За счет пористой структуры и высокой удельной поверхности процесс улавливания легко- и трудносорбируемых фракций активированным углем может быть описан закономерностями обратимой молекулярной физической адсорбции, которая происходит за счет сил межмолекулярных взаимодействий – Ван-дер-Ваальсовых сил. Процесс протекает с выделением небольшого количества тепла в поверхностном слое между газообразным йодом и активным углем, в результате чего йод концентрируется на поверхности угля. Через некоторое время наступает сорбционное равновесие.

Помимо адсорбции молекул радиоактивного йода в порах активированного угля происходит хемосорбция за счет изотопного обмена с веществами-импрегнантами. В уравнениях 2.12 – 2.14 представлены химические реакции для радиоактивного йода:





В первом случае образуется AgI – нерастворимое, достаточно прочное соединение, термически стойкое до ~ 450–500 °С и R– алкил (бензил), а во втором случае образуются четвертичные соли аммония [16].

Активированные угли, импрегнированные растворами AgNO₃, ТЭДА, ГМТА различной концентрации, не только обеспечивают необратимость улавливания как легко- и трудносорбируемых соединений йода, но и повышают эффективность улавливания трудносорбируемых соединений в несколько раз. При этом улавливание йода происходит в лобовом слое активированного угля в отличие от неимпрегнированных комплексов [96].

Радиоактивный йод в составе газового потока проходит через слой активированного угля и формирует хроматографический фронт, который медленно движется по слою сорбента, при этом скорость фронта обратно пропорциональна значению коэффициента адсорбции.

Если изотоп йода имеет периода полураспада значительно короче времени прохождения фронта через сорбент, слой сорбента работает в радиохроматографическом режиме и может являться «вечной колонной» со снижением активности по экспоненциальному закону к выходу из сорбента [97, 98]. Для легкосорбируемых соединений йода показатель экспоненциального уменьшения активности равен 1,2, а для трудносорбируемых – 0,06–0,17 [99]. Режим «вечной колонны» для трудносорбируемых соединений йода не наблюдается из-за достаточно большого значения «проскока» через слой угля.

В экспериментальной части данной работы уловленные на АФА-СФМ компоненты йода анализируются с помощью методов радиометрии и спектрометрии. Аналитические сорбционные фильтры АФА-СФМ могут различаться содержанием сорбирующего компонента для улавливания радиоактивного йода с объемными удельными активностями от 10⁻¹ до 10⁶ Бк/м³.

Поскольку объемная активность радиоактивного йода в выбросах предприятий ЯТЦ очень мала и может быть представлена как аэрозольной, так и газовой фракциями, в данной работе использовали пакет, состоящий из одного аэрозольного фильтра и набора из семи сорбционно-фильтрующих материалов. Для улавливания твердых частиц в качестве аналитического аэрозольного фильтра использовался фильтр АФА-РМВ. В качестве сорбционно-фильтрующего материала использовались аналитические фильтры АФА-СФМ-10 на основе фильтровальной ткани из полипропиленовых и полистирольных волокон, активированного угля марки ОУ-А в количестве 10 г/м^2 и с добавлением импрегнантов ТЭДА и AgNO_3 с концентрацией 10 % от массы угля.

Основные характеристики используемых в этой работе аналитических сорбционно-фильтрующих элементов представлены в таблице 2.4.

Таблица 2.4 – Сорбционно-фильтрующие элементы, используемые для анализа объемной активности радиоактивного йода

Марка фильтра	Рабочая площадь фильтра, см^2	Количество сорбента, г/м^2	Перепад давления, Па (при линейной скорости 1 см/с)	Эффективность улавливания, %	Отношение к влаге	Термостойкость, $^{\circ}\text{C}$
АФА-РМВ	20	–	95 ± 5	аэрозоль 0,05 мкм при скорости 1 см/с – не менее 99,99 %, при скорости 16 см/с – не менее 99,9 %	гидрофобный	150
АФА-СФМ	20	10	не более 75	газообразный молекулярный йод не менее 99,9 %, метилйодид не менее 95 %.	гидрофильный	110

Отбор проб выполнялся при расходе воздуха в диапазоне от 20 до 30 л/мин. В каждом эксперименте записывалось время начала и окончания отбора пробы, температура и влажность исследуемой атмосферы.

2.2 Средства измерения параметров улавливающих элементов

Для измерения активности различных улавливающих элементов использовали радиометры альфа- и бета-излучения. Для анализа активности гамма-излучающих радионуклидов применялся полупроводниковый детектор коаксиального типа из особо чистого германия. Для определения нерадиационных параметров, таких как эффективность улавливания газообразных форм йода сорбционно-фильтрующим элементом, использовался ионно-дрейфовый детектор.

2.2.1 Ионно-дрейфовый детектор КЕРБЕР-Т

Блок-схема лабораторной установки для определения эффективности улавливания йода представлена на рисунке 2.9. Она состоит из блока подачи реакционной смеси (молекулярный йод или метилйодид) (1), фильтродержателя (2) и ионно-дрейфового детектора КЕРБЕР-Т.

Блок подачи реакционной смеси представляет собой шприцевый дозатор, который обеспечивает стабильную подачу паров молекулярного йода или метилйодида необходимой концентрации через фильтродержатель.



Рисунок 2.9 – Блок схема лабораторной установки определения эффективности улавливания йода

Ионно-дрейфовый детектор (ИДД) КЕРБЕР-Т предназначен для обнаружения малых количеств малолетучих и летучих органических веществ, в том числе токсичных, химически опасных, взрывчатых и наркотических веществ в воздухе контролируемых объектов, на поверхности предметов, на кожных покровах и одежде людей. Принцип работы детектора основан на методе спектрометрии ионной подвижности в дрейфовой камере при постоянном электрическом поле.

При поиске необходимых веществ детектор непрерывно забирает воздух из исследуемого объекта со скоростью 5 - 10 см³/с. Отобранный воздух с молекулами исследуемого вещества попадает в источник ионизации на основе импульсного коронного разряда, в котором молекулы вещества ионизируются. Схема работы представлена на рисунке 2.10.

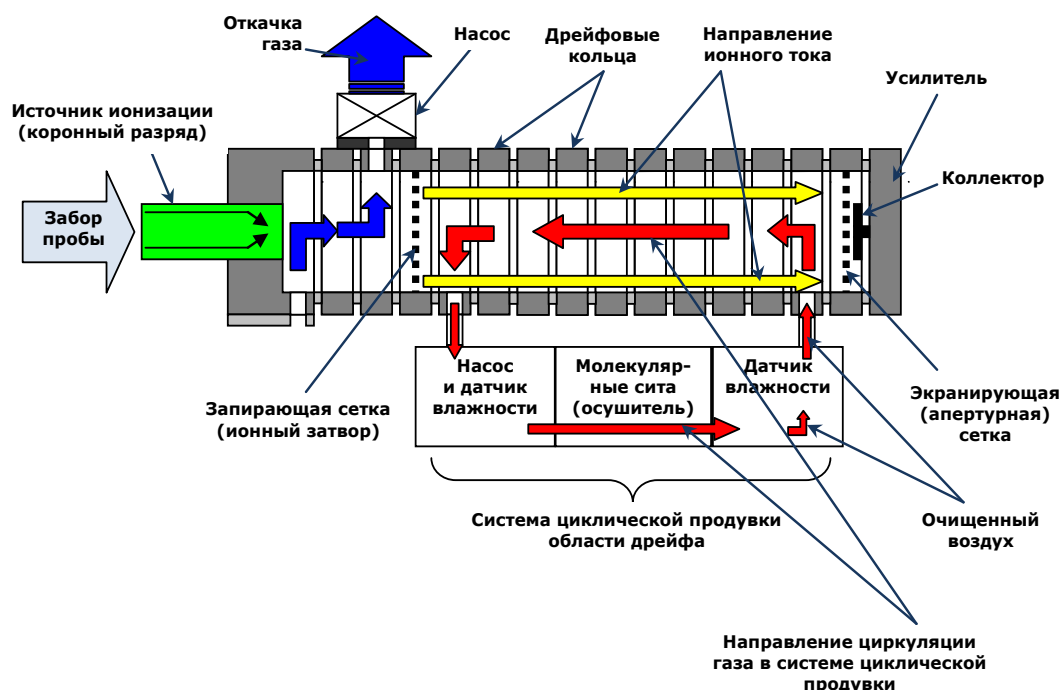


Рисунок 2.10 – Схема работы ионно-дрейфового детектора КЕРБЕР-Т

Процесс ионизации молекул исследуемого вещества происходит в несколько этапов. В разрядной камере образуются положительно и отрицательно

заряженные ионы из окружающего воздуха (реактант-ионы), концентрация которых существенно превышает концентрацию детектируемых веществ. При попадании в прибор молекул исследуемого вещества реактант-ионы передают им заряд по механизму химической ионизации в условиях атмосферного давления.

Молекулы исследуемого вещества и воздуха, которые не подверглись ионизации удаляются из системы, а полученные ионы удерживаются в камере с помощью ионного затвора. Управляя ионным затвором ионы детектируемого вещества попадают в камеру дрейфа с градиентом электрического поля E (В/см).

Ионизированные молекулы разных веществ имеют разную скорость движения в дрейфовой камере v_d в зависимости от их заряда, массы и размера. Ионы с небольшой массой приходят раньше, ионы с большой массой двигаются медленнее и прибывают к коллектору позже. Молекулярные ионы разных соединений отличаются временем прибытия к коллектору, что позволяет определить их природу.

Это время пропорционально длине дрейфовой камеры L (см) и обратно пропорционально градиенту электрического поля E :

$$\tau_d = \frac{1}{K} \cdot \frac{L}{E}, \quad (2.15)$$

где K – коэффициент подвижности, имеющий размерность $\text{см}^2\text{В}^{-1}\text{с}^{-1}$.

Это соотношение носит статистический характер, т. е. верно только для скопления ионов, но не для индивидуальных ионов.

Ионная подвижность зависит от температуры и давления. Для того чтобы можно было сравнивать значения ионной подвижности, полученные в разных условиях, значения K приводят к нормальным условиям:

$$K_0 = K \frac{P}{760} \cdot \frac{273}{T}, \quad (2.16)$$

где T – температура (Кельвин);

P – давление (мм рт. ст.) в газовой атмосфере, в которой движутся ионы;

K_0 приведенной подвижностью (или приведенный коэффициент подвижности).

Разделенные ионы попадают на коллектор ионного тока, сигналы с которого поступают на специальную систему усиления и обработки.

Рабочая частота ионного источника – 10 Гц, т. е. каждую секунду система генерирует 10 пачек ионов. Результаты непрерывно усредняются. При этом устраняются статистические выбросы, связанные со случайными флуктуациями состава газового потока и электрическими шумами. Результаты усреднения дополнительно сглаживаются и могут быть представлены в виде «спектра» ионной подвижности (ионограммы). Пример ионограммы приведен на рисунке 2.11. На этой кривой зависимости ионного тока от времени дрейфа имеются пики, соответствующие ионам с разной подвижностью.

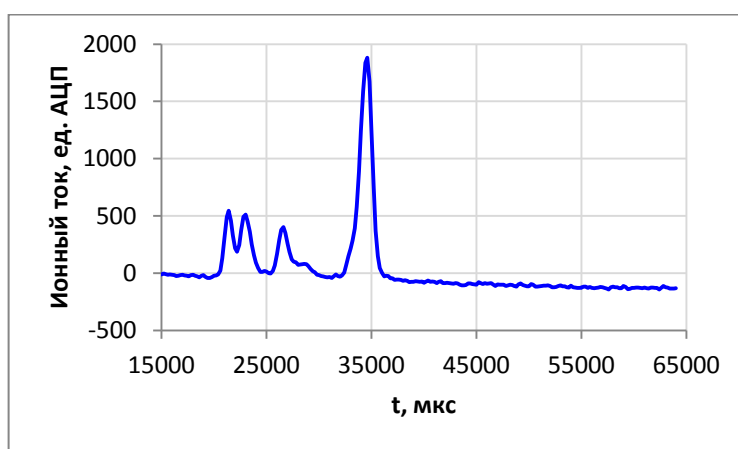


Рисунок 2.11 – Ионограмма контрольного вещества

В специальном программном обеспечении детектора проводят спектрометрический анализ на предмет наличия пиков с помощью математического ожидания и дисперсии времени дрейфа соответствующих детектируемых веществ, представленные в базе данных. Если детектируемое органическое соединение обнаружено и его пик превышает установленный порог срабатывания, то детектор подает соответствующие сигналы.

В процессе детектирования паров исследуемых веществ (в данном случае молекулярный стабильный йод и метилйодид) входной канал, по которому подаётся исследуемая проба в детектор, связан непосредственно с воздухозаборным отверстием прибора. При таком подходе анализируемая проба представляет собой паровоздушную смесь с содержащимися в ней примесями определяемых веществ.

В ходе экспериментальных работ было установлено, что минимальная стабильно обнаруживаемая концентрация метилйодида составляет 60 нг/см^3 , или $0,4 \cdot 10^{-6}$ моль/л, а стабильного молекулярного йода – $1,5 \text{ нг/см}^3$, или $3,2 \cdot 10^{-9}$ моль/л. Эффективность улавливания газообразного молекулярного йода и метилйодида сорбционными фильтрами рассчитывается как отношение концентрации определяемого вещества после фильтра к концентрации определяемого вещества до фильтра. Пример обнаружения стабильного молекулярного йода представлен на рисунке 2.12.



Рисунок 2.12 – Пример спектра стабильного молекулярного йода

А – до фильтра, Б – после фильтра

2.2.2 Гамма-спектрометрическая установка Canberra

Анализ улавливающих элементов в виде аналитических и сорбционно-фильтрующих материалов выполнялся с помощью гамма-спектрометра Canberra в радиационной лаборатории АО «Институт реакторных материалов». Спектрометр эксплуатируется в составе блока детектирования на основе ППД из особо чистого германия.

Фактические значения основных технических характеристик блока детектирования приведены в таблице 2.5, номинальные характеристики всей установки представлены в таблице 2.6.

Таблица 2.5 – Фактические значения основных технических характеристик блока детектирования

№ п/п	Наименование параметра	Фактическое значение
1.	Энергетическое разрешение для энергий, эВ	
	122 кэВ	890
	1332 кэВ	1820
2.	Относительная эффективность регистрации для энергии 1,33 МэВ к NaI(Tl), %	41
	Отношение пик/комpton	66
	Параметры пика: Отношение 0,1/0,5	1,8
	Отношение 0,02/0,5	2,5

Спектрометр Canberra применялся для оценки эффективности регистрации фильтра и сетки, а также для оценки количественного и качественного состава дочерних продуктов распада инертных газов и изотопов йода.

Таблица 2.6 – Номинальные значения основных технических характеристик спектрометрической установки Canberra

№ п/п	Наименование характеристики	Номинальное значение величины
1.	Предел обнаружения для УА радионуклида ^{137}Cs для времени измерения 1 ч, Бк/кг, не более	0,2
2.	Абсолютная чувствительность к потоку γ -квантов с $E = 661$ кэВ, (имп/с)/(квант/с), не менее	$4 \cdot 10^{-3}$
3.	Предел допускаемой основной погрешности измерения УА радионуклида ^{137}Cs для времени измерения 3 ч, %, не более	5
4.	Диапазон энергий регистрируемых квантов, МэВ	0,05–2,8
5.	Энергетическое разрешение для энергии 1,33 МэВ, кэВ, не более	1,9
6.	Относительная эффективность регистрации для энергии 1,33 МэВ, %, не менее	40

2.2.3 Бета-радиометр КРК-1

Стационарный радиометр комбинированный КРК-1 радиационной лаборатории АО «Институт реакторных материалов» предназначен для измерения интенсивности бета-частиц счетных образцов. Внешний вид радиометра представлен на рисунке 2.13.



Рисунок 2.13 – Внешний вид радиометра КРК-1

В состав радиометра КРК-1 входят:

- устройство счетное цифровое УСЦ-01;
- блок детектирования БДИБ-01;
- комплект ЗИП одиночный с образцовым радиоактивным источником.

Основные технические характеристики КРК-1 представлены в таблице 2.7.

Таблица 2.7 – Основные технические характеристики КРК-1

№ п/п	Наименование характеристики	Номинальное значение величины
1.	Диапазон скоростей счета при проведении бета-измерений, имп/с	2–10 ³
2.	Допустимый гамма-фон при проведении бета-измерений в первой отсчетной точке, мкЗв/ч	1
3.	Основная погрешность измерения в нормальных условиях и времени измерения не более 1 000 с, %	±25
4.	Диапазон энергий регистрируемых бета-частиц, МэВ	0,1–3
5.	Уровень собственного фона радиометра не более, имп/с	2

Принцип действия прибора КРК-1 основан на подсчете частоты следования электрических импульсов, возникающих в блоке детектирования в результате воздействия ионизирующих излучений на счетчики Гейгера-Мюллера, используемые в качестве детекторов. Частота следования импульсов напряжения пропорциональна количеству бета-частиц, выходящих из предварительно отобранной пробы контролируемого воздуха помещений. Электрические

импульсы напряжения, частота следования которых пропорциональна величине «бета + гамма», регистрируемого основным счетчиком, и гамма-излучения, регистрируемого компенсационным счетчиком, по двум отдельным каналам поступают по кабелю в счетное цифровое устройство УСЦ-01, где производится вычитание данных сигналов и выделение частоты следования импульсов напряжения, пропорциональных величине бета-излучения. Выделенный сигнал обрабатывается и отображается на счетном световом табло в виде количества импульсов, зарегистрированных за время обсчета. Данный прибор использовался для экспрессного определения скорости счета короткоживущих дочерних продуктов распада инертных газов с улавливающих элементов.

2.2.4 Альфа-радиометр БДПА-01

Блок детектирования БДПА-01 основан на одном из методов дозиметрии с применением сцинтилляционного детектора $ZnS(Ag)$ диаметром 60 мм и фотоэлектронного умножителя. Для повышения стабильности измерений в блоке детектирования БДПА-01 применена система светодиодной стабилизации измерительного тракта, которая одновременно обеспечивает проверку работоспособности всего тракта. Конструктивно блок выполнен в виде двух цилиндрических корпусов. В одном из корпусов расположены детектор и узел фотоэлектронного умножителя. В другом корпусе расположены электронные блоки. На торцевой поверхности корпуса расположен соединитель для подключения кабеля. Чувствительная часть блока детектирования закрывается защитной крышкой. Внешний вид блока детектирования БДПА-01 представлен на рисунке 2.14.



Рисунок 2.14 – Блок детектирования альфа-частиц БДПА-01

Диапазоны измерения и пределы допускаемой основной относительной погрешности представлены в таблице 2.8. Указаны пределы допускаемой дополнительной погрешности измерения БДПА-01, плотности потока альфа-излучения и поверхностной активности Pu-239 при воздействии сопутствующего гамма-излучения с мощностью дозы $10 \text{ мЗв/ч} \pm 5 \%$.

Таблица 2.8 – Диапазоны измерения и пределы допускаемой основной относительной погрешности для блока детектирования БДПА-01

Плотность потока альфа-частиц Pu-239, $\text{мин}^{-1} \cdot \text{см}^{-2}$	Флюенс альфа-частиц Pu-239, см^{-2}	Число распадов Pu-239, см^{-2}	Поверхностная активность Pu-239, $\text{Бк} \cdot \text{см}^{-2}$	Пределы допускаемой основной относительной погрешности измерения, %
0,1– 10^5	1– $3 \cdot 10^6$	1– $3 \cdot 10^6$	$3,4 \cdot 10^{-3}$ – $3,4 \cdot 10^3$	± 20

Блок детектирования БДПА-01 посредством адаптера USB-БД подключается к персональному компьютеру. Для работы с блоком детектирования используется программа ATech. Программа позволяет оценивать плотность потока, флюенс альфа-частиц и скорость счета со статистической погрешностью и их пороги. Для работы в условиях поставленной задачи используются данные по скорости счета частиц, испускаемых с измеряемого объекта (фильтра или сетки). Работа программы осуществляется в радиометрическом режиме.

Глава 3. Предлагаемый метод определения вклада в суммарную объемную активность различных химических соединений йода, присутствующего в изучаемой атмосфере

3.1. Общее описание метода

Современные газоочистные системы на предприятиях ЯТЦ обеспечивают стабильно малое поступление радиоактивного йода в атмосферу, что позволяет не превысить дозовую квоту облучения населения на границе санитарно-защитной зоны объекта использования атомной энергии. Однако нормативные документы регулирующих органов требуют выполнять мероприятия по оценке физико-химических форм радиоактивных веществ [104]. С точки зрения дозообразования изотопы радиоактивного йода наиболее интересный объект исследования.

Для определения различных соединений и форм радиоактивных изотопов йода в атмосфере предложен подход раздельного улавливания аэрозолей и газообразных соединений йода в пакете, состоящем из аэрозольного (АФА-РМВ), и семи угольных фильтров с одинаковым количеством сорбирующего материала (АФА-СФМ-10). Равное количество сорбента в угольных фильтрах избавляет от необходимости нормировать активность изотопов йода в фильтре к количеству сорбента.

При отборе воздушных проб фильтры размещались следующим образом: первым по направлению потока устанавливали аэрозольный фильтр типа АФА-РМВ, затем семь пронумерованных угольных фильтров. Фильтр АФА-РМВ не улавливает газообразные соединения йода, но улавливает аэрозольную фракцию с высокой эффективностью (см. таблицу 2.4). Набор сорбционных фильтров АФА-СФМ-10 позволяет максимально уловить легкосорбируемую (молекулярную) фракцию йода на первом фильтре, определить активность трудносорбируемой фракции на семи фильтрах. Для обработки измерений активность изотопов йода на каждом фильтре должна быть пересчитана к окончанию отбора пробы с учетом распада.

Распределение активности в последовательности угольных фильтров соответствует распределению фракций газообразных соединений йода, обладающих разной скоростью гетерогенной химической реакции.

3.2. Экспериментальные исследования по определению состава сорбционно-фильтрующих материалов и времени экспозиции

Экспериментальные исследования по определению оптимального состава сорбционно-фильтрующих материалов для улавливания радиоактивного йода и необходимого времени экспозиции были выполнены на исследовательском реакторе ИВВ-2М предприятия АО «Институт реакторных материалов», поскольку в атмосфере пространства под реакторной плитой всегда присутствует радиоактивный йод [105]. В ходе экспериментов варьировались следующие параметры:

- количество фильтров в наборе (от 3 до 8 фильтров в одном наборе);
- время отбора пробы;
- количество сорбирующего материала в фильтрах набора.

Серия экспериментальных работ по определению необходимого времени отбора проб наборами фильтров, представленных на рисунке 3.3, с различным содержанием сорбирующего вещества показала следующее:

– при продолжительности отбора в течение 1 ч на набор из 5 фильтров с содержанием сорбирующего вещества 10, 20, 30 и 40 г/м² радиоактивные изотопы йода достоверно определяются только в первом слое угольных фильтров. Аэрозольный фильтр содержал изотопы йода ниже минимальной детектируемой активности;

– при продолжительности отбора в течение 2 ч на набор из 5 фильтров с содержанием сорбирующего вещества 10, 20, 30 и 40 г/м² в первом слое достоверно определяются изотопы йода-131. Аэрозольный фильтр содержал изотопы йода ниже минимальной детектируемой активности;

– при продолжительности отбора в течение 3 ч на набор из 5 фильтров с сорбирующим веществом, содержащим AgNO_3 , достоверно определялись на первом фильтре изотопы йода – йод-131, йод-132, йод-133, йод-135. На втором фильтре достоверно определялись изотопы йода – йод-132, йод-133. Аэрозольный фильтр содержал изотопы йода – йод-131 и йод-133. При такой же продолжительности отбора (3 ч) на набор из 5 фильтров с сорбирующим веществом, содержащим ТЭДА, изотопы йода (йод-131, йод-132, йод-133, йод-135) определялись только на первом фильтре;

– достоверно определить изотопы йода на первом и втором фильтрах набора, содержащих сорбирующее вещество с ТЭДА, удается только при продолжительности отбора проб воздуха не менее 4,5 ч.

Выполняя отбор проб продолжительностью более 5 ч, можно добиться распределения активности изотопов йода по трем и более слоям в наборе фильтров. Но с учетом неизбежных больших затрат времени на спектрометрическое определение активности изотопов йода на каждом слое в наборе фильтров целесообразно проводить отбор пробы в течение суток, поскольку это ненамного увеличивает общее время анализа, но гарантирует высокую достоверность определения активности изотопов йода на каждом фильтре. Экспериментальные данные, полученные в ходе этих экспериментов и подтверждающие возможность достоверного определения распределения активности изотопов йода по всем слоям набора фильтров при длительности отбора 24 ч, представлены в таблице 3.1.

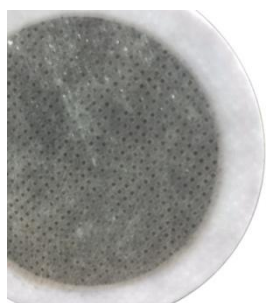
Таблица 3.1 – Определение оптимального времени экспозиции для анализа химических соединений радиоактивного йода

Время экспозиции	1-й слой	2-й слой	3-й слой	4-й слой	5-й слой	6-й слой	7-й слой
1 ч	I-131	МДА	МДА	МДА	МДА	–	–
2 ч	I-131 I-133	МДА	МДА	МДА	МДА	–	–

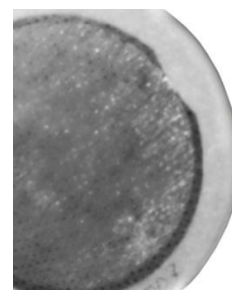
3 ч	I-131 I-132 I-133 I-135	I-131 I-132 I-133	I-131 I-133	I-133	МДА	–	–
5 ч	I-131 I-132 I-133 I-135	I-131 I-132 I-133 I-135	I-131 I-132 I-133 I-135	I-131 I-132 I-133	I-131 I-133	I-131 I-133	I-131
более 5 ч	I-131 I-132 I-133 I-135	I-131 I-132 I-133 I-135	I-131 I-132 I-133 I-135	I-131 I-132 I-133	I-131 I-133	I-131 I-133	I-131 I-133

Чтобы получить информацию о химических соединениях радиоактивного йода, необходимо подобрать такое количество сорбента, которое позволяет улавливать радиоактивный йод одновременно несколькими слоями. Для этого был выполнен ряд экспериментов с использованием набора АФА-СФМ с минимальным количеством сорбента – 10 г/м^2 .

Именно такое минимальное количество сорбента позволяет изготовить равномерный сорбционный слой и нанести его на подложку. Уменьшение количества сорбента приводит к неоднородной структуре сорбционного слоя, что негативно сказывается на коэффициенте улавливания радиоактивного йода. На рисунке 3.1 представлены фото АФА-СФМ с различным количеством сорбента.



10 г/м^2



5 г/м^2

Рисунок 3.1 – Особенности распределения наполнителя внутри фильтра при разном количестве сорбента

Для определения наиболее эффективного импрегнанта для хемосорбции йода была выполнена серия экспериментов. Эффективность хемосорбции трех видов импрегнантов, экспериментально определялась по зависимости логарифма проскока от количества сорбента. В качестве сорбента применялся уголь ОУ-А, импрегнированный 8 % масс. растворами AgNO_3 , ТЭДА и BaI_2 . Скорость потока воздуха составляла 25 см/с, относительная влажность воздуха 62 %, объемная активность I-131 не превышала 10^3 Бк/м³ [105]. Результаты экспериментов представлены на рисунке 3.2.

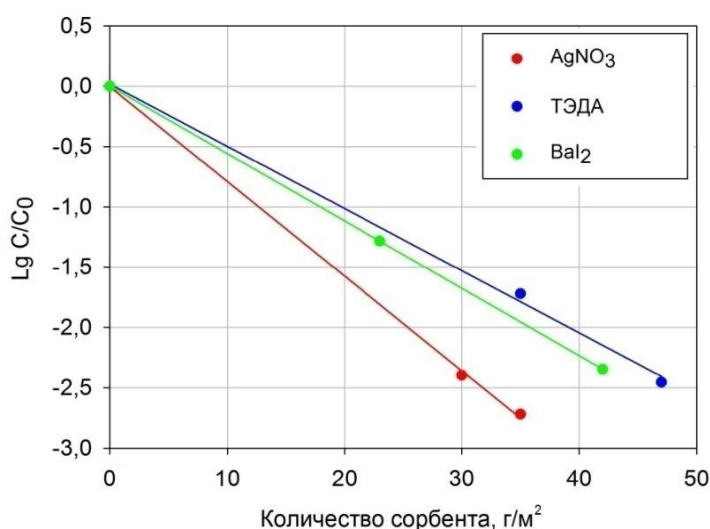


Рисунок 3.2 – Зависимости логарифма коэффициента проскока от количества сорбента, импрегнированного AgNO_3 , ТЭДА и BaI_2

Зависимости логарифма коэффициента проскока от количества сорбента могут быть выражены линейными уравнениями вида (3.1) – (3.3):

$$\text{для } \text{AgNO}_3: y = -0,0785x - 0,0053, \quad (3.1)$$

$$\text{для ТЭДА: } y = -0,0516x + 0,017, \quad (3.2)$$

$$\text{для } \text{BaI}_2: y = -0,0559x + 0,0003. \quad (3.3)$$

Коэффициент пропорциональности в уравнениях (3.1) – (3.3) составляет: 2,0, 1,1 и 1,2 (мг/см²)⁻¹ для AgNO_3 , ТЭДА и BaI_2 соответственно. Видно, что импрегнирование нитратом серебра дает лучший результат, а ТЭДА и BaI_2 по свойствам хемосорбции не сильно отличаются друг от друга. Результаты эксперимента показали, что процесс сорбции для материала, импрегнированного AgNO_3 , протекает наиболее эффективно.

Таким образом, была подтверждена высокая эффективность улавливания молекулярного радиоактивного йода углем, импрегнированным AgNO_3 . К основному недостатку использования активированного угля, импрегнированного комплексом AgNO_3 , является снижение эффективности при высокой относительной влажности воздуха вследствие высокой гидрофильности угля и AgNO_3 .

В результате всех этих экспериментов были установлены следующие закономерности для использования набора сорбционно-фильтрующих материалов:

- целесообразно использовать не менее 7 слоев (фильтров) с сорбирующим материалом для корректного определения трудносорбируемых соединений йода;
- наиболее подходящее количество сорбента для сорбционно-фильтрующего материала составляет $\sim 10 \text{ г/м}^2$;
- для корректной оценки вклада различных форм радиоактивного йода отбор пробы воздуха на фильтры должен продолжаться не менее 24 ч;
- целесообразно использовать AgNO_3 в качестве импрегнанта для более эффективной сорбции радиоактивного йода.

3.3 Оптимизация структуры сорбционного набора фильтров на основании экспериментальных данных

Для оценки эффективности улавливания йода в лаборатории электроформования Московского технологического университета были выполнены измерения стабильного молекулярного йода (I_2) и метилйодида (CH_3I) до и после сорбционного фильтра методом спектрометрии ионной подвижности. Эффективность улавливания газообразного молекулярного йода и метилйодида для фильтра АФА-СФМ-10 на основе сорбента в виде активного угля ОУ-А, импрегнированного AgNO_3 , составляет:

- для соединений легкосорбируемых $\sim 98 \pm 2 \%$;

– для соединений трудносорбируемых $\sim 60 \pm 5 \%$.

Разделение аэрозольных и газообразных компонент радиоактивного йода в пакете осуществляется с помощью аэрозольного фильтра (АФА-РМВ) и семи сорбционных фильтров с одинаковым количеством сорбента (АФА-СФМ-10).

Расположение и назначение каждого сорбционного слоя пакета представлены на рисунке 3.3.

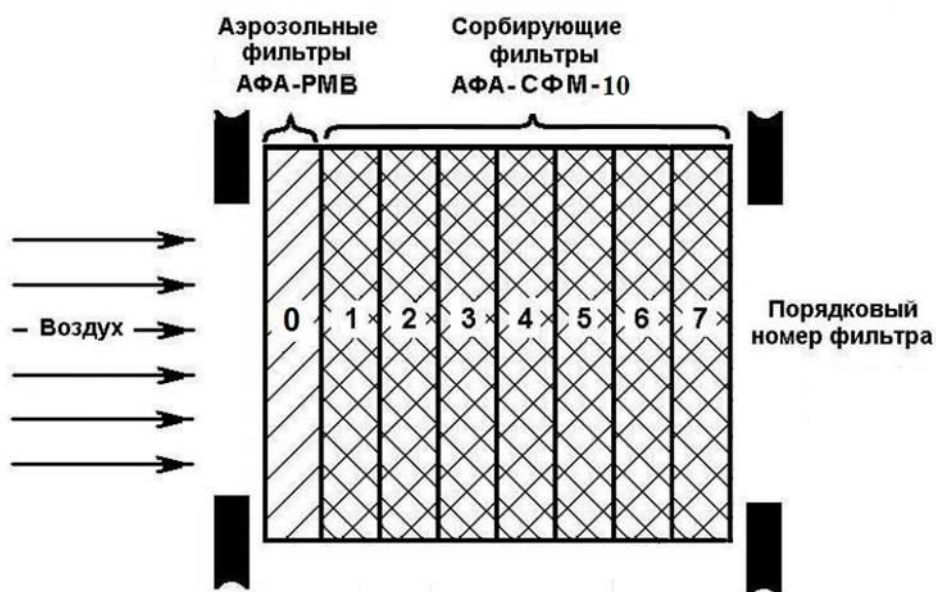


Рисунок 3.3 – Внешний вид аналитических сорбционных материалов АФА-СФМ для улавливания радиоактивного йода

Фильтр 0 улавливает полностью аэрозольную фракцию и не допускает попадания аэрозолей на фильтры набора АФА-СФМ-10; фильтр 1 улавливает полностью легкосорбируемую фракцию йода и частично трудносорбируемую фракцию йода; фильтры 2–7 частично улавливают трудносорбируемую фракцию йода. Поверхностная плотность сорбента одного фильтра в количестве 10 г/м^2 дает возможность получить распределение активности по слоям в условиях современных концентраций I-131 в выбросах предприятий ЯТЦ.

Такое количество фильтров позволяет с необходимой точностью построить модельную кривую распределения активности по набору сорбционно-фильтрующих элементов и выполнить анализ в течение одной рабочей смены оператора-спектрометриста.

3.4 Результаты измерений

При отборе воздушных проб фильтрующие элементы располагаются следующим образом: первым по направлению потока устанавливается аэрозольный фильтр типа АФА-РМВ, затем семь пронумерованных сорбционных угольных фильтров. Фильтр АФА-РМВ не улавливает газообразный йод, но улавливает аэрозольную компоненту с эффективностью около 99,95 % [80]. Многослойный набор сорбционных фильтров АФА-СФМ-10 позволяет максимально уловить легкосорбируемые соединения йода на первом фильтре и определить активность трудносорбируемых соединений на последующих фильтрах. Обработка результатов измерений активности изотопов йода выполняется с поправками на радиоактивный распад в процессе отбора пробы на каждом фильтре с использованием формул 3.1 и 3.2 соответственно:

$$A = \frac{A_V \cdot v}{\lambda} \cdot (1 - e^{-\lambda \cdot t_1}), \quad (3.4)$$

где A – активность изотопа йода, с поправкой на радиоактивный распад к моменту окончания отбора пробы, Бк;

λ – постоянная распада изотопа йода, с^{-1} ;

v – объемный расход воздуха, прокачиваемый через фильтр, $\text{м}^3/\text{с}$;

t_1 – время экспонирования фильтра, с;

A_V – объемная активность изотопа йода, $\text{Бк}/\text{м}^3$.

$$A_V = \frac{I}{\varepsilon \cdot \eta \cdot V} \cdot e^{-\lambda \cdot t}, \quad (3.5)$$

где I – скорость счета в пике полного поглощения для энергетической линии с максимальным квантовым выходом, $\text{имп}/\text{с}$;

V – объем прокаченного воздуха, м^3 ;

λ – постоянная распада изотопа йода, с^{-1} ;

t – временной интервал между окончанием экспонирования фильтра и началом его измерения, с;

ε – эффективность регистрации ППД для энергии, имеющей наибольший квантовый выход, б/р;

η – квантовый выход энергетической линии, используемой для расчета активности, б/р.

Распределение активности на различных слоях угольных фильтров соответствует распределению фракций газообразных соединений йода, обладающих разной скоростью гетерогенной химической реакции. Для подобной ситуации справедливо предположение о том, что молекулы газовой фазы радиоактивного йода в атмосфере и на сорбционном слое подчиняются распределению Больцмана [106]:

$$n_a = n_g \cdot e^{\left(\frac{E_0 - E_x}{k \cdot T}\right)}, \quad (3.6)$$

где n_a – число молекул в 1 см^3 на адсорбционном слое;

n_g – число молекул в 1 см^3 в газовой фазе;

E_0 – энергия молекул в газовой фазе, Дж;

E_x – энергия молекул в адсорбционном слое, Дж;

T – температура газовой фазы, К;

k – постоянная Больцмана, Дж/К.

Используемый молекулярно-статистический подход к описанию модели адсорбции более предпочтителен по сравнению с термодинамическим, фигурирующим в методе Гиббса [107]. Применение последнего вызывает определенные трудности, поскольку подразумевает использование модели с плоской границей раздела фаз. Однако в практике твердые адсорбенты являются тонкопористыми и высокодисперсными порошками, к которым трудно применить понятие математической поверхности раздела фаз.

Общий вид уравнения, характеризующего распределение активности трудносорбируемых соединений радиоактивного йода в последовательности фильтров, описывается экспоненциальной зависимостью вида:

$$A_{\text{TC}i} = B_{\text{TC}} e^{(-\lambda_{\text{TC}} \cdot i)}, \quad (3.7)$$

где $A_{\text{TC}i}$ – активность трудносорбируемых соединений йода на i -ом фильтре набора, Бк;

B_{TC} – показатель трудносорбируемой фракции йода, Бк;

λ_{TC} – показатель скорости гетерогенной реакции трудносорбируемой фракции йода, отн. ед;

i – порядковый номер ($i \geq 1$) сорбирующего фильтра в наборе.

Для расчета коэффициентов B_{TC} и λ_{TC} в формуле (3.7) используются результаты измерения активности второго – седьмого сорбционного фильтров, содержащих только трудносорбируемые соединения йода. Коэффициенты (B_{TC} и λ_{TC}) в формуле (3.7) рассчитываются методом наименьших квадратов. Значения коэффициентов B_{TC} и λ_{TC} позволяют определить соотношение легкосорбируемых и трудносорбируемых соединений йода в выбросах реакторных установок.

Для расчета трудносорбируемых соединений йода на первом фильтре в формулу (3.7) подставляют численные значения B_{TC} и λ_{TC} и значение $i = 1$

$$A_{TC1} = B_{TC} e^{(-\lambda_{TC})} \quad (3.8)$$

Полученное значение используется для расчета активности легкосорбируемого соединения йода в исследуемом воздухе по формуле:

$$A_{лс} = A_1 - A_{TC1} \quad (3.9)$$

где A_1 – измеренная активность газообразного йода на первом фильтре, Бк;

A_{TC1} – активность трудносорбируемого соединения йода на фильтре, рассчитанная по формуле (3.7), Бк.

При неполном поглощении фильтрами активность неуловленного трудносорбируемого соединения йода определяется по формуле:

$$A_{TC}^{неулов} = A_{TC} - \sum_{i=1}^7 A_{TCi} \quad (3.10)$$

где A_{TC} – трудносорбируемые соединения йода с учетом неизвестной активности, не уловленной органической фракции йода, Бк;

$\sum_{i=1}^7 A_{TCi}$ – активность трудносорбируемых соединений на всех фильтрах, Бк.

Трудносорбируемые соединения йода, с учетом неуловленной фракции фильтрами, определяется по формуле:

$$A_{TC} = \frac{B_{TC}}{e^{(\lambda_{TC})} - 1} \quad (3.11)$$

Однородность сорбируемой фракции йода может быть проверена по критерию, полученному на основе регрессионного анализа измеренных данных с использованием аппроксимирующей модели (формула 3.7). Если на первом фильтре экспериментально обнаруживаются уровни активности, значимо превышающие соответствующие значения экспоненты при $n=1$, фильтр, вероятно, содержит разнородные фракции йода. При этом необходимо учитывать неопределенность, обусловленную статистической ошибкой оценивания параметров модели или приборной погрешностью измерений. Критерием допустимого отклонения измеренного значения активности на первом фильтре от модельного, рассчитанного по формуле 3.7, может служить 95 %-й доверительный интервал при $i=1$, построенный для линейной регрессии по логарифмированным данным ($\ln A_{TCi} = \ln B_{TC} - \lambda_{TC} \cdot i$, где $i=2...7$). В общем виде, в случае использования стандартной ошибки оценки S_e в качестве меры неопределенности, доверительный интервал для прогнозируемого значения $\ln A_{TCi}$ при заданном значении i вычисляется по формулам 3.12 3.14:

$$(\ln B_{TC} - \lambda_{TC} \cdot i) \pm t \cdot S_{\ln A_{TCi}} \quad (3.12)$$

где $S_{\ln A_{TCi}}$ – стандартная ошибка прогнозируемого (среднего) значения $\ln A_{TCi}$ при заданном значении i :

$$S_{\ln A_{TCi}|n} = S_e \cdot \sqrt{\frac{1}{n} + \frac{(n-\bar{n})^2}{\sum_{i=1}^n (n_i - \bar{n})^2}} \quad (3.13)$$

где n – количество точек, включенных в модель (если проверяется первый фильтр из пакета, содержащего семь фильтров, то $n=6$ и $i=2...7$);

t – критерий Стьюдента для двустороннего доверительного уровня 95 % и числа степеней свободы $n-2$;

S_e – стандартная ошибка оценки:

$$S_e = \sqrt{\frac{1}{n-2} \sum_{i=1}^n [\ln A_{TCi} - (\ln B_{TC} - \lambda_{TC} \cdot n_i)]^2} \quad (3.14)$$

При использовании в качестве меры неопределенности приборной погрешности измерений $S_{изм}$ в формуле (3.13) следует заменить S_e на $S_{изм}$, формула (3.14) не применяется.

На исследовательской реакторной установке ИВВ-2М, расположенной в Институте реакторных материалов в городе Заречном, была выполнена серия экспериментальных работ с наборами сорбционно-фильтрующих аналитических материалов и определено типовое соотношение физико-химических форм радиоактивного йода в исследуемом воздухе. Характерное распределение радиоактивного йода I-131, прошедшего через набор сорбционно-фильтрующих материалов, представлено на рисунке 3.4. На оси абсцисс представлены порядковые номера фильтров. На оси ординат – значения абсолютной активности радиоактивного I-131 на каждом фильтре из набора, полученные по результатам гамма-спектрометрического анализа. Представленные на графике области характеризуют соотношение различных соединений, уловленных набором СФМ:

- область 1 характеризует легкосорбируемые соединения радиоактивного йода, уловленные на фильтре 1;
- область 2 характеризует трудносорбируемые соединения радиоактивного йода, уловленные на фильтре 1;
- область 3 характеризует трудносорбируемые соединения радиоактивного йода, уловленные на фильтрах 2–7;
- область 4 характеризует долю неуловленных трудносорбируемых соединений радиоактивного йода.

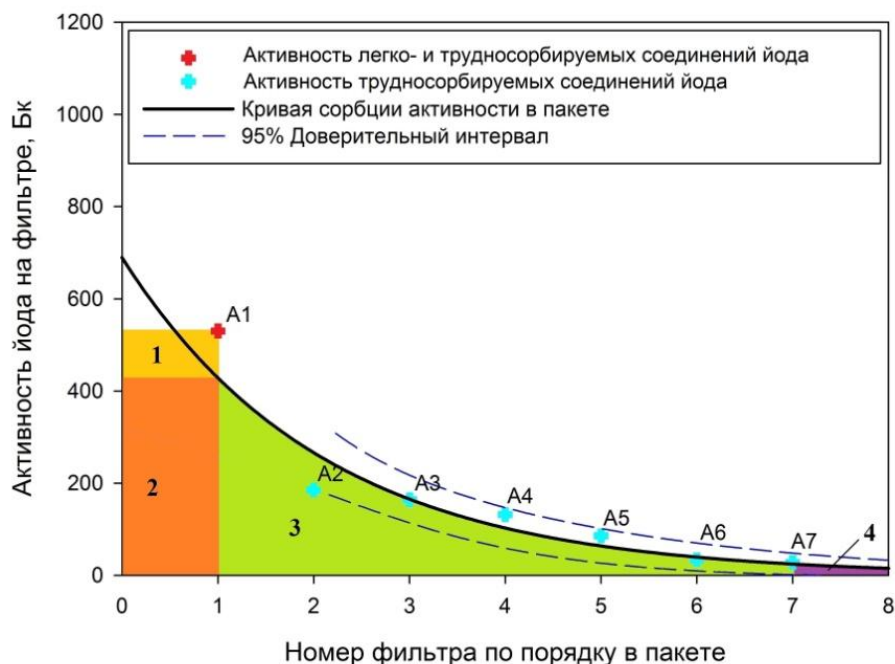


Рисунок 3.4 – Типовое распределение радиоактивного йода I-131, прошедшего через сорбционно-фильтрующие материалы

В условиях существующей концентрации радиоактивного йода в пространстве под реакторной плитой ИЯР ИВВ-2М оптимальное время для экспозиции фильтрующих элементов составляет не менее 24 ч.

Для расчета объемной активности каждой фракции йода в исследуемом воздухе соотносили значения абсолютной активности отдельных фракций с объемом воздуха, прокачанного через фильтры за время пробоотбора.

Радиоактивные изотопы йода в атмосфере реакторной установки ИВВ-2М находятся преимущественно в виде газообразных соединений. Экспериментальные данные, полученные при химической сорбции радиоактивного йода с помощью СФМ позволяют сделать вывод о том, что изотопы радиоактивного йода (I-132 и I-135) не представлены в аэрозольной форме из-за небольшого периода полураспада. Более долгоживущие изотопы йода представлены в различных формах с сопоставимыми долями объемной активности. Ряд экспериментов, проведенных по оценке химических соединений радиоактивного йода, демонстрирует существенный разброс долей различных химических соединений йода. Причиной такого эффекта является различное

распределение активности на наборе угольных фильтров, которое может быть объяснено различными периодами пробоотбора в топливной кампании ИЯР.

При выполнении радиационно-технического обследования источников выбросов АЭС АО «Концерн Росэнергоатом» соотношение форм изотопа I-131 в штатных выбросах ЯР ряда российских АЭС и в атмосфере подреакторного пространства ИВВ-2М представлены в таблице 3.2 [63, 64].

Таблица 3.2 – Соотношение форм и химических соединений I-131 в результате штатной работы ядерного реактора АЭС и ИВВ-2М, %

Наименование АЭС (тип реактора)	Аэрозоли, содержащие ^{131}I	Газообразные соединения I-131		
		легкосорбируемые	трудносорбируемые	
			уловленные	не уловленные
АО ИРМ (ВВЭР)	16,0	16,5	57,0	10,5
Балаковская АЭС (ВВЭР)*	33,0	44,6	17,3	5,1
Курская АЭС (РБМК)	16,2	6,9	74,9	2,0
Смоленская АЭС (РБМК)	31,4	3,1	61,0	4,5

* - установлено только в период планово-предупредительного ремонта энергоблока №2.

Наиболее опасным, из уловленных изотопов йода с точки зрения эффективной дозы облучения населения и персонала в результате деятельности ЯР является I-131 из-за своего периода полураспада ($T_{1/2} = 8,02$ сут.).

Полученные соотношения активности I-131 по формам и соединениям в атмосфере ИВВ-2М и в выбросах российских АЭС позволяют определить кратность превышения эффективной дозы облучения населения при консервативной оценке в сравнении с реальной дозой. Если принять во внимание различия дозовых коэффициентов (в 2,5 и 1,3 раза меньше, чем для элементарной формы I_2) для аэрозолей и трудносорбируемых соединений этого изотопа соответственно, то эффективная доза может быть превышена:

- для АО ИРМ в 1,3 раза;
- для Балаковской АЭС в 1,3 раза;
- для Курской АЭС в 1,4 раза;
- для Смоленской АЭС в 1,5 раза.

Для пакета с сорбционно-фильтрующим материалом оценены параметры экспоненциальной модели распределения активности по фильтрам I-131, а также определены 95 %-й доверительный интервал для линейной регрессии, построенной по логарифмированным значениям относительных активностей с исключением из расчетов первого фильтра. Эти результаты представлены на рисунке 3.5.

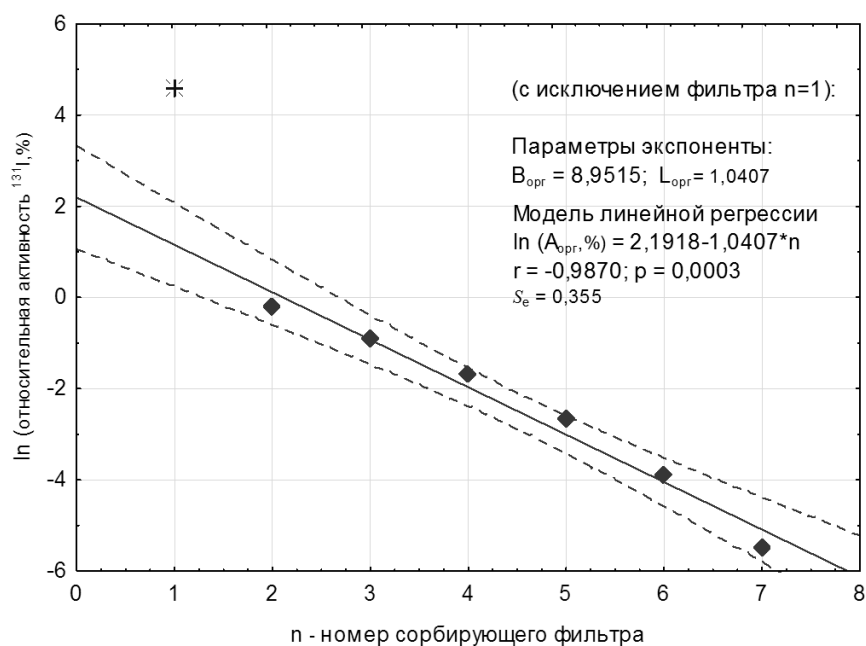


Рисунок 3.5 – Результаты моделирования распределения активности I-131 по фильтрам в пакетах АФА-СФМ-10 при эксплуатации ИЯР ИВВ-2М

Предложенная модель описания всех экспериментальных точек с помощью одной экспоненты позволяет повысить точность определения трудносорбируемых компонентов радиоактивного йода.

Полученные результаты, описанные выше, являются основанием для первого защищаемого положения: *метод отдельного определения объемной активности различных фракций радиоактивного йода в газовой смеси в виде аэрозолей, легко- и трудносорбируемых газообразных соединений позволяющий уменьшить неопределенность в оценке эффективной дозы в газоаэрозольных выбросах ядерного реактора.*

Глава 4. Метод оценки распределения активности по размерам аэрозольных частиц в воздухе рабочей зоны предприятия ядерного топливного цикла

4.1. Результаты оценки распределения радиоактивности по размерам аэрозольных частиц

Наличие в атмосфере предприятий ЯТЦ продуктов деления в виде техногенных ИРГ создает уникальные условия, в которых могут формироваться ДПР с размерами менее 100 нм. Объектом подтверждения данного предположения являлась атмосфера исследовательского реактора бассейного типа ИВВ-2М, эксплуатируемого в Институте реакторных материалов.

В процессе эксплуатации исследовательского реактора сформировалась некоторая суммарная объемная активность в атмосфере реакторного зала. Радионуклидный состав аэрозолей на рабочих местах реакторного зала ИВВ-2М представлен в основном Cs-138 и Rb-88, которые являются дочерними продуктами распада короткоживущих β -излучающих осколков деления Xe-138 и Kr-88. Активность фильтров измерялась на гамма-спектрометрической установке ППД с кристаллом из особо чистого германия фирмы Canberra. Активность улавливающих элементов диффузионной батареи определялась с помощью бета-радиометра КРК-1, поскольку чувствительность спектрометра для этих целей недостаточна.

Для определения первоначальной активности на каждом улавливающем элементе была измерена эффективная кривая распада всех радионуклидов, осевших на улавливающем элементе пробоотборного устройства. Средний эффективный период полураспада радионуклидов для смеси радиоактивных аэрозолей в атмосфере реакторного зала ИВВ-2М составил $23,1 \pm 0,8$ мин. Полученное значение позволило восстановить распределение активности на улавливающих элементах к моменту окончания отбора пробы.

Экспериментальные данные были получены при средней линейной скорости воздуха в пробоотборной линии 0,25 м/с. Относительная влажность исследуемой атмосферы находилась в диапазоне от 30 до 40 %, а температура – от

25 °С до 30 °С. Размер частиц с 50 %-й вероятностью проницаемости через набор из 20 латунных сетчатых экранов составляет 17 нм, для 90 %-й вероятности пропускания – 80 нм. Именно такой набор сетчатых экранов позволяет восстановить расчетным путем распределение активности на аэрозольных частицах разного размера. Для определения радионуклидного состава осевших аэрозолей после набора сетчатых экранов устанавливается аналитический фильтр типа АФА-РСП.

На рисунке 4.1 представлено типовое распределение объемной активности радионуклидов Cs-138 и Rb-88 по размерам аэрозольных частиц в атмосфере реакторного зала ИВВ-2М. Экспериментальные данные и параметры распределения аэрозольных частиц ИРГ по размерам в воздухе рабочей зоны реакторного зала ИВВ-2М представлены в таблицах 4.2, 4.3.

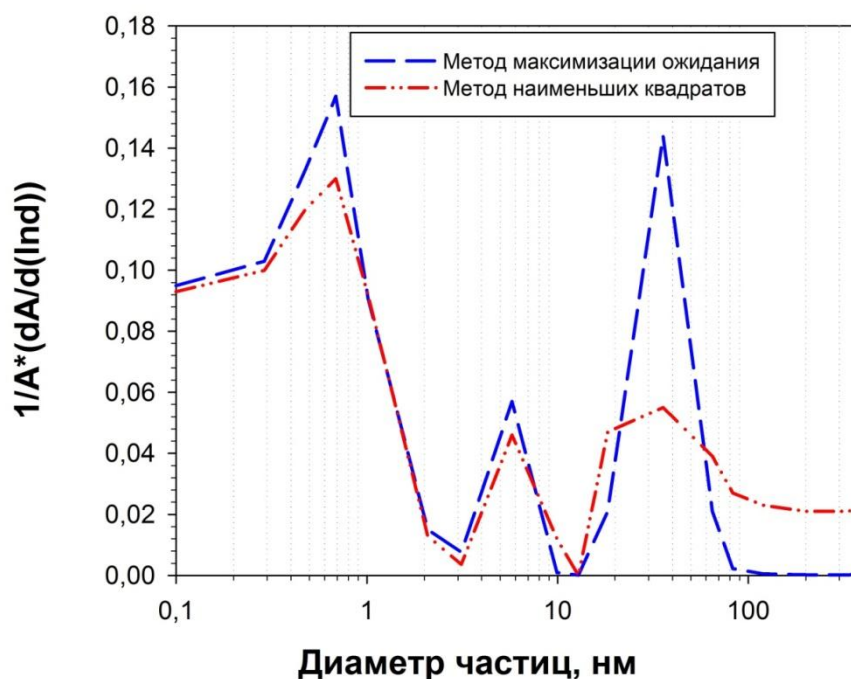


Рисунок 4.1 – Типовое распределение активности радионуклидов Cs-138 и Rb-88 по размерам аэрозольных частиц

Таблица 4.2 – Средние значения объемной активности аэрозольных частиц, полученные по результатам экспериментов с батареей из 20 сеток (65/100/8,5) в условиях атмосферы реакторного зала ИВВ-2М

Параметр	Средняя суммарная объемная активность на сетках, Бк/м ³	Средняя суммарная объемная активность на диффузионной батарее, Бк/м ³	Средняя доля активности ультрадисперсной фракции, отн. ед.
20 сеток типа (65/100/8,5)	920 ± 180	3900 ± 880	0,25±0,03

Таблица 4.3 – Средние значения параметров восстановленных распределений

Мода	АМТД, нм	Доля в активности ультрадисперсной фракции, отн. ед.	Повторяемость моды в экспериментах, %
Восстановление с помощью метода максимизации ожидания			
Мода 1	0,6±0,2	0,10±0,02	100
Мода 2	6,9±0,8	0,04±0,01	100
Мода 3	45,8±2,6	0,16±0,03	100
Восстановление с помощью метода наименьших квадратов			
Мода 1	0,6±0,1	0,09±0,01	100
Мода 2	7,3±0,2	0,04±0,01	100
Мода 3	51,3±3,1	0,06±0,01	100

Примечание: ± указано стандартное отклонение от среднего значения.

Распределение активности по различным модам аэрозольных частиц было получено исходя из анализа активности на сетчатых экранах с помощью метода наименьших квадратов и итерационного метода – максимизации ожидания, описанного в работах [102, 103].

Моды с АМТД ~ 0,6 и 7,2 нм представляют собой малые радиоактивные молекулярные кластеры и ядра нуклеации аэрозолей [52]. Теоретически такие мелкие частицы могут создаваться либо конденсацией пересыщенного пара при резком падении давления, либо в результате процесса радиоактивного распада инертных газов [108], которые выходят наружу из надреакторного пространства ИВВ-2М. Мода с АМТД ~ 50 нм представляет собой аэрозоли конденсационного происхождения [52]. Эти радиоактивные аэрозоли образуются в процессе

оседания радионуклидов на частицах пыли и воды, находящихся в атмосфере реакторного зала. Интерпретация полученных данных методами максимизации ожидания и наименьших квадратов продемонстрировала сопоставимые результаты.

Внешний вид распределения радиоактивных аэрозолей по размерам частиц в воздухе рабочей зоны ИВВ-2М схож с распределением по размерам ДПР радона, представленным в работах [49, 51]. В таблице 4.4 представлен сравнительный анализ распределения активности по размерам аэрозольных частиц для продуктов распада природного и техногенного происхождения.

Таблица 4.4 – Распределение активности по размерам аэрозольных частиц, полученных в результате распада природных и техногенных инертных газов

Мода	Аэродинамический диаметр аэрозольных частиц, нм		
	Природный ИРГ Rn-222 ДПР: Po-218, Pb-214, Bi-214	Природный ИРГ Rn-222 ДПР: Po-216, Pb-212, Bi-212	Техногенные ИРГ Xe-138, Kr-88 ДПР: Cs-138, Rb-88
Мода 1	1,8	1,7	0,6
Мода 2	8,4	7,5	6,9
Мода 3	40	60	50

Из таблицы 4.4 видно, что мода 1 с АМТД в области 1 нм для ДПР техногенных ИРГ имеет меньший размер, по сравнению с кластерами ДПР радона. Данный факт можно объяснить тем, что материнские атомы техногенных ИРГ Xe-138 и Kr-88 имеют меньшую атомную массу по сравнению с атомами радона.

Полученные результаты оценки распределения активности ДПР техногенных ИРГ по размерам аэрозольных частиц могут быть использованы для внесения поправок в оценку эффективной дозы облучения персонала при ингаляционном поступлении в результате интенсивных работ в атмосфере реакторного зала ИЯР ИВВ-2М, что обсуждается в следующем разделе.

4.2. Оценка ожидаемой эффективной дозы при ингаляционном поступлении на персонал реакторного зала ИВВ-2М

Полученная информация о распределении радиоактивных аэрозолей по размерам может быть использована для оценки ожидаемой эффективной дозы при ингаляционном поступлении на персонал, который может находиться в реакторном зале в момент работы ИЯР ИВВ-2М на номинальной мощности.

В таблице 4.5 представлены коэффициенты конверсии для расчета эффективной дозы при ингаляционном облучении персонала, работающего в реакторном зале ИВВ-2М [12].

Таблица 4.5 – Коэффициенты конверсии для расчета эффективной дозы при ингаляционном поступлении, Зв/Бк

Размер	Cs-138, 10^{-10}	Rb-88, 10^{-10}
1 нм	12,0	4,4
3 нм	8,9	3,5
30 нм	1,8	1,2
1 мкм	4,8	2,0
5 мкм	9,4	3,8

При расчете эффективной дозы были сделаны следующие предположения:

- персонал работает в реакторном зале, выполняя тяжелый физический труд со средней скоростью дыхания $1,2 \text{ м}^3/\text{ч}$;
- персонал проводит в реакторном зале не более 1700 ч в году;
- размер аэрозолей, осевших на фильтр, принимается равным 1 мкм;
- суммарная объемная активность радиоактивных аэрозолей в реакторном зале не превышает $9 \text{ кБк}/\text{м}^3$;
- доля высокодисперсных аэрозолей достигала 30 % от общей уловленной активности;
- в расчете эффективной дозы учитывались дозовые коэффициенты каждой моды с учетом вклада в общую объемную активность (для «присоединенной» фракции использовался дозовый коэффициент для частиц размером в 1 мкм).

Расчет эффективной дозы был выполнен по формуле:

$$E_{inh} = 1700 \cdot Q \cdot \Psi \cdot v \quad (4.1)$$

где E_{inh} – ожидаемая эффективная доза при ингаляционном поступлении на персонал, Зв/год;

Q – суммарная объемная активность радиоактивных аэрозолей в воздухе рабочей зоны реакторного зала ИВВ-2М;

Ψ – дозовый коэффициент конверсии;

v – скорость дыхания персонала при работе в реакторном зале.

Результаты расчета эффективной дозы при ингаляционном облучении на персонал с учетом доли высокодисперсных аэрозолей и при консервативном подходе представлены ниже:

- E_{inh} с учетом доли ВДА – $7,4 \cdot 10^{-3}$ Зв/год;
- E_{inh} в расчете, что все аэрозоли имеют АД 1 мкм – $8,8 \cdot 10^{-3}$ Зв/год;
- E_{inh} в расчете, что все аэрозоли имеют АД 5 мкм – $17,2 \cdot 10^{-3}$ Зв/год.

Полученные результаты демонстрируют, что рекомендуемые размеры радиоактивных аэрозолей СанПин 2.6.1.2523-09 (НРБ-99/09) и ICRP 130 для Cs-138 и Rb-88 приводят к занижению эффективной дозы при ингаляционном поступлении в 1,08 раза (согласно подходу СанПин 2.6.1.2523-09) и к завышению в 1,8 раза (согласно подходу ICRP 130) при использовании коэффициентов с активностным медианным аэродинамическим диаметром 1 мкм и 5 мкм соответственно.

Представленные выше результаты являются основанием для **второго защищаемого положения: метод исследования радиоактивных аэрозолей в реакторном зале ядерной установки, состоящий в отдельном измерении активности фракций аэрозольных частиц по размерам, включая высокодисперсные фракции, определяемые с использованием диффузионной батареи экранного типа, позволяет повысить точность оценки ожидаемой эффективной дозы облучения персонала при ингаляционном поступлении по сравнению со стандартным подходом.**

Глава 5. Метод оценки влияния радиоактивных аэрозолей с размером менее 10 нм на измерения, выполняемые при помощи устройств с инерционным механизмом осаждения

Присутствие в исследуемой атмосфере радиоактивных аэрозолей с размером менее 10 нм может вносить дополнительный вклад в отклик улавливающих элементов, работающих на инерционном механизме осаждения аэрозолей. Наблюдаемый эффект может привести к ошибочному выводу о наличии в исследуемой атмосфере крупнодисперсных радиоактивных аэрозолей.

Отсутствие информации в литературе о данном эффекте может быть связано с тем, что впервые ультрадисперсные аэрозоли хорошо были изучены с помощью дочерних продуктов распада радона как один из способов формирования атомарных кластеров за счет радиоактивного распада. В этом случае эксперименты были основаны только на изучении параметров диффузионного осаждения аэрозольных частиц и импакторные устройства для таких целей не использовались. В атмосфере с более крупными аэрозолями использовались улавливающие устройства с инерционным механизмом осаждения, в то время как более мелкие аэрозоли проходят все улавливающие элементы импактора ламинарным потоком и оседают на финишном фильтре. Возможность оседания ультрадисперсных частиц в таком случае не рассматривается.

Каскадные импакторы учитывают только инерционный механизм осаждения, однако, если рассмотреть конструкцию импактора, видно, что идет прохождение потока воздуха через пространство между диафрагменными и коллекторными пластинами, что является аналогом щелевой диффузионной батареи. Поэтому при наличии в воздухе ультрадисперсных аэрозолей не исключено оседание этих аэрозолей на первых каскадах импактора. Такой эффект может быть обусловлен диффузионным оседанием ультрадисперсных аэрозолей при линейном движении вдоль поверхности пробоотборного каскада [109, 110].

Для подтверждения данного предположения были испытаны три различных импакторных устройства в атмосфере, в которой наблюдалась высокая

концентрация дочерних продуктов распада радона и торона. Объектами исследования были атмосфера радона в экспериментальном боксе объемом 2 м³ в радоновой лаборатории физико-технологического института Уральского федерального университета и атмосфера торона исследовалась в помещении для хранения монацитового концентрата предприятия ГКУСО «УралМонацит» в г. Красноуфимске. Среднее значение ЭРОА радона и торона составляло 2 500 и 350 Бк/м³ соответственно [111]. Отбор проб выполнялся при фиксированном объемном расходе воздуха 30 л/мин, при температуре и относительной влажности 15–25 °С и 45–70 % соответственно.

Экспериментальные работы позволили выполнить анализ активности на коллекторных пластинах в предположении, что импакторные устройства работают в штатном режиме. Полученные результаты анализировались с помощью метода, представленного в работе [42], который основан на предположении, что распределение аэрозольных частиц по размерам подчиняется логнормальному распределению. Расчет среднего значения АМАД выполнялся по формуле 5.1, а расчет значения СГО выполнялся по формуле 5.2:

$$\ln \text{АМАД} = \frac{\sum n_i \cdot \ln d_i}{\sum n_i}, \quad (5.1)$$

$$\ln \text{СГО} = \left[\frac{\sum n_i \cdot (\ln n_i - \ln \text{АМАД})^2}{\sum n_i} \right]^{0,5}, \quad (5.2)$$

где n_i – значение ЭРОА, измеренное на i – каскаде импактора;

d_i – эффективный каскадный аэродинамический диаметр i -го каскада.

Стоит отметить, что в отличие от диффузионной батареи импактор не позволяет оценить распределение активности аэрозольных частиц по размерам с помощью нескольких мод. Вся активность на улавливающих элементах каскадного импактора, считалась в предположении единого логнормального распределения. Медиана такого распределения характеризует аэродинамический диаметр аэрозольных частиц.

Результаты расчета АМАД по измерениям в радоновом боксе представлены на рисунке 5.1.

Полученные распределения явно не соответствуют хорошо изученному распределению атмосферы ДПР радона в стационарных условиях [51, 52].

Принимая во внимание высокую долю «неприсоединенной» фракции, может возникнуть предположение о возможном осаждении ультрадисперсных частиц на импакторе. Для проверки справедливости данного предположения о диффузионном осаждении аэрозольных частиц на улавливающих элементах каскадного импактора были выполнены измерения активности не только на коллекторных пластинах, но и на диафрагмах.

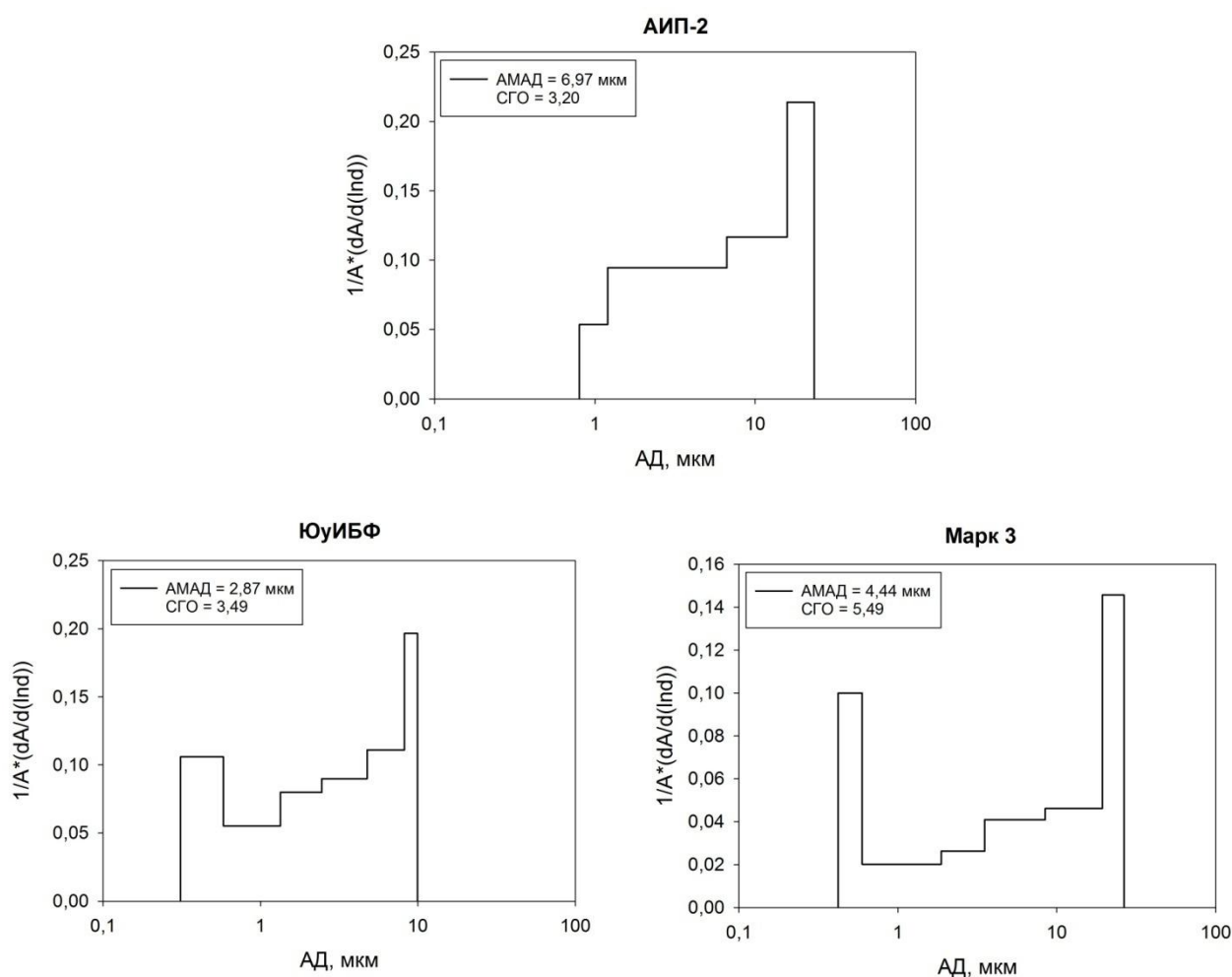


Рисунок 5.1 – Распределения на улавливающих элементах импакторов радиоактивных аэрозолей ДПР радона. Значения АМАД и СГО рассчитаны в предположении «корректной» работы каскадных импакторов

Рисунок 5.2 демонстрирует результаты определения доли ЭРОА радона на улавливающих элементах каскадных импакторов, используемых в этой работе.

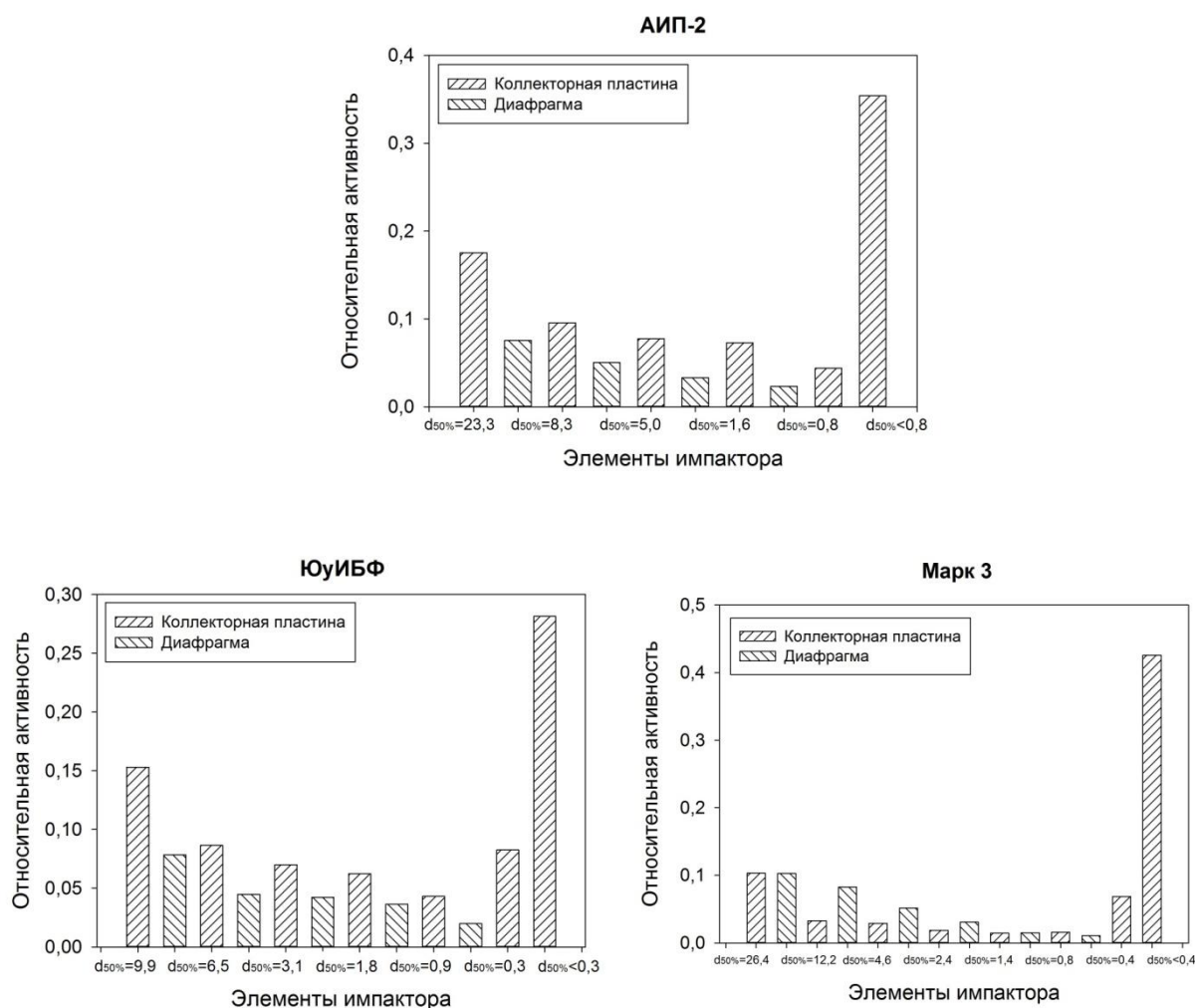


Рисунок 5.2 – Распределение активности на улавливающих элементах каскадных импакторов в атмосфере Rn-222

Результаты наглядно показывают, что для импакторов различной конструкции с различным количеством каскадов наблюдается эффект оседания ультрадисперсных аэрозолей на диафрагменной пластине каждого каскада импактора. Иногда оседание аэрозолей на коллекторной пластине может быть сопоставимо с тыльной стороной диафрагменной пластины для импакторов АИП-2 и ЮУриБФ. Подобное наблюдение дает возможность сделать вывод, что в межкаскадном пространстве происходит диффузионное осаждение аэрозолей. Для импактора Марк-3 такой эффект тоже наблюдался, но осаждение ультрадисперсных аэрозолей на диафрагменной пластине гораздо заметнее, в связи с применением фильтровальной бумаги в качестве улавливающего элемента

каждого каскада. Такое конструктивное решение могло способствовать увеличению турбулентности воздушных потоков в межкаскадном пространстве. Доля ЭРОА, осевшая на каскадах импакторов, находится в диапазоне от 45 до 65 % от общей уловленной активности.

Наблюдаемый рост активности на последних каскадах импакторов ЮУрИБФ и Марк-3 свидетельствует о наличии и инерционном осаждении конденсационной моды ДПР радона с АМАД $\sim 0,3$ мкм [52].

Для проверки и подтверждения наблюдаемого эффект повторные экспериментальные работы были выполнены на реальных рабочих мест в атмосфере с высоким содержанием дочерних продуктов распада торона на базе хранения монацитового концентрата предприятия ГКУСО «УралМонацит» в г. Красноуфимске [112]. Для снижения аэродинамического сопротивления импакторных устройства в ряде экспериментов были удалены последние каскады на импакторах ЮУрИБФ и Марк-3. На рисунке 5.3 представлены результаты расчета АМАД аэрозольных частиц, которые находились в атмосфере складов с монацитовым концентратом. На рисунке 5.4 представлены результаты определения доли ЭРОА торона на улавливающих элементах каскадных импакторов, используемых в данной работе.

В обоих случаях результаты экспериментов позволяют наблюдать сопоставимое распределение активности межкаскадным пространством импакторных устройств. Анализ полученных данных демонстрирует присутствие в атмосфере радиоактивных аэрозолей с АМАД в диапазоне от 2,8 до 6,5 мкм, что в действительности невозможно из-за высокой скорости оседания аэрозолей под действием гравитационной силы [113].

Схожая ситуация наблюдалась в атмосфере реакторного зала предприятия АО «ИРМ» при отборе аэрозольных частиц с помощью импактора АИП-2. В пробных экспериментах также не удалось оценить распределение активности по размерам аэрозольных частиц. Среднее значение АМАД находилось в диапазоне от 2,9 до 6 мкм с СГО в диапазоне 3,6 до 3,8. Доля активности, осевшая на

финишном аэрозольном фильтре, достигала 90 % от общей уловленной объемной активности.

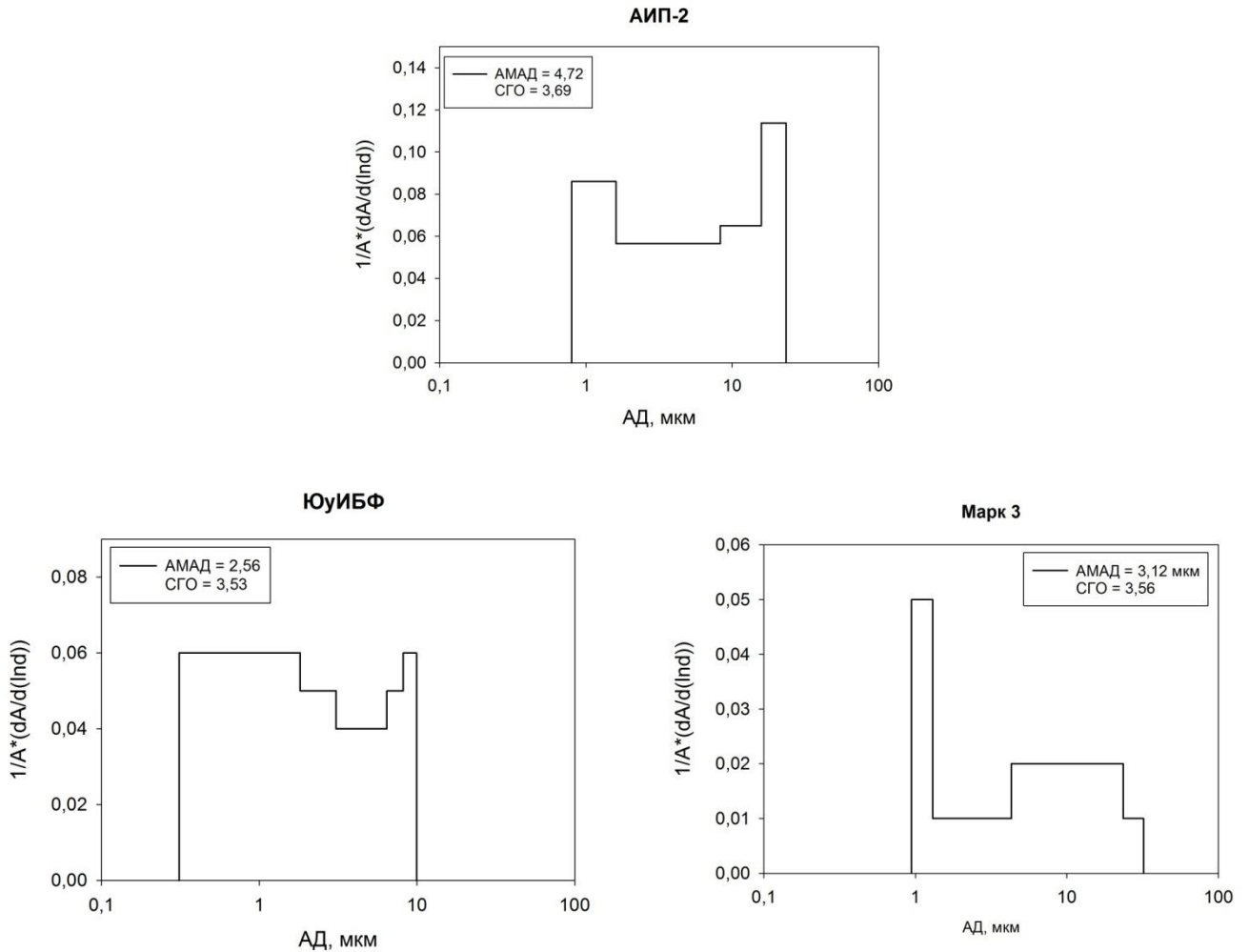


Рисунок 5.3 – Распределения на улавливающих элементах импакторов радиоактивных аэрозолей ДПР торона. Значения АМАД и СГО рассчитаны в предположении «корректной» работы каскадных импакторов

Результаты демонстрируют, что атмосферы, в которых доля ультрадисперсные радиоактивные аэрозоли (с АМТД менее 10 нм) составляет не менее 30 % от общей объемной активности, оценка АМАД, выполняемая каскадными устройствами на основе инерционного осаждения (импакторами) в рамках специального мониторинга, дает некорректные результаты.

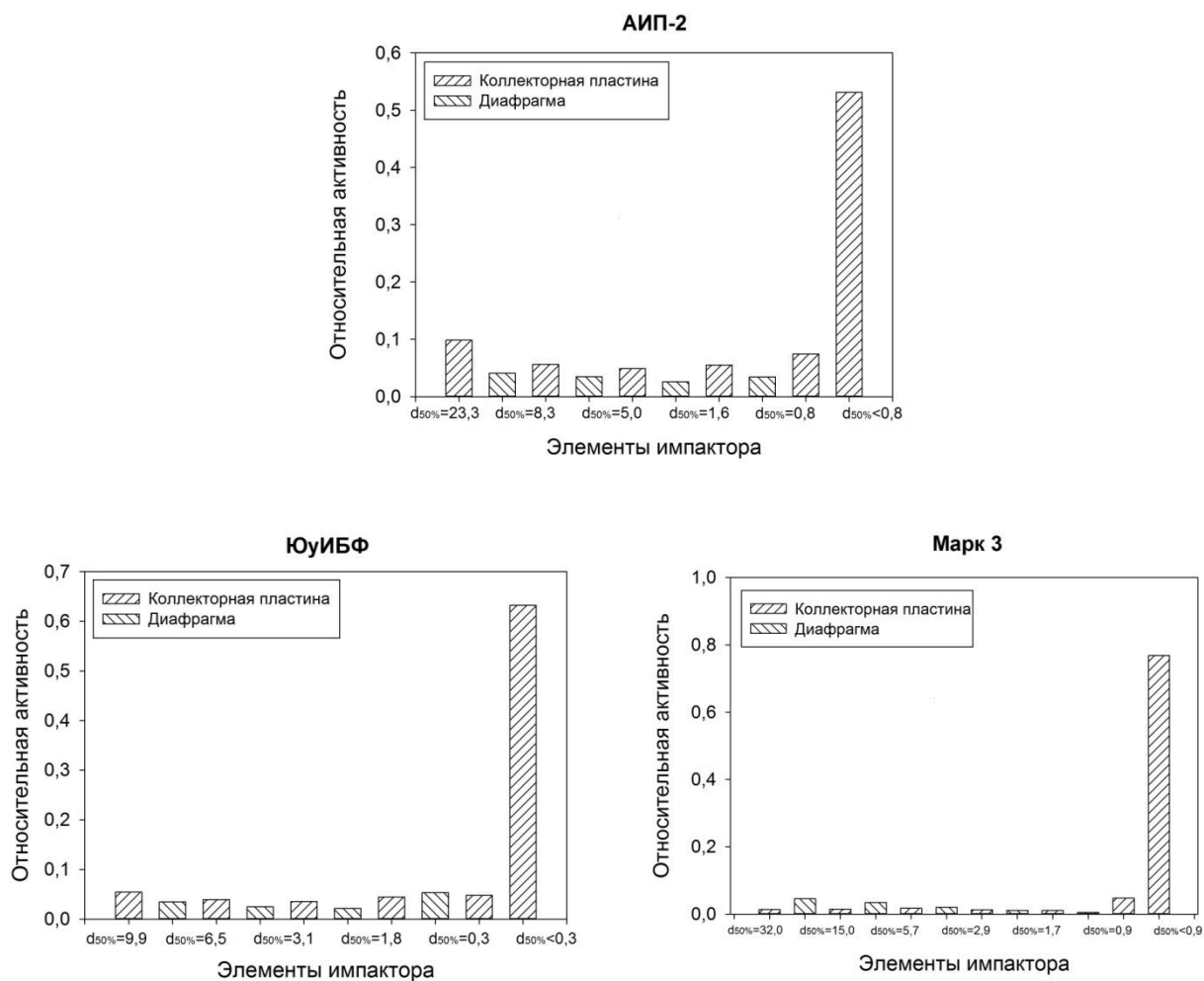


Рисунок 5.4 – Распределение активности на улавливающих элементах каскадных импакторов в атмосфере Rn-220

Для учета доли ультрадисперсных аэрозолей предлагается использовать сетчатые экраны в виде трех стальных сеток с диаметром проволоки 30 мкм и шириной раскрытия ячейки 40 мкм. Подобный набор сетчатых экранов позволяет удалять из исследуемой атмосферы ультрадисперсные частицы с диаметром 2,5 нм с вероятностью 90 %, а частицы с диаметром 6,5 нм – 50 %. Таким образом, сетчатые экраны играют роль диффузионного фильтра, отсекая компоненту с самым высоким коэффициентом диффузии. На рисунке 5.5 представлена кривая пропускания аэрозольных частиц через набор сетчатых стальных экранов. Линия черного цвета описывает кривую пропускания набора из трех сетчатых экранов, полученного расчетным способом согласно теории фильтрации [82]. Красная

линия демонстрирует типовое распределение активности ДПР Rn-222 по размерам аэрозольных частиц [52].

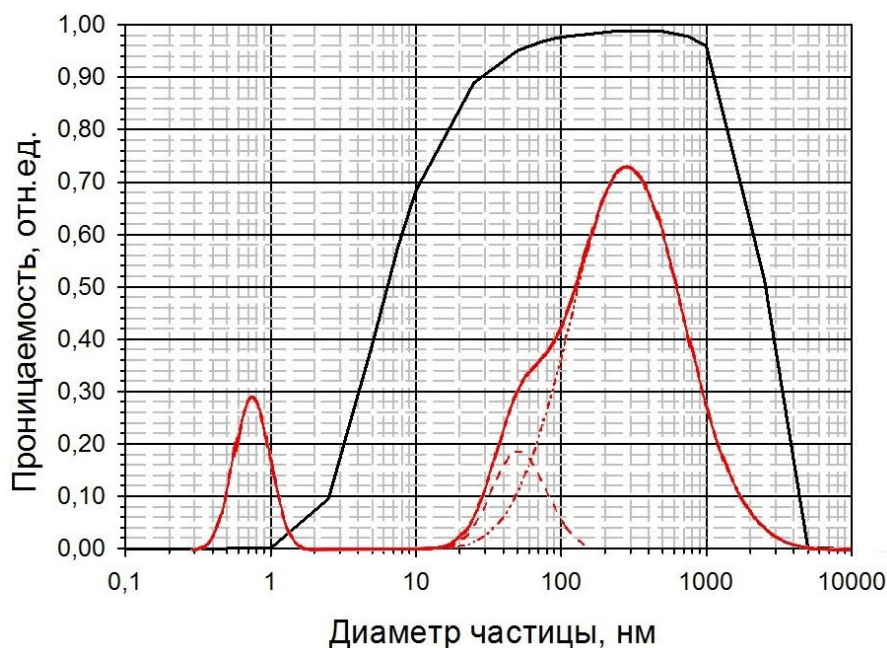


Рисунок 5.5 – Кривая пропускания аэрозольных частиц через набор сетчатых стальных экранов

Для снижения влияния ультрадисперсной фракции аэрозольных частиц ДПР Rn-222 и Rn-220 перед каскадным импактором был установлен тот же набор сетчатых экранов из трех стальных сеток, которые использовались для определения доли «неприсоединенной» фракции. Таким образом, эти экраны играют роль «диффузионного фильтра», улавливающего ультрадисперсные аэрозоли ДПР радона.

В таблицах 5.1 и 5.2 представлены результаты измерения ЭРОА радона при помощи импакторных устройств с предустановленными сетчатыми элементами. Средние значения ЭРОА в экспериментах представлены с неопределенностью для 95 % доверительного интервала.

Таблица 5.1 – Среднее значение доли ЭРОА Rn-222 на улавливающих элементах

Тип пробоотборного устройства	АИП-2		ЮУрИБФ		Марк-3	
	Доля ЭРОА		Доля ЭРОА		Доля ЭРОА	
Сетчатые элементы	–	0,75±0,18	–	0,76±0,08	–	0,76±0,09
Каскады импактора	0,60±0,20	0,02±0,01	0,72±0,08	0,04±0,01	0,58±0,09	0,04±0,01
Аналитический фильтр	0,40±0,20	0,23±0,18	0,28±0,08	0,20±0,08	0,42±0,09	0,20±0,09

Примечание: ± указано стандартное отклонение среднего значения.

Таблица 5.2 – Среднее значение доли ЭРОА Rn-220 на улавливающих элементах

Тип пробоотборного устройства	АИП-2		ЮУрИБФ		Марк-3	
	Доля ЭРОА		Доля ЭРОА		Доля ЭРОА	
Сетчатые элементы	–	0,55±0,18	–	0,21±0,07	–	0,45±0,15
Каскады импактора	0,47±0,16	0,05±0,02	0,38±0,13	0,04±0,01	0,23±0,08	0,04±0,01
Аналитический фильтр	0,53±0,16	0,39±0,18	0,63±0,13	0,75±0,07	0,77±0,08	0,51±0,15

Примечание: ± указано стандартное отклонение среднего значения.

Таблицы 5.1 и 5.2 демонстрируют, что при использовании сетчатых экранов оседание радиоактивных аэрозолей ДПР радона и торона на улавливающих элементах каскадных импакторов практически отсутствует. Полученные значения активности с каскадов АИП-2 не позволяют сделать заключение о характере распределения аэрозолей. Значения активности выше минимально детектируемых на последних каскадах импакторов Марк-3 и ЮУрИБФ с $d_{50\%}=0,3$ мкм указывают на наличие в атмосфере характерной конденсационной моды с АМАД $\sim 0,3$ мкм [52].

Результаты отбора аэрозольных проб в боксе при совместном использовании сетчатых экранов и каскадных импакторов показали хорошую воспроизводимость результатов по доле «неприсоединенной» фракции, оседающей на сетчатых элементах («диффузионном фильтре»). Различие в измерениях на «УралМонаците» объясняется проведением эксперимента в реальных условиях, любые изменения погодных условий и других факторов могли влиять на состояние атмосферы.

Для подтверждения правильной интерпретации данных с сетчатых экранов была выполнена проверка с использованием генератора аэрозолей, который создавал большую концентрацию неактивных аэрозолей в атмосфере, и доля «неприсоединенной» фракции аэрозолей становилась незначительной. При создании высокой концентрации аэрозольных частиц в радоновом боксе использовался источник пропиленгликоля и глицерина в виде электронного испарителя. Среднее значение концентрации частиц в каждом эксперименте находилось в диапазоне от $2 \cdot 10^4$ до 10^5 см⁻³. Эксперименты с использованием каскадных импакторов и набора сетчатых экранов в атмосфере Rn-222 с высокой концентрацией аэрозолей продемонстрировали низкую долю ультрадисперсной

фракции аэрозольных частиц ДПР – не более 5 % от общего значения ЭРОА, на улавливающих элементах. Типовое распределение активности ДПР Rn-222 на улавливающих элементах импакторов АИП-2, ЮУриБФ и Марк-3 представлено на рисунке 5.6.

Среднее значение АМАД на импакторах находилось в диапазоне от 0,5 до 0,9 мкм при значениях СГО от 1,5 до 2,0. Расчет значений АМАД и СГО был выполнен с помощью метода, опубликованного в работе W.C. Hinds [42]. Подобные расчеты, выполненные методом, представленным в работе П. Райтса [41], дали схожие результаты. Различие в значениях АМАД связано с временем отбора пробы после выключения генератора аэрозолей. При этом распределение активности на каскадах импактора никак не зависело от наличия или отсутствия сетчатых экранов. Наличие незначительного количества активности на сетчатых экранах обусловлено действием механизма зацепления частиц на улавливающих элементах.

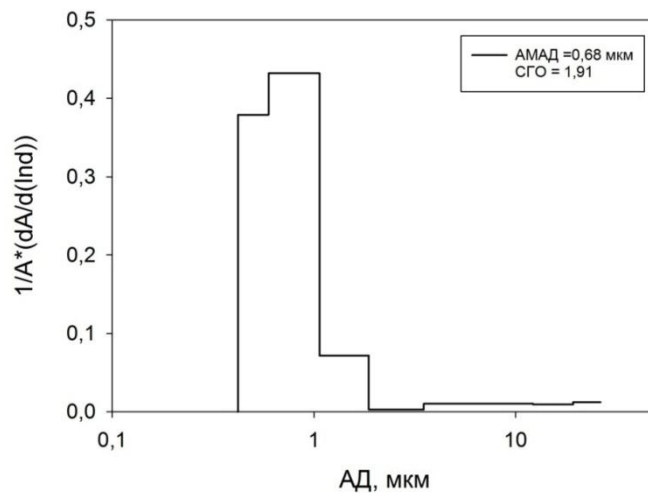


Рисунок 5.6 – Типовое распределение активности на импакторах АИП-2, ЮУриБФ и Марк-3 в радоновой атмосфере с высокой концентрацией аэрозольных частиц

Полученные результаты, описанные выше, являются основанием для **третьего защищаемого положения: метод учёта вклада ультрадисперсных частиц с размером менее 10 нм в отклик улавливающих элементов**

инерционных устройств, с использованием сетчатых экранов, устанавливаемых перед улавливающими элементами импактора, позволяющий уменьшить неопределенность оценки распределения объемной активности по размерам аэрозольных частиц.

Заключение

Диссертационная работа посвящена усовершенствованию существующих методов радиационного контроля для повышения достоверности информации о физико-химических формах радиоактивных веществ в атмосфере и воздухе рабочей зоны при эксплуатации ядерных реакторов. В рамках представленной работы были получены следующие результаты:

1. Разработан, апробирован и аттестован метод определения доли объемной активности различных форм йода в атмосфере. Он предусматривает использование не менее семи слоев фильтров, которые имеют однородное содержание сорбирующего материала. Разработанный метод позволяет просто и надежно получить информацию о химических соединениях радиоактивного йода. Достоверные данные о различных формах йода позволят избежать излишнего консерватизма при оценке эффективной дозы на население.

2. В исследовании обнаружено, что радиоактивный изотоп I-131 в воздухе рабочей зоны реакторной установки ИВВ-2М и в выбросах российских АЭС находятся преимущественно в виде газообразных соединений. Соотношение между различными формами может изменяться для каждого типа реакторной установки и технологических процессов. Доказано, что наиболее радиационно опасный изотоп I-131 при работе реакторных установок ИВВ-2М и российских АЭС представлен в основном трудносорбируемыми газообразными соединениями. Полученные данные позволяют внести необходимые поправки при оценке эффективной дозы облучения населения, которая может быть завышена в 1,5 раза по сравнению с консервативным подходом.

3. Исследованы размеры радиоактивных аэрозолей, представленные дочерними продуктами распада техногенных инертных газов Хе-138 и Кг-88, находятся в области с АМГД 0,6, 7 и 50 нм. Полученные результаты позволят сделать необходимые поправки при оценке дозы облучения персонала.

4. Многочисленными экспериментами доказано, что при распаде ИРГ радиоактивные дочерние продукты образуют кластеры «неприсоединенной» фракции аналогичные ДПР радона. Механизмы образования аэрозольных частиц ДПР радиоактивных благородных газов техногенного происхождения схожи с ранее изученными процессами образования аэрозолей ДПР природного газа радона.

5. Исследованы особенности появления ложной информации о наличии крупнодисперсных аэрозольных частиц при использовании каскадных импакторов в случае присутствия ультрадисперсных частиц в исследуемой атмосфере.

6. Разработан способ с применением стальных сетчатых экранов для устранения влияния диффузионного осаждения ультрадисперсных частиц, установленных перед каскадным импактором по линии потока воздуха в процессе отбора пробы. Предложенный подход обеспечивает эффективное осаждение ультрадисперсных аэрозолей из воздушного потока за счет их диффузионного осаждения на сетчатом экране. Подобное техническое решение позволит более достоверно определять долю фракции крупнодисперсных частиц, осаждаемых на улавливающих элементах импактора, и долю ультрадисперсных частиц, осаждаемых на сетчатых экранах.

Рекомендации

Результаты диссертационной работы могут быть использованы для разработки новых методических указаний по контролю газо-аэрозольных компонент в атмосфере предприятий ЯТЦ. Также результаты данной работы могут быть учтены уже в существующих методических подходах по контролю радиоактивных веществ в исследуемой атмосфере.

Перспективы дальнейшей разработки темы

Разработка аппаратуры и методов радиационного контроля на предприятиях ЯТЦ, а также прикладного программного обеспечения для автоматизации расчётов дозовых характеристик по результатам измерений.

Список сокращений и условных обозначений

АД – аэродинамический диаметр

АМАД – активностный медианный аэродинамический диаметр

АМТД – активностный медианный термодинамический диаметр

АФА-РСП – аналитический фильтр для альфа-спектрометрии

ВДА – высокодисперсные аэрозоли

ГМТА – гексаметилентетраамин

ДПР – дочерние продукты распада

ЕСАД – эффективный аэродинамический диаметр разделения аэрозолей (effective cut-off diameter)

ИРГ – инертный радиоактивный газ

ИЯР – исследовательский ядерный реактор

ЛНР – логарифмически-нормальное распределение

МАГАТЭ – Международное Агентство по Атомной Энергии

МДА – минимальная детектируемая активность

ММФ – метод многослойных фильтров

ОА – объемная активность

ППД – полупроводниковый детектор

РМ – particle matter, взвешенная частица

РОО – радиационно опасный объект

РУ – реакторная установка

СГО – стандартное геометрическое отклонение

СФМ – сорбционно-фильтрующий материал

ТВЭЛ – тепловыделяющий элемент

ТЭДА – триэтилендиамин

ФП – фильтр Петрянова

ЭРОА – эквивалентная равновесная объемная активность

ЯР – ядерный реактор

ЯТЦ – ядерный топливный цикл

Список литературы

1. СанПиН 2.6.1.2523-09. Нормы радиационной безопасности (НРБ-99/09) – М. : Минздрав России, 2009.
2. Radiation Protection and Safety of Radiation Sources: International Basic Safety Standards. IAEA Safety Standards Series. № GSR. Part 3. Vienna (IAEA). – Vienna, 2011.
3. External exposure to radionuclides in air, water and soil/ U.S. Environmental Protection Agency. Federal Guidance Report 12. 1993. EPA-402-R-93-081.
4. Generic models for use in assessing the impact of discharges of radioactive substance to the environment. IAEA Safety Reports Series – № 19. Vienna (IAEA). – Vienna, 2001.
5. Объемная активность радионуклидов в воздухе на рабочих местах. Требования к определению среднегодовой объемной активности / Методические указания МУ 2.6.5.009-2016. – Москва, 2016.
6. Будыка А. К., Борисов Н. Б. Волокнистые фильтры для контроля загрязнения воздушной среды / А. К. Будыка, Н. Б. Борисов – М. : ИздАт, 2008. – 358 с.
7. Припачкин Д.А., Будыка А.К. и др. Экспериментальное исследование дисперсного состава аэрозолей методом многослойных фильтров и с помощью каскадного устройства // Атомная энергия. – 2013. – № 3 (144). – С. 174–177.
8. Masson O., Ringer W. et al. Size distributions of airborne radionuclides from the Fukushima Nuclear accident at Several Places in Europe // Environ. Sci. Technol. – 2013.– № 47. – p. 10995–11003.
9. Rogozina M. A., Zhukovsky M. V. et al. Thoron progeny size distribution in monazite storage facility // Radiation Protection Dosimetry. – 2014. – P. 10–13.
10. НП-021-15. Федеральные нормы и правила в области использования атомной энергии «Обращение с газообразными радиоактивными отходами. Требования безопасности». М., 2015.

11. ICRP 1994. Human respiratory tract model for radiological protection. ICRP Publication 66. Annals of the ICRP 24 (1–3).
12. ICRP 2015. Occupational Intakes of Radionuclides. ICRP Publication 130. Part 1. Annals of the ICRP 44 (2).
13. Маслов А. А. Технология урана и плутония: учеб. пособие. – Томск: Изд-во Томского политехнического университета, 2007. – 97с.
14. Борисов Н. Б., Борисова Л. И., Чуркин С. Л. и др. Специфические свойства аэрозолей полония // Коллоидный журнал. – 1995. – №1 (57). – С. 11–14.
15. Петрянов И. В., Борисов Н. Б., Чуркин С. Л. и др. Образование и выделение газообразной фракции полония из его твердых препаратов // Доклады АН СССР. – 1992. – № 3 (322). – С.557.
16. Стыро Б. И., Недвецкайте Т. Н., Филистович В. И. Изотопы йода и радиационная безопасность. – СПб. : Гидрометеиздат, 1992. – 256 с.
17. Борисов Н. Б., Огородников Б. И., Кауров Г. А. и др. Наблюдение за газоаэрозольными компонентами радиоиода и радиорутения в первые недели после аварии на ЧАЭС // Научно-технический реферат сборник. – М. : НИИТЭХИМ. – 1992. – № 1. – С.17–24.
18. Кузнецов Ю. В., Суходолов Г. М., Елизарова А. Н. и др. К вопросу о химических формах йода в отходах АЭС // Радиохимия. – 1981. – № 6. – С. 923–926.
19. Chemical and physical properties of methyl iodide: A summary and annotated bibliography. Review / auth. ParslyNucl. – Oak Ridge, Saf. Incf. Center, 1971.– P. 106.
20. Репников Н.Ф. Осаждение радиоактивного йода на аэрозоли // Радиационная безопасность и защита АЭС: сб. статей. – М. : Энергоатомиздат. – 1985. – № 9. – С.11–15.
21. Nuclear Safety. International Iodine Workshop. Nuclear Energy Agency, 2016.

22. Морями К., Фуруя Х. Термохимический прогноз распределения продуктов деления и их соединений в твэлах реакторов LWR с оксидным топливом, облученным до высокого выгорания // Атомная техника за рубежом. – 1998. – № 10. – С. 20–27.
23. Beahm E. C., Weber C. F., Kress T. S. et. al. Iodine chemical forms in LWR severe accidents: Fin.Report / U.S. Nucl. Reg. Comm.– Washington, 1992. – 32p.
24. Двухименный В. А., Столяров Б. М., Черный С. С. Системы очистки воздуха от аэрозольных частиц на АЭС. – М.: Энергоатомиздат, 1987. – 88 с.
25. Водовозова И. Г., Диденко Л. Г. Характеристика газоаэрозольных выбросов БелАЭС // Радиационная безопасность и защита АЭС: сб.статей. – М. : Энергоатомиздат, 1984. – № 8. – С. 188–193.
26. Крицкий В. Г., Ампелогова Н. И., Крупенникова В. И. и др. Анализ эффективности йодных угольных адсорберов в системах спецвентиляции АЭС с РБМК-1000 // Атомная энергия. – 1997. –№ 1(83). – С. 44–49.
27. Борисов Н. Б., Огородников Б. И., Скитович В. И. и др. Оценка физико-химических характеристик радиоактивного загрязнения воздушной среды в районе ПО «Маяк» // Сб. материалов научно-технического семинара «РАО-95». – Сергиев-Посад, 1995. – С.12–15.
28. Treatment, Conditioning and Disposal of Iodine-129: Technical Reports Ser. № 276. Vienna (IAEA). – Vienna, 1987.
29. Кулюхин С. А. Фундаментальные и прикладные аспекты химии радиоактивного йода в газовой и водных средах // Успехи химии. – 2012. – № 10 (81). – С. 960–982.
30. Туркин А. Д. Дозиметрия радиоактивных газов. – М. : Атомиздат, 1973. – 160 с.
31. Борисов Н. Б. Исследование и разработка СФМ для улавливания и анализа радиоактивных изотопов йода // АНРИ. – 2000. – № 4. – С. 4–13.
32. Koscheev A. P., Serzhantov A. E., Shepelev A. D. Surface chemistry and sorption properties of chemically modified carbon fibers from polymer blend precursor // J. filtration society. – 2002. – № 5. – P. 142–146.

33. Ровный С. И., Пятин Н. П., Истомин И. А. Улавливание йода-129 при переработке облученного ядерного топлива энергетических установок // Атомная энергия. – 2002. № 6 (92). – С. 496–497.
34. Патент Российской Федерации RU2288514. Ровный Сергей Иванович (RU); Пятин Николай Петрович (RU); Истомин Игорь Александрович. Патентообладатель: Федеральное государственное унитарное предприятие «Производственное объединение «Маяк», 2005.05.11.
35. Lebel L. S., Dickson R. S., Glowa G. A. Radioiodine in the atmosphere after the Fukushima Dai-ichi nuclear accident // J. of Environ. Radioactivity. – 2016. – № 151. – P. 82–93.
36. Цовьянов А. Г., Карев А. Е. Метод и устройство для измерения объемной активности газовой и аэрозольной фракций радиоактивных аэродисперсных систем // Саратовский научно-медицинский журнал. – 2013. – № 4 (9). – С. 821–824.
37. Рачинский В. В. Введение в общую теорию динамики сорбции и хроматографии. – М. : Наука, 1964. – 137 с.
38. Артеменкова Л. В. Радиометрия йода / Л. В. Артеменкова. – М. : АЭ СССР, 1964. – 156 с.
39. Wilhelm J.G. Iodine Filters in Nuclear Power Stations Laboratorium für Aerosolphysik und Filtertechnik. – Karlsruhe, 1977. – 153 p.
40. Фукс Н. А. Механика аэрозолей. – М. : Изд-во АН СССР, 1955. – 351 с.
41. Райст П. Аэрозоли, введение в теорию. – М. : Мир, 1987. – 278 с.
42. Hinds W.C. Aerosol Technology: Properties, Behavior, and Measurement of Airborne Particles. – New York: John Wiley & Sons, 1999. – 504 p.
43. Архипов В. А. Аэрозольные системы и их влияние на жизнедеятельность / В. А. Архипов, У. М. Шереметьева. – Томск, 2007. – 136 с.
44. Колмогоров А. Н. О логарифмически-нормальном законе распределения размеров частиц при дроблении // Доклады АН СССР. – 1941. – № 2 (31). – С. 99.

45. Загайнов В. А. Исследование дисперсного состава и концентрации инертных атмосферных аэрозолей в 30-км зоне ЧАЭС в июле 1986 г. / В. А. Загайнов, С. Л. Чуркин, Б. И. Огородников // Охрана окружающей среды, вопросы экологии и контроль качества продукции: науч.-техн. реферат. сб. – М. : НИИТЭХИМ, 1992. № 1. – С. 25.
46. Коузов П. А. Основы анализа дисперсного состава промышленных пылей и измельченных материалов. Изд 3-е., перераб. – Л. : Химия, 1987. – 264 с.
47. Junge C. Air Chemistry and Radioactivity. – N.Y. : Academic Press, 1963. – 255 p.
48. Корпусов В. И., Огородников Б. И., Кириченко В. Н. Измерение коэффициента диффузии атомов RaA методом осаждения из ламинарного потока // Атомная энергия. – 1964. – № 3 (17). – С. 221–222.
49. Holub R. F., Knutson E. O., Solomon S. Tests of the graded wire screen technique for measuring the amount and size distribution of unattached radon progeny // Radiation protection dosimetry. – 1988. – № 1–4 (24). – P. 265–268.
50. Postendorfer J., Reineking A. Indoor behavior and characteristics of radon progeny // Radiation protection dosimetry. – 1988. – № 1–4 (45). – P. 303–311.
51. Porstendorfer J. Radon: measurement related to dose. // Environmental International. – 1996. – № 22 (1). – P. S563–S583.
52. Porstendorfer J. Physical parameters and dose factors of the radon and thoron decay products // Radiation Protection Dosimetry. – 2001. – № 4 (94). – P. 365–373.
53. Бастриков В. В., Хохряков В. В., Жуковский М. В. Моделирование спонтанного распыления радионуклидов с поверхности частиц диоксида плутония // Вопросы радиационной безопасности. – 2012. – № 2. – С. 3–10.
54. Огородников Б. И. Дисперсность радиоактивных аэрозолей на рабочих местах // Атомная техника за рубежом. – 2000. – № 11. – С. 12.

55. Dorrian M. D. Particle size distributions of radioactive aerosols in workplaces / M. D. Dorrian, M. R. Bailey // *Radiation Protection Dosimetry*. – 1995. – № 2 (60). – P. 119–133.
56. Огородников Б. И., Скитович В. И. Применение метода многослойных фильтров для контроля дисперсности радиоактивных аэрозолей АЭС // *Изотопы в СССР*. – М.: Энергоатомиздат. – 1987. – № 72 (1). – С. 107–109.
57. Будыка А. К. Радиоактивные аэрозоли Чернобыльского генезиса / А. К. Будыка, Б. И. Огородников // *Журнал физической химии*. – 1999. – № 2 (73). – С. 375–384.
58. Rulík P. The radioactive aerosol particle size distribution in the air effluents from nuclear power plants obtained by the use of cascade impactor// *National Radiation Protection Institute, Czech Republic, 2015*.
59. Bartz H., Fissan H. Size and activity distributions of aerosols in the turbine building of a boiling-water-reactor plant // *J. of Aerosol Science*. – 1985. – № 5 (16). – P. 437–442.
60. Чеботина М.Я., Пономарева Р.П., Трапезников А.В. Дисперсность частиц плутония в производственных процессах и окружающей среде. – АкадемНаука, 2017. – 211 с.
61. Andersen B. V. Plutonium air concentrations and particle size relationships in Hanford facilities. Report BNWL-495, UC-41 / B.V. Andersen, I.C. Nelson // *Health and Safety. Pacific Northwest Laboratory, Richland, 1967*. – 41 p.
62. Будыка А. К., Федоров Г. А. Определение дисперсного состава радиоактивных аэрозолей в технологических системах исследовательских реакторов. // *Изотопы в СССР*. – М. : Энергоатомиздат. – 1987. № 72(1). – С. 113–116.
63. Екидин А. А., Васянович М. Е., Капустин И. А., и др. Совершенствование методов контроля йода-131 в выбросах атомных станций, // *Вопросы радиационной безопасности*. – 2016. – Т. 83, № 3. С. 17–24.

64. Екидин А. А. Васянович М. Е., Марков Д. В. и др. Определение физико-химических форм изотопов йода в вентиляционной системе реакторной установки ИВВ-2М, // Атомная энергия. – 2016. – Т. 121, № 4. С. 237–239.
65. Теплов П. Л., Шапошников Б. Г., Грошев И. М. и др. Исследование радиационной обстановки на Чернобыльской АЭС после аварии / Чернобыль-88. Доклад 1. Всесоюзные науч.-техн. совещания по итогам ликвидации последствий аварии на Чернобыльской АЭС. – Чернобыль, 1989. – Т.1. – 133 с.
66. Tammet H. Observation of condensation of small air ions in the atmosphere / H. Tammet J., Salm H. Iher // Lecture Notes in Physics. – 1988. – № 309. – p. 239–240.
67. Беляев С. П., Никифорова Н. К., Смирнов В. В. и др. Оптико-электронные методы изучения аэрозолей. – М. : Энергоиздат, 1981. – 232 с.
68. Marple V. A. History of Impactors – The First 110 Years // Aerosol Science and Technology. – 2004. – № 3 (38). – P. 247–292.
69. Picknett R. G. A new method of determining aerosol size distributions from multistage sampler data // Aerosol Science. – 1972. – № 3. – P. 185–198.
70. Крамер-Агеев Е. А., Цовьянов А. Г., Фертман Д. Е. и др. Моделирование и разработка импактора-фантома респираторного тракта человека // АНРИ. – 2013. – №3. – С. 52–59.
71. Fuchs N. A. Aerosol impactors (areview) / Ed. D. T. Shaw., N. Y. Wiley // In Fundamental of Aerosol Science. – 1978. – P. 1–81.
72. Marple V. A., Willeke K. Inertial Impactors: Theory, Design and Use. In Fine Particles / Ed. by H. Liu // Academic Press. – 1976. – P. 411–446.
73. Vincent J. H. Aerosol sampling. Science, standarts, instrumentation and applications. – New York: John Wiley & Sons Ltd, 2007. – 636 p.
74. Hering S.V. Size selective sampling for atmospheric aerosols. / Tut. № 17 presented at 1995 Ann. Meeting AAAR, 1995. – 69 p.

75. Будыка А. К., Припачкин Д. А., Хмелевский В. О. и др. Моделирование и экспериментальное исследование осаждения аэрозолей в персональном импакторе // АНРИ. – 2009. – № 3. – С. 27–37.
76. Будыка А. К. Развитие основ метода многослойных фильтров для дисперсного анализа реакторных аэрозолей: автореф. дис. канд. физ.-мат. наук: – М. : МИФИ, 1986. – 24 с.
77. Огородников Б. И., Скитович В. И., Будыка А. К. Дисперсный состав искусственных и естественных радиоактивных аэрозолей в 30-км зоне ЧАЭС в 1986–1996 гг. // Радиационная биология. Радиозология. – 1998. – № 6 (38). – С. 889–892.
78. Огородников Б. И., Будыка А. К., Скитович В. И. и др. Характеристики аэрозолей пограничного слоя атмосферы над Москвой // Известия АН ФАО. – 1996. – № 2 (32). – С. 163.
79. Петрянов И. В., Козлов В. И., Басманов П. И. и др. Волокнистые фильтрующие материалы ФП. – М. : Знание, 1968. – 79 с.
80. Капустин И. А., Филатов Ю. Н., Филатов И. Ю. и др. Особенности мониторинга радиоактивных аэрозолей и газов. Тенденции развития аналитических фильтрующих материалов // Вопросы радиационной безопасности. – 2016. – № 3. – С. 36–41.
81. Knutson E. O. History of Diffusion Batteries in Aerosol Measurements // Aerosol Science and Technology. – 1999. – № 2 (31). – P. 83–128.
82. Cheng Y. S., Yeh H. C., Brinsko K. J. Use of wire screens as a fan model filter // Aerosol science and technology. – 1985. – № 2 (4). – P. 165–174.
83. Cheng Y. S., Keating J. A., Kanapilly G. M. Theory and calibration of a screen-type diffusion battery // J. of aerosol science. – 1980. – № 5–6 (11). – P. 549–556.
84. Shimo M., Saito H. Size distribution of radon progeny aerosols in indoor and outdoor air // Journal of environmental radioactivity. – 2000. – № 1 (51). – P. 49–57.

85. Li C.-S., Hopke P. K. Characterization of radon decay products in a domestic environment // *Indoor air*. – 1991. – № 4 (4). – P. 539–561.
86. Barr E. B., Cheng Y.-S., Yeh H.-C. et al. Size characterization of carbonaceous particles using a lovelace multijet cascade impactor/parallel-flow diffusion battery serial sampling train // *Aerosol science and technology*. – 1989. – № 1 (10). – P. 205–212.
87. Cooper D. W., Wu J. J. The inversion matrix and error estimation in data inversion: application to diffusion battery measurements // *J. of aerosol science*. – 1990. – № 2 (21). – P. 217–226.
88. Paatero P., Tapper U., Aalto P. et al. Matrix factorization methods for analyzing diffusion battery data // *J. of aerosol science*. – 1991. – № 1 (22). – P. S273–S276.
89. Koutsenogil P. Reconstruction of aerosol size distributions with diffusion battery TSI 3040 // *J. of aerosol science*. – 1994. – № 1 (25). – P. S543–S544.
90. Tokonami S., Fukutsu K., Yamada Y. et al. Particle size measurement of radon decay products using MOUDI and GSA // *International Congress Series*. – 2005. – № 1276 (1). – P. 278–280.
91. Chen T. R., Tung C. J., Cheng Y. S. Nanometer particle size and concentration from thoron radiolysis // *Aerosol science and technology*. – 1998. – № 2 (28). – P. 173–181.
92. Cheng Y. S., Su Y. F., Newton G. J. et al. Use of a graded diffusion battery in measuring the activity size distributions of thoron progeny // *J. of aerosol science*. – 1992. – № 4 (23). – P. 361–372.
93. Cheng Y.S., Chen T.R., Yeh H.C. et al. Intercomparison of activity size distribution of thoron progeny and a mixture of radon and thoron progeny // *J. of Environ. Radioactivity*. – 2000. – № 1 (51). – P. 59–78.
94. Rammamurthy M., Hopke P. K. Simulation studies of reconstruction algorithms for the determination of optimum operating parameters and resolution of graded screen array systems (Nonconventional diffusion batteries) // *Aerosol science and technology*. – 1990. – № 3 (12). – P. 700–710.

95. Fukutsu K., Yamada Y., Tokonami S. et al. Newly designed graded screen array for particle size measurements of unattached radon decay products // *Review of scientific instruments*. – 2004. – № 3 (75). – P. 783–788.
96. Langhorst, S., Morris, Y., Miller, W. Analysis of loading iodine into charcoal Filters // *Trans. Amer. Nucl. Soc.* – 1981. – № 11/12 (39). – P. 100–107.
97. Нахутин И. Е., Смирнова Н. М., Лаушкина Г. А. и др. Адсорбция паров радиоактивного йода из воздуха // *Атомная энергия*. – 1969. – № 4 (26). – С.390–394.
98. Нахутин И. Е., Очкин В. Д., Смирнова Н. М. и др. Газоочистка и контроль газовых выбросов АЭС. – М.: Энергоатомиздат, 1983. – 24 с.
99. Диденко Л. Г., Фатькин А. Г. О физико-химических формах ^{131}I в газоаэрозольных выбросах БАЭС // *Радиационная безопасность и защита АЭС: сб. ст.* – М.: Энергоатомиздат. – 1985. – № 9. – С.146–151.
100. Рогозина М. А., Жуковский М. В., Екидин А. А. Интерпретация данных с диффузионной батареи экранного типа с последовательным расположением улавливающих элементов // *Приборы и техника эксперимента*. – 2013. – № 6. – С.74–76.
101. Zhukovsky M. V., Rogozina M. A., Suponkina A. N. Size distribution of radon decay products in the range 0.1–10 nm // *Radiation Protection Dosimetry*. – 2014. – № 1–3 (160). – P.192–195.
102. Maher E. F., Laird N. M. EM algorithm reconstruction of particle size distributions from diffusion battery data // *Journal of aerosol science*. – 1985. – № 6 (16). – P. 557–570.
103. Raabe O. G. A general method for fitting size distributions to multicomponent aerosol data using weighted least-squares // *Environ. science & technology*. – 1978. – № 10 (12). – P. 1162–1167.
104. Федеральная служба по экологическому, технологическому и атомному надзору. Приказ от 7 ноября 2012 года № 639 «Об утверждении Методики разработки и установления нормативов предельно допустимых выбросов радиоактивных веществ в атмосферный воздух». – М., 2012. – 12 с.

105. Определение химических форм йода-131 в выбросах АЭС для расчета новых ПДВ. Технический отчет / под ред. АО «Концерн Росэнергоатом». – М. : Концерн Росэнергоатом, 2015. – 124 с.
106. Ягодковский В. Д. Статистическая термодинамика в физической химии. – М. : Бинум. Лабораторные знания, 2009. – 496 с.
107. Ягодковский В. Д. Адсорбция. – М. : Бинум. Лабораторные знания, 2015. – 216 с.
108. Фукс Н. А., Суругин А. Г. Высокодисперсные аэрозоли // Успехи химии. – 1968. – № 11 (37). С. 1965–1980.
109. Reineking A., Becker K. H., Porstendörfer J. Measurements of activity size distributions of the short-lived radon daughters in the indoor and outdoor environment // Radiation protection dosimetry. – 1988. – № 1–4 (24). – P. 245–250.
110. Gründel M., Reineking A., Porstendörfer J. Studies on the short-lived radon decay products: The influence of the unattached fraction on the measurement of the activity size distribution // Radioactivity in environment. – 2005. – № 7. – P. 420–424.
111. Жуковский М. В. Ярмошенко И. В. Радон: измерение дозы, оценка риска. – Екатеринбург : УрО РАН, 1997. – 231 с.
112. Жуковский М. В., Екидин А. А. Урал и монацит: история, экология, перспектива // Вестник УрО РАН. Наука. Общество. Человек. – 2012. – № 2. – С.11–21.
113. Jim J. L., Kenneth E. N., Thomas M. H. Dry deposition velocities as a function of particle size in the ambient atmosphere // Aerosol Science and Technology. – 2007. – P. 239–252.